ニューラルネットワークによる溶鉄中相互作用母係数の推算

中本 将嗣^{1)*}・田中 敏宏²⁾

Estimation of Interaction Parameters in Liquid Fe by Neural Network Computation

Masashi NAKAMOTO and Toshihiro TANAKA

Synopsis : The estimation of interaction parameters in liquid iron is strongly demanded due to the difficulty of their measurements and its time consuming for enormous combinations of target solute elements in liquid iron. Therefore, several estimation models have been developed so far. In this study, the interaction parameters between metal elements and/or metalloid elements in liquid Fe are estimated by neural network computation in order to improve the estimation accuracy. The input parameters used in the neural network computation are assessed by lateral inhibition learning. The estimation results by neural network computation with the assessed parameters reasonably agree with the recommended values in the literature.

Key words : thermodynamic; interaction parameters; estimation; neural network; Fe.

1. 緒言

鉄鋼製造プロセスにおいて過剰ギブスエネルギー、活量係数、相互作用母係数などの熱力学データは溶融状態、凝固過程などにおける物質の反応、状態変化の方向性を考える指針となるものであり、その重要性から数多くの研究者により測定が行われ、収録集としてまとめられている^{1,2)}。一方、実験の制約上測定が困難な系が存在すること、多数の元素間の組み合わせがあることなどを考えると、すべての熱力学データを測定によって獲得することは現実的ではないことは明白な事実である。そのため、従来から理論、半理論的なモデル計算が開発され液体金属中の相互作用母係数の値を推算する試みがなされてきた。Dingら³⁾はMiedemaら⁴⁻⁹⁾のWeigner-Seitz理論を2元系合金に拡張した生成エンタルピーを計算するモデルとToopモデル¹⁰⁾を組み合わせ、また、過剰のエントロピー項が0との仮定のもと液体金属中の相互作用母係数の計算手法を提案した。Tanakaら^{11,12)}はfree volume theoryに基づく溶体モデルを適用して相互作用母係数、enthalpy interaction parameter, entropy interaction parameter間の関係を導き出し、液体金属の相互作用母係数の計算をしている。Uenoら¹³⁾は剛体球モデルならびにpseudopotential理論に基づくエネルギー項を考慮して、多成分金属溶液における相互作用母係数の理論式を導出した。Wangら¹⁴⁾は上述のTanakaらのfree volume model, Miedemaらのモデル, Toopモデルに基づき相互作用母係数の計算を行っている。これらのモデル計算は多く

の系において測定値の符号を再現する結果を得ているが、絶対値に関しては再現しきれていないのが現状である。一方で近年様々な非線形問題に応用され金融、証券などの予測、画像、文字、音声などのパターン認識、ロボットの制御に用いられているニューラルネットワーク¹⁵⁾は、材料科学においても合金の疲労割れ¹⁶⁾、モールドフラックスの粘度¹⁷⁾、溶融スラグの表面張力¹⁸⁾、溶融スラグのサルファイドキャパシティー¹⁹⁾、溶融スラグの電気伝導度²⁰⁾などにおいて高い推算精度を実現しており、熱力学データへの適用による推算の高精度化が期待される。

以上のことから、本研究では熱力学データの推算の更なる精度向上を目指して、ニューラルネットワークを利用した溶鉄中の相互作用母係数の推算を試みた。ニューラルネットワークの計算においては、まず適切な入力パラメータを決定するため成長側抑制学習によりパラメータを評価し、計算上で考慮すべき入力パラメータを抽出した。これら抽出した入力パラメータを用いて誤差逆伝搬法によりネットワークを構築し、文献で挙げられている推奨値との比較を行った。本研究ではニューラルネットワークの適用の第一段階として、溶鉄中の溶質元素として金属系、半金属系を対象とした。

2. ニューラルネットワーク

ニューラルネットワーク計算¹⁵⁾は、脳の中に約100～140億個存在すると言われているニューロンを模擬した回

2018年7月23日受付 2018年11月20日受理 (Received on Jul. 23, 2018 ; Accepted on Nov. 20, 2018)

1) 大阪大学低温センター (Low Temperature Center, Osaka University, 2-1 Yamadaoka Suita Osaka 565-0871)

2) 大阪大学大学院工学研究科 (Graduate School of Engineering, Osaka University)

* Corresponding author : E-mail : nakamoto@mat.eng.osaka-u.ac.jp

DOI : <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2018-116>

帰演算手法である。それぞれのニューロンは、他のニューロンと結合してニューラルネットワークを構成している。各ニューロンは他の多数のニューロンから信号を受け取り、入力信号の合計があるしきい値を超えると出力信号を出し、次のニューロンに信号を伝える。Fig.1にニューロンのモデル化したニューロンモデルを示す。モデルでは入力値に重みをかけて総和をとり、S字状の非線形関数であるシグモイド関数を通して出力を行う。 P は出力信号を出す確率、 w_i はシナプス結合の重み、 s_i は入力信号、 h_i はしきい値、 T はシグモイドの傾きを定めるパラメータである。ニューロンモデルをネットワークでつないだニューラル

ネットワークには様々なモデルが存在する。本研究では、Fig.2に示す階層型ニューラルネットワークを使用した。階層型ニューラルネットワークではニューロンモデルが層状に配置され、各層間は重みをもつネットワークを介して結合している。階層型ニューラルネットワークにおいて、最初の層は入力層、最後の層は出力層、入力層と出力層の間に挟まれた層は中間層と呼ばれている。入力層は入力値をそのまま出力することになっており、入力層のニューロンの存在は実質的に考慮されない。学習法には誤差逆伝搬法を用いた。この学習法ではニューラルネットワークの出力層に正しい解答を教師データとして与え、その教師デー

Fig. 1. A concept of neuron model.

Fig. 2. Schematic diagram of back propagation approach in layer-type neural network.

タと出力との誤差を計算し、この誤差が0になるように出力層から入力層の方向に各層間の重みを修正する。これらのプロセスは学習と呼ばれる。学習は設定した学習回数に達するまで、もしくは、すべての計算値と教師データとの誤差が設定した許容誤差以下になるまで繰り返される。また、本計算では学習時間の短縮のため補習学習法を誤差逆伝搬法と併用した。補習学習とは、学習中に設定した許容誤差以内に収まったデータを一時的に学習データから除き、残りの収束していないデータのみを学習させる方法である。一時的に除かれたデータの誤差も常に確認されており、許容誤差を上回ると再度教師データセットに組み込まれ再学習されるため、全体の学習のバランスは保たれる。

本研究において教師データは溶鉄中の相互作用母係数であり、溶質元素として金属、半金属に焦点をあてた。相互作用母係数のデータは推奨値として報告されている値¹⁾を用いた。ただし、事前の予備計算において絶対値が200以上の相互作用母係数については推算結果が大きく影響されることを確認したため、データからは省くこととした。全データ数は101個である。本研究ではニューラルネットワークの計算に富士通社製のNeurosim/L¹⁵⁾を利用した。ニューラルネットワークの計算においても従来のモデル計算と同様に、出力に対して特徴的な入力パラメータを選択することにより、より高精度で汎用性のあるモデルの構築が可能である。上述した従来のモデル^{3,11-14)}では主として、Wigner-Seitzセル、原子の電気陰性度、モル体積、剛体球径など原子間の相互作用に係わるパラメータや原子の大きさに係わるパラメータが採用されている。これら従来のモデルの取り扱いを基に、本研究においても相互作用母係数には各元素の固有の性質が影響すると考え、各溶質元素の電気陰性度、原子半径、原子量を入力パラメータとした。ニューラルネットワークによる計算では、入力パラメータである独立変数間の組み合わせによって生じる交互作用の影響は学習プロセスで構築されるネットワークにより表現が可能である。一方で、従来の回帰手法と同様に入力パラメータとして交互作用項を導入することにより、ネットワーク構造の複雑化を抑制しつつ、交互作用の影響も考慮できる。本研究ではネットワーク構造の複雑化を低減させるため、入力パラメータに交互作用項を導入した。ただし、入力パラメータとして設定した各溶質元素の電気陰性度、原子半径、原子量の組み合わせは、積、商、次数が高い場合などを含めると無限に考えられ、すべての組み合わせを検討することは現実的ではない。加えて、それらがどのように影響しているかは明確でないため、本研究では最初の段階として同種の性質の組み合わせのみに焦点をあて、相互作用を考える際の溶質元素同士の上記性質の積および積の逆数も入力パラメータとして設定した。ただし、これら入力パラメータすべてを単純に計算に用いるのではなく、入力パラメータの最適化を目指し成長側抑制学習法に

よるパラメータの抽出を試みた。成長側抑制学習法は、学習データ中に隠れている法則性を抽出するための誤差逆伝搬法を拡張した学習法で、重みの修正の際に抑制をかけて重要な重みだけが生き残るように調整する学習法である。成長側抑制係数という値を設定することにより抑制を制御する。成長側抑制係数が0の場合が誤差逆伝搬法に相当し、係数が大きくなると抑制が強くなり重み結合が簡略化される。本研究では成長側抑制係数を0, 0.000001, 0.00001, 0.0001, 0.001と順に変化させ、学習回数を2,000,000回として成長側抑制学習を行った。ただし、入力パラメータの抽出を目的としたため、入力層と中間層の間の成長側抑制係数のみ考慮し、中間層と出力層の係数は0とした。成長側抑制学習において重要でないと判断された入力パラメータが確認できた際には、次の成長側抑制係数を大きくした学習でその入力パラメータを省いてさらに成長側抑制学習を実施した。なお、中間層のユニット数は初期は12とし、重要でないと判断された入力パラメータを省略した際にはそれに応じて中間層のユニット数を減少させた。成長側抑制学習を実施した後、抽出されたパラメータのみを用いて成長側抑制係数を0とし誤差逆伝搬法により再度ネットワークを構築、溶鉄中の相互作用母係数の推算を行った。許容誤差は、成長側抑制学習、誤差逆伝搬法ともに0.01とした。

3. 計算結果

成長側抑制学習において構築されたネットワーク構造をFig.3に示す。Fig.3では成長側抑制係数のネットワーク構造への影響を示している。図中の左端の記号は入力パラメータであり、 $EN_i, EN_j, R_i, R_j, W_i, W_j$ はそれぞれ元素*i, j*の電気陰性度、原子半径、原子量を示し、 $E_i E_j, R_i R_j, W_i W_j, 1/E_i E_j, 1/R_i R_j, 1/W_i W_j$ はそれぞれ元素*i, j*の電気陰性度、原子半径、原子量の積、積の逆数を表している。図中でネットワーク構造は入力層、中間層、出力層の各層間において様々な太さの線で結ばれている。この線が存在する場合は各層間で関係があり計算に考慮されていること、存在しない場合は考慮されていないことを意味する。ここで、入力層と中間層の間で何も線が存在しない入力パラメータがあれば、そのパラメータは計算において考慮されていないことになり、重要でない入力パラメータと判断した。Fig.3 a)とb)に示す成長側抑制係数が0, 0.000001の場合は、すべての入力パラメータに関して入力層と中間層の層間に何かしらの線が存在している。一方、成長側抑制係数が0.00001のFig.3 c)において、原子半径の積 $R_i R_j$ は入力層から中間層のどのユニットに対する線も存在しておらず、重要でない入力パラメータとして考えられる。そこで、次の成長側抑制係数が0.0001の成長側抑制学習においては $R_i R_j$ を省き計算を実施した。0.0001の成長側抑制係数における学習では、Fig.3 d)のように電気陰性度の積 $E_i E_j$ の入力パラメー

タで関係を表す線が存在せず, $E_i E_j$ が重要でないことが分かった。続いて, $E_i E_j$ を省き成長側抑制係数を0.001として成長側抑制学習を行うと Fig.3 e) に示すように電気陰性度の積の逆数 $1/E_i E_j$ で入力層と中間層の関係を示す線が消滅した。成長側抑制係数については0.001程度で十分に効果があるとされており¹⁵⁾, 本研究では上記までの結果に基づき, $R_i R_j$, $E_i E_j$, $1/E_i E_j$ を省いた9個のパラメータを入力パラメータとして採用した。

Fig.4は成長側抑制学習前に設定した12個すべての入力パラメータを用いて, 誤差逆伝搬法での学習により構築したネットワークを基に溶鉄中の相互作用母係数を推算した結果である。Fig.4は横軸に文献で挙げられている推奨

値, 縦軸に本研究でのニューラルネットワークによる計算値をとっている。プロットのA, B, Cは収録集でのデータ精度の分類を示しており, Aは信頼性が高いデータ, BはAよりも信頼性が低いデータ, Cは信頼性が不明確なデータである。Fig.4 b) からわかるように溶鉄中の相互作用母係数の値が-20から80程度の範囲においてほとんどのプロットは傾き1の破線にそっており, ニューラルネットワークによる推算値は推奨値を精度良く再現している。一方でFig.4 a) により詳細を確認すると, 推奨値として-5もしくは4程度を示し, ニューラルネットワークによる計算値がおおよそ0をとっている傾き1の傾向から大きくずれているプロットが存在している。これらは ε_{Cr}^{Co} , ε_{Co}^{Cr} , ε_{Cr}^{Cu}

Fig. 3. Results of lateral inhibition in neural network calculation: lateral inhibition coefficients are a) 0, b) 0.000001, c) 0.00001, d) 0.0001 and e) 0.001, respectively.

Fig. 4. Comparison between estimated value by neural network computation with non-assessed input parameters, i.e. 12 input parameters, and recommended value in literature. ε_j^i ranges a) from -15 to 15 and b) from -100 to 100.

ε_{Cu}^{Cr} のデータである。Fig.5は成長側抑制学習で抽出した9個の入力パラメータ EN_i , EN_j , R_i , R_j , W_i , W_j , $1/R_i R_j$, $W_i W_j$, $1/W_i W_j$ を用いて、誤差逆伝搬法での学習により構築したネットワークを基に溶鉄中の相互作用母係数を推算した結果である。学習回数は20,000,000, 中間層のユニット数は9である。Fig.5においてほとんどのプロットは傾き1の破線にそっており、評価した入力パラメータを用いたニューラルネットワークにより推奨値と一致する計算結果を得た。Fig.4の結果と比較すると、12個の入力パラメータよりも少ない9個のパラメータにも関わらずほぼ同程度の高い精度で推奨値を再現しており、成長側抑制学習により効果的に入力パラメータを評価、抽出できたと考えられる。一方で、 ε_{Cr}^{Co} , ε_{Co}^{Cr} , ε_{Cr}^{Cu} , ε_{Cu}^{Cr} のデータはFig.4と同様に他のデータと比較して大きくずれる傾向は変わらなかった。同データは推奨値においてCに分類される信頼性が不明確なデータであることから今後のデータの確認の必要性が示唆される。

ニューラルネットワークによる推算結果をDingら³⁾の相互作用母係数の結果と比較した。Fig.6は相互作用母係数

の推奨値¹⁾とDingらの計算結果の比較である。計算結果はある程度のばらつきはあるものの概ね推奨値と一致する傾向を示しているが、相互作用母係数の絶対値が大きなデータは再現しきれていない。このことから本研究で用いたニューラルネットワークによる手法は溶鉄中の相互作用母係数の推算精度を従来のモデルよりも飛躍的に向上させることが可能であることが明らかとなった。

出力値、つまり、ニューラルネットワークにより計算される相互作用母係数への入力パラメータの影響を評価した。ここでは、出力値を入力パラメータで偏微分した値を入力パラメータの影響度²⁾と定義した。影響度を各データで算出し、各入力パラメータで影響度の傾向を調べた。その結果をFig.7に示す。プロットは影響度の中央値、エラーバーは影響度のばらつきとして最大値、最小値の幅を表している。入力パラメータの影響度について、中央値はほぼ0付近にあり、わずかではあるが EN_i , EN_j , R_i , R_j , $1/W_i W_j$, $W_i W_j$ は正、 W_i , W_j , $1/R_i R_j$ は負の寄与を示している。一方で、それらの値は正負が変わるほど大きくばらついてお

Fig. 5. Comparison between estimated value by neural network computation with assessed input parameters and recommended value in literature. ε_j^i ranges a) from -15 to 15 and b) from -100 to 100.

Fig. 6. Comparison between estimated value by Ding et al.³⁾ and recommended value in literature. ε_j^i ranges a) from -15 to 15 and b) from -100 to 100.

り、その傾向は入力パラメータ毎で異なる。交互作用項以外の入力パラメータで比較すると、原子量 $W_i, W_j >$ 原子半径 $R_i, R_j >$ 電気陰性度 EN_i, EN_j の順で影響度のばらつきの幅は広い。一方、全体の中で交互作用項である $W_i W_j$ の影響度のばらつきの幅が一番大きくなっており、交互作用

Fig. 7. Degree of influence of input parameter on output value.

の影響を考慮することが重要であることが分かる。Fig.8は a) EN_i , b) R_i , c) W_i , d) $1/R_i R_j$, e) $W_i W_j$, f) $1/W_i W_j$ の影響度の絶対値を円の面積で表し、元素 i, j の元素番号を各軸に取った平面上にプロットした図であり、正と負の寄与を分けて示している。影響度の低い a) EN_i や d) $1/R_i R_j$ ではあまり差がないが、他の入力パラメータについては元素の組み合わせで影響度が大きく変化している。特に影響度の一番大きい $W_i W_j$ に関しては、元素の組み合わせによる影響度の違いが顕著であり、元素番号が小さい元素を含む組み合わせはおおよそ正で絶対値の小さい影響度を示すのに対し、元素番号が大きい領域では負で比較的大きい絶対値をもつ影響度が表れている。以上のことから、成長側抑制学習により相互作用母係数の計算への影響度の高い交互作用項を抽出可能であることが分かった。

4. 結言

本研究ではニューラルネットワーク計算により溶鉄中の金属元素、半金属元素の相互作用母係数の推算を試みた。溶鉄中の溶質元素の電気陰性度、原子半径、原子量、それ

Fig. 8. Degree of influence of a) EN_i , b) R_i , c) W_i , d) $1/R_i R_j$, e) $W_i W_j$, f) $1/W_i W_j$ on output value.

ぞれの積および積の逆数を入力パラメータとして設定し、成長側抑制学習法によりパラメータを抽出した。抽出したパラメータを用いてニューラルネットワーク計算を実施した結果は、文献で報告されている溶鉄中相互作用母係数の推奨値を精度良く再現した。

文 献

- 1) The 19th Committee on Steelmaking, The Japan Society for the Promotion of Science: Steelmaking Data Source Book, Gordon and Breach Science Publishers, New York, (1998).
- 2) Thermodynamic Data for Steelmaking, ed. by M.Hino and K.Ito, Tohoku Univ., Sendai, (2010).
- 3) X.Ding, W.Wang and Q.Han: *Acta Metall. Sin. A*, **22**(1986), 156.
- 4) A.R.Miedema: *J. Less-Common Met.*, **32**(1973), 117.
- 5) A.R.Miedema, R.Boom and F.R.de Boer: *J. Less-Common Met.*, **41**(1975), 283.
- 6) A.R.Miedema: *J. Less-Common Met.*, **46**(1976), 67.
- 7) R.Boom, F.R.de Boer and A.R.Miedema: *J. Less-Common Met.*, **45**(1976), 237.
- 8) A.R.Miedema and P.F.de Chatel: Theory of Alloy Phase Formation, ed. by L.H.Bennett, Metallurgical Society of AIME, Warrendale, PA, (1980), 344.
- 9) A.R.Miedema, P.F.de Chatel and F.R.de Boer: *Physica B+C*, **100**(1980), 1.
- 10) M.Hillert: *Calphad*, **4**(1980), 1.
- 11) T.Tanaka, N.A.Gokcen, P.J.Spencer, Z.Morita and T.Iida: *Z. Metallkd.*, **84**(1993), 100.
- 12) T.Tanaka, N.A.Gokcen, Z.Morita and T.Iida: *Z. Metallkd.*, **84**(1993), 192.
- 13) S.Ueno, Y.Waseda, K.T.Jacob and S.Tamaki: *Steel Res.*, **59**(1988), 474.
- 14) F.Wang, X.Li, Q.Han and Z.Zhang: *Metall. Mater. Trans. B*, **28**(1997), 109.
- 15) K.Tanabe: An Introduction of Neural Network by NEUROSIM/L, Nikkan Kogyo Shimbun, Tokyo, (2003).
- 16) H.Fujii, D.J.C.MacKay and H.K.D.H.Bhadeshia: *ISIJ Int.*, **36**(1996), 1373.
- 17) M.Hanao, M.Kawamoto, T.Tanaka and M.Nakamoto: *ISIJ Int.*, **46**(2006), 346.
- 18) M.Nakamoto, M.Hanao, T.Tanaka, M.Kawamoto, L.Holappa and M.Hämäläinen: *ISIJ Int.*, **47**(2007), 1075.
- 19) B.Derin, M.Suzuki and T.Tanaka: *ISIJ Int.*, **50**(2010), 1059.
- 20) Y.Haraguchi, M.Nakamoto, M.Suzuki, K.Fujita and T.Tanaka: *ISIJ Int.*, **58**(2018), 1007.
- 21) J.Murata, T.Nakazono and K.Hirasawa: *Res. Rep. Inf. Sci. Electr. Eng. Kyushu Univ.*, **3**(1998), 219.