

令和 4 年 5 月 20 日現在

機関番号：10101

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2021

課題番号：20K22456

研究課題名(和文) 機械学習を用いたクラスター変分法とフェーズフィールド法のカップリング手法の開発

研究課題名(英文) Development of coupling approach of cluster variation method and phase field method using machine learning

研究代表者

山田 亮 (Yamada, Ryo)

北海道大学・工学研究院・助教

研究者番号：60883535

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 1,600,000円

研究成果の概要(和文)：多くのメゾスケールの計算手法は原子スケールの情報は粗視化され、失われている。その主な原因は計算コストにある。本研究では機械学習を用いることで、原子スケールの情報を効率的にメゾスケールの計算に取り入れることにより、比較的容易に原子スケールの情報を取り入れたメゾスケールの計算が行える枠組みを構築することを目的とした。原子スケールの情報をマルチスケールの計算に組み込むことで従来の計算手法よりも精度良く材料内部の組織変化を予測することに成功した。また、機械学習を用いることでメゾスケールの計算で問題となっている異なる相間の局所平衡の計算が容易になることも明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、詳細な原子スケールの情報をメゾスケールの計算に適用できれば、より高精度に信頼度の高い材料設計ができることが明らかとなった。その手段として、近年注目を集めている機械学習は非常に有力である。今後は材料物性値の予測のさらなる高精度かや、大規模化が期待されるだろう。その手法の一つとして今回用いたような機械学習の適用法は非常に重要となるだろう。

研究成果の概要(英文)：Detail atomistic information is coarsened and lost in most mesoscopic simulations. This is due to a huge computational burden of atomic simulation. To avoid the issue, I have applied a machine learning to atomistic and mesoscopic simulations. By incorporating atomistic information into mesoscopic calculations, it was found that a time evolution of microstructure can be more reliably predicted than that of a conventional approach. Furthermore, it was made clear that the huge computational burden of local equilibrium calculation between different phases in mesoscopic simulations becomes relatively small by using machine learning.

研究分野：計算材料科学

キーワード：原子スケール メゾスケール マルチスケール 機械学習

1. 研究開始当初の背景

金属材料の強度・寿命・腐食耐性などの特性は、その構成元素の種類や割合だけでなく、材料内部の微視的な構造である「内部組織」にも大きく依存する。そのため、材料の特性を最大限に活かすためには、合金の組成だけでなく内部組織も同時に最適化する必要がある。そのような材料の最適化は、これまで実験による試行錯誤的なアプローチがほとんどであったが、時間・労力・費用の観点から、近年計算材料科学に基づくアプローチが多くなされている。それらの計算材料科学に基づくアプローチでは、適用範囲の広さと計算の容易さから、「フェーズフィールド法」が広く用いられている。

フェーズフィールド法は、内部組織を構成する結晶粒や相の界面を追うことで内部組織の形成過程を予測することが可能である。しかしながら、フェーズフィールド法は、元来、現象論に基づく手法であることから、実験で得られた結果から計算で用いる入力パラメータを抽出し、内部組織の予測を行なっている。そのため、実験データが十分に存在しない準安定相などをシミュレーションすることは難しい。また、内部組織の形成過程は合金を構成する原子の配列の変化に起因するが、フェーズフィールド法の計算では粒界や異相界面の移動といったメソスケールの現象のみに焦点が当てられ、原子スケールの情報は考慮されていないという点で問題が残る。

一方、合金内部の原子配列を高精度に予測可能な「クラスター変分法」とフェーズフィールド法を組み合わせることで、原子配列の変化を陽に考慮した組織形成過程の計算が可能となることが示唆されている。このクラスター変分法とフェーズフィールド法のカップリング手法は、これまでにない学理に基づくマルチスケール計算であるとともに、従来不可能であった原子番号のみを入力データとした材料の組織発展の予測を可能とする。そのため、実験で測定が難しい準安定相が存在する合金系に対しても比較的容易に内部組織の形成過程を予測することが可能である。

しかしながら、このカップリング手法は計算の煩雑さや計算コストの観点から、これまであまり適用されていないのが現状である。そのため、この学理に基づいたマルチスケール計算である「クラスター変分法とフェーズフィールド法のカップリング手法」を新材料の探索に応用するためには、その計算の煩雑さや計算コストを大幅に軽減する枠組みが要求される。

2. 研究の目的

本研究の目的は、機械学習を用いることで、原子スケールの情報を効率的にメソスケールの計算に取り入れることにより、比較的容易に原子スケールの情報を取り入れたメソスケールの計算が行える枠組みを構築することである。その中でも本研究では、「機械学習」を用いて、クラスター変分法とフェーズフィールド法のカップリングに伴う計算の煩雑さとコストを大幅に削減することを試みる。

3. 研究の方法

原子配列などの原子スケールの情報は自由エネルギーを通して、フェーズフィールド法の計算に導入されるが、本研究では、機械学習の中でも「Deep Learning」と呼ばれる手法を用いて、クラスター変分法で計算された自由エネルギーをフェーズフィールド法に適用するモデルを構築した(図1)。機械学習は一般的に特徴量(データを記述する変数)を抽出して予測モデルを構築するが、Deep Learning ではこの特徴量を自動で計算してくれるため、比較的容易にシステムを構築することが可能である。

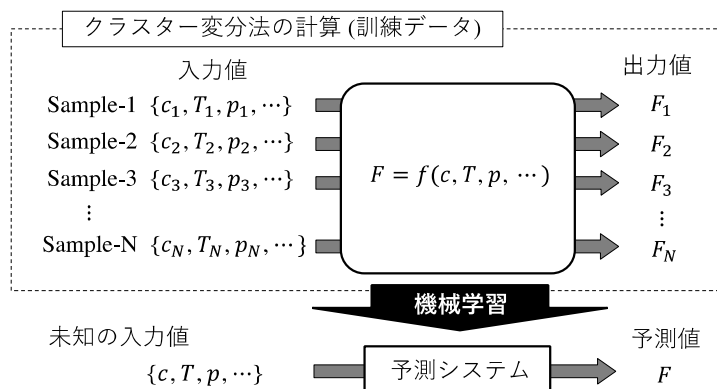


図1. 機械学習の模式図

4. 研究成果

上述したように、当初の計画ではクラスター変分法で得られた自由エネルギーをフェーズフィールド法の計算に用いることを予定していたが、フェーズフィールド法を用いた研究を進める中で、フェーズフィールド法の計算で一般的に用いられる異相間の局所平衡を計算することに非常に時間がかかることが明らかとなった。この局所平衡の問題は、希薄溶体化近似を用いることで計算の高速化が図られているが、この場合、計算は合金溶質濃度が低い領域に限られてしまう。そこで、この異相間の局所平衡を Deep Learning により予測するシステムを構築し、あらゆる合金組成において計算が容易にできる枠組みを構築することに重点を置いて研究を進めた。なおこの場合、図 1 に示した機械学習の模式図において、入力値は界面の溶質濃度、出力値は界面の平衡溶質濃度であり、計算は Newton 法を用いた数値解析法を用いた。

Al-6.7Si-1.1Mg (at.%)合金を対象に、液相の凝固過程を計算し、計算精度と計算コストを、希薄溶体化近似、Deep learning あり/なしの場合でそれぞれ比較を行なった。その結果、システムサイズが 1280×1280 の二次元系を想定した場合、希薄溶体化近似では 2819 秒の計算時間を要したのに対し、Deep learning を用いた場合には 3741 秒とかなり近い計算時間で計算を行うことができた。これは本計算手法に合金濃度の制限がないことと、Deep learning を用いない場合の計算時間が 156771 秒であることを考慮すると、非常に有益と考えられる。また Deep learning を用いた場合と用いない場合で得られた凝固組織を比較したところ、溶質偏析濃度にほとんど違いがなかった。このことから機械学習の予測が上手くできていることが明らかとなった。

同様の計算手法を $90.2\text{Al}-6.0\text{Si}-3.5\text{Cu}-0.3\text{Mg}+x\text{Mn}$ (at.%)合金においても適用した($x = 0.0-2.0$)。その結果、溶質元素の種類が増えても問題なく、機械学習が行うことができ、比較的短時間で液相の凝固過程を計算することができることが明らかとなった。また、先行研究で示されているように、Mn 濃度を变化させることで Mg、Cu の溶質偏析が軽減されることが確認された(図 2 参照)。また、デンドライトの成長速度も大きく異なることが明らかとなった。このことから上述したフェーズフィールド法で用いられている局所平衡の計算に機械学習を用いることを計算コストの観点から、今後の材料設計に非常に有力であると考えられる。

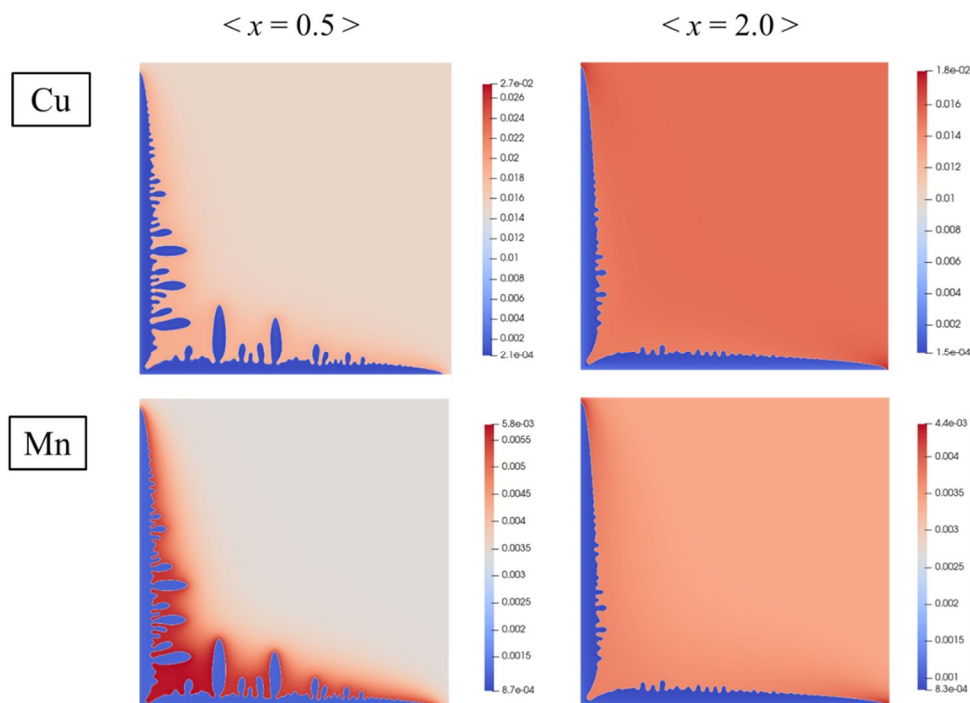


図 2. $90.2\text{Al}-6.0\text{Si}-3.5\text{Cu}-0.3\text{Mg}+x\text{Mn}$ (at.%)合金の凝固過程のスナップショット。
計算経過時間はすべて同じである。

また、上述したフェーズフィールドを用いた計算以外にもメゾスケールの計算手法として知られる cluster activation method (CAM) を用いた研究にも取り組んだ。これはフェーズフィールド法では原子の情報は粗視化され、失われてしまうという重大な問題があるためである。フェーズフィールド法とは異なり、CAM は原子の情報を保持したまま、拡散時間スケールの計算を行なうことが可能である。しかしながらこれまで用いられている一般的な CAM では短範囲原子間相関が含まれないため、計算の精度が低いという問題がある。短範囲原子間相関をクラスター変分法を用いて導入する試みもなされているが、計算コストが大きいため、これまで適用された例は少ない。そこでここでは、クラスター変分法を用いて短範囲原子間相関を考慮した計算をし、その計算結果を機械学習を通して CAM の計算に用いることで CAM の計算を高精度かつ高速に行なうことを可能にする。

この場合、図 1 の機械学習の入力値は計算で定義したクラスターを構成する原子濃度や温度

であり、出力値はそのクラスターの平衡存在確率である。本計算手法を Fe-Al 合金を対象に計算を行なったところ、規則相間の位相界面の形成や移動過程を記述することに成功した（図 3 参照）。この CAM の実合金への適用は、本研究が世界で初めての試みである。

本研究で試みたクラスター変分法と CAM を機械学習で繋ぐ試みは今後より重要になると考えられる。特に、ハイエントロピー合金といった多元系合金の原子配列や組織変化をモンテカルロ法といった従来の計算手法で計算を行うことは難しい。一方、統計熱力学に基づく CAM の計算では多元系合金においても容易に計算ができるという利点がある。そのため、今後は本研究で構築した計算の枠組みをハイエントロピー合金に適用することを試みる予定である。

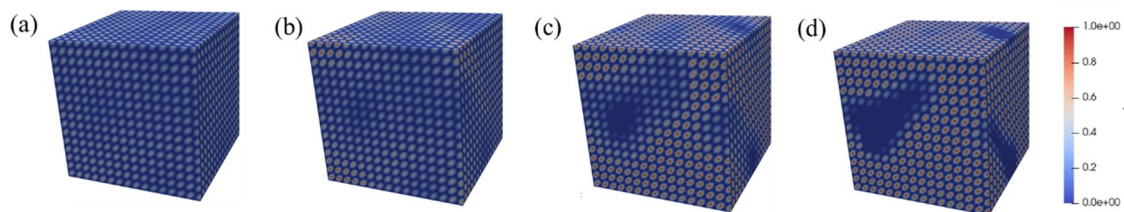


図 3. Fe-50 at.% Al 合金において計算した原子配列の時間依存性。スケールバーは Al 濃度を表す。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yamada Ryo, Inubushi Haruki, Ohno Munekazu	4. 巻 130
2. 論文標題 Ostwald ripening under temperature gradient: A phase-field study	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Applied Physics	6. 最初と最後の頁 015109 ~ 015109
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1063/5.0055198	査読の有無 有
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 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 R. Yamada and T. Mohri
2. 発表標題 Analysis of B2 + L21 two-phase region in X-Al-Ti (X: Fe, Co, and Ni) alloys using first-principles cluster variation method
3. 学会等名 The 9th Seoul National University - Hokkaido University Joint Symposium (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山田 亮, 毛利哲夫
2. 発表標題 第一原理クラスター変分法を用いたX-Al-Ti (X: Fe, Co, and Ni) 合金における二相領域 (B2+L21)の解析
3. 学会等名 日本金属学会北海道支部2020年度冬季講演大会
4. 発表年 2021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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------