

令和5年度

文部科学省 国家課題対応型研究開発推進事業

原子力システム研究開発事業

機械学習を利用した計算科学による照射損傷

予測・脆化評価技術の整備

成果報告書

令和6年3月

一般財団法人 電力中央研究所

本報告書は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、一般財団法人電力中央研究所が実施した令和 3 年度－令和 5 年度「機械学習を利用した計算科学による照射損傷予測・脆化評価技術の整備」の成果を取りまとめたものです。

目次

| | |
|--|----|
| 概略 | vi |
| 1 はじめに | 1 |
| 2 業務計画 | 3 |
| 3 業務の実施内容及び成果 | 4 |
| 3.1 ニューラルネットワークで計算した活性化エネルギーに基づくキネティックモンテカルロ法による照射材における照射欠陥性状の予測 | 4 |
| 3.1.1 純鉄の活性化エネルギーを学習したニューラルネットワークの構築【R3-R5】 | 4 |
| 3.1.2 ニューラルネットワークで計算した活性化エネルギーに基づくキネティックモンテカルロ法による照射欠陥の予測（再委託先：理科大）【R3-R5】 | 12 |
| 3.2 らせん転位の運動に照射損傷が及ぼす影響の古典分子動力学法解析【R3-R5】 | 16 |
| 3.3 照射欠陥が転位挙動に及ぼす影響を考慮した離散転位動力学法による破壊靱性の計算（再委託先：理科大）【R3-R5】 | 21 |
| 3.4 研究推進【R3~R5】 | 25 |
| 4 結言 | 27 |

図一覧

| | |
|---|----|
| 図 3.1-1 SIA をノードに、SIA 間関係をエッジに割り当てるグラフ | 4 |
| 図 3.1-2 SIA 間関係をノードに、SIA3 組をエッジに割り当てるグラフ | 5 |
| 図 3.1-3 グラフにおけるノードとエッジの特徴量 | 7 |
| 図 3.1-4 EAM ポテンシャルによる結合エネルギーと GNN による予測値の比較例 | 7 |
| 図 3.1-5 第一原理計算による結合エネルギーと GNN による予測値の比較例 | 8 |
| 図 3.1-6 ANN ポテンシャルによる活性化エネルギーと GNN による予測値の比較例 | 8 |
| 図 3.1-7 <110>ダンベル型 SIA 間関係の特徴量 | 9 |
| 図 3.1-8 3 体角を考慮したグラフの例 | 9 |
| 図 3.1-9 ANN ポテンシャル・第一原理計算による結合エネルギーと GNN による予測値の比較例 | 10 |
| 図 3.1-10 ANN ポテンシャルによる平均活性化エネルギーと NN による予測値の比較例 | 10 |
| 図 3.1-11 ANN ポテンシャルによる活性化エネルギーと GNN による予測値の比較例 | 11 |
| 図 3.1-12 先行研究 ⁽⁶⁾ で提案された 5 つの SIA の拡散メカニズム | 12 |
| 図 3.1-13 第一原理計算・EAM ポテンシャル・ANN ポテンシャルによる NEB 解析で得られた拡散メカニズム Event1~Event5 の活性化エネルギー | 13 |
| 図 3.1-14 Event3 におけるより優位なエネルギー経路の算出 | 13 |
| 図 3.1-15 複数の SIA を挿入したキネティックモンテカルロ法による数値解析結果 | 14 |
| 図 3.2-1 せん断応力—せん断ひずみ線図 | 17 |
| 図 3.2-2 らせん転位とプリズマティック転位ループの反応 | 17 |
| 図 3.2-3 ヘリカル転位が分裂する前後の系のエネルギーの模式図 | 18 |
| 図 3.2-4 提案した式と古典分子動力学法の結果の比較 | 19 |
| 図 3.2-5 提案した式と古典分子動力学法の結果の比較 | 19 |
| 図 3.3-1 放出された転位が亀裂先端に及ぼす遮蔽効果 | 21 |
| 図 3.3-2 脆性的な破壊 | 22 |
| 図 3.3-3 非脆性的な破壊 | 22 |
| 図 3.3-4 各摩擦応力における破壊靱性値と温度の関係 | 23 |
| 図 3.3-5 摩擦応力と遷移温度の上昇量の関係 | 23 |
| 図 4-1 本委託業務で用いた計算手法の関係図 | 27 |

表一覧

| | |
|-------------------------|----|
| 表 2-1 年度別全体計画表 | 3 |
| 表 3.4-1 研究委員会の日程と概要 | 25 |
| 表 3.4-2 PA ミーティングの日程と概要 | 26 |

用語説明

ニューラルネットワーク・人工ニューラルネットワーク

ニューラルネットワークとは人工知能分野で生物の脳を模擬した学習手法一般のことを言い、様々な種類が存在する。生物の神経網と区別するため、人工ニューラルネットワークとも呼ぶ。

グラフニューラルネットワーク

グラフニューラルネットワークは、ニューラルネットワークを利用したグラフ構造に基づく学習手法である。グラフはノード（頂点）と頂点間を結ぶエッジからなり、ネットワーク・ノード・エッジなどに特徴量を与える。グラフニューラルネットワークでは、ノード間でメッセージパッシングと呼ばれるやり取りを通じて、ニューラルネットワークを用いて特徴量の更新を繰り返し、最終的な特徴量を得る。

第一原理計算

第一原理計算とは、計算対象となる物質系を構成する元素の原子番号と系の原子配置を入力パラメータとし、実験結果を参照しないで系の電子状態を求める計算手法で、求められた電子状態からエネルギーをはじめとする様々な物性を計算できる。計算科学分野では、分子軌道法や平面波密度汎関数法等のシュレーディンガー方程式を数値的に解く計算手法のことを指す。固体分野では主に電子状態を平面波の重ね合わせで記述する平面波密度汎関数が用いられる。合わせ込みを用いないため、その計算精度は高いが、計算負荷は高い。計算機性能に依存するが、大型のクラスター計算機でも1000原子程度が限界である。

古典分子動力学法

原子間ポテンシャルから計算される原子間力を力、質量を原子の質量とした運動方程式から原子の加速度を計算し、加速度から原子の速度、速度から原子の位置を更新して、原子の動きを時間発展で追跡する手法である。計算負荷は低く、計算機性能に依存するが、例えば、数100万原子の動きをnsの単位で解析することができる。

原子間ポテンシャル

原子系のエネルギーを記述する経験的関数のことである。エネルギーの計算や原子位置による微分を通じた原子間力の計算に用いることができるが、一般に精度は高くない。関数形により、様々な種類が存在するが、金属系では、従来、埋め込み原子型ポテンシャルと呼ばれる反発エネルギーと近傍の原子による部分電子密度の和の汎関数のエネルギーの和による原子間ポテンシャルが用いられることが多かった。近年では、人工ニューラルネットワークなど、機械学習を応用した原子間ポテンシャルの精度が高いことが知られている。

ナッジドエラスティックバンド法

エラスティックバンド法は、始状態と終状態の間に多数の中間状態を作成し、中間状態を変化させて、鞍点を探索し、状態間の最小エネルギー経路を探索する計算手法である。ナッジドエラス

ティックバンド法では、中間状態間と経路の接線方向と経路と垂直方向の力の和をゼロにする方向に中間状態を移動させることで、中間状態が鞍点から滑り落ちず、鞍点付近の中間状態を多く得ることができ、より真の最小エネルギー経路に近い経路を得ることができる。

キネティックモンテカルロ法

定義した多数の発生事象を発生確率に応じてランダムに選定し、事象の発生確率の和と乱数に応じて、経過時間を決めて、時間発展を行う計算方法。発生確率は、各事象の活性化エネルギーに応じて決定する。実時間スケールでの計算が可能となる。

離散転位動力学法

物質中の線状の欠陥である転位を、有限長さのセグメントに分割して表現し、各セグメントにかかる力（相互作用力・外力）を計算し、力を転位速度に変換して、速度に応じて転位位置を更新することにより、転位の運動の時間発展を追跡する計算手法のことである。

略語一覧

| | | |
|------|----------------------------------|------------------|
| ANN | : Artificial Neural Network | (人工ニューラルネットワーク) |
| BCC | : Body Centered Cubic | (体心立方) |
| CRSS | : Critical Resolved Shear Stress | (臨界分解せん断応力) |
| EAM | : Embedded Atom Method | (埋め込み原子法) |
| GNN | : Graph Neural Network | (グラフニューラルネットワーク) |
| MAE | : Mean Absolute Error | (平均絶対誤差) |
| NEB | : Nudged Elastic Band | (ナッジドエラスティックバンド) |
| NN | : Neural Network | (ニューラルネットワーク) |
| PA | : Program Adviser | (プログラムアドバイザー) |
| SIA | : Self Interstitial Atom | (自己格子間原子) |
| SMR | : Small Modular Reactor | (小型モジュール炉) |

概略

原子炉においては供用中に炉心付近で中性子照射を受けることにより、フェライト鋼製の圧力容器鋼に脆化が生じることが知られており、この現象は、中性子照射脆化（以降、照射脆化）と呼ばれている。圧力容器鋼の照射脆化は、原子炉圧力容器の健全性に影響を及ぼすことから、重要な経年劣化事象とされている。国内原子炉の照射脆化の評価手法は日本電気協会技術規程原子力編「原子炉構造材の監視試験方法」（JEAC4201）に定められており、原子炉と同じ材料を用いて作られた試験片（監視試験片）を実機炉内に装荷し、予め定められた時期に試験（監視試験）が行われている。監視試験においてはシャルピー衝撃試験により監視試験片の脆化量を実測すると共に、脆化予測法を用いて今後の脆化量を予測する。脆化予測法では、材料の化学成分と照射条件を入力とし、延性脆性遷移温度の変化を出力とする式（照射脆化予測式）が用いられ、世界各国で開発されている。JEAC4201に記載されている日本の脆化予測式は、中性子照射を受けた鋼材中の照射損傷によるマイクロ組織変化（溶質原子クラスターとマトリックス損傷の形成）を表す式と、マイクロ組織変化と延性脆性遷移温度の変化量の関係を表す式からなる。マイクロ組織変化式に含まれるパラメータは、監視試験片や試験炉で照射した材料を対象にしたアトムプローブトモグラフィーや透過型電子顕微鏡観察結果に基づき決定され、照射損傷によるマイクロ組織変化と延性脆性遷移温度の変化量の関係を表す式のパラメータは、シャルピー衝撃試験から得られた延性脆性遷移温度を元に決定される。商用軽水炉においては、長年に亘り、国内プラントの照射脆化を念頭においた試験炉照射データや原子力プラントにおける監視試験データが多数得られているため、これらを活用した脆化予測式の開発が可能となっている。

一方、近年開発が進められている、軽水炉型の小型モジュール炉（Small Modular Reactor : SMR）においても原子炉圧力容器は中性子照射により脆化すると考えられる。照射脆化の評価には米国で計画されているのと同様に監視試験片を用いる方法も考えられるが、脆化予測法については、圧力容器鋼の材料や照射条件が従来型の商用軽水炉とは異なることから、これまでの商用軽水炉での経験に基づく脆化予測法がそのままでは適用できない可能性がある。SMRでは圧力容器が薄くなる分、フルエンスが上昇すると考えられているが、現時点でSMRの実運用条件下における照射脆化データは無く、これを元にした照射脆化予測式の構築は難しいことが予想される。様々な照射条件下における照射脆化挙動を明らかにするには、実験的には試験炉による照射試験が有効であるが、材料試験炉である国内JMTR、スウェーデンHalden炉が廃炉になるなど、照射試験を行うことは困難になりつつある。この状況を打開する一つの方法に計算科学によるアプローチが考えられる。照射脆化は、高エネルギーの中性子の照射により、材料中に格子欠陥集合体（溶質原子クラスターや転位ループ等）が形成され、これが転位の移動を阻害し硬化を生じるというメカニズムが考えられており、中性子照射による格子欠陥集合体の生成（原子スケール）、格子欠陥集合体による転位運動の阻害（数十～数百ナノメートルスケール）、多数の欠陥と多数転位の相互作用による硬化とそれに伴う破壊靱性の変化（結晶粒スケール）というマルチスケール的な構造を持つため、計算科学的手法では、各スケールに応じた数値解析が適用されてきた。中性子照射によって起きる現象とその頻度を調べるためには原子の動きを模擬できる古典分子動力学法、これらの事象が繰り返し生じることによる溶質原子クラスターの形成過程やサイズ、数密度の計算にはキネティックモンテカルロ法、溶質原子クラスターが転位運動に及ぼす影響については古典分子動力学法、転位運動による材料の力学的応答については離散転位動力学法が主に用いられる。

しかしながら、これらの数値解析では、ナノメートルスケールからマクロな脆化（延性脆性遷移温度の変化）の評価まで至った例はない。これには大きく3つの要因があると考えられる。1つ目は、压力容器鋼をなす原子は体心立方（Body Centered Cubic: BCC）格子構造を持つが、古典分子動力学法において、BCC格子を持つ材料において物性を決めるのに支配的ならせん転位挙動を十分に表現できなかったことである。刃状転位の解析で代用したり、静的な第一原理計算で挙動を見積もったりしているが、その研究結果からは、らせん転位の挙動を直接明らかにすることはできない。その大きな理由は、らせん転位を再現できる内部エネルギーを表す関数（原子間ポテンシャル）がいまだ開発されていないことにある。2つ目は、離散転位動力学法計算において、破壊靱性の計算手法が定まっていないことである。延性脆性遷移温度は破壊靱性の温度変化であり、破壊靱性の計算手法がなければ、延性脆性遷移温度を得ることはできない。3つ目は、キネティックモンテカルロ法計算における、活性化エネルギーの見積もり方法である。キネティックモンテカルロ法では、中性子照射により材料内で起こりうる各イベントの活性化エネルギーを評価し、イベントの発生する確率を求めることを繰り返し、マイクロ組織変化を計算する。しかし、多岐に亘るイベント個々の活性化エネルギーの評価はNudged Elastic Band (NEB) 法等の複数のイメージを用いる計算を行う必要があるために計算コストが非常に高く、イベント個々の活性化エネルギーをイベント発生時にその場で計算することは困難である。また、計算負荷を低減するため第一原理計算でなく、原子間ポテンシャルを用いると精度が低下してしまうという問題もある。

本委託業務では、SMR実運用条件下における中性子照射脆化データの実験的取得が難しいことを念頭に、これを補う数値シミュレーション手法の開発を目指した。そのために、ここでは主として近年進展の著しい機械学習技術を応用した計算科学手法を用いた数値シミュレーションにより、ナノメートルスケールからマクロスケールに至る照射脆化評価を行うための以下の要素技術を開発し、これらを組み合わせることにより、数値解析に基づいたマルチスケール照射脆化予測技術とした。

(1)NEB解析により、純鉄中では、 $\langle 110 \rangle$ ダンベル型自己格子間原子(Self Interstitial Atom: SIA)の拡散の1経路が重要な拡散経路であることを明らかにした。この拡散の活性化エネルギーを予測するグラフニューラルネットワーク(Graph Neural Network: GNN)またはGNNとニューラルネットワーク(Neural Network: NN)の組み合わせを構築した。このGNNまたはGNNとNNの組み合わせを用いたキネティックモンテカルロ法解析を行ったところ、照射損傷の形状であるSIAの集合体の形成を再現することができた。

(2)らせん転位にプリズマティック転位ループに衝突させる古典分子動力学法計算解析により、らせん転位とプリズマティック転位ループが相互作用することによりヘリカル転位が形成することを明らかにした。その相互作用の結果としての臨界分解せん断応力(Critical Resolved Shear Stress: CRSS)の増分を定式化し、古典分子動力学法計算解析によるCRSSの増分と一致することを確認した。

(3)巨視的亀裂から転位が放出され、微視的亀裂を表現する転位が直接相互作用する離散転位動力学法解析を実施したところ、微視的亀裂の破壊挙動に関して、2種類の脆性的な破壊、非脆性的な破壊と分類できる挙動が得られた。実験と同様に、温度の上昇に伴って脆性的な破壊から非脆性的な破壊へ遷移し、その遷移温度の摩擦応力依存性は実験と一致する傾向であった。

将来は、実機適用に向けて、純鉄系から実際にSMRで用いられるような合金系への拡張を進めて

いくと同時に、実験・観察による採用したモデルの検証、実験結果へのデータ同化などを進めていくことが考えられる。

1 はじめに

近年開発が進められている SMR で用いられる圧力容器鋼においても従来型の軽水炉と同様に照射脆化が生じると考えられる。脆化予測法については、圧力容器鋼の材料や照射条件が従来型の商用軽水炉とは異なることから、これまでの商用軽水炉での経験に基づく脆化予測法がそのままでは適用できない可能性がある。現時点で SMR の実運用条件下における照射脆化データは無く、これを元にした照射脆化予測式の構築は難しいことが予想される。様々な照射条件下における照射脆化挙動を明らかにするには、実験的には試験炉による照射試験が有効であるが、材料試験炉の廃炉等により、照射試験が困難になりつつある。この状況を打開する一つの方法に計算科学の利用がある。照射脆化は、高エネルギーの中性子の照射により、材料中に格子欠陥集合体（溶質原子クラスターや転位ループ等）が形成され、これが転位の移動を阻害し硬化を生じるというメカニズムが考えられており、中性子照射による格子欠陥集合体の生成（原子スケール）、格子欠陥集合体による転位運動の阻害（数十～数百ナノメートルスケール）、多数の欠陥と多数の転位の相互作用による硬化とそれに伴う破壊靱性の変化（結晶粒スケール）というマルチスケル的な構造を持つ。従って、計算科学では、各スケールに応じた数値解析が適用されてきた。例えば、中性子照射によって起きる現象とその頻度を調べるためには原子の動きを模擬できる古典分子動力学法、これらの事象が繰り返し生じることによる溶質原子クラスターの形成過程やサイズ、数密度の計算にはキネティックモンテカルロ法、溶質原子クラスターが転位運動に及ぼす影響については古典分子動力学法、転位運動による材料の力学的応答については離散転位動力学法が主に用いられる。

しかしながら、従来の計算科学的手法による照射脆化の解析では、ナノメートルスケールからマクロな脆化（延性脆性遷移温度の変化）の評価まで至った例はない。これには 3 つの要因が考えられる。1 つ目にはらせん転位の記述性に優れる原子間ポテンシャルがいまだ開発されていないために純鉄中のらせん転位の古典分子動力学法解析が困難であること、2 つ目は、離散転位動力学法計算において、破壊靱性の計算手法が定まっておらず、延性脆性遷移温度の計算はできないこと、3 つ目は、キネティックモンテカルロ法計算における精度が良く計算コストの低い活性化エネルギー計算手法がないことである。本委託業務では、近年発展の著しい機械学習技術や従来手法の拡張により、こういった課題を解決し、SMR における実運用条件下における中性子照射脆化データの実験的取得を補う数値シミュレーション手法の開発を目指す。このため、以下の 3 種の数値解析技術を開発して、組み合わせ、数値解析に基づいたマルチスケル照射脆化予測技術とする。

(1) ニューラルネットワークで計算した活性化エネルギーに基づくキネティックモンテカルロ法による照射材における照射欠陥性状の予測

①純鉄の活性化エネルギーを学習した機械学習モデルの構築

第一原理計算などを用いた NEB 法によって、純鉄中における欠陥拡散の活性化エネルギーを計算し、データベースを作成する。作成した活性化エネルギーデータベースを学習し、活性化エネルギーを推論する機械学習モデルを構築する。なお、機械学習モデルとしては NN を用いる。

②ニューラルネットワークで計算した活性化エネルギーに基づくキネティックモンテカルロ法による照射欠陥の予測

①で得られた純鉄中の欠陥の拡散の活性化エネルギーを学習した機械学習モデルにより推論し

た活性化エネルギーを用いるキネティックモンテカルロ法プログラムで、照射を想定した解析を実施し、照射損傷の性状を得る。

(2)らせん転位の運動に照射損傷が及ぼす影響の古典分子動力学法解析

機械学習型原子間ポテンシャルを用いた古典分子動力学法計算により、(1)で得られるような照射欠陥が含まれる純鉄モデルにおいて、様々な条件下で、らせん転位と照射欠陥が作用するような解析を行い、らせん転位と照射欠陥が受ける影響を調べる。

(3)照射欠陥が転位挙動に及ぼす影響を考慮した離散転位動力学法による破壊靱性の計算

キネティックモンテカルロ法で得られた照射損傷が転位に及ぼす影響を取り込んだ離散転位動力学法解析を行い、破壊靱性の温度依存性を調べて、延性脆性遷移温度の算出を行う。

2 業務計画

本委託業務の年度別全体計画図を表 2-1 に示す。本委託業務においては、SMR の中性子照射損傷を予測し、これに基づいた破壊靱性評価を行う数値解析技術の整備による照射脆化評価の支援を目指して、機械学習を利用したキネティックモンテカルロ法解析を開発し、これと機械学習型原子間ポテンシャルを用いた古典分子動力学法解析、離散転位動力学法解析を組み合わせたマルチスケール解析手法を構築することを目的とする。このうち、一般財団法人電力中央研究所（以降、電中研）ではプロジェクトの総合推進およびキネティックモンテカルロ法で用いる NN の開発、古典分子動力学法解析を実施する。学校法人東京理科大学（以降、理科大）ではキネティックモンテカルロ法解析および離散転位動力学法解析を実施する。

表 2-1 年度別全体計画表

題目 「機械学習を利用した計算科学による照射損傷予測・脆化評価技術の整備」 年度別全体計画

| 項目 | 年度 | 令和3年度 | 令和4年度 | 令和5年度 | |
|--|--|----------------|--------------------|-----------------------------|----------|
| (1)ニューラルネットワークで計算した活性化エネルギーに基づくキネティックモンテカルロ法による照射材における照射欠陥性状の予測 ①純鉄の活性化エネルギーを学習したニューラルネットワークの構築 ②ニューラルネットワークで計算した活性化エネルギーに基づくキネティックモンテカルロ法による照射欠陥の予測(再委託先：理科大) | | ニューラルネットワークの検討 | ニューラルネットワーク構築手法の確立 | 活性化エネルギーを学習したニューラルネットワークの構築 | |
| | | プログラムの開発 | 試解析の実施・検証 | 大規模解析の実施 | |
| | (2)らせん転位の運動に照射損傷が及ぼす影響の古典分子動力学法解析 (3)照射欠陥が転位挙動に及ぼす影響を考慮した離散転位動力学法による破壊靱性の計算(再委託先：理科大) | | 古典分子動力学法プログラムの改良 | 純鉄におけるらせん転位の解析の検証 | 解析の実施 |
| | | | 計算手法の検討 | プログラムの開発 | 解析の実施 |
| | (4)研究推進 | | 研究委員会の開催 | 研究委員会の開催 | 研究委員会の開催 |
| | | まとめ・評価 | まとめ・評価 | まとめ・評価 | |

3 業務の実施内容及び成果

3.1 ニューラルネットワークで計算した活性化エネルギーに基づくキネティックモンテカルロ法による照射材における照射欠陥性状の予測

3.1.1 純鉄の活性化エネルギーを学習したニューラルネットワークの構築 【R3-R5】 【R3-R4】

令和3年度は、NNを用いて、照射によって生じる照射欠陥の運動（イベント）の活性化エネルギーを精度良く計算する方法を検討した。その結果、まず、各状態の結合エネルギーや生成エネルギーを学習したGNNを作成し、次に各状態のGNNとその間をつないだGNNにより活性化エネルギーを学習させ、そこで得られたGNNを用いて活性化エネルギーの計算を行う手法が候補として抽出された。各状態の結合エネルギーや活性化エネルギーを計算するGNNによるモデリング方法を図3.1-1および図3.1-2に示す。図3.1-1にはSIAをノードに、SIA間関係をエッジに割り当てるグラフを示す。図3.1-2にはSIA間関係をノードに、SIA3つ組をエッジに割り当てるグラフを示す。

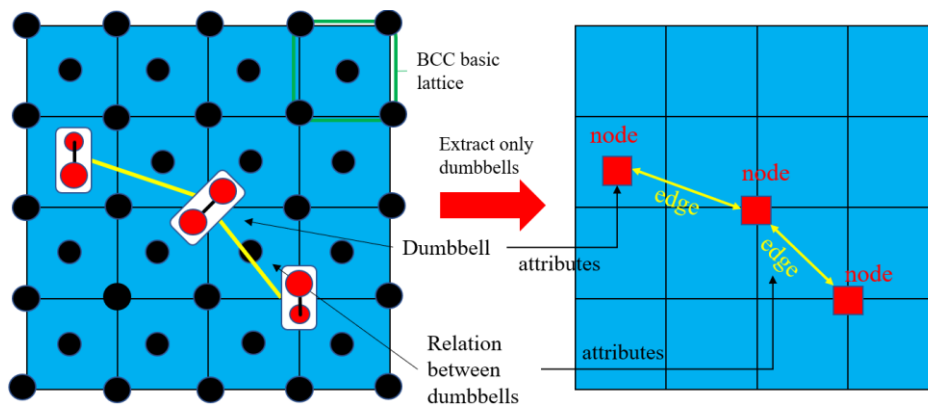


図 3.1-1 SIA をノードに、SIA 間関係をエッジに割り当てるグラフ

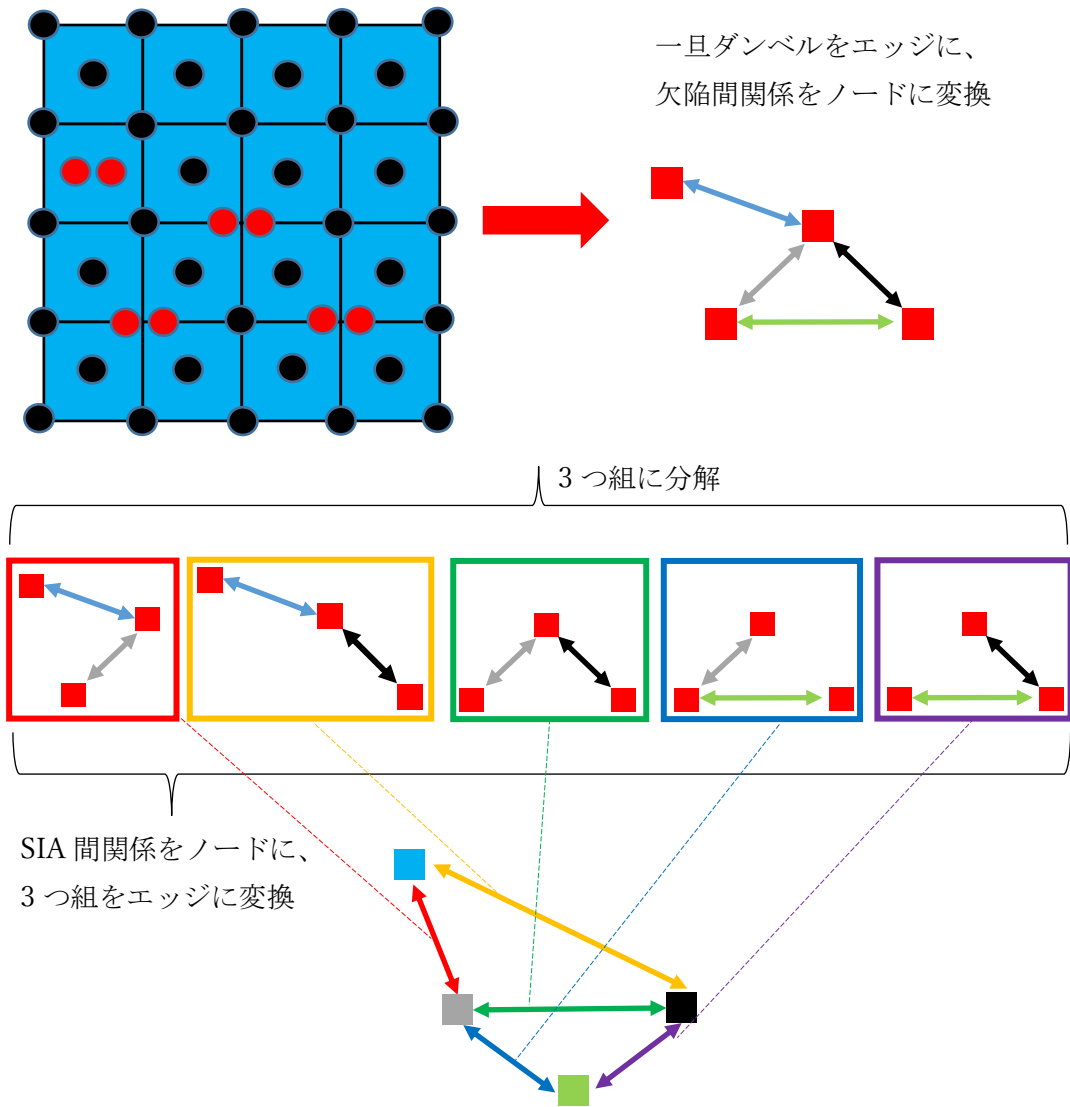


図 3.1-2 SIA 間関係をノードに、SIA3 組をエッジに割り当てるグラフ

令和 4 年度は、活性化エネルギーを結合エネルギーと拡散エネルギーに分解し、それぞれを GNN で学習する手法を提案した。まず、一般に、状態 1 から状態 2 に遷移するとき、活性化エネルギー $\Delta E_{1 \rightarrow 2}$ は、

$$\Delta E_{1 \rightarrow 2} = E_{\text{saddle}} - E_1, \quad (3.1-1)$$

と計算され、状態 2 から状態 1 に遷移するとき、活性化エネルギー $\Delta E_{2 \rightarrow 1}$ は、

$$\Delta E_{2 \rightarrow 1} = E_{\text{saddle}} - E_2, \quad (3.1-2)$$

と計算される。ここで、 E_1 、 E_2 、 E_{saddle} はそれぞれ状態 1 のエネルギー、状態 2 のエネルギー、状態 1-2 間を遷移するときの鞍点エネルギーである。この活性化エネルギーの表式を書き換え、

$$\Delta E_{1 \rightarrow 2} = E_{\text{saddle}} - \frac{E_1 + E_2}{2} + \frac{E_2 - E_1}{2} = \Delta E_{12} + \frac{E_2 - E_1}{2}, \quad (3.1-3)$$

$$\Delta E_{2 \rightarrow 1} = E_{\text{saddle}} - \frac{E_1 + E_2}{2} + \frac{E_1 - E_2}{2} = \Delta E_{12} + \frac{E_1 - E_2}{2}, \quad (3.1-4)$$

とする。この安定状態のエネルギー E_1 、 E_2 を学習する GNN および鞍点の相対エネルギー ΔE_{12} を学習する GNN を作成する。これにより、ある鞍点を1つの ΔE_{12} により記述することができる。なお、本研究では ΔE_{12} を平均活性化エネルギーと呼ぶこととする。〈110〉ダンベル型 SIA 間の結合エネルギーのみを対象とするため、図 3.1-1 に示すように、ノードにダンベルを割り当て、距離がカットオフ長未満のダンベル間の接続を双方向エッジに割り当てた。図 3.1-3(a)に示すように、ノードの特徴量としてダンベルの方向に対応する 6 次元の値を使用した。ダンベルの向き〈110〉=〈 $\bar{1}\bar{1}0$ 〉、〈 $\bar{1}\bar{1}0$ 〉=〈 $\bar{1}10$ 〉、〈101〉=〈 $\bar{1}0\bar{1}$ 〉、〈 $\bar{1}01$ 〉=〈 $10\bar{1}$ 〉、〈011〉=〈 $0\bar{1}\bar{1}$ 〉および 〈 $0\bar{1}1$ 〉=〈 $01\bar{1}$ 〉を、それぞれ (1, 0, 0, 0, 0, 0)、(0, 1, 0, 0, 0, 0)、(0, 0, 1, 0, 0, 0)、(0, 0, 0, 1, 0, 0)、(0, 0, 0, 0, 1, 0) および (0, 0, 0, 0, 0, 1) の特徴量とした。2つのダンベル位置間の相対ベクトルの長さ r と正規化されたベクトル $\bar{\mathbf{r}}$ を並べて $(r, \bar{\mathbf{r}})$ とし、図 3.1-3(b)に示すように、4次元の値をエッジ特徴量とした。

GNN には特徴量のオペレータにより様々な種類が存在するが、エッジに特徴量を割り当てることができる GNN のうち最も広く使われる GNN のひとつである Continuous kernel-based convolutional operator ⁽¹⁾ を用いた。

$$\Delta E_i^{\text{b.guess}} = \frac{1}{N^s} \sum_{j=1}^{N^s} \Delta E_{ij}^{\text{b.GNN}}, \quad (3.1-5)$$

ここで、 $\Delta E_i^{\text{b.guess}}$ は i 番目の学習データの最終的に予測された結合エネルギー、 $\Delta E_{ij}^{\text{b.GNN}}$ は GNN によって予測された i 番目の学習データの j 番目の等価構造の結合エネルギーである。 N^s は等価原子位置の数で、今回の系では 48 となる。

$$\Delta E_i^{\text{mig.guess}} = \frac{1}{N^s} \sum_{j=1}^{N^s} \Delta E_{ij}^{\text{mig.GNN}}, \quad (3.1-6)$$

ここで、 $\Delta E_i^{\text{mig.guess}}$ は i 番目の学習データの最終的に予測された拡散エネルギー、 $\Delta E_{ij}^{\text{mig.GNN}}$ は GNN によって予測された i 番目の学習データの j 番目の等価構造の拡散エネルギーである。 N^s は等価原子配置の数 48 である。

埋め込み原子型 (Embedded Atom Method : EAM) ポテンシャル⁽²⁾によって計算した安定な SIA である〈110〉ダンベルの結合エネルギーのデータベースを用いて学習した GNN は、学習データ・テストデータに対し、平均絶対誤差 (Mean Absolute Error : MAE) がともに 0.06~0.07 eV 程度 (図 3.1-4) と高い精度となった。第一原理計算による〈110〉ダンベルの結合エネルギーのデータベースを用いて学習した GNN は、学習データを MAE 0.06~0.07 eV と高い精度で学習できたものの、テストデータに対しては、MAE 0.12~0.13 eV 程度 (図 3.1-5) と程度の予測精度にとどまった⁽³⁾。人工ニューラルネットワーク (Artificial Neural Network : ANN) 型原子間ポテンシャル⁽⁴⁾に

よって計算した $\langle 110 \rangle$ ダンベルの translation-rotation メカニズムによる拡散前後の結合エネルギーと拡散エネルギーを学習した GNN で予測した拡散の活性化エネルギーについては、学習データ・テストデータに対し MAE がともに 0.02~0.03 eV 程度 (図 3.1-6) と高い精度で予測することができた。

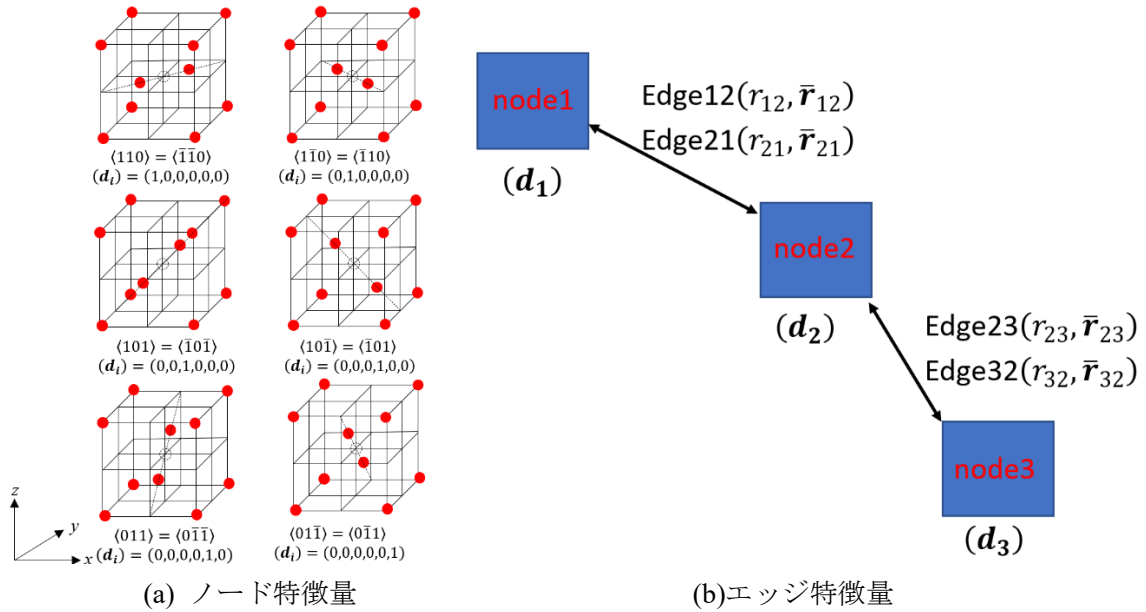


図 3.1-3 グラフにおけるノードとエッジの特徴量

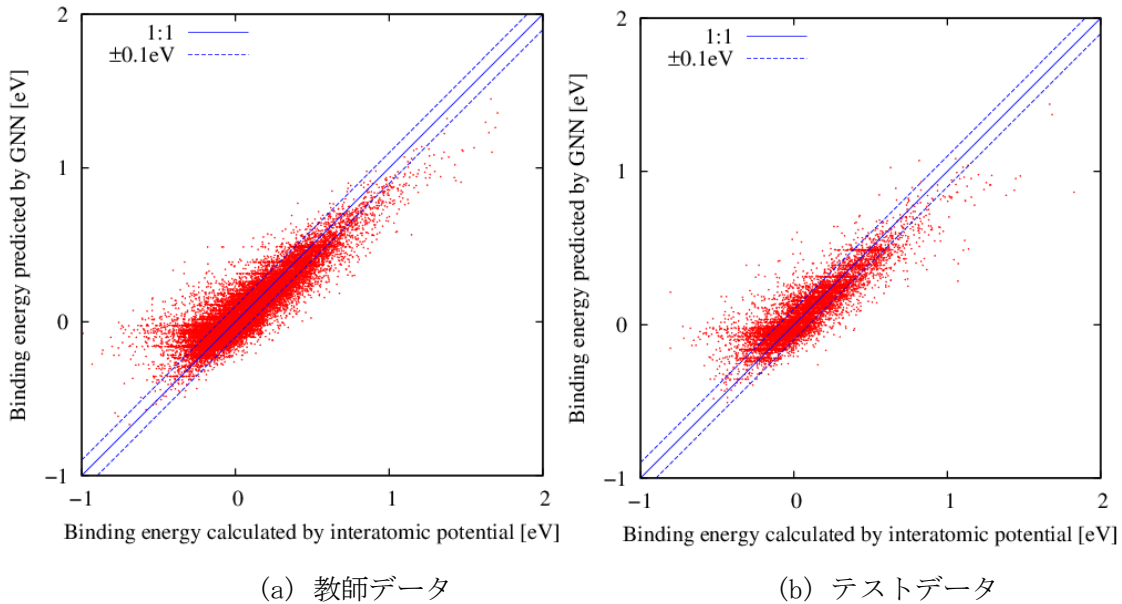
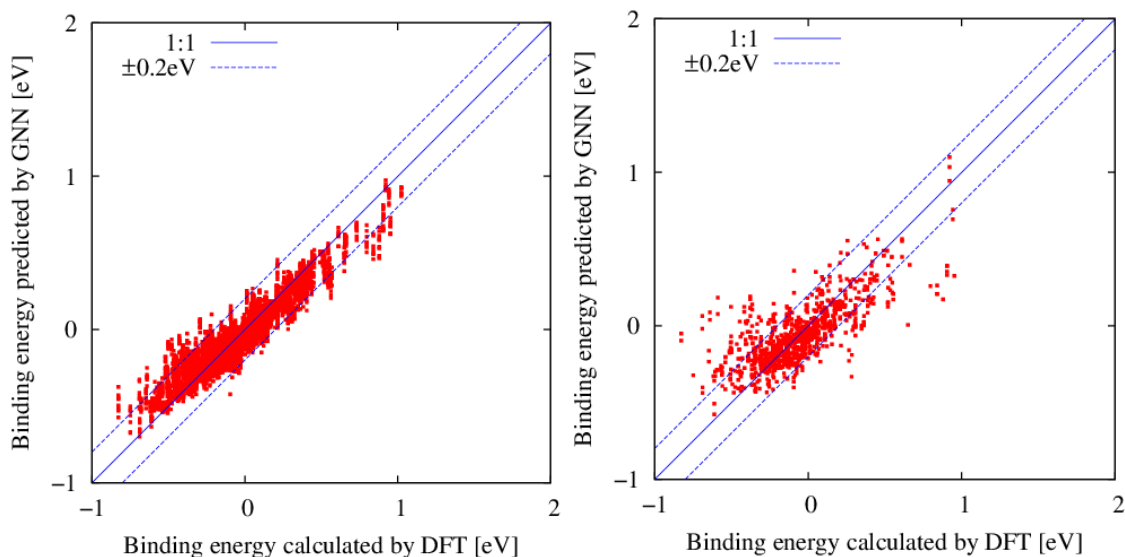


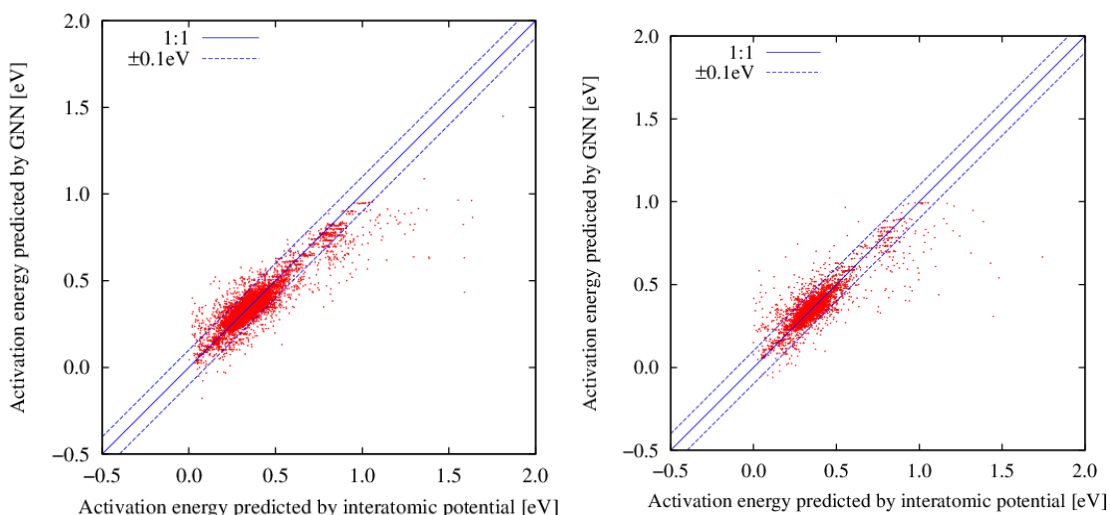
図 3.1-4 EAM ポテンシャルによる結合エネルギーと GNN による予測値の比較例



(a) 教師データ

(b) テストデータ

図 3.1-5 第一原理計算による結合エネルギーと GNN による予測値の比較例



(a) 教師データ

(b) テストデータ

図 3.1-6 ANN ポテンシャルによる活性化エネルギーと GNN による予測値の比較例

【R5】

これまでは GNN から得られた等価構造それぞれの結合エネルギーの平均を結合エネルギーとし、等価構造それぞれの平均活性化エネルギーを活性化エネルギーとして鞍点エネルギーを計算して結合エネルギーとの差から活性化エネルギーを計算していた。しかし、平均を取るための等価構造全ての結合エネルギーまたは平均活性化エネルギーの計算をする負荷は大きい。そこで令和 5 年度は等価構造に対して 1 種類の記述法でグラフを記述できる結合エネルギー記述法および平均活性化エネルギー記述法を用いて、活性化エネルギーを学習する。

図 3.1-2 に示すグラフと類似のグラフで<110>ダンベル型 SIA 間関係を表現する。このときノードを表す<110>ダンベル型 SIA 間関係は対象としている<110>ダンベル型

SIA1、2 の中心位置を結んだ直線の長さ r_{12} と、この直線とダンベル型 SIA がなす角度 θ_{12} 、 $\theta_{21} (< \pi/2)$ の \cos 値、2 つのダンベル型 SIA がなす 2 面角 ξ_{12} の \cos 値とする。すなわちノード特徴量は $(r_{12}, \cos\theta_{12}, \cos\theta_{21}, \cos\xi_{12})$ となる (図 3.1-7)。なお、エッジを表す SIA の 3 体角関係は 3 つの SIA の 3 体角 Φ_{123} の \cos 値、 $(\cos\Phi_{123})$ となる。図 3.1-8 に 3 つのダンベル型 SIA1、2、3 が存在し、うちダンベル型 SIA1、2、ダンベル型 SIA1、3 がカットオフ距離内にある際のグラフ表現を例示する。平均活性化エネルギーについては、反応前後の安定状態のエネルギー差および拡散原子周囲の原子密度を入力とした NN により予測する。これにより、グラフを構築することなく、短時間で平均活性化エネルギーを計算できる。

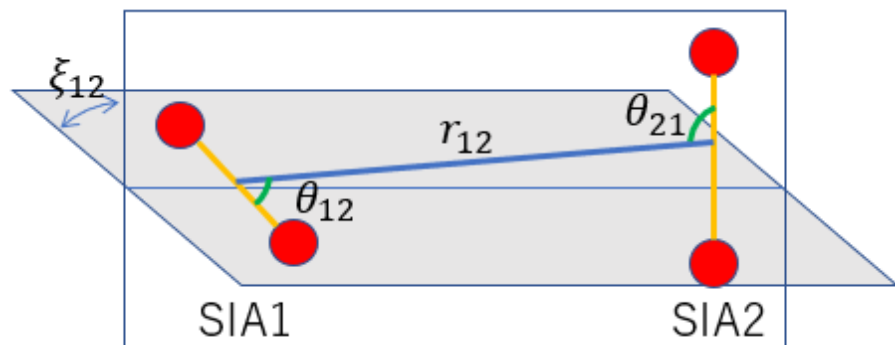


図 3.1-7 <110>ダンベル型 SIA 間関係の特徴量

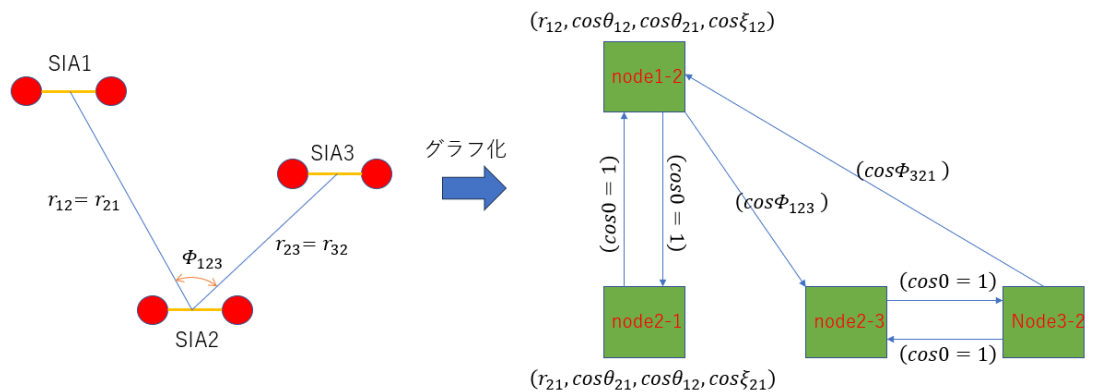


図 3.1-8 3 体角を考慮したグラフの例

ANN ポテンシャルおよび第一原理計算を用いて緩和計算した原子配置の結合エネルギーのデータベースを作成し、ANN ポテンシャルを用いた Nudged Elastic Band (NEB) 法によって、純鉄中における<110>ダンベル型 SIA 拡散の活性化エネルギーを計算し、データベースを作成した。GNN を結合エネルギーデータベースから抽出したデータで学習を行い、NN を活性化エネルギーデータベースから抽出したデータで学習を行った。

図 3.1-9 に示す通り、結合エネルギーを学習した GNN は第一原理計算・ANN ポテンシャルで計算した結合エネルギーを学習データ・テストデータともに MAE 0.06 eV 程度の精度で再現することができた。図 3.1-10 に示す通り平均化活性化エネルギーを

学習した NN は、ばらつきはあるものの ANN ポテンシャルで計算した平均活性化エネルギーを MAE 0.02 eV 程度の精度で再現することができた。次に平均化活性化エネルギーは、従来研究では固定値とすることがあり、固定値に比べると改善がなされていると考える。最後にこの結合エネルギーと平均活性化エネルギーから活性化エネルギーを計算すると ANN ポテンシャルで計算した活性化エネルギーを MAE 0.03 eV 程度と十分に高い精度で再現することができた (図 3.1-11)。即ち、作成した活性化エネルギーデータベースを学習し、活性化エネルギーを推論する通常の NN と組み合わせた GNN を構築することができた。

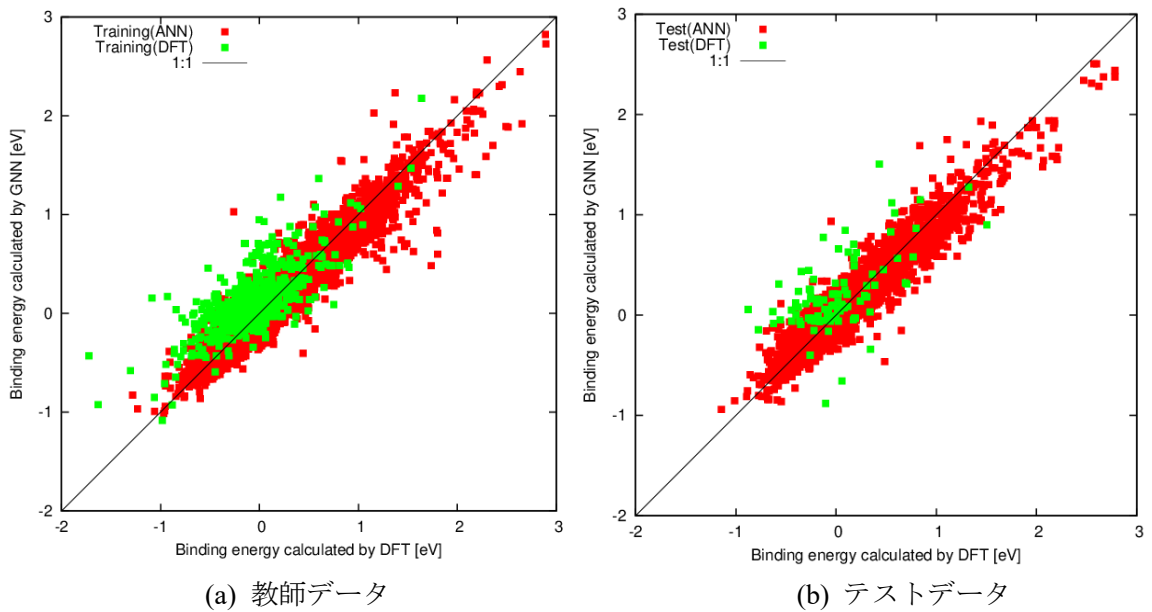


図 3.1-9 ANN ポテンシャル・第一原理計算による結合エネルギーと GNN による予測値の比較例

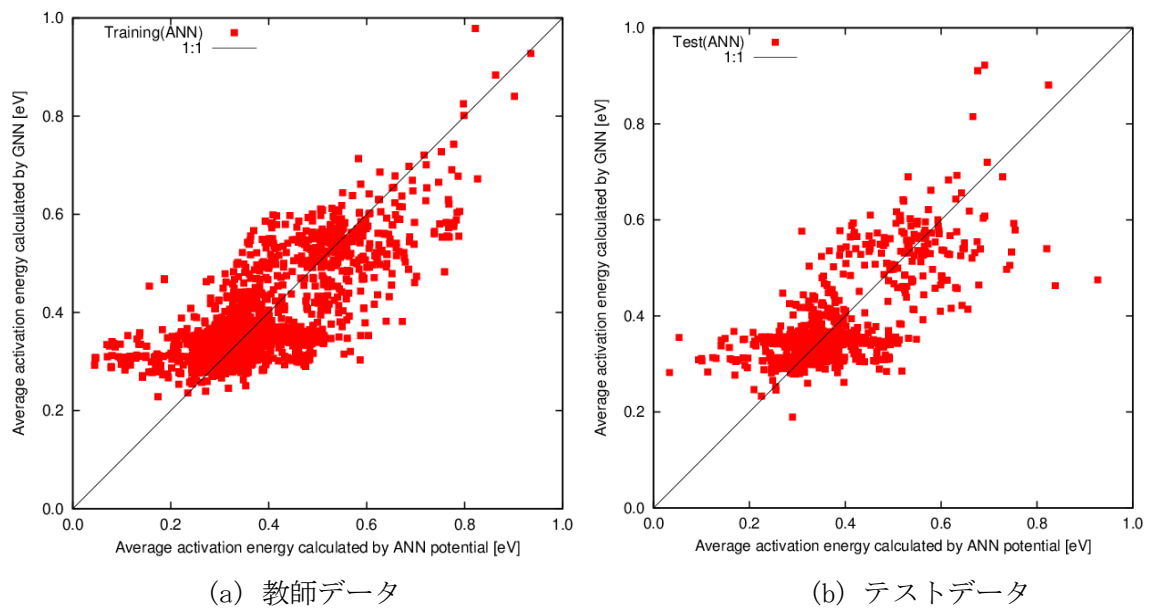
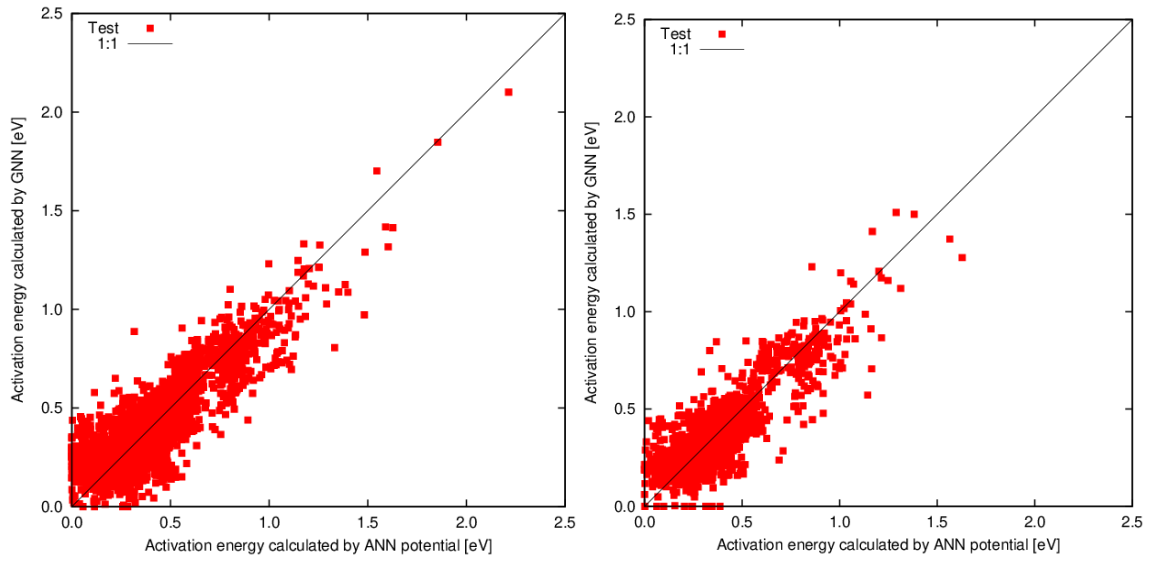


図 3.1-10 ANN ポテンシャルによる平均活性化エネルギーと NN による予測値の比較例



(a) 教師データ

(b) テストデータ

図 3.1-11 ANN ポテンシャルによる活性化エネルギーと GNN による予測値の比較例

3.1.2 ニューラルネットワークで計算した活性化エネルギーに基づくキネティックモンテカルロ法による照射欠陥の予測（再委託先：理科大） 【R3-R5】

【R3-R4】

令和3年度は、EAMポテンシャル⁽²⁾を用いたNEB解析を行い、純鉄中における単一のSIAの拡散の活性化エネルギーを算出した。先行研究⁽⁵⁾で提案された5つの拡散メカニズム(図3.1-12)の活性化エネルギーを計算し、第一原理計算と比較した。5つの拡散メカニズムの内4つで第一原理計算との定量的な乖離が見られ、SIAの拡散においてはEAMポテンシャルの信頼性が低いことが明らかになった。

令和4年度は、ANNポテンシャル⁽⁴⁾を用いたNEB解析によるキネティックモンテカルロ法の発生イベントの選定を行った。図3.1-13に数値計算によって得られた活性化エネルギーの結果を示しており、ANNポテンシャルを用いたNEB解析では、拡散メカニズムEvent1~5の活性化エネルギーが第一原理計算と定量的に一致した。このことから、ANNポテンシャルは純鉄中のSIA拡散挙動を第一原理計算と同程度の精度で再現でき、高い信頼性を持つことが確認された。さらに、ANNポテンシャルを用いて優位なエネルギー経路の算出を行った。図3.1-14に一例として拡散メカニズムEvent3のエネルギー経路と各反応座標における原子構造のスナップショットを示しており、拡散メカニズムEvent1の繰り返りで拡散メカニズムEvent3が実現されていることが確認でき、その他の拡散メカニズムも同様の傾向を示した。以上のことから、拡散メカニズムEvent2~Event5は活性化エネルギーが最小である拡散メカニズムEvent1の繰り返りで表現されることが確認され、純鉄中のSIA拡散は拡散メカニズムEvent1が支配的であることが確認された。

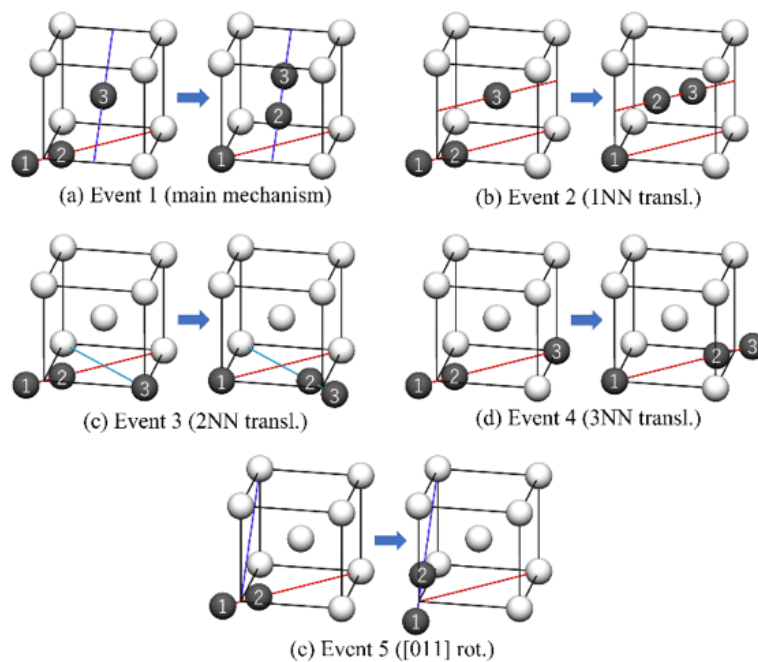


図 3.1-12 先行研究⁽⁵⁾で提案された5つのSIAの拡散メカニズム

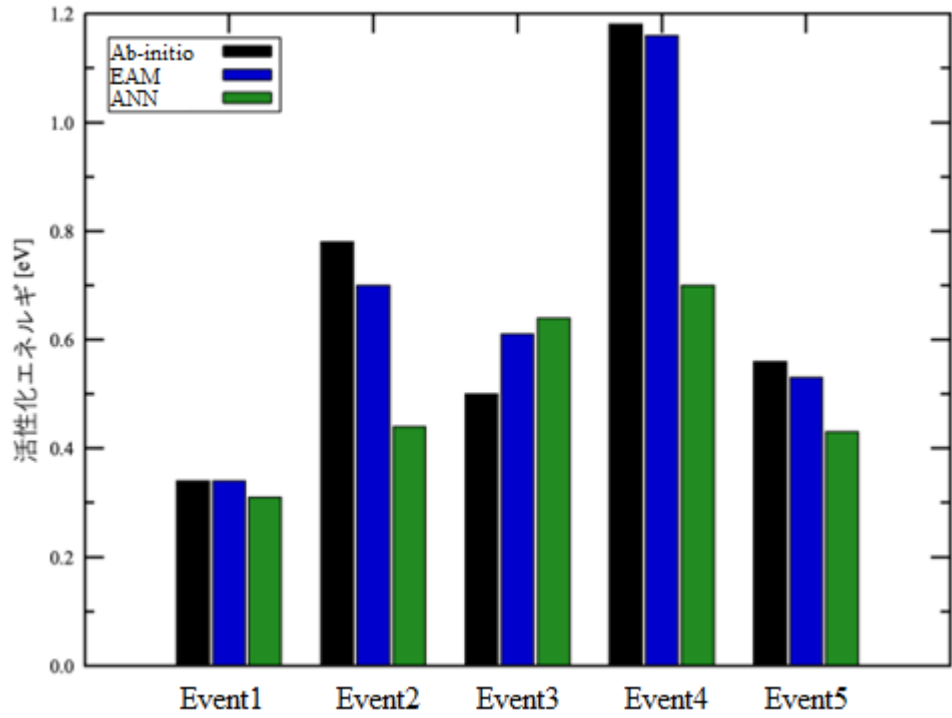


図 3.1-13 第一原理計算・EAM ポテンシャル・ANN ポテンシャルによる NEB 解析で得られた拡散メカニズム Event1~Event5 の活性化エネルギー

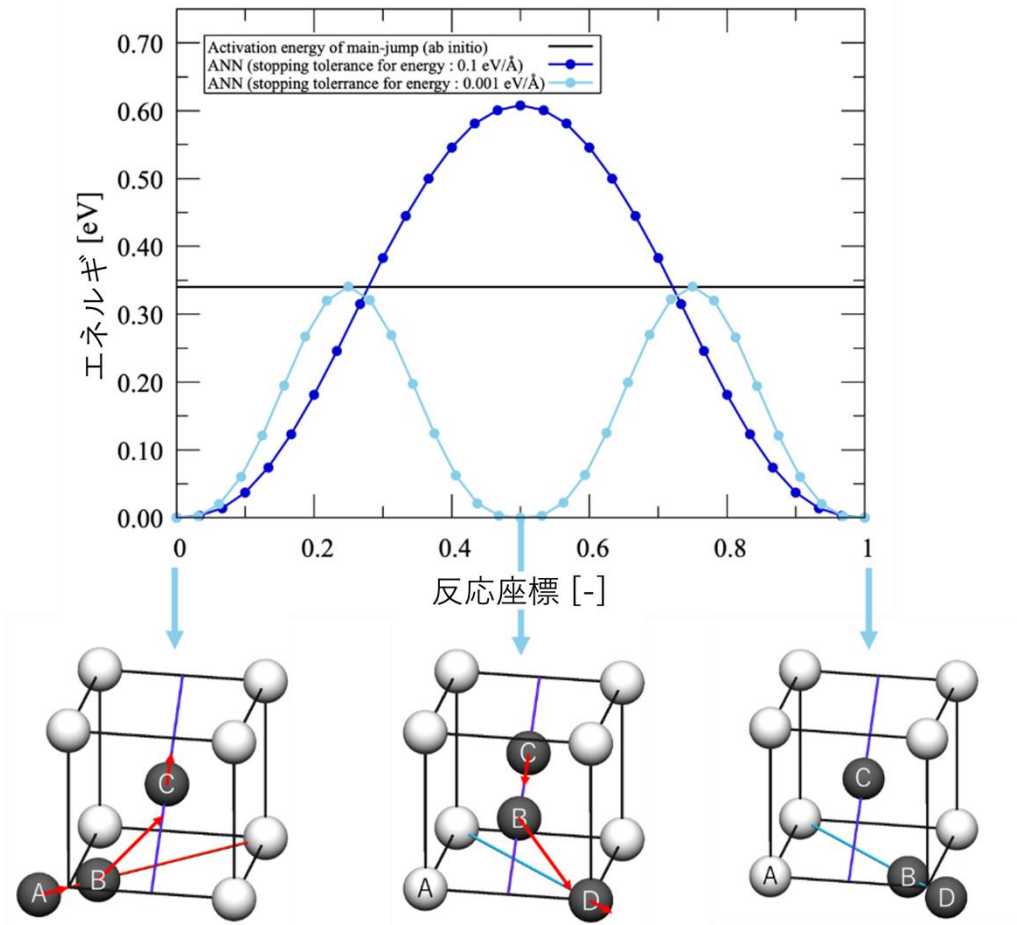
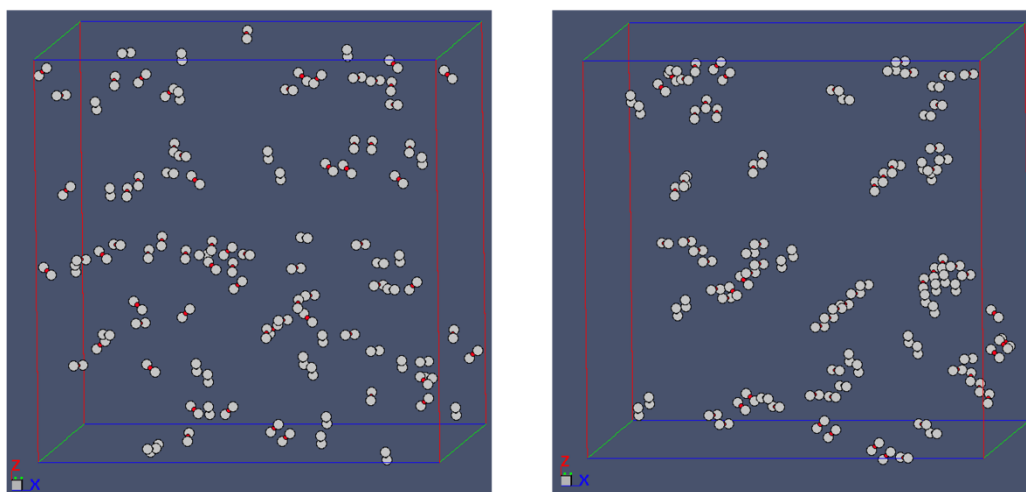


図 3.1-14 Event3 におけるより優位なエネルギー経路の算出

【R5】

令和5年度は、キネティックモンテカルロ法コードの開発と照射を想定した解析を実施した。キネティックモンテカルロ法コードの開発では、3.1.1項で開発した純鉄中の欠陥の拡散の活性化エネルギーを学習したニューラルネットワークをキネティックモンテカルロ法コードに実装した。これにより、複数のSIAの相互作用を考慮可能なキネティックモンテカルロ法コードを開発した。照射を想定した解析では、計算に用いた温度条件は、600 Kとし、計算領域は一辺の長さが5.6706 nm (20格子分) の立方体であり、全方向に周期境界条件を課し、表面のないバルクの状態を仮定した。この計算モデルに100個のSIAをランダムに挿入し、計算を行った。図3.1-15に得られた結果を示す。(a)は計算前のSIAの配置で(b)は計算後のSIAの配置である。計算前は離れて位置していたSIAだが、それぞれのSIAが拡散を繰り返すことによってSIAクラスターが形成されることが確認できた。以上により、純鉄中の欠陥の拡散の活性化エネルギーを学習したニューラルネットワークにより推論した活性化エネルギーを用いるキネティックモンテカルロ法プログラムで、照射を想定した解析を実施し、照射損傷の特徴的な性状である格子間原子集合体（プリズマティック転位ループ）の形成を再現することに成功した。



(a) 計算前

(b) 計算後

図 3.1-15 複数の SIA を挿入したキネティックモンテカルロ法による数値解析結果

参考文献

- (1) J. Gilmer, S. S. Schoenholz, P. F. Riley, O. Vinyals, G. E. Dahl, “Neural Message Passing for Quantum Chemistry”, Proceedings of the 34th International Conference on Machine Learning, PMLR 70, 2017, 1263-1272, 2017.
- (2) G. J. Ackland, M. I. Mendeleev, D. J. Srolovitz, S. Han, A. V. Barashev, “Development of an interatomic potential for phosphorus impurities in α -iron”, Journal of Physics: Condensed Matter, 16, 2004, S2629-S2642.
- (3) T. Kumagai, K. Suzuki, A. Nomoto, S. Hara, A. Takahashi, “Prediction of the

binding energy of self interstitial atoms in alpha iron by a graph neural network” , *Materialia*, 33, 2024, 101977.

- (4) H. Mori, T. Ozaki, “Neural network atomic potential to investigate the dislocation dynamics in bcc iron” , *Physical Review Materials*, 4, 2020, 040601(R).
- (5) L. Malerba, M.C. Marinica, N. Anento, C. Björkas, H. Nguyen, C. Domain, F. Djurabekova, P. Olsson, K. Nordlund, A. Serra, D. Terentyev, F. Willame, C.S. Becquart, “Comparison of empirical interatomic potentials for iron applied to radiation damage studies” , *Journal of Nuclear Materials*, 406, 2010, 19–38.

3.2 らせん転位の運動に照射損傷が及ぼす影響の古典分子動力学法解析 【R3-R5】

【R3-R4】

令和3年度は、EAMポテンシャル⁽¹⁾を用いてらせん転位と格子間原子型のプリズマティック転位ループの相互作用計算を行なった。本研究では、らせん転位がプリズマティック転位ループを通過する際に必要な臨界分解せん断応力 (Critical Resolved Shear Stress: CRSS) を計算するためにせん断ひずみ制御による計算を行い、せん断応力-せん断ひずみ線図を取得した。また、らせん転位とプリズマティック転位ループのバーガスベクトルの組み合わせ、プリズマティック転位ループの大きさ(半径)、系の温度を変更した計算を行い、反応メカニズムおよびCRSSの変化を調べた。らせん転位とプリズマティック転位ループが反応するとヘリカル転位が形成されることが確認された。ヘリカル転位の形成メカニズムはバーガスベクトルの組み合わせによって二つのパターンがあり、バーガスベクトルのどの組み合わせにおいてもヘリカル転位を形成する可能性があることが判明した。なお、ヘリカル転位の形成メカニズムはプリズマティック転位ループの半径が小さく、系の温度が高いほど発生しやすいことが判明した。臨界分解せん断応力はプリズマティック転位ループの半径が大きいほど、系の温度が低いほど大きい傾向を示し、ヘリカル転位を形成することでCRSSは上昇することが判明した。

令和4年度は、機械学習型原子間ポテンシャル⁽²⁾を導入し、らせん転位と格子間原子型のプリズマティック転位ループの相互作用計算を行なった。最初に、機械学習型ポテンシャルを使用した計算におけるらせん転位の挙動を確認した。せん断ひずみ制御の計算を行った結果、らせん転位は最大のせん断応力が発生するすべり面上を安定してすべることが確認された。この結果は実験で観察されていた傾向⁽³⁾と一致しており、機械学習型原子間ポテンシャルの信頼性が確認できた。次に、令和3年度と同様の手法、計算条件でらせん転位と格子間原子型のプリズマティック転位ループの相互作用計算を行った。図3.2-1は作成したせん断応力-せん断ひずみ線図の一例である。図3.2-2は図3.2-1と対応した転位のスナップショットであり、(A)点手前まで弾性変形が進み、(A)点から(B)点にかけて、らせん転位とプリズマティック転位ループが反応してヘリカル転位を形成し、その分塑性変形が発生することにより、この塑性変形により応力が低下する。その後ヘリカル転位が動かないまま、弾性変形が進み、(C)点から(D)点にかけて、再度らせん転位とプリズマティック転位ループに分裂する様子を示している。機械学習型原子間ポテンシャルにおいても二つのヘリカル転位形成メカニズムが確認され、プリズマティック転位ループの半径が小さく、系の温度が高いほどヘリカル転位の形成メカニズムが発生しやすい傾向を示した。CRSSの傾向も令和3年度と同様に、プリズマティック転位ループの半径が大きいほど、系の温度が低いほど大きい傾向を示し、ヘリカル転位を形成することでCRSSは上昇することが判明した。

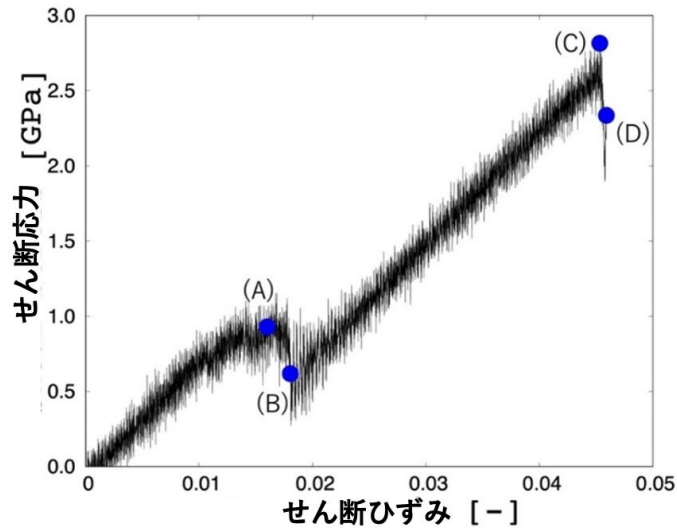


図 3.2-1 せん断応力—せん断ひずみ線図

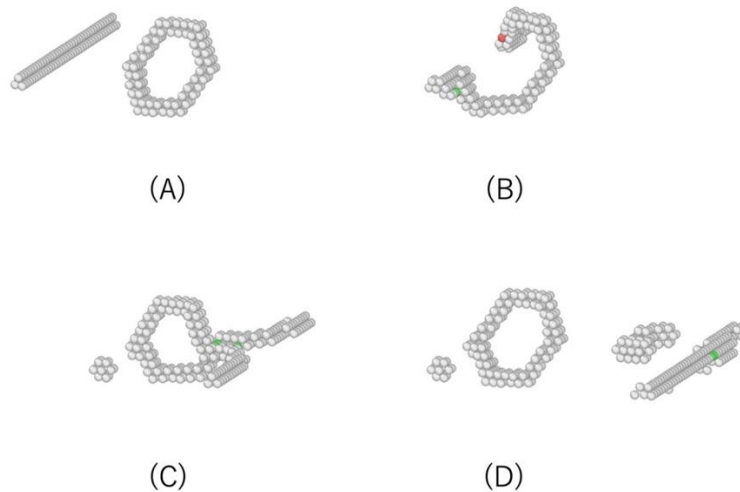


図 3.2-2 らせん転位とプリズマティック転位ループの反応

【R5】

令和 5 年度は、プリズマティック転位ループの影響によるらせん転位の CRSS の増分を定量的に評価する式の定式化を行った。全てのバーガースベクトルの組み合わせでヘリカル転位が形成することが判明していることから、本研究ではヘリカル転位の形成を前提として定式化を行った。また、臨界分解せん断応力の増分を評価したのは、3.3 節にて紹介する摩擦応力にプリズマティック転位ループの影響を導入できる式形状とするためである。最初に、考慮するパラメータを増やすために追加計算を行った。変更した値はらせん転位の周期方向の計算領域の大きさであり、プリズマティック転位ループ間の距離をパラメータとして評価することが可能になった。整理した結果、CRSS は系の温度には依存していないことが判明した。一方でプリズマティック転位ループが大きいほど、プリズマティック転位ループ間の距離が小さいほど CRSS は大きくなることが判明した。次に、ヘリカル転位がらせん転位とプリズマティック転位ループに分裂するために必要なエネルギーに着目して定式化を行った。ヘリカル転位が

分裂する前後のエネルギーの関係を図 3. 2-3 に示す。 ΔE はらせん転位とプリズマティック転位ループの合計のエネルギーとヘリカル転位単体のエネルギーの差であり、 W は外部から与えられたエネルギーである。本研究では $\Delta E = W$ となる時ヘリカル転位が分裂すると考えた。外部から与えたエネルギー W はせん断応力による仕事であり、せん断応力-せん断ひずみ線図が直線になっていることから、弾性論によるひずみエネルギー密度と体積の積で表される。

$$W = \frac{\Delta CRSS^2}{2G} V \quad (3. 2-1)$$

G , V はそれぞれせん断弾性定数、系の体積である。一方、仮定より、外部から与えたエネルギー W はヘリカル転位の分裂前後の自己エネルギー差と等しいため、らせん転位、転位ループ、ヘリカル転位の自己エネルギーをそれぞれ E_S , E_L , E_H とすると、以下のように計算することができる。

$$W = (E_S + E_L) - E_H \quad (3. 2-2)$$

よって、式(3. 2-1)、(3. 2-2)より $\Delta CRSS$ は、次式で計算することができる。

$$\Delta CRSS = \sqrt{\frac{2G}{V} \{(E_S + E_L) - E_H\}} \quad (3. 2-3)$$

式(3. 2-3)中の E_S , E_L , E_H には、先行研究によって導出された式を用いる⁽⁵⁾⁽⁶⁾。また、系の体積は、 $V = \alpha d^3$ とし、ここで α , d は、それぞれフィッティングパラメータ、ヘリカル転位の間隔である。最終的に提案した式と古典分子動力学法の結果を比較したグラフを図 3. 2-4 と図 3. 2-5 に示す。 α を調節することにより古典分子動力学法の結果を再現することに成功した。

以上により ANN ポテンシャルを用いた古典分子動力学法計算を用いて、照射欠陥であるプリズマティック転位ループが含まれる純鉄モデルにおいて、様々な条件下で、らせん転位とプリズマティック転位ループが作用する数値解析を行い、らせん転位とプリズマティック転位ループが相互作用することによりヘリカル転位が形成することを明らかにし、その相互作用の結果としての CRSS の増分を定式化することができた。

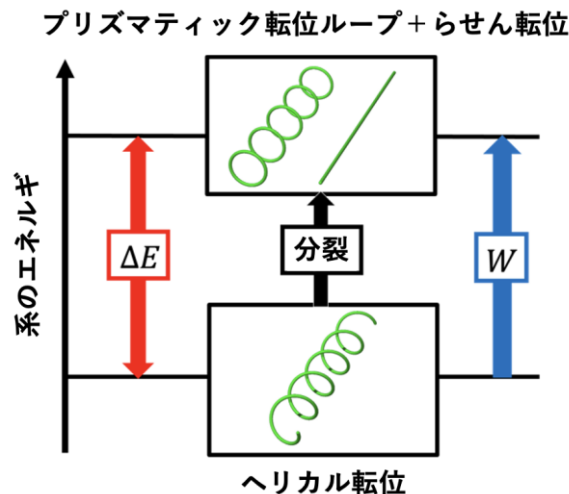


図 3. 2-3 ヘリカル転位が分裂する前後の系のエネルギーの模式図

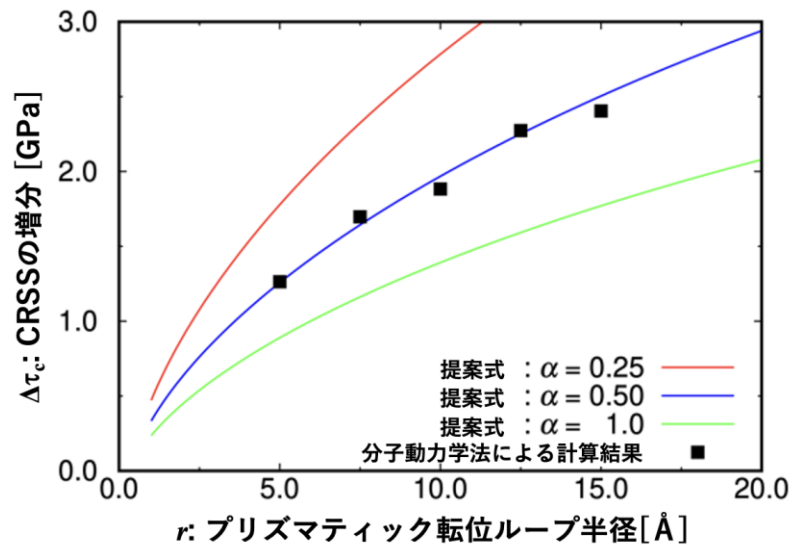


図 3.2-4 提案した式と古典分子動力学法の結果の比較
(プリズマティック転位ループ半径の影響)

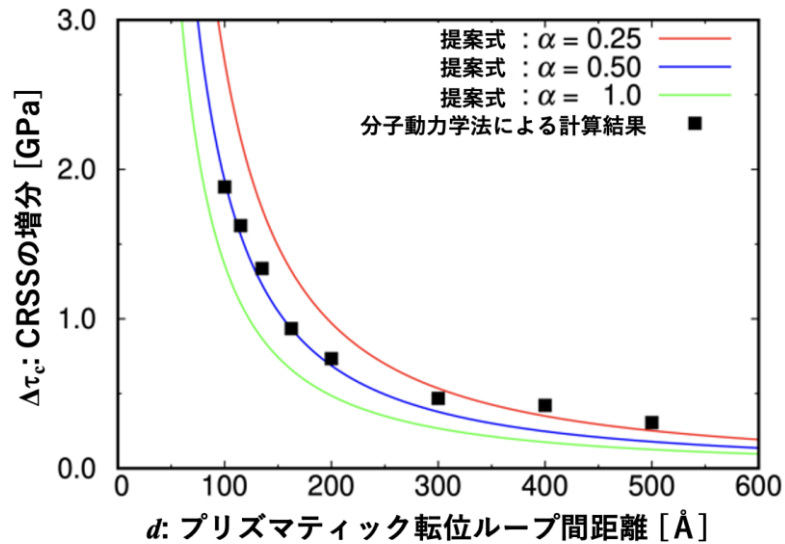


図 3.2-5 提案した式と古典分子動力学法の結果の比較
(プリズマティック転位ループ間距離の影響)

参考文献

- (1) M. I. Mendeleev, S. Han, D. J. Srolovitz, G. J. Ackland, D. Y. Sun and M. Asta, Development of new interatomic potentials appropriate for crystalline and liquid iron, Philosophical Magazine, 83, 2003, 3877-3994.
- (2) H. Mori and T. Ozaki, Neural network atomic potential to investigate the dislocation dynamics in bcc iron, Physical Review Materials, 4, 2020, 040601-040606.
- (3) D. Caillard, Kinetics of dislocations in pure Fe. Part I. In situ straining

- experiments at room temperature, *Acta Materialia*, 58, 2010, 3493-3503.
- (4) R. de Wit, The Continuum Theory of Stationary Dislocations, *Solid-State Physics*, 10, 1959, 249-291.
- (5) J. P. Hirth, and J. Lothe, *THEORY OF DISLOCATIONS*, Second Edition, 1982, 168-169.
- (6) F. Seitz, and D. Turnbull, *Solid State Physics*, 10, 1960, 282-292.

3.3 照射欠陥が転位挙動に及ぼす影響を考慮した離散転位動力学法による破壊靱性の計算（再委託先：理科大）【R3-R5】

【R3-R4】

令和3年度は、離散転位動力学法において、亀裂のある材料の破壊靱性値を計算する手法を検討し、巨視的亀裂付近において、微視的亀裂が破壊開始するために必要な破壊靱性値を計算する方法⁽¹⁾が有効であるとの見通しを得た。この方法に基づいた離散転位動力学法解析プログラムを開発し、巨視的亀裂と微視的亀裂、および亀裂から放出された転位全てが直接相互作用する巨視的亀裂—微視的亀裂連成解析の試解析を実施し、破壊靱性値を計算できる見通しを得た。

令和4年度は、微視的亀裂から放出された転位が亀裂先端部に及ぼす応力の遮蔽効果について、モデルの妥当性を理論との比較を通じて検討した（図3.3-1）。遮蔽効果を考慮した微視的亀裂の応力拡大係数の計算値と理論値⁽²⁾が一致し、モデルの妥当性が示された。また、転位の熱活性化過程を考慮した離散転位動力学解析では、微視的亀裂の破壊挙動に関して、2つの主要なメカニズムが得られた。図3.3-2と図3.3-3には、それぞれのメカニズムの微視的亀裂の応力拡大係数の推移と破壊が発生した際の解析のスナップショットを示している。図3.3-2では、巨視的亀裂に近い側の微視的亀裂先端の応力拡大係数が先に臨界値に達する。このメカニズムでは、微視的亀裂の破壊開始により、巨視的亀裂の破壊の起点となると考えることができるため、脆性的な破壊と分類した。一方、図3.3-3では、巨視的亀裂から遠い側の微視的亀裂先端が先に臨界値に達する。この微視的亀裂の破壊開始によっては、直接的に巨視的亀裂の破壊の起点とならないため、非脆性的な破壊と分類した。巨視的亀裂の破壊の起点となる脆性的な破壊と直接的な起点とならない非脆性的な破壊が温度の上昇により遷移する過程を示し、これに基づいて、延性脆性遷移温度を計算できる見通しを得た。

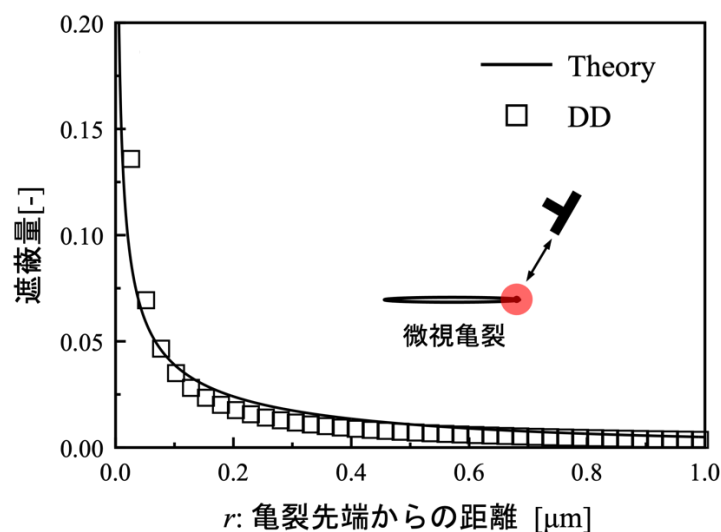
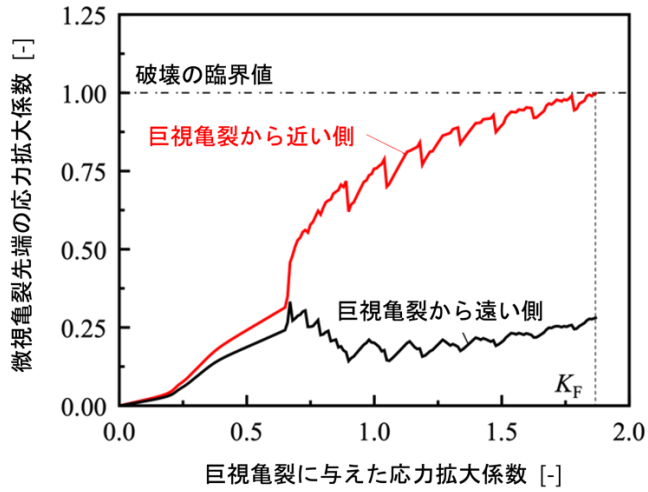
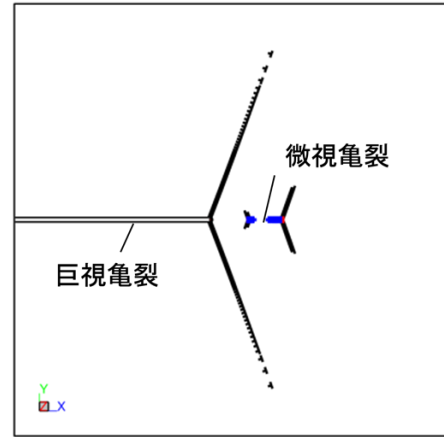


図3.3-1 放出された転位が亀裂先端に及ぼす遮蔽効果

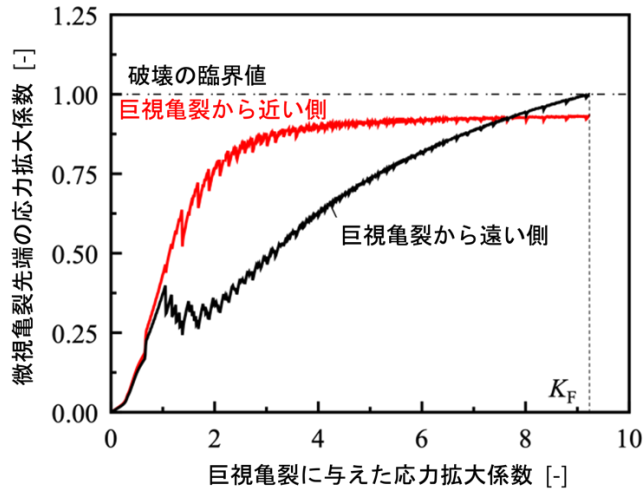


(a) 微視的亀裂の応力拡大係数

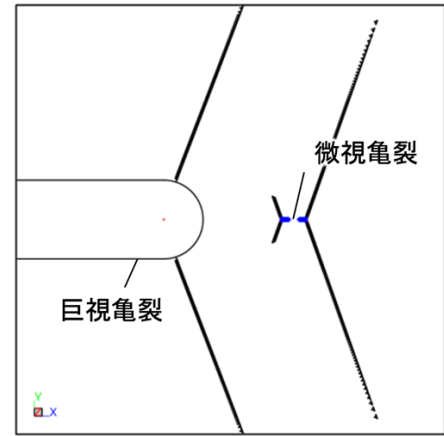


(b) 破壊が発生した際の解析のスナップショット

図 3.3-2 脆性的な破壊



(a) 微視的亀裂の応力拡大係数の推移



(b) 破壊が発生した際の解析のスナップショット

図 3.3-3 非脆性的な破壊

【R5】

令和 5 年度は、キネティックモンテカルロ法で得られた照射損傷を考慮した計算モデルについて離散転位動力学解析を行い、破壊靱性の温度依存性を調べて、延性脆性遷移温度の算出を行った。ここで、転位の放出条件は、せん断応力 τ に対し、

$$\tau > 2\tau_y(T) = \sigma_y(T) \quad (3.3-1)$$

とした。ここで、 T 、 $\tau_y(T)$ 、 $\sigma_y(T)$ はそれぞれ温度、せん断降伏応力、降伏応力である。転位速度 v は、

$$v = \begin{cases} \left(\frac{|\tau - \tau_f| - \tau_y(T)}{|\tau - \tau_f|} \right) (|\tau - \tau_f|)^m A \exp\left(\frac{-E_a}{k_B T}\right) & \text{for } |\tau - \tau_f| \geq \tau_y(T) \\ 0 & \text{else} \end{cases} \quad (3.3-2)$$

とした。ここで、 τ_f 、 E_a 、 k_B はそれぞれ摩擦応力、活性化エネルギー、ボルツマン定数で、 A 、 m はパラメータである。

具体的には、キネティックモンテカルロ法によりプリズマティック転位ループの形成を計算し、さらにその分布の情報から、本研究によって導出されたらせん転位とプリズマティック転位ループの相互作用による臨界分解せん断応力の式を用いて臨界分解せん断応力の上昇量を計算する。この上昇量を転位運動の抵抗として働く摩擦応力として、亀裂から放出された転位の運動モデルに関して、照射損傷が転位運動に与える影響として与えた。これにより、照射損傷が転位運動に与える影響を含む破壊靱性値、および延性脆性遷移温度の算出が可能となった。図 3.3-4 に各摩擦応力における破壊靱性値と温度の関係を示す。温度の上昇に伴い、破壊様式は脆性から非脆性に遷移する傾向を示しており、延性脆性遷移温度に関連する温度は、破壊様式が変化する温度から算出することができる。この延性脆性遷移は、温度の上昇により、式(3.3-1)に示す転位の放出条件と、式(3.3-2)に示す転位の速度が変化したことによる。また、図 3.3-5 に摩擦応力と遷移温度の上昇量の関係を示す。計算された延性脆性遷移温度に関連する温度は摩擦応力の増加に伴い上昇する傾向を示した。また、これらの関係は過去の実験で得られた中性子照射による遷移温度の上昇量と摩擦応力に関連する降伏応力の上昇量の線形関係⁽³⁾と定性的に一致する傾向を示し、予測された延性脆性遷移温度の上昇量の妥当性を示した。

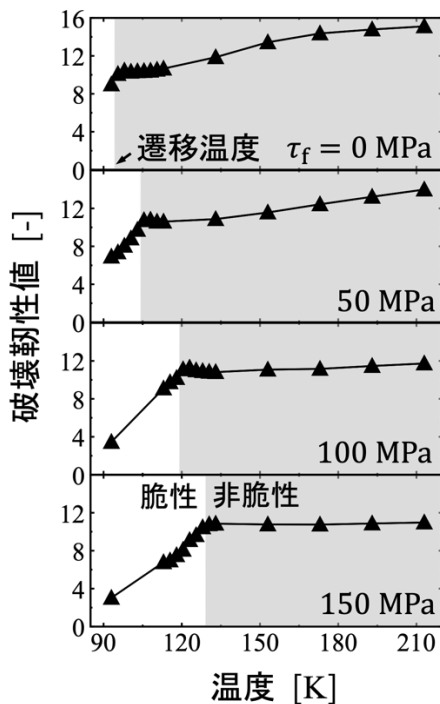


図 3.3-4 各摩擦応力における破壊靱性値と温度の関係

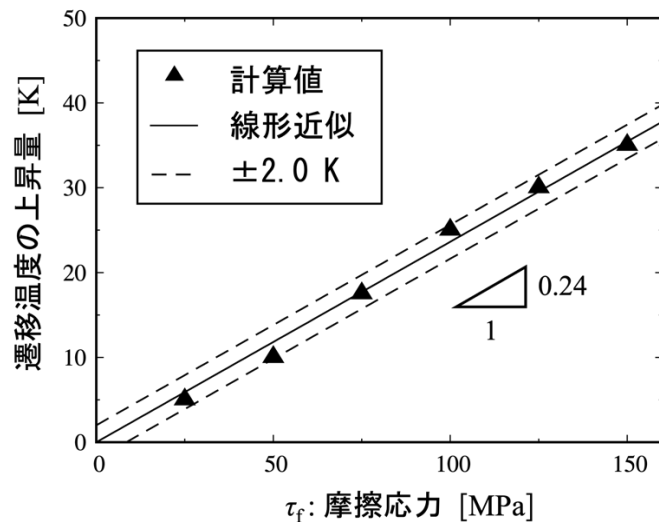


図 3.3-5 摩擦応力と遷移温度の上昇量の関係

参考文献

- (1) S. J. Noronha, N.M. Ghoniem, “Modeling the brittle-ductile transition in ferritic steels: dislocation simulations”, International Journal of Mechanics and Materials Design, 4, 2008, 1-12.

- (2) J.ワートマン, 転位に基づく破壊力学, 培風館, 2000, 167-174.
- (3) G.R. Odette, G.E. Lucas, “Recent progress in understanding reactor pressure vessel steel embrittlement”, Radiation Effect & Defects in Solid, 144, 1998, 189-231.

3.4 研究推進 【R3～R5】

各機関の研究代表者の下で各研究項目内における連携を密にして研究を進めるとともに、表 3.4-1 に示すように機関間での連携のために研究委員会をおよそ毎月 1 回、合計 23 回対面およびオンラインで開催した。研究委員会では主に研究の進捗報告を行って進捗度を確認するとともに、次ステップでの実施事項を議論・決定した。

本委託業務では、機械学習技術を用いているが、研究担当者が機械学習分野の専門家ではないため、表 3.4-2 に示すように機械学習分野の専門家である PA から研究指導を受けるミーティングをおよそ毎月 1 回、合計 26 回オンラインで行った。ミーティングでは、PA に対して進捗報告を行い、それに対して研究指導を受けた。

そのほかでは 2022/10/26 に、破壊力学の専門家（電中研・三浦直樹氏）より転位動力学法解析について聴取した。また、2023/7/14 に照射脆化材観察・評価の専門家（北海道大学・橋本直幸氏）より実験面からの意見について聴取した。

表 3.4-1 研究委員会の日程と概要

| 回次 | 日付 | 概要 |
|----------------|------------|-----------------------|
| 2021 年度 第 1 回 | 2021/9/10 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2021 年度 第 2 回 | 2021/10/20 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2021 年度 第 3 回 | 2021/11/17 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2021 年度 第 4 回 | 2021/12/16 | 研究の進捗報告、次ステップ・まとめ方の議論 |
| 2021 年度 第 5 回 | 2022/1/12 | 研究のまとめ報告 |
| 2022 年度 第 1 回 | 2022/4/20 | 年間計画説明、研究の進捗報告 |
| 2022 年度 第 2 回 | 2022/5/18 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2022 年度 第 3 回 | 2022/6/15 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2022 年度 第 4 回 | 2022/7/15 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2022 年度 第 5 回 | 2022/9/21 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2022 年度 第 6 回 | 2022/10/14 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2022 年度 第 7 回 | 2022/11/14 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2022 年度 第 8 回 | 2022/12/21 | 研究のまとめ報告、研究の進捗報告 |
| 2023 年度 第 1 回 | 2023/4/19 | 年間計画説明、研究の進捗報告 |
| 2023 年度 第 2 回 | 2023/5/17 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2023 年度 第 3 回 | 2023/6/16 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2023 年度 第 4 回 | 2023/8/4 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2023 年度 第 5 回 | 2023/9/20 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2023 年度 第 6 回 | 2023/10/19 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2023 年度 第 7 回 | 2023/11/15 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2023 年度 第 8 回 | 2023/12/20 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2023 年度 第 9 回 | 2024/1/24 | 研究の進捗報告、次ステップの議論 |
| 2023 年度 第 10 回 | 2024/2/21 | 研究のまとめ報告、研究の進捗報告 |

表 3.4-2 PA ミーティングの日程と概要

| 回次 | 日付 | 概要 |
|-------------|------------|--------------------------|
| 2021年度 第1回 | 2021/9/7 | 研究全体の紹介・進め方の確認 |
| 2021年度 第2回 | 2021/10/22 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2021年度 第3回 | 2021/11/19 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2021年度 第4回 | 2021/12/17 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2021年度 第5回 | 2022/1/14 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第1回 | 2022/4/22 | 年間計画説明、研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第2回 | 2022/5/19 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第3回 | 2022/6/22 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第4回 | 2022/7/22 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第5回 | 2022/9/22 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第6回 | 2022/10/21 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第7回 | 2022/11/25 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第8回 | 2022/12/16 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第9回 | 2023/1/20 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2022年度 第10回 | 2023/2/17 | 研究のまとめ報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第1回 | 2023/4/27 | 年間計画説明、研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第2回 | 2023/5/30 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第3回 | 2023/6/27 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第4回 | 2023/7/28 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第5回 | 2023/8/23 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第6回 | 2023/9/29 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第7回 | 2023/10/20 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第8回 | 2023/11/24 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第9回 | 2023/12/22 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第10回 | 2024/1/26 | 研究の進捗報告、PAによる研究指導 |
| 2023年度 第11回 | 2024/3/4 | 研究のまとめ報告、PAによる研究指導 |

4 結言

本委託業務では、SMR 実運用条件下における中性子照射脆化データの実験的取得が難しいことを念頭に、これを補う数値シミュレーション手法の開発を目指し、主として近年進展の著しい機械学習技術を応用した計算科学手法を用いた数値シミュレーションによりナノメートルスケールからマクロスケールに至る照射脆化評価を行うため、以下に記述するような数値解析技術の開発・解析の実施を行った。

ANN ポテンシャルを使用した NEB 解析により、純鉄中の格子間原子の拡散挙動を明らかにし、キネティックモンテカルロ法における発生イベントの選定を行った。計算負荷低減のため、SIA 間結合をノード、SIA 間 3 体関係をエッジとする GNN により始状態と終状態のエネルギーを予測し、鞍点状態のエネルギーを通常の NN で予測するアプローチを提案し、第一原理計算により精度が確認できた ANN ポテンシャルを用いて活性化エネルギーを予測できることを確認した。この GNN と NN を用いたキネティックモンテカルロ法解析を行い照射損傷の形状である SIA 集合体の形成を再現することができた。

らせん転位に SIA 集合体から形成されるようなプリズマティック転位ループに衝突させる古典分子動力学法計算解析により、ヘリカル転位の形成メカニズムはバーガースベクトルの組み合わせによって二つのパターンがあり、バーガースベクトルのいずれの組み合わせにおいてもヘリカル転位を形成する可能性があることを明らかにした。また、らせん転位がプリズマティック転位ループを抜けるまでの応力の増分を定式化し、古典分子動力学法解析結果と一致することを確かめた。

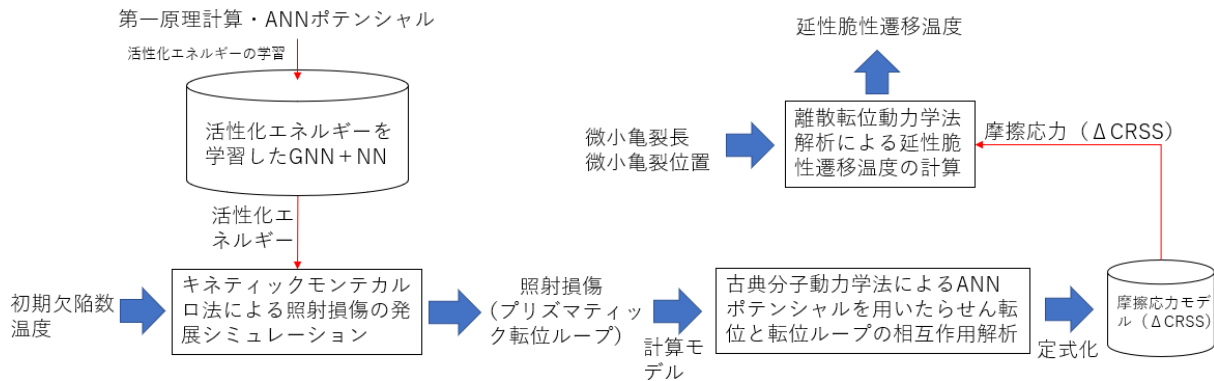


図 4-1 本委託業務で用いた計算手法の関係図

巨視的亀裂と微視的亀裂、および亀裂から放出された転位全てが直接相互作用する巨視的亀裂—微視的亀裂連成離散転位動力学法解析プログラムを開発した。離散転位動力学法解析を実施したところ、微視的亀裂の破壊挙動に関して、巨視的亀裂に近い側の微視的亀裂先端の応力拡大係数が先に臨界値に達するメカニズムと巨視的亀裂から遠い側の微視的亀裂先端が先に臨界値に達するメカニズムが得られ、それぞれ脆性的な破壊、非脆性的な破壊と分類した。温度の上昇に伴い、破壊様式は脆性から非脆性に遷移する傾向を示し、計算された延性から非脆性に遷移する温度は古典分子動力学法解析に基づいてモデル化される摩擦応力の増加に伴い上昇した。これらの傾向は実験と一致しており、解析の妥当性が示された。上記の数値解析技術の関係は図 4-1 に示す通りとなり、数値解析に基づいた

マルチスケール照射脆化予測技術となった。

本研究は SMR で重要となる鉄のマトリックス損傷を対象に照射脆化評価を行う数値解析技術を開発した。しかし、SMR でも合金鋼が使用されて、中性子照射により合金元素は溶質原子クラスターを形成したり、マトリックス損傷に合金元素が装飾されたりする可能性などが考えられる。従って、本委託業務で開発した鉄を対象とした数値解析技術を合金系へと拡張することが実機適用に向けて有効となる。このためには、まず、合金系 AN ポテンシャルの開発およびこれに基づく古典分子動力学法による合金系における照射損傷と転位の相互作用解析を実施する必要がある。次に、照射損傷形態を得るためのキネティックモンテカルロ法では、合金系の活性化エネルギーを計算する高速計算手法の開発が必要となる。さらに、実用化に向けては手法の信頼性を高めるため実験・観察による検証も重要となる。微視的亀裂における亀裂伝播の観察による妥当性の検証や、同様の系における計算と実験の延性脆性遷移温度の変化の比較による妥当性の検証やデータ同化などが必要となると考えられる。