

研究報告書

「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」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2015 年 12 月～2019 年 3 月

研究者: 塚田 祐貴

1. 研究のねらい

材料開発において、所望の材料特性を得るためには、材料組織を適切に制御する必要がある。複相組織の場合、異相間の界面エネルギー、構成相の格子定数や弾性定数といった材料パラメータが組織形成に影響を及ぼす。しかし、実験的に特定の材料パラメータの値のみを変化させることは難しく、組織形成に対する材料パラメータの影響を理解することが困難である。材料開発を加速するためには、材料組織の違いを引き起こす材料パラメータとその影響度を理解し、合金の組成設計・材料パラメータ設計の高効率化に活用することが重要である。

材料科学の分野では、スケールの違いによって、第一原理計算から有限要素法まで様々な計算手法が活用されている。フェーズフィールド(PF)法は材料組織形成過程の計算手法である。PF シミュレーションには、組織を構成する単相の材料パラメータの値が必要となる。対象とする組織形成の PF モデルを構築し、材料パラメータの値を変更した PF シミュレーションによって材料パラメータと材料組織の相関を明らかにすることができれば、材料設計・開発の高効率化に結びつくと考えられる。

本研究では、構造材料の組織形成過程を再現可能な高度な PF モデルを構築し、そのモデルに含まれる複数の材料パラメータの値を任意の範囲で変更したシミュレーションを実施する。蓄積したシミュレーションデータと機械学習を用いて、計算コストの高い PF シミュレーションを用いずに材料パラメータと組織の関係を高速かつ網羅的に探索可能なシステムを構築する。また、そのシステムを活用することによって、組織制御のための材料パラメータ設計指針の提示を目指す。他方、PF モデルの中には値が不明な材料パラメータが存在することが多く、そのことが PF 法による組織予測を難しくしている大きな要因であることから、実験で得られる組織データを PF モデルに同化することでそのモデルに含まれる材料パラメータの値を推定・最適化する手法の構築を目指す。

2. 研究成果

(1) 概要

ニッケル基超合金の高温クリープ中の析出相形態変化、および、鉄鋼材料のマルテンサイト組織形成の PF モデルをそれぞれ構築した。シミュレーションで得られた組織変化の速度、組織形態、組織形成に伴って生じる弾塑性場をこれまで報告されている実験データと比較し、実際の組織形成を再現可能な PF モデルを構築することができたと判断した。構築したモデルを用いて、材料パラメータの値を任意の範囲で変更したシミュレーションを実施し、そこで蓄積したデータをニューラルネットワーク(NN)に学習させた結果、材料パラメータの値から組織形成を瞬時に予測可能なシステムを構築することに成功した。このシステムを用いて、歴代のニッケル基超合金の析出相形態変化を予測した結果、高応力・短時間クリープにおける析出相

形態変化を遅滞させる方向に合金開発が進んできたことを明らかにした。一方、鉄鋼材料のマルテンサイト組織予測システムを用いて感度係数を算出した結果、材料パラメータが組織に及ぼす影響度が温度・組成条件によって異なることを定量的に示すことに成功した。

実験で得られる組織データを用いて材料パラメータの値を推定・最適化する手法の構築を試みた。まず、析出相のエネルギー計算に基づき、時効析出型 Mg 合金で観察される析出相形状から界面エネルギーおよび格子ミスマッチの値の推定を試みた。ガウス過程回帰と適応サンプリングを組み合わせた結果、析出相形状の予測値と実験値の誤差が小さくなる材料パラメータ条件を効率的に探索することに成功した。一方、データ同化の手法の一つであるアジョイント法に基づき、準安定相が関与する組織変化の実験データを用いて準安定相のギブスエネルギーパラメータの値を推定する手法の構築を試みた。PF シミュレーションで作成した疑似観測データを用いてパラメータ推定の試行実験を行った結果、PF モデルとアジョイントモデルを交互に解いて推定値の更新を繰り返すと、推定対象とした 3 つのパラメータの推定値が全て真値に収束することを確認した。準安定相が関与する組織データが得られれば、通常の相平衡実験では決定することが困難な準安定相のギブスエネルギーパラメータの値を推定することができると考えられる。

(2) 詳細

研究テーマ A「高温クリープ中の組織予測に基づくニッケル基超合金の設計指針の提示」

ニッケル基単結晶超合金の高温クリープ中に析出強化相 (γ') が応力軸に垂直方向に粗大化するラフト化現象の PF モデルを構築した。商用合金 CMSX-4 に対するシミュレーションを実施し、温度 1273 K、引張応力 100–160 MPa のラフト化速度を予測することに成功した。図 1 に 1273 K–100 MPa の条件でのシミュレーション例を示す。次に、PF モデルに含まれる複数の材料パラメータの値を任意の範囲で変更してシミュレーションを実施した。蓄積したデータを NN に学習させ、材料パラメータ条件からラフト化時間の高速予測を可能にした。第 1～6 世代のニッケル基超合金について、材料パラメータの値から

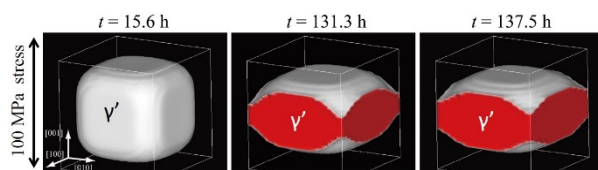


図 1 商用合金 CMSX-4 合金のラフト化シミュレーション (1273 K–100 MPa)

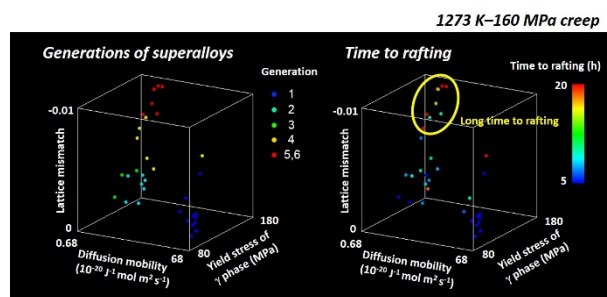


図 2 材料パラメータ空間におけるニッケル基超合金の世代とラフト化時間の関係

1273 K–160 MPa のクリープ条件でのラフト化時間を予測し、材料パラメータ空間にプロットした結果を図 2 に示す。この結果から、160 MPa という高応力・短時間クリープ条件におけるラフト化を遅滞させる方向に合金開発が進んできたことが明らかとなった。

研究テーマ B「高強度鋼の組織形成に及ぼす材料パラメータの影響の定量的理解」

低炭素鋼のマルテンサイト変態組織形成の PF モデルを構築した。図 3 に Fe-0.1 mass%C、600 K の条件でのシミュレーション例を示す。結晶構造変化に起因する 3 つのバリエントドメインがクラスターを形成する様子や、変態相内部とその近傍に高密度の転位が導入される様子が再現されている。次に、PF モデルに含まれる材料パラメータの温度・組成依存性を考慮した上で、0.1~0.4 mass%C のマルテンサイト変態温度領域における組織形成を計算した。蓄積したデータを NN に学習させ、材料パラメータ条件からマルテンサイト組織の特徴量(バリエントドメインサイズや転位密度など)の高速予測を可能にした。学習済み NN を用いて感度係数を算出することにより、図 4 に示すように、マルテンサイト組織特徴量(図 4 はバリエントドメインサイズ)に対する材料パラメータの影響度が温度・組成条件によって異なることを定量的に示した。

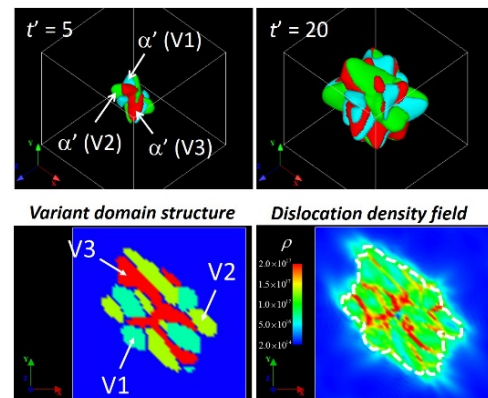


図 3 マルテンサイト変態シミュレーション(上段)およびバリエントドメイン構造と転位密度分布の関係(下段)

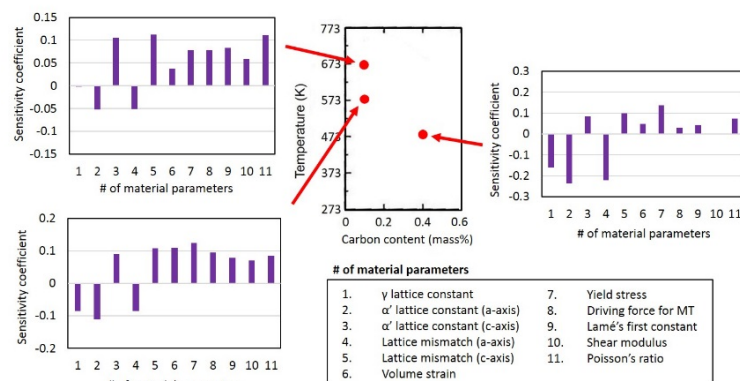


図 4 マルテンサイト組織のバリエントドメインサイズに対する材料パラメータの感度係数(マルテンサイト相の体積率は 10%)

研究テーマ C「析出相形状の実験データを活用した材料パラメータ推定」

析出相形状は、母相と析出相の界面エネルギー、弾性エネルギーのバランスによって決まる。時効析出型の Mg 合金においては、ロッド状あるいは板状の様々な析出相が観察されている。時効熱処理によって析出相のサイズや形態を制御するためには、界面エネルギーや格子ミスマッチの情報が必要である。しかし、ナノスケールかつ異方的な形状を有する析出相のパラメータを実験的に決定するのは困難である。本研究では、析出相形状を回転楕円体近似し、析出相のエネルギー(界面エネルギー+弾性エネルギー)が界面エネルギー、格子ミスマッチ、析出

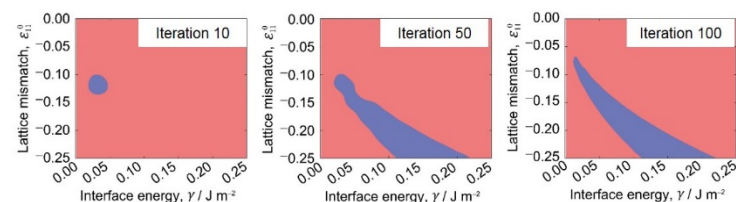


図 5 MgZn₂ の形状の実験データを活用した材料パラメータ推定結果(青色部分が析出相のアスペクト比の予測値と実験値の誤差が小さくなる領域)

相のアスペクト比の関数として計算できることに着目し、析出相形状の実験データから界面エネルギーおよび格子ミスマッチの値の推定を試みた。Mg 合金における棒状の MgZn_2 相のパラメータを推定した結果を図5に示す。材料パラメータ空間内の1点のエネルギー計算に1時間ほどの時間を要するが、ガウス過程回帰と適応サンプリングを組み合わせることによって、100点ほどのエネルギー計算により、析出相のアスペクト比の予測値と実験値の誤差が小さくなるパラメータ領域(図中の青色部分)を推定することに成功した。

研究テーマ D「組織データを活用した準安定相の材料パラメータ推定法の構築」

組織を制御する上で、組織を構成する相のギブスエネルギーの情報が必要である。しかし、平衡状態図に現れない相のギブスエネルギーを相平衡実験によって決定することは困難である。仮に、準安定相が関与する組織形成の PF モデルがあり、そのシミュレーション結果と直接比較できる実験データが得られる場合、シミュレーションと実験のミスフィットが最小になるように PF モデルに含まれるパラメータを推定・最適化できるはずである。本研究では、PF 法とデータ同

化法(アジョイント法)を用いて、準安定相が関与する組織変化の実験データを活用して準安定相のギブスエネルギーパラメータの値を推定する手法の構築を試みた。仮想的な単結晶二相組織変化を例に、PF シミュレーションで作成した疑似観測データを PF モデルに同化し、3つの材料パラメータの同時推定の試行実験を行った結果を図6に示す。ここでは、等温熱処理によって準安定相(β 相)が消失して α 単相となる組織変化から、 β 相のギブスエネルギーおよび α/β の界面モビリティの値を推定した。PF モデルとアジョイントモデルを交互に解いて推定値の更新を繰り返した結果、3つの材料パラメータの推定値が全て真値に近づくことを確認した。さらに、実験データの観測ノイズを考慮した試行実験を実施し、観測ノイズの大きさがパラメータ推定値の不確実性に及ぼす影響を明らかにした。

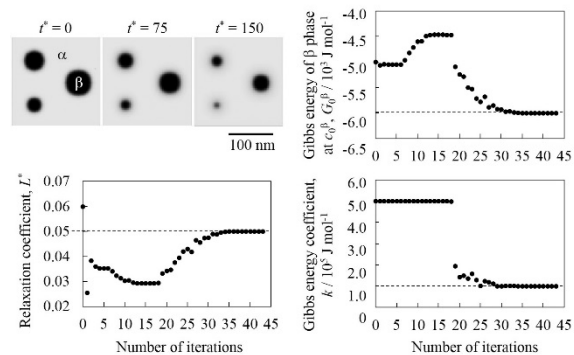


図6 アジョイント法による3つの材料パラメータの同時推定の試行実験(図中の破線はパラメータの真値)

3. 今後の展開

研究テーマ A・B のように、組織シミュレーションと機械学習を融合した研究は、他の合金系の組織にも展開可能である。そのためにはまず、対象とする組織形成を再現可能な高度な PF モデルを構築する必要がある。研究テーマ A に関しては、今後、高応力・短時間クリープだけでなく低応力・長時間クリープにおけるラフト化時間の予測システムを構築し、種々の外部応力条件におけるラフト化時間とクリープ強度の関係を明らかにすることで、次世代合金開発のための材料パラメータ設計指針が得られると考えられる。

研究テーマ C で構築した手法は、今後、様々な合金系に適用可能である。時効析出型合金に限らず、様々な合金系で析出相形状が実験的に観察されており、その実験データから材料

パラメータの情報を抽出することができると考えられる。また、研究テーマ D で構築した手法は、準安定相の材料パラメータ推定法として普及する可能性がある。今後、構築した手法を実験データに適用し、その有用性を示すことが重要である。

4. 自己評価

○研究テーマ A「高温クリープ中の組織予測に基づくニッケル基超合金の設計指針の提示」

歴代のニッケル基超合金開発をクリープ中のラフト化時間の観点で整理できた意義は大きい。今後、低応力・長時間クリープにおけるラフト化速度の予測システムも構築し、ラフト化時間と長時間クリープ強度の関係を整理することができれば、外部応力の大きさに応じて、クリープ強度向上のための材料パラメータ設計指針を示すことが可能になると考えられる。

○研究テーマ B「高強度鋼の組織形成に及ぼす材料パラメータの影響の定量的理解」

本研究で構築したマルテンサイト組織予測システムは、材料パラメータが NN の学習データ範囲に入っていれば多成分系の合金についても適用可能であり、汎用性は高い。また、学習済み NN はマルテンサイト組織に対する材料パラメータの感度の情報を有しており、その情報を活用して温度・組成条件に応じて材料パラメータの設計指針を検討することで、高度な組織制御が可能になると考えられる。

○研究テーマ C「析出相形状の実験データを活用した材料パラメータ推定」

析出相のエネルギー計算とデータ科学手法(ガウス過程回帰および適応サンプリング)を融合することにより、析出相形状の実験データから材料パラメータの情報を効率的に抽出することに成功した。この手法は他の合金系にも適用可能であり、今後、析出相形状の実験データを活用した材料パラメータ推定法として普及することが期待される。

○研究テーマ D「組織データを活用した準安定相の材料パラメータ推定法の構築」

準安定相が関与する組織変化のデータを活用して、熱平衡実験によって決定することが難しい準安定相のギブスエネルギーパラメータの値を推定する手法を構築できた意義は大きい。今後、構築した手法を実験データに適用し、その有用性を示すことができれば、準安定相のギブスエネルギー推定法として普及することが期待される。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Y. Tsukada, T. Koyama, F. Kubota, Y. Murata, Y. Kondo, Phase-field simulation of rafting kinetics in a nickel-based single crystal superalloy, *Intermetallics*, vol. 85, pp. 187-196, 2017
2. Y. Tsukada, E. Harata, T. Koyama, Phase-field simulation of the effect of yield stress on the martensitic transformation in low-carbon steels, *Proc. of the 5th International Symposium on Steel Science*, pp. 127-130, The Iron and Steel Institute of Japan, 2017

(2)特許出願

研究期間累積件数:0 件

(3)その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

・主要な学会発表

1. [Invited] Y. Tsukada, T. Koyama, Y. Murata, Three-dimensional phase-field simulation of rafting in a nickel-based superalloy, 2016 KIM-JIM Symposium, Busan, Korea, October 27, 2016
2. [招待講演] 塚田祐貴, 小山敏幸, 村田純教, フェーズフィールド法による鉄鋼材料のマルテンサイト変態シミュレーション, 第 27 回日本 MRS 年次大会, 横浜情報文化センター, 2017 年 12 月 5 日
3. [Invited] Y. Tsukada, Y. Murai, T. Koyama, Relationship between material parameters and microstructure of martensite in low-carbon steels: a simulation study, Thermec' 2018 (International Conference on Processing & Manufacturing of Advanced Materials), Paris, France, July 11, 2018
4. [Keynote] Y. Tsukada, E. Harata, T. Koyama, Phase-field simulation of the effect of temperature and yield stress conditions on the martensitic transformation in low-carbon steel, The 13th World Congress on Computational Mechanics, New York, USA, July 26, 2018
5. [Invited] Y. Tsukada, T. Koyama, Prediction of martensite microstructure in steel by phase-field simulation and machine learning, The 19th KIM-JIM Symposium, Daejeon, Korea, October 25, 2018

・受賞

1. 塚田祐貴, 日本機械学会計算力学部門優秀講演賞「マルテンサイト組織形成に及ぼす弾性相互作用エネルギー場の影響」, 2016 年 4 月 21 日
2. 塚田祐貴, 日本鉄鋼協会研究奨励賞「構造材料のミクロ組織形成解析」, 2017 年 3 月 15 日
3. 塚田祐貴, 日本鉄鋼協会澤村論文賞「Phase-field simulation of habit plane formation during martensitic transformation in low-carbon steels」, 2017 年 3 月 15 日

・著作物

1. 塚田祐貴, 小山敏幸, 低炭素鋼のミクロ組織制御のためのフェーズフィールドシミュレーションと機械学習, 化学工業, vol. 69, pp. 65-69, 2018
2. 塚田祐貴, 小山敏幸, 材料組織変化の実験データを用いた材料パラメータ推定, マテリアルズ・インフォマティクスを用いた新材料開発へのアプローチ, 技術情報協会, 2019