

1100アルミニウムにおける静的再結晶の マルチフェーズフィールドシミュレーションと その場観察の非逐次データ同化

Non-sequential data assimilation of in-situ observation and multi-phase-field simulation
of static recrystallization in 1100 aluminum

梅澤基記¹⁾, 伊東正登²⁾, 榊原佑弥³⁾, 秋葉奎洲⁴⁾, 谷口兼一⁵⁾, 山中晃徳⁶⁾

Motoki Umezawa, Masato Ito, Yuya Sakakibara, Kishu Akiba, Kenichi Yaguchi and Akinori Yamanaka

1) 東京農工大学大学院 工学府 (〒184-8588 東京都小金井市中町2-24-16, E-mail: s244027v@st.go.tuat.ac.jp)

2) 博士 (工学) 三菱マテリアル株式会社 イノベーションセンター 主任研究員 (〒364-0028 埼玉県北本市下石戸7-147, E-mail: itol@mmc.co.jp)

3) 三菱マテリアル株式会社 イノベーションセンター (〒364-0028 埼玉県北本市下石戸7-147, E-mail: yuyas@mmc.co.jp)

4) 三菱マテリアル株式会社 イノベーションセンター (〒330-8508 埼玉県北本市下石戸7-147, E-mail: kiakiba@mmc.co.jp)

5) 三菱マテリアル株式会社 イノベーションセンター 主任研究員 (〒364-0028 埼玉県北本市下石戸7-147, E-mail: yaguchi@mmc.co.jp)

6) 博士 (工学) 東京農工大学大学院 工学研究院 教授 (〒184-8588 東京都小金井市中町2-24-16, E-mail: a-yamana@cc.tuat.ac.jp)

To develop highly formable aluminum alloys, predicting microstructure evolutions during a static recrystallization is crucial. Multi-phase-field (MPF) method based subgrain growth (SG) model has been used for simulating the static recrystallization. The MPF-SG model requires accurate stored energy distribution for the precise prediction of the microstructure evolution during the static recrystallization. However, experimental measurement of the stored energy distribution has not been established. This study developed a non-sequential data assimilation (DA) method based on the Bayes' theorem for the estimation of the stored energy distribution. The MPF-SG model and in-situ observation of the static recrystallization were integrated by the non-sequential DA method to estimate the stored energy distribution from the experimental data obtained from an electron backscattered diffraction (EBSD). The MPF-SG simulation was performed using the stored energy distribution estimated by the non-sequential DA. The result demonstrated that the non-sequential DA could improve the prediction accuracy of the MPF-SG model.

Key Words : Phase field method, Data assimilation, Static recrystallization, Stored energy

1. 緒言

省エネルギー社会の実現を目的とする自動車車体の軽量化および燃費向上のために、成形性に優れたアルミニウム合金材が求められている。アルミニウム合金材の成形性の向上には、焼鈍過程において、材料内部に発生した再結晶粒が塑性変形による蓄積エネルギーを駆動力として成長する現象である静的再結晶[1]での、微細組織形成を予測し、制御する必要がある。静的再結晶での微細組織形成の予測には、再結晶粒が形成される核形成から粒成長を統一的に表現可能な、マルチフェーズフィールド (Multi-phase-field: MPF) 法[2, 3]によるサブグレイン成長 (Subgrain growth: SG) モデル[4]が用いられてきた[5, 6]。高精度な微細組織形成予測のためには、初期組織における正確な蓄積エネルギー分布を SG モデルに入力する必要があるが、その測定は技術的に困難である。

近年、データ同化[7]と呼ばれるベイズ推定手法により、

材料組織の時間発展のその場観察結果とシミュレーション結果から、数値モデルに含まれる実測困難な状態量やパラメータを推定する研究が行われている[8, 9]。データ同化手法の中でも非逐次データ同化は、時系列の実験データとシミュレーション結果の誤差が最小となるように、シミュレーションの初期状態を修正することが可能である。Ishii et al[10]は、非逐次データ同化手法の4次元変分法における評価関数の最小化計算に、ベイズ最適化を適用した Data assimilation method Minimizing the Cost function using Tree structured Parzen Estimator (DMC-TPE) を開発した。しかしながら、DMC-TPE を静的再結晶での蓄積エネルギー分布推定に適用した例は、筆者の知る限り存在しない。

そこで本研究では、電子後方散乱回折 (Electron Back Scatter Diffraction: EBSD) 法[11]による 1100 アルミニウムにおける静的再結晶のその場観察結果と、MPF 法による

SG シミュレーションを DMC-TPE に基づく非逐次データ同化により統合する。これにより、蓄積エネルギー分布の推定および SG シミュレーションの予測精度向上を図る。本稿では、データ同化による蓄積エネルギー分布の推定結果と、微細組織形成の予測精度について報告する。

2. MPF法によるSGモデル

Steinbach et al[2, 3]のMPFモデルに含まれるパラメータである粒界エネルギーと粒界モビリティに、方位差による異方性を導入することで、SGモデル[4]を作成する。\$N\$個の結晶粒それぞれに、PF変数\$\phi_i\$ (\$i=1, 2, \dots, N\$) を割り当てる。任意の\$\phi_i\$は、結晶粒\$i\$内で1、他の結晶粒内で0、粒界で\$0 < \phi < 1\$の値を取り、次式を満たすとする。

$$\sum_{i=1}^N \phi_i = 1 \quad (1)$$

\$\phi\$を用いて系の全自由エネルギーを定義し、PF変数\$\phi_i\$、\$\phi_j\$間のモビリティ\$M_{ij}\$を考慮すると、\$\phi\$の時間発展方程式は、次式で表される。

$$\frac{\partial \phi_i}{\partial t} = -\frac{2}{n} \sum_{j=1}^n M_{ij}^\phi \left[\sum_{k=1}^n \left\{ (W_{ik} - W_{jk}) \phi_k + \frac{1}{2} (a_{ik}^2 - a_{jk}^2) \nabla^2 \phi_k \right\} - \frac{8}{\pi} \sqrt{\phi_i \phi_j} \Delta g_{ij} \right] \quad (2)$$

ここで、\$n\$は局所的に存在する結晶粒数、\$i, j, k\$は\$n\$内でのPF変数の番号、\$W_{ik}\$と\$a_{ik}\$および\$W_{jk}\$と\$a_{jk}\$は、それぞれ\$i/k, j/k\$粒界のエネルギー障壁と勾配係数である。\$\Delta g_{ij}\$は\$g_j - g_i\$により計算される結晶粒\$i, j\$間の蓄積エネルギー差による駆動力である。

勾配係数\$a_{ij}\$、エネルギー障壁\$W_{ij}\$、PFモビリティ\$M_{ij}^\phi\$は、粒界物性値である結晶粒\$i, j\$間の界面幅\$\delta\$、粒界エネルギー\$\gamma_{ij}\$、粒界モビリティ\$M_{ji}\$を用いてそれぞれ以下の式で表される。

$$a_{ij} = \frac{2}{\pi} \sqrt{2\delta\gamma_{ij}} \quad (3)$$

$$W_{ij} = \frac{4\gamma_{ij}}{\delta} \quad (4)$$

$$M_{ij}^\phi = \frac{\pi^2}{8\delta} M_{ji} \quad (5)$$

ただし、\$\gamma_{ij} = \gamma_{ji}\$、\$M_{ij} = M_{ji}\$とし、\$i=j\$のときは0である。結晶粒\$i, j\$間の粒界エネルギー\$\gamma_{ij}\$と粒界モビリティ\$M_{ij}\$への方位差による異方性の導入には、以下の Read-Shockley[12]とHumphreys[4]のモデル式を用いる。

$$\gamma_{ij}(\Delta\theta_{ij}) = \gamma_m \times \begin{cases} \frac{\Delta\theta_{ij}}{\Delta\theta_m} \left(1 - \ln \frac{\Delta\theta_{ij}}{\Delta\theta_m} \right) & (\Delta\theta_{ij} \leq \Delta\theta_m) \\ 1 & (\Delta\theta_{ij} > \Delta\theta_m) \end{cases} \quad (6)$$

$$M_{ij}(\Delta\theta_{ij}) = M_m \times \begin{cases} 1 - \exp \left\{ -5 \left(\frac{\Delta\theta_{ij}}{\Delta\theta_m} \right)^4 \right\} & (\Delta\theta_{ij} \leq \Delta\theta_m) \\ 1 & (\Delta\theta_{ij} > \Delta\theta_m) \end{cases} \quad (7)$$

ここで、\$\gamma_m\$、\$M_m\$はそれぞれ高角粒界の粒界エネルギーと粒界モビリティ、\$\Delta\theta_{ij}\$は結晶粒\$i, j\$間の方位差、\$\Delta\theta_m\$は高角粒界を定義する閾値であり、本稿では15°と設定する。

3. DMC-TPE

本稿で用いる非逐次データ同化アルゴリズムである DMC-TPEでは、最尤推定法に基づき定義する評価関数\$J(\mathbf{x}_0)\$を、ベイズ最適化アルゴリズムの1つであるTPEを用いて最小化する。\$J(\mathbf{x}_0)\$は、実験結果が存在する時刻\$t\$ (\$0 \leq t \leq t_{\text{end}}\$) における、シミュレーション結果と、実験結果から作成する観測データの差の合計を表し、次式で定義される。

$$J(\mathbf{x}_0) = \frac{1}{2} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b)^T \mathbf{B}^{-1} (\mathbf{x}_0 - \mathbf{x}_0^b) + \sum_{t=0}^{t_{\text{end}}} \frac{1}{2} (H_t(\mathbf{x}_t) - \mathbf{y}_t)^T \mathbf{R}_t^{-1} (H_t(\mathbf{x}_t) - \mathbf{y}_t) \quad (8)$$

ここで、\$\mathbf{x}_t\$は、拡大状態ベクトルと呼ばれ、次式で表される。

$$\mathbf{x}_t = \left(\phi'_1[1,1], \dots, \phi'_i[N_x, N_y], \dots, \phi'_N[1,1], \dots, \phi'_N[N_x, N_y], g_1, \dots, g_N \right)^T \quad (9)$$

\$\phi'_i[p, q]\$ (\$i=1, 2, \dots, N, p=1, 2, \dots, N_x, q=1, 2, \dots, N_y\$) は、時刻\$t\$、計算格子点座標\$[p, q]\$における\$i\$番の結晶粒のPF変数の値である。また、\$g_i\$は、\$i\$番の結晶粒の初期の蓄積エネルギーの値である。\$\mathbf{y}_t\$は、観測ベクトルと呼ばれ、次式で表される。

$$\mathbf{y}_t = \left(\phi'_{1,\text{obs}}[1,1], \dots, \phi'_{1,\text{obs}}[N_x, N_y], \dots, \phi'_{N,\text{obs}}[1,1], \dots, \phi'_{N,\text{obs}}[N_x, N_y] \right)^T \quad (10)$$

\$\phi'_{i,\text{obs}}[p, q]\$ (\$i=1, 2, \dots, N, p=1, 2, \dots, N_x, q=1, 2, \dots, N_y\$) は、時刻\$t\$の観測データでの、計算格子点座標\$[p, q]\$における\$i\$番の結晶粒のPF変数の値である。また、\$\mathbf{x}_0^b\$は、PF変数と蓄積エネルギーの初期推定値を要素に持つベクトルである。\$\mathbf{B}\$は\$\mathbf{x}_0^b\$の要素が持つ誤差を表す行列であり、背景誤差共分散行列と呼ばれる。\$H_t\$は、\$\mathbf{x}_t\$を\$\mathbf{y}_t\$と比較可能な形状に変換する演算子である。\$\mathbf{R}_t\$は、\$\mathbf{y}_t\$の要素が持つ誤差を表す行列であり、観測誤差共分散行列と呼ばれる。

DMC-TPEでは、反復計算の上限回数を\$N\$とし、\$n\$ (\$1 \leq n \leq N\$) 回目までの探索で得た、\$\mathbf{x}_0\$と評価関数の値\$y=J(\mathbf{x}_0)\$のデータセットを、\$y\$の値がある閾値\$y^*\$より大きい\$G\$群と、\$y^*\$未満の\$L\$群に分割する。\$y^*\$は、\$y\$が\$y^*\$未満となる確率を表すハイパーパラメータ\$\tau\$により決定される。\$G\$群と\$L\$群に分割したデータセットに基づき、\$p(\mathbf{x}_0|y)\$を次式で定義する。

$$p(\mathbf{x}_0|y) = \begin{cases} l(\mathbf{x}_0) & \text{if } y < y^* \\ g(\mathbf{x}_0) & \text{if } y \geq y^* \end{cases} \quad (11)$$

\$l(\mathbf{x}_0)\$は、\$y\$が\$y^*\$未満となる\$\mathbf{x}_0\$の確率密度分布であり、\$g(\mathbf{x}_0)\$は、\$y\$が\$y^*\$以上となる\$\mathbf{x}_0\$の確率密度分布である。\$l(\mathbf{x}_0)/g(\mathbf{x}_0)\$が最大となる\$\mathbf{x}_0\$を、次に目的関数を計算する候補とし、\$N\$回目までの反復計算のうち、\$y\$を最小化した\$\mathbf{x}_0\$を最適推定値とする。

4. 1100アルミニウムにおける静的再結晶の
その場観察と観測データの作成方法

1100アルミニウムにおける静的再結晶のその場観察では、80%圧延材から切り出した試料を20℃~100℃まで12℃/minで昇温した後、100℃~120℃まで3℃/minで昇温する。その後、120℃~280℃まで20℃おきに各温度で2分間隔のEBSD法による結晶方位測定を5回行う。EBSD測定を行う各温度間の昇温速度は3℃/minである。本研究では、顕著な再結晶粒成長が確認でき、観察視野外の結晶粒の影響がない220℃~280℃のその場観察結果から観測データを作成する。**Figure 1**に、220℃における1度目のEBSD測定結果から、MATLABのツールボックスであるMTEX[13]を用いて作成した逆局点図 (Inverse Pole Figure: IPF) マップと、データ同化計算の対象とする領域を示す。**Figure 1 (a)**では、粒径が小さい結晶粒を多く含むサブグレイン組織が確認できる。**Figure 1 (b)**は、4.2×4.2 μm²の系であり、時系列のIPFマップを作成した際に、再結晶粒成長が確認できた領域である。また、各結晶粒の数字は、MTEX内で自動的に割り振られる結晶粒番号である。**Figure 1 (a)**の白枠の領域を220℃~280℃のその場観察結果から抽出し、各結晶粒にPF変数を割り当てることで、SGシミュレーション結果と比較可能な形に変換する。SGシミュレーションの初期組織には、220℃における1度目の観察結果を用いるため、それ以外の14枚を観測データとする。**Figure 3 (a)**に、時系列の観測データを示す。5番と11番の結晶粒は、成長が確認できるため、再結晶粒であると考ええる。また、8番と10番の結晶粒は、一体化や分裂が生じるものの、再結晶粒と接しても蚕食されないことから、蓄積エネルギーが比較的低いと考ええる。

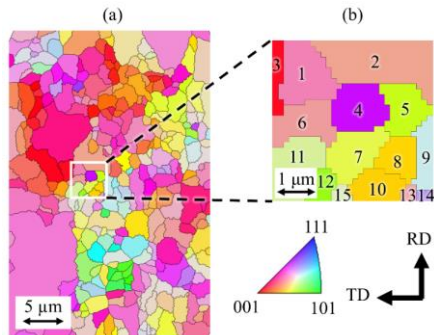


Fig. 1 (a) ND-TPF map obtained by the in-situ observation and (b) the microstructure in the target area which is used for data assimilation.

5. データ同化計算の条件

データ同化計算の対象とする系の静的再結晶による時間発展を、MPF法によるSGシミュレーションで予測する。SGシミュレーションに用いる各結晶粒の蓄積エネルギーの値は、DMC-TPEによってデータ同化計算中に更新される。**Table 1**に、SGシミュレーションおよびデータ同化計算の条件を示す。4.2×4.2 μm²の計算領域を、30×30の差分格子点で規則分割する。時間増分は0.25 sであり、2960 sま

で11840 stepのシミュレーションを行う。高角粒界の粒界エネルギーおよび粒界モビリティ γ_m , M_m の値は、それぞれ0.5 J/m², 2.0×10⁻¹⁶ m⁴/J・sとする。境界条件は、ゼロノイマン条件とする。DMC-TPEでは、推定対象の探索範囲と探索回数を指定する。本稿での蓄積エネルギーの探索範囲は、先行研究[8]を参考に試算した、圧延直後の系全体の平均的な蓄積エネルギーの値から決定した。探索回数は先行研究[9, 10]を参考に200回とする。また、全結晶粒における蓄積エネルギーの初期推定値は、0.5 MPaとし、20 %の標準偏差を持つとする。観測データが持つ標準偏差は各計算格子点で0.3とする。

Table 1 Physical property values and parameters used for the SG simulation and the data assimilation.

	Value
Grid spacing, Δx , Δy [μm]	0.14
Thickness of diffuse interface, δ [μm]	0.84
Time increment, Δt [s]	0.25
Grain boundary energy of high angle grain boundaries, γ_m [J/m ²]	0.5
Grain boundary mobility of high angle grain boundaries, M_m [m ⁴ /J・s]	2.0 × 10 ⁻¹⁶
Number of iterations	200
Search range of stored energy of all grains [MPa]	0.0~15.0
Initially estimated value of stored energy of all grains [MPa]	0.5
Standard deviation of stored energy of all grains [MPa]	0.1
Standard deviation of observation data	0.3

6. データ同化による蓄積エネルギー分布の推定結果

DMC-TPEを用いた非逐次データ同化によって、その場観察結果から作成した観測データを、MPF法によるSGシミュレーションに反映し、蓄積エネルギー分布を推定する。**Figure 2**に、データ同化計算の過程で得た評価関数の推移を示す。DMC-TPEでは、評価関数を減少させる確率の高さに基づき各結晶粒の蓄積エネルギーの値を探索するため、必ずしも評価関数が単調減少しない。一方で、繰り返し計算回数の増加に伴う評価関数の減少傾向が確認できるため、評価関数の最小化計算が適切に行われたと考える。また、評価関数は147回目の探索で最小値となり、以降は減少しない。**Table 2**に、各結晶粒の蓄積エネルギーの最適推定値を示す。再結晶粒である5番と11番の結晶粒の蓄積エネルギーが低く推定されており、データ同化による再結晶粒の自動判別が可能であることがわかる。

Figure 3に、観測データと、蓄積エネルギーの初期推定値およびTable 2の最適推定値を用いたSGシミュレーションの結果を示す。Figure 3 (b) より、蓄積エネルギーの初期推定値0.5 MPaを用いたSGシミュレーションでは、再結晶粒成長が生じず、観測データと異なる組織が予測されることがわかる。Figure 3 (c) より、蓄積エネルギーにTable 2の最適推定値を用いたSGシミュレーションでも、9番や12番の結晶粒の形態が観測データと異なることがわかる。これは、その場観察での視野のドリフトにより、端部の結晶粒での蓄積エネルギーの推定精度が低下したためであると考える。一方で、5番や11番の再結晶粒が成長し、予測される組織がFig. 3 (b)と比較して観測データに近づくことがわかる。また、観測データと同様に8や14番の結晶粒が残留する。以上の結果から、DMC-TPEに基づく非逐次データ同化により、蓄積エネルギー分布を推定することで、静的再結晶での微細組織形成の予測精度を向上させることが可能であると考える。

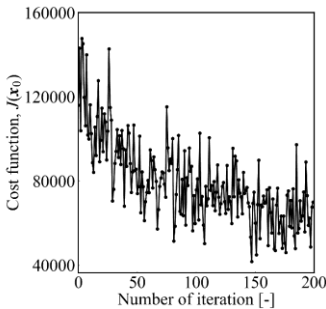


Fig. 2 Transition of the cost function obtained from the data assimilation using DMC-TPE.

Table 2 Optimally estimated values of stored energy of each grain obtained by the data assimilation using DMC-TPE.

	Optimally estimated value
Grain 1	2.8 MPa
Grain 2	12 MPa
Grain 3	3.1 MPa
Grain 4	9.0 MPa
Grain 5	0.98 MPa
Grain 6	4.0 MPa
Grain 7	6.3 MPa
Grain 8	0.30 MPa
Grain 9	12 MPa
Grain 10	6.3 MPa
Grain 11	0.38 MPa
Grain 12	0.56 MPa
Grain 13	5.2 MPa
Grain 14	0.19 MPa
Grain 15	8.4 MPa

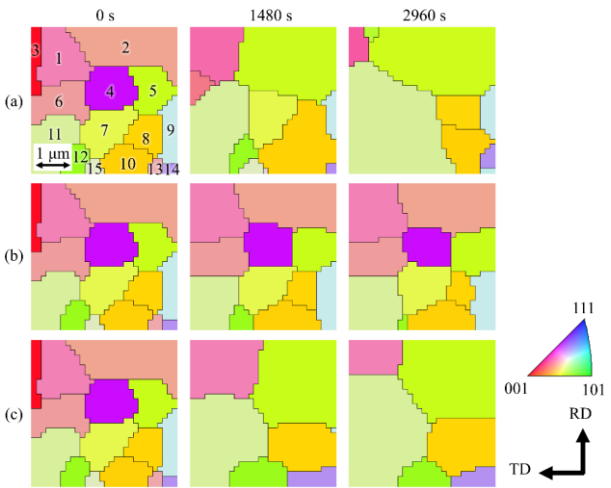


Fig. 3 (a) Observation data obtained from the in-situ observation of the static recrystallization. Results of the SG simulation employing the stored energy distribution (b) initially and (c) optimally estimated in the data assimilation using DMC-TPE.

7. 結言

本研究では、EBSD法による1100アルミニウムにおける静的再結晶のその場観察結果と、MPF法によるSGシミュレーションを、DMC-TPEに基づく非逐次データ同化により統合し、蓄積エネルギー分布を推定した。推定した蓄積エネルギー分布を用いることで、静的再結晶での微細組織形成に対するSGシミュレーションの予測精度が向上することを示した。

参考文献

[1] 古林英一: 再結晶と材料組織 金属の機能性を引き出す, 内田老鶴圃, 2000.

[2] Steinbach, I. et al.: A generalized field method for multiphase transformations using interface fields, *Physica D*, Vol. 134, pp. 385-393, 1999.

[3] Steinbach, I. et al.: A phase field concept for multiphase systems, *Physica D*, Vol. 94, pp. 135-147, 1996.

[4] Humphreys, F. J.: A unified theory of recovery, recrystallization, and grain growth, based on the stability and growth of cellular microstructures. 1. The basic model, *Acta Materialia*, Vol. 45, pp. 4231-4240, 1997.

[5] Takaki, T. et al.: Static recrystallization simulations starting from predicted deformation microstructure by coupling multi-phase-field method and finite element method based on crystal plasticity, *International Journal of Mechanical Sciences*, Vol. 52, pp. 320-328, 2010.

[6] Suwa, Y. et al.: Phase-field Simulation of Recrystallization in Cold Rolling and Subsequent Annealing of Pure Iron Exploiting EBSD Data of Cold-rolled Sheet, *ISIJ International*, Vol. 61, pp. 350-360, 2021.

[7] 樋口知之, 上野玄太, 中野慎也, 中村和幸, 吉田亮: データ同化入門—次世代のシミュレーション技術—, 朝倉書店, 2012.

[8] Matsumoto, K. et al.: Data-driven phase-field analysis of static recrystallization in an aluminum alloy, *Computational Materials Science*, Vol. 251, 113749, 2025.

[9] Ishii, A. et al.: High-fidelity phase-field simulation of

solid-state sintering enabled by Bayesian data assimilation using *in situ* electron tomography data, *Acta Materialia*, Vol. 278, 120251, 2024.

- [10] Ishii, A. et al.: DMC-TPE: tree-structured Parzen estimator-based efficient data assimilation method for phase-field simulation of solid-state sintering, *Science and Technology of Advanced Materials: Methods*, Vol. 3, 2239133, 2023.

- [11] 鈴木清一: EBSD法の基礎原理と材料組織解析への応用, エレクトロニクス実装学会誌, Vol. 13, pp. 469-474, 2010.

- [12] Read, W. T. et al.: Dislocation model of crystal grain boundaries, *Physical Review*, Vol. 78, pp. 275-289, 1950.

- [13] MTEX, Homepage | MTEX, <https://mtex-toolbox.github.io/>, (最終閲覧日2025年3月30日).