

**原子力システム研究開発事業 ー基礎研究開発分野ー**  
**若手対象型 事後評価総合所見公表用フォーマット**

<p>研究開発課題名（研究機関名）          時間・空間スケラビリティを備えた統合原子シミュレーションの研究（国立大学法人京都大学）</p> <p>研究開発担当者          機関名：国立大学法人京都大学                      総括代表者：青木学聡</p> <p>研究期間及び予算額          平成17年度～平成19年度（3年計画） 72,033 千円</p>	
項 目	要 約
<p>1. 当初の目的・目標</p>	<p>[研究開発目標]</p> <p>高出力、高効率を目指して研究開発が進められている次世代原子炉を構成する材料は、温度、圧力、放射線量において現在よりさらに過酷な環境で用いられることが想定される。したがってこれらの複合的要因からなる材料脆化のメカニズムの解明は、原子炉の寿命を延ばし安全性を高める上で極めて重要な課題である。本研究は、多元素材料への高密度放射線照射による欠陥形成と緩和過程のような、従来の手法ではシミュレーションが困難であった現象を解析するために、分子動力学法の枠組みを保ったまま、原子の動きをサブマイクロ秒まで直接追跡するシミュレーション技術、またサブマイクロメートル以上の構造を持つ材料に適用可能な放射線欠陥生成のシミュレーション技術の開発を行う。一方、これらのシミュレーション結果を検証するために、材料内における原子配置を非破壊で高精度に測定する手法を開発し、本シミュレーションより得られる材料内における原子座標データや欠陥構造を体系的に整理し、種々の測定、シミュレーション手法との連携による多面的な解析を可能とするためのデータベース技術の開発もあわせて実施する。本研究により開発した原子スケールにおける大規模シミュレーション技術と高精度材料測定技術との連携により、放射線照射による欠陥生成と緩和過程の解析を行うことで、次世代原子炉材料の設計、評価技術の確立に資することを目的とする。</p> <p>[全体計画]</p> <p>上記の目標を達成するために「統合シミュレーション技術の研究」、および「シミュレーション結果の検証と公開」の研究開発項目を立て、それぞれ以下の計画に従って研究開発を進めた。</p> <p>(1) 統合シミュレーション技術の研究</p> <p>①放射線損傷形成プログラムの開発</p> <p>衝突現象に固有である非平衡状態を考慮した最適化、複数の原子種より構成される複合材料系の多様なポテンシャルモデルの記述に対応させることにより、サブマイクロメートルサイズの複合材料系におけるカスケード衝突過程を効率よく解析するための分子動力学シミュレーション手法を開発する。</p>

	<p>②材料損傷緩和プログラムの開発</p> <p>分子動力学シミュレーションにおいて、加熱により原子の擾乱を増やし、緩和過程の探査を加速する Temperature accelerated dynamics 法、また初期座標をランダムに揺動させた状態を多数作り出し、それらを並列に計算することで時間の並列度を上げる parallel replica 法の併用により、サブマイクロ秒スケールにわたり時間発展の追跡が可能な放射線損傷緩和シミュレーションを開発する。</p> <p>③統合シミュレーションシステムの開発と放射線損傷形成過程の解析</p> <p>材料損傷緩和シミュレーションと放射線損傷形成シミュレーションの連携による、巨大原子座標系に対しスケラブルに並列化可能な統合シミュレーションシステムを開発する。この統合シミュレーションシステムを用いて、カスケードの生成・緩和の繰り返しのシミュレーションを実施し、放射線照射下における材料中の欠陥構造、原子移動過程の解析を行う。</p> <p>(2) シミュレーション結果の検証と公開</p> <p>①放射線損傷構造解析手法の研究</p> <p>上記シミュレーションによる解析結果を検証するために実験との比較対照を行う。ナノスケールの層構造を持った多層膜材料中の原子位置を高分解能ラザフォード後方散乱分光測定 (HR-RBS) 法により測定し、固体材料に対する放射線照射効果を解析する手法を検討する。</p> <p>②損傷構造データベースの作成</p> <p>統合シミュレーションより直接生成される特定時間における原子座標データに加え、時間、温度などの単独パラメータ、更に原子配置の空間分布やエネルギー揺らぎ分布等、原子座標データより二次的に得られる付帯データをネットワークを通して取得、可視化するために必要なデータセットの構造化、データ通信方式、グラフデータを表示、操作するための手法を開発し、データベースシステムを構築する。</p> <p>(3)まとめと評価</p> <p>最終年度において事業全体を通してのまとめと評価を実施する。</p>
<p>2. 研究成果</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・当初予定の成果</li> <li>・特筆すべき成果</li> <li>・副次的な成果</li> <li>・論文、特許等</li> </ul>	<p>【事業項目1】統合シミュレーション技術の研究</p> <p>①放射線損傷形成プログラムの開発</p> <p>多様な材料系の原子間相互作用ポテンシャルを組み込むための自動微分ライブラリや、系内において非平衡状態にある原子間相互作用についてのみ高精度で計算を行う手法を取り入れることで、多元系材料に対する放射線損傷形成過程を効率的に解析するための分子動力学シミュレーションプログラムを開発した。また、シミュレーションプログラムを多数の計算機上において同時に実行することで、原子衝突の前後における原子配置の統計情報を取得し解析する手法を提示した。この手法を放射線照射損傷形成過程に適用することにより、格子空乏や格子間原子周辺の原子配置とこれに伴う原子ポテンシャル歪み、また照射に伴うア</p>

モルファス領域の形成など、従来利用されてきた二体衝突モデルに基づくシミュレーション手法よりも詳細な、放射線損傷形成過程を明らかにした。

#### ②材料損傷緩和プログラムの開発

高温条件下の分子動力学シミュレーションの並列実行による状態遷移の探査、及び Nudged elastic band 法によるポテンシャル障壁高さの評価プログラム等から構成される、Temperature accelerated dynamics (TAD) 法と Parallel replica 法を併用した放射線損傷緩和シミュレーションプログラムを開発した。本損傷緩和シミュレーションプログラムを用いて、金属材料内におけるカスケード衝突損傷の緩和過程の解析を行い、実施したシミュレーション時間に対し、100 倍以上の時間加速に相当する事象の欠陥構造変化を個々の原子の種類、位置を特定しつつ追跡した。このように、原子力材料中におけるスウェリング等、マイクロ秒以上の時間スケールにおける格子間原子、格子空乏の移動と融合の解析に本手法が適用できることを示した。

#### ③統合シミュレーションの開発と放射線材料損傷の解析

前項の放射線損傷形成プログラム、材料損傷緩和プログラムを拡張し、並列計算機上において 100 万原子以上の巨大原子系を扱うことが可能な並列分子動力学シミュレーションプログラムを作成した。これらを用いて放射線照射により生じる局所的な損傷形成、緩和過程を並列に実行する統合シミュレーションシステムを構築した。

この統合シミュレーションシステムにより、カスケードの生成・緩和の繰り返しのシミュレーションを実施した。3keV に加速した Ar 原子を C-Ni-C の多層膜構造に 300 回、 $1.5 \times 10^{14}/\text{cm}^2$  相当衝突させた結果、Ar の注入飛程領域における欠陥の蓄積や、ミキシングによる Ni 中間層の広がりが観察された。Ni 中間層の広がりについては事業項目 (2) で述べる実験的手法による放射線照射効果測定で得られた結果と大きく変わらないことが確認された。一方、放射線照射により欠陥が蓄積した多層膜構造に対し、加熱・冷却の熱処理を施すシミュレーションを実施し、欠陥の蓄積度合いや膜中組成による欠陥構造の回復過程の違いを調べ、それらの特性を明らかにした。

これらのシミュレーションプログラムの開発、検証により、原子力材料の開発、診断において重要とされる、複合材料内に対する重照射、高照射による欠陥生成と移動・融合過程を、原子間相互作用を基盤とした空間・時間スケール双方に拡張可能な分子動力学法により原子を直接的に追跡し、原子スケールでの放射線損傷構造の解析を行う手法を確立した。

#### 【事業項目 2】シミュレーション結果の検証と公開

##### ①放射線損傷構造解析手法の研究

高精度エネルギー分析器、高精度位置検出器を備えた高分解能ラザフ

ード後方散乱分光(HR-RBS)システムを構成し、微細な層構造を持った材料に対する放射線照射効果を測定した。この結果を放射線材料の構造解析において一般的に利用されている電子顕微鏡観察や二次イオン質量分析法等を用いた測定結果と比較対照を行い、材料内原子移動の放射線照射量依存性が、極浅領域における誤差が指摘されている二次イオン質量分析結果とは異なり、層構造を直接観察した電子顕微鏡観察結果と良い一致を示した。さらに、放射線照射による材料内移動現象について、統合シミュレーションと一致する結果を得、シミュレーション・実験双方の放射線照射効果に対する解析手法の妥当性を示した。また、HR-RBS法と電子顕微鏡観察の併用により、放射線照射により形成される損傷領域において多層膜中からはじき出された原子が凝集し、微粒子状の欠陥構造が生成されることを明らかにした。このように、本手法が放射線照射を受けた材料の評価分析技術として適用可能であることを示した。

#### ②損傷構造データベースの作成

平成17年度から19年度にわたって実施したシミュレーションを通じて、10nm 立方以上の空間(10 万個以上の原子を含む)における $1 \times 10^{12}/\text{cm}^2 \sim 1 \times 10^{14}/\text{cm}^2$ の照射量に対する原子座標を基礎データとして得た。このデータを基に原子移動量、欠陥の空間分布、原子周辺の局所構造に関する詳細データ、サンプリングによる統計的性質、電子顕微鏡シミュレーションデータを導出し、蓄積した。また、これらのデータをネットワークを通じて取得、可視化するためのソフトウェアを作成した。本データベースをイントラネット内で運用することで動作検証を行い、大規模原子シミュレーションにより得られた座標データを定型化し、データベースとしてネットワークを通じて可視化するための手法を開発した。

#### 【事業全体】

高出力、長寿命化が要求される次世代以降の原子力システムを構成する材料の実現には、材料構成元素の多様化、ナノスケール構造の制御と、これらの材料への放射線照射効果の原子スケールでの理解が必須である。本事業では、原子間相互作用にのみ基づく分子動力学法を基盤とし、サブマイクロメートルの空間スケールに渡る複雑な原子配置をもつナノ構造や応力分布の表現、あるいはマイクロ秒以上の時間スケールにわたる損傷緩和過程の追跡を可能とするシミュレーションシステムの開発を行った。

本事業を通じて、多元系原子間ポテンシャルのフレキシブルな実装、原子衝突に最適化された時間発展手法、原子構造遷移の追跡、複数レベルの並列化技術等、原子力材料の欠陥構造ダイナミクスの解析に必要な時間・空間スケールラビリティを擁する分子動力学シミュレーションシステムを開発した。一方、本シミュレーションシステムによるシミュレーション結果と直接的な比較対照が可能な実験として、高分解能ラザフォード分光分析法を中心とした高精度原子分布測定を実施した。ナノスケ

	<p>ール構造を有したターゲットに対する複数回の放射線照射による材料内原子移動の機構について検証した結果、双方の解析手法の妥当性を示すとともに、放射線照射量に依存した欠陥構造の生成、回復過程を明らかにした。このように本研究課題において開発した大規模シミュレーション技術と高精度計測技術の連携により、放射線照射による欠陥形成、回復過程の解析が可能であることを実証し、所期の目標を達成した。本事業で開発したシミュレーションシステムは原子間相互作用に基づく分子動力学法を直接サブマイクロメートルの空間スケール、あるいはマイクロ秒以上の時間スケールに適用するものである。したがって、現在広く利用されている二体衝突に基づくカスケード衝突シミュレーション、および格子モデルに基づいた欠陥緩和シミュレーションに比べ、固体表面やナノ粒界、接合界面等といった複雑な原子配置の直接的な取り扱いを可能とし、これらの原子配置に関する詳細な情報を提供する。本事業で開発したシミュレーション、計測技術を構成元素の多様化やナノ構造の高度化が進む原子力材料に適用し、放射線照射に対する損傷構造の生成と緩和過程を明らかにすることで、次世代原子力材料の設計、評価技術の確立に資するものと期待する。</p> <p>論文、特許等については、以下のとおりである。</p> <p>1. 学会口頭発表</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・青木学聡、瀬木利夫、松尾二郎、高木郁二、「材料内イオン衝突欠陥の時間発展シミュレーションの検討」、第 68 回応用物理学会学術講演会、2007/9/4-8、北海道大学(札幌市)</li> </ul>
<p>3. 事後評価</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・目的・目標の設定の妥当性</li> <li>・研究計画設定の妥当性</li> <li>・研究費用の妥当性</li> <li>・研究の進捗状況</li> <li>・研究交流</li> <li>・研究者の研究能力</li> </ul>	<p><b>【目的・目標の設定の妥当性】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・原子炉材料の中性子照射脆化を高精度に予測することは原子炉の設計ならびに運転管理上非常に重要かつ不可欠であるが、そのためには照射脆化機構の解明が必要となる。照射脆化はナノスケールの組織変化が関与することから、その機構解明には分子動力学解析によるシミュレーションが有効な手段となるが、従来手法による解析可能な時間・空間スケールは必ずしも十分なものではなかった。本事業では、この問題を解決するシミュレーション手法を開発・実証しようとするものであり、その目的・目標の設定は適切である。</li> <li>・ただ、もう少し原子力分野を意識した研究目標を設定することもできたと考えられる。</li> </ul> <p><b>【研究計画設定の妥当性、研究の進捗状況】</b></p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・ほぼ計画通りに進捗したと考えられるが、実験とシミュレーション計算結果の比較が明確でないので、比較した結果をわかりやすく示してもらいたい。</li> </ul>

	<p>【研究交流、人材育成、研究者の研究能力、成果】</p> <ul style="list-style-type: none"> <li>・最新の様々な計算機技術を取り込み、実験的検証が可能となる時間・空間スケールでの分子動力学シミュレーション手法を構築するという当初想定された成果は得られたが、実験的検証が必ずしも十分であるとは言えないため、シミュレーションの精度や妥当性にやや問題が残されている。シミュレーションコードの検証についても、もう少し踏み込んで実施してほしい。また、得られた成果のデータベース化による公開はなされているものの、どのように活用されるのか、十分な説明がなかったように見受けられる。</li> <li>・本事業に従事した若手研究者の人材育成における成果は認められるが、外部発表が少ないので、今後積極的に査読付論文を投稿してもらいたい。</li> </ul>
4. その他	<ul style="list-style-type: none"> <li>・化学種の異なる元素の移動を追跡する手法の開発は重要であるが、はじき出し損傷の移動範囲や衝突イベントの相互作用範囲を考慮して、研究を進めてほしい。また、イオン照射によって形成される点欠陥や点欠陥集合体の存在が拡散挙動に及ぼす影響も重要である。照射温度依存性や損傷速度依存性を調査することで、解析に不可欠な反応の見かけの活性化エネルギーに関する情報が得られる可能性がある。ナノスケールとは言え、室温における熱的移動距離は極めて小さいことを考慮し、はじき出し損傷領域のサイズに関するシミュレーション解析結果の実証を目指す研究を継続して欲しい。可能ならば、照射に伴う点欠陥集合体の分布の状況も調査し、ミキシング距離との相関も合わせて調査することで、照射影響の本質が見えてくるかもしれない。</li> </ul>
5. 総合評価	<ul style="list-style-type: none"> <li>・本事業はナノメートルサイズのみキシングを評価するための分子動力学に基づいた解析手法の開発を試みた挑戦的な研究である。本手法を用いたシミュレーション結果と実験結果を比較しようとしたことは評価できるが、シミュレーション結果の検証が、まだ不十分のように見受けられるので、コードの適用範囲を含めて、実験データとの比較を進めてもらいたい。</li> <li>・原子炉材料開発や原子力環境下での材料ふるまいなど、原子力分野の多元系や多相系への適用について、今後の展開を期待したい。</li> </ul> <p>A) 想定以上の成果が得られ、今後に大いに期待できる。  <b>B) 想定通りの成果が得られ、今後が期待できる。</b>  C) 想定通りの成果が一部得られなかった。  D) 想定通りの成果が全く得られなかった。</p>