

## 技術資料



# 超合金の結晶粒径定量化への機械学習の適用と結晶粒径分布シミュレーションの開発

柳原百花<sup>\*1</sup>, 河合達也<sup>\*1</sup>, 児嶋 彬<sup>\*1</sup>, 岡島琢磨<sup>\*2</sup>

## Utilization of Machine Learning for Grain Size Analysis in Superalloys and Development of a Grain Size Distribution Simulation

Momoka YANAGIHARA, Tatsuya KAWAI, Akira KOJIMA and Takuma OKAJIMA

### Synopsis

Control of microstructures, such as average grain size, grain size distribution, and precipitated phases is important for achieving superalloys that display material properties suitable for harsh environments. While it is possible to predict the average grain size with FEM simulation, prediction of grain size distribution has not been established, because the process of tracing grain boundaries and analyzing distribution is expensive and time consuming. Generally, grain size distribution is expressed in terms of probability density, as a function, with the standard deviation of the grain size distribution as one of the variables. In this study, a grain-size distribution simulation has been developed, combined with automated crystal grain measurement technology. Standard deviations of recrystallized grain size were formulated with temperature and holding time in the hot compression test. The results of the grain size distribution simulation incorporating the standard deviation prediction equation confirmed that the predicted grain size distribution was almost same as the experimental values.

## 1. 緒言

近年の地球を取り巻く外部環境の変化から、世界では脱炭素社会に向けたさまざまな取り組みが行われている。エネルギー分野においては、CO<sub>2</sub> 排出量が少ない天然ガスの需要増加に伴い、高温高圧かつ腐食性の高い深井戸の開発が求められている<sup>1)</sup>。厳しい環境下で使用される掘削部材の一部には、耐食性と耐熱性に優れた超合金が使用される<sup>2)</sup>。超合金が本来の材料特性を発揮するためには、その製造工程において結晶粒径をはじめとする組織制御技術が重要となる。先行研究では、平均結晶粒径とその粒径分布が材料特性におよぼす影響について

報告されている<sup>3), 4)</sup>。このような観点から、材料特性の品質向上には、従来の平均結晶粒径だけでなく、粒径分布まで含めた組織制御技術の開発が期待される。

大同特殊鋼(株) (以下、当社という) ではデジタルエンジニアリングシステム DAINUS<sup>®</sup> (DAI do NUmerical process engineering System) を開発し、実際の圧延や鍛造プロセスにおける最適な組織制御プロセスの設計に活用されている<sup>5)</sup>。DAINUS<sup>®</sup> は実験で得られた変形抵抗や熱物性、再結晶粒径の平均値の粒成長挙動の構成式や、再結晶面積率の変化をデータベースに組み込み、予測精度を担保する。当社の既存技術では、データベース由来の平均粒径までの予測は可能である一方で、先に述

2024年8月8日 受付

\* 1 大同特殊鋼(株)技術開発研究所 (Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.)

\* 2 大同特殊鋼(株)技術開発研究所, 工博 (Dr. Eng., Corporate Research & Development Center, Daido Steel Co., Ltd.)

べた材料品質に影響を与える結晶粒径分布の予測は実現されていない。また結晶粒径分布を考慮した組織予測シミュレーションの開発には、高精度な結晶粒径分布の実験データを構築するために、多量のデータ採取が必要となることも課題であった。現状、金属結晶学に基づいた正確な結晶粒径分布の測定には、EBSD（電子線後方散乱回折法）による分析が望ましいが、非常に高価かつ分析時間を要するため、大量のデータ採取には不向きであった。そこで当社では、これまでに機械学習と画像処理を用いた自動結晶粒径計測技術を開発している<sup>6)</sup>。この計測手法では、光学顕微鏡写真に対して機械学習と画像処理を適用することで、結晶粒径分布の計測が可能である。本研究ではこの自動計測手法を適用し、熱間加工温度・時間条件が再結晶組織の結晶粒径分布の変化に与える影響について調査を行った。さらに、定量化した再結晶の粒径分布のデータを用いた結晶粒径分布シミュレーションを検討した。

## 2. 実験方法

### 2. 1 供試材

供試材には超合金の一種であり Ni-Fe-Cr 合金の Alloy925 を使用した。Table 1 に化学成分を示す。インゴットは真空誘導溶解（VIM）と真空アーク再溶解（VAR）でのダブルメルトにて作製した。溶解した材料は凝固組織が破壊されるまで十分に鍛錬を加えた。その後 1180 °C で 10 時間の均質化処理を施した。Fig. 1 に試験片の初期組織を示す。平均粒径 965 μm 程度の γ 単相組織であることが確認された。

Table 1. Chemical composition (mass%).

Material	Ni	Cr	Mo	Cu	Ti	Al	Fe
Alloy925	44	21	3.1	1.8	2.2	0.2	Bal.

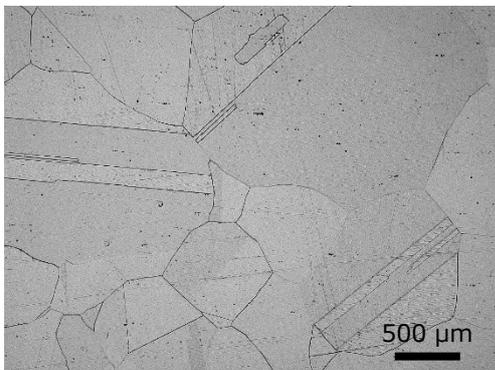


Fig. 1. Microstructures after solution treatment.

### 2. 2 試験方法

再結晶挙動の調査を目的に、(株)鷺宮製作所製の熱間加工シミュレータを用いて均一圧縮試験（ラスティガエフ法）を行った。圧縮試験は Fig. 2(a), (b) に示すように 2 パターンの加工履歴で実施した。本実験では、加熱時にスケールが発生することを抑制するため、Ar 雰囲気下で圧縮試験を実施した。圧縮試験条件 (a) では初期加熱温度 1180 °C で 60 s 保持後に -3 °C/s で 1000 °C まで降温し 5 s 保持後に、圧下率 40 % で圧縮した直後に水冷したものと、同装置内で 60, 600, 3600 s 等温保持後に水冷した試験片を作製した。さらに試験条件 (b) では初期加熱温度 1200 °C で 60 s 保持後に圧下率 40 % で圧縮した直後に水冷したものと、同装置内で 60, 600, 3600 s 等温保持後に水冷した試験片を作製した。圧縮後に水冷した水準は装置の仕様上、圧縮完了から水冷までの所要時間は 1 s となるため、本実験では圧縮完了時点から 1 s 経過した組織を圧縮直後の組織として扱った。再結晶粒径および再結晶面積率の定量化を行うため、マイクロ観察を行った。試験片の上面の円形状を均一に 6 分割するように切断し、その切断面に対して湿式研磨およびダイヤモンド研磨を施し、鏡面研磨面に仕上げた。そして、塩化銅（II）コーリング液を用いて化学腐食を行った後に、マイクロ観察を実施した。観察場所は試験片の縦断面上の高さ方向中心かつ幅方向の 1/4 位置で、2830 × 3800 μm<sup>2</sup> を視野範囲とした。各試験水準につき合計 6 枚のマイクロ写真を撮影した。

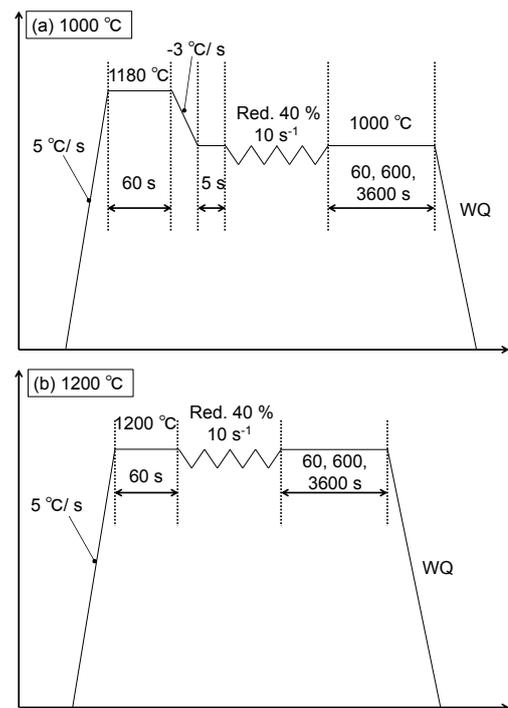


Fig. 2. Experimental conditions of compression test.

### 2. 3 結晶粒径分布の統計学的処理

本節では撮影したマイクロ写真に対して、機械学習を用いた結晶粒径の計測と統計学手法について示す。本実験では、各試験水準に対して250個以上の結晶粒を計測し、結晶粒径分布の評価を実施した。Fig. 3に結晶粒径分布の概念図を示す。結晶粒径計測で得られた個々の結晶粒径は、自然対数に変換<sup>7)</sup>後、各階級値に属する面積率に換算し、縦軸を面積率、横軸を結晶粒径の自然対数とした場合の結晶粒径分布を作成した。このときの階級は0.1刻みとした。さらに結晶粒径分布より式(1)～式(3)を用いて平均粒径、標準偏差、確率密度関数を算出した。

$$D_{rex} = \exp \left[ \frac{\sum (\ln D_i \times X_{rex})}{\sum X_{rex}} \right] \quad (1)$$

$$\sigma_{\ln D} = \sqrt{\frac{1}{k} \times \sum_{j=1}^k (\ln d_j - \ln D_{rex})^2} \quad (2)$$

$$f(x) = \frac{1}{\sigma_{\ln D} \sqrt{2\pi}} \exp \left\{ -\frac{(\ln D_i - \ln D_{rex})^2}{2(\sigma_{\ln D})^2} \right\} \quad (3)$$

ここで式(1)～式(3)において、 $D_{rex}$ は再結晶粒の平均粒径、 $D_i$ は再結晶粒の粒径の階級値、 $X_{rex}$ は再結晶面積率、 $\sigma_{\ln D}$ は再結晶粒径の標準偏差、 $k$ は再結晶粒の総数、 $d_j$ は個々の再結晶粒径を示す。平均粒径は各結晶粒の面積を考慮した加重平均を使用した。また、再結晶粒の結晶粒径分布を確率密度関数化するため、その変数の一つである再結晶粒の標準偏差を定量化し、熱間加工条件を変化させた場合の再結晶粒径分布の特徴量として評価を行った。

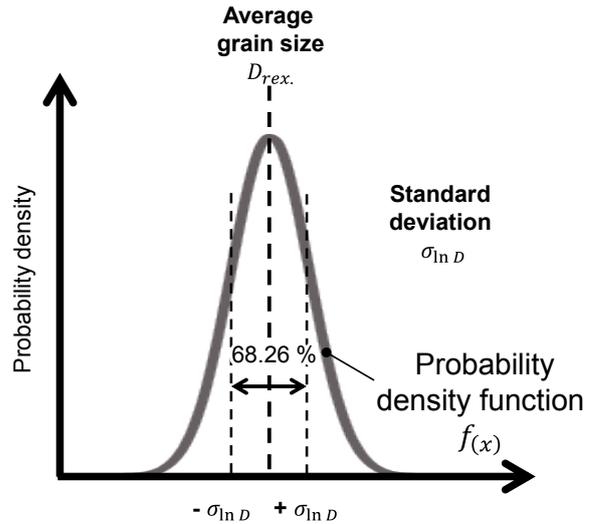


Fig. 3. Schematic of grain size distribution.

## 3. 結果および考察

### 3. 1 熱間圧縮試験後の組織観察結果

Fig. 4にAlloy925の熱間圧縮試験片を光学顕微鏡でマイクロ観察した結果を示す。加工温度1000、1200℃における圧縮直後の組織では、未再結晶粒と再結晶粒の混粒組織であった。圧縮直後の組織における再結晶面積率は、高温条件である1200℃は高い傾向であった。その後、両温度条件の圧縮直後の組織を等温保持した場合、一次再結晶過程が進行し、保持時間が3600sで全面再結晶が確認された。

Temp.	Holding time			
	1 s	60 s	600 s	3600 s
1200 °C				
1000 °C				

Fig. 4. Comparison of microstructures after compression tests at 1200 °C and 1000 °C.

### 3. 2 再結晶挙動の定式化

Fig. 5にミクロ観察結果に対する機械学習を用いた結晶粒径計測の結果を示す。ミクロ写真上で再結晶粒と未再結晶粒の混粒組織であった水準の結晶粒径分布は二つのピークを示した。一方で、全面再結晶であった水準はピークが一つの分布を示した。

Fig. 6に組織予測シミュレーション用に再結晶粒のみを抽出した結晶粒径分布の結果を示す。再結晶の結晶粒径分布より、平均再結晶粒径と標準偏差を求めた。

Fig. 7(a), (b)に各加工温度条件における等温保持時間に対する再結晶粒径の平均値と粒成長曲線を示す。実

験値の縦軸方向の誤差範囲は再結晶の粒径分布から得られた最小値、最大値を示す。各加工温度・時間条件における再結晶粒径の平均値に対して、式(4)に示す瀬沼らが提唱した静的再結晶の粒成長の予測式<sup>8)</sup>を用いて定式化を行った。ここで式(4)において $D_{st}$ は初期再結晶粒径、 $Q_{grow}$ は粒成長の活性化エネルギー、 $t$ は等温保持時間、 $T$ は等温保持温度、 $R$ は気体定数、 $B$ 、 $m$ は定数を示す。粒成長は高温、長時間条件ほど促進され、その影響で最小値と最大値の差は広がる傾向を示した。

$$D_{rex}^m = D_{st}^m + B \times \exp\left(-\frac{Q_{grow}}{R \times T}\right) \cdot t \quad (4)$$

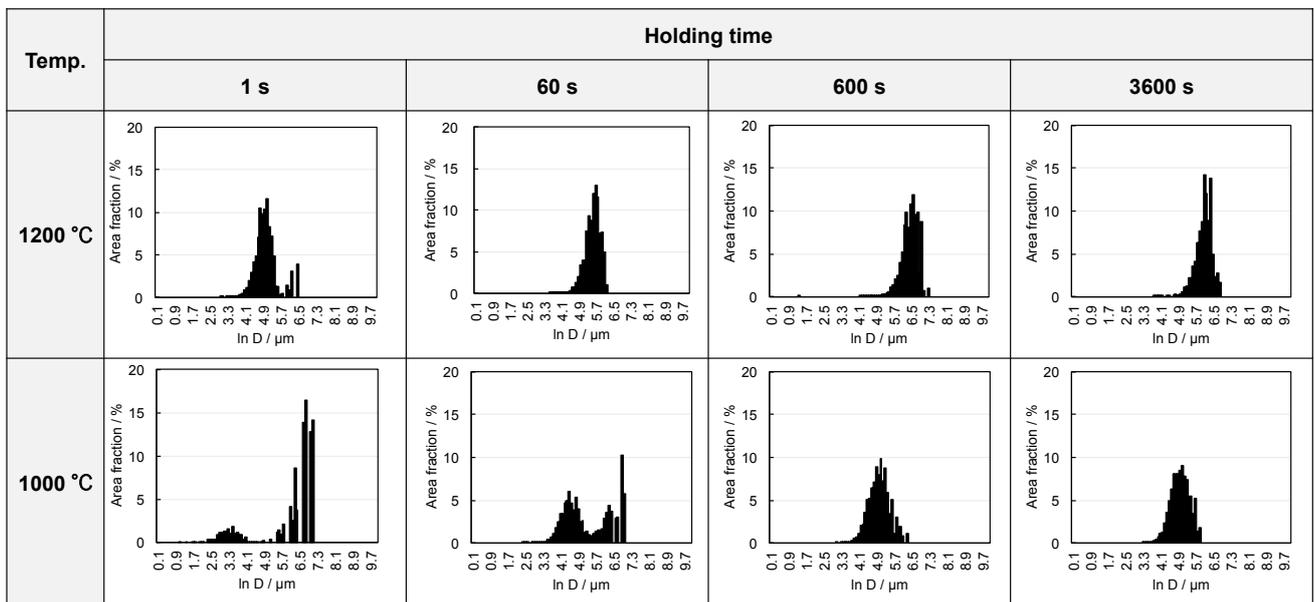


Fig. 5. Grain size distributions of microstructures after compression tests.

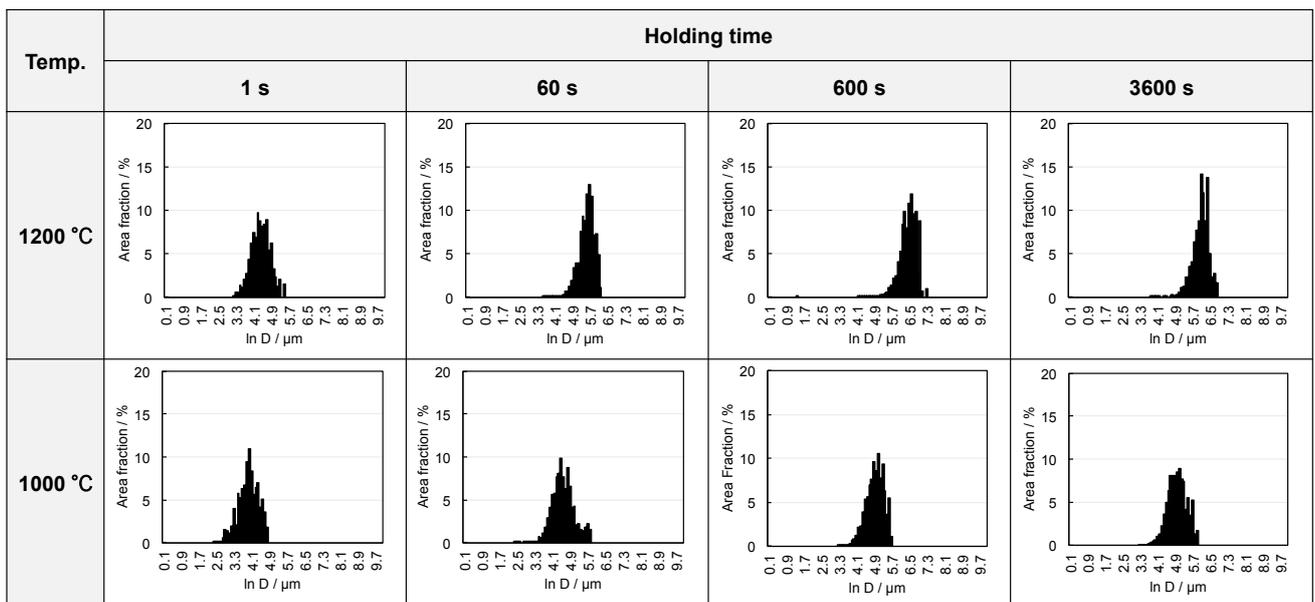


Fig. 6. Recrystallized grain size distributions after compression tests.

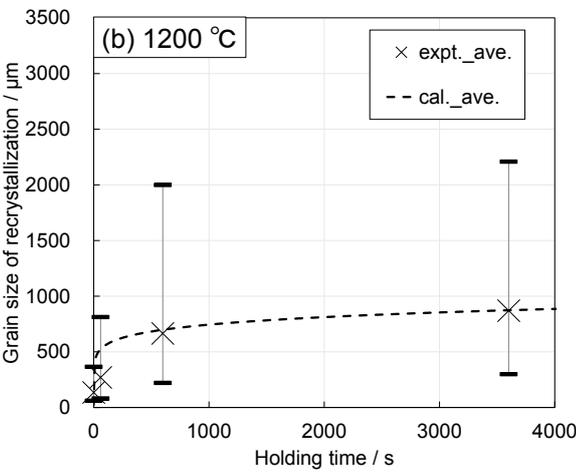
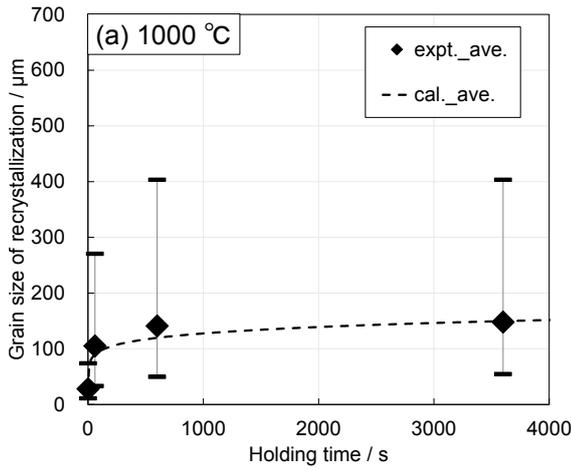


Fig. 7. Recrystallized grain growth.

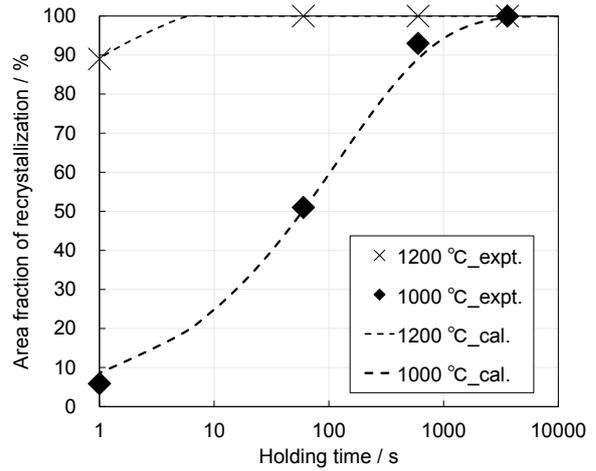


Fig. 8. Recrystallized area fraction.

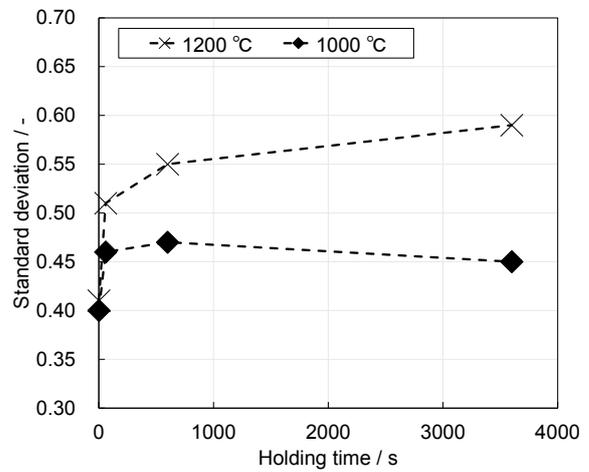


Fig. 9. Relationship between holding time and standard deviation of recrystallized grain size.

Fig. 8 に、各温度条件の再結晶面積率の経時変化を示す。再結晶面積率の実験値に対して、式 (5)、式 (6) に示すアブラミの式<sup>8)</sup>を用いて定式化を行った。ここで式 (5)、式 (6) の  $t_{0.5}$  は再結晶が 50% 進行した時間、 $\epsilon$  はひずみ、 $Q_{st}$  は再結晶進行の活性化エネルギー、 $C_1$ 、 $C_2$  は定数を示す。再結晶面積率は保持温度が高い条件ほど短時間で全面再結晶化に至る傾向を示した。

$$X_{rex} = 1 - \exp\left(-0.693 \left(\frac{t}{t_{0.5}}\right)^n\right) \quad (5)$$

$$t_{0.5} = C_1 \times \epsilon^{C_2} \times \exp\left(-\frac{Q_{st}}{R \times T}\right) \quad (6)$$

Fig. 9 に再結晶の粒径分布における標準偏差の経時変化を示す。横軸は等温保持時間、縦軸は再結晶粒の標準偏差とした。両温度条件ともに等温保持時間の長時間化

に伴い再結晶粒の標準偏差は増加した。再結晶粒の標準偏差に温度・時間依存性がみられたことから、その二つを変数として、再結晶粒の標準偏差の実験値に対して式 (7) に示す温度と時間を変数とした粒成長の予測式を応用して定式化を行った。ここで式 (7) において  $\sigma_{inD_{in}}$  は圧縮直後の組織の再結晶粒の標準偏差、 $D$ 、 $a$ 、 $Q'$  は定数を示す。

$$(\sigma_{inD})^a = (\sigma_{inD_{in}})^a + D \times \exp\left(-\frac{Q'}{R \times T}\right) \cdot t \quad (7)$$

Fig. 10(a), (b) に各温度条件における再結晶粒の標準偏差実験値と式 (7) を用いて定式化した再結晶粒の標準偏差の時間変化をプロットした。実験値に対する定式化の結果は、おおよそ全体傾向を押さえられていると考えられる。

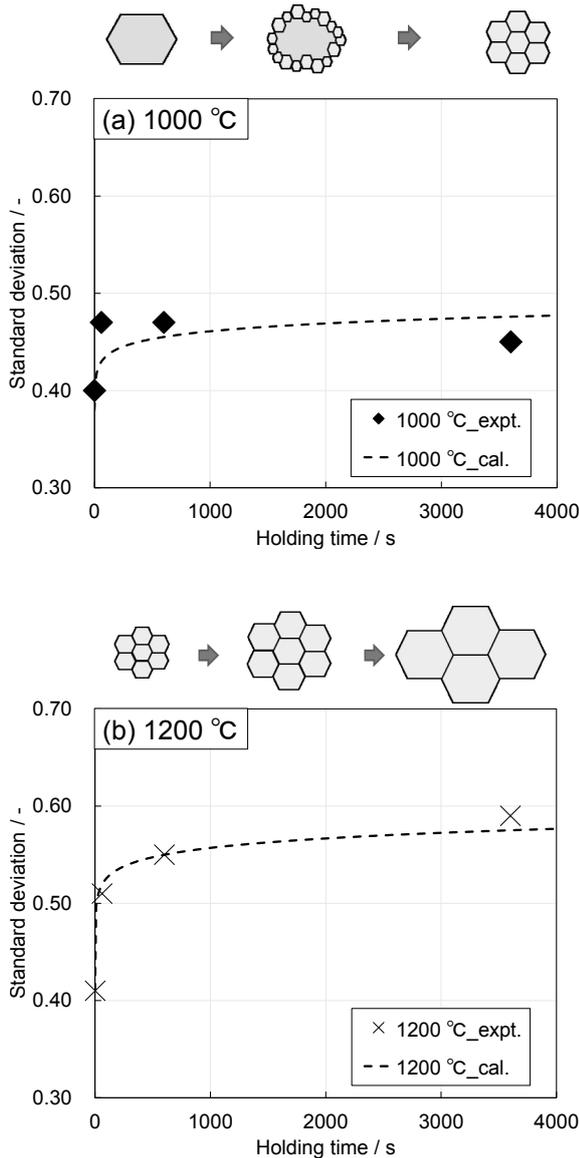


Fig. 10. Change in standard deviation of recrystallized grain size and schematic of recrystallization.

次に本実験において再結晶粒の標準偏差が温度と時間を変数とした式で表すことができた理由について考察する。保持温度 1000 °C では、圧縮直後の組織は、Fig. 8 より再結晶面積率は 10 % 以下であり、未再結晶組織の割合が高い傾向であった。その後の等温保持工程で生成時期が同程度の再結晶粒が発生し、全面再結晶に至る等温保持 3600 s まで静的再結晶挙動が進行したと考えられる。従って同時期に発生した再結晶粒が保持温度、時間に応じた正常な粒成長挙動を示したため、温度と時間を変数とした式 (7) で定式化できたと考えられる。保持温度 1200 °C では、Fig. 8 より圧縮直後の組織は再結晶面積率が 90 % と全面再結晶がほぼ完了してい

た。その後の等温保持工程では、個々の再結晶粒が温度に応じた正常粒成長を示したため、再結晶粒の標準偏差は 1000 °C と同様に定式化できたと考えられる。

### 3. 3 結晶粒径分布シミュレーション

Alloy925 の熱間加工シミュレータによる熱間圧縮試験を再現した有限要素解析モデルを構築し、結晶粒径分布予測の構成式の精度確認を実施した。有限要素解析モデルの設定条件を Table 2 に示す。

Table 2. FEM simulation conditions.

Material	Alloy925
Size of test piece	Diameter: 15.0 mm Length: 22.5 mm
Temperature	1000 °C, 1200 °C
Reduction	40 %
Strain ratio	10 s <sup>-1</sup>
Holding time	1, 60, 600, 3600 s

Fig. 11 に各加工温度における、等温保持時間に対する平均再結晶粒径、最小値と最大値、解析で求めた再結晶粒の最小値と最大値の粒成長曲線を示す。解析による再結晶粒の最小値と最大値は正規分布上で確率密度 0.1 の数値を採取した。Fig. 11(a), (b) ともに解析による最小値は実験値と一致する傾向にあった。一方で解析による最大値は加工温度 1200 °C、等温保持時間 3600 s の条件において最大予測誤差 1086 μm であった。Fig. 11(a) の保持温度 1000 °C の条件における実験値に対する解析値の予測誤差は、Fig. 10(a) に示す標準偏差の実験値から定式化する際の合わせ込み精度の影響を受けたと考えられる。Fig. 11(b) の保持温度 1200 °C の条件では、保持温度が高温側であり、結晶粒径が圧縮直後の組織で約 140 μm 程度と大きく、その後の粒成長挙動の進行に伴い光学顕微鏡観察時の観察視野に収まらない結晶粒の頻度が増加し、それらが計測結果に反映されずに誤差につながった可能性がある。今回の検証より、圧縮試験より得られた再結晶粒径の標準偏差を加工温度・時間で定式化することで、粒径分布を予測できる可能性が示唆された。今後は実験値を増やすことで解析精度の向上を図る。

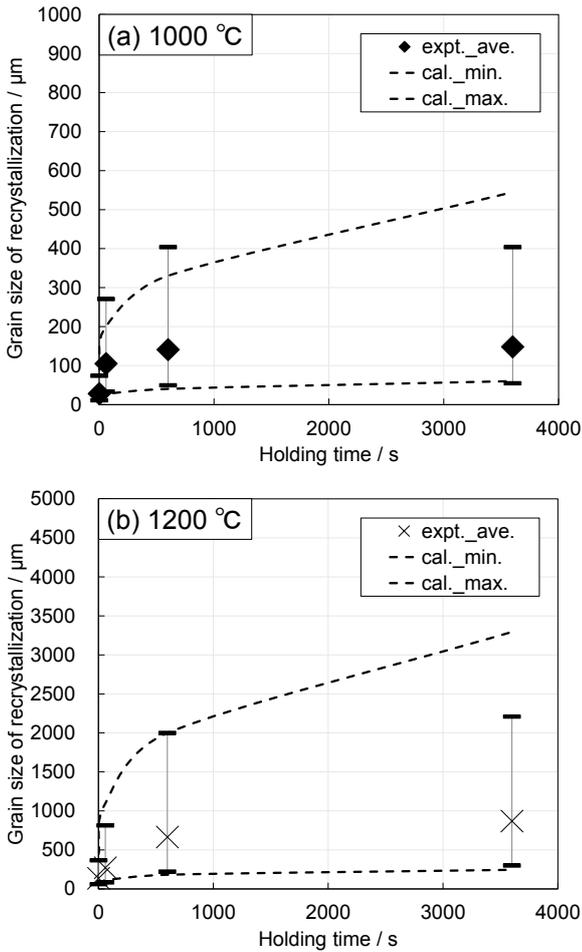


Fig. 11. Results of simulation of recrystallized grain size distribution.

## 4. 結 言

機械学習による Alloy925 の再結晶粒径分布の定量化とシミュレーションについて以下の結果を得た。

- 1) 機械学習による結晶粒径分布の定量化により、Alloy925の熱間加工条件の変化に伴う再結晶粒径分布の標準偏差、すなわち分布の広がりの変化を可視化することができた。
- 2) 加工温度 1000 °C、1200 °Cの再結晶の結晶粒径分布は温度・時間依存性がみられ、その二つを変数とした定式化が可能であることが確認された。
- 3) 熱間圧縮試験で得られた再結晶粒径の標準偏差の式を組織予測シミュレーションに組み込むことで、有限要素解析上で結晶粒径分布の予測計算が可能であることが示唆された。今後は実験値を増やすことで解析精度の向上を図る。

※ DAINUSは大同特殊鋼(株)の登録商標です。

(文 献)

- 1) 富尾悠索, 相良雅之, 天谷尚, 土井教史, 上山正樹, 鈴木悠平: 日本製鉄技報, 422(2023), 2.
- 2) Special Metals Corporation Alloy Technical Bulletins 「INCOLOY® Alloy925」, 2004.
- 3) 高山善匡, 杜澤達美, 加藤一, 古城紀雄, 堀茂徳: 日本金属学会誌, 51(1987), 10, 907.
- 4) 益子美明: 鉄と鋼, 43(1957), 1307.
- 5) T. Okajima, S. Sakurai and M. Fujiwara: Int. Conf. IFM2014, (2014), 198.
- 6) 児嶋彬, 本田百花, 岡島琢磨: 電気製鋼, 94(2023), 2, 73.
- 7) 佐藤知敏, 酒井洋典: 日本金属学会誌, 55(1991), 739.
- 8) 瀬沼武秀: 第 180・181回西山記念技術講座, (2004), 99.



柳原百花



河合達也



児嶋彬



岡島琢磨