

令和 6 年 6 月 16 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20H02662

研究課題名(和文) 構造材料微細組織発達を対象とした分子シミュレーションにおける時間スケールの拡張

研究課題名(英文) Extending the timescale in molecular simulations on microstructural evolution of structural materials

研究代表者

沖田 泰良 (OKITA, Taira)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・特任准教授

研究者番号：50401146

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,500,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、各時間ステップで活性化過程探索(SPS)を行い、state-to-stateダイナミクスに基づき時間を進展させる計算手法の一つであるSelf-Evolving atomistic kinetic Monte Carlo に対し、SPSを高速化させる2つのスキームを開発することで、原子レベルの精緻性を保持しつつ分子動力学で扱えるよりも長い時間スケールの現象を再現する手法を構築した。また、同法を高エネルギー粒子照射環境で形成する自己格子間原子集合体に適用し、複数回の原子拡散を伴って安定形態である積層欠陥転位ループや完全転位ループに変換する過程を世界で初めて確認することに成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

従来の分子動力学(MD)では時間スケールが通常100ピコ秒オーダーであったため、再現できる現象が極めて限られていた。しかしながら、本研究で開発した手法はMDと同等の精度を確保しつつ、時間スケールを大幅に拡張することも可能なため、原子レベルの挙動に基づいて複数回の拡散過程を伴うナノ組織発達を解析する上で大変強力な手法と考えられる。

研究成果の概要(英文)：In this study, we developed two schemes to accelerate saddle process searches (SPS) against Self-Evolving atomistic kinetic Monte Carlo, which is one of the computational methods for time evolution based on state-to-state dynamics by performing SPS at each time step. It enabled to reproduce phenomena on longer time scales than can be handled by molecular dynamics while maintaining the atomistic fidelity. We applied this newly-developed method to clusters of self-interstitial atoms formed under a high-energy particle irradiation, and we successfully observed their conversion processes to stable configurations such as faulted dislocation loops or perfect loops with multiple atomistic diffusion for the first time in the world.

研究分野：原子力材料

キーワード：モンテカルロ法 結晶欠陥 拡散 カスケード損傷 on-the-fly モンテカルロ法

1. 研究開始当初の背景

原子力材料に於いては、放射線との相互作用により、熱平衡条件下では存在しなかった高濃度の原子空孔と共に自己格子間原子が形成し、これらの拡散に伴う微細組織変化を介し、構成する機器のマクロな機械特性変化が引き起こされる。これらの過程は、時間スケールで原子振動に相当する 10^{-13} sオーダーから機器の寿命に相当する $10^8 \sim 10^9$ sオーダーに至る様々なスケールを包含し、且つ微小スケール事象によりそれ以降のスケール事象が決定づけられる典型的なマルチスケール現象である。

これらの過程を解明する上で、極短時間に発生する微細挙動に関しては主として分子動力学 (MD) が用いられ、包括的な理解に多大な貢献をしてきた。しかし、MDでは、 10^{13} Hzオーダーで発生する原子振動を扱うアルゴリズム上、時間刻み幅を 10^{-15} sオーダーに設定する必要があるため、再現できる実質的な時間スケールは、 $10^{-9} \sim 10^{-8}$ sオーダーに制限される。すなわち、MDのみで実時間に発生する現象を再現すること、それに基づいて材料劣化挙動を予測することは到底不可能である。

時間スケールを拡張する計算手法として、kinetic Monte Carlo (kMC) に代表されるstate-to-state ダイナミクスが検討されてきた [1]。この手法では、着目するダイナミクスを1つのイベントとしてモデル化するため (図1)、原子振動周期の長さの影響を受けることなく、比較的待ち時間の長い現象も再現できることが特徴である。このため、対象とするダイナミクスによっては、 10^{-6} s以上の現象も取り扱うことが可能となる。しかし、従来のkMCでは、そのアルゴリズムの性質上、全ての発生しうるイベントを事前にリストアップしておく必要がある。このため、人知の及ばないような複雑な現象を取り扱うことが一切できず、本質的なダイナミクスを見逃す可能性がある [2]。

原子レベルの精度を保ちつつ時間スケールを拡張する手法として、on-the-fly kMCが、近年漸く開発された [3]。この手法は、各ステップでSPSを行い発生イベントを導出する方法であり、従来のkMCで必要であった事前のイベントリストが不要な方法である。On-the-fly kMCの一つであるSelf-

Evolving Atomistic kMC [4] (SEAKMC) のアルゴリズムを図2に示す。SEAKMCの大きな特徴として、Active volume (AV) を設定することが挙げられる (図3)。AV領域外の原子を固定させることで、系のエネルギー曲面の次元数を著しく低減させる。これに対してDimer [5] を用いたSPSを行うことで、計算コストの大幅な削減を達成した。SEAKMCはAVの設定により他のon-the-fly kMCと比較して長時間の現象まで取り扱うことが可能であるが、従来手法では

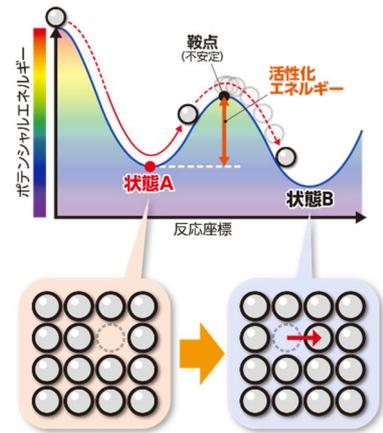


図1 state-to-state ダイナミクスによる微視的挙動モデル化

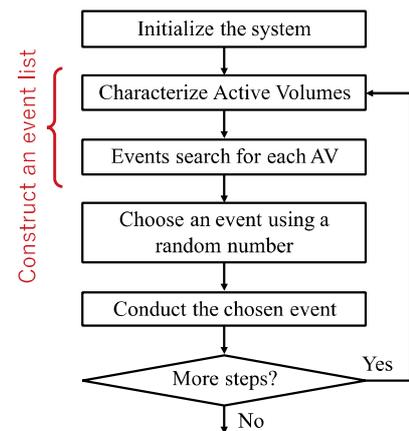


図2 SEAKMCのフローチャート

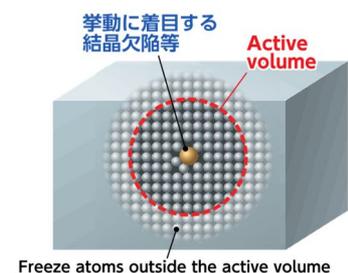


図3 AVの設定

ステップ毎にSPSを行いリストを作成する過程で大半の計算コストを要し、様々なメゾ時間スケール現象をモデル化する上での、実用化・適用性を妨げる要因となっていた。すなわちSEAKMCにおいてSPSを高速化することは、原子レベルの精度を保持しつつ、MDの時間スケールを超えた材料挙動の予測手法構築のため、不可欠である。

2. 研究の目的

これらの背景を踏まえて、本研究では、SEAKMCの計算時間のボトルネックであるSPS高速化のため、2つのスキームを構築することを目的とした。すなわち、(1) 過去ステップで得られたSPS結果のリサイクル、及び (2) AVサイズの漸次的増加、である。これらのスキームの完成により、従来のSEAKMCより計算コストを大幅に削減させ、原子レベルの精度を保持しつつ最大で 10^{-6} sオーダまでの材料挙動を解析する手法を構築することが可能となった。さらに、開発した手法の適用として、従来の手法では解析が困難であった (3) 高エネルギー粒子照射 (カスケード損傷) 下で形成する自己格子間原子集合体の安定形態への変化過程をした。

3. 研究の方法

従来のSEAKMCでは、イベント選定後にそのSPS結果をすべて廃棄するため、これまでのデータが一切反映されず、最初からSPSを行う必要があることが課題の一つであった。これを踏まえ、各ステップで得られたSPS結果を保管し、次ステップ以降に類似した原子配置が出現した場合、保管されているSPS結果をリサイクルし、それを初期値としたSPSを行うことで (1)の高速化スキームを確立し、計算コストの大幅な削減に成功した。

また、従来のSEAKMCでは、AVサイズの増加とともに計算コストが飛躍的に高くなることが課題であった。これを踏まえて、まず小さいAVで予備的SPSを行い低い計算コストで求めた概略値を初期値として十分に大きいAVでSPSを開始する二段階のSPSを採用

することで、(2)の高速化スキームを確立し、計算コストの削減に成功した。

図4には、2つのSPS高速化スキームを示す。この2つのスキームは相補的であるため、どのステップでも必ずどちらかのスキームを利用できる。また、(2)と比較して (1)は低い計算コストとなるが、SPS結果のリサイクルはステップ数が進むにつれて適用の可能性が高くなるため、SEAKMCの高速化に極めて効果的である。

4. 研究成果

開発した高速化SEAKMCを、(3) Cuにおけるカスケード損傷下で形成する自己格子間原子集合体の

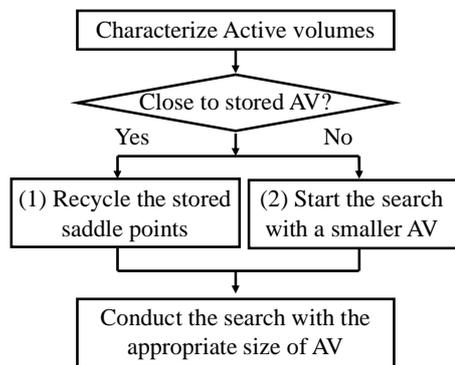


図4 開発した高速化スキームの概要

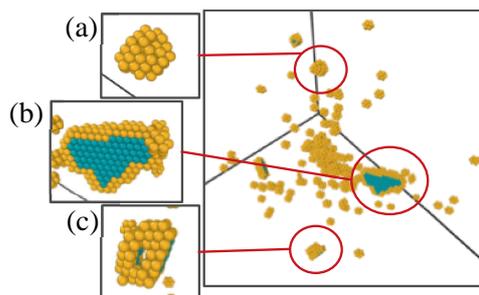


図5 カスケード損傷で形成する格子間原子集合体、水色が積層欠陥を、黄色が不規則形状の原子を示す。

安定形態変化に適用した。図5にはMDにて50keVのエネルギーを付与し、約100ps経過後の欠陥分布スナップショットを示す [6]。MDの結果では、積層欠陥ループ（図中(b)）、完全転位ループ（図中(c)）の他に、実験では観察されないエネルギー的に不安定な不規則形状集合体（図中(a)）も見られる。MDを超えた時間スケールでは、集合体を形成する自己格子間原子が複数回拡散するにより、不規則形状集合体は(b)あるいは(c)に示す安定形態へ変換していくと考えられるが、この過程を再現可能な計算手法がこれまで一切存在しなかった。MDの結果を入力値として本研究で開発した高速化SEAKMCを適用することにより、時間スケールを最大で2桁程度拡張することが可能となり、不規則形状集合体が転位ループに変換していく過程（図6）が世界で初めて確認された。

本研究で開発した手法は、原子スケールの精度を有しつつメゾ時間スケール現象を低いコストで計算する世界で初めてのものであり、極めて画期的・独創的な手法である。また、従来モデリング手法が抱えていたマルチ時間スケール技術部分の脆弱さを大幅に強化するものである。適用先は極めて広範で、照射欠陥集合体の安定形態解析のみならず、第二相の核形成・成長・粗大化に至る過程、転位組織発達過程のモデル化、原子力材料以外でも高温クリープ、焼結材挙動のモデル化等、これまで不可能であった原子スケールの精度でメゾ時間スケールの過程を定量化することが可能となり、その波及効果は極めて大きいと考えられる。

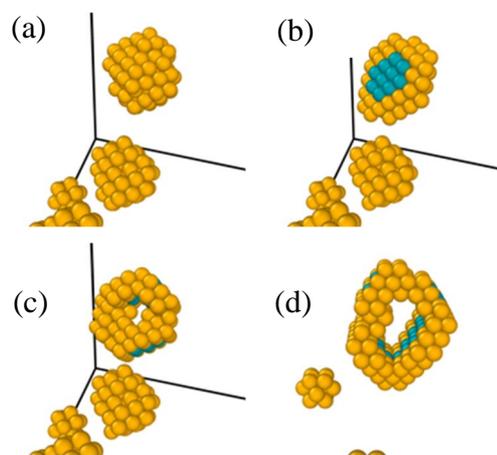


図6 高速化SEAKMCによる自己格子間原子集合体の安定形態への変換過程、水色が積層欠陥を、黄色が不規則形状の原子を示す。

- (a) 0ps、MD結果（図5）を入力値とした
- (b) 847.6 ps、積層欠陥ループへの変換
- (c) 12.6 ns、完全転位ループへの変換
- (d) 14.0 ns、大きな完全転位ループの形成

References

- [1] T. Okita, S. Hayakawa, M. Itakura, M. Aichi, S. Fujita, K. Suzuki, Acta Mater. 118 (2016) 342.
- [2] 沖田泰良, 日本シミュレーション学会誌「シミュレーション」, Vol. 30, No. 2, (2011) 70.
- [3] L.K. Beland, P. Brommer, F. El-Mellouhi, J. Joly, N. Mousseau, Phys. Rev. E 84 (2011) 046704-1
- [4] H. Xu, Y.N. Osetsky, R.E. Stoller, Phys. Rev. B 84 (2011) 132103-1.
- [5] G. Henkelman, H. Jonsson, J. Chem. Phys., 115 (1999) 9657.
- [6] S. Hayakawa, T. Okita, T. Kawabata, M. Itakura, K. Suzuki, J. Mater. Sci. 54 (2019) 11096.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Sarochwakit Rajchawit, Wang Cong, Kumam Poom, Beladi Hossein, Okita Taira, Rohrer Gregory S., Ratanaphan Sutatch	4. 巻 19
2. 論文標題 Grain boundary energy function for iron	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Materialia	6. 最初と最後の頁 101186 ~ 101186
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.mtla.2021.101186	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 HARA Tatsunori, HO Bach Q, SHIRAFUJI Shohei, OKITA Taira, KURIYAMA Yukihisa, KOSHIZUKA Seiichi	4. 巻 2021
2. 論文標題 New educational development of artifactology	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Synthesiology	6. 最初と最後の頁 1 ~ 13
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5571/synth.2021.2_1	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Okita T., Terayama S., Tsugawa K., Kobayashi K., Okumura M., Itakura M., Suzuki K.	4. 巻 202
2. 論文標題 Construction of machine-learning Zr interatomic potentials for identifying the formation process of c-type dislocation loops	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 110865 ~ 110865
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2021.110865	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Mori Syo, Matsuda Nayuta, Okita Taira, Aichi Masaatsu, Itakura Mitsuhiro, Suzuki Katsuyuki	4. 巻 21
2. 論文標題 Modeling changes in the second harmonic generation of ultrasonic waves having wavelengths beyond the length scale of conventional molecular dynamics	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Materialia	6. 最初と最後の頁 101371 ~ 101371
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.mtla.2022.101371	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Okita Taira, Kawabata Tomoya, Murayama Hideaki, Nishino Nariaki, Aichi Masaatsu, School of Engineering, The University of Tokyo 7-3-1 Hongo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan, Graduate School of Frontier Sciences, The University of Tokyo, Kashiwa, Japan	4. 巻 14
2. 論文標題 Digital Twin of Artifact Systems: Models Assimilated with Monitoring Data from Material Microstructures to Social Systems	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 International Journal of Automation Technology	6. 最初と最後の頁 700 ~ 712
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.20965/ijat.2020.p0700	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kosuge Hiroaki, Kawabata Tomoya, Okita Taira, Nako Hidenori	4. 巻 10
2. 論文標題 Accurate Estimation of Brittle Fracture Toughness Deterioration in Steel Structures Subjected to Large Complicated Prestrains	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Crystals	6. 最初と最後の頁 867 ~ 867
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/cryst10100867	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Zhan Jie, Okita Taira, Ye Minyou, Kato Daiji, Suzuki Katsuyuki	4. 巻 187
2. 論文標題 Simulation study of helium bubble coalescence in tungsten at various temperatures relevant to fusion conditions	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 110076 ~ 110076
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2020.110076	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Terayama Satoshi, Iwase Yuuki, Hayakawa Sho, Okita Taira, Itakura Mitsuhiro, Suzuki Katsuyuki	4. 巻 195
2. 論文標題 Molecular dynamic simulations evaluating the effect of the stacking fault energy on defect formations in face-centered cubic metals subjected to high-energy particle irradiation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Computational Materials Science	6. 最初と最後の頁 110479 ~ 110479
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.commatsci.2021.110479	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 津川聖人、寺山怜志、沖田泰良、奥村雅彦、板倉充洋
2. 発表標題 機械学習分子動力学法によるZr中の空孔集合体挙動解明に関する研究
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 森承宇、松田那由多、沖田泰良、板倉充洋
2. 発表標題 分子動力学法を用いた非線形超音波成分のナノ構造依存性に関する定量化 (3)
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 津川聖人、寺山怜志、沖田泰良
2. 発表標題 機械学習ポテンシャルを用いたジルコニウム中の原子空孔集合体挙動解明に関する研究
3. 学会等名 令和3年度材料照射研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 森承宇、松田那由多、沖田泰良
2. 発表標題 ナノ構造が非線形超音波成分に与える影響の分子動力学法による定量化
3. 学会等名 令和3年度材料照射研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松田那由多、森承宇、沖田泰良
2. 発表標題 分子動力学法による微細組織形成に伴う非線形超音波応答の定量化
3. 学会等名 令和3年度材料照射研究会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 沖田泰良、板倉充洋
2. 発表標題 構造材料を対象として分子シミュレーションの現状と展望
3. 学会等名 日本原子力学会2022年春の年会、核燃料部会・計算科学技術部会合同企画セッション
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 J. Zhan, T. Baba, S. Hayakawa, T. Okita, M. Itakura.
2. 発表標題 Molecular simulations to investigate migration and coalescence of He bubbles in iron
3. 学会等名 SNA + MC 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 森承宇、沖田泰良、板倉充洋
2. 発表標題 分子動力学法を用いた非線形超音波成分のナノ構造依存性に関する定量化
3. 学会等名 2020年9月、日本原子力学会2020年秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 津川聖人, 岩瀬祐樹, 沖田泰良, 早川頌, 板倉充洋
2. 発表標題 分子動力学法を用いた面心立方金属における析出硬化のナノメカニズム解明に関する研究
3. 学会等名 2020年9月, 日本原子力学会2020年秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 寺山怜志, 沖田泰良, 板倉充洋, 奥村雅彦
2. 発表標題 機械学習分子動力学法によるZr中の照射劣化挙動の解明
3. 学会等名 2020年9月, 日本原子力学会2020年秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 J. Zhan, T. Okita, M. Ye, Y. Watanabe
2. 発表標題 Atomistic study to evaluate interactions between helium bubbles and an edge dislocation in iron
3. 学会等名 2020年9月, 日本原子力学会2020年秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 沖田泰良
2. 発表標題 マルチスケールモニタリングとモデリングのシンセシスによる人工物デジタルツイン構築
3. 学会等名 第32回日本原子力研究開発機構システム計算科学センターワークショップ(招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 森承宇, 沖田泰良, 板倉充洋
2. 発表標題 分子動力学法を用いた非線形超音波成分のナノ構造依存性に関する定量化 (2)
3. 学会等名 2021年3月, 日本原子力学会2021年春の年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 津川聖人, 岩瀬祐樹, 沖田泰良, 早川頌, 板倉充洋
2. 発表標題 分子動力学法を用いた面心立方金属における析出硬化のナノメカニズム解明に関する研究 (2)
3. 学会等名 2021年3月, 日本原子力学会2021年春の年会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関