

## 機械学習ポテンシャルによる熔融鉄構造再現性の検討

森 英喜<sup>\*1</sup>, 奥村 雅彦<sup>\*2</sup>, 板倉 充洋<sup>\*2</sup>

Consideration of Transferability of Molten Iron of Machine Learning Potentials

Hideki MORI<sup>\*1</sup>, Masahiko OKUMURA<sup>\*2</sup> and Mitsuhiro ITAKURA<sup>\*2</sup>

**Synopsis :** The inter-atomic potential based on artificial neural network (ANN) is very promising tool for atomic modeling. Using high quality training set constructed by First principles calculation based on Density functional theory (DFT), ANN potential would become sophisticated replica of DFT. However, the transferability of ANN potential depends on the DFT training dataset. In this study, we perform molecular dynamics (MD) calculations for molten iron, which is not directly included in the training data. We also examine the results to discuss the applicability of the constructed potential.

(Received Sep. 9, 2021)

**Key words :** Machine Learning potential, first principles calculation, molten iron

### 1. 緒 言

原子モデリングによる材料設計 (materials design) は、近年の計算機性能の大幅な向上によって実用段階に達しており、構造材料の特性評価・解析および設計においても重要なツールとなっている。非経験的・予測的な原子モデリングを行うためには、原子間相互作用をいかに高精度に評価できるかが重要となる。

高精度かつ汎用性の高い手法として密度汎関数 (Density Functional theory:DFT) を用いた第一原理計算がある。第一原理計算では原子間相互作用を求めるためには電子状態を陽に計算する必要がある。この計算負荷は、一般には原子数を  $N$  とすると  $O(N^3)$  となる。このため非常に計算負荷が高く、現実的に扱える原子数は数十～数百原子である。

一方で原子間相互作用を原子間距離などのポテン

シャル関数 (原子間ポテンシャル) と近似して解析を行う経験的分子動力学法 (molecular dynamics:MD) がある。この場合、原子間相互作用は一意に決まり計算負荷は第一原理計算と比較して格段に低くなり、自由度の高い解析が可能となる。適用される関数は、経験則や物性論に基づいて近似的に導出されたものであり、適用内の対象となる系には比較的精度の高い解析が出来るものも多い。しかしながら、精度の向上や適用できる系の拡大を行うために、ポテンシャルの関数系を改善していくのは直観的かつ経験的な考察が必要であり容易ではない。

このような問題を克服する方法として、原子間相互作用を機械学習技術分野で成功を収めているニューラルネットワーク (artificial neural network:ANN) の枠組みを用いて表現する手法がある。これは、ANN は普遍性定理と呼ばれる性質によって、任意の関数を任意の精度で近似可能であるためである<sup>1)</sup>。つまり、ANN の枠組みを用いることによって関数形の制約を

\* 1 産業技術短期大学 講師 博士 (工学) 機械工学科

\* 2 日本原子力研究開発機構・システム計算科学センター

受けずグローバルかつ高精度な原子間ポテンシャル関数の構築が可能となる．特に 2007 年に Behler らによって ANN による原子間ポテンシャル構築手法が定式化されて以来 (以下, ANN 原子間ポテンシャルと呼ぶ), 金属材料を始め様々な系への適用が行われている．しかしながら, ANN 原子間ポテンシャルの適用限界は学習に用いる DFT 訓練データに依存し, その適用限界がどのようになっているか明確ではない．本研究では, これまでに構築した転位動力学のための体心立方 (body center cubic:BCC) 鉄のための ANN ポテンシャルを用いて, 溶融鉄の分子動力学 (molecular dynamics:MD) 計算を行う．さらにその結果を検証することによって構築した ANN ポテンシャルの適用限界について考察する．

## 2. ANN 原子間ポテンシャルの定式化

ANN は,

$$F = \sigma_3 (w_{lk}^3 \sigma_2 (w_{kj}^2 \sigma_1 (w_{ji}^1 G_i + b_j) + b_k) + b_l) \quad (1)$$

で表される多重の埋め込み関数の和として表現される．ここで,  $G$  は入力,  $w_{ij}$  は重み係数,  $b_j$  はバイアス係数そして  $\sigma$  は活性化関数と呼ばれる任意の非線形関数である．普遍性定理によれば, 重み係数  $w_{ij}$  およびバイアス係数  $b_j$  を最適化することによって任意の関数を近似することが出来る<sup>1)</sup>．また, その条件は活性化関数  $\sigma$  が非線形関数であることのみであり, 非常に一般性が高い．

ANN の枠組みを原子間ポテンシャル関数に適用する際に直接原子位置を入力  $G$  として用いると結晶構造などにおける並進不変性や回転不変性を満たさないという問題がある．これに対して Behler らは, ある原子  $I$  における他の原子  $J$  の配置を入力として一原子ポテンシャル関数を出力とすることでこの問題を解決した<sup>2)</sup>．この場合,  $I$  原子周りのローカルな原子環境を入力  $G$  として用いるがそれを表現する記述子をどのように構築するかが問題となる．

本研究では Artrith らが提案した Chebyshev 多項式を用いて記述子を構築する手法を採用した<sup>3)</sup>．この場合, 二体間相互作用記述子は

$$G_{\alpha}^{\text{pair}} = \sum_{j \neq i} T_{\alpha} \left( \frac{2r_{ij}}{R_c} - 1 \right) f_c(r_{ij}) \quad (2)$$

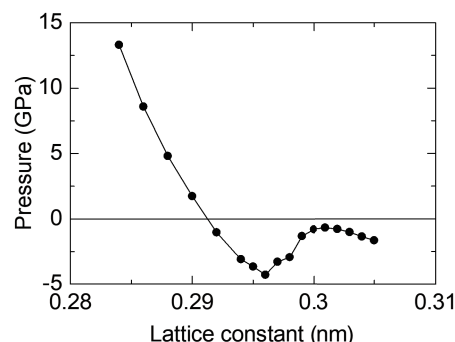


Fig. 1 System pressure change for lattice constant.

と表される．ここで,  $T_{\alpha}$  は  $\alpha$  番目の Chebyshev 多項式であり,

$$T_{n+1}(x) = 2xT_n(x) - T_{n-1}(x) \quad (3)$$

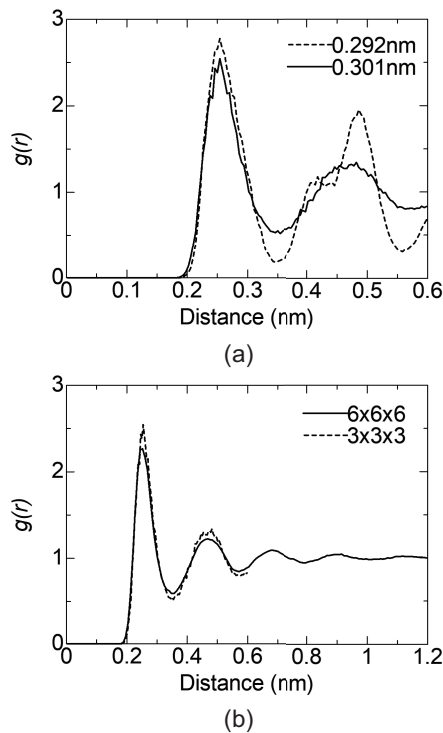
の漸化式で定義されている．ただし,  $T_0(x) = 1$ ,  $T_1(x) = x$  である．また, 三体間相互作用記述子は,

$$G_{\beta}^{\text{triple}} = \sum_{\substack{j \neq i \\ k \neq i, j}} T_{\beta}(h(\theta)) f_c(r_{ij}) f_c(r_{ik}) \quad (4)$$

と表される．ここで,  $\theta_{ijk}$  は 3 つの原子によって形成される原子間角度である．Chebyshev 多項式型の記述子の長所として, カットオフ距離と次数以外のパラメータを設定する必要がないこと, 漸化多項式で定義され四則演算だけで値を導出することが出来るため計算が高速であることである．なお, 本研究では  $h(\theta) = \frac{1}{2}(\cos(\theta_{ijk}) + 1)$  とした Chebyshev 多項式を用いた記述子 (Chebyshev 記述子) を採用している<sup>4)</sup>． $f_c$  はカットオフ関数であり, カットオフ距離  $R_c$  以上離れた原子の影響をスムーズに打ち切る働きを持つ．

## 3. 溶融鉄の MD シミュレーション

溶融鉄の MD シミュレーションを行うに先立って適切なセルサイズの設定を行った． $3a_0 \times 3a_0 \times 3a_0$  BCC バルク ( $a_0$  格子定数, 原子数 54 個) において  $a_0$  を変化させて体積一定のもと温度 2000K で MD シミュレーションを行った．なお, ポテンシャルの構築には  $\text{\ae}net$  を使用し<sup>5)</sup>, MD シミュレーションには LAMMPS を用いた<sup>6)</sup>．この際に系の圧力を測定し, 圧力  $P$  が最小となる  $a_0$  を温度 2000K での溶融鉄の体積と設定した．図に格子定数と系の圧力の関係を示す．



**Fig. 2** Radial distribution functions, (a) dependence of lattice constants and (b) dependence of cell size.

圧力の絶対値が最小となるのは格子定数が 0.291nm のときと 0.301nm のときであることが分かる。BCC 鉄バルクの密度は、格子定数が 0.292nm, 0.301nm のときそれぞれ  $7.45\text{g}/\text{cm}^3$ ,  $6.80\text{g}/\text{cm}^3$  となる。これより格子定数が 0.292nm と 0.301nm の場合において MD シミュレーションを行いそれぞれの LAMMPS の機能を用いて動径分布関数 (radial distribution function: RDF) を算出した。シミュレーションより得られた結果を図 2(a) に示す。格子定数が 0.292nm の場合、固体状態でのピークが残っており、完全な溶融状態にはなっていないと考えられる。これに対して、格子定数が 0.301nm の場合には完全に溶融状態となっていることが分かる。また、密度も格子定数 0.301nm の方が実験値に近い。さらに、溶融状態においてスケール依存性および長距離への影響を検討するために

$6a_0 \times 6a_0 \times 6a_0$  BCC バルク (原子数 432 個) での計算を行った。それぞれの RDF を図 2(b) に示す。グラフよりスケール依存性は大きくないことが分かる。また、長距離においても十分に溶融状態を表現できており、実験値との整合性も良いことが分かる。

#### 4. 結 言

構築した ANN 原子間ポテンシャルの適用限界を検討するために溶融鉄の MD シミュレーションを行った。構築した ANN 原子間ポテンシャルで整合性のあるシミュレーション結果を得ることができた。しかしながら、自己拡散係数などの動力学的な挙動については不明であるため、こちらは今後の検討課題としたい。

#### 著作権について

この文章は Creative Commons Attribution 4.0 International License に基づいて使用を許可されます。  
<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>

#### 参考文献

- 1) G. Cybenkot: *Math. Control. Signals, Syst.*, **2**(1989)303-314
- 2) J. Behler and M. Parrinello: *Phys. Rev. Lett.*, **98**(2007)146401-1-4
- 3) N. Artrith, A. Urban, and G. Ceder: *Phys. Rev. B*, **96**(2017)014112-1-5
- 4) H. Mori and T. Ozaki: *Phys. Rev. Mater.*, **4**(2020)040601-1-5
- 5) N. Artrith and A. Urban: *Comput. Mater. Sci.*, **114**(2016)135-150
- 6) S. Plimpton: *J. Comput. Phys.*, **117**(1995) 1-19.