

析出物の安定形状の予測と 組織データに基づく材料パラメータ推定

塚田 祐 貴¹⁾ 小山 敏 幸²⁾

1. はじめに

六方最密充填構造を有する α -Mg 合金は、時効処理によって板状や棒状の析出物(または Guinier-Preston ゾーン)が形成する⁽¹⁾⁻⁽³⁾。 α -Mg 合金は(0001) \langle 2 $\bar{1}\bar{1}0$ \rangle 底面すべりの臨界分解せん断応力が非底面すべりに比べて2桁ほど低いため、塑性変形において底面すべりが優先的に活動する⁽⁴⁾。したがって、 α -Mg 合金の時効硬化性を高めるためには、分散強化(オロワン機構)の観点から、析出物の体積率および数密度が同じ条件であれば、 α -Mg 母相の(0001) $_{\alpha}$ に垂直な $\{01\bar{1}0\}_{\alpha}$ または $\{2\bar{1}\bar{1}0\}_{\alpha}$ 板状析出物を形成させることが重要である⁽⁵⁾。実際、 $\{01\bar{1}0\}_{\alpha}$ 板状析出物が形成する合金が優れた時効硬化性を示すことが報告されている⁽²⁾。

析出物の安定形状は、析出に起因する弾性ひずみエネルギーと界面エネルギーのバランスによって決まる⁽⁶⁾。特に、 α -Mg 母相と析出相の整合ひずみに起因する弾性ひずみエネルギーの異方性が析出物形状に大きな影響を及ぼす⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。したがって、析出物形状を制御する上で、 α -Mg 母相と析出相の格子ミスマッチ条件と析出物の晶癖面や安定形状の関係を理解することが重要である。一方、ナノスケールの析出物については、析出物形状予測に不可欠な格子ミスマッチや界面エネルギーなどの材料パラメータに関するデータが不足している。析出物形状の予測と制御を実現するためには、既存の実験データ(析出物形状データなど)から材料パラメータを推定する方法論を整備し、材料パラメータのデータベース構築につなげていくことも重要と思われる。

本稿では、著者らの最近の研究において、 α -Mg 母相と析出相の格子ミスマッチ条件と析出物の晶癖面の関係を整理した結果を示すとともに、エネルギー計算によって材料パラメ

ータから板状や棒状の析出物の形成を予測できることを示す。さらに、析出物形状の計算モデルと機械学習を用いて、少ない計算コストで析出物形状の実験データから材料パラメータを効率的に推定した結果を紹介する。

2. α -Mg 母相と析出相の格子ミスマッチ条件と析出物の晶癖面

まず、弾性ひずみエネルギーに基づき、 α -Mg 母相と析出相の格子ミスマッチ条件と析出物の晶癖面の関係を整理する。母相中の整合析出物の弾性ひずみエネルギーは

$$E_{\text{strain}} = \frac{1}{2} \int_{\mathbf{k}} B(\mathbf{n}) |s(\mathbf{k})|^2 \frac{d\mathbf{k}}{(2\pi)^3} \quad (1)$$

によって計算される⁽¹⁰⁾。 $B(\mathbf{n})$ は弾性関数、 $s(\mathbf{k})$ は析出物の形状関数である。また、 \mathbf{k} は波数ベクトル、 $\mathbf{n} = \mathbf{k}/|\mathbf{k}|$ である。 $B(\mathbf{n})$ を最小にする $\mathbf{n} = \mathbf{n}_0$ が法線ベクトルとなる晶癖面をもつ薄板状析出物の弾性ひずみエネルギーが最も低くなる。 $B(\mathbf{n})$ は弾性率 C_{ijkl} と母相と析出相の格子ミスマッチ ε_{ij}^0 を用いて

$$\begin{aligned} B(\mathbf{n}) &= C_{ijkl} \varepsilon_{ij}^0 \varepsilon_{kl}^0 - n_i \sigma_{ij}^0 \Omega_{jl}(\mathbf{n}) \sigma_{lm}^0 n_m \\ \sigma_{ij}^0 &= C_{ijkl} \varepsilon_{kl}^0 \\ \Omega_{ij}^{-1}(\mathbf{n}) &= C_{ijkl} n_k n_l \end{aligned} \quad (2)$$

によって計算される。ここで、格子ミスマッチが

$$\varepsilon_{ij}^0 = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11}^0 & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{22}^0 & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{33}^0 \end{pmatrix} \quad (3)$$

によって与えられるとき、格子ミスマッチ条件と析出物の晶癖面の関係を解析する。デカルト座標の x 軸、 y 軸、 z 軸をそれぞれ α -Mg 母相の $[2\bar{1}\bar{1}0]_{\alpha}$ 、 $[01\bar{1}0]_{\alpha}$ 、 $[0001]_{\alpha}$ に対応さ

* 名古屋大学大学院工学研究科; 1) 准教授 2) 教授(〒464-8603 名古屋市千種区不老町)
Prediction of Precipitate Shape and Estimation of Material Parameters Based on Microstructure Data; Yuhki Tsukada, Toshiyuki Koyama (Graduate School of Engineering, Nagoya University, Nagoya)
Keywords: magnesium alloy, habit plane, precipitate shape, parameter estimation, Gaussian process
2021年8月6日受理[doi:10.2320/materia.60.775]

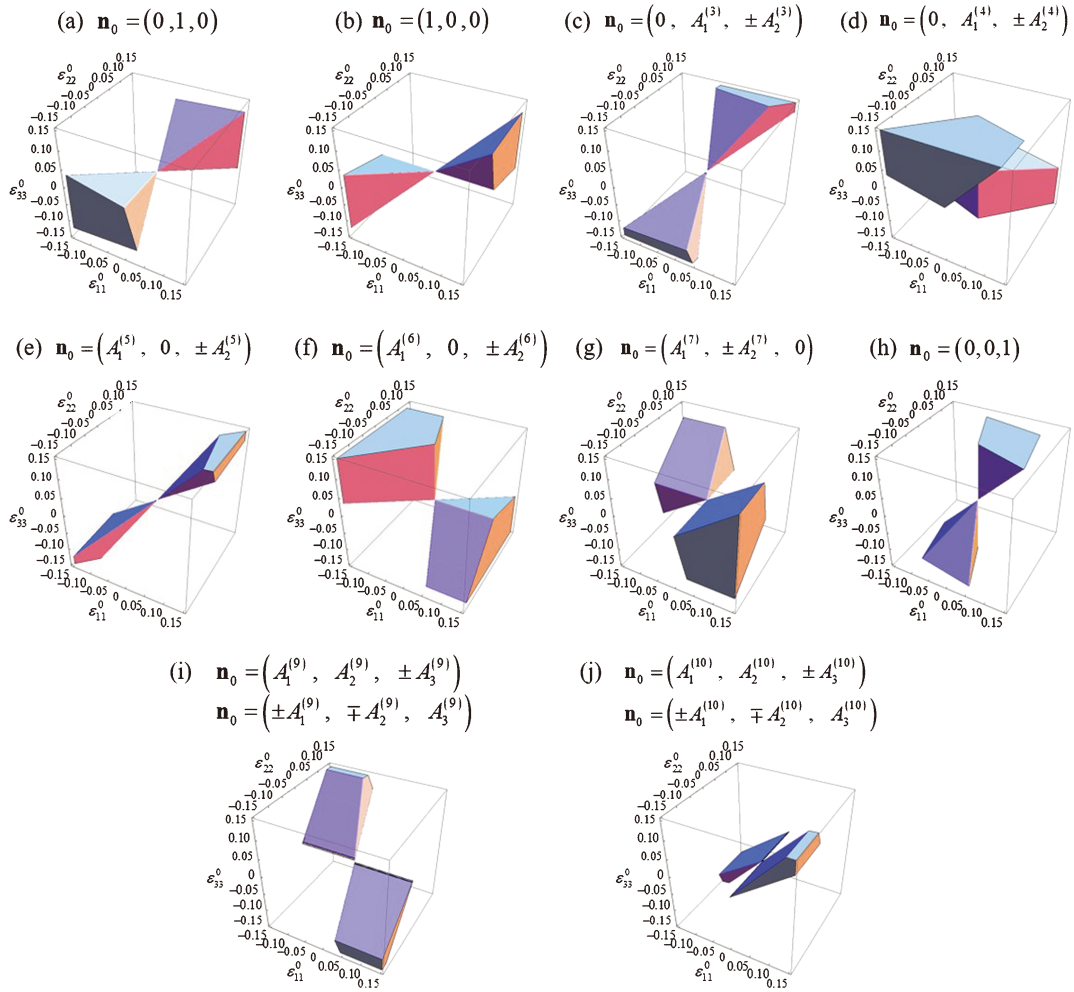


図1 α -Mg母相中の析出物の格子ミスマッチ条件($\epsilon_{11}^0, \epsilon_{22}^0, \epsilon_{33}^0$)と晶癖面(法線ベクトル \mathbf{n}_0)の関係. 晶癖面により(a)から(j)の10通りに分類される. (図中の A は格子ミスマッチから計算される定数である. 詳細は文献⁽¹²⁾を参照されたい.)

せる. また, 計算には純Mgの弾性率⁽¹¹⁾を用いる. 図1に解析結果を示す. 解析結果は晶癖面に基づいて図1(a)-(j)の10通りに分類することができ, それぞれの晶癖面が形成する格子ミスマッチ条件を $\epsilon_{11}^0 - \epsilon_{22}^0 - \epsilon_{33}^0$ のパラメータ空間に色付けして示してある. (図中の A は格子ミスマッチから計算される定数である. 詳細は文献⁽¹²⁾を参照されたい.) 図1(a)と図1(b)がそれぞれ析出物の晶癖面が $(01\bar{1}0)_\alpha$ と $(2\bar{1}\bar{1}0)_\alpha$ となる格子ミスマッチ条件であり, α -Mg母相の $(0001)_\alpha$ に垂直な板状析出物が形成する. また, α -Mg合金において頻繁に観察される $(0001)_\alpha$ 板状析出物の形成条件は図1(h)に対応する.

3. 析出物の安定形状

析出物の安定形状は, 析出に起因する弾性ひずみエネルギーと界面エネルギーの和が最小になるように決定される. ここでは, 析出物形状を回転楕円体 $((x^2 + y^2)/a^2 + z^2/c^2 = 1)$ にて近似する. アスペクト比 $p = c/a$ を変化させることで, 板状(扁平楕円体)から棒状(偏長楕円体)の析出物を表現することができる. 回転楕円体状析出物の全エネルギー(弾性ひず

みエネルギーと界面エネルギーの和)は

$$E_{\text{total}}(p) = E_{\text{strain}}(p) + E_{\text{interface}}(p) \\ = \frac{V_0}{2} C_{ijkl} \epsilon_{kl}^0 (\epsilon_{ij}^0 - S_{ijmn}(p) \epsilon_{mn}^0) + A(p) \gamma \quad (4)$$

によって計算される⁽¹²⁾. V_0 は析出物の体積, $S_{ijmn}(p)$ はエシェルビーテンソル⁽¹³⁾, $A(p)$ は界面積, γ は単位面積あたりの界面エネルギーである. (ここでは界面エネルギーの異方性は考慮しない. $S_{ijmn}(p)$ と $A(p)$ の計算式については文献⁽¹²⁾を参照されたい.) 非等方弾性体については, $S_{ijmn}(p)$ の解析解が無いため, $S_{ijmn}(p)$ を数値計算する必要がある.

例として, 格子ミスマッチが $\epsilon_{11}^0 = \epsilon_{22}^0 = 0.01$, $\epsilon_{33}^0 = 0.002$, 界面エネルギーが $\gamma = 0.10 \text{ J m}^{-2}$, 析出物体積が $V_0 = 4\pi r_0^3/3$ ($r_0 = 50 \text{ nm}$) の条件における全エネルギー計算の結果を図2に示す⁽¹²⁾. 図の横軸にアスペクト比 $p = c/a$ をとっており, $p < 1$ が板状, $p = 1$ が球状, $p > 1$ が棒状に対応する. ($p > 1$ (棒状) の条件では横軸に $1/p = a/c$ の値をとっている.) 図の縦軸は析出物の全エネルギーを同体積の球状析出物の全エネルギーで規格化した値を示している. 回転楕円体の回転軸を $[2\bar{1}\bar{1}0]_\alpha$ にした場合の結果(赤色)を見ると, $p < 1$ の $(2\bar{1}\bar{1}0)_\alpha$ 板状析出物の全エネルギーが最も低くなる. ま

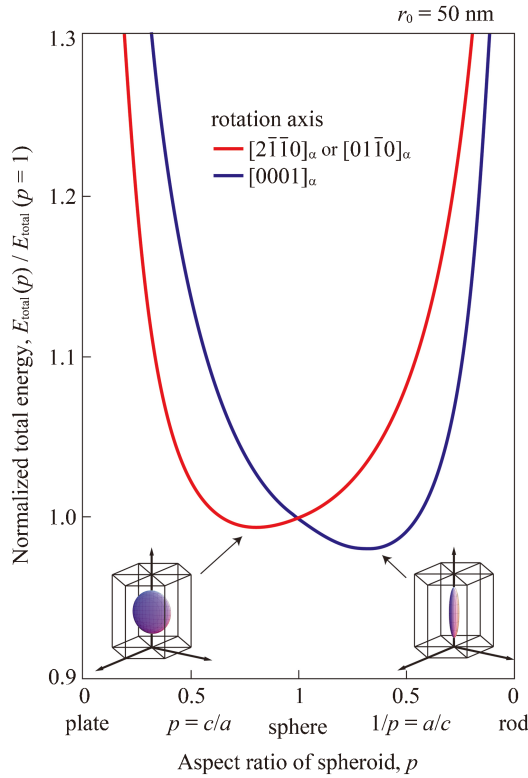


図2 α -Mg 母相中の回転楕円体状析出物の全エネルギーのAspect ratio 依存性⁽¹²⁾. 格子ミスマッチは $\epsilon_{11}^0 = \epsilon_{22}^0 = 0.01$, $\epsilon_{33}^0 = 0.002$, 界面エネルギーは $\gamma = 0.10 \text{ J m}^{-2}$, 析出物体積は $V_0 = 4\pi r_0^3/3$ ($r_0 = 50 \text{ nm}$) とした. 縦軸は回転楕円体状析出物の全エネルギーを同体積の球状析出物 ($p = 1$) の全エネルギーで規格化した値を示している.

た, 回転楕円体の回転軸を $[01\bar{1}0]_\alpha$ にした場合の結果は, 回転軸を $[2\bar{1}\bar{1}0]_\alpha$ にした場合の結果 (赤色) と一致し, $p < 1$ の $(01\bar{1}0)_\alpha$ 板状析出物の全エネルギーが最も低くなる. この計算に用いた格子ミスマッチ条件 ($\epsilon_{11}^0 = \epsilon_{22}^0 = 0.01$, $\epsilon_{33}^0 = 0.002$) は図 1(a) (析出物の晶癖面が $(01\bar{1}0)_\alpha$ となる条件) と図 1(b) (析出物の晶癖面が $(2\bar{1}\bar{1}0)_\alpha$ となる条件) のちょうど中間に位置するため, $(2\bar{1}\bar{1}0)_\alpha$ 板状析出物と $(01\bar{1}0)_\alpha$ 板状析出物のどちらの全エネルギーも低くなると解釈することができる. 一方, 回転楕円体の回転軸を $[0001]_\alpha$ にした場合の結果 (青色) を見ると, $p > 1$ の $[0001]_\alpha$ 棒状析出物の全エネルギーが最も低い. 興味深いことに, この $[0001]_\alpha$ 棒状析出物の全エネルギーは $(2\bar{1}\bar{1}0)_\alpha$ 板状析出物または $(01\bar{1}0)_\alpha$ 板状析出物の全エネルギーよりも低くなる. なお, 図 2 は析出物体積を $V_0 = 4\pi r_0^3/3$ ($r_0 = 50 \text{ nm}$) に設定した場合の計算結果を示しているが, 析出物体積を変更した場合も同様に $[0001]_\alpha$ 棒状析出物の全エネルギーが最も低くなる計算結果が得られる. したがって, この格子ミスマッチ条件においては $[0001]_\alpha$ 棒状析出物が最も安定である.

以上の結果を踏まえて, 板状析出物や棒状析出物の形成条件について整理する. 上述の格子ミスマッチ条件では, $[0001]_\alpha$ 晶帯に属する面がすべて晶癖面になる. このとき, 図 3(a) に示すように, $[0001]_\alpha$ 晶帯軸方向の棒状析出物が

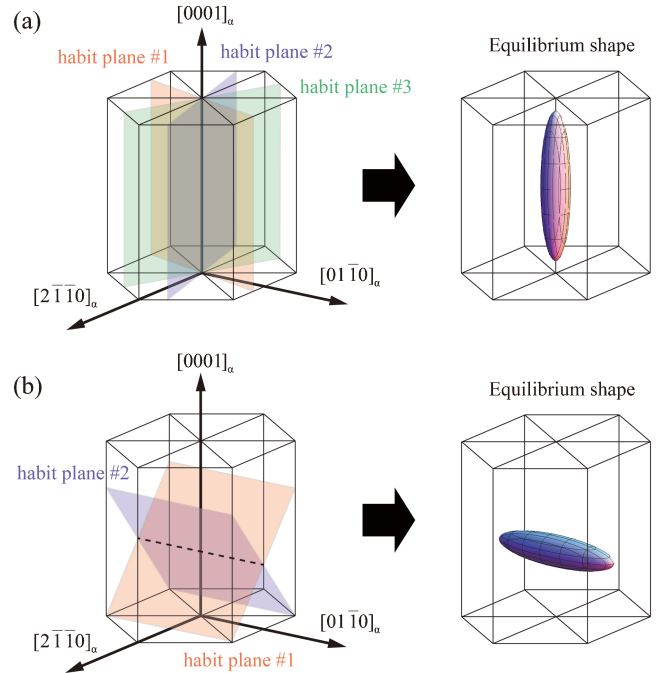


図3 α -Mg 母相と析出相の格子ミスマッチ条件から複数の晶癖面が存在するときの析出物安定形状の模式図.

最も安定となる. この考え方に基づくと, α -Mg 合金における $[01\bar{1}0]_\alpha$ 棒状析出物または $[2\bar{1}\bar{1}0]_\alpha$ 棒状析出物の形成についても理解することができる. 例えば, 図 1(e) や図 1(f) の格子ミスマッチ条件においては, $[01\bar{1}0]_\alpha$ 晶帯に属する 2 つの晶癖面が存在するため, $[01\bar{1}0]_\alpha$ 晶帯軸方向の棒状析出物がエネルギー的に安定である (図 3(b)). 同様に, 図 1(c) や図 1(d) の格子ミスマッチ条件においては, $[2\bar{1}\bar{1}0]_\alpha$ 晶帯に属する 2 つの晶癖面が存在するため, $[2\bar{1}\bar{1}0]_\alpha$ 晶帯軸方向の棒状析出物がエネルギー的に安定である. このように, 晶癖面が複数存在する格子ミスマッチ条件では, それらの晶癖面の晶帯軸方向の棒状析出物が形成すると予想される. 一方, 図 1(a), 図 1(b), 図 1(h) のように晶癖面が 1 つのみとなる格子ミスマッチ条件では, 板状析出物のエネルギーが最も低く, それぞれ $(01\bar{1}0)_\alpha$ 板状析出物, $(2\bar{1}\bar{1}0)_\alpha$ 板状析出物, $(0001)_\alpha$ 棒状析出物が形成すると予想される.

析出物の安定形状のAspect ratio p は弾性ひずみエネルギーと界面エネルギーの比

$$K = \frac{E_{\text{strain}}}{E_{\text{interface}}} = \frac{e_{\text{strain}} V_0}{A \gamma} = \frac{e_{\text{strain}} L}{\gamma} \quad (5)$$

$$e_{\text{strain}} = \frac{1}{2} C_{ijkl} \epsilon_{kl}^0 (\epsilon_{ij}^0 - S_{ijmn} \epsilon_{mn}^0)$$

によって決まる. $L = V_0/A$ は析出物の特徴サイズである. 前述の計算条件 (格子ミスマッチ $\epsilon_{11}^0 = \epsilon_{22}^0 = 0.01$, $\epsilon_{33}^0 = 0.002$, 界面エネルギー $\gamma = 0.10 \text{ J m}^{-2}$) において, 回転楕円体状析出物の特徴サイズ (析出物体積を $V_0 = 4\pi r_0^3/3$ とした場合の r_0 の値) を変えて全エネルギーを計算した結果を図 4 に示す. 前述のとおり, この格子ミスマッチ条件では $[0001]_\alpha$ 棒状析出物が安定であるが, 析出物の特徴サイズが

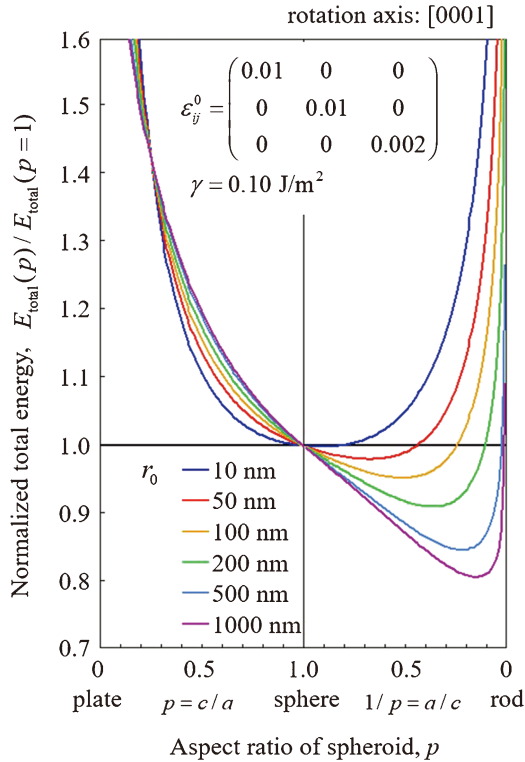


図4 α -Mg 母相中の回転楕円体状析出物の全エネルギーのアスペクト比依存性. 格子ミスマッチは $\epsilon_{11}^0 = \epsilon_{22}^0 = 0.01$, $\epsilon_{33}^0 = 0.002$, 界面エネルギーは $\gamma = 0.10 \text{ J m}^{-2}$ とし, 析出物の特徴サイズ(析出物体積を $V_0 = 4\pi r_0^3/3$ とした場合の r_0 の値)を変化させている. 縦軸は回転楕円体状析出物の全エネルギーを同体積の球状析出物 ($p=1$) の全エネルギーで規格化した値を示している.

小さいときは界面エネルギーの寄与が大きいため, 安定形状は球状に近くなる ($p \sim 1$). 析出物の特徴サイズが大きくなるにつれて, 弾性ひずみエネルギーの寄与が大きくなり, アスペクト比が高い棒状析出物が安定になる.

4. 析出物形状データに基づく材料パラメータ推定

格子ミスマッチや界面エネルギーなどの材料パラメータの値が既知であれば, 式(4)により全エネルギーを数値計算して析出物形状を予測することができる. しかし, α -Mg 合金の時効処理中に析出するナノスケールの化合物について, 全エネルギー計算に必要な材料パラメータの値(計算モデルの入力値)が全て既知であることはほとんどない. 一方, 時効処理中の析出物形状に関する実験データが得られている場合, その実験値を計算モデルの予測値と比較することで, 計算モデルに含まれる材料パラメータの値を推定できると考えられる. ただし, 1つの材料パラメータ条件について析出物形状を計算する(析出物の全エネルギーのアスペクト比依存性を計算する)コストが高いため, 少ない計算回数で実験データから材料パラメータを効率的に推定するための工夫が必要である.

ここで, 析出物形状の実験データから母相と析出相の格子

ミスマッチ ϵ_{ij}^0 と界面エネルギー γ を推定する問題を考える. 式(5)に示した通り, 析出物のアスペクト比は弾性ひずみエネルギーと界面エネルギーの比で決まるため, 析出物形状の実験データから ϵ_{ij}^0 と γ の値を一意に決めることができない. しかし, サイズが異なる析出物の形状データがあれば, ϵ_{ij}^0 と γ の値が一意に決まる可能性がある. 例として, Mg-Zn-Ca-Ag 合金の時効処理における MgZn_2 の形状データ ($[0001]_\alpha$ 棒状析出物のサイズとアスペクト比の変化)⁽³⁾ を用いて, α -Mg 母相と MgZn_2 の ϵ_{ij}^0 と γ を推定する. α -Mg 母相と MgZn_2 の結晶方位関係⁽¹⁴⁾, 各相の格子定数⁽¹¹⁾⁽¹⁵⁾ から, $[0001]_\alpha$ 方向の格子ミスマッチは $\epsilon_{33}^0 = 0.00182$ と計算される. また, $[0001]_\alpha$ 棒状析出物が安定であるので, 前章の結果を踏まえ, $\epsilon_{11}^0 = \epsilon_{22}^0$ とおくことができる. したがって, 格子ミスマッチを

$$\epsilon_{ij}^0 = \begin{pmatrix} \epsilon_{11}^0 & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11}^0 & 0 \\ 0 & 0 & 0.00182 \end{pmatrix} \quad (6)$$

とおき, 材料パラメータ $\mathbf{x} = (\epsilon_{11}^0, \gamma)^T$ を推定する. それぞれのパラメータの値域は $\epsilon_{11}^0 \in [-0.250, -0.001]$, $\gamma \in [0.001, 0.250] \text{ J m}^{-2}$ とし, ある材料パラメータ条件 $\mathbf{x}_i (i=1, \dots, 62500)$ における実験と計算モデルの差を表す関数を

$$y_i = \frac{1}{2} \sum_t (p_{\text{expt}}(t) - p_{i, \text{comput}}(t))^2 \quad (7)$$

によって定義する. p_{expt} と $p_{i, \text{comput}}$ はそれぞれ析出物のアスペクト比 p の実験値と計算モデルの予測値である. ここでは, 時効処理時間 $t=2, 8, 24 \text{ h}$ における MgZn_2 のアスペクト比の実験データ⁽³⁾ を用いる. 図5に材料パラメータ空間における y の値を示す⁽¹⁶⁾. 析出物形状の実験データ⁽³⁾ に誤差が含まれることから, ここでは, y の値が最小となる材料パラメータ条件を求める代わりに, y の値がある閾値 (h) 以下となる材料パラメータ条件 (Low-Error Region, LER と呼ぶ) を推定する. 閾値 h の値は実験データの誤差から $h=1 \sim$

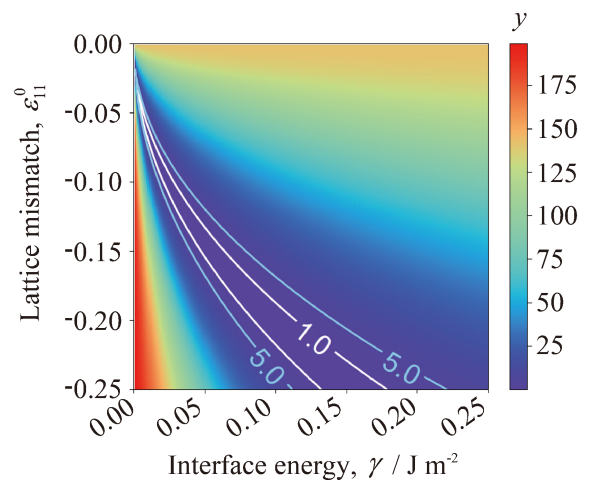


図5 格子ミスマッチ ϵ_{11}^0 と界面エネルギー γ のパラメータ空間における実験と計算モデルの差 (y) の値⁽¹⁶⁾. 青および白の等高線で囲まれた領域がそれぞれ $y \leq 5$ および $y \leq 1$ の LER に対応する.

5と見積もられる．図5において青または白の等高線で囲まれた領域がLERである．

図5を得るためには，62500通りの材料パラメータ条件において y の値を評価する必要があり，計算コストが非常に高い．効率的なLER推定を実現するために，まず，真の関数 f_i を想定し， $y_i=f_i+e$ (e はガウス型の誤差)とモデル化する．LERは $f_i \leq h$ を満たすパラメータ条件である．ガウス過程⁽¹⁷⁾を用いると， $\mathbf{x}_i(i=1, \dots, N)$ に対する y_i が得られたときの任意の材料パラメータ条件における関数値の予測分布が得られる(予測分散はガウスクERNELによって定義する．詳細は文献⁽¹⁶⁾を参照されたい)．この予測分布に基づいて次に関数値を計算する材料パラメータ条件を決定する方法を図6を用いて説明する．(図6は説明図であり，真の関数は適当に設定している．MgZn₂の形状データを用いたLER推定とは無関係である点に注意されたい)．図6(a)(Iteration 0)は2つの材料パラメータ条件で関数値が得られたときの予測分布を示している．図中の黒の破線が真の関数であり，青線が予測平均である．関数値が閾値(赤の破線)以下となるLERを推定することが目的である．ここで， $f_i > h$ のとき $z_i=0$ ， $f_i \leq h$ のとき $z_i=1$ の値をとる変数 z_i を導入する．関数値の予測分布を用いると，標準正規分布の累積分布関数から z_i の

確率 $P(z_i=1)$ および $P(z_i=0)=1-P(z_i=1)$ を計算することができる．図6(c)が $P(z_i=1)$ を示しており， $P(z_i=1) \geq 0.5$ の領域が推定されたLERに対応する．この $P(z_i)$ から情報エントロピー $H=-P(1)\log P(1)-P(0)\log P(0)$ を計算することができ⁽¹⁷⁾，これが z_i の不確かさに対応する．情報エントロピーから，新しく関数値が得られた場合に z_i の不確かさがどれほど減少するか(Information Gain, IGと呼ぶ)を評価することができる．図6(b)にIGの値を示す．このIGが最大となる材料パラメータ条件で新しく関数値を得ることでLER推定の不確かさを最も減少させることができる．新しく関数値が追加されると，予測分布が更新され，それに伴い $P(z_i=1)$ やIGも更新される．(図6のIteration 1に対応する)この過程を繰り返すことで，少ない計算回数でLERを推定する．

上述の手法に基づき，MgZn₂の形状データを用いてLERを推定した結果を図7に示す⁽¹⁶⁾．(a)はガウス過程における関数値の予測平均，(b)は情報獲得量(IG)，(c)は推定されたLER(青で示された $P(z=1) \geq 0.5$ の領域)を示している．(a)における青点は関数値が計算された点を示しており，最初にランダムに選んだ10点で関数値を計算してLER推定を開始している(Iteration 10)．この時点ではLERはほとんど

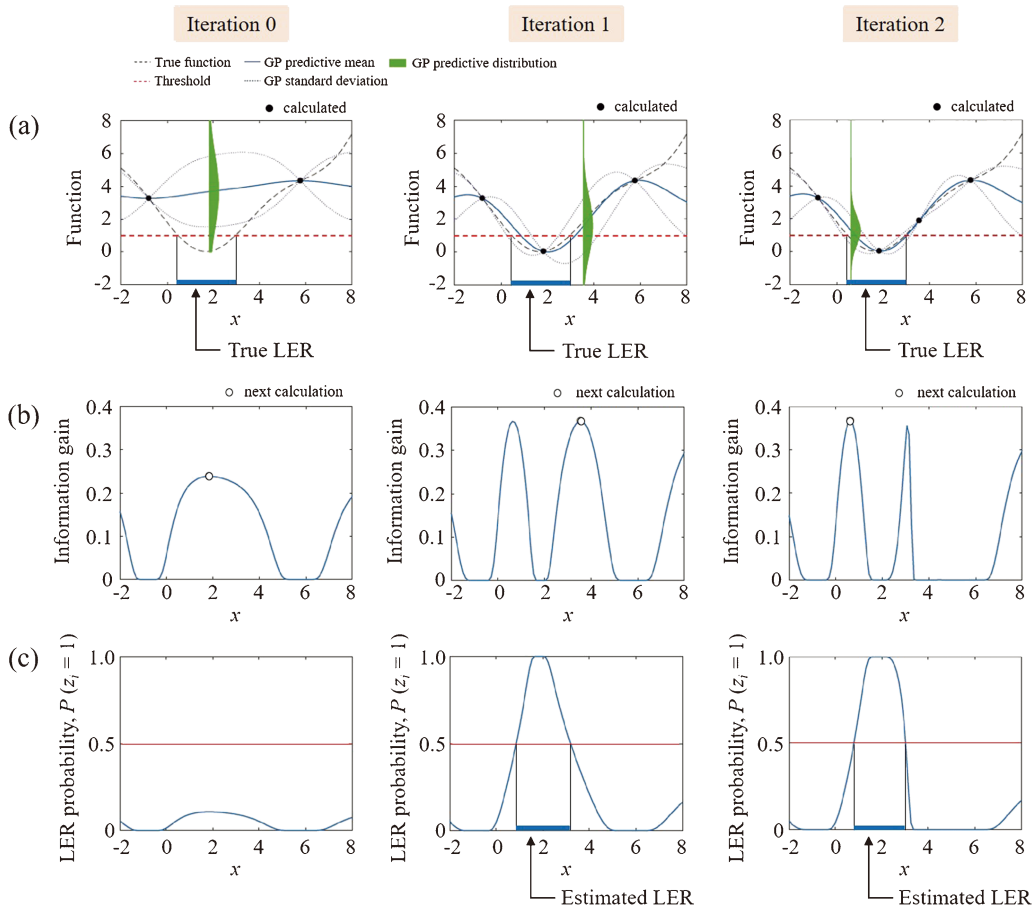


図6 ガウス過程による関数値の予測分布とLER推定のための計算点の決定についての説明図：(a) 予測分布，(b) 情報獲得量(IG)，(c) LERの確率．(a)にはIGの値が最大となる x における関数値の予測分布を緑で示してある．なお，図中の真の関数は適当に設定しており，MgZn₂の形状データを用いたLER推定とは無関係である．

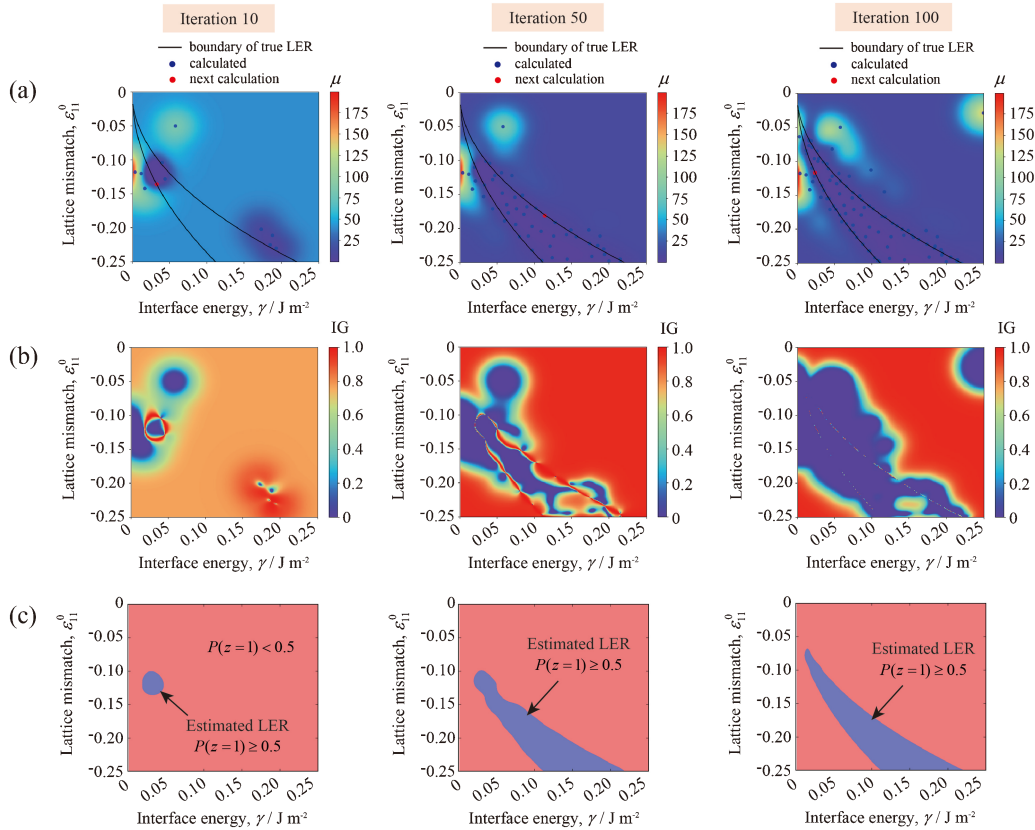


図7 MgZn₂の形状データを用いたLER推定⁽¹⁶⁾: (a) 関数値の予測平均, (b) 情報獲得量(IG), (c) 推定されたLER(青の領域). (a)における黒線は真のLERの境界を示している.

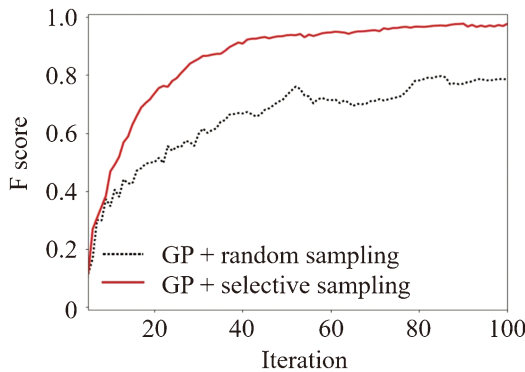


図8 計算回数に対するF値の変化⁽¹⁶⁾. 赤線が提案した推定手法を用いて計算点を選んだ場合の結果, 黒の点線が計算点をランダムに選んだ場合の結果.

推定できていない(図7(c)). また, (a)における赤点は次の計算点(IGが最大となる点)を示している. 50点で関数値が計算された時点(Iteration 50)でLERの概形が出現し, 100点で関数値が計算された時点(Iteration 100)でLERをほぼ推定できている. また, 図7(a)から関数値の計算点はLERの内部や境界近傍に集中していることがわかる. 二値分類の評価指標を用いて, 提案したLER推定手法の有用性を評価する. 二値分類の評価指標に再現率(Recall)と適合率(Precision)があるが, 両者は互いにトレードオフの関係にあるこ

とから, それらの調和平均であるF値(F score)を用いる⁽¹⁸⁾. 図8にF値を示す. 赤線が提案手法を用いて計算点を選んだ場合の結果, 黒の点線が計算点をランダムに選んだ場合の結果である. 両者を比較すると, 提案手法によって少ない計算回数で効率的にLERを推定できていることがわかる.

5. 精度・コストが異なる計算モデルの活用

組織の計算モデルを構築する過程で, 精度が低く計算コストが低い計算モデルが得られることがある. 例えば, 前章で用いた析出物形状計算モデルにおいて, 析出物の全エネルギーのアスペクト比依存性を計算する際のアスペクト比刻みを粗くすれば, 精度は下がるが, 低コストの計算モデルが得られる. この低コストの計算モデルをLER推定に活用することを考える. 計算モデルの精度レベルを $m \in \{1, 2, \dots, M\}$ とし (m が大きいほど精度が高い), それぞれの精度レベルで計算される析出物形状(アスペクト比)を $p_{i, \text{comput}}^{(m)}$ とする. また, 1回の計算コストは $\lambda^{(1)} \leq \lambda^{(2)} \leq \dots \leq \lambda^{(M)}$ とする. 前章と同様に, 実験と計算モデルの差を表す関数を

$$y_i^{(m)} = \frac{1}{2} \sum_t (p_{\text{expt}}(t) - p_{i, \text{comput}}^{(m)}(t))^2 \quad (8)$$

にて定義し, $y_i^{(m)} = f_i^{(m)} + e$ (e はガウス型の誤差) とモデル化する. また, LERは $f_i^{(M)} \leq h$ を満たすパラメータ条件であ

る。ガウス過程の定義より、 $\mathbf{f}^{(M)}$ はガウス分布に従うものとし、その共分散を決めるカーネル関数としてガウスカーネルを用いる。ここで、異なる精度レベルの計算モデルを統合するために、 $f_i^{(M)}$ を起点として精度レベルの低い計算モデルを

$$f_i^{(m)} = f_i^{(m+1)} + g_i^{(m+1)} \quad (9)$$

によってモデル化する。 $g_i^{(m+1)}$ は $f_i^{(m)}$ と $f_i^{(m+1)}$ の差を表現している。ガウス過程の定義より、 $\mathbf{g}^{(m+1)}$ はガウス分布に従うものとし、その共分散を決めるカーネル関数としてガウスカーネルを用いる。式(9)は、異なる精度レベルの計算モデル間の差がガウス過程で表現されており、精度レベルが低いほど加えられる $g_i^{(m)}$ の数が増えることを表している⁽¹⁹⁾。通常のガウス過程と同様に、 $\mathbf{x}_i (i=1, \dots, N)$ に対する $y_i^{(m)}$ が得られたとき、任意の材料パラメータ条件における関数値の予測分布が得られる。前章と同様に、 $f_i^{(M)} > h$ のとき $z_i = 0$ 、 $f_i^{(M)} \leq h$ のとき $z_i = 1$ の値をとる変数 z_i を導入すると、

z_i の確率から情報エントロピーを計算することができ、新しく $y_i^{(m)}$ の計算値が得られた場合の情報獲得量 $\text{IG}(z_i; y_i^{(m)})$ を評価することができる。ここではコスト効率を考慮して、計算コストあたりの IG

$$\frac{\text{IG}(z_i; y_i^{(m)})}{\lambda_i^{(m)}} \quad (10)$$

が最大となるよう計算モデルと計算点を選ぶ⁽¹⁹⁾。

析出物形状計算モデルについて、精度レベルが異なる3つの計算モデルを用意し ($\lambda^{(1)} = 5$ 分, $\lambda^{(2)} = 10$ 分, $\lambda^{(3)} = 60$ 分), MgZn_2 の形状データ⁽³⁾ を用いて LER を推定した結果を図9に示す⁽¹⁹⁾。ここでは、最初にランダムに選んだ10点で $m=1$ の精度レベルで関数値を計算して LER 推定を開始している。(a), (b), (c) がそれぞれ $m=1, m=2, m=3$ の精度レベルにおける関数値の予測平均を示しており、図中の白点は関数値が計算された点を示している。また、(d) は推定された LER (青で示された $P(z=1) \geq 0.5$ の領域) である。

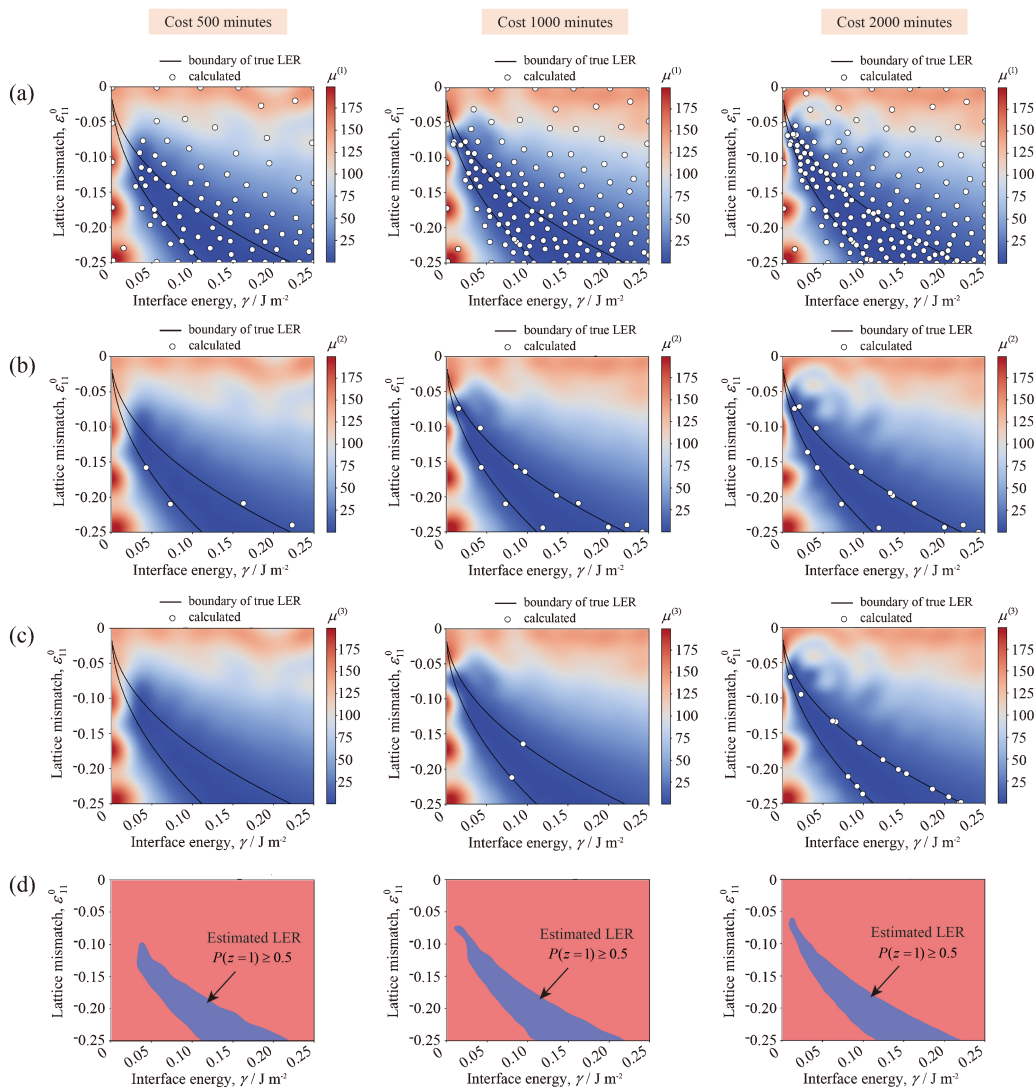


図9 精度レベルの異なる3つの計算モデルを用いて MgZn_2 の形状データから LER を推定した結果⁽¹⁹⁾: (a) 精度レベル低の関数値の予測平均, (b) 精度レベル中の関数値の予測平均, (c) 精度レベル高の関数値の予測平均, (d) 推定された LER (青の領域)。(a)–(c) における黒線は真の LER の境界を示している。

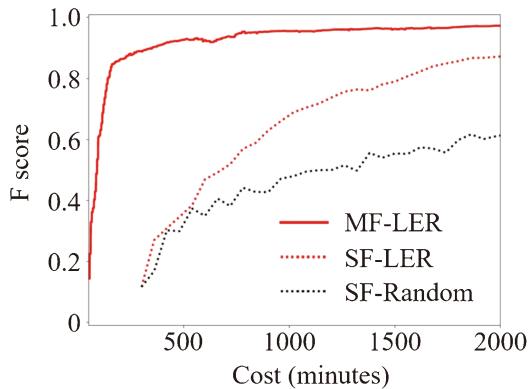


図10 全計算コストに対するF値の変化⁽¹⁹⁾。赤線が精度レベルの異なる3つの計算モデルを用いて計算コストあたりのIGに基づいて計算モデルと計算点を選んだ場合の結果、赤の点線が精度レベルの最も高い計算モデルのみを用いてIGに基づいて計算点を選んだ場合の結果、黒の点線が精度レベルの最も高い計算モデルのみを用いて計算点をランダムに選んだ場合の結果。

全計算コスト500分の時点で、すでにLERの概形が出現している(図9(d))。この時点までに、最も精度レベルの低い $m=1$ の計算モデルが多用されており、最も精度レベルの高い $m=3$ の計算モデルは一度も使われていない(図9(a)–(c))。この結果は、コスト効率を考慮した場合、LER推定の初期には精度レベルの低い計算モデルが有用であることを示唆している。全計算コスト1000分から2000分にかけては、精度レベルの低い $m=1$ の計算モデルだけでなく $m=2$ や $m=3$ の計算モデルが使われており、それらの計算点はLERの境界近傍に集中している。全計算コストが2000分の時点でLERをほぼ推定できている。

全計算コストに対するF値の変化を図10に示す⁽¹⁹⁾。赤の実線は、提案手法を用いて、計算コストあたりのIGに基づいて計算モデルと計算点を選んだ場合の結果である。赤の点線は $m=3$ の計算モデルのみを用いて、IGに基づいて計算点を選んだ場合の結果である(前章の結果に対応する)。また、黒の点線は $m=3$ の計算モデルのみを用いて計算点をランダムに選んだ場合の結果である。 $(m=3$ の計算モデルのみを用いた場合は最初にランダムに選んだ5点で関数値を計算してLER推定を開始している。)精度レベルの低い計算モデルの活用により、LER推定に必要な計算コストを大幅に下げることができている。

6. おわりに

析出物形状を回転楕円体近似した計算モデルにより、 α -Mg母相と析出相の格子ミスマッチや界面エネルギーの値から α -Mg合金における棒状や板状の析出物の方位やアスペクト比を予測できることを示した。また、本稿では詳述しなかったが、界面エネルギーの異方性が析出物形状に及ぼす影響が大きい場合や析出物形状を回転楕円体で近似できない場

合は、弾性ひずみエネルギーと界面エネルギーの異方性を考慮したフェーズフィールドモデルにより析出物形状を予測することができる⁽⁷⁾⁽⁸⁾⁽²⁰⁾。いずれの析出物形状計算モデルを用いる場合も、材料パラメータの値がモデルの入力値として必要であり、計算コストも高い。今後、これらの高度な計算モデルの活用法を考えたとき、モデルを析出物形状の実験データにフィッティングしてモデルパラメータを推定する方法論は重要であり、そこでボトルネックとなる計算コストを下げるためには、機械学習やデータ同化の手法の活用が不可欠である。本稿では、ガウス過程を用いてMg合金の析出物形状データから材料パラメータを効率的に推定する研究を紹介したが、他にも、データ同化の手法を用いて組織データからフェーズフィールドモデルのパラメータを推定する研究が盛んに行われている^{(21)–(26)}。実験、計算、機械学習・データ同化の融合により、近い将来、材料パラメータのデータベース化が進み、高精度の材料組織予測が実現することが期待される。

本稿で紹介した研究の一部は、JST PRESTO (JPMJPR15NB)、JST ALCA (JPMJAL1202)の支援を受けて実施した。研究の遂行にあたり、名古屋工業大学大学院生(現在：日本製鉄株式会社)の紅谷祐貴氏、名古屋大学大学院生(現在：日立金属株式会社)の福岡準史氏にご協力いただいた。また、材料パラメータ推定の結果は、名古屋工業大学大学院生の竹野思温氏、名古屋工業大学准教授の鳥山昌幸氏、岐阜大学准教授の志賀元紀氏との共同研究により得られたものである。ここに謝意を表す。

文 献

- (1) J. F. Nie: Metall. Mater. Trans. A-Phys. Metall. Mater. Sci., **43**(2012), 3891–3939.
- (2) C. L. Mendis, K. Oh-ishi, T. Ohkubo and K. Hono: Scr. Mater., **64**(2011), 137–140.
- (3) T. Bhattacharjee, C. L. Mendis, K. Oh-ishi, T. Ohkubo and K. Hono: Mater. Sci. Eng. A-Struct. Mater. Prop. Microstruct. Process., **575**(2013), 231–240.
- (4) P. G. Partridge: Metall. Rev., **12**(1967), 169–194.
- (5) J. F. Nie: Scr. Mater., **48**(2003), 1009–1015.
- (6) Y. Wang, L. Q. Chen and A. G. Khachaturyan: Scr. Metall. Mater., **25**(1991), 1387–1392.
- (7) Y. Gao, H. Liu, R. Shi, N. Zhou, Z. Xu, Y. M. Zhu, J. F. Nie and Y. Wang: Acta Mater., **60**(2012), 4819–4832.
- (8) H. Liu, Y. Gao, J. Z. Liu, Y. M. Zhu, Y. Wang and J. F. Nie: Acta Mater., **61**(2013), 453–466.
- (9) A. Issa, J. E. Saal and C. Wolverton: Acta Mater., **65**(2014), 240–250.
- (10) A. G. Khachaturyan: Theory of Structural Transformations in Solids, Dover, New York, (2008).
- (11) 金属データブック, 改訂4版, 日本金属学会編, 丸善, (2004).
- (12) Y. Tsukada, Y. Beniya and T. Koyama: J. Alloy. Compd., **603**(2014), 65–74.
- (13) T. Mura: Micromechanics of Defects in Solids, second, revised ed., Martinus Nijhoff, Dordrecht, (1987).
- (14) J. S. Chun and J. G. Byrne: J. Mater. Sci., **4**(1969), 861–872.
- (15) T. Ohba, Y. Kitano and Y. Komura: Acta Crystallogr. Sect. C-

- Struct. Chem., **40**(1984), 1–5.
- (16) Y. Tsukada, S. Takeno, M. Karasuyama, H. Fukuoka, M. Shiga and T. Koyama: *Sci. Rep.*, **9**(2019), 15794.
 - (17) C. E. Rasmussen and C. K. I. Williams: *Gaussian Processes for Machine Learning*, The MIT Press, Cambridge, (2006).
 - (18) C. D. Manning, P. Raghavan and H. Schütze: *Introduction to Information Retrieval*, Cambridge University Press, Cambridge, (2008).
 - (19) S. Takeno, Y. Tsukada, H. Fukuoka, T. Koyama, M. Shiga and M. Karasuyama: *Phys. Rev. Mater.*, **4**(2020), 083802.
 - (20) Y. Z. Ji, A. Issa, T. W. Heo, J. E. Saal, C. Wolverton and L. Q. Chen: *Acta Mater.*, **76**(2014), 259–271.
 - (21) S. Ito, H. Nagao, A. Yamanaka, Y. Tsukada, T. Koyama, M. Kano and J. Inoue: *Phys. Rev. E*, **94**(2016), 043307.
 - (22) S. Ito, H. Nagao, T. Kasuya and J. Inoue: *Sci. Technol. Adv. Mater.*, **18**(2017), 857–869.
 - (23) K. Sasaki, A. Yamanaka, S. Ito and H. Nagao: *Comput. Mater. Sci.*, **141**(2018), 141–152.
 - (24) A. Yamanaka, Y. Maeda and K. Sasaki: *Mater. Des.*, **165**(2019), 107577.
 - (25) M. Ohno, Y. Oka, S. Sakane, Y. Shibuta and T. Takaki: *Phys. Rev. E*, **101**(2020), 052121.
 - (26) Y. Matsuura, Y. Tsukada and T. Koyama: *Phys. Rev. Mater.*, **5**(2021), 113801.

★★

塚田祐貴
 2011年3月 名古屋大学大学院工学研究科博士課程修了
 2011年8月 名古屋工業大学大学院工学研究科 助教
 2015年4月 名古屋大学大学院工学研究科 助教
 2016年11月 現職

専門分野：計算材料組織学
 ◎主にフェーズフィールド法による材料組織形成モデリングに関する研究に従事。最近は機械学習やデータ同化による組織の計算モデルと実験データの融合に関する研究も行っている。

★★



塚田祐貴



小山敏幸