

令和 2 年 6 月 9 日現在

機関番号：12601
研究種目：若手研究
研究期間：2018～2019
課題番号：18K13983
研究課題名（和文）多次元組織データを用いた組織予測理論へのデータ同化による新規材料設計因子の探索

研究課題名（英文）Investigation of novel microstructural factor for material design, based on multidimensional structural data

研究代表者
江草 大佑 (egusa, daisuke)
東京大学・大学院工学系研究科（工学部）・助教

研究者番号：80815944
交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：持続可能な社会を実現するためには、高機能な軽金属材料の開発による省エネルギー化が重要となる。軽金属材料の性能を向上に向けては、微量添加元素の影響を受ける微細組織の制御が重要となる。加えて、革新的な高機能材料を開発するためには、材料特性に影響を与える新規な微細構造因子の発見が必要となる。本研究では、アルミニウム合金の機械的特性を主な対象として、原子スケールからミクロスケールにかけて取得可能な多次元組織データに対して機械学習アプローチを用いて、材料特性に寄与する組織データを抽出するとともに、抽出データを材料組織学の理論に還元し、高機能材料設計の指針となる新規微細組織因子を見出すことを目的とした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

高純度Alにおける加工組織の緩和・回復現象は実験的に確認されているものの、現象を支配する因子については未解明の部分が多い。本調査結果は、転位をはじめとした欠陥の運動学に基づく組織形成・発展に関する調査の重要性を示すものである。また、実用的には、加工軟化現象の本質的な理解により、既存Al合金の強度・成形性の制御の幅を広げることが可能となる。特に、強加工材において焼鈍等を用いることなく材料強度が制御可能となることは、組織制御およびコスト低減の観点で重要である。

研究成果の概要（英文）：In order to realize a sustainable society, energy conservation through the development of highly functional light metallic materials will be important. For achieving to improve a performance of light metal, it is necessary to control the microstructure, which is affected by trace amounts of additive elements. Discovery of novel microstructural factors affecting material properties is important for the development of innovative high performance materials. In this study, we have investigated the effect of microstructure on the mechanical properties of aluminum alloys, based on experimental observations and machine learning approach.

研究分野：材料科学

キーワード：アルミニウム 1000系合金 Al-Fe合金 加工軟化 スカベンジング効果 電子顕微鏡 EBSD 主成分分析

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。

1. 研究開始当初の背景

自動車や航空機等の輸送機器に用いられる構造材料の軽量化は省エネルギー化に大きく貢献することから、軽金属材料の高機能化に関する研究が世界的に広く取り組まれている。軽金属材料では微量添加元素により生じる固溶原子・クラスター・析出物といった微細組織が特性に強く影響するため、適正な熱加工プロセスを通じて微細組織を制御する材料設計が求められる。近年の材料設計では、①組織理論ベースでの特性予測、②プロセスデータを用いたデータ駆動型での特性予測、の2種類の取り組みが注目されている(図1)。理論ベースの予測では、マクロな材料特性を特徴づける微細組織因子(以降組織因子と記述)に基づいて特性向上を実現するプロセスの具体化を図っており、特性に影響する組織因子の抽出および、組織因子から体系的に特性を予測する特性予測技術が用いられる。一方、近年のセンシング技術の発展・データ処理能力向上を背景としたデータ駆動型アプローチでは、膨大なデータから特性に影響する特徴量を抽出するデータマイニング技術および、特徴量から特性を予測可能な汎化モデルを構築する機械学習技術が用いられる。上記2種類のアプローチは、既存材料の特性最適化・プロセス効率化(内挿での予測)に対して有効であるが、新規高機能材料の創製(外挿での予測)に対しては発展段階にあり、材料特性に影響する新規組織因子(または新規特徴量)をいかに見出すかが重要である。

2. 研究の目的

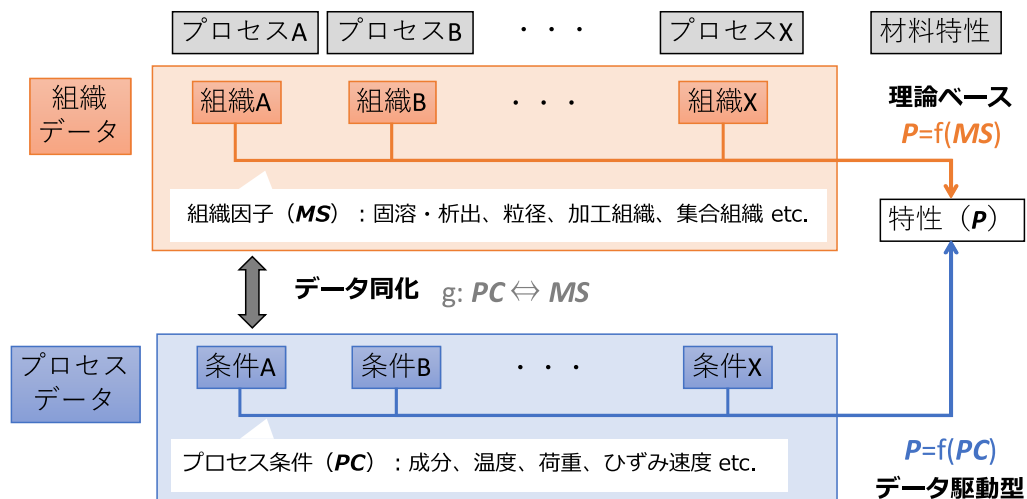


図1 材料設計に於ける特性予測概念図

本研究では、特性に影響する新規組織因子の抽出に着目する。これまでの材料開発において、新規組織因子の発見は実験結果・理論に基づいて材料特性を評価した際に、既存の理論では説明できない現象を見出す事によって行われてきた。近年のデータ科学の発展により、データ同化と呼ばれる技術によって新規因子の発見をプロセスデータ等のビッグデータから抽出し組織因子に還元する手法が注目されている。本研究では、材料組織理論および原子～ミクロスケールにおける多次元組織データから、材料特性向上に有効な組織データの抽出を行うとともに、多次元組織データの材料組織理論へのデータ同化により、特性制御に利用可能な新規組織因子の概念を獲得する手法を確立することを目的としている。

研究対象としては、アルミニウム合金の機械的特性、特に加工軟化現象に注目する。一般に金属材料は加工により強度が上昇するが、熱加工条件によっては加工により強度が低下する加工軟化現象が発現する。高温加工下での加工軟化は動的回復・再結晶に起因すると理解されているが、工業的純アルミニウム合金の室温変形においても観察されており、強加工材料の成形性に影響する重要な現象である。本現象は、合金中の微細析出物・固溶元素と加工組織との相互作用により発現すると考えられているが、微視的な組織の状態と軟化現象との関係は明確ではない。本研究では特にアルミニウム合金の加工軟化現象を題材として、実験的調査によってその要因を調査するとともに、得られた調査結果に対して機械学習手法を適用し要因の妥当性を検討した。

3. 研究の方法

表 1 に示す組成の Al-Fe 合金を試料として用いた。焼鈍（330 度、2 時間）を施した熱延板に対して、圧延率 40~94%での冷間圧延を施し、測定に供した。冷間圧延前後での硬さをビッカース試験により測定するとともに、SEM/TEM/STEM を用いて材料組織を調査した。また、比較材として一般的な 1000 系合金である 1050 合金についても同様の測定を実施した。

表2 合金組成

	Fe	Si	Al	
Al-Fe	mass%	1.41	0.04	Bal.
	at.%	0.69	0.04	Bal.
1050	mass%	0.31	0.06	Bal.
	at.%	0.15	0.06	Bal.

4. 研究成果

(1)加工軟化現象の実験的検証

図 2 に冷延前後の試料より測定したビッカース硬さを示す。1050 合金の場合、低下率では加工に伴う硬化が確認され、低下率 80%で硬さは飽和した。一方、Al-Fe 合金では、低下率 60%で硬さの極大を示し、より高圧下の試料では硬さが減少する加工軟化が確認された。比較として、4N および 5N-Al での文献値（山本ら、日本金属学会誌 1992）を図中に示す。4N-Al は低下率 90%程度、5N-Al は低下率 40%で硬さの極大を示し、その後は低下率増大に伴って軟化している。この結果は Al 母相純度の変化が加工軟化発現に影響することを示唆している。

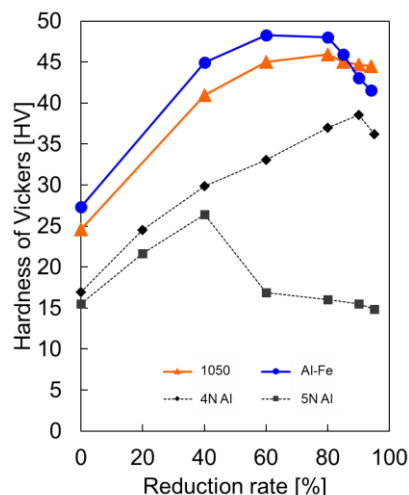


図 2 ビッカース硬さ変化

図 3 に冷間圧延率の異なる試料の TD-RD 断面より取得した SEM-EBSD IPF マップを示す。Al-Fe 合金の場合、冷間圧延前の状態では、焼鈍に伴う再結晶組織であり、硬さの極大に相当する 60%圧延材では亜結晶粒界からなる加工組織であった。また、加工軟化が確認された 94%圧延材では 60%圧延材と比較して亜結晶粒界が大幅に減少するとともに、10 度以上の方位差を示す粒界が顕著に増大していた。観察された組織は高純度 Al での加工軟化現象に伴って形成される組織と類似しており、94%圧延材では加工組織の緩和・回復が起きていると考えられた。

また、60%圧延材の黒点線で示した領域に着目すると、第二相粒子に相当する黒色領域を中心に、方位差の大きい微細粒が分布している様子が確認できる。この結果は、第二相粒子の近傍において、ひずみ分布および固溶/析出状態が不均質となり、加工組織の緩和・回復が優先的に進展したためだと考えられた。その一方で、1050 合金では圧延率の増加に伴って亜結晶粒界が増大しており、加工に伴う変形組織の緩和・回復は観察されなかった。

Al-Fe 合金での変形組織の緩和・回復現象の要因を調査するために、第二相粒子を含めた Fe/Si 元素の分布を SEM/TEM 観察により調査した。図 4 (a-d) に、冷間圧延前の 1050 合金、Al-Fe 合金から取得した SEM 後方散乱電子像 (BSE 像) および SEM-EDS による Fe 分布マップを示す。Al-Fe 合金の SEM-BSE 像 (図 4 (c)) には、1 μm 程度の化合物が高密度に観察され、Fe 分布マップ (図 4 (d)) との対応からこれらが Fe を含む化合物であることが分かる。この化合物は、1050 合金においても形成されている。図 4 (e) に示す TEM 明視

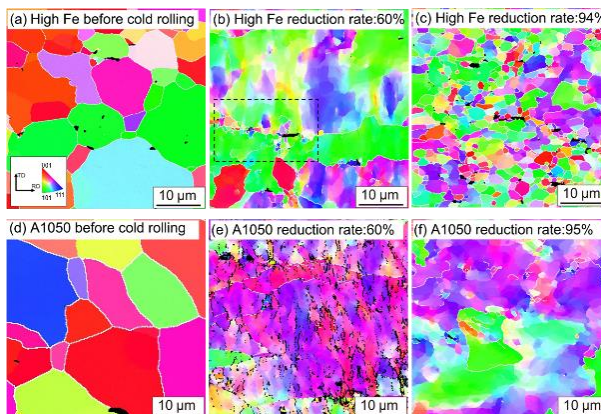


図 3 SEM-EBSD IPF マップ
(上)Al-Fe 合金、(下)1050 合金。
白線は方位差 10 度以上の粒界に相当

野像と電子回折パターンから、この化合物は θ -Al₁₃Fe₄相 (以降 θ 相と略する) と同定された。図 4 (f) に、SEM-EDS の点分析により測定した θ 相の Fe および Si 組成を示す。各点の組成は、粒子径 1 μ m 程度の θ 相に電子ビームを照射して得た EDS スペクトルから算出している。この測定中、試料照射した電子ビームは試料表面から内部へと拡がりながら伝播するため (図 4 (f) 中の模式図)、求められた組成は微細 θ 相だけではなく Al 母相のそれも含んでおり、結果として (θ 相のサイズやビーム照射状態に応じて) Fe および Si 組成値は幅

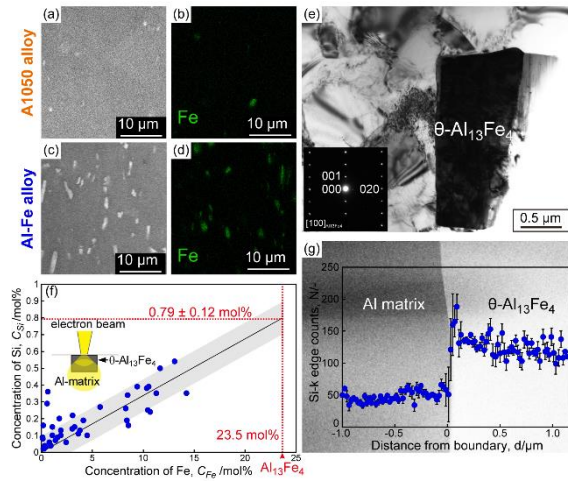


図 4 Fe/Si 元素分布調査結果

を持った分布を示す。測定された Si/Fe 比は黒線で示すようにほぼ一定となる傾向があることから、 θ 相に含まれる Si 濃度が一定値となっていると考えられる。すなわち、 θ 相がほぼ常に化学量論組成 (Al-23.5 mol% Fe) で形成される定比化合物であるとする、Al 母相中の Fe および Si 濃度は十分に低いと仮定することで、SEM-EDS で測定された Si 組成値を θ 相中に一定に含まれる Fe 量と直接関連付けることができる。この考え方から、 θ 相中の Si 量を 0.79 ± 0.12 mol% と見積もった。 θ 相への Si 濃化は、HAADF-STEM 法による局所 EDS 測定により直接確認できる。図 4 (g) に示す Al 母相/ θ 相界面を挟んだ EDS ライン分析から、界面を境に Si-K 端の EDS カウントが急峻に増加しており、 θ 相への Si 濃化挙動が明瞭である。このことは、相対的に Al 母相から不純物 Si を取り除く (固相間での) 精錬効果に相当しており、第二相によるスカベンジング (scavenging) 効果と呼ばれる。

以上の組織解析と元素分析により、Al-Fe 合金における加工軟化現象の発現は、添加した Fe が形成する θ -Al₁₃Fe₄相が不純物 Si を引き寄せるスカベンジング効果により、Al 母相が高純度化されることに起因することが強く示唆された。一般にアルミニウム合金における加工軟化現象は、強加工中における動的回復・再結晶に起因するとされる。実際、加工軟化挙動を示した今回の Al-Fe 合金のマイクロ組織においても、これら回復・再結晶に相当する特徴が高圧延率域で実際に観察されており (図 3)、動的な組織再構築プロセスによって軟化挙動が引き起こされた痕跡が直接伺える。

(2) 加工軟化現象に寄与する因子の抽出

Al-Fe 合金で確認された加工軟化現象には強加工材料における動的な回復および再結晶挙動が寄与していることが示唆された。本検討では図 5 に示す考えに従って、加工軟化現象を含めた材料特性変化に寄与する因子の抽出を目指す。特に④データ同化に用いる未利用データとして EBSD-IPF 測定結果に着目し、材料間の硬度変化を予測するモデルを構築した (図 6)。データとして用いる EBSD-IPF マップについては、本研究で取得した 1050 合金および Al-Fe 合金のデータに加えて、データ数の不足を補うために 1000 系 Al 合金の既存論文として発表されているデータを用いた。また IPF マップは画像データままでは次元が高く、予測モデルへの適用が困難であったので、図 7 (a) に示すように主成分分析を用いて次元圧縮した。圧縮後の代表スペクトルを入力データ、各材料のビッカース硬さを出力として階層型ニューラルネットワークモデルにより、予測モデルを構築した。分割データにより予測精度を検証した結果、予測精度の R2

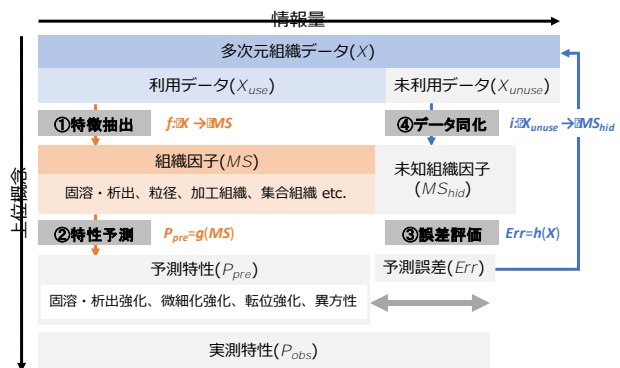


図 5 未知組織因子探索の概念図

データとして用いる EBSD-IPF マップについては、本研究で取得した 1050 合金および Al-Fe 合金のデータに加えて、データ数の不足を補うために 1000 系 Al 合金の既存論文として発表されているデータを用いた。また IPF マップは画像データままでは次元が高く、予測モデルへの適用が困難であったので、図 7 (a) に示すように主成分分析を用いて次元圧縮した。圧縮後の代表スペクトルを入力データ、各材料のビッカース硬さを出力として階層型ニューラルネットワークモデルにより、予測モデルを構築した。分割データにより予測精度を検証した結果、予測精度の R2

乗は約 0.57 であった。この結果はビッカース硬さ変化が IPF マップを入力として定性的に理解できることを示唆している。

予測結果および予測誤差を変数として、データをクラスター分割した結果を表 2 に示す。予測結果はおおむね次に示す 3 種類に大別できる。すなわち、① 実測 ≒ 予測、② 実測 < 予測、③ 実測 > 予測、である。① 以外のデータについては、現行の IPF マップに基づくモデルに対してビッカース硬さが対応していないことから、データ同化の際に変換できていないデータ内にその変動要因が含まれていると考えられる。すなわち、IPF マップ上では識別が困難なエクストラな硬度上昇/減少をもたらす組織因子が存在することを示唆する。上記組織因子について、IPF マップの比較からその推定を試みた。

図 8 に表 2 の各クラスターを構成するデータより抽出した代表的な IPF マップを示す。(クラスター③-2 については対象データ数が少なく、解釈が困難であったため本議論では対象としない。) クラスター②-1 は典型的な再結晶組織である一方、②-2 および③-1 は強加工に伴って形成される組織として理解できる。クラスター②-1 の誤差発生要因については、本検討用いたデータセットにおいて強加工組織より取得したデータが多数を占めていたためだと考えられる。一方で、②-2 および③-1 については同様に強加工組織と見受けられ、予測ビッカース硬さがほぼ同程度であるにも関わらず、予測誤差の挙動は異なる。興味深い点として、本研究で加工軟化現象が確認された Al-Fe 合金より測定した IPF マップはクラスター①およびクラスター②に含まれており、クラスター③-1 には含まれない。この結果は、IPF マップより構築したモデルより示唆されたエクストラな硬度上昇/減少をもたらす組織因子と加工軟化現象とが関連していることを示唆している。今後は、データセットの拡充による精度向上を検討するとともに、上記組織因子の特定に有効な入力データを検討する。

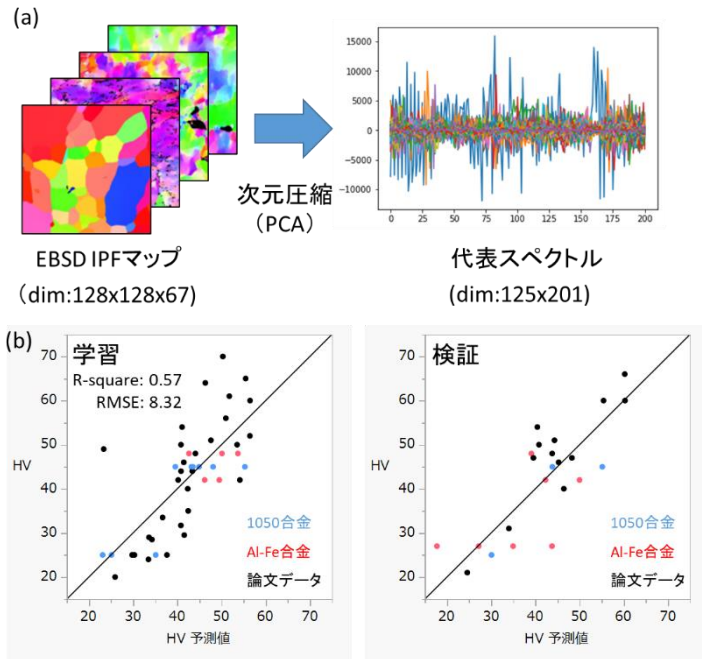


図 7 ビッカース硬さ予測モデル構築結果
表 2 HV 予測値/誤差によるクラスター分割結果

クラスター	度数	実測HV	予測HV	Error NN
①	30	45.4	43.3	-3%
②-1	18	26.3	32.3	23%
②-2	8	46.4	53.3	15%
③-1	9	62.4	54.1	-13%
③-2	2	38.0	20.5	-43%

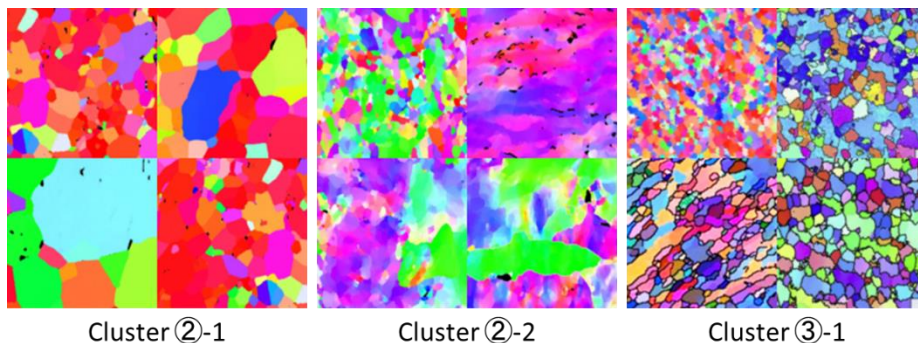


図 8 各クラスターに含まれる代表的な IPF マップ

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Hara Toshihiro, Egusa Daisuke, Mihara Mami, Tanaka Hiroki, Abe Eiji	4. 巻 67
2. 論文標題 PM-191Impurity Effects on Mechanical Properties of 1000 Series Aluminum Alloys	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Microscopy	6. 最初と最後の頁 i44 ~ i44
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1093/jmicro/dfy115	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Egusa D., Kawaguchi K., Abe E.	4. 巻 6
2. 論文標題 Direct Observations of Precursor Short-Range Order Clusters of Solute Atoms in a LPSO-Forming Mg-Zn-Gd Ternary Alloy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Frontiers in Materials	6. 最初と最後の頁 266
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3389/fmats.2019.00266	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Egusa Daisuke, Somekawa Hidetoshi, Abe Eiji	4. 巻 61
2. 論文標題 The LPSO Structure with an Extra Order beyond Stacking Periodicity	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 MATERIALS TRANSACTIONS	6. 最初と最後の頁 833 ~ 838
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2320/matertrans.MT-MM2019010	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 原 聡宏, 江草 大佑, 三原 麻未, 田中 宏樹, 阿部 英司
2. 発表標題 1000系アルミニウム合金の機械的特性に及ぼす微量元素の影響
3. 学会等名 軽金属学会第134回春期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 原 聡宏, 江草 大佑, 三原 麻未, 田中 宏樹, 阿部 英司
2. 発表標題 1000系アルミニウム箔の機械的特性に及ぼす不純物元素の影響
3. 学会等名 日本金属学会2018年秋期講演(第163回)大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Toshihiro Hara, Daisuke Egusa, Mami Mihara, Hiroki Tanaka, Eiji Abe
2. 発表標題 Impurity Effects on Mechanical Properties of 1000 Series Aluminum Alloys
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第61回シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 原 聡宏, 江草 大佑, 三原 麻未, 田中 宏樹, 阿部 英司
2. 発表標題 1000系アルミニウム合金箔の機械的特性に及ぼす微細組織の影響
3. 学会等名 軽金属学会第135回秋期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 原 聡宏, 江草 大佑, 三原 麻未, 田中 宏樹, 阿部 英司
2. 発表標題 1000系アルミニウム箔の延性に及ぼす微量不純物元素の影響
3. 学会等名 日本金属学会2019年春季(第164回)講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 小林知輝,川原巧,江草大佑,阿部英司
2. 発表標題 Al-Cu合金における空孔を含むGPゾーンゆらぎ構造の解明
3. 学会等名 軽金属学会第134回春期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小林知輝,江草大佑,阿部英司
2. 発表標題 収差補正STEMによるAl-Cu合金中GPゾーンの3次元構造解析
3. 学会等名 日本金属学会2018年秋期講演(第163回)大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 小林知輝,江草大佑,阿部英司
2. 発表標題 STEM像強度解析によるAl-Cu合金におけるGPゾーンの三次元構造解析
3. 学会等名 軽金属学会第135回秋期大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Tomoki Kobayashi, Daisuke Egusa and Eiji Abe
2. 発表標題 3D atomic structure of GP zones in Al-Cu alloys based on HAADF-STEM observations
3. 学会等名 日本顕微鏡学会第61回シンポジウム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 原 聡宏, 江草 大佑, 三原 麻未, 田中 宏樹, 阿部 英司
2. 発表標題 1000系アルミニウム箔の機械的特性に及ぼす微量不純物元素の影響
3. 学会等名 軽金属学会 第136回春期大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Toshihiro Hara, Daisuke Egusa, Mami Mihara, Hiroki Tanaka, Eiji Abe
2. 発表標題 Impurity effects on mechanical properties of 1xxx series aluminum thin foils
3. 学会等名 PRICM10 (The 10th Pacific Rim International Conferene on Advanced Materials and Processing) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 原 聡宏, 江草 大佑, 三原 麻未, 田中 宏樹, 阿部 英司
2. 発表標題 アルミニウム合金の加工軟化現象に及ぼすFe添加量の影響
3. 学会等名 日本金属学会 2019年秋期 (第165回) 講演大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 原 聡宏, 江草 大佑, 三原 麻未, 田中 宏樹, 阿部 英司
2. 発表標題 アルミニウム合金の加工軟化現象に及ぼすFe添加の影響
3. 学会等名 軽金属学会 第137回秋期大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 原 聡宏, 江草 大佑, 三原 麻未, 田中 宏樹, 大沼郁雄, 阿部 英司
2. 発表標題 Al-Fe合金の加工軟化現象に及ぼす添加Feの影響
3. 学会等名 日本金属学会 第166回春期講演大会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----