

フェーズフィールドシミュレーションと 機械学習手法を活用したギブスエネルギー推定

Gibbs energy estimation using phase field simulation and machine learning methods

松岡佑亮¹⁾, 塚田祐貴²⁾, 小山敏幸³⁾

Yusuke Matsuoka, Yuhki Tsukada and Toshiyuki Koyama

- 1) 博(工) 名古屋大学大学院 工学研究科 材料デザイン工学専攻 計算材料設計 博士研究員
(〒464-8603 名古屋市千種区不老町, E-mail: matsuoka.yusuke.p8@s.mail.nagoya-u.ac.jp)
- 2) 博(工) 名古屋大学大学院 工学研究科 材料デザイン工学専攻 計算材料設計 准教授
(〒464-8603 名古屋市千種区不老町, E-mail: tsukada.yuhki@material.nagoya-u.ac.jp)
- 3) 博(工) 名古屋大学大学院 工学研究科 材料デザイン工学専攻 計算材料設計 教授
(〒464-8603 名古屋市千種区不老町, E-mail: koyama.toshiyuki@material.nagoya-u.ac.jp)

Due to the importance of Gibbs energy in the field of materials, Gibbs energy databases have been developed over the past decades within the framework of the CALPHAD method. In this study, we propose a method to estimate Gibbs energy from experimental data of microstructures by using the phase-field simulation and machine learning methods. As a case study, a twin experiment was conducted to estimate the energy from computationally generated pseudo-experimental data for the spinodal decomposition phenomenon in a virtual binary system.

Key Words : Phase-field, Data assimilation, Automatic differentiation

1. はじめに

ギブスエネルギーは材料分野において幅広い現象の記述に有用であり、過去数十年にわたってCALPHAD法の枠組みによるデータベース化が進められてきた。一方で、高濃度多成分系や非平衡相、非晶質相など、工学的な重要度が高いにも関わらず従来手法で正確なギブスエネルギーを得ることが困難な材料も存在する。

一方、近年フェーズフィールド(PF)法とデータ同化手法を組み合わせた材料パラメータ推定法が注目されている。この手法は実験データを再現するように逆問題として各種パラメータを推定するものであり、従来困難であった非平衡相の材料パラメータを得ることができることから大きな注目を集めている。これまでに、シミュレーションで得られる組織と実験で得られる組織の差異を目的関数として設定し、その微分値(勾配)情報を用いて目的関数を最小化するパラメータを求めるアジョイント法[1,2]や、アンサンブルカルマンフィルタに代表されるような勾配の情報を必要としない各種フィルタ理論を用いた試み[3,4]などが提案されている。それぞれ、勾配を用いる手法は大量のパラメータを効率的に推定することができるものの実装が困難であることが多く、勾配を用いない手法は比較的実装が簡易であるものの大量のパラメータを一度に推定する場合は計算コストが大きくなるといった特徴を持つ。

このような背景を元に、本研究では自動微分技術[5]を用いた微分値計算に着目した。自動微分は合成関数の微分(連鎖律)に基づいた微分値計算アルゴリズムであり、

多変数関数の微分値を高速かつ簡易に計算できることから、ニューラルネットワークを初めとした機械学習モデルの学習に広く使用されている。また、近年の機械学習技術の急速な発達に伴い各種ツールの整備が進み、比較的簡便に自動微分を用いたプログラムを開発できるようになっている。本研究では、自動微分技術をPFシミュレーションプログラムに適用し、これを元にしてギブスエネルギー推定を行う手法を提案する。ケーススタディとしてA-B二元系スピノーダル分解を取り扱い、組織の時間発展データからギブスエネルギーを推定する問題を考える。また、実験データに関してはシミュレーションで作成した疑似実験データを用い、推定の可否を検証する双子実験を行う。

2. 計算方法

(1) PFモデル

A-B二元系スピノーダル分解現象の記述のため、フィールド変数としてB成分の濃度 c を採用する。この際、系の全自由エネルギー G_{sys} は以下の式で表される。

$$G_{\text{sys}} = \int_{\text{r}} G_{\text{chem}} + G_{\text{grad}} \text{dr} \quad (1)$$

$$G_{\text{chem}} = Lc(1-c) + RT(c \log c + (1-c) \log(1-c)) \quad (2)$$

$$G_{\text{grad}} = \kappa_c (\nabla c)^2 \quad (3)$$

ここで、 G_{chem} は化学的自由エネルギー、 G_{grad} は勾配エネルギー

ギー, L は相互作用パラメータであり, $L=L_0+L_1(1-2c)$ で表される. また, R は気体定数, T は温度, κ_c は濃度勾配エネルギー係数である.

濃度 c の時間発展は以下のCahn-Hilliard方程式で表される.

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \nabla \cdot \left(M_c \nabla \frac{\delta G_{\text{sys}}}{\delta c} \right) \quad (4)$$

ただし, M_c は原子拡散のモビリティである.

(2) 目的関数

実験データとシミュレーションの差異を表す目的関数 J は以下の式で表される.

$$J(\mathbf{p}) = \sum_{i=1}^{n_{\text{obs}}} \int_{\mathbf{r}} (c_{\text{sim}}(\mathbf{p}, \mathbf{r}, t_i) - c_{\text{obs}}(\mathbf{r}, t_i))^2 d\mathbf{r} \quad (5)$$

ここで, \mathbf{p} は推定対象のパラメータを表すベクトルである. 本研究では, ギブスエネルギーを表すパラメータとして相互作用パラメータ L_0 と L_1 を推定対象とする. このため, \mathbf{p} は $\mathbf{p}=[L_0, L_1]^T$ として表される.

(3) 計算条件

計算には以下のTable 1に示すパラメータを用いた. また, パラメータ推定の初期値として $L_0=20000$ (J mol^{-1}), $L_1=0$ (J mol^{-1})を用いた. 目的関数の勾配は, PFシミュレーションおよび評価関数の計算プログラムをPythonで実装した後, 機械学習用ライブラリJAX [6]を用いて計算した. 得られた勾配を用い, 準ニュートン法[7]によってパラメータを繰り返し更新することで評価関数が最小となるパラメータを計算した.

Table 1 Parameters and conditions used in the simulation.

Temperature (K)	$T=1000$
Diffusion mobility	$M_c=1.0$
Interaction parameter (J mol^{-1})	$L_0=23000,$ $L_1=3000$
Gradient energy coefficient ($\text{J m}^2\text{mol}^{-1}$)	$\kappa_c=5.0 \times 10^{-15}$
Number of observation data	$n_{\text{obs}}=20$
Calculation area ($\text{nm} \times \text{nm}$)	64×64

3. 結果と考察

Fig. 1に準ニュートン法によるパラメータの更新に伴う目的関数および推定対象の相互作用パラメータの推移を示す. 目的関数 J はイテレーションの増加とともに初期値 $J=2.8 \times 10^3$ から減少し, 11イテレーション目で $J=8.5 \times 10^{-7}$ に到達した. また, 推定対象の相互作用パラメータも同様に推定の進行とともに値が変化し, 最終的に真値と等しい $L_0=23000$ (J mol^{-1}), $L_1=3000$ (J mol^{-1})に収束した.

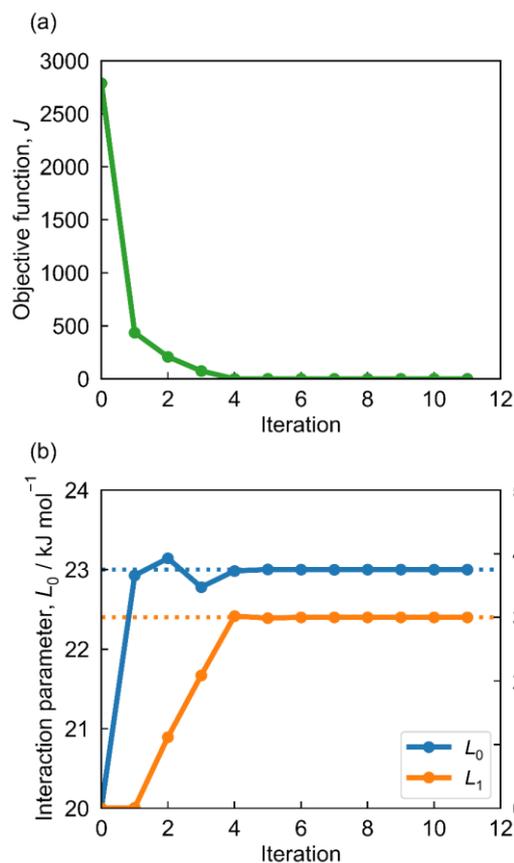


Fig. 1 Change in the objective function (a) and interaction parameters (b) during estimation. The dotted lines in (b) indicate true value of each parameter.

Fig. 2に真値での計算結果に相当する疑似観測データの一部と, 推定によって得られたパラメータで計算した組織発展の比較を示す. 相互作用パラメータが正しく推定されているに伴い, 組織発展に関しても観測データをよく再現している.

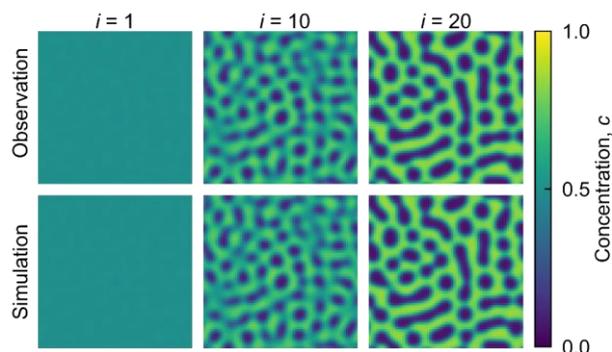


Fig. 2 Comparison of observation data and simulation results obtained by using estimated interaction parameter.

本研究では, 自動微分技術をPFシミュレーションに適用して得られる目的関数の勾配情報を基に目的関数を最小化し, ギブスエネルギーパラメータが得られることを示した. この手法はパラメータ数の多い多成分系のギブ

スエネルギー推定に有効である他、PF法をベースとした一般の逆問題解析に拡張可能な手法であると考えられ、PF法を用いた逆問題の大規模化、高効率化の道を拓くものであると言える。

4. 結論

本研究では、自動微分技術をPFシミュレーションに適用し、得られる目的関数の勾配情報を基にして目的関数を最小化することでギブスエネルギーパラメータを推定した。この結果、以下の結論が得られた。

1. 推定の進行とともに目的関数は減少し、11イテレーションで $J=8.5 \times 10^{-7}$ の非常に小さい値にまで減少した。
2. 推定の進行に伴い相互作用パラメータは事前に設定した真値に近づき、最終的に真値にほぼ一致する値が得られた。
3. PFシミュレーションに自動微分を適用して得られた評価関数の勾配情報を基にギブスエネルギー推定を行うことに成功した。
4. PFシミュレーションに自動微分を適用して目的関数の勾配を得る手法はPFを基にした一般の逆問題解析に有効であると考えられる。

謝辞: 本研究はJSPS科研費 JP23KJ1094の助成を受けたものです。

参考文献

- [1] Ito, S. et al.: Data assimilation for massive autonomous systems based on a second-order adjoint method, *Physical Review E*, Vol.94, 043307, 2016.
- [2] Matsuura, Y., et al.: Adjoint model for estimating material parameters based on microstructure evolution during spinodal decomposition, *Physical Review Materials*, Vol.5, 113801, 2021.
- [3] Sasaki, K. et al.: Data assimilation for phase-field models based on the ensemble Kalman filter, *Computational Materials Science*, Vol. 141, pp. 141-152, 2018.
- [4] Yamanaka, A. et al.: Ensemble Kalman filter-based data assimilation for three-dimensional multi-phase-field model: Estimation of anisotropic grain boundary properties, *Materials & Design*, Vol. 165, 107577, 2019.
- [5] 久保田光一, 伊理正夫: アルゴリズムの自動微分と応用, コロナ社, 1998.
- [6] Bradbury, J. et al., JAX: composable transformations of Python+NumPy programs, 2018. <http://github.com/google/jax>.
- [7] Nocedal, J.: Updating quasi-Newton matrices with limited storage, *Mathematics of Computation*, Vol. 35, pp. 773-782, 1980.