

福岡工業大学 学術機関リポジトリ

深層学習を用いたM2052合金の原子間ポテンシャルの検討

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 福岡工業大学総合研究機構 公開日: 2022-12-20 キーワード: Damping alloy, Vibration, Twin, Neural network interatomic potential, Deep learning, Molecular dynamics simulation 作成者: 鞆田, 顕章 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/11478/00001739

深層学習を用いた M2052 合金の原子間ポテンシャルの検討

梶田 顕章 (工学部知能機械工学科)

Study on Interatomic potential of M2052 alloy using deep learning

TOMODA Akinori (Department of Intelligent Mechanical Engineering, Faculty of Engineering)

Abstract

Neural network interatomic potential (NNP) based on deep neural network (DNN) is useful for classical molecular dynamics simulation to obtain accurate vibration damping capacity of high damping alloys. Training data set is generated by ab initio molecular dynamics simulations using pseudo potential and generalized gradient approximation. The NNP for M2052 alloy is generated by the DeePMD-kit. The accuracy of the NNP depends on the number of training steps for deep learning.

Keywords : Damping alloy, Vibration, Twin, Neural network interatomic potential, Deep learning, Molecular dynamics simulation

1. 緒言

自動車, 航空機, 宇宙ロケット等の大型機械構造物は, 輸送コスト削減および環境負荷低減の観点から軽量化が必須である. さらに, 機械の運転時においては, 構造部材の破損を防止するため系の振動応答を抑制する必要がある. そのため, 上述のような大型機械構造物の設計開発時においては, 高比強度かつ高比剛性に加え, 高い振動減衰能を有する構造材料が求められる.

高比強度, 高比剛性, 高い振動減衰能の全てを有する構造材料の多くは金属系材料であり, 過去に様々な制振合金の研究開発がなされてきた. 制振合金はその減衰機構から, 複合型, 強磁性型, 転位型, 双晶型に分類される⁽¹⁾. 上記の4種類のうち, 双晶型の制振合金は広い温度域および周波数帯域で高い振動減衰能を有し, 過去には Mn-Cu 系合金であるソノストン (Mn-37Cu-4Al-3Fe-2Ni) やインクラミュート (Cu-45Mn-2Al) 等が実用化された. 川原らは, 双晶型の Mn 基制振合金である M2052 合金 (Mn-20Cu-5Ni-2Fe) を開発し, 合金中に Al が含まれるソノストンやインクラミュートよりも優れた加工性を有していることを示した⁽²⁾. この合金は, 温度や応力により結晶内で容易に発生, 消滅, 移動する変形双晶が振動エネルギーを熱エネルギーに変換することで振動減衰能を発現している⁽³⁾. この制振機構には, 合金生成後の冷却過程においてほぼ同時に発現する磁気秩序, 熱弾性型マルテンサイト変態, それらの相互作用による面心立方格子 (FCC) 構造から面心正方格子 (FCT) 構造への変化が密接に関係している⁽⁴⁾. FCT 構造は正方歪エネルギーを有するため, これを緩和するために結晶内に多数の双晶が発生する. その際, 熱弾性型マルテンサイト変態によって変態が可逆的かつ連続的に進行する⁽⁵⁾ため, 僅かな振動エネ

ギーでも双晶の発生や双晶界面の移動が容易に生じ, 結果として高い振動減衰能を発現する.

上述のように, 双晶型の制振合金の振動減衰能は材料内部の原子の運動が密接に関連していることから, 合金内部の各原子の挙動を何らかの方法で求めることができれば振動試験を行わずに材料の振動減衰能を推定することが可能であると考えられる. また, M2052 合金をはじめとした多元系の制振合金は, その化学組成の違いによる機械的特性への影響を実験的手法により求めた結果から提案されたものである. もし, 制振合金の化学組成や内部組織による振動減衰能への影響を網羅的に求めることができれば, さらに比強度, 比剛性, 振動減衰能に優れた制振合金を提案することが可能になると考えられる. ここで, 金属材料の内部に存在する原子全ての運動を求めるためには, 古典分子動力学法 (古典 MD 法) 等の原子論的シミュレーション手法が必要となる. しかし, 現在までに M2052 合金をはじめとした多元系制振合金向けの原子間ポテンシャルの提案がなされておらず, 古典 MD 法による結晶構造の構築および機械的特性の推定が困難であった. 本稿の著者らは過去の研究において, Zhou らにより提案された GEAM (Generalized Embedded Atom Method)⁽⁶⁾を用いて M2052 合金用の原子間ポテンシャルの生成を行い, 古典 MD 法による M2052 合金の結晶構造の構築を試みた⁽⁷⁾. しかし, 上述の原子間ポテンシャルは, Mn, Cu, Ni, Fe の単元系の EAM ポテンシャルパラメータを組み合わせて生成したものであることから, 機械的特性の推定精度の改善につなげることは困難である.

そこで本研究では, 深層学習に基づくニューラルネットワーク原子間ポテンシャル (NNP) を構築し, 原子間ポテンシャルが存在しない制振合金の結晶構造を古典 MD 法によ

り表現することで、振動試験を行わずに制振合金の振動減衰能等の機械的特性を高精度に推定し、新規制振合金の提案を行うことを目的とする。本報告では、材料の入手が可能であり、構築した原子間ポテンシャルの精度検証が可能な M2052 合金の NNP 構築について述べる。

2. NNP の構築方法

2.1 NNP について

古典 MD 法による材料内部の原子の挙動を推定するためには、解析対象の材料内に含まれる原子すべての原子間相互作用を予め記述しておく必要がある。現在までに、LJ (Lennard-Jones) ポテンシャルや EAM (Embedded Atom Method) ポテンシャル等、様々な原子間ポテンシャル関数が構築され、関数に含まれるポテンシャルパラメータを材料試験データに基づくリファレンスデータを用いてフィッティングが行われてきた。しかし、原子間ポテンシャル関数およびポテンシャルパラメータが構築されていない場合、古典 MD 法による結晶構造や機械的特性の推定が困難である。

ポテンシャル関数の構築について、近年では機械学習や深層学習の手法を用いる試みがなされている。Behler, Parrinello が提案した High-Dimensional NNP⁽⁸⁾ は、多層ニューラルネットワークを基に、系の原子配置を入力データ(教師データ)として、系のポテンシャルエネルギーを出力するものである。本手法は、ニューラルネットワークの入力層に放射対称関数および角度対象関数を導入することで、古典 MD 法による大規模系の総原子数が学習データを準備する際に用意した第一原理計算のための小規模系の総原子数とは異なっている場合であっても問題なく適用でき、汎用性の高い原子間ポテンシャルが構築可能であるとされている。ただし、上述の対象関数は、多くの元素が存在する多元系では計算量が大幅に増大する可能性がある。Zhang らは、並進、回転、置換対象性を維持するような局所座標を導入した上で、原子間距離の逆数で局所環境を表現するような深層ニューラルネットワーク(DNN)を提案⁽⁹⁾し、従来の NNP の弱点を克服した。本手法を用いた NNP 構築用のオープンソースソフトウェアである DeePMD-kit⁽¹⁰⁾ が Zhang らの研究チームにより一般公開されている。

本研究では、M2052 合金の NNP を DeePMD-kit を用いて構築する。さらに、構築した原子間ポテンシャルおよび Sandia National Laboratories (米国) が開発した LAMMPS (Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator)⁽¹¹⁾ と呼ばれる大規模古典分子動力学シミュレータを用いて M2052 合金の機械的特性の推定を試みる。DeePMD-kit による NNP の構築の際、原子の位置に関する系の全エネルギーの導関数は、Google 社が開発した深層学習用フレームワークである TensorFlow に含まれる誤差逆伝播法のアルゴリズムを用いて計算が行われる。また、深層学習時の学習データについては、後述する第一原理分子動力学計算により作

成した。上述の数値計算については、名古屋大学スーパーコンピュータ (Fujitsu PRIMERGY CX2570 M4, CPU: Intel Xeon Gold 6230×2/ノード, GPU: NVIDIA Tesla V100×4/ノード) を用いた。

2.2 第一原理分子動力学計算による学習データの生成

DeePMD-kit による M2052 合金の NNP 構築を行う際、深層学習のための学習データを予め準備しておく必要がある。学習データは一般的に第一原理計算の結果が用いられる。ここで、第一原理計算とは、実験結果を用いずに量子力学の基礎方程式であるシュレーディンガー方程式から系の電子状態を求める計算手法である。シュレーディンガー方程式は、電子、原子核の質量、電荷、スピン以外に入力パラメータを必要としないことから、非経験的方法と呼ばれる⁽¹²⁾。本研究では、密度汎関数法に基づく平面波基底および擬ポテンシャル法を用いた第一原理計算用プログラムパッケージである Quantum ESPRESSO⁽¹³⁾を用いた。

まず、プログラムパッケージに含まれる PWScf の VC-RELAX 計算により、M2052 合金の結晶構造の構造緩和および格子定数の最適化を行った。これは、BFGS (Broyden-Fletcher-Goldfarb-Shanno) アルゴリズムを用いて系の構造最適化を行う計算である。擬ポテンシャルには Ultrasoft 型、電子の交換相互汎関数には一般化勾配近似(GGA)の一種である PBE (Perdew-Burke-Ernzerhof) 交換相互汎関数を用いた。初期の原子配置は、Mn, Cu, Ni, Fe がランダムかつ FCC 構造となるようにするため、MATLAB により原子の初期配置の生成および Quantum ESPRESSO の入力ファイルの出力を同時に行うソースコードを記述した。原子の初期配置例を図 1 に示す。計算セルの大きさは 11.1Å×11.1Å×11.1Å, 原子数 108 とし、計算セル内において Mn : 73%, Cu : 20%,

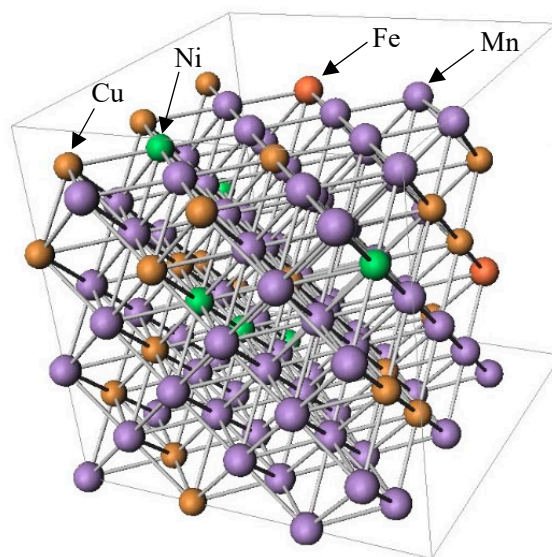


図 1 M2052 合金の結晶構造の構築
Fig.1 Development of a crystal structure of M2052 alloy

Ni : 5%, Fe : 2% に近い割合となるように各原子を配置した。ここで、M2052 合金は反強磁性を有することから、本研究では *c* 軸方向のみスピン分極を考慮して計算を行った。原子の初期配置が異なる結晶構造を 300 種類用意し、VC-RELAX による計算結果として出力された系の全磁化 (Total magnetization) が 0 に近い値となった結晶構造を 12 種類抽出した。なお、抽出した 12 種類の結晶構造は、いずれも構造最適化計算後の結晶構造が FCC 構造から FCT 構造となることを確認することができた。

次に、上述で抽出した 12 種類の結晶構造を用いて、Quantum ESPRESSO のプログラムパッケージに含まれる Car-Parrinello 法による第一原理分子動力学 (CPMD) 計算を行い、M2052 合金の原子挙動を求めた。各結晶構造の解析ステップ数は 2000、系のアンサンブルは NTV とし、Nose-Hoover 熱浴を用いて系の温度が 300K となるようにした。CPMD 計算により得られた解析結果を深層学習の際の学習データとして用いた。前節で述べたスーパーコンピュータを 1 ノード分用いて CPMD 計算を実行したところ、1 つの結晶構造につき 18.5h 程度の解析時間を要した。

3. M2052 合金の NNP 構築

前章で紹介した DeePMD-kit および CPMD 計算による解析結果 24000 ステップ分を深層学習の学習データ (24000 フレーム) として用いて、M2052 合金の NNP の構築を試みた。上述の学習データ 24000 フレームのうち、20000 フレームをトレーニングデータ、4000 フレームをテストデータとして利用した。カットオフ距離を 6.0 Å, DNN の隠れ層を 3 層、深層学習のステップ数を 100000 に設定して、NNP の構築を行った。前章で述べたスーパーコンピュータを 1 ノード分用いて DeePMD-kit を実行したところ、1.8h 程度で NNP が出力された。深層学習による学習ステップ数と系のエネルギーの誤差の関係を図 2 に示す。図 2 の縦軸の単位は eV で

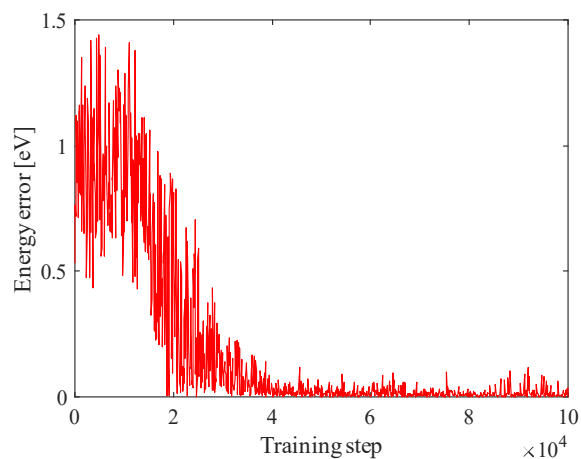


図 2 NNP 構築におけるエネルギーの誤差の変化
Fig.2 Changes of energy error during NNP development

ある。100000 ステップ後の系のエネルギー誤差は 1.7×10^{-4} eV となり、深層学習を繰り返し実行することにより、誤差が減少していくことがわかる。M2052 合金のような多元系合金の原子間ポテンシャル生成については、誤差を小さくすることが困難であると言われているが、本研究で採用した DNN による NNP については、古典 MD 法による計算に問題が生じない程度の原子間ポテンシャルを構築できる可能性が高いことが判明した。ただし、事前に準備する CPMD 計算の学習データのフレーム数によっては、学習を繰り返し実行しても誤差が減少しないこともわかっている。また、CPMD 計算においては、各種パラメータや系内の各原子の初期配置によって系の温度を一定に維持することが困難であったことから、多元系合金の結晶構造によっては学習データの準備が困難となることが想定される。

4. 結言

本報告では、深層ニューラルネットワークを用いたニューラルネットワーク原子間ポテンシャルの構築を試みた。Car-Parrinello 法による第一原理分子動力学計算の結果を深層学習データとして活用し、20000 フレームおよび学習ステップ数 100000 での深層学習によりエネルギーの誤差が小さい M2052 合金向けのニューラルネットワーク原子間ポテンシャルが構築できた。

今後は、本研究で構築した M2052 合金向けのニューラルネットワーク原子間ポテンシャルを LAMMPS 上で読み込ませた上で、原子数 10~100 万程度の大規模古典分子動力学計算を実行し、M2052 合金の振動減衰能や弾性定数等の機械的特性の推定を試みる。また、本報告で述べた深層ニューラルネットワークを用いたニューラルネットワーク原子間ポテンシャル構築法を用いて、Mn 基制振合金の振動減衰能に及ぼす組成への影響を調査する。

謝 辞

本研究は、福岡工業大学令和 3 年度若手研究支援の助成を受けた。また、本研究の一部は、JSPS 科研費基盤研究 C (課題番号 19K04284) の助成を受けた。本研究による数値解析は、名古屋大学スーパーコンピュータ「不老」を利用して実施した。ここに記して謝意を表す。

文 献

- (1) 杉本孝一:「防振合金の最近の進歩」, 鉄と鋼, Vol.60, Npp.2203-2220 (1974)
- (2) 川原浩司, 殷福星:「新しいタイプの振動吸収材料, M2052 制振合金」, 真空, Vol.42, No.1, pp.11-17 (1999)
- (3) 深道和明:「反強磁性体 一応用への展開」, 共立出版, p.65 (2014)
- (4) 殷福星, 高森晋, 大澤嘉昭, 佐藤彰, 川原浩司:「加工性およびリサイクル性に優れた MnCuNiFe 制振合金の開発」, 日本金属学会誌,

- Vol. 65, No. 7, pp. 607-613 (2001)
- (5) 船久保照康：「形状記憶合金」，産業図書，pp.5-12 (1984)
- (6) X. W. Zhou, R. A. Johnson, H. N. G. Wadley : "Misfit-energy-increasing dislocations in vapor-deposited CoFe/NiFe multilayers", *Physical Review B*, Vol.69, 144113 (2004)
- (7) 田中直道, 梶田顕章, 岩下雄輝, 菊池雅翔：「Mn 基合金の振動減衰機構表現のための原子間ポテンシャルの検討」，日本機械学会九州学生会第 52 回学生員卒業研究発表講演会講演論文集 (2021)
- (8) J. Behler, M. Parrinello : "Generalized Neural-Network Representation of High-Dimensional Potential-Energy Surfaces", *Physical Review Letters*, Vol.98, 146401 (2007)
- (9) L. Zhang, J. Han : "Deep Potential Molecular Dynamics: A Scalable Model with the Accuracy of Quantum Mechanics", *Physical Review Letters*, Vol.120, 143001 (2018)
- (10) H. Wang, L. Zhang, J. Han, W. E : "DeePMD-kit: A deep learning package for many-body potential energy representation and molecular dynamics", *Computer Physics Communications*, Vol.228, pp.178-184 (2018)
- (11) LAMMPS Molecular Dynamics Simulator Homepage, <https://lammps.sandia.gov/>. Last accessed 29 June 2022
- (12) 上田顕：「分子シミュレーションー古典系から量子系手法まで」，裳華房，pp.64-66 (2003)
- (13) P. Giannozzi, O. Andreussi, T. Brumme, O. Bunau, M. Buongiorno Nardelli, M. Calandra, R. Car, C. Cavazzoni, D. Ceresoli, M. Cococcioni, N. Colonna, I. Carnimeo, A. Dal Corso, S. de Gironcoli, P. Delugas, R. A. DiStasio Jr, A. Ferretti, A. Floris, G. Fratesi, G. Fugallo, R. Gebauer, U. Gerstmann, F. Giustino, T. Gorni, J Jia, M. Kawamura, H.-Y. Ko, A. Kokalj, E. Küçükbenli, M. Lazzeri, M. Marsili, N. Marzari, F. Mauri, N. L. Nguyen, H.-V. Nguyen, A. Otero-de-la-Roza, L. Paulatto, S. Poncé, D. Rocca, R. Sabatini, B. Santra, M. Schlipf, A. P. Seitsonen, A. Smogunov, I. Timrov, T. Thonhauser, P. Umari, N. Vast, X. Wu, S. Baroni : "Advanced capabilities for materials modelling with Quantum ESPRESSO", *Journal of Physics: Condensed Matter*, Vol.29, 465901 (2017)