

ニューラルネットワークによる ガラス融体の粘性率の回帰予測

秋田大学大学院 理工学研究科

菅原 透

Predicting viscosity of glass melts using neural networks

Toru Sugawara

Akita University

1. はじめに

近年、ガラスやガラス融体の特性を機械学習によりモデル化することが注目されている^{1,2)}。これまで、ガラスの特性は重回帰分析により定式化されることが多かったが^{3,4)}、非線形的な現象についてはその都度、その要因を注意深く考察した上で、説明変数の高次化や指数化等をする必要があった。一方、機械学習ではコンピューターで多数の繰り返し計算をすることにより、データに内在されているルールやパターンを自動的にモデル化することができる。これまでに、液相温度¹⁾、ガラス転移温度⁵⁾、ガラス形成能⁶⁾、化学的耐久性⁷⁾、粘性率^{1, 8, 9)}などについての機械学習のモデル化が報告されている。

ケイ酸塩メルトの粘性率はガラス融体の流動

や成形のしやすさを左右する重要な物性のひとつである。粘性率は測定が比較的容易であるため、これまでに多くの測定値が報告されるとともに、種々の推算式が提案されてきた。しかしながら、温度と化学組成に依存して非線形的に変化することに加えて、ガラス転移領域から約2000℃の範囲で13桁にも渡る大きな変化をするため、これまでの推算式は、適用可能な組成や粘性率の範囲を限定したものが多かった。

本稿では、機械学習のひとつであるニューラルネットワークを用いて、ケイ酸塩メルトの粘性率の回帰予測を試みた例を紹介する。

2. ニューラルネットワークによる 回帰予測

ある目的変数 y が n 個の説明変数 $X = (x_1, x_2, \dots, x_n)$ の関数であるとき、 X から y を求めるためのニューラルネットワーク(NN)の例をFig. 1に示す。NNはユニットと呼ばれる数式処理をする基本単位(Fig. 1の丸囲みの $z_{i,j}$)が連結した構造を成す。NNの第1層目の第 j ユニッ

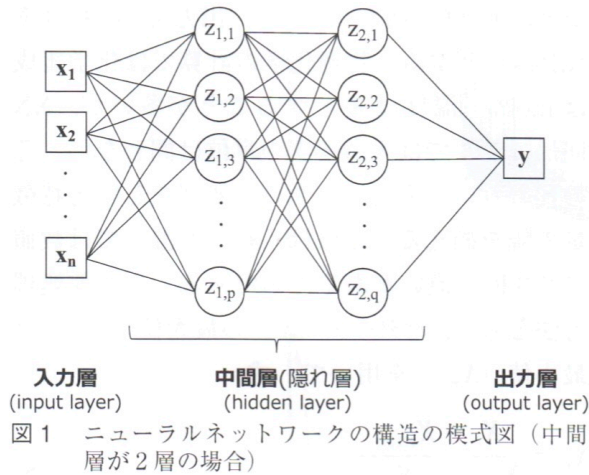
〒010-8502

秋田県秋田市手形学園町1-1

TEL 018-889-2757

FAX 018-837-0409

E-mail: toru@gipc.akita-u.ac.jp



トの出力は $z_{i,j}$,

$$a_{1,j} = \sum_{k=1}^n x_k w_{1,j,k} + b_{1,j} \quad (1)$$

$$z_{1,j} = f(a_{1,j}) \quad (2)$$

と計算される。ここで j はユニットの番号, w は各入力要素に対する重み (weight), b は閾値 (bias) である。各ユニットでがそのまま出力されるのではなく、活性化関数と呼ばれる関数(式2)を通して調整された値が出力される。目的変数を決める上で重要なユニットは“活性”されるのでその出力を大きく取り、そうでないユニットは出力を小さくする。これが活性化関数の役割である。主なものとして、

$$\text{ReLU} : f(a) = \begin{cases} 0, & a \leq 0 \\ a, & a > 0 \end{cases} \quad (3)$$

$$\text{Sigmoid} : f(a) = \frac{1}{1 + e^{-a}} \quad (4)$$

$$\text{Tanh} : f(a) = \frac{e^a - e^{-a}}{e^a + e^{-a}} \quad (5)$$

がある。ReLU 関数は a が負であるときには出力しない。Sigmoid 関数と Tanh (Hyperbolic tangent) 関数はそれぞれ出力を $0 \sim 1, -1 \sim 1$ に規格化する。それぞれの活性化関数における a と $f(a)$ の関係を Fig. 2 に示す。

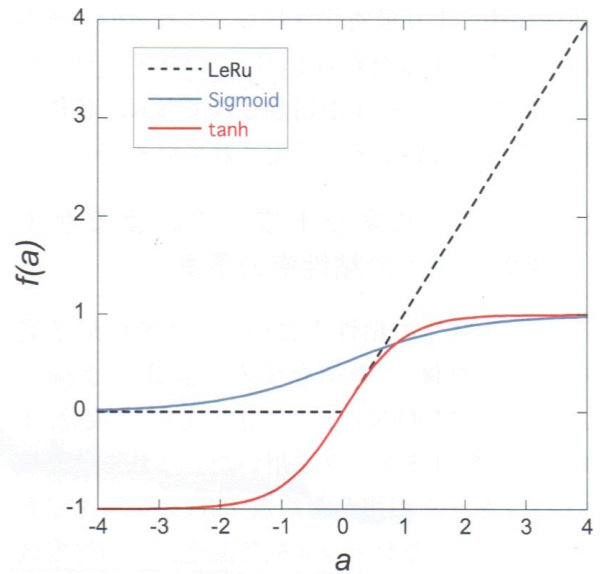


図2 活性化関数 (ReLU, Sigmoid, Tanh) の比較

第2層目の出力 $z_{2,j}$ は式 (1) の z_k を $z_{1,j}$ で置き換えた同様な式により計算される。この $z_{2,j}$ を用いて, y は

$$y = \sum_{j=1}^q z_{2,j} w_{2,j} + b_3 \quad (6)$$

と計算される。

Fig. 1 のような入力層が n 個の x からなり, 1層目が p 個, 2層目が q 個のユニットからなる NN には, パラメーター (weight と bias) が合計で $p(n+1) + q(p+1) + q+1$ 個あることになる。

目的変数 y と説明変数 X のセットが m 個あるとき, y と計算値 Y の誤差を平均2乗誤差 (Mean Squared Error, MSE)

$$MSE = \frac{\sum_{i=1}^m (y_i - Y_i)^2}{m} \quad (7)$$

およびその平方根である二乗平均平方根誤差 (Root Mean Squared Error, RMSE) により表す。機械学習ではこのような誤差を評価する関数を損失関数 (Loss function) と呼び, weight と bias は損失関数が最小化されるように誤差

逆伝播法により最適化される。これらの一連の計算を実行するための Python のライブラリや R 言語のモジュールが用意されており、各種の機械学習において広く活用されている。

3. ニューラルネットワークによるケイ酸塩メルトの粘性率の予測

ガラス融体の粘性率について NN 回帰予測を行なった例¹⁰⁾を紹介する。計算には SiO_2 - Al_2O_3 - CaO - MgO - Na_2O の部分 2 成分, 3 成分, 4 成分系の粘性率データを用いた。これらは既報の 73 文献から引用した総数 4335 のデータである (Fig. 3)。なおガラス転移温度以上の温度域を対象とするため, $\log \eta$ (dPa·s) が 13 よりも高いデータは省いた。これらのうちの 8 割を weight と bias を決定するための学習データ, 残りの 2 割をテストデータとした。各計算条件あたり計算を 3 回繰り返し, その都度学習データとテストデータをランダムに入れ替えるとともに RMSE の平均値を求めた。

NN 回帰計算では, 入力を温度 (°C) と Al_2O_3 ,

MgO , CaO , Na_2O (wt%), 出力を $\log$ 粘性率 (dPa·s) とする。物理化学の計算では化学組成は mol%, 温度は K とすることが多いが, NN 回帰モデルでは入力要素の単位は問わない。その代わりに, 入力データの事前処理をして各特徴量の幅を揃える。これは, 組成と温度では数値に 2-3 桁の違いがあるためである。主な前処理方法として, 元データ (X_i) の最大値 ($X_{\max}$) と最小値 ($X_{\min}$) を用いて, 式

$$x_i = \frac{X_i - X_{\min}}{X_{\max} - X_{\min}} \quad (8)$$

によりスケーリングをする規格化 (min-max), 元データの平均値 (X_{mean}) と標準偏差 (σ) を用いて, 式

$$x_i = \frac{X_i - X_{\text{mean}}}{\sigma} \quad (9)$$

によりスケーリングをする標準化がある。規格化では x_i が 0 から 1 の範囲となり, 標準化では x_i の平均が 0, 標準偏差が 1 の値となる。

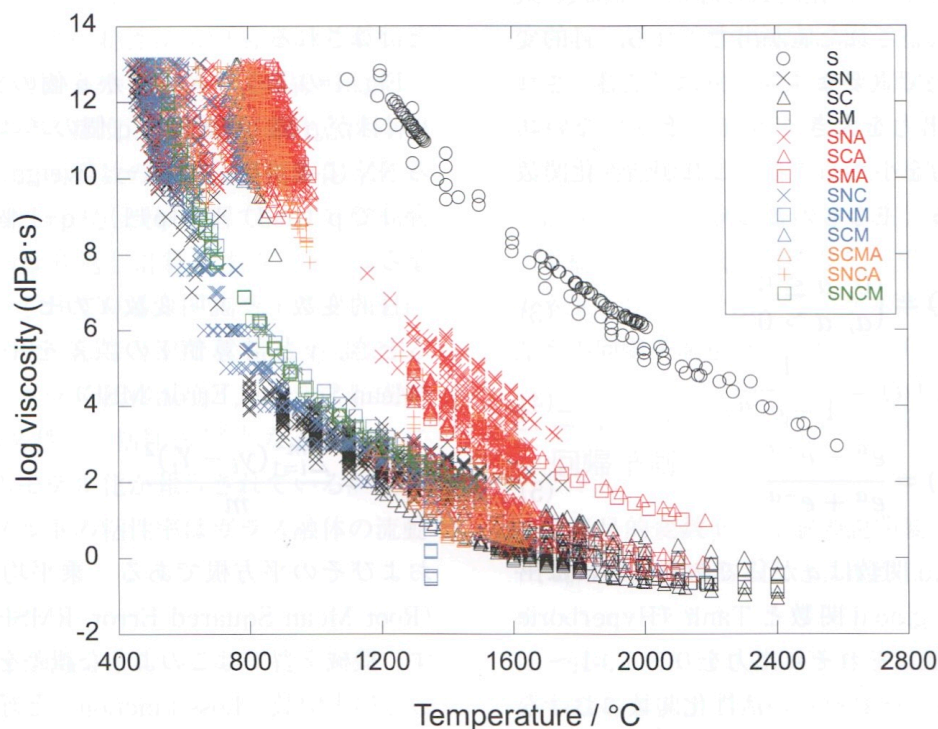


図3 NN 回帰に用いた粘性率データ

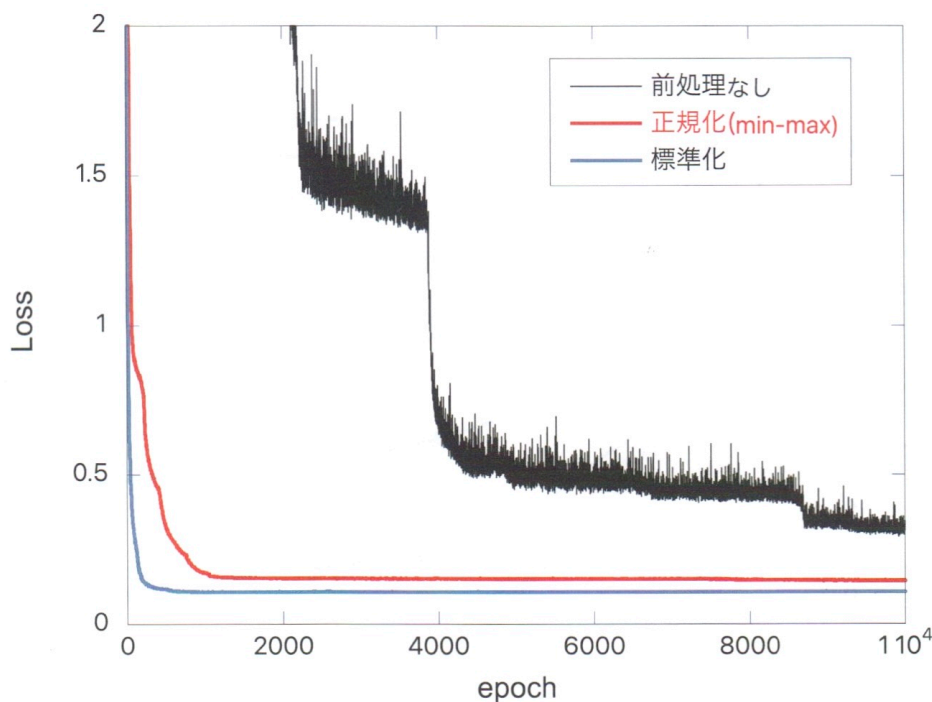


図4 計算回数 (epoch) と損失関数 (Loss) の関係の例

Fig. 4 に計算回数と損失関数の関係を示す。前処理をしない ($x_i = X_i$) ときには説明変数の桁数が異なるため、weight と bias を求める最適化計算での損失関数の変化が大きく、収束も遅いが、規格化や標準化を行うことでスムーズに収束することがわかる。

ケイ酸塩メルトはそのガラス形成能が低いとき、リキダス温度以下の過冷却領域で結晶化しやすくなる。そのため、粘性率の測定データはリキダスよりも高い高温領域とガラス転移温度よりやや上の低温領域に限られ、中間の温度域では測定値が無いことが多い。NN 回帰では、そのようなときに値をどのように内挿するのが問題となる。

Fig. 5 に 50SiO₂-50CaO メルトの粘性率の実験値と計算値の比較を示す。活性化関数が Sigmoid (式 4) または Tanh (式 5) であるときには、粘性率がスムーズに温度内挿されているが、ReLU (式 3) では不連続になっていることがわかる。このことは、NN 回帰でデータの無い領域を内挿する際、活性化関数の連続性が重要になることを示している。

Fig. 6 は NN の構造と大きさの違いにより計算される粘性率の誤差 (RMSE) がどのように変わるのかを示している。RMSE はパラメータ数 170 までの 1 層, 2 層, 3 層モデルにおいて常に 0.45 以下であった。同じデータに、メルトの物理化学モデルに基づく従来の汎用的な粘性率計算モデル¹¹⁾を適用すると RMSE は 0.59 であるので、NN 回帰モデルの精度は十分に高いと言える。

RMSE は NN の規模 (パラメータの数) が大きくなるにつれて低下するが、およそ 100 を超えるとほぼ一定となる。パラメータの数が等しいとき 2 層モデルの RMSE が最も小さく、より複雑な NN (3 層モデル) が必ずしも良いわけではないことを示している。いずれの層構造においても、活性化関数は Sigmoid よりも Tanh を用いた方が RMSE が低い。Tanh 関数は正負どちらにもなる (Fig. 2) ので、回帰予測では Sigmoid よりもより柔軟性が高いようである。全体的に学習データとテストデータの RMSE の差はわずかであり、大きな過学習の傾向は見られない。

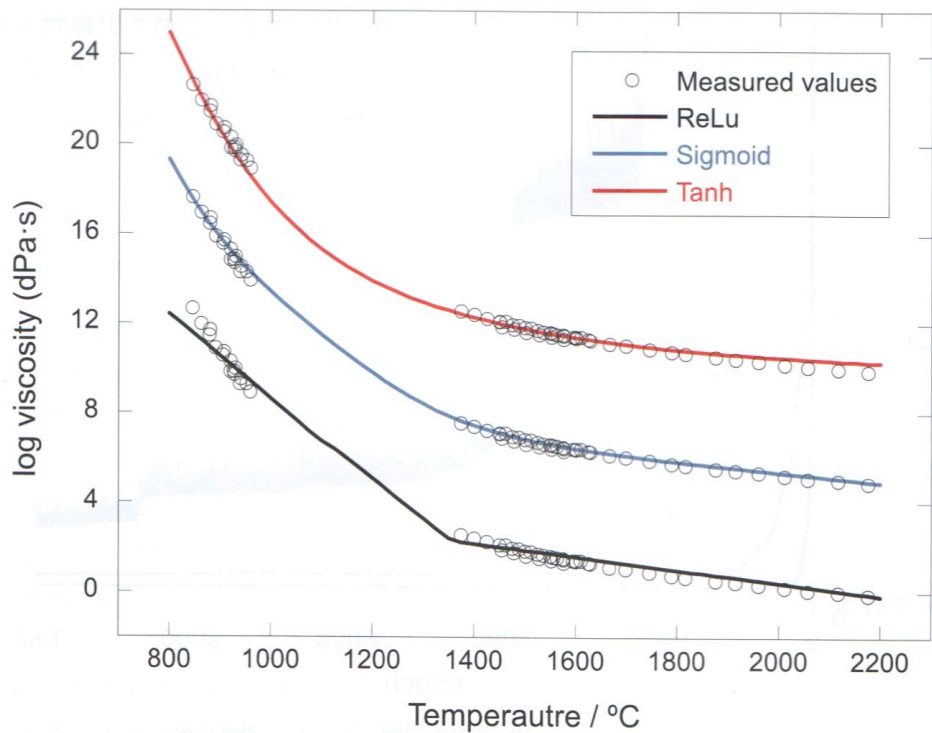


図5 50SiO₂-50CaO 組成のメルトの粘性率の実験値と計算値の比較. Sigmoidでは $\log \eta + 4$, Tanhでは $\log \eta + 8$ の値. いずれも説明変数を正規化し, Unit 数 12 の中間層 1 層でモデル化した場合。

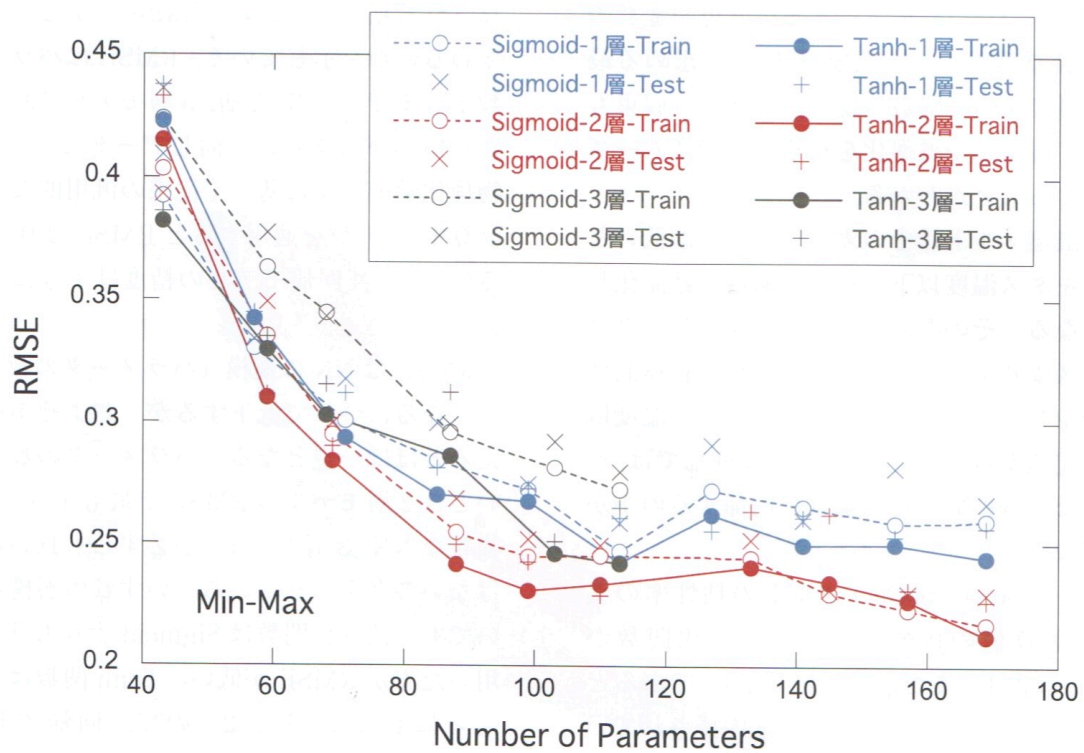


図6 NN モデルのパラメータ数と RMSE の関係。前処理は正規化 (min-max)。

全体の中では、1層目を9ユニット、2層目を5ユニットとした2層モデル(パラメーター数110)で活性化関数にTanhを用いたとき、比較的少ないパラメータで低いRMSE(0.23)の結果が得られた。このときの粘性率の実験値と計算値の比較をFig. 7に示す。

4. まとめ

ニューラルネットワーク(NN)を用いると、データに内在されている非線形的な規則性を人の知見を介在させることなく機械的に見出して定式化することができる。本稿では、粘性率の温度・組成依存性の計算例を紹介したが、予測をしようとする対象(目的変数)と説明変数が変わっても基本的な考え方は同じである。NNは構造が複雑になるとブラックボックスになりがちだが、1層構造の単純なものであれば、weightとbiasからモデルを解釈することもできる。NN回帰予測は重回帰分析とともに、汎用的なフィッティングツールのひとつとして活用することができそうである。

引用文献：

- 1) A. Tandia M.C. Onbasli, J.C. Mauro, Machine Learning for Glass Modeling, J.D. Musgraves, J. Hu L. Calvez(Eds.), Springer Handbook of Glass (2009).
- 2) H. Liu, Z. Fu, K. Yang, X. Xu, M. Bauchy, J. Non-Cryst. Solids X 4, 100036 (2019).
- 3) 井上博之, 牧島亮男, 日本金属学会報 31, 604-607 (1992)
- 4) 丸山勉, 鈴木恵一郎, NEW GLASS 30, 60-63

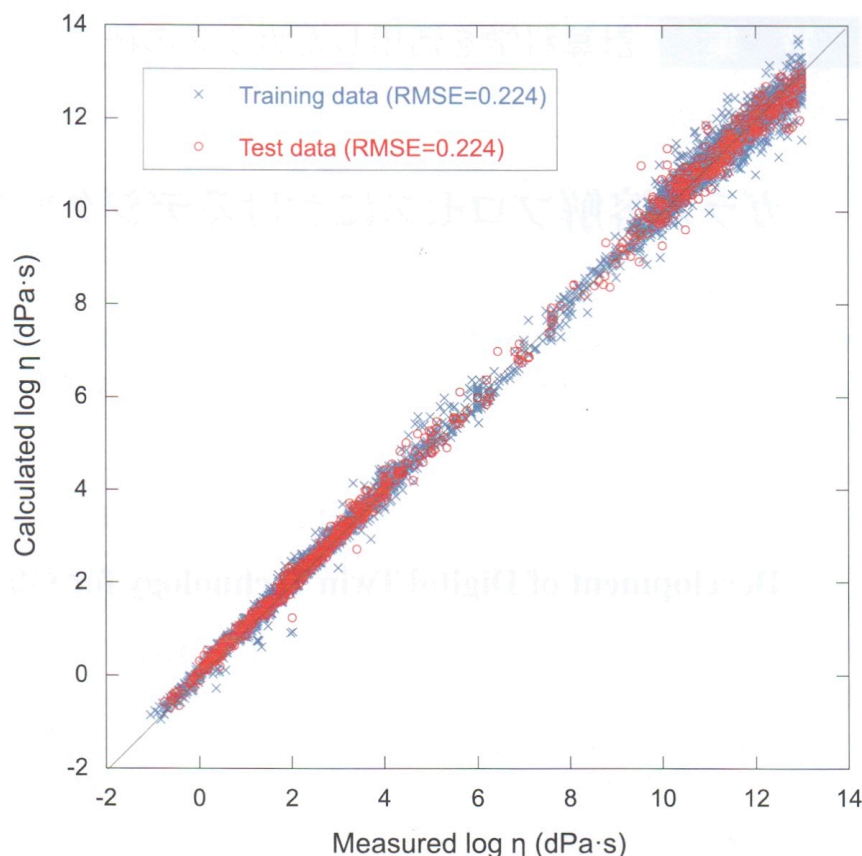


図7 少ないパラメータ数でRMSEの低い結果が得られたNNモデル(データ正規化, 9ユニット/5ユニットの2層モデル, Tanh関数)による粘性率の計算値と実験値の比較。

- (2015)
- 5) D.R. Cassar, A. Carvalho, E.D. Zanotto, Acta Materialia 159, 249-256 (2018).
- 6) C.J. Wilkinson, C. Triveliece, R. Hust, R.S. Welch, S.A. Feller, J.C. Mauro, Acta Materialia 222, 117432 (2022).
- 7) Krishnan N.M.A., Mangalathu S., Smedskjaer M.M., Tandia A., Burton H., and Bauchy M (2018) J. Non-Cryst. Solids 487, 37-45.
- 8) D.R. Cassar, Ceram. Inter. 49, B, 36013-36024 (2023).
- 9) A. Huang, Y. Huo, J. Yang, H. Gu, G. Li, minerals, 10, 257 (2020).
- 10) T. Sugawara, K. Matsuyama, X. Kou, submitted (2024).
- 11) A.N. Grundy, I.H. Jung, A.D. Pelton, S.A. Decterov, Int. J. Mat. Res., 99, 1195-1209 (2008).