

論文の内容の要旨

論文題目 Atomistic simulations of microstructural evolution in crystalline materials and the extension of their timescale based on state-to-state dynamics
 (結晶性材料中微細組織発達の原子論的シミュレーションと State-to-stateダイナミクスに基づくその時間スケールの拡張)

氏 名 早川 頌

1. 背景

プラントや船舶等の巨大構造物の躯体である構造材料の健全性を確保することは必須であるが、それを行うためには従来の保全学に基づいた手法のみでは不十分であると言え、計算科学に基づいたシミュレーションによるアプローチが必要となる。さらにメッシュサイズ以下の微細組織挙動が材料の機械的特性を決定付けることを考慮すると、多数の空間・時間スケールに跨るマルチスケールモデリング技術の構築が重要となる。原子スケールの挙動を精確に再現する手法として分子動力学(MD)法が広く用いられてきたが、MD法では時間刻み幅を 10^{-15} 秒オーダーに設定する必要があり、多数回の拡散を伴うような現象は十分に再現できない。一方、State-to-stateダイナミクスに基づく手法として広く知られるKinetic Monte Carlo (kMC)法はMD時間スケールより遥かに長い時間スケールの現象を扱うことができるが、発生し得る現象の候補を事前にリストアップする必要があるため、我々の想像を超えた複雑な現象を取り扱うことができない。すなわち従来シミュレーション技術において、原子スケールの精度とメゾ時間スケール性を両立したシミュレーションを行うことは難しかった。一方、材料中微細組織発達が多数回の拡散を伴うようなメゾ時間スケール現象に支配されることを考慮すると、原子スケールの精度を保持しつつメゾ時間スケールに到達できる手法の構築・向上は極めて重要である。

以上を踏まえ本論文では、原子レベルの精度を有するメゾ時間スケールシミュレーション手法の高度化・開発を行う。これにより従来の材料挙動マルチスケールモデリング技術において未発達であったマルチ時間スケール部分を強化し、構造材料健全性担保のための計算科学技術の発展に資することを目的とする。

2. Self-evolving atomistic kinetic Monte Carlo法の高度化

KMC法の持つメゾ時間スケール性を保持しつつ複雑な原子的挙動も扱える手法として Self-evolving atomistic kinetic Monte Carlo (SEAKMC) 法[1]が近年注目を集めており、マルチ時間スケールモデリングを行う上でその発展が期待される有望な手法であると言える。SEAKMC法においては各ステップでその時の系状態に基づいて発生現象候補探索を行

いイベントリストを作成するため、事前に予測が不可能な複雑な現象も再現可能となる。さらにActive volumeを着目する結晶欠陥の周囲に設定して発生現象探索中の原子の自由度をActive volume内のみに制限することにより、比較的大きな系の取り扱いも可能にしている。本論文ではSEAKMC法の高度化のため、特に全体の計算コストのボトルネックとなるイベントリスト構築フローに焦点を当て、その高速化スキームを提案する。

2.1. 高速化スキーム(i): Active volumeの漸次的なサイズ変化

本スキームでは最初に敢えて比較的小さいActive volumeを設定する。この段階では精度の高い過程探索ができないが、かなり少ない計算コストで探索が終了する。その後、得られた過程に対応する原子配置を初期配置として用いてより大きいActive volumeによる精度の高い過程探索を行う。高速化スキーム(i)を適用したSEAKMC法を用いてFeバルク中の空孔と自己格子間原子の拡散挙動を計算した結果、約6–8倍の高速化が達成され、さらに得られた各欠陥拡散の活性化エネルギーはスキーム適用前とほぼ同等であった。

2.2. 高速化スキーム(ii): 過去ステップで探索した過程のリサイクル

本スキームでは、各ステップでのActive volume内の原子配置と探索された過程をストックしておき、その後のステップで見られたActive volume内原子配置がストックされたものと近ければ、それに対応する過程の原子配置を初期配置として過程探索を行う。高速化スキーム(ii)を適用したSEAKMC法を用いてFeバルク中の空孔と自己格子間原子の拡散挙動を計算した結果、最大で約100倍の高速化が達成され、さらに得られた各欠陥拡散の活性化エネルギーはスキーム適用前とほぼ同等であった。

2.3. 原子炉構造材料中に形成した結晶欠陥クラスタへの高度化SEAKMC法の適用

原子炉構造材料において観察される照射誘起欠陥の形成過程の解明のために従来多くのMD計算が行われてきた。自己格子間原子クラスタの安定形態として積層欠陥ループと完全転位ループが知られるが、MD法を用いた既往研究の中には、エネルギー的に不安定な不規則形状の自己格子間原子クラスタが形成されるという結果が報告されている[2]。これらはMD法の時間スケールの問題から十分な時間の計算がなされなかったことが原因と考えられる。照射下微細組織発達を定量化するため、これら不安定形状クラスタがMD時間スケールを超えて最終的に変換する安定形態の解析が求められる。

以上を踏まえ、高速化スキーム適用後のSEAKMC法を用いて、MD法を用いた既往研究[2]において観察された不安定形状の自己格子間原子クラスタの安定形態解析を行う。以下に結果の一部を示す。図1には不安定形状クラスタが積層欠陥ループに変換し、その後完全転位ループに変換する様子を示す。時刻~847.6 psにおいて、複雑な拡散過程を通してクラスタが積層欠陥ループに変換する様子が観察された。これはMD計算で扱える時間スケールのほぼ境界に対応する。さらに、時刻~12.6 psにおいて積層欠陥ループが完全転位ループへ

変換した。この時間は典型的なMD時間スケールのおよそ100倍の時間スケールに相当する。これら結果はすなわち、高度化SEAKMC法の適用によって、原子レベルの挙動の複雑さを保持しつつMD時間スケールを超えた欠陥挙動の再現ができていていることを示す。

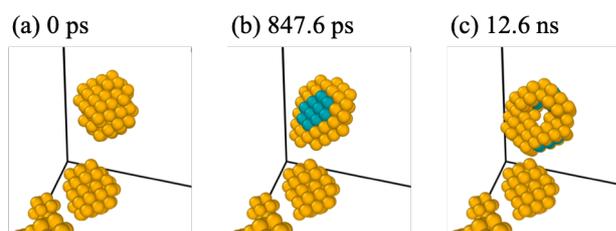


図1 不安定形状クラスタが積層欠陥ループを経て完全転位ループに変換する様子

3. Energy minimization with basins-constructed space法の開発

2.3節で扱ったクラスタとは別のクラスタに対してSEAKMC法を適用した結果、安定形態への変換プロセスに直接関係のない些細な拡散現象（Flicker events）の再現に膨大な計算時間が費やされてしまい、安定形態への変換が観察されなかったクラスタが多く見られた。すなわち、これらクラスタの安定状態を十分に再現するにはFlicker eventsの影響を低減した手法の適用が必要とされる。微細組織挙動のダイナミクスは、系のポテンシャルエネルギー曲面（PES）を考えた場合、曲面上の各極小点（Basin）を辿りながらエネルギーのより低い状態を探し求めて曲面上を彷徨うことにも例えることができる。この時、微細組織の（準）安定状態の再現は、「PES上のBasinが構成する位相空間上の関数を対象とした最適化問題」に帰着する。以上を踏まえ本研究では最適化アルゴリズムの適用により微細組織の安定状態を原子スケールの精度を保持して再現する手法（Energy minimization with basins-constructed space, EM/BCS）の開発を行う。

3.1. EM/BCS法の概要

本研究では最適化のアルゴリズムとしてTemperature parallel simulated annealing（TPSA）法[3]を用いる。TPSA法は、大域的最適化問題へのアルゴリズムとして広く知られるSimulated annealing（SA）法[3]の一種であり、並列計算を導入することによりSA法の問題点である計算コストの高さと温度スケジューリングの難しさを克服した手法である。本研究におけるEM/BCS法では、PES上のBasinで構成される位相空間で定義される関数を対象としてTPSA法によるエネルギー最小化を行う。またPES上に存在するBasinの探索に際しては、SEAKMC法と同様にActive volumeを用いて系の自由度を削減した上で行う。これにより、実際に発生し得るダイナミクスに基づいてBasin間を遷移することができ、効率的且つ正確な微細組織挙動の評価が可能となる。

3.2. 原子炉構造材料中に形成した結晶欠陥クラスタへの高度化EM/BCS法の適用

2.3節と同様にして、開発したEM/BCS法を用いてMD計算[2]により得られた不安定形状の自己格子間原子クラスタの安定形態解析を行う。以下に結果の一部を示す。図2にはクラ

スタ変換の様子の一例を示し、図3にはその際の系のエネルギー変化を示す。図2が示すような形態変化はおよそ60ステップ目で発生し、図3よりそれに応じて系のエネルギーが急激に現象していることが分かる。一方同じクラスタに対してSEAKMC法を適用したところ、Flicker eventsの影響により安定形態への変化は観察されなかった。これら結果はすなわち、EM/BCS法がFlicker eventsの影響を低減した上でエネルギーの低い系状態を適切に探索できていることを意味する。

4. 総括

MD法と同等の精度を持ちつつメゾ時間スケールの現象を再現できる手法であるSEAKMC法の高度化を行い、元々の手法の精度を保持しつつ数倍～数100倍の高速化を達成した。さらに高度化SEAKMC法を原子炉構造材料中に形成

した結晶欠陥クラスタに適用した結果、MD時間スケール内では不安定形状だったクラスタがエネルギー的に安定な形態に変換する様子が見られた。また、最適化アルゴリズムに基づいた微細組織安定状態の再現手法（EM/BCS法）を開発した。開発手法を原子炉構造材料中の結晶欠陥クラスタに適用した結果、MD時間スケール内では不安定形状だったクラスタが安定形態に変換する様子が見られ、さらにFlicker eventsの影響の軽減により、SEAKMC法適用時には安定形態に変換しなかった複数のクラスタについても変換過程が見られた。

従来、材料中微細組織挙動の再現に際してはMD法やkMC法が単独で用いられることが多く、特に原子レベルの精度を保持したままの時間スケールの拡張に関しては十分な検討がなされてこなかった。本研究はそのような状況を打破するものであり、高度化・開発した手法は、原子レベルの精度、マルチ時間スケール性、計算コストの低さを併せ持つ画期的・独創的な手法である。すなわち本研究成果は、従来シミュレーション手法が抱えていたマルチ時間スケール技術部分の弱さを大幅に強化するものであり、構造材料健全性担保のための計算科学技術の発展に大きく資するものである。

参考文献

- [1] H. Xu et al., Phys. Rev. B 84 (2011) 132103.
- [2] S. Hayakawa et al., J. Mater. Sci. 54 (2019) 11096.
- [3] K. Konishi et al., IPSJ 36 (1995) 797.

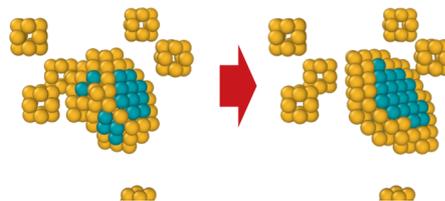


図2 不安定形状クラスタが積層欠陥ループに変換する様子

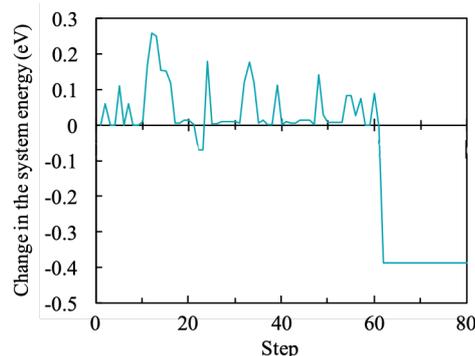


図3 図2の変換プロセスにおける系のエネルギー変化