



# アラカルト

若手研究者・技術者へのメッセージ-15

## 計算科学の進化と共に歩んだ30年

My 30 Years and the Progress of Computational Materials Science

小野寺秀博

Hidehiro Onodera

(独)物質・材料研究機構  
企画部門評価室 室長



### 1 はじめに

1979年8月に当時の科学技術庁金属材料技術研究所鉄鋼材料研究部に入所し、2011年3月に定年退職した。今は一年ごとに契約更改を行う再雇用の形態であるが、研究も細々と続けている。約30年にわたり、研究生活を続けられたことは本当に幸せであったと痛感している昨今である。研究者を取り巻く環境も大きく変わってしまい、若い人の参考になるとは思えないが、反省の意味でこれまでの研究生活を振り返ってみたいと思う。

### 2 博士論文の苦勞

初めての苦勞は博士論文であった。課題名は「Fe-Ni-C合金の加工誘起マルテンサイト変態に及ぼす応力とひずみの影響」である。マルテンサイト変態時のせん断変形を応力が助けるとするPatelとCohen<sup>1)</sup>の考え方に対して、変形で生じたシアーバンドの交差(BogersとBurgers<sup>2)</sup>の2重シアー))によりマルテンサイトの核ができるとするOlsonとCohen<sup>3)</sup>の提案が出され、注目されていた問題である。Fe-Ni-Cオーステナイト合金で、変形双晶が焼鈍双晶界面と衝突した場所や変形双晶同士の交差点でマルテンサイトが生成しているのを発見し、応力とマルテンサイトの結晶方位との関係を調べようとして悩んでいた。博士課程も2年目になっており、新たに単結晶の実験を開始するのは見通しがたらずに躊躇していたときに、当時、イリノイ大から助手として赴任されたばかりの梅本実先生から「光学顕微鏡による2面解析で方位関係はわかるよ」と重要なヒントを頂いた。このヒントを頂いたおかげで、応力の方向と生成したマルテンサイトの結晶方位の関係を明らかにし<sup>4)</sup>(図1参照)、シアーバンドの交差ではなく、変態時の全変形を応力が助けていることで加工誘起変態が生じていることを実証できた。博士論文を書くことが

でき、就職することができたし、その後、本多記念研究奨励賞という若手研究者を奨励するためのご褒美まで頂いた。研究生活後半ではこのような適切な指導をできれば恩返しにもなるのではないかと考えていたが、一度も実現できなかったのは心残りである。

### 3 超塑性チタン合金の設計

当時の金属材料技術研究所へ入所後は、国の大型研究プロジェクトのメンバーとして、材料開発研究を行った。国家プロジェクト「高性能結晶制御合金」(1981-88年)の一環として、ジェットエンジンのコンプレッサーディスクなどへの応用を目的とした、超塑性変形能に優れ、かつ高温比強度の高いTi合金の開発研究を行った<sup>5)</sup>。Ti合金は軽量で強靱性に富み、かつ耐食性に優れているが加工性に難点があるため、超塑性変形を利用して加工歩留まりの向上を狙った研究開発で



図1 2面解析の例。矢印はマルテンサイトのmid-rib<sup>4)</sup>

ある。超塑性加工には結晶粒径が微細で、高温で成長が遅い組織が有効であり、 $\alpha + \beta$ 型の二相合金が適している。合金を構成する相の割合を超塑性特性の観点から最適化するとともに、使用温度の573 Kにおける引張特性の改善が合金設計の目的である。

現在では、熱力学モデルに基づいて計算により状態図を求めようとするCALPHAD (CALculation of PHase Diagram)の手法が発展し、Thermo-calc<sup>6)</sup>等の商用の計算ソフトの普及により著しい発展を遂げており、実用的な多元系についても精度の高い状態図計算が可能となっている。しかし、当時は自由エネルギーデータベースの整備が不十分で、CALPHAD法を活用できなかったため、1173Kで平衡させた21種類の合金における $\alpha$ 相と $\beta$ 相の分析組成データを用いて重回帰分析を行い、互いに平衡する $\alpha$ 相と $\beta$ 相の組成が満たす条件式を回帰式の形で求める実験的な手法に頼らざるを得なかった。この関係式を用いて両相の量比や固溶元素量を変化させた合金を設計することにより、超塑性Ti合金の開発を試み、従来の合金を上回る性能の合金開発に成功した<sup>5)</sup>(図2参照)。

しかし、重回帰式を用いる方法では汎用性に乏しいので、適用範囲の拡大を目指して熱力学モデルに基づく平衡計算を試みた。Hillertの準正則溶体モデルを用い、報告されていた相互作用パラメータの値を用いることで、重回帰式を用いた場合と同程度の精度で相平衡計算が可能であることがわかった。これを大胆にも「統計熱力学モデルに基づく合金設計」と称して、意気揚々と最初の学会発表に望んだところ、最初の質問が、「短範囲規則度を考慮できない正則溶体モデルをわざわざ選んだ理由は何か？」であった。恥ずかしながら、「短範囲規則度」を知らなかった私は動揺し、その後の質疑応答が大いに乱れたことは言うまでもない。生兵法は怪我の元であ

り、新しいことをはじめる場合、十分な事前調査が必要なことを改めて実感した。しかし、このことを契機として、「短範囲規則度を考慮できる」モデルである、Cluster Variation Method (CVM) やCentral Atoms Model (CAM)<sup>7)</sup>について勉強したことが後の研究に大いに役に立ったので、大変感謝している。

近年では、熱力学モデルの高度化と自由エネルギーデータベースの充実により、複雑な多元系実用合金の状態図を精度良く再現できるため、CALPHAD法は鉄鋼材料等の開発現場で活用され、実験に要する多大な労力と費用の節約に大いに貢献している。

## 4 フェライト系耐熱合金の長時間クリープ強度支配因子の解明

先に述べた「短範囲規則度」を考慮できる熱力学モデルが大いに役立ったのが、「フェライト系耐熱合金の長時間クリープ強度支配因子の解明」に関する研究であった。木村ら<sup>8)</sup>は、金材技研クリープデータシートを用いてフェライト系耐熱鋼の長時間クリープ強度を解析した結果、高温下での組織変化によりクリープ変形抵抗は時間とともに低下し、最終的に安定な組織と対応する強度レベル(クリープ基底強度)に到達することを指摘した(図3参照)。このクリープ基底強度は炭素量と微量に含まれるのMo量の影響を受けることがわかってきたため、置換型固溶元素と炭素の原子対の効果があると予想し、Mo, Mn, Cr等の微量元素量の異なる16種類の0.2mass% C及び0.3mass% C炭素鋼について、試験温度の773 Kにおけるフェライト相の組成をThermo-calcを用いて計算した。さらに、フェライト固溶体におけるM-C原子対の存在割合をCAMを用いて求め、クリープ破断強度と

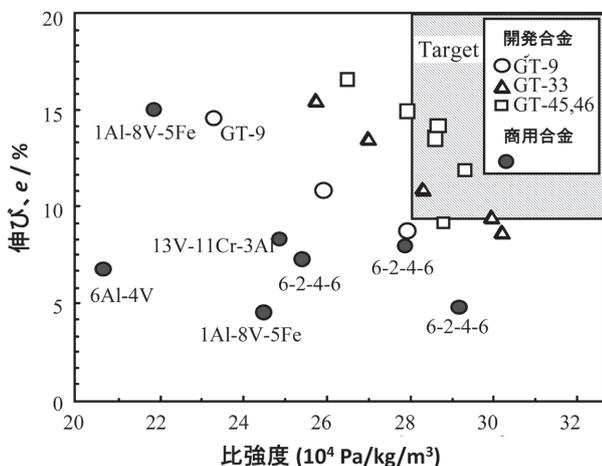


図2 開発合金及び既存商用合金の573K、歪速度 $3 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ における引張特性<sup>5)</sup>

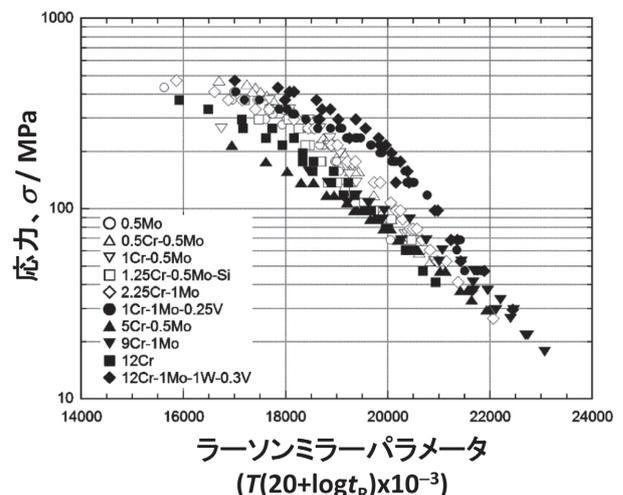


図3 フェライト系耐熱鋼の応力とラーソンミラーパラメータの関係<sup>8)</sup>

の関係について検討した。その結果、Mn-C、Mo-C原子対濃度 (atppm) と長時間クリープ強度 (寿命) の間に良い相関が認められ (図4参照)、フェライト中に固溶したMnとMoが侵入型固溶元素のCと原子対を形成し、高温・長時間での強化に寄与していると考えられた。また、炭素鋼の基底クリープ強度が微量のMo量に依存して増大するが、その効果は0.03mass% (0.015at%) Moで飽和する事実もMn-C及びMo-C原子対濃度の両者が0.03mass%Moで飽和することに対応しており (図5参照)、フェライト中の各元素の固溶限に起因している。以上の結果から、炭素鋼の基底クリープ強度はMnやMoとCの原子対によって支配されているものと結論付けた<sup>9)</sup>。

この研究は、当時の金属材料技術研究所で長期間にわたる膨大なクリープデータの蓄積と豊富な知見を有するグループとの共同研究であった。当時流行したエコマテリアルに関するプロジェクト研究で、何でも低炭素化や省エネルギーと結びつける傾向のはしりである。このような機会に遭遇するこ

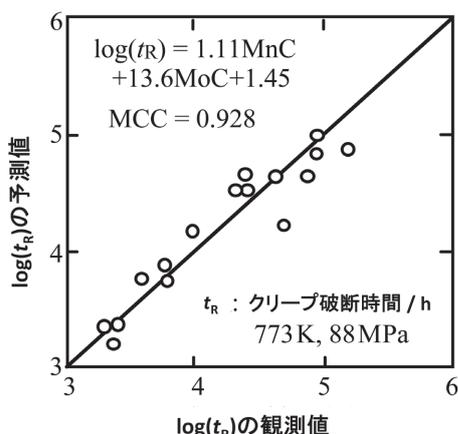


図4 クリープ破断寿命 (h) の観測値と予測値の相関<sup>9)</sup>

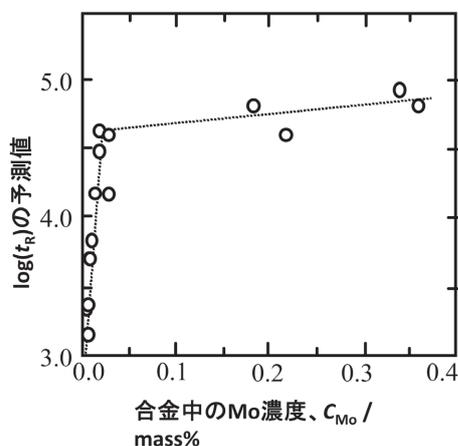


図5 クリープ破断寿命 (h) の観測値と予測値と合金のMo量との関係<sup>9)</sup>

とは幸運であったともいえるが、やはり、単独で行うよりも良い研究課題に巡り合う機会にはるかに多いと思う。年々研究の分野が細分化されてますます専門性が高く、高度化しており、全てを一人でこなすことは不可能になってきている。専門性を高めることは不可欠であるが、同時にお互いの得意な分野を結びつけた実用的な共同研究も必要と思う。

## 5 動的組織形成過程の解明

合金材料中における組織形成過程の解析と予測を行うには変化の動的過程を記述することが不可欠である。これまで、平衡論に基づく状態図計算を中心として研究を行ってきたが、室長となってグループ研究を担当してからは、原子や分子のスケールで現象の解明や予測を行える分子動力学 (MD) 法を用いた相変態や金属ガラスの構造解析に関する研究を進めた。

微粒子におけるマルテンサイト変態開始温度のサイズ依存性<sup>10)</sup> や、表面で渦状の原子の集団運動が起きており、これが変態核の発生に寄与しているとの知見<sup>11)</sup>、未解明であった金属ガラスの微細構造に関して、正20面体構造クラスターが互いに連結したネットワーク構造がいわゆる中距離秩序構造の本質であること<sup>12)</sup>などを明らかにできた。

更に、組織の形態を濃度や規則度等の複数の変数を用いて表現し、その時間・空間変化を発展方程式に基づいて計算できるPhase-Field法を用いて、溶接材料、ナノ軟磁性材料、磁気記録媒体、強磁気性形状記憶合金等について、組織予測に関する系統的な研究を進めた。鉛フリーはんだにおけるリフトオフと呼ばれる剥離現象の原因解明<sup>13)</sup>、FePtナノグラニューラー組織の組織形成過程の解明<sup>14)</sup>など先端材料開発の現場からの要請に答える課題が多かった。

当初は、平衡論に基づく状態図計算を中心として材料開発を効率的に進めるための道具としての合金設計法の研究を進めてきて、やはり最終的には組織変化や特性発現の動的な機構を取り扱う必要性を強く感じていた。しかし、極めて専門性の高い計算科学手法を自分自身でやるのは不可能であり研究の展開に限界を感じていたが、幸い、これらの手法に精通した研究者にグループメンバーとして加わってもらえることができた。これらの研究はそのグループメンバーを中心として進められたものである。

## 6 おわりに

合金開発、合金設計の研究に30年以上携わってきた<sup>15-17)</sup>。研究を始めた頃には使える状況になかった状態図計算手法が、今では市販のソフトウェアで高精度の計算が可能にな

り、多くの材料開発や研究の現場で活用されており、隔世の感がある。熱力学データの測定値がない場合、あるいは安定に存在しないため測定できない場合を中心に、状態図計算にも第一原理計算が活用されるようになってきた<sup>18-19)</sup>。また、Phase-field法が登場し、析出、相変態などの様々な材料組織形成の素過程を見事に予測するのを目にすると、様々な特性をもたらす組織形成と特性発現の理論的なシミュレーションが、材料設計の実現可能なツールと成り得ることを実感する。

計算科学手法は様々な材料現象の機構解明に有効であり、材料開発の現場からの共同研究の要請も多い。最近、当初から研究計画の中に計算科学手法が組み込まれたプロジェクト研究が増えているように思われる。これらの手法はみな高度な専門性を必要とするため全てを一人で実行することは不可能である。実験グループとの連携も積極的に進め、気心の知れた仲間を増やして、有効に活用してほしいと思う。

#### 参考文献

- 1) J.R.Patel and M.Cohen : Acta Metall., 1 (1953) , 531.
- 2) A.J.Bogers and W.G.Burgers : Acta Metall., 12 (1964) , 255.
- 3) G.B.Olson and M.Cohen : J. Less-Common Metall., 28 (1972) , 607.
- 4) 小野寺秀博, 岡弘, 田村今男: 日本金属学会誌, 42 (1978) , 898.
- 5) 小野寺秀博, 山崎道夫 : 鉄と鋼, 76 (1990) , 307.
- 6) B.Sundman, B.Jansson and J.-O.Andersson : CALPHAD, 9 (1985) , 153.
- 7) E-H.Foo and C.H.P.Lupis : Acta Metall., 21 (1973) , 1409.
- 8) 木村一弘, 九島秀昭, 八木晃一, 田中千秋 : 鉄と鋼, 77 (1991) , 667.
- 9) 小野寺秀博, 阿部太一, 大沼正人, 木村一弘, 藤田充苗, 田中千秋 : 鉄と鋼, 81 (1995) , 49.
- 10) M.Shimono, T.Suzuki and M.Wutting : Scripta Mater., 44 (2001) , 1979.
- 11) T.Suzuki, M.Shimono and S.Takeno : Phys. Rev. Lett., 82 (1999) , 1474.
- 12) M.Shimono and H.Onodera : Materials Science Forum, 539-543 (2007) , 2031.
- 13) M.Ode, T.Koyama, H.Onodera and T.Suzuki : J. Electric Mater., 32 (2003) , 1534.
- 14) 小山敏幸, 小野寺秀博 : 日本金属学会誌, 68 (2004) , 1008.
- 15) 小野寺秀博 : 第199回西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会, (2009) , 111.
- 16) 小野寺秀博 : ふえらむ, 14 (2009) , 513.
- 17) 小野寺秀博, 阿部太一, 大出真知子, 諏訪嘉宏, 小山敏幸, 下野昌人 : まてりあ, 50 (2011) , 3.
- 18) H.Ohtani, Y.Takeshita and M.Hasebe : Materials Trans., 45 (2004) , 1499.
- 19) T.Abe, Y.Chen, Y.Yamabe-Mitarai and H.Numakura : Computer Coupling of Phase Diagrams and Thermochemistry, 32 (2008) , 353.

(2013年1月21日受付)