



躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

組織シミュレーションと材料パラメータ推定

Microstructure Simulation and Estimation of Material Parameters

塚田祐貴

Yuhki Tsukada

名古屋大学

大学院工学研究科 材料デザイン工学専攻

准教授

1 はじめに

筆者が所属する計算組織学研究グループでは、フェーズフィールド (PF) 法やマイクロメカニクスなどに基づいた組織形成解析手法を構築し、組織形成メカニズムの解明および組織設計指針の提示を目的とした研究を実施している。PF法では、組織の全エネルギー緩和過程を解析することで組織形成ダイナミクスが再現される¹⁾。固相変態の組織形成を対象とする場合、全エネルギーの主要な成分は、化学的エネルギー、勾配エネルギー (粒界・界面エネルギーに対応)、弾性ひずみエネルギーである。CALPHADのギブスエネルギー評価法²⁾やマイクロメカニクスの弾性ひずみエネルギー評価法^{3,5)}に基づいて、材料組織を記述する場の変数 (濃度場、フェーズフィールド、規則度場など) の汎関数形式にて全エネルギーを定式化することができる。PFシミュレーションで組織形成を予測するためには、ギブスエネルギーの熱力学パラメータ、粒界・界面エネルギー、粒界・界面モビリティ、拡散係数、弾性定数、eigenひずみ^{3,5)}の算出に必要な格子定数や結晶格子対応などの材料パラメータの情報が必要である。

拡散変態を例にとると、平衡状態に向かって状態変化が進行する際、粒界・界面の移動、ポテンシャル勾配に従った合金元素の分配 (原子拡散) が生じる。PF法を用いると、粒界・界面エネルギー、粒界・界面モビリティ、拡散係数、eigenひずみなどの材料パラメータの値によって全エネルギー緩和過程が変化して組織形成に違いが現れる様子をシミュレートすることができる。すなわち、組織シミュレーションにより、材料パラメータが組織形成に及ぼす影響 (感度) を理解することができる。また、組成・プロセス条件の違いが材料パラメータを変化させ、その結果、組織形成に違いが生じることから、組成・プロセス-材料パラメータ-組織形成の関係を理解する上でもPFシミュレーションは有効である。

筆者は現在、組織形成メカニズムの解明を目的とした研究

に加えて、データ科学の手法を活用して組織の実験データから材料パラメータの情報を抽出する研究も実施している。本稿では、一連の研究内容について、簡単にご紹介させていただく。

2 ニッケル基単結晶超合金の析出相形態変化

ニッケル基単結晶超合金は、fcc母相 (γ) にL1₂型の規則相 (γ') が立方体状に整合析出した組織を有し、優れた高温特性を示す⁶⁾。[001] 方向への高温引張クリープにおいて、 γ' 相が応力軸に垂直方向に粗大化して板状組織を形成する「ラフト化」と呼ばれる現象が生じる。ラフト化のメカニズムに関してこれまでに様々な議論があったが、 γ 相に非弾性ひずみが導入されることで組織内に弾性ポテンシャル勾配が生じ、その結果、原子拡散によってラフト化が生じることが明らかとなっている⁷⁾。筆者らは、原子拡散と γ 相のクリープを考慮してPFモデルを構築した⁸⁾。商用合金CMSX-4の1273 K-160 MPaクリープにおける組織変化を予測した結果をFig.1に示す⁹⁾。時間の経過とともに γ' 相の形状が立方体状から板状へと変化している。ラフト化の過程で隣接する γ' 相同士が連結する際、一時的に内部応力が高くなり γ 相のひずみ速度が大きくなることがわかる ($t=9.4-9.8$ h)。外部応力条件を変えたシミュレーションも実施しており、ラフト化には0.12-0.16%のクリープひずみが必要であること、クリープひずみ導入後は外部応力の存在がラフト化を遅滞させていることなどが明らかになっている¹⁰⁾。

外部応力の値や γ/γ' の格子ミスマッチ、 γ 相の降伏応力、拡散モビリティなどの材料パラメータの値によって、ラフト化が生じるまでの時間 (ラフト化時間) が変化する。外部応力や材料パラメータの値が異なるPFシミュレーション結果をニューラルネットワークに学習させると、外部

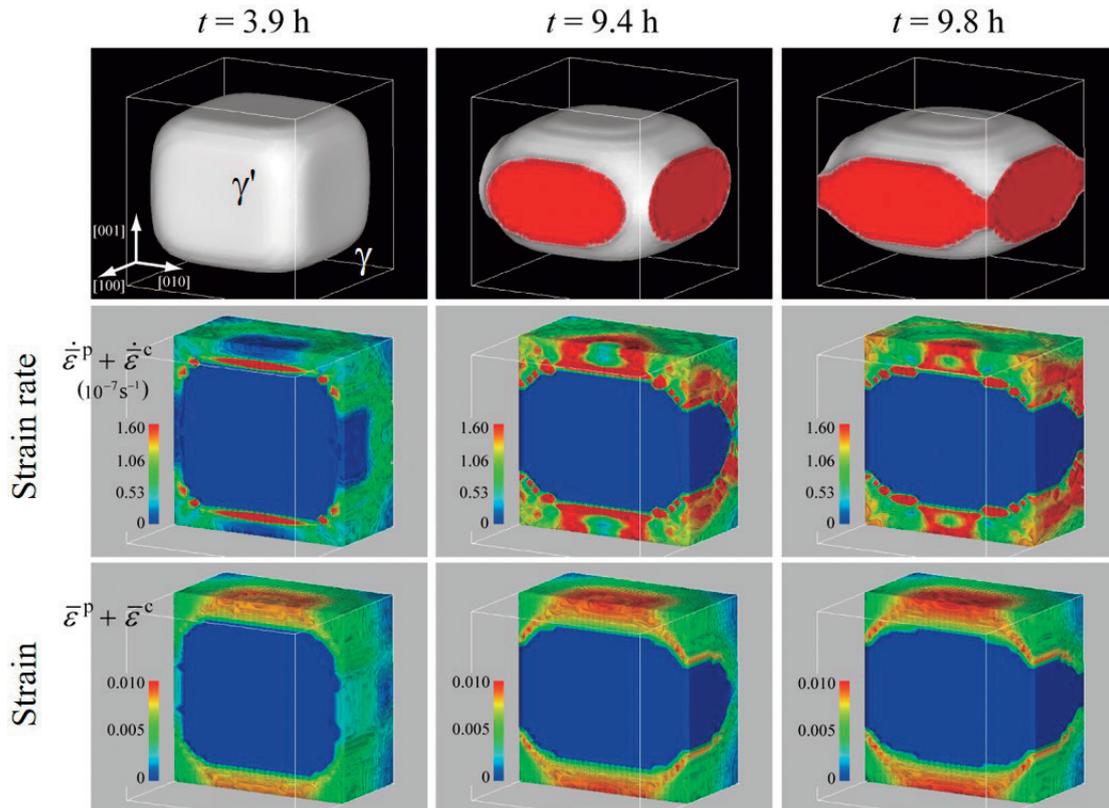


Fig.1 Phase-field simulation results of rafting in CMSX-4 alloy at 1273 K under a tensile stress of 160 MPa along the [001] direction⁹⁾. (Reprinted from Comput. Mater. Sci., Vol. 83, Y. Tsukada, T. Koyama, Y. Murata, N. Miura, Y. Kondo, Estimation of γ/γ' diffusion mobility and three-dimensional phase-field simulation of rafting in a commercial nickel-based superalloy, pp.371-374, 2014, with permission from Elsevier).

応力や材料パラメーターの値からラフト化時間を高精度かつ高速に予測することが可能となる¹¹⁾。歴代のニッケル基単結晶超合金の材料パラメーターを見積もり、温度 1273 K、外部応力 130–190 MPa の条件でラフト化時間を予測した結果、高応力条件においてラフト化時間とクリーブ破断時間の間に正の相関があることが明らかになった¹²⁾。この結果は、ニッケル基超合金の開発が高温・短時間クリーブにおけるラフト化を遅滞させる方向に進められてきたことを示唆している。しかし、外部応力が低くなるにつれてラフト化時間とクリーブ破断時間の相関が弱くなる¹²⁾ ことから、高温・長時間クリーブの破断時間はラフト化だけでなくラフト化以降の組織変化（ラフト構造の崩壊や γ 相の転位網の形成など）によっても変化すると推察される。このような知見は、次世代合金の組織設計指針の一助となることが期待される。

3 鉄鋼のマルテンサイト変態およびパーライト変態

低炭素鋼のマルテンサイト変態においては、高密度の転位が導入され、オーステナイト相 (γ) とマルテンサイト相 (α')

の間に晶癖面が形成することが知られている¹³⁾。晶癖面の形成はマルテンサイト変態の弾性ひずみエネルギーの緩和に有利である。一方で、マルテンサイト変態における転位の導入によっても弾性ひずみエネルギーは緩和される。筆者らは、マルテンサイト変態に伴う格子変形 (fcc \rightarrow bct) と α' 相の $\{101\}\langle 111 \rangle_{\alpha'}$ 系のすべりに起因するひずみを考慮して PF モデルを構築した。Fe–0.1 mass% C のマルテンサイト変態をシミュレートした結果を Fig.2 に示す¹⁴⁾。 α' 相の 3 つの正方晶バリエント (Bain バリエント) が出現し、 α' 相が $(111)_{\gamma}$ に沿って生成する結果が得られている。なお、 α' 相のすべりを考慮しないシミュレーションでは、 $(111)_{\gamma}$ 晶癖面の形成は再現されない。 α' 相の $\{101\}\langle 111 \rangle_{\alpha'}$ 系のすべりに加えて γ 相の $\{111\}\langle 110 \rangle_{\gamma}$ 系のすべりに起因するひずみを考慮したシミュレーションも実施しており、 α' 相が $(111)_{\gamma}$ に沿って生成するだけでなく、Bain バリエントの界面も $(111)_{\gamma}$ に沿って生成する結果が得られている¹⁵⁾。このように、考慮する因子 (α' 相や γ 相のすべり) を変えた PF モデルを構築することで、各々の因子が組織形成に及ぼす影響を明らかにすることができる。

鉄鋼のパーライトは、共析変態によってオーステナイト

相 (γ) からフェライト相 (α) とセメンタイト相 (θ) が層状に析出した組織である¹³⁾。 α 相と θ 相の協調成長には、 α 相から θ 相への炭素拡散が必要であり、この炭素拡散がパーライト変態を律速する。炭素の拡散経路には、 γ 相の侵入型体拡散、 α 相の侵入型体拡散、パーライト ($\alpha+\theta$) 先進界面の界面拡散がある。筆者らは、すべての炭素拡散経路を考慮してパーライト変態のPFモデルを構築した。Fe-C系の923 Kにおける等温パーライト変態をシミュレートした結果を

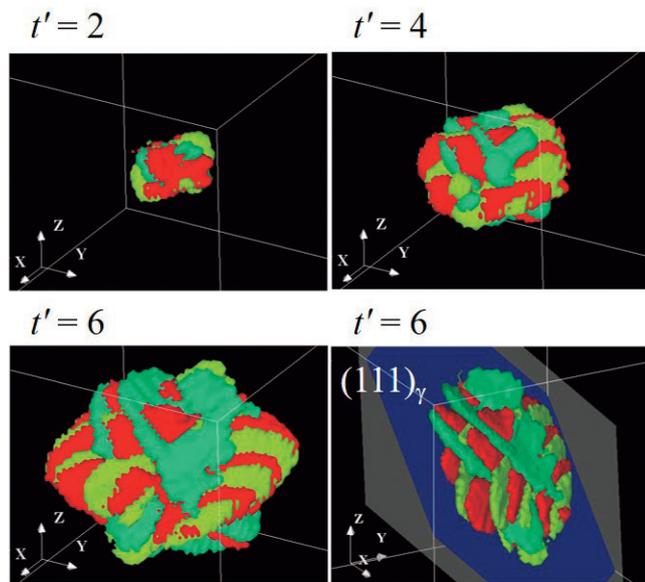


Fig.2 Phase-field simulation results of martensitic transformation in Fe-0.1 mass% C at 300 K. The system size is $522 \times 522 \times 522$ nm³. Three different colors represent three tetragonal variant domains of the α' phase. The blue-colored plane inserted in the bottom-right figure is (111) $_{\gamma}$ plane. The t' denotes the dimensionless time in numerical analysis¹⁴⁾.

Fig.3に示す¹⁶⁾。 α 相と θ 相が協調成長し、パーライト先進界面近傍の γ 相において炭素濃度が高くなっている。パーライトのラメラ間隔を変えたシミュレーションにより、パーライト成長速度の最大値とそのときのラメラ間隔を予測することができる。ただし、シミュレーションで予測されたパーライト成長速度は実験値¹⁷⁾に比べて小さく、今後、炭素拡散流速の組成依存性を厳密に考慮したシミュレーションが必要である¹⁶⁾。温度条件を変えたシミュレーション結果をパーライト成長速度とラメラ間隔の関係に関する実験結果と比較することで、パーライト先進界面の界面拡散係数を見積もることができる。界面拡散係数の値がわかると、各温度におけるパーライト成長に対する体拡散流速および界面拡散流速の寄与を見積もることができる¹⁶⁾。

近年、変態完了後のパーライトに弾性ひずみエネルギーが蓄積していることが報告されている¹⁸⁾。筆者らは、上述のPFモデルに弾性ひずみエネルギーを追加し、弾性ひずみエネルギーがパーライト変態に及ぼす影響について解析を進めている。

4 マグネシウム合金の析出物形状と材料パラメーター推定

時効硬化を示すマグネシウム合金においては、板状や棒状のナノスケールの化合物が析出する。分散強化の観点から、析出物の体積率と数密度が同じ条件であれば、hcp母相の底面すべりの障害となる柱面 $\{01\bar{1}0\}$ または $\{2\bar{1}\bar{1}0\}$ 板状析出物が有効である^{19,20)}。著者らは、マイクロメカニクスに基づき析出相の晶癖面と母相/析出相の格子ミスマッチの関係を調査し、柱面板状析出物が形成するための格子ミスマッチ

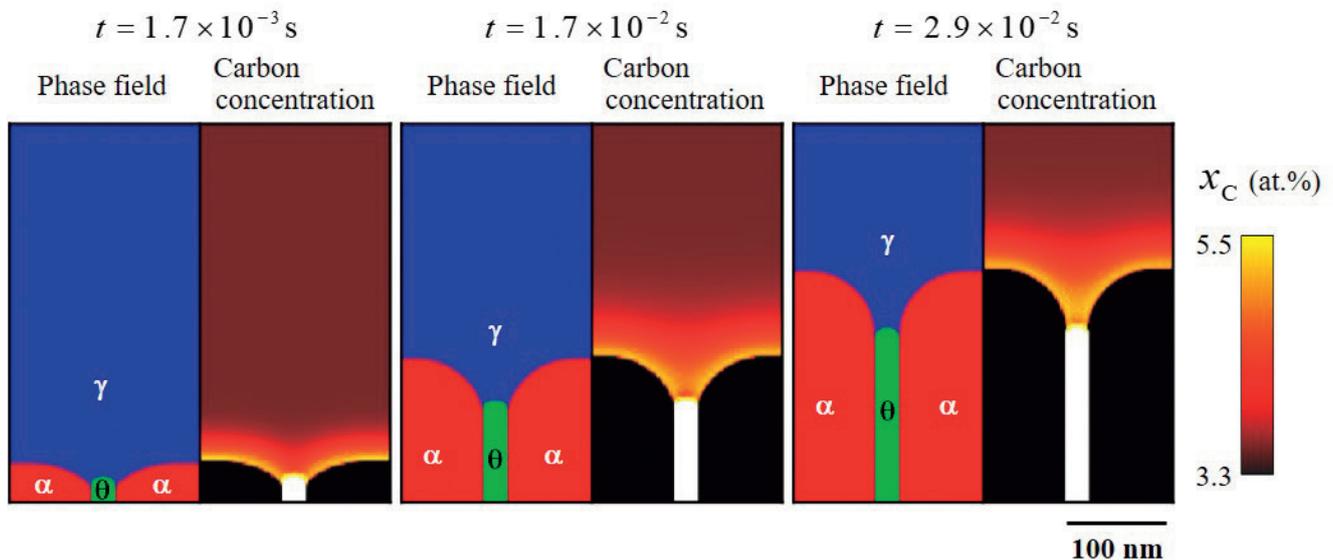


Fig.3 Phase-field simulation results of pearlite transformation in Fe-C system at 923 K. Interlamellar spacing of pearlite is set to 192 nm ¹⁶⁾.

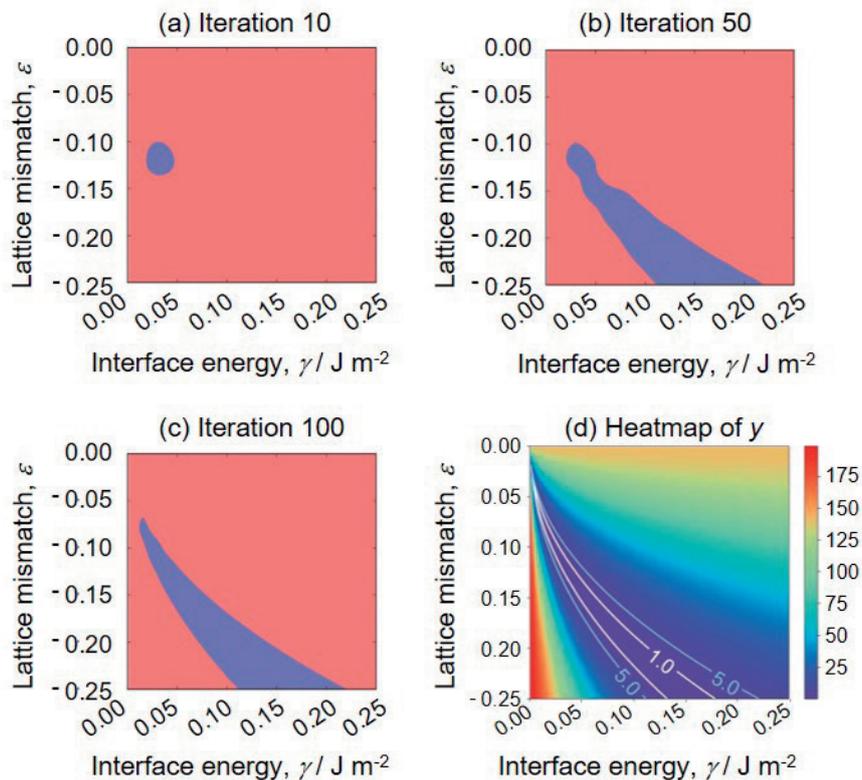


Fig.4 Estimation results of low-error region (LER) in material parameter space (a) - (c) : blue region is the LER, where the discrepancy (y) between the precipitate shape obtained through the experiment and that predicted using a computational model is less than a threshold (h). Here, h is set to 5. The actual heatmap of y is shown in (d) ²³⁾.

の条件を明らかにした²¹⁾。さらに、析出物のアスペクト比が弾性ひずみエネルギーと界面エネルギーのバランスによって決まることに着目し、析出相のエネルギー計算によって材料パラメーター（格子ミスマッチ、界面エネルギー）の値から析出物の平衡形状（板状または棒状析出物のアスペクト比）を予測できることを示した²¹⁾。

マグネシウム合金のナノスケールの析出物については、格子ミスマッチや界面エネルギーの値が不明であることが多い。筆者らは、上述の析出物平衡形状の計算モデルを析出物形状の実験データ（析出物のサイズとアスペクト比）²²⁾にフィッティングすることで、母相/析出相の格子ミスマッチと界面エネルギーの2つの材料パラメーター (\mathbf{x}) の推定を試みた。実験データに誤差が含まれることを考慮し、析出物形状の計算結果と実験データの差 (y) がある閾値以下となる材料パラメーター条件 (low-error region, LER) を推定することとした。しかし、析出物形状の計算モデルのコストが高いため、 \mathbf{x} の条件を網羅的に振ってLERを推定するのは非現実的である。そこで、現在までに得られている計算結果を使ってガウス過程によって \mathbf{x} と y の関係をモデル化することでLERを確率的に推定し、情報獲得量が最大となる \mathbf{x} を次の計算条件とした。これを繰り返すことで析出物形状の実験デー

タからLERを推定した結果をFig.4に示す²³⁾。Fig.4 (a) - (c)の青色領域がLERに対応する。計算回数の増加とともにLERが変化し、100回の計算でほぼLERを推定できていることがわかる (Fig.4 (d)の青色の線が真のLERを表している)。この例では、 \mathbf{x} について $250 \times 250 = 62500$ 通りの条件を設定していたため、ガウス過程モデルによってLER推定に必要な計算コストを $100/62500$ に抑えることができたことになる。さらに、筆者らの最近の研究で、計算精度を下げて計算コストを低くした計算モデルを有効活用することで、さらに効率的なLER推定が可能になることが明らかになっている²⁴⁾。

5 おわりに

PF法は組織形成ダイナミクスの解析に有効な手法である。一方、PFモデルは、その他の様々な組織計算モデルと同様に、多くの材料パラメーターを含んでいる。組織の実験データには材料パラメーターの情報が含まれることから、PFモデルや組織計算モデルに実験データを同化することで一連の材料パラメーターを推定するアプローチは重要である²⁵⁾。本稿で示したマグネシウム合金の材料パラメーター推定の例のように、データ科学の手法により、逆問題解析でボトル

ネックとなる計算コストの問題を解決できる場合がある。さらに、近年、PFモデルに組織の時系列データを同化して材料パラメーターを推定する手法の開発も進められている²⁶⁻³⁰⁾。データ科学の手法の活用により、組織の実験データと組織計算モデルの融合が実現しつつある。

謝辞

本稿で紹介した研究は、岩谷直治記念財団 岩谷科学技術研究助成、日本鉄鋼協会 鉄鋼研究振興助成、JSPS科研費(26820282)、JST PRESTO (JPMJPR15NB)、JST研究成果展開事業産学共創基礎基盤研究プログラム「ヘテロ構造制御」、JST ALCA「軽量構造部材創製のための革新的汎用マグネシウム合金の開発」、内閣府戦略的イノベーション創造プログラム(SIP)「革新的構造材料」の助成を受けて行われた。

参考文献

- 1) 小山敏幸：材料設計計算工学 計算組織学編 増補新版, 内田老鶴圃, (2019)
- 2) 阿部太一：材料設計計算工学 計算熱力学編 増補新版, 内田老鶴圃, (2019)
- 3) T.Mura : Micromechanics of Defects in Solids, second rev. ed., Martinus Nijhoff, Dordrecht, (1987)
- 4) A.G.Khachaturyan : Theory of Structural Transformations in Solids, Dover, New York, (2008)
- 5) 小山敏幸, 塚田祐貴 : 材料組織弾性学と組織形成, 内田老鶴圃, (2012)
- 6) R.C.Reed : The Superalloys -Fundamentals and Applications-, Cambridge University Press, New York, (2006)
- 7) N.Zhou, C.Shen, M.J.Mills and Y.Wang : Acta Mater., 56 (2008), 6156.
- 8) Y.Tsukada, Y.Murata, T.Koyama, N.Miura and Y.Kondo : Acta Mater., 59 (2011), 6378.
- 9) Y.Tsukada, T.Koyama, Y.Murata, N.Miura and Y.Kondo : Comput. Mater. Sci., 83 (2014), 371.
- 10) Y.Tsukada, T.Koyama, F.Kubota, Y.Murata and Y.Kondo : Intermetallics, 85 (2017), 187.
- 11) Y.Matsuoka, Y.Tsukada and T.Koyama : Joint EPRI-123HiMAT International Conference on Advances in High-Temperature Materials, ASM International, Materials Park, (2019), 496.
- 12) Y.Matsuoka, Y.Tsukada and T.Koyama : Superalloys 2020, Springer, Cham, (2020), 292.
- 13) G.Krauss : Steels -Processing, Structure, and Performance-, second. ed., ASM International, Materials Park, (2015)
- 14) Y.Tsukada, Y.Kojima, T.Koyama and Y.Murata : ISIJ Int., 55 (2015), 2455.
- 15) Y.Tsukada, E. Harata and T. Koyama : Proc. of the 5th International Symposium on Steel Science (ISSS 2017), ISIJ, Tokyo, (2017), 127.
- 16) 毛利優斗, 塚田祐貴, 小山敏幸 : 鉄と鋼, 105 (2019), 305.
- 17) J.H.Frye Jr., E.E.Stansbury and D.L.McElroy : Trans. AIME, 197 (1953), 219.
- 18) N.Nakada, N.Koga, Y.Tanaka, T.Tsuchiyama, S.Takaki and M.Ueda : ISIJ Int., 55 (2015), 2036.
- 19) J.F.Nie : Scr. Mater., 48 (2003), 1009.
- 20) C.L.Mendis, K.Oh-ishi, T.Ohkubo and K.Hono : Scr. Mater., 64 (2011), 137.
- 21) Y.Tsukada, Y.Beniya and T.Koyama : J. Alloy. Compd., 603 (2014), 65.
- 22) T.Bhattacharjee, C.L.Mendis, K.Oh-ishi, T.Ohkubo and K.Hono : Mater. Sci. Eng. A, 575 (2013), 231.
- 23) Y.Tsukada, S.Takeno, M.Karasuyama, H.Fukuoka, M.Shiga and T.Koyama : Sci. Rep., 9 (2019), 15794.
- 24) S.Takeno, Y.Tsukada, H.Fukuoka, T.Koyama, M.Shiga and M.Karasuyama : Phys. Rev. Mater., 4 (2020), 083802.
- 25) 小山敏幸, 塚田祐貴 : ふえらむ, 23 (2018), 680.
- 26) S.Ito, H.Nagao, A.Yamanaka, Y.Tsukada, T.Koyama, M.Kano and J.Inoue : Phys. Rev. E, 94 (2016), 043307.
- 27) S.Ito, H.Nagao, T.Kasuya and J.Inoue : Sci. Technol. Adv. Mater., 18 (2017), 857.
- 28) J.Zhang, S.O.Poulsen, J.W.Gibbs, P.W.Voorhees and H.F.Poulsen : Acta Mater., 129 (2017), 229.
- 29) A.Yamanaka, Y.Maeda and K.Sasaki : Mater. Des., 165 (2019), 107577.
- 30) 塚田祐貴, 小山敏幸 : マテリアルズ・インフォマティクスによる材料開発と活用集, 技術情報協会, (2019), 170.

(2020年7月27日受付)

先輩研究者・技術者からのエール

東北大学 名誉教授

石田 清仁

塚田先生とは彼の恩師である森永、村田、小山各先生らを通して知り合い現在に至っている。筆者の専門である状態図や組織制御に大変近い研究をされているので学生の時からお名前は存じ上げていた。今や塚田先生は組織シミュレーションの分野の専門家であり、若手のホープである事は誰もが認める所である。特にフェイズフィールドの分野ではまさにプロ中のプロである。ここでいうプロとは単に計算に関してだけではなく取り扱う材料の実用的な面や特性についてもプロなのである。計算家は計算だけやっても良い結果は出せない。その材料の本質、特に組織特性を熟知して始めて良いシミュレーションが出来ると考える。

材料の組織を支配する因子は、多種多様であるのでその内容を理解してシミュレーションに必要なパラメータと結びつける作業が大事である。これがなかなか難しいのである。その点で塚田先生は、大きな強みを持っている。すなわちシミュレーションを行う実際の材料に対する造詣が深いのである。鉄鋼を始め、Ni基超合金、Ti基やMg基の軽量合金、核燃料材料など構造材料だけでなく磁石などの機能性材料についても優れた研究成果を

表されている。

2015年から2019年までの4年間は、JSTの戦略的創造研究推進事業の“さきがけ研究者”に選ばれ、「材料開発を加速するための組織シミュレーション基盤技術の構築」の研究課題を遂行された。現在話題になっている理論、実験、計算科学とデータ科学が融合したマテリアルズインフォマティクスの先駆的研究をされていたのである。現在はこれらの研究を更に発展・推進されるとともにシミュレーションを行うための材料パラメータの見積もりを効率良くかつ計算コストも低い手法の開発に力を注いでおられるようである。

塚田先生の恩師である小山先生が昔おっしゃっておられたのを思い出す。鉄鋼の組織変化のシミュレーションは結構大変で難しい。パーライト変態でもまだ実験と計算との差異がかなりあるようである。一日も早く実用鉄鋼材料の精微なシミュレーションが可能になりこの手法が合金開発、設計に不可欠な武器となることを確信する。塚田先生には、フェイズフィールド・シミュレーションを利用して是非新しい材料の設計と開発にチャレンジしていただくとともに益々のご活躍を期待するものである。

日本製鉄(株) 技術開発本部 上席主幹研究員

米村 光治

塚田先生は、記事にある γ' のラフティング形成機構のご研究をはじめ、PF法を駆使して、鉄鋼のマルテンサイト変態やパーライト変態における組織形成モデリングやパーライト変態における異相界面拡散係数の推定など、学生の頃から若手研究者のリーダー格として活躍されています。筆者もNi基合金や鉄鋼材料の諸現象で先生が学生の頃から親しく議論させて頂いており、今回、コメント役を引き受けました。エールが必要ないほど精力的に研究や教育に尽力されている先生に、僭越ながら感謝を込めてエールを送ります。

「器の小さい人間ほどケチをつけたがる。真に器量の大きな人間は、“できる”と思わせてくれる(Mark Twain)」。先生との議論は盛り上がる、そして新たな発想が生まれるのは、“できる”と思わせてくれるからでしょう。私が相談する“できそうでできない”研究に、独創的なアイデアで挑戦し期待した成果を得る。これは多くの卓越した成果を産み出した先生のためまぬ努力と経験に因るものと察します。一方で、先生の研究は計算に耐えうるデータ測定技術の発展にも貢献します。この計算と実験の融合は種々の現象を解き明かし、我々に新しい知見を導いてきた一助です。記事には記載できない

貴重な成果も多くあると思います。それらの経験を礎に“できそうでできない”領域に一步、二歩踏み出し、材料科学の新たな可能性を創造し育んでください。今後、現象解明や組織設計指針の提案で、材料研究を支えて頂くのは勿論ですが、Ni基超合金等の経験をもとに、複雑な多結晶の物性や機械的性質まで一步踏み込んで頂けないだろうか？先生が得意とする実験データを用いた材料パラメータの推定は、現象解明に繋がり、パラメータは世界で幅広く利用されるでしょう。勿論、組織設計指針の提案にも欠かせません。また、深層学習やデータ科学の活用で材料研究にも新しい展開が期待されます。解析と計算そして物性・機械的性質の融合が新たな知見や技術を生み、材料開発のブレークスルー、更には安心・安全な社会へ貢献すると確信します。当該分野の第一人者のひとりとして、最先端の材料科学を先導頂くと共に、産業の道しるべになれるよう、これからのコロナ社会で一隅を照らして頂きたい。塚田先生なら“できる”。そして、再び盃を交わしながら、本多光太郎先生の言う「世の中のためになることを一つや二つ」語り合える日が来ることを期待しています。最後に、塚田先生の益々のご活躍とご発展をお祈りします。