

## 研究課題別事後評価結果

1. 研究課題名： 材料の組織・特性設計統合化システムの開発

2. 研究代表者名及び主たる研究参加者名(研究機関名・職名は研究参加期間終了時点)

研究代表者： 石田 清仁(東北大学大学院工学研究科 教授)

主たる共同研究者：

小野寺 秀博((独)物質・材料研究機構計算科学センター グループリーダー)

長谷川 光弘(九州工業大学工学研究院 教授)

中西 広吉((株)豊田中央研究所材料基盤研究部 室長)

長滝 康伸(JFEスチール(株)スチール研究所 主任研究員) (平成16年4月～)

3. 研究内容及び成果

各種の先進機能材料および構造材料の持つ諸特性は、その内部組織に大きな影響を受ける事から、その機能を最大限に引き出すにはそのための組織の制御が不可欠である。ナノからマイクロスケールに至る一連の内部組織を制御するための基本情報は状態図(相図)であるが、1980年代から著しい進展を遂げた第一原理的計算手法や実用材料をターゲットとするCALPHAD(Calculation of Phase Diagrams)法に代表される現象論的な計算手法の発展によって、単に状態図の予測や計算だけでなく、現在、組織形成を左右する自由エネルギーを定量的に推定できるようになっている。この様な進展により各方面の素材メーカーが状態図や熱力学のソフトウェアを導入して、現在日常的に研究開発に利用しており、そのレベルの高さは欧米をしのいで現在日本がトップレベルの状況にある。しかしこれらのソフトウェアの大部分は平衡計算すなわち“スタティック”な扱いであり、企業側からは速度論的な取り扱い、すなわち“ダイナミクス”へのソフトウェアの開発の要望が極めて大きい。これは実際の実用合金が必ずしも平衡状態にない事に起因する。従って、現在国内外の製造業にて求められているのは“スタティクスからダイナミクス”へわたる統合化された材料設計システムの開発である。平衡計算や速度論的計算については各々個々に多くの研究グループがあるが、両者を組み入れて統合化する研究は個人研究では限界があるため、ほとんど行なわれていないのが現状である。したがって、本研究の課題を遂行するためには、個々の成果を材料設計ツールの開発へと集積するチーム型研究が不可欠である。さらに重要なことはこれらのシミュレーションは、研究のためのツールとなるだけではなく実際の材料開発に直接役立つものでなければならない事である。本研究グループはこれまでシミュレーション技術に携わっているばかりでなく、それを応用した実際の材料開発を実現している研究グループでもある。従って単なるシミュレーション技術の開発だけでなく、それを利用して実際に材料開発まで行い、世界にシミュレーション手法の有用性を示す事が出来て初めて、実用化基盤の構築が出来ると考えている。本研究は、この様に実用合金開発に直結するシミュレーション技術の開発を目指し、共同でこの課題に挑戦するものである。

本研究の最終目標は汎用的な "材料の組織と特性を予測" する統合化システムの開発と、合金組成自動探索システムの開発であるが、社会的ニーズが大きくかつシミュレーションするためのデータベースや基本パラメータが整備されているターゲットに的を絞って研究を行った。具体的には (i) エレクトロニクス実装における材料接合技術シミュレーション (ii) 磁気記録媒体、ナノ軟質磁性材料及び強磁性形状記憶合金のシミュレーション (iii) 鉄鋼材料の材質予測シミュレーションを研究対象とした。

#### (A) エレクトロニクス実装における材料接合技術シミュレーション(東北大グループ)

半導体デバイスにおける接合材料として、Pbフリーはんだの開発が求められているので、計算によって融点、表面張力、粘性などの熱力学的性質を予測するデータベースが求められる。研究開始時にはすでに、Pb、Bi、Sn、Sb、Ag、Cu、Zn、Inの8元素についてはほぼ完了していたが、接合基板との反応などに重要なAl、Au及びNiをデータベースに追加するための解析を行った。その後Pbフリー高温はんだのニーズが高まっているので、その有力候補であるZn-Al系を基本としたデータベース構築についても追加して研究を行った。また目的とする融点や液相と固相の2相温度領域を有する合金組成を自動的に計算するプログラム開発を行った。一方、はんだ接合は通常Cu基合金の基板上で行われるので、Cu基合金の熱力学データベース構築も工業的に重要である。Cu、Ni、Cr、Si、Zn、Fe、Sn、Ti、B、Cの10元系以上のデータベース構築を目指した。

#### (B) 磁気記録媒体、ナノ軟質磁性材料及び強磁性形状記憶合金のシミュレーション(東北大グループ、物質・材料研究機構グループ、九州工大グループ)

Co基磁気記録媒体の熱力学的データベース構築と組織シミュレーションを行うが、状態図計算で予測されるCo-Mo系とCo-W系の磁気誘起2相分離を利用した磁気記録媒体開発の一環として、Co-(Mo、W)系の熱力学解析と組織シミュレーションを行うとともに、実際に薄膜を作成しシミュレーションとの比較を行い新しい磁気記録媒体の開発を目指した。また、Co-W系の状態図研究を遂行している過程で、Co基の3元系合金の中でL1<sub>2</sub>構造の3元化合物が出現し、耐熱合金として極めて有望である事が確認された。そこでこの耐熱Co基合金の基本系であるCo-Al-W基合金の熱力学データベース構築やフェイズフィールドによる組織変化についてのシミュレーションにも着手した。一方ナノ軟質磁性材料については、Fe基系の熱力学データベース構築を行っているが、Fe-B-Si-Cu-Co-Nb-Zr系の計算が出来るシステムを構築するためまだ未解析であるFe-B-X、B-X-Y3元系を中心に行った。一方、強磁性形状記憶合金については、本研究で発見したメタ磁性形状記憶特性を有するNi-Mn-X(X:Sn,In,Sb)系熱力学解析とマルテンサイト変態さらに磁氣的性質についてシミュレーション作成方法を検討した。

#### (C) 鉄鋼材料の材質予測シミュレーション((株)豊田中央研究所グループ、JFEスチール(株)グループ)

組織シミュレーションに不可欠な熱力学データベースについては、これまでの蓄積データをいかして、商品化を行うべくその作業を行った。具体的には、ボロンを含むマイクロアロイング鋼としてFe-C-B-Cr-Ni-Co-Ti系、硫黄を含むマイクロアロイング鋼としてFe-C-S-Mn-Ni-Cr-Ti-Cu-Nb-V系炭素と窒素を含む系としてFe-C-N-Cr-Mn-Ni-Ti-Nb-V系の3種類のバージョンである。またこれらのデータベースを結合する事を目指すが、そのために必要な具体的な2元系、3元系の解析を地道に行う必要がある。またフェーズフィールド法によってフェライト、パーライト及びベイナイトの組織形成のシミュレーションを行った。さらに有限要素法を用いた均質化法によって各種組織の機械的性質を予測するシミュレーションを行った。

## 4. 事後評価結果

### 4-1. 外部発表(論文、口頭発表等)、特許、研究を通じての新たな知見の取得等の研究成果の状況

国内外の学術論文誌に200件以上の極めて積極的な論文発表を行い、招待講演を含めた国内外の口頭発表も400件を超えており十分な研究成果を出している。特に新しい3元化合物CO<sub>3</sub>(Al,W)の発見をScience誌に発表したことは特筆に値する。特許出願も数多く、特に海外出願を積極的に実施した点は、海外の新規研究プロジェクトへの展開や、海外企業との契約締結において重要である。

本研究プロジェクトは材料の熱力学データベースの開発を含む、材料設計の統合化システムといった側面をも

ち以下に示す代表的な研究成果を十分に認めることができる。

Pbフリー高温はんだの研究が契機となり、ヨーロッパではCOSTMP0602の新しいプロジェクトが今年から発足している。またCo基磁性材料のデータベース構築中に発見したL1<sub>2</sub>構造の新しい3元化合物Co<sub>3</sub>(Al, W)は耐熱合金としても極めて有望である。本成果が発端となって現在米国をはじめ海外においてCo基スーパーアロイの研究が急速に進んでいるなど新規材料研究に影響を与えている。さらに本研究で発見したメタ磁性型形状記憶Ni-Mn-In基合金は海外でも高く評価され、ドイツ、ロシア、インドでは強磁性形状記憶合金の新しいプロジェクトが発足し活動が始まっている。実用的観点からみると、材料の熱力学的データベースは3件商品化しており、また研究成果の実用化展開としてすでに国内企業7社、海外企業2社と研究契約等の締結を行っている。

当初の研究計画に対して材質予測シミュレーションにおける機械的性質の解析シミュレーションについては、開発が遅れ気味であったが、均質化法のシミュレーションを行うグループを新しく参加させることによって材料の特性予測を可能にしたことはシミュレータの完成度をさらに高めた。

#### 4-2. 成果の戦略目標・科学技術への貢献

本研究成果は、著名国際誌に発表しており、多くの国内外の企業からは本プロジェクトの成果について共同研究等の申込みがあるなど社会的インパクトは非常に大きい。またトムソンサイエンティフィック社が今後飛躍的な発展が期待されるリサーチフロント(最先端研究領域)として10分野を選択したが、その中の一つとして本プロジェクトで研究を行った強磁性形状記憶合金が同定された事も国際的なインパクトを与えた。さらに本研究の成果が刺激となってPbフリーはんだと強磁性形状記憶合金のプロジェクトがヨーロッパを中心に開始されたことも国際的貢献につながったとして高く評価できる。

本プロジェクトは計算と実験の合同の大グループで実施されており、トータルに見た成果は非常に大きい。材料研究において総合的なシミュレーション技術と実験研究とが連携すると、どのようなことが可能になるかということを示してくれた。またphase field法をベースにした「材料組織形成統合化システム」や「磁気特性計算システム」などGUIを備えたシステムの整備、また材料データベースの構築などは個々の物質についての成果とは別の意味でシミュレーションのプロジェクトとして評価できる。

本研究で構築したシミュレーションは多くの人に利用してもらう事が重要であり、熱力学データベースは材料開発に有用な武器として今後国内外でさらに利用されると考えられる。また材料組織形成計算統合化システムは多くの機能を持ったプログラムであるため、材料開発だけでなく大学などの材料教育にも利用できると大いに期待できる。

#### 4-3. その他の特記事項(受賞歴など)

本研究は大学、研究所、企業など5グループからなる総勢60名以上が研究に係わる大規模な研究チームであったが、東北大学、九州工業大学は相平衡のスタティック部分と機械的性質のシミュレーション、物質・材料研究機構はphase field法と統合化システムの作成、豊田中央研究所とJFEスチールは実用材料へのアプローチと各々の研究者が専門、得意分野を生かして研究遂行し、すべての研究グループが担当の課題について十分な成果を出している。特に実用上の観点から、企業が使い易いデータベースやシミュレーション作成に向けて産学官連携を行い十分な成果を挙げている。5年間の研究期間を通じて毎年1回の全体ミーティング、春と秋の日本金属学会を利用した会議、メンバーの殆どが会員である合金状態図研究会などを利用しての情報交換や議論を通じて本成果につながったと考える。

以上