

# 照射材料モデリングにおけるキネティックモンテカルロ法の役割

原子力機構システム計算科学センター  
シミュレーション技術開発室(東海)  
鈴木 知明

CCSE

Center for  
Computational  
Science &  
e-Systems



CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

## 照射による原子の弾き出し

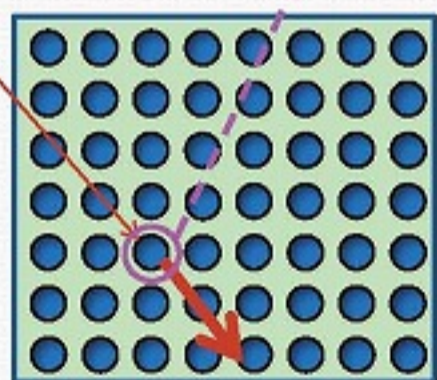
中性子

Primary Knock-on Atom (PKA)

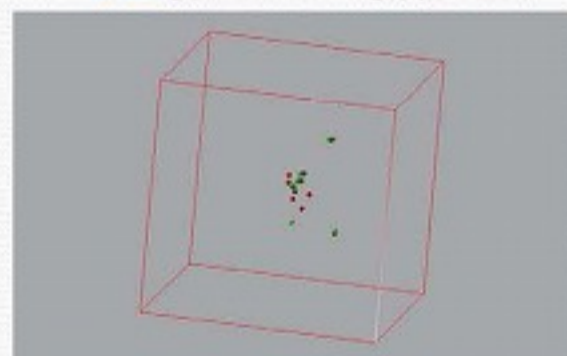
$$E_{PKA} = E_{\text{electron}} + E_D$$

弾き出しに使われる

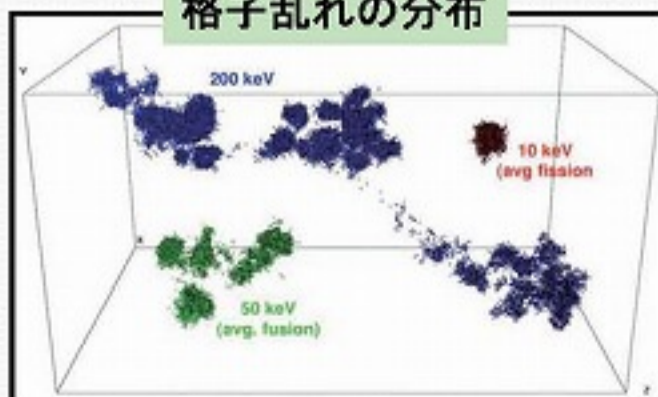
この効果はよくわかっていない。



金属材料の結晶



格子乱れの分布



●: 空孔、  
●: 格子間原子

Cascade  
Displacement

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

# 照射効果の指標: dpa

- Displacements per atom(dpa):1原子あたりの弾き出し回数
- dpa=1は平均してすべての原子が1回弾き出された状態



dpaをどうやって知るのか

Norgett-Robinson-Torrens(NRT) Standard (1975)

弾き出し原子の個数 =  $(0.4 * E_D / E_d)$ ,

$E_D$ :  $E_{PKA}$  - (電子励起によるロス)

$E_d$ : 弾き出すための閾エネルギー  
(Feの場合  $\approx 40\text{eV}$ )

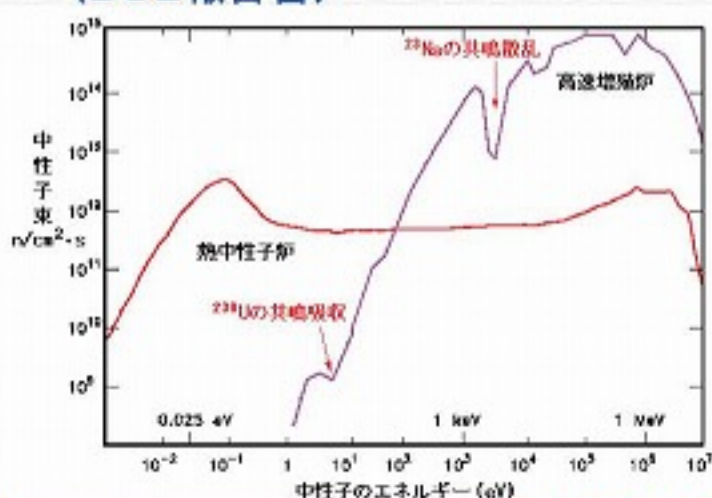
CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

## 原子炉とdpa

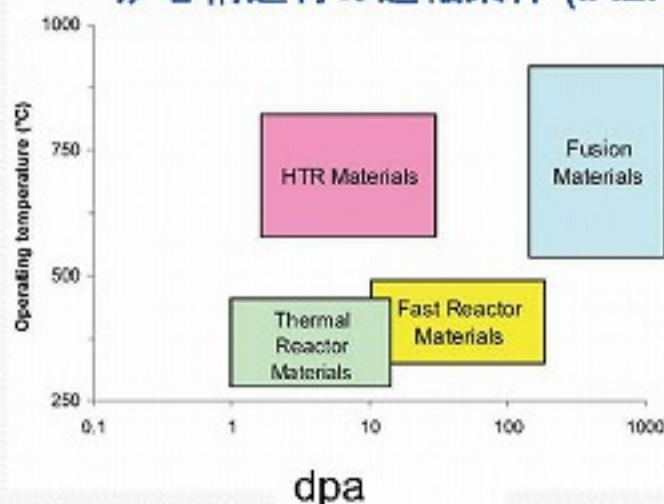
中性子エネルギーとFeにおけるdpa (Stoller, 2007)

| Neutron energy (MeV) | Average PKA energy (keV) | Corresponding $T_{dam} \approx E_{MD}$ (keV) | NRT displacements |
|----------------------|--------------------------|--|-------------------|
| 0.0034               | 0.116                    | 0.1  | 1                 |
| 0.0058               | 0.236                    | 0.2  | 2                 |
| 0.014                | 0.605                    | 0.5  | 5                 |
| 0.036                | 1.24                     | 1.0  | 10                |
| 0.074                | 2.54                     | 2.0  | 20                |
| 0.19                 | 6.6                      | 5.0  | 50                |
| 0.40                 | 13.7                     | 10.0   | 100               |
| 0.83                 | 28.8                     | 20.0   | 200               |
| 1.8                  | 61.3                     | 40.0   | 400               |

原子炉の中性子エネルギースペクトル (DOE報告書)



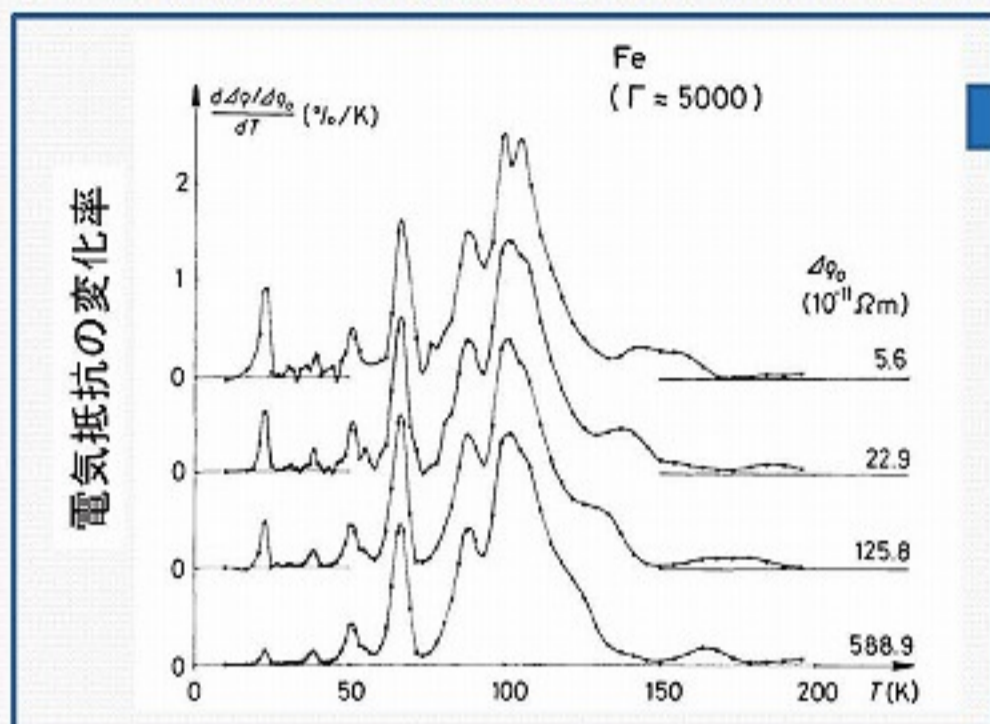
炉心構造材の運転条件 (IAEA GC51)



CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

# 格子欠陥は移動する

アニール時の電気抵抗回復を測定 (Takaki et al., 1983)



20K以上で少なくともある種の欠陥は動く

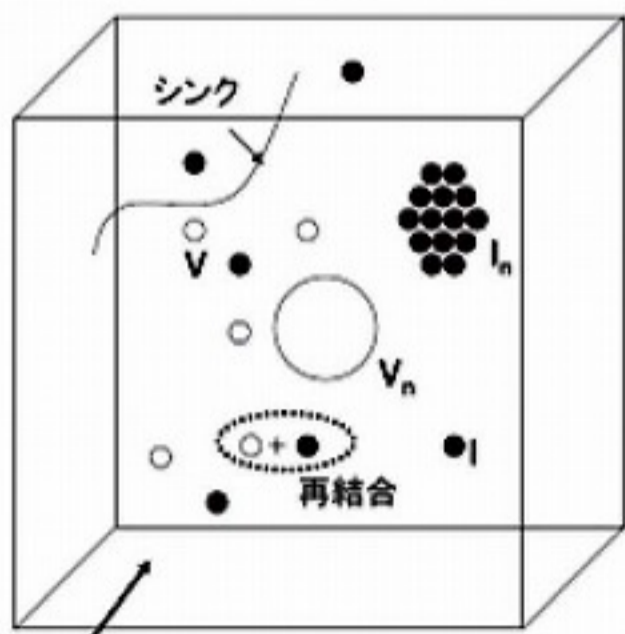
照射の1次的な損傷効果だけを考えても組織変化の予測はできない。  
MDは数10psの予測まで。

長時間挙動を予測するキネティックモデルを構築することが照射材料モデリングの大目標

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

# 照射効果のマルチスケール性

微視的、短期的効果



予測

キネティックモデルの役割

巨視的、長期的効果

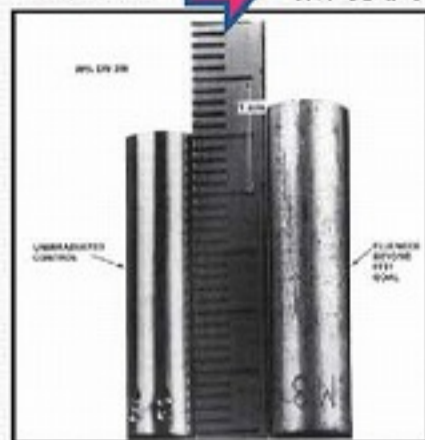
- 溶質元素 (鉄鋼中のP など) の粒界偏析  
⇒ 粒界脆化
- 転位ループの発達  
⇒ 材料硬化
- キャビティの発達  
⇒ 材料スウェリング

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

# 長期的効果の例: スウェリング

照射前後の比較

照射前 → 照射後



AISI被覆管  
75dpa at 510°C  
by F.A. Garner(1994)

スウェリングと照射量の関係

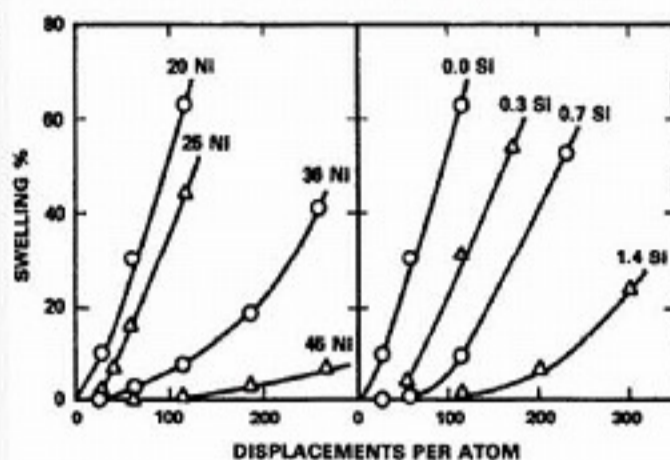
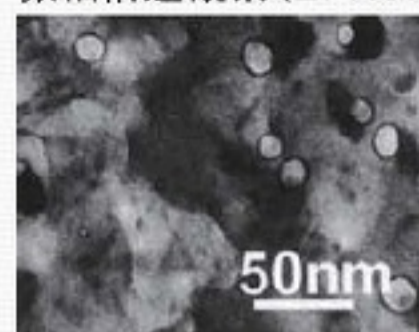


FIGURE 1  
Ion-Induced Swelling of Fe-15Cr-XNi and Fe-15Cr-20Ni-XSi Alloys at 675°C. 2,3

F.A. Garner (1984)

微細構造観察 (E. Wakai)



キャビティの成長がスウェリングの原因

CCSEワークショップ / RACEコロキウム 2012.1.20

# 照射欠陥濃度の速度論方程式

格子間原子 (クラスタ)

空孔 (クラスタ)

$$\frac{dC_1}{dt} = \varepsilon_1 G - \alpha_{V,1} C_V C_1 - \alpha_{1,dis} \rho C_1 + \dots$$

$$\frac{dC_{I2}}{dt} = \varepsilon_{I2} G + \alpha_{I,1} C_1 C_1 - \alpha_{I2,V} C_{I2} C_V + \dots$$

$$\frac{dC_{I3}}{dt} = \dots$$

$$\frac{dC_V}{dt} = \varepsilon_V G - \alpha_{V,1} C_V C_1 - \alpha_{V,dis} \rho C_V + \dots$$

$$\frac{dC_{V2}}{dt} = \varepsilon_{V2} G + \alpha_{V,V} C_V C_V - \alpha_{V2,I} C_{V2} C_1 + \dots$$

$$\frac{dC_{V3}}{dt} = \dots$$

$\varepsilon$ : 照射によって生成される空孔またSIAクラスタの割合 (分子動力学)

$\alpha$ : 2つの格子欠陥種の反応係数 (拡散方程式)



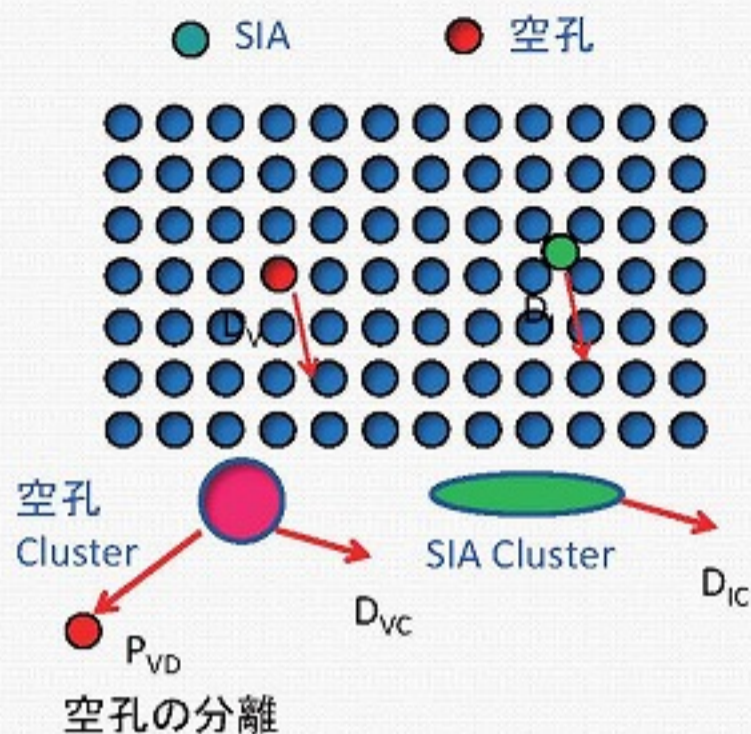
ただし、...  
モデルから得られる結果は実験観察を再現できない。

$\varepsilon$ 、 $\alpha$ などの係数の高精度化

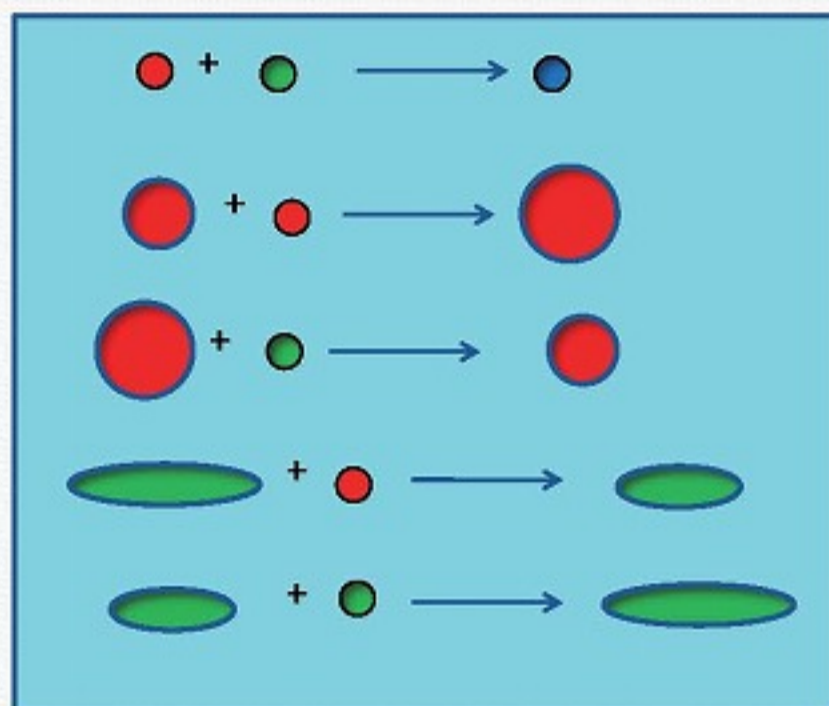
→ キネティックモンテカルロ法

CCSEワークショップ / RACEコロキウム 2012.1.20

# (Object) Kinetic Monte Carlo法の概要



Spontaneous Interaction  
between neighboring defects

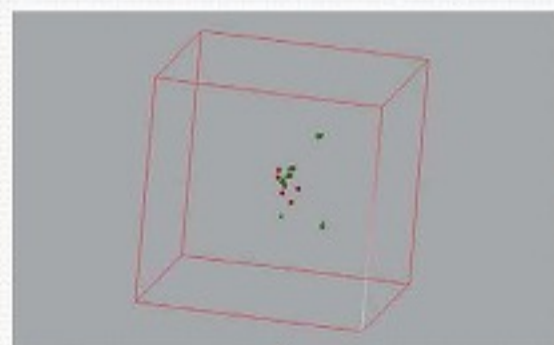


CCSEワークショップ / RACEコロキウム 2012.1.20

## KMC応用1:カスケード損傷のアーニリングシミュレーション

分子動力学(MD)

速度論(平均場近似)



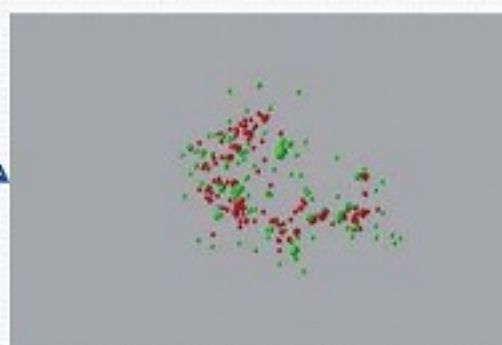
MD結果は空間相関があり、 $\varepsilon$ の導出は困難

$$\frac{dC_1}{dt} = \varepsilon_1 G - \alpha_{v,1} C_v C_1 - \alpha_{1,sv} \rho C_1 + \dots$$

$$\frac{dC_{12}}{dt} = \varepsilon_{12} G + \alpha_{1,1} C_1 C_1 - \alpha_{12,v} C_{12} C_v + \dots$$

$$\frac{dC_{13}}{dt} = \dots$$

KMC

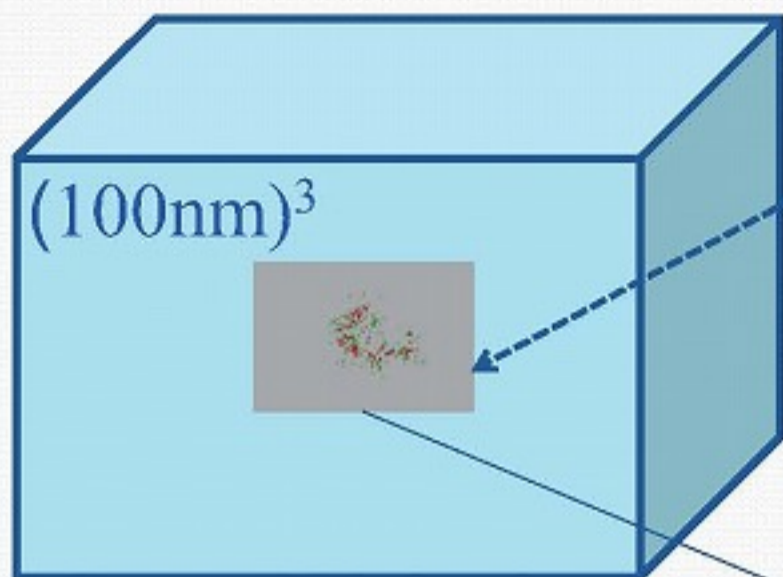


KMCシミュレーションによって速度論(平均場近似)での正確な $\varepsilon$ 係数を得る。

KMCの計算限界は(100nm)<sup>3</sup>で0.1dpaぐらいまで

CCSEワークショップ / RACEコロキウム 2012.1.20

# アニーリングシミュレーションの方法



- MD結果をシミュレーションボックスの中心に置く。
- 定温で格子欠陥を時間発展させる。

- 境界に達した欠陥は空間から除外され、カウントされる。

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

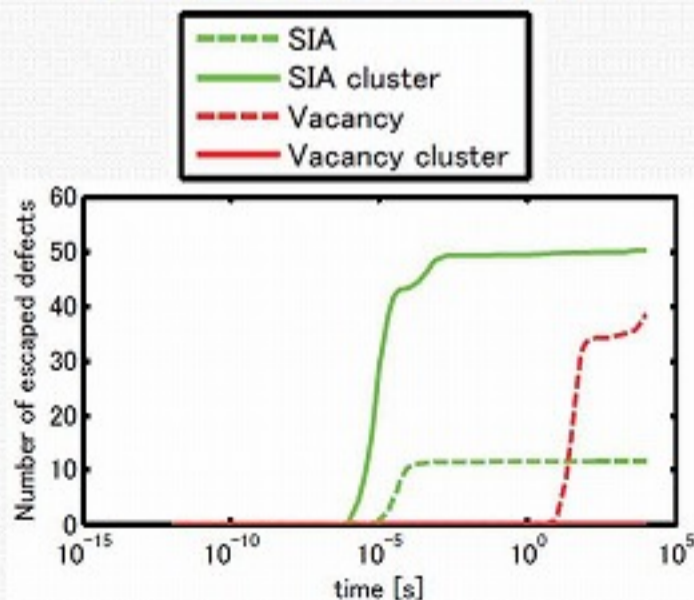
## 室温 ( $T=300\text{K}$ ) でのアニーリング

$E_D=200\text{keV}$ のMD初期値



Red: Vacancy (V-Cluster)  
Green: SIA (SIA-Cluster)

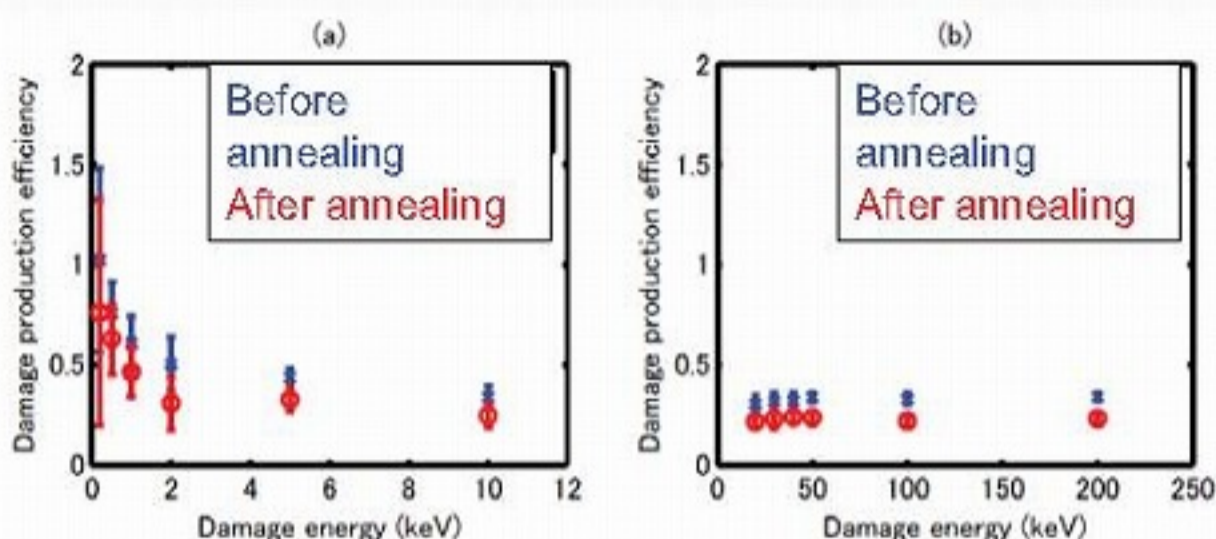
Escaped defects (mean)



CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

# NRT-dpaとの比較

Damage efficiency

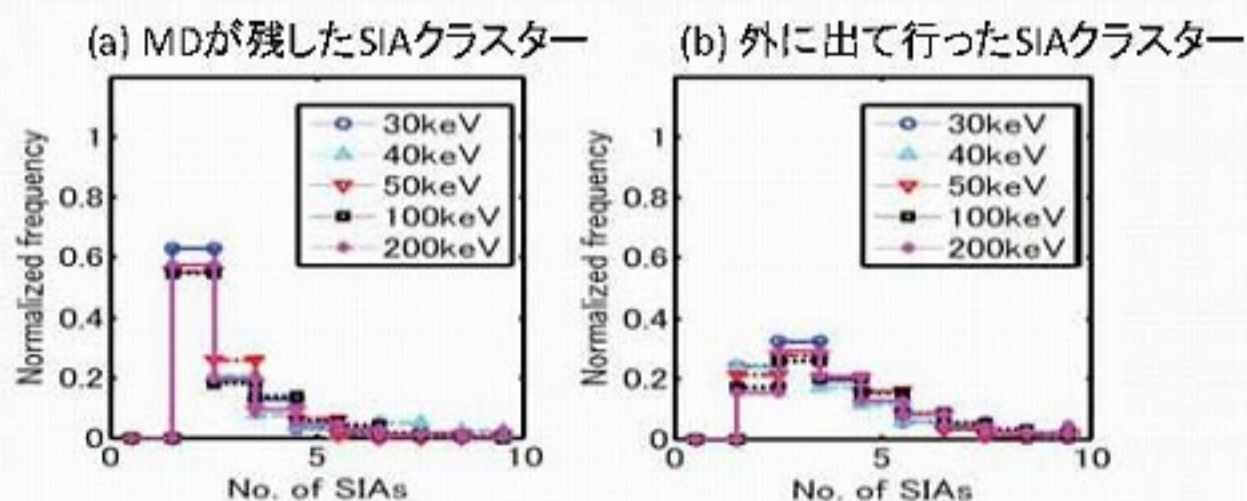


●カスケードイベント直後の残留SIA率は約0.3、アニーリング後の残留率 (Escape率) は約0.2

$$\varepsilon_1 + \varepsilon_{I2} + \varepsilon_{I3} + \dots = \varepsilon_{tot} = 0.2$$

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

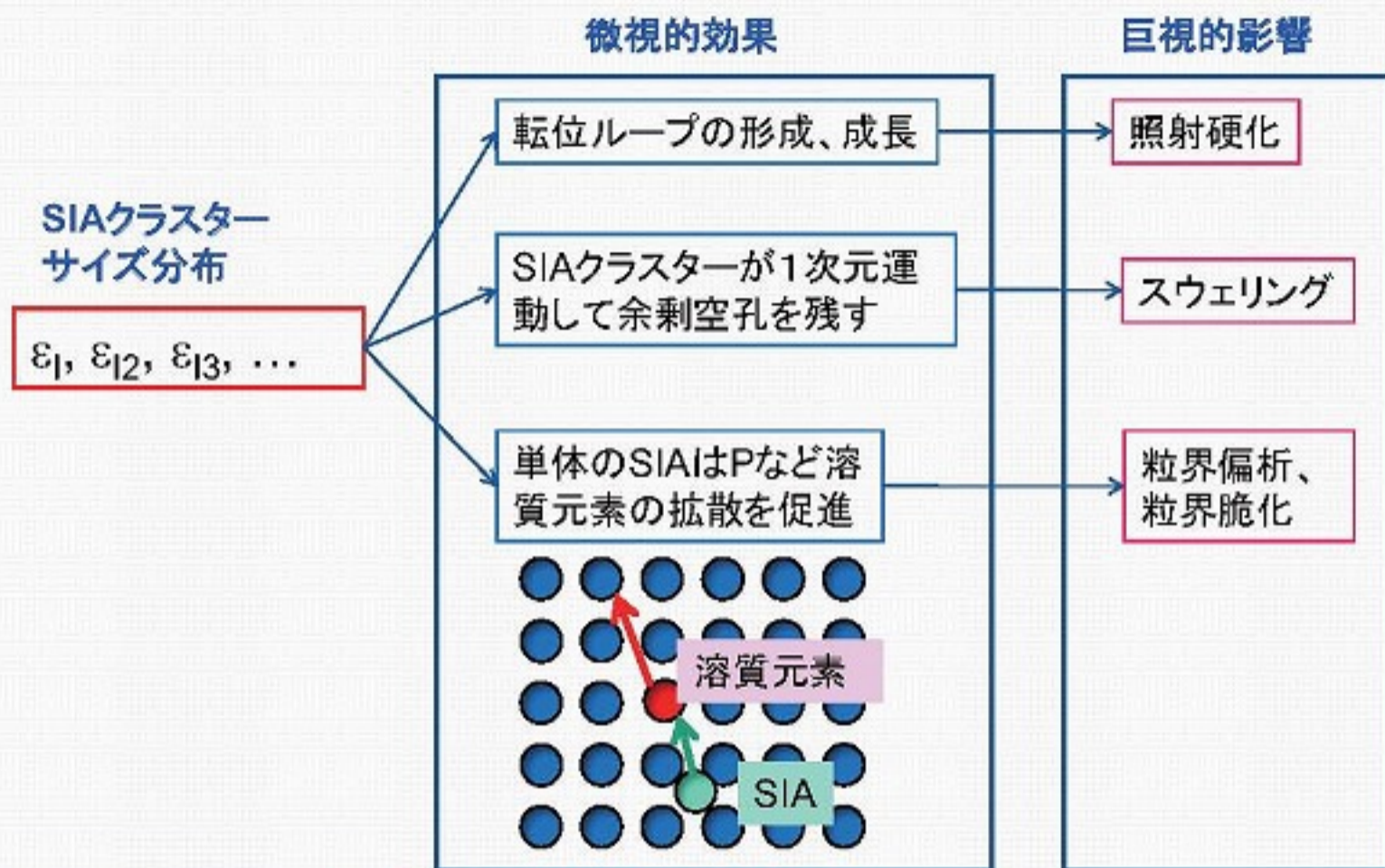
# SIAクラスターのサイズ分布



速度論方程式に入力する  $\varepsilon_{I2}, \varepsilon_{I3}, \dots$

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

# SIAクラスターの波及効果



CCSEワークショップ / RACEコロキウム 2012.1.20

## KMC応用2: 欠陥間の反応係数

速度論方程式

$$\frac{dC_I}{dt} = \varepsilon_I G - \mu_{V,I} D_V C_V D_I C_I - \underline{k_{void}^2} D_I C_I + \dots$$

シンクの強さ



拡散方程式で導出された  $k_{void}^2$

$$k_{void,1D}^2 = 6(\pi N R^2)^2$$

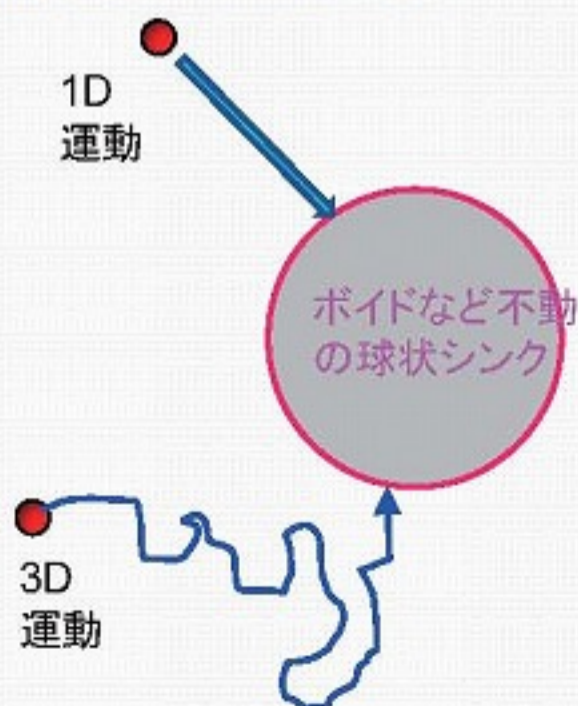
$$k_{void,3D}^2 = 4\pi N R (1 + R \sqrt{k_{void}^2})$$

$$k_{void,1D/3D}^2 = f(k_{void,1D}^2, k_{void,3D}^2)$$

R: シンクの半径

N: シンクの濃度

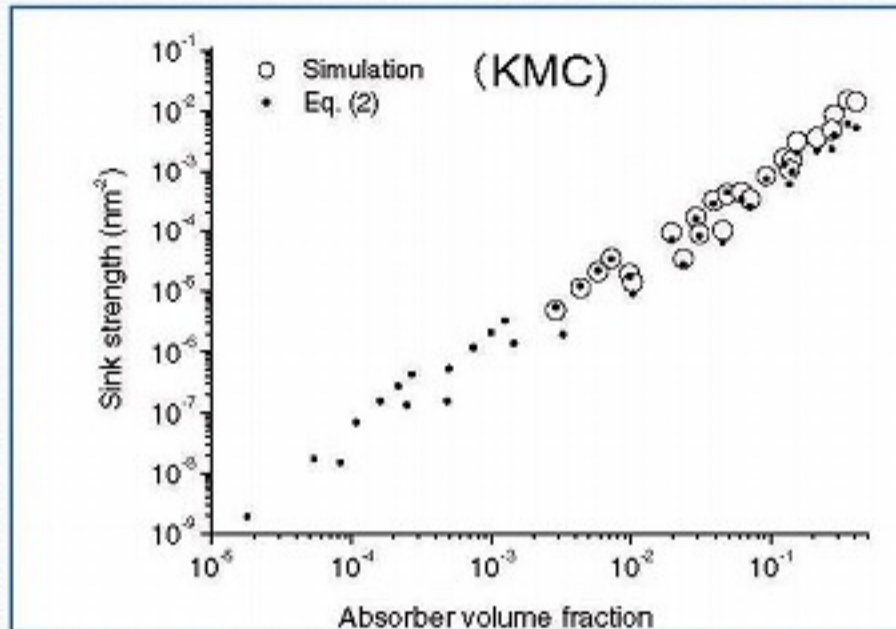
方向転換のある1次元運動  
(格子間原子クラスター等)



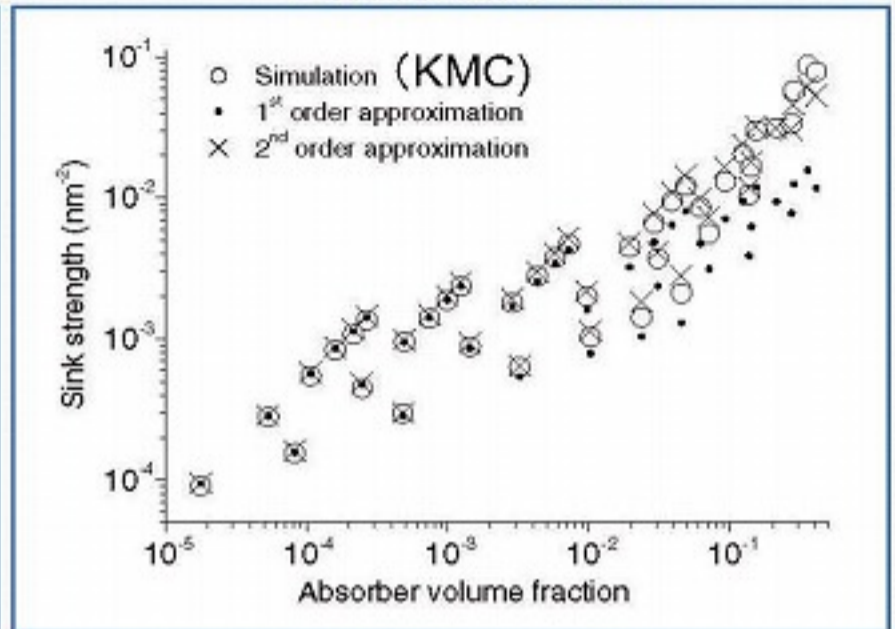
CCSEワークショップ / RACEコロキウム 2012.1.20

# KMC応用2: Malerbaらの研究(2007)

1次元運動の場合



3次元運動の場合



解析解とKMCが一致



複雑な拡散やGeometryに  
KMCを利用

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

## kMCCプログラムについて

### 特徴

1. 効率的な並列化(逐次的なアルゴリズムであるため)は困難。ケースごとの並列化(Embarrassing parallel)を考えるのが順当。
2. General Purposeのプログラムを作成することは困難。目的別にkMCCを作るのが現実的。
3. イベントや欠陥種が増えるとバグの発見は難しい。通常別のコード、方法で検証する。

### 代表的なkMCCコード

1. LAKIMOCA、フランスEDFのC. Domainが開発、Atomic KMC(すべての原子を扱う)とObject KMCの両方ができる。
2. BIGMAC、スペインAlicante大学、M. Caturlaが開発、OKMC。LLNL関係者が良く使っている。

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

# kMCコード開発

## ◆プログラム言語

C++、オブジェクト指向(抽象化、多様性)

## ◆基本的な設計方針

抽象化されたテンプレートを使って様々なプロジェクトが構築可能

## ◆これまで構築した主なプロジェクト

1. 照射カスケードアニーリング(Object KMC)
2. 応力下での格子間原子に対する転位のシンク強度(Object KMC)
3. 合金中における溶質元素(P)の拡散係数(Atomic KMC)

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20

# まとめと将来展望

- 長期的なキネティックモデル(速度論方程式)なしでは、照射材料の寿命を予測することはできない。
  - ただし現状では、速度論方程式の有効性は限定的。
  - 速度論方程式では重要な効果が無視されてきた(カスケード内再結合、応力下での拡散)
  - KMCによってその効果をモデル化し、速度論方程式に加える。
- ⇒実験データを再現? みんなが納得する理論モデルへ

謝辞:以下の研究協力者に感謝します

原子力機構システム計算科学センター  
原子力機構原子力基礎工学研究部門  
米国オークリッジ国立研究所

蕪木英雄、山口正剛、海老原健一  
都留智仁  
R. E. Stoller, S. I. Golubov

CCSEワークショップ/RACEコロキウム 2012.1.20