

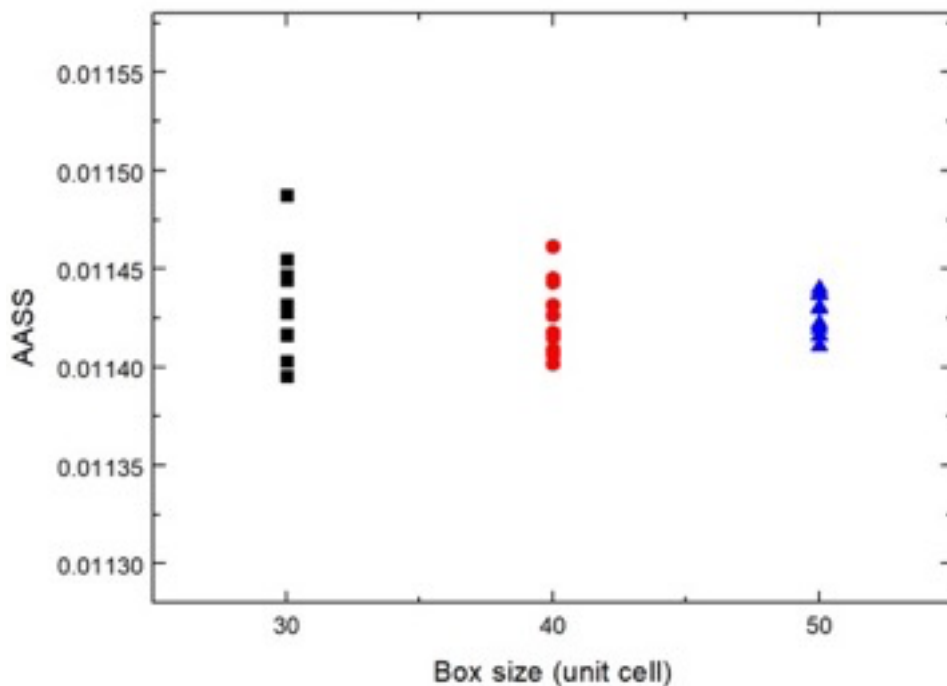
# ML 第四組期末專題報告

## 1. Introduction

晶格扭曲是高熵材料中很特別的效應，我們的期末專題報告主題是機器學習應用在高熵合金晶格扭曲的預測，我們選用 FeCrNi 三元合金；FeCrNi 三元合金的不同組成總共有 4851 種( $X+Y+Z = 100$  取正整數解)，希望能透過利用機器學習去預測所有不同組成的  $\delta$  和 Average atomic shear strain(AASS)，再將  $\delta$  和 AASS 的分佈差異去做比較，最後會把 AASS 拿出來做討論，延伸其可能的應用。

## 2. Raw data production(MD)

原始數據的部分，我們給機器的 Input 為 Fe 、Cr、 Ni 的組成比例，output 是每組成分對應的  $\delta$  和 AASS，其中， $\delta$  只要有濃度就可以透過公式(1)去計算；AASS 則是用分子動力學模擬去計算。生成原始數據前我們先做了 box size test 以及 random seed test，結果如圖一，目的就是希望消除原子排列不同以及模型大小不同而造成的影響，如圖一可見。



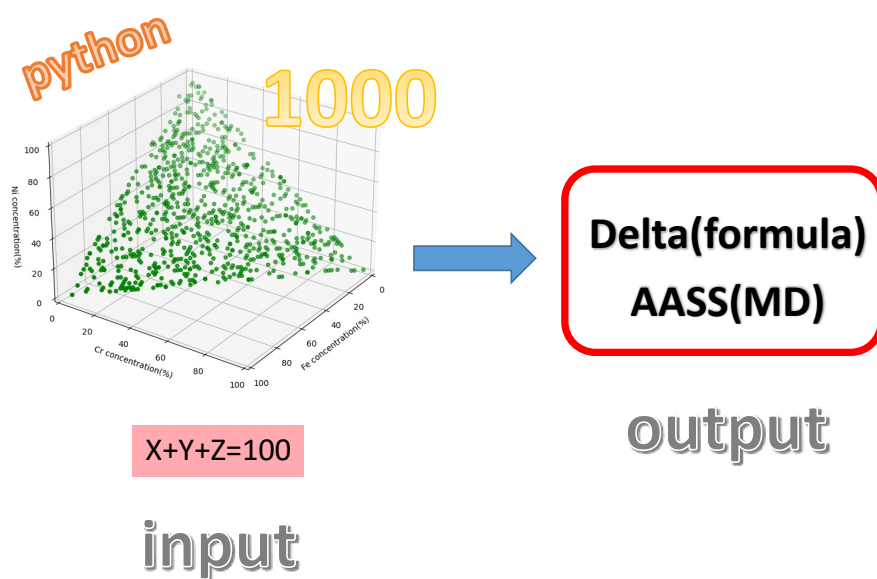
圖一、box size test and random seed test result in MD simulation

不同 size 的箱子各做十個不一樣的 random seed，當箱子的邊長包含 50 個 unit cell(共 500000 個原子)，算出來 AASS 結果會開始收斂。故我們選用 50X50X50 這個 model size，用 FeNiCr 等莫耳合金在 0 K 下用共軛梯度(cg)優化方式去優化模型，能量優化後原子會偏離完美晶格位置，定義 atomic shear strain 的方式用  $\eta_i^{Mises}$  [1]，其定義為”一個原子 i 受其截斷半徑內的其他原子影響而產生的相對位移“，它會考慮原子 i 跟其他原子的鍵長以及鍵角，透過式(2)即可算出每個原子的 atomic shear strain， $\eta_{xx}, \eta_{yy}, \eta_{zz}, \eta_{xy}, \eta_{xz}, \eta_{yz}$  分別代表原子在六個方向上的應變張量；我們在計算高熵合金的晶格扭曲都是看整體，故把每顆原子的  $\eta_i^{Mises}$  加總再除上總原子數如式(3)，即可算出合金的 AASS。

$$\eta_i^{Mises} = \sqrt{\eta_{yz}^2 + \eta_{xz}^2 + \eta_{xy}^2 + \frac{(\eta_{yy} - \eta_{zz})^2 + (\eta_{xx} - \eta_{zz})^2 + (\eta_{xx} - \eta_{yy})^2}{6}} \quad (2)$$

$$\eta_{ave} = \frac{\sum_{i=1}^{500000} \eta_i^{Mises}}{500000} \quad (3)$$

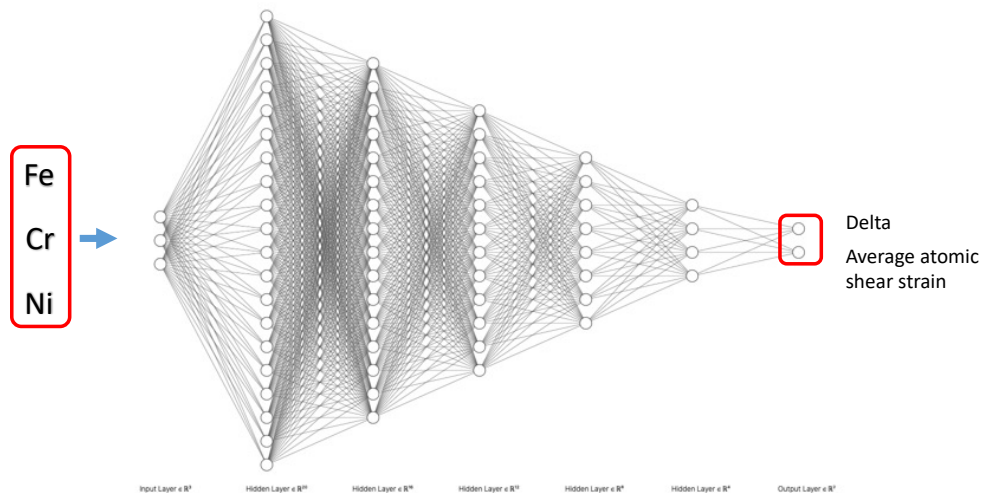
用亂數選取的方式，我們從三元合金 4851 種不同的組成成分中選出 1000 個成分，即為機器模型的 input，每個組成成分對應的 delta 和 AASS 就是 output，如圖二所示。



圖二、Input and output formation for machine learn model

### 3. ML model

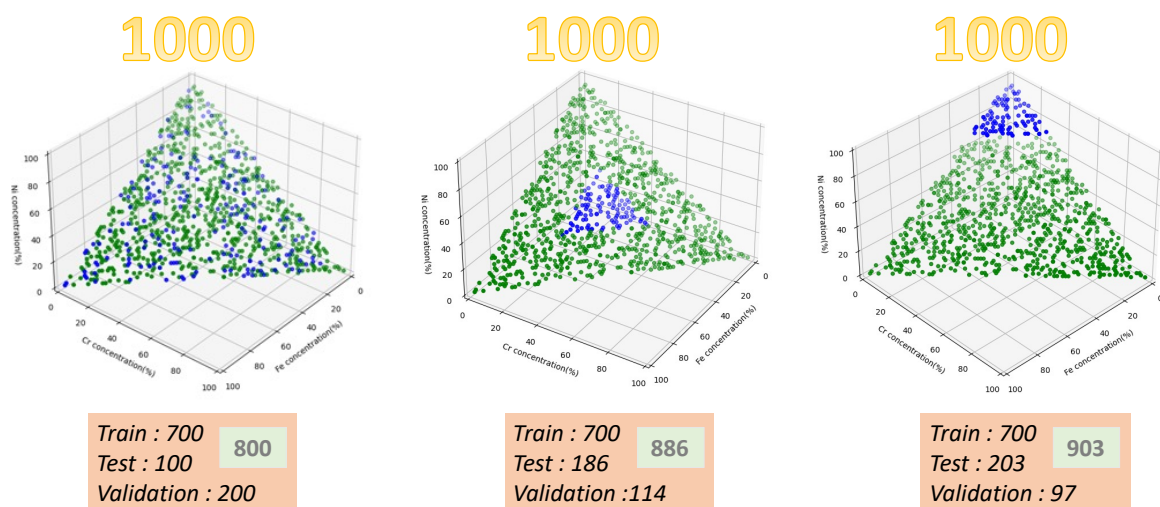
在機器學習的模型上，我們選用神經網路 ANN 模型，ANN 模型中隱藏層（hidden layers）跟各節點（nodes）設定，我們將在下面詳細介紹時列出，大致上模型建構是由多至少，遞減模式，模型建構如圖三所示。



圖三、神經網路 ANN 模型建構

輸入層（input）為鐵、鉻、鎳三種不同成份的比例，每一組數據總合為 1；輸出層是我們想預測的兩個數值，分別為是 **delta** 與 **AASS**。

為了比較不同資料分布所訓練出來的 ANN 模型預測準確度，我們進行三種訓練及驗證數據集分布不同的機器學習，三種資料庫為相同的 1000 筆資料，綠色資料點代表訓練數據資料，藍色資料點代表驗證數據資料，如下圖四分佈。



圖四、三種訓練及驗證數據集的分布

訓練數據集當中有分出小部分作為模型的測試數據集，上圖三種不同的訓練及驗證數據集分布資料庫，可以發現訓練及驗證數據集個數皆不相同，藉由三個不同資料庫的所訓練出來 ANN 模型做比較。

接著我們將著重介紹資料庫分布的選擇，首先，左邊圖為第一個訓練模型的資料庫，在訓練與驗證數據的選擇上，採用分散選取的分式，也就是說訓練與驗證數據沒有規範，分布後兩個資料庫來說相對均勻；中間圖為第二個訓練模型的資料庫，在訓練數據集的選擇上，是挖掉中間三角形數據，四周分佈數據做模型訓練數據集，而挖掉的中間三角形為驗證數據集；最後，右圖為第三個訓練模型的資料庫，不同於第二個模型訓練資料庫，是挖掉角落的三角形數據作為驗證數據集，其數據代表是鐵跟鉻小於 30%以及鎳大於等於 70%的資料點，其餘的皆為訓練數據集。

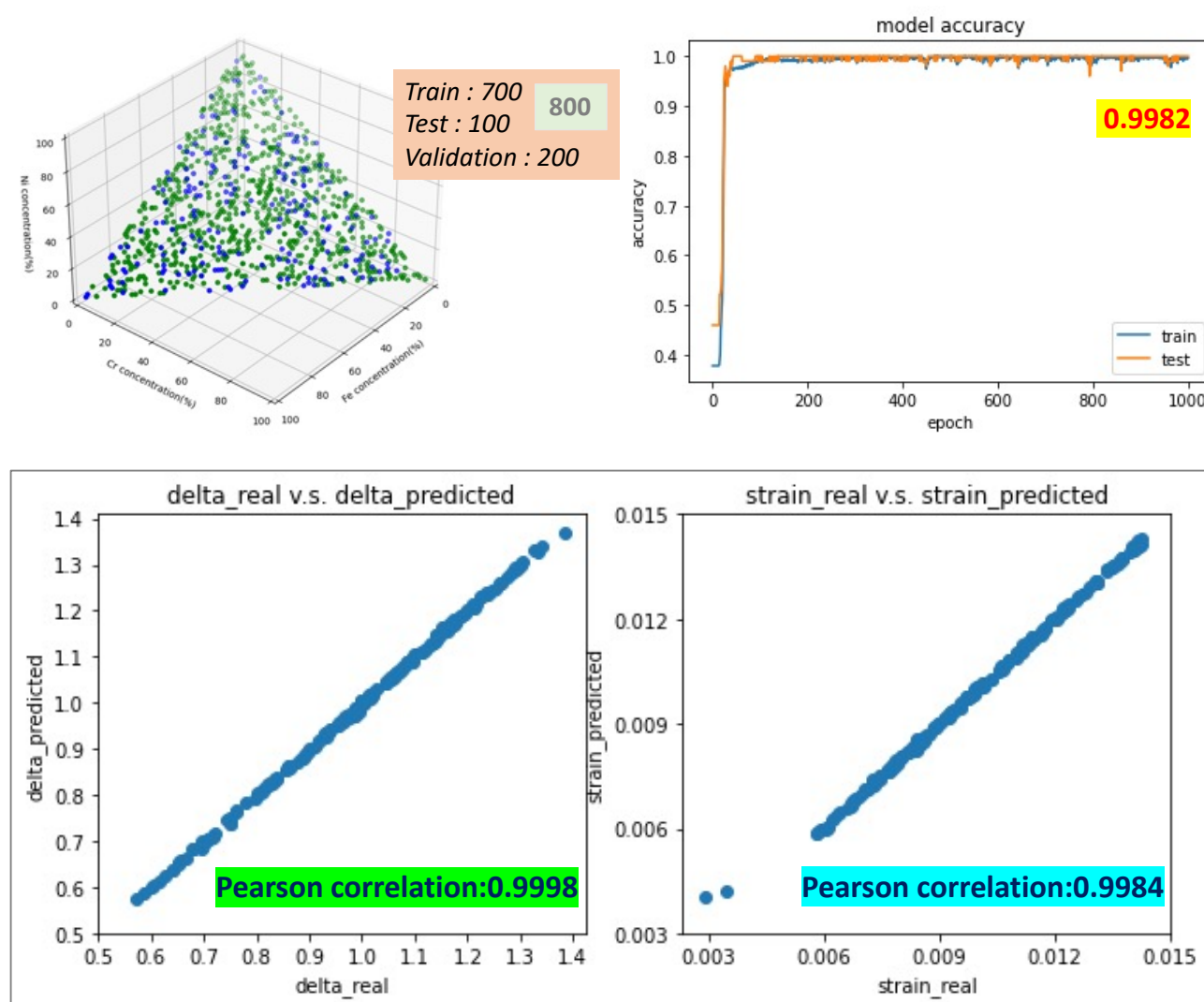
以下為三種不同資料庫 ANN 模型相關參數表格整理，各模型中的隱藏層數、各層節點數以及計算步數設定，皆為經過多次測試後，有最好的驗證準確率的參數。

parameters	Model 1	Model 2	Model 3
Hidden layers	6	7	9
Nodes	(128, 64, 64, 32, 16, 8)	(512, 256, 128, 64, 32, 16, 8)	(512, 256, 128, 64, 32, 16, 8, 4)
Epochs	800	500	2048
Learning rate	0.001		
Activation function	Relu		

## 4. Validation result

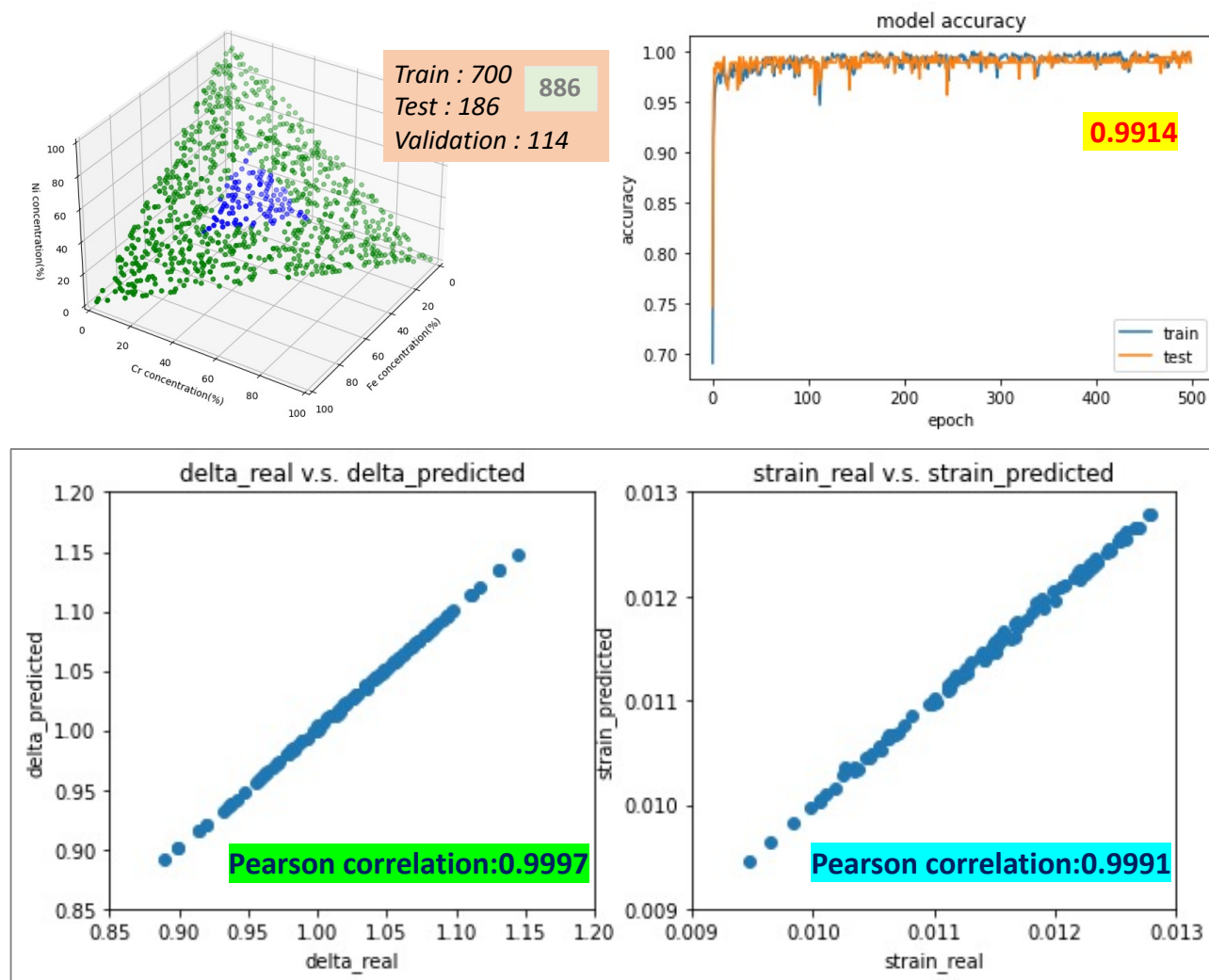
下面我們開始分別討論三種不同資料庫 ANN 模型訓練完後的驗證結果。下圖為第一個模型（驗證數據集較為分散）的驗證結果。

我們為了將驗證數據的模型預測值與目標值視覺化，我們將其分別放在縱軸跟橫軸做圖，越接近對角線上的數值點，代表預測的越準。這張圖可以看出我們取用隨機分佈的訓練集，訓練出的模型是好的，**delta** 與平均原子剪應變（AASS）在模型一的驗證結果上，表現十分不錯，準確率高達到 99.8%。



圖五、第一個模型驗證結果

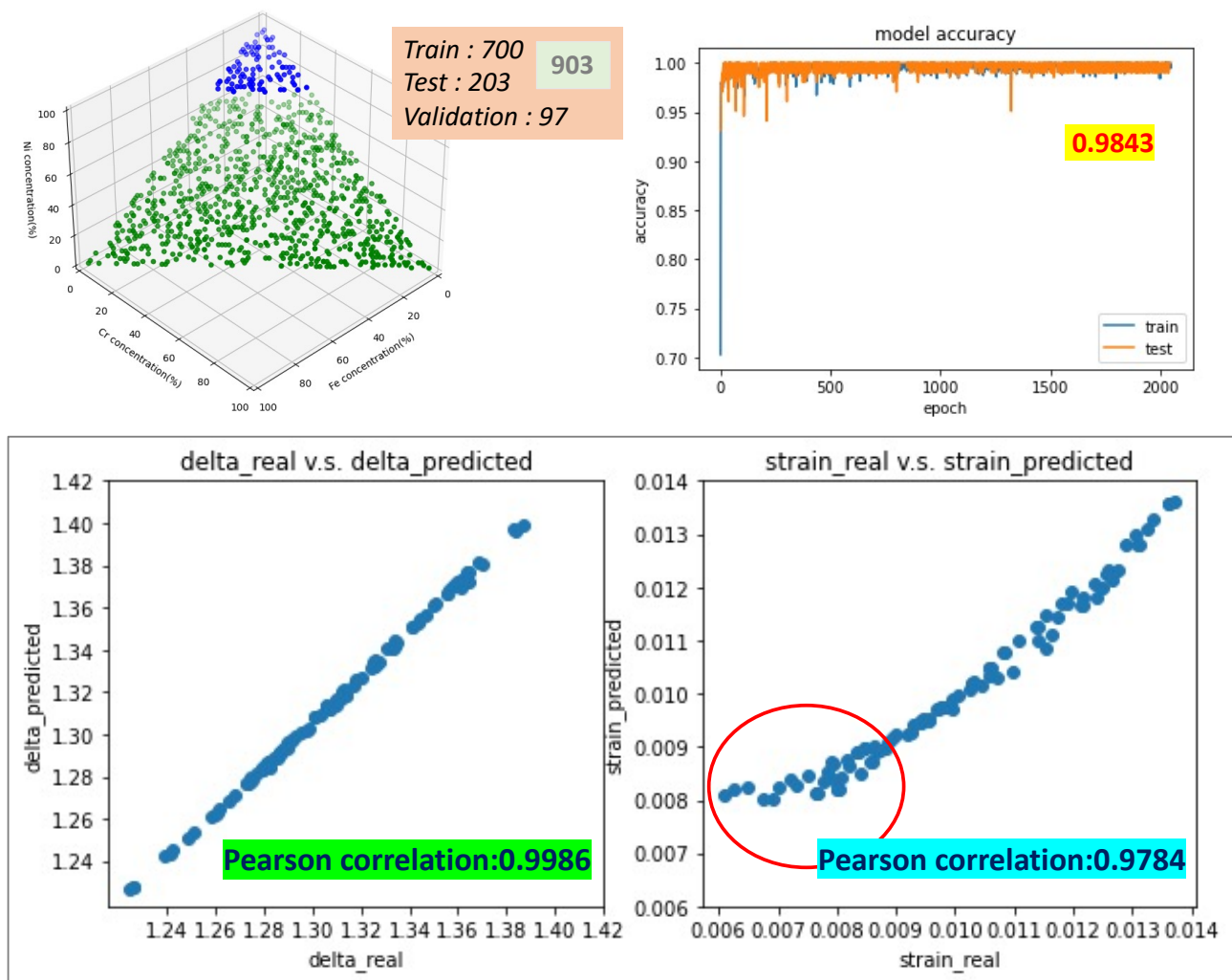
接著是第二個模型（挖掉中間作為驗證數據集）的驗證結果討論，一樣畫出如模型一的對比圖，做模型預測值與目標值對應分佈圖，如圖六所示。可以看出，分佈在 45 度的對角線上，代表預測相當不錯，證實訓練數據集雖然不包括中間數據，只訓練其四周數據，但其預測準確率還可以達 99.1%。



圖六、第二個模型驗證結果

再來是第三個模型（角落的數據作為驗證數據集）的驗證結果討論，同樣畫出如模型一、二的預測結果圖，我們發現模型三預測結果明顯不如預期好。在模型三參數測試上，隱藏層要設定到 8 層才可以使準確率達到 98%，若再往小調層數無法使準確率提升，由下圖可以看出 delta 預測還不錯但 AASS 的左下角預測結果偏差明顯。

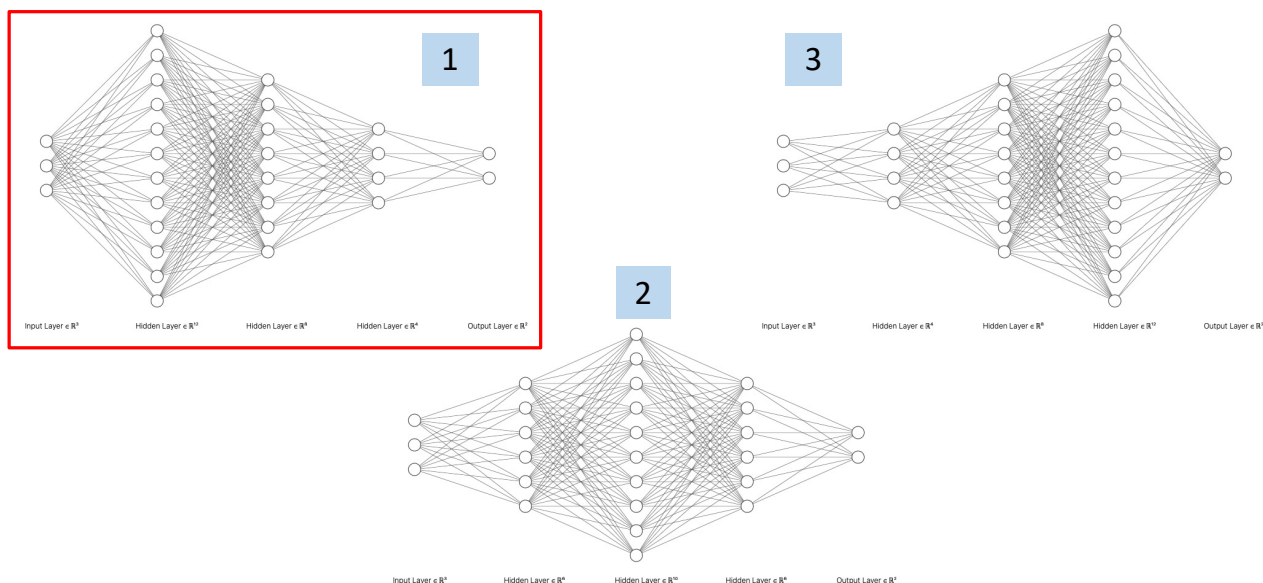




圖七、第三個模型驗證結果

## 5. Solve

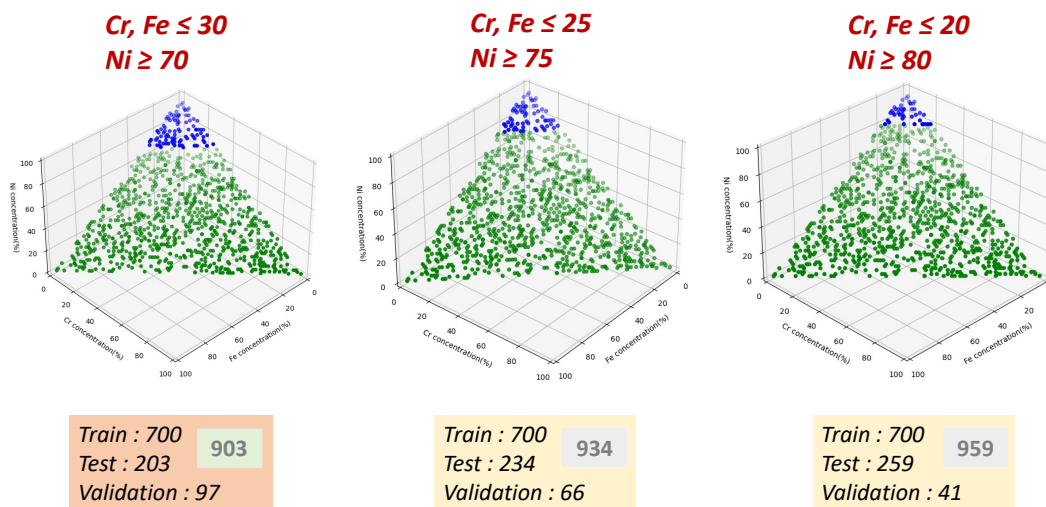
由於模型三的預測結果仍需改進，我們嘗試一些方法改進預測準確率。第一種方法為改變 ANN 模型建構形狀，之前是各層節點數由多到少遞減模式建構（1），這裡我們嘗試另外兩種建構形狀來比較驗證結果，一種是各層節點數由少到多再到少，先遞增後遞減方式，形成一個菱形建構（2）；另一種是與原先模型建構相反，各層節點數由少到多遞增模式建構（3），如圖八所示。



圖八、嘗試三種不同 ANN 模型的建構形狀

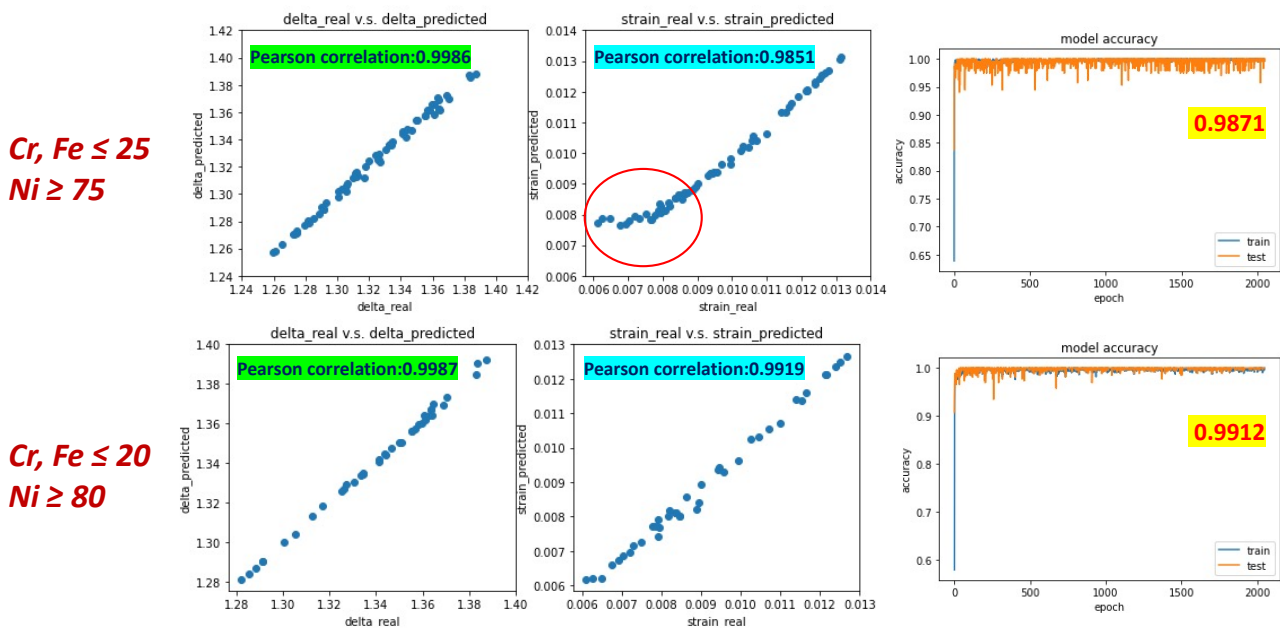
這三種不同神經網路模型形狀、建構都有做過很多不同參數模型訓練與驗證，最好的仍是最初始選擇的模型建構（由多到少遞減模式），所以在這裡推測模型三的問題應該與模型構型沒太大的相關性。

所以第二種解決方法是把我們驗證數據集縮小，推測因為去掉角落太多數據會嚴重影響驗證結果。原本的模型三去掉角落作為驗證數據集的範圍是鐵跟鉻小於 30% 的資料點，我們嘗試把該面積縮小到分別為 25% 以及 20% 去做 ANN 模型訓練與驗證。其縮小範圍的資料點分佈如下圖。【綠色代表訓練數據，藍色代表驗證數據】



圖九、第三個模型驗證數據集縮小的分佈與個數





圖十、兩種縮小角落驗證數據集的模型驗證結果

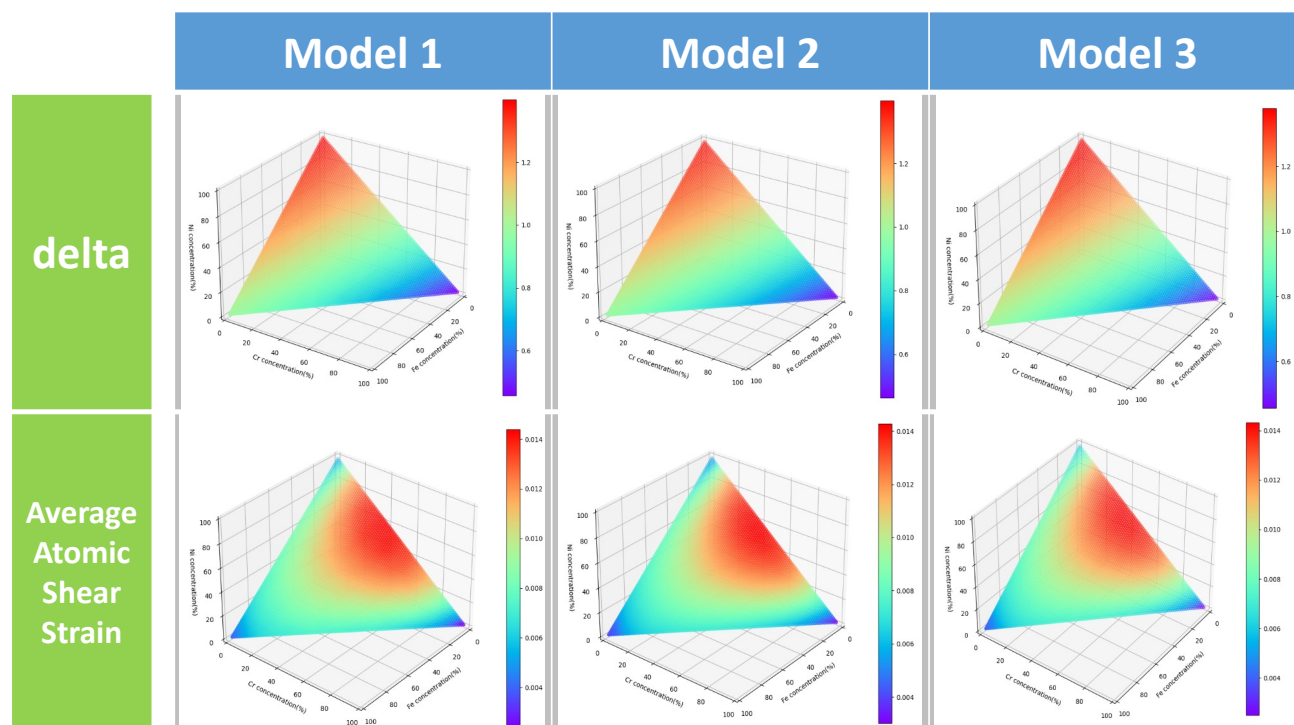
與先前模型三（鐵跟鉻小於 30%）相比，可以發現縮小角落驗證數據集可以逐漸改善原先 AASS 的左下角預測結果偏差問題，而且在  $\delta$  預測結果上不影響，故我們選擇三種角落為驗證數據中最好的一鐵跟鉻小於 20%，取代原先的模型三，與模型一、二進行後面 4851 種組合預測。

## 6. Result and discussion

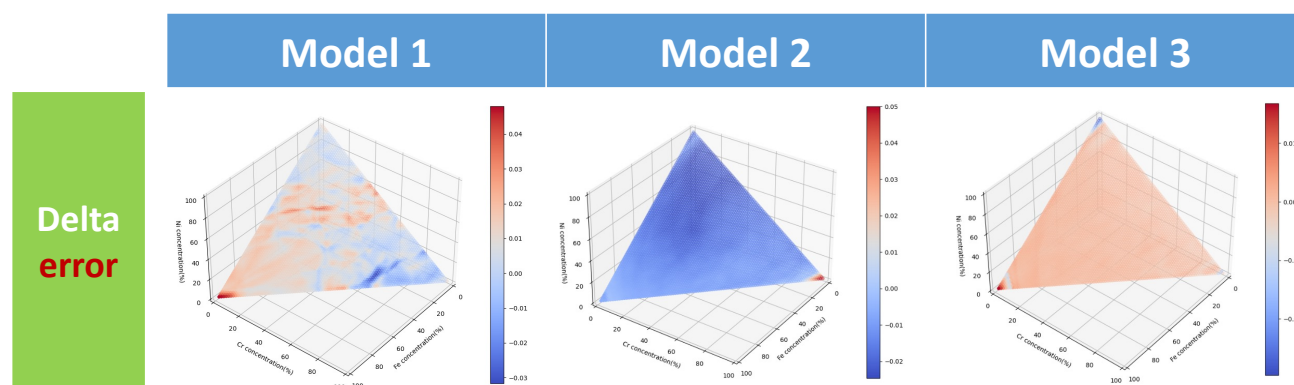
我們將 FeCrNi 的 4851 種不同組成餵給三個不同的機器模型，預測所有的  $\delta$  以及 AASS，並將  $\delta$  和 AASS 分別當成第四軸用 cmap 畫在三維成分圖上，由圖十一可以看出成功訓練出的三個機器模型所預測出來的結果差不多，其中  $\delta$  和 AASS 的分佈差異很大。

Delta 首先由 Zhang 等人[1]在 2008 年的時候提出，它用原子半徑去衡量合金的晶格扭曲和相穩定，只考慮原子半徑而不考慮化學勢的想法明顯有缺陷，從機器學習預測的結果可以看出晶格扭曲最嚴重的位置是在 Fe1Cr1Ni98 這個成分，但隨著母元素 Ni 比例的下降，增加更多的 Fe 或是 Cr， $\delta$  反而是下降，比例更高的其他元素加入反而使晶格扭曲的嚴重程度下降這件事不合乎常理；故 Guo 等人[2]在 2011 年提出  $\delta$  這個參數的不合理之處並多考慮元素的電負度和價電子分布，也就是電子性質並且得到不一樣的結果，我們的分子動力學模擬所用的勢能為 eam，它有考慮電子雲的分布，其理念較接近 Guo 等人的想法，由結果可以看出

三個角地方也就是任一種元素佔大部分 FeCrNi 三元和金晶格扭曲較輕微，符合常理。Dai 等人[4]在去年利用深度學習擬和出高熵二硼化物( $\text{Ti}_{0.2}\text{Zr}_{0.2}\text{Hf}_{0.2}\text{Nb}_{0.2}\text{Ta}_{0.2}$ )的勢能，並利用此勢能加上分子動力學理論去計算此材料的多種物理性質，其中他們衡量晶格扭曲的參數就是用 AASS 而不是用  $\delta$ 。



圖十一、Comparison of predicted  $\delta$  and predicted AASS in three different machine learning models

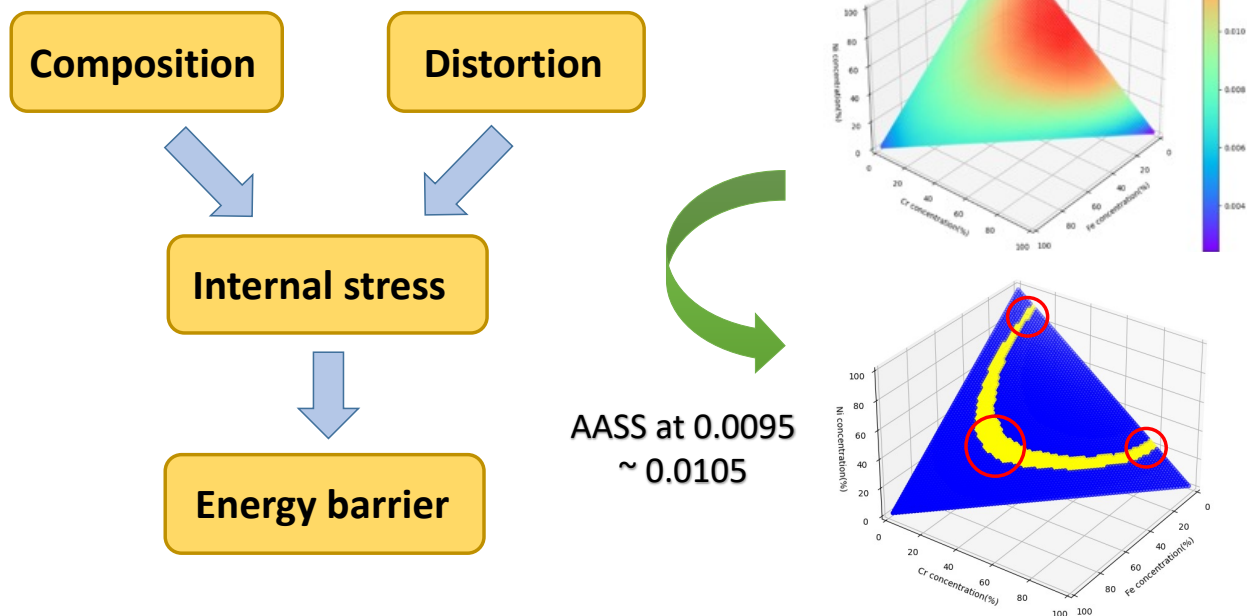


圖十二、Delta error result plot on three dimension FeCrNi ternary alloy composition diagram

我們也將預測出來的  $\delta$  和實際用公式算出的  $\delta$  做比較，即將實際值減去預測值，得到誤差，再用 **cmap** 畫在三維成分圖上，由圖十二結果可以看出，第一個機器模型預測結果以鐵為母相的三元合金的  $\delta$  會比實際值低，第二個機器模型的結果幾乎都是藍色代表預測的結果比實際值稍微高一些，第三個機器模型所算出的結果則比實際值低，故顏色偏紅色。我們沒有對 **AASS** 這個參數做三個機器模型預測誤差的比較，因為實際數據 **AASS** 就只有 1000 筆，而這 1000 筆數據是拿來訓練機器的原始數據，即 **output**。將原本訓練集的 Fe、Cr、Ni 組成拿餵給機器，再將得出來的 **strain** 跟原始 1000 筆的 **strain** 做比較的結果幾乎就是沒有差別。

最後我們將 **AASS** 做個別討論，如圖十三所見，我們把 **AASS** 在 0.0095 到 0.0105 這個區間的組成分布用黃色標示出來，當晶格扭曲在此範圍時，差排的橫滑移會有最低的活化能，其活化能障的計算主要受差排周圍內部應力的影響，而內應力則是受晶格扭曲和原子組成總類的綜合因素影響。圖中三個紅圈各自的組成成分差異很大，在各紅圈內任意選取一種成分來進行活化能的計算，也許可以探討活化能的大小或發散程度主要受何種原子的影響較多。

### Application on dislocation energy barrier calculation ...



圖十三、AASS result from machine learning applied on the dislocation cross slip barrier calculation

## 7. Reference

- [1] Shimizu, F., Ogata, S., & Li, J. (2007). Theory of Shear Banding in Metallic Glasses and Molecular Dynamics Calculations. *MATERIALS TRANSACTIONS*, 48(11), 2923–2927.  
doi:10.2320/matertrans.mj200769
- [2] Zhang, Y., Zhou, Y. J., Lin, J. P., Chen, G. L., & Liaw, P. K. (2008). Solid-Solution Phase Formation Rules for Multi-component Alloys. *Advanced Engineering Materials*, 10(6), 534–538.  
doi:10.1002/adem.200700240
- [3] GUO, S., & LIU, C. T. (2011). Phase stability in high entropy alloys: Formation of solid-solution phase or amorphous phase. *Progress in Natural Science: Materials International*, 21(6), 433–446.  
doi:10.1016/s1002-0071(12)60080-x
- [4] Dai, F.-Z., Sun, Y., Wen, B., Xiang, H., & Zhou, Y. (2020). Temperature Dependent Thermal and Elastic Properties of High Entropy (Ti<sub>0.2</sub>Zr<sub>0.2</sub>Hf<sub>0.2</sub>Nb<sub>0.2</sub>Ta<sub>0.2</sub>)B<sub>2</sub>: Molecular Dynamics Simulation by Deep Learning Potential. *Journal of Materials Science & Technology*.