

令和 6 年 6 月 26 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04730

研究課題名（和文）データ科学を活用したニッケルアルミナイド加工性制御の基盤技術構築

研究課題名（英文）Development of fundamental technology for controlling deformability of nickel aluminide using data science

研究代表者

出村 雅彦（DEMURA, Masahiko）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・技術開発・共用部門・部門長

研究者番号：10354177

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）：ニッケルアルミナイドの加工性を律速する転位反応を特定し、これが変形に及ぼす影響を定量的に解明する手法を開発した。まず、単結晶圧延実験の結果を結晶塑性計算とデータ科学的手法を融合して解析した結果、面心立方格子金属においてGlissile Junction (GJ) と呼ばれている転位反応がニッケルアルミナイドの加工性を阻害する要因であることを確認した。さらに、GJの相互作用パラメーターが10以上であると複数の単結晶圧延実験結果を再現できることを明らかにした。次に、転位反応を支配する面欠陥エネルギーについて機械学習ポテンシャルを用いることで第一原理並みの精度で予測する技術を開発することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究課題で開発した手法は、ニッケルアルミナイドの加工性を制御するための指針を与えるものである。ニッケルアルミナイドはニッケル基超合金の高温強度を担う相であり、本研究結果はこれらの実用上重要な合金についても有効な指針を与えるものと期待できる。加えて、直接計測が難しい転位反応の相互作用や面欠陥エネルギーを定量的に明らかにできる手法は、他の合金への波及が期待できる。

研究成果の概要（英文）：To establish guidelines for controlling the workability of nickel aluminide, a method was developed to quantitatively elucidate the impact of specific dislocation reactions that govern deformation. First, the interaction of dislocation reactions governing deformation was analyzed by integrating the results of single crystal rolling experiments with crystal plasticity calculations and data science methods. As a result, it was confirmed that the dislocation reaction called Glissile Junction (GJ) in face-centered cubic metals is a factor that hinders the workability of nickel aluminide. Furthermore, it was revealed that if the interaction parameter of GJ is 10 or higher, the multiple single crystal rolling experiment results can be reproduced. Next, technology for predicting the stacking fault energy governing dislocation reactions with first-principles accuracy using machine learning potentials was successfully developed.

研究分野：データ駆動材料工学

キーワード：金属間化合物 転位相互作用 結晶塑性解析 データ駆動 分子動力学 機械学習ポテンシャル 面欠陥エネルギー 熱力学的積分法

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、研究者個人に帰属します。

## 1. 研究開始当初の背景

本研究では、以下の背景のもと、ニッケルアルミナイド ( $\text{Ni}_3\text{Al}$ ) の加工性を制御するための基盤技術を確立することを目的とした。

$\text{Ni}_3\text{Al}$  は強い圧延異方性を有し、圧延方位によっては加工に要する応力が高くなるほか、幅広がりや曲げが発生するなど、一定以上の圧下率を実現することが困難となる[1]。我々は、圧延異方性が発現するメカニズムとして、特定の転位反応が  $\text{Ni}_3\text{Al}$  の加工性を低下させるという仮説を提案した[2]。 $\text{Ni}_3\text{Al}$  は母体となる fcc 同様、(111)面上を [110]方向にすべり変形するが、二つの転位が逆位相境界をはさんだ転位対として運動している点が fcc と異なる。転位対同士の反応を考える場合、結晶学的な関係は fcc 同様、6 種類に整理されるが、逆位相境界を挟んだ転位対同士が反応するため反応形態は fcc とは異なってくる。例えば、Glissile Junction (GJ) 関係にある転位は fcc では反応後も可動であるのに対して、 $\text{Ni}_3\text{Al}$  で積層欠陥をはさんだ転位対へ変化する可能性が指摘されている[3]。出村らは、この積層欠陥を挟んだ転位対が不動化して圧延異方性を発現させているのではないかと提案した。

研究開始当初は当該仮説について定量的な立証が得られておらず、加えて、当該圧延異方性を回避するための合金設計の指針について未開拓の課題となっていた。

## 2. 研究の目的

$\text{Ni}_3\text{Al}$  の加工性を制御するためには、提案された仮説を定量的に立証することと、GJ 反応を制御するための指針が必要となる。仮説の定量的な立証のためには、転位反応に伴う加工効果への影響を定量的に評価する手法を確立する必要がある。GJ 反応を制御するための指針を立てるためには、GJ 反応の駆動力を支配すると考えられる積層欠陥の界面エネルギーを評価する方法を確立する必要がある。

そこで、本研究では、(1) 転位反応の相互作用の大きさを定量的に推定する方法と(2) 合金元素添加による積層欠陥エネルギー変化を推定する方法を開発する。これは  $\text{Ni}_3\text{Al}$  の加工性を向上させるための新たな合金設計指針を確立する上で必須であると考えられる。

## 3. 研究の方法

### (1) 転位反応の相互作用の大きさを定量的に推定する方法の開発

転位反応の相互作用は、特定の転位が存在しているもとで新たに別の転位が稼働されるときに必要な応力によって定量化できる。しかし、このような理想的な実験は難しく、様々な転位が活動している中で相互作用力を評価する手法が必要となる。そこで、本研究では、単結晶実験と結晶塑性計算をデータ科学で組み合わせる考え方を提案する。当初は、単結晶において、変形に関する境界条件が明確となるような拘束試験を考案し、この中で得られた応力応答を結晶塑性計算で再現できるように転位の相互作用を定量化する構想であった。しかし、予備的な検討からシンプルな境界条件を実現することは単結晶を用いた場合難しいことがわかり、実際に単結晶を圧延した際の変形を模擬していくという方法を試すこととした。

具体的には、(A) 単結晶の圧延実験の結果を結晶塑性計算で再現できるように変形の境界条件を特定する方法を確立し、(B) 複数の単結晶圧延実験を再現できる転位相互作用パラメーターの値を特定するという方法を採用した。(A) の基本的な考え方、(B) で用いた単結晶実験結果については、科学研究費助成事業基盤研究(C) 課題番号 26420750 の成果に基づいており、詳細なアプローチについては、当該課題の研究成果報告書に詳しい[4]。今回の研究においては、最適化の方法にベイズ最適化を用いた点と注目する相互作用パラメーターを変化させながら再現性を確認した点が異なっている。結晶塑性計算にはマックスプランク鉄鋼研究所で開発された DAMASK[6]を用い、当該計算に必要な材料変数については、別に単結晶の一軸引張試験を実施しており、その試験で得られた応力-歪み応答を再現できるように最適化している。

### (2) 合金元素添加による積層欠陥エネルギー変化を推定する方法の開発

合金の積層欠陥エネルギー変化を定量的に推定するため、高精度原子間相互作用モデルに基づく枠組みを開発する。電子論に基づく第一原理計算は、エネルギー評価手法としては高精度であるが、計算負荷が大きいため扱う原子数に限りがある。固溶体などの元素の空間分布にばらつきがある系を再現するためにはある程度大きな原子数のモデルが必要となり、第一原理計算では大きな計算負荷となる。一方、経験的原子間相互作用モデルに基づく古典的な分子動力学計算は、計算コストが小さいが計算精度が低いため定量的な議論に適していない。機械学習ポテンシャルは、第一原理計算に近い精度でポテンシャルエネルギーと力を計算できる原子間相互作用モデルとして近年注目されており、様々な系に対して開発が進められている。計算コストは第一原理計算と比べて大幅に小さいことから、数万原子を含むモデルも対象とでき、元素分布のゆらぎを再現した原子モデルも計算可能である。さらに計算コストが比較的低いことから原子シミュレーション手法による自由エネルギー計算と組み合わせることで、有限温度の積層欠陥エネルギーを自由エネルギーとして求めることができる。このように精度と計算コストのバランスに優れた機械学習ポテンシャルは、これまで第一原理計算や経験的ポテンシャルで扱うことが難しかった対象について計算可能であり、その潜在的用途は広い。本研究では積層欠陥構造を含む多様な原子構造モデルについて第一原理計算でエネルギーを求め、それを学習データとしてニューラルネットワークに基づく機械学習ポテンシャルを構築した(図 1 参照)。

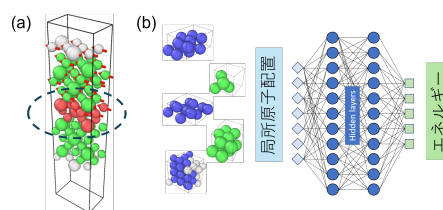


図 1. (a) Ni<sub>3</sub>Al の積層欠陥の原子構造モデルの一例、(b)機械学習ポテンシャルの概念図

に基づく古典的な分子動力学計算は、計算コストが小さいが計算精度が低いため定量的な議論に適していない。機械学習ポテンシャルは、第一原理計算に近い精度でポテンシャルエネルギーと力を計算できる原子間相互作用モデルとして近年注目されており、様々な系に対して開発が進められている。計算コストは第一原理計算と比べて大幅に小さいことから、数万原子を含むモデルも対象とでき、元素分布のゆらぎを再現した原子モデルも計算可能である。さらに計算コストが比較的低いことから原子シミュレーション手法による自由エネルギー計算と組み合わせることで、有限温度の積層欠陥エネルギーを自由エネルギーとして求めることができる。このように精度と計算コストのバランスに優れた機械学習ポテンシャルは、これまで第一原理計算や経験的ポテンシャルで扱うことが難しかった対象について計算可能であり、その潜在的用途は広い。本研究では積層欠陥構造を含む多様な原子構造モデルについて第一原理計算でエネルギーを求め、それを学習データとしてニューラルネットワークに基づく機械学習ポテンシャルを構築した(図 1 参照)。

## 4. 研究成果

### (1) 転位反応の相互作用の大きさを定量的に推定する方法の開発

単結晶圧延で実際に与えられたことになっている変形の境界条件は変形勾配テンソルの形で与えられる。このうち、対角成分については、圧延後の幅広がりやを計測することで、体積一定の課程のもとで決定できる。不明なのは、せん断成分である。このうち、圧延時に圧延方向に試料が平行であることや、圧延ロールが上下 (ND 方向) で対称であることなどの条件から、3 つのせん断成分については 0 と仮定できる。残る不明なせん断成分は 3 つであり、これを実験結果が再現できるように決定していくことになる。

表 1 に今回解析対象とした単結晶圧延実験の結果をまとめた。3 つの異なる単結晶試料について、初期の結晶方位、圧延後の結晶方位、圧延率、幅広がりやが記録されている。結晶塑性計算を初期方位から開始し、実験で得られた圧延率まで計算を進める。対角成分は幅広がりやが適切に得られるように決定されている。一方、圧延後の結晶方位は変形勾配テンソルのせん断成分をどのように与えるかで変わる。この圧延後結晶方位を再現できるようなせん断成分を探索することで、実験を再現できる結晶塑性計算ができることになる。

表 2 に 3 つの単結晶圧延実験を再現することを試みた結果をまとめた。B1-46-1 及び B2-41-2 については最終結晶方位の実験値とのずれが 0.001 度と極めて小さい計算結果を与えるせん断成分を見つけることができている。一方、B3-45-1 については、今回試した最適化の範囲では、実験値とのずれが 2.14 度のものが最善であった。実験による結晶方位の決定精度は約 1 度であり、当該実験値とのずれは無視できない有意なものである。実験値の再現性について評価するうえで、注意しておくことがある。この時点では、転位の相互作用パラメーターが不明であるため、一般的に仮定されている値を用いた。すなわち同一すべり面にある場合を 1 として、これ以外を 1.4 としている。ここで仮定した相互作用パラメーターが適切でなかったものと推測される。以前の結果[4]においても同様に 3 つの単結晶を再現する計算条件を見出すことはできていない。

表 1. 解析対象の単結晶圧延実験の結果

Specimens	Initial (phi1, Phi, phi2)	Destination (phi1, Phi, phi2)	Reduction (%)	Widening (%)
B1-46-1	(129,76.7,57.1)	(121,86.6,53.1)	40	9
B2-41-2	(120,65.1,76.6)	(130,60.0,78.0)	37	19
B3-45-1	(115, 61.5, 99.8)	(137, 58.0, 77.3)	48	30

表 2. 単結晶圧延実験を再現する最適化の結果

Specimens	XY	YZ	ZX	Deviation Angle
B1-46-1	1.420	0.670	0.353	0.001
B2-41-2	-1.878	-0.586	0.160	0.001
B3-45-1	-1.16	-0.63	0.40	2.14

再現性が高い2つの単結晶について、すべり系の積算すべり量を計算し、理想的な圧延である平面すべり条件における計算結果と比較した。この比較によって、本来、圧延において働くべきすべり系のうち抑制されていたすべり系を特定できる。ここから同時に働くことが抑制されていると考えられる相互作用と、同時に働くことができている相互作用を抽出した。この結果を表3にまとめた。強い相互作用を持つ可能性があるもののうち、2つの単結晶で共通しているのはGJのみであり、これは「それほど強くない相互作用」には含まれない。以上から、少なくとも他の2つの単結晶については、GJの相互作用パラメーターが強いために理想的な圧延変形を実現できなかった可能性が高いと言える。ここまでは、以前に報告した結果[4]を追認するものといえる。

次に、アプローチの(B)として今回新たに提案した相互作用パラメーターを変えながら再現性を確認する計算実験を実施した。対象とした相互作用パラメーターは、前段において強い相互作用がすべり系の活動を阻害している可能性を確認したGJである。具体的には、GJの相互作用パラメーターを上段までの計算で仮定していた1.4から複数段階で大きくし、これまでと同様の方法で変形勾配テンソルの

表4. GJ相互作用パラメーターと単結晶圧延実験の再現性。

GJ Parameter	Deviation Angle		
	B1-46-1	B2-41-2	B3-45-1
1.4	0.001	0.001	2.236
5	0.241	0.034	2.558
<b>10</b>	<b>0.01</b>	<b>0.722</b>	<b>0.837</b>
<b>15</b>	<b>0.005</b>	<b>0.150</b>	<b>0.410</b>
<b>20</b>	<b>0.004</b>	<b>0.154</b>	<b>0.513</b>

せん断成分を最適化したうえで、圧延後結晶方位の再現性を確認した。結果を表4にまとめる。相互作用が1.4の時には、表2で確認したとおりB3-45-1については実験結果を再現できない。GJを段階的に上げていくと、10の時に実験値との誤差が1度を下回ることがわかった。3つの単結晶全てにおいて実験を再現できているといえる。さらに値を上げていくと少なくとも20までは実験結果を誤差(1度)の範囲内で再現できている。

以上の結果から、GJの相互作用パラメーターを10以上にすることで3つの単結晶実験の結果を再現できることが新たにわかった。これは、複数の単結晶圧延実験と結晶塑性計算を組み合わせることで、転位の相互作用パラメーターの大きさを解析できる可能性を示唆する結果と言える。GJ関係にある転位が強い相互作用を持つという結果は本研究の仮説の通りである。強い相互作用の原因は、GJ関係にある転位が特異な転位反応によって積層欠陥を有する転位対へと変化するためと考えられる。実際にこの反応で生成されたと考えられる積層欠陥を含む転位対が、電子顕微鏡観察によって確認されている[6]。

## (2) 合金元素添加による積層欠陥エネルギー変化を推定する方法の開発

純Ni、純Al、Ni-Al二元系の様々な構造モデルを作成し、そのポテンシャルエネルギーを第一原理計算で評価した。ここで作成した構造モデルは、完全結晶の膨張・収縮、1軸引張・圧縮、2軸引張・圧縮、せん断などのアフィン変形モデルの他、原子配置をランダムに変動させたモデル、空孔モデル、格子間原子モデル、また積層欠陥モデル、自由表面モデルなどである。各モデルに含まれる原子数は数個から数十個である。また有限温度の分子動力学計算を実行したときに安定的に動作する機械学習ポテンシャルを作成するため、多様な結晶構造も学習構造として準備した。特に積層欠陥構造については多数の構造モデルを用意することで、高いエネルギー予測精度を実現するようにしている。この構造モデルを学習データとして、機械学習ポテンシャルを作成した。作成した機械学習ポテンシャルは、純Ni、純Al、そしてNi-Al二元系、いずれにおいても学習構造のポテンシャルエネルギーを高い精度で再現することを確認した(図2(a)参照)。また作成した機械学習ポテンシャルを用いて比較的低温での分子動力学計算を行い、ダイナミクス計算での動作の安定性について検証した。本研究では分子動力学計算にLAMMPSを用いた。また機械学習ポテンシャルを作成できる複数の公開的なプログラムを用いて精度と動作の比較検討も行った。使用する機械学習ポテンシャルのプログラムによって計算コスト、予測精度は異なり、また有限温度の分子動力学計算を行ったときの安定性についても違いが存在することを確認した。計算環境(例えばCPU計算機かGPU計算機か)によっても計算速度は異なることから、効率的な計算実行には、自らの計算環境と求める計算精度などを考慮してプログラムを選択するのが

表3. 実際の圧延で活動していたすべり系と理想的な圧延で活動すべきすべり系の比較から特定した相互作用の強弱

	Strong interaction	Not so strong
B1-46-1	CL or GJ	CPH,L
B2-41-2	GJ	L

望ましい。

作成した機械学習ポテンシャルを用いて格子欠陥のエネルギーを評価した。antiphase boundary (APB) エネルギーの計算について述べる(図 2(b)参照)。APB は  $\text{Ni}_3\text{Al}$  において重要な面欠陥であり、このエネルギーが巨視的な力学特性に影響を及ぼす。本課題で作成した機械学習ポテンシャルを用いて求めた  $\text{Ni}_3\text{Al}$  の APB エネルギーは実験で報告されている値に近い。さらに  $\text{Ni}_3\text{Al}$  モデルに対して、Ni を Al に置換する、あるいは Al を Ni に置換することで組成を  $\text{Ni}_3\text{Al}$  から若干変動させて APB エネルギーを計算した。Al 濃度が高くなるほど APB エネルギーは増加する傾向を示しており、これは第一原理計算を用いた先行研究の報告と傾向が一致する。このことから本研究で得られた APB エネルギー計算結果は妥当なものであり、さらに置換型の添加元素の効果についても評価可能であることを示している。本解析のエネルギー計算の精度は第一原理計算に近い一方、計算コストは第一原理計算よりも大幅に小さい。このため第一原理計算と比較して、本解析では大きな原子数のモデルを使用可能であり、固溶体などの合金では元素分布の空間的なばらつきを考慮した解析が実現できる。実際に本解析では APB エネルギー計算に数万原子からなる原子モデルを用いており、このような大きなモデルでは通常、第一原理計算では非常に大きな計算コストとなる。

さらに有限温度の積層欠陥エネルギーを求める手法として熱力学的積分法の検証を行った。熱力学的積分法は、原子シミュレーション手法と組み合わせることで原子間相互作用場に基づき有限温度での自由エネルギーを求める手法である。なお電子状態に対しても温度の影響は存在するが、これを考慮した解析は非常に計算コストが大きく現時点では容易ではないため本研究では電子状態に対する温度の影響を考慮しない。機械学習ポテンシャルに基づく分子動力学計算から原子振動などに関する情報を獲得し、熱力学的積分法で系の自由エネルギーを高精度で求められることを確認した。以上の成果から、 $\text{Ni}_3\text{Al}$  合金系の積層欠陥エネルギーを有限温度で求める原子論計算の枠組みを構築できた。これらは転位論に基づき  $\text{Ni}_3\text{Al}$  の力学特性を議論する際の基盤情報となる。この枠組みは 3 元系上の多元系でも有効である。また熱力学的積分法以外の自由エネルギー計算手法を用いることで、例えば安定状態ではない積層欠陥エネルギー(unstable stacking fault energy など)の評価も可能である。本研究課題で取り組んだ高精度機械学習ポテンシャルと原子論計算、さらに熱力学計算手法を組み合わせる枠組みは、様々な材料の格子欠陥の自由エネルギーを求める手法として広い応用が期待できる。

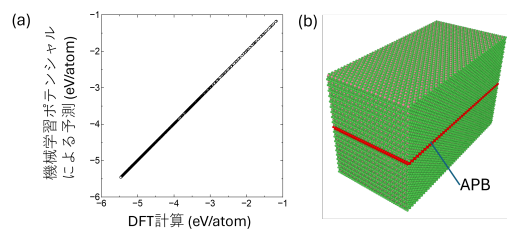


図 2. (a) 構築した機械学習ポテンシャルによるエネルギー予測と DFT 計算との比較、(b) APB エネルギー計算に用いた原子構造モデル。

## 参考文献

- [1] Kishida, K., Demura, M., Suga, Y., & Hirano, T. (2003). Orientation dependence of texture evolution in cold-rolled  $\text{Ni}_3\text{Al}$  single crystals. *Philosophical Magazine*, 83(26).
- [2] Demura, M., Raabe, D., Roters, F., Eisenlohr, P., Xu, Y., Hirano, T., & Kishida, K. (2014). Slip System Analysis in the Cold Rolling of a  $\text{Ni}_3\text{Al}$  Single Crystal. *Materials Science Forum*, 783-786, 1111-1116.
- [3] Kear, B. H., Giamei, A. F., & Oblak, J. M. (1970). On the origin of stacking faults in plasticity deformed  $\text{Ni}_3\text{Al}$  ( $\gamma'$ -phase). *Scripta Metallurgica*, 4(8), 567-574.
- [4] 出村 雅彦. (2017). ニッケルアルミナイド単結晶の圧延異方性に関する研究. 科学研究費助成事業研究成果報告書. 基盤研究(C)課題番号 26420750.
- [5] Roters, F., Diehl, M., Shanthraj, P., Eisenlohr, P., Reuber, C., Wong, S. L., Maiti, T., Ebrahimi, A., Hochrainer, T., Fabritius, H.-O., Nikolov, S., Friák, M., Fujita, N., Grilli, N., Janssens, K. G. F., Jia, N., Kok, P. J. J., Ma, D., Meier, F., ... Raabe, D. (2019). DAMASK - The Düsseldorf Advanced Material Simulation Kit for modeling multi-physics crystal plasticity, thermal, and damage phenomena from the single crystal up to the component scale. *Computational Materials Science*, 158(April 2018), 420-478.
- [6] Chiba, A., & Hanada, S. (1994). Formation mechanisms of SISF-bounding dislocations in cold-rolled  $\text{Ni}_3\text{Al}$ . *Philosophical Magazine A*, 69(4), 751-765.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 JiYi Yang, Yoshinao Kobayashi, Masahiko Demura
2. 発表標題 Computational analysis on cold-rolling anisotropy in Ni3Al single crystals
3. 学会等名 日本金属学会2023年春期第172回講演大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 譯田 真人
2. 発表標題 面欠陥と転位の電子・原子論解析に基づく強化機構の研究
3. 学会等名 日本金属学会2022年秋期第171回講演大会（招待講演）
4. 発表年 2022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
研究分担者	譯田 真人  (WAKEDA Masato)  (00550203)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・構造材料研究センター・主幹研究員   (82108)	

	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
研究協力者	ヤン ジイイ  (Yang Jiyi)		研究代表者が副指導教官として指導している東京工業大学修士課程学生（当時）

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------