



Title	大規模原子シミュレーションによる炭素鋼の水素脆化メカニズム解析に向けた機械学習ポテンシャルの開発
Author(s)	新里, 秀平
Citation	サイバーメディアHPCジャーナル. 2026, 16, p. 60-63
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/106236
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

大規模原子シミュレーションによる炭素鋼の水素脆化メカニズム解析に向けた機械学習ポテンシャルの開発

新里 秀平

大阪大学 大学院基礎工学研究科

1. はじめに

炭素鋼をはじめとする鉄鋼材料は現代のインフラを支える基幹材料であるが、水素を含む環境下では水素脆化に起因する早期破壊が生じやすく、その抑制は重要な工学的課題である。この問題に対処するためには、鉄、炭素、水素間の基本的な原子間相互作用を精緻に理解することが不可欠となる。これまで、鉄系材料を対象とした経験的原子間ポテンシャル (Empirical Interatomic potential; EIP) の開発が精力的に進められてきた。Fe-C-H 三元系においては、既存の EIP を組み合わせるハイブリッド化戦略が広く採用されており、結合次数ポテンシャルや MEAM ポテンシャル、ReaxFF などの EIP が構築され、水素の分布挙動や炭素の役割の解明に貢献してきた。このようなハイブリッドポテンシャルは構成要素となる各 EIP の特性を引き継ぐため、望ましくない非物理的な特性が導入されることがある。さらに、古典的な関数形式には固有の表現限界があり、すべての関連特性を同時に高精度で再現することは困難となる。

近年、機械学習を活用した原子間ポテンシャルの開発が急速に進展しており、第一原理計算に迫る精度を大幅に低い計算コストで実現できることが示されている。本研究では密度汎関数理論 (Density Functional Theory ; DFT) に基づく第一原理計算による大規模データベースを基に、 α -Fe-C-H 三元系用の高精度ニューラルネットワーク原子間ポテンシャル (Neural Network Interatomic potential ; NNIP) を構築し、大規模原子モデルを用いた変形シミュレーションを行うことで、炭素鋼の破壊過程における固溶炭素および水素の影響を解析した。

2. 機械学習ポテンシャルの構築

α -Fe-C-H 三元系の NNIP を構築し、その信頼性を評価した。教師データ生成のための第一原理計算には Vienna Ab-initio Simulation Package (VASP) [1]を使用した。原子間ポテンシャルの構築には、n2p2[2]および Neuroevolution potential (NEP) 構築パッケージ GPUMD[3]を使用した。教師データセットとして、純鉄、鉄-水素系、鉄-炭素系、鉄-炭素-水素系の固相、ならびに水素ガス、炭素単体およびメタン (CH_4) を含む合計 62,743 構造の第一原理計算結果を用いた。得られた教師データセットのうち 90%を学習用、10%を検証用として原子間ポテンシャルを構築した後、純鉄、鉄-水素系、鉄-炭素系、鉄-炭素-水素三元系のそれぞれについて、材料特性、水素および炭素の固溶特性、ならびに各種格子欠陥との相互作用を計算することで、構築したポテンシャルの信頼性を評価した。これらの NNIP を用いた分子動力学計算には、Large-scale Atomic/Molecular Massively Parallel Simulator (LAMMPS) [4]および GPUMD を使用した。

図 1 に、構築したポテンシャルによるエネルギーおよび力の予測値と DFT 計算値との比較を示す。構築した原子間ポテンシャルの二乗平均平方根誤差 (Root Mean Squared Error; RMSE) は、エネルギーに対して学習セットが 3.17 meV/atom、検証セットが 3.11 meV/atom であり、力に対して学習セットが 92.6 meV/Å、検証セットが 93.1 meV/Å であった。以上より、エネルギー・力ともに DFT との良好な一致が確認された。さらに、各種欠陥の形成エネルギーおよび移動障壁、ならびにそれらに対する炭素原子と水素原子の影響についても、第一原理計算の結果を良好に再現で

きることを確認している[5]。

3. 大規模モデルを用いた変形解析

3.1 計算条件

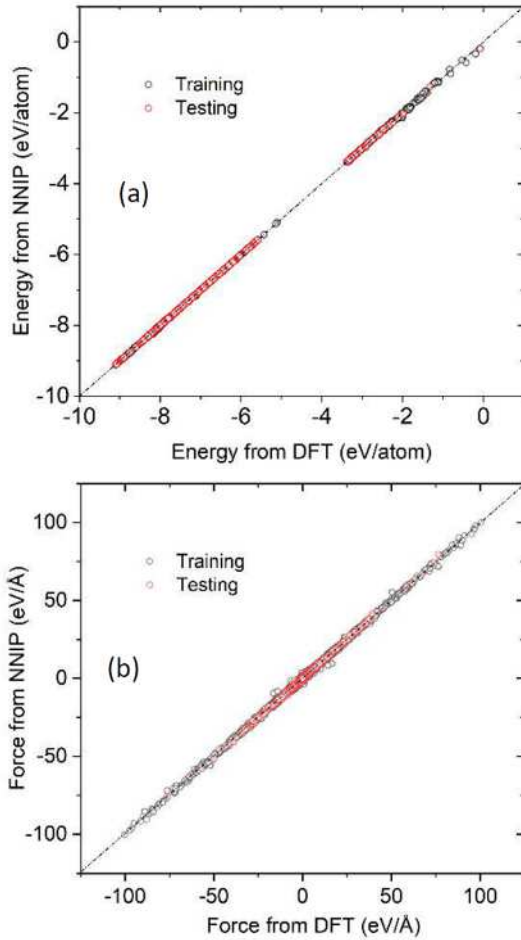


図 1：構築した NNIP の検証結果。(a) エネルギー、(b) 原子間力

本シミュレーションでは、 $80a_0 \times 80a_0 \times 80a_0$ のサイズに 1,024,000 個の Fe 原子を含むモデルを使用した。初期方位は $x[100]$ 、 $y[010]$ 、 $z[001]$ とし、すべての方向に周期境界条件を適用した。引張シミュレーションに先立ち、以下の前処理を実施した。まず、256 個の空孔-格子間原子対をランダムに挿入した後、体積一定の条件下で z 方向に約 20% の予備圧縮を行い、EAM ポテンシャル[6]を用いた NVT アンサンブル下で 900 K、100 ps の等温定積 MD シミュレーションにより欠陥を導入した。続いて、本研究で構築した NNIP を用いて NPT アンサンブル下で 300 K、0 Pa、1 ps の等温等圧保持を実施し、基準モデル (Model-I) を作

成した。Model-I に C 原子を添加したモデルを Model-II、さらに H 原子を追加したモデルを Model-III とした。Model-II および Model-III については、ゼロ圧力・300 K の NPT アンサンブル下で 25 ps 保持することにより、添加原子の分布を平衡化した。引張シミュレーションは、 z 方向に工学ひずみ速度 $2 \times 10^8 \text{ s}^{-1}$ を一定速度で印加し、 x 、 y 方向はセル内圧力が 0 Pa となるようにセルサイズを制御した。温度は 300 K、時間ステップは 0.5 fs とした。原子間ポテンシャルの学習および大規模モデルを用いた各シミュレーションは大阪大学 D3 センターの大規模計算機システム SQUID の GPU ノードを利用して実施した。

3.2 解析結果

予備圧縮後に実施した単軸引張 MD シミュレーションの結果を図 2～6 に示す。応力-ひずみ関係を図 2 に、転位密度の経時変化を図 3 に、モデル全体での空孔数を図 4 に示す。なお、2 個以上の空孔が集積した空孔クラスターについては、その体積を単空孔の体積で割ることで単空孔数に換算して計上している。すべてのモデルにおいて、

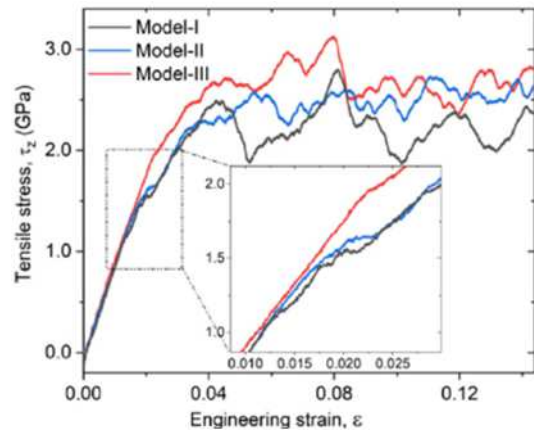


図 2：各モデルの応力ひずみ関係

一軸引張荷重を加えた際に予備圧縮によって導入された転位密度が減少することが確認され、機械的焼鈍が進行していることが裏付けられた。この機械的焼鈍は各モデルでひずみ 0.01～0.02 付近で顕著になり、事前に導入された転位の活動開始に対応する。転位運動を開始するために必要な

応力は Model-I が最も低く、次いで Model-II、Model-III の順に大きくなる。この挙動は、転位付近に存在する炭素および転位にトラップされた水素がいずれも転位運動の活性化を阻害していることに起因すると考えられる。ひずみがさらに増加すると、Model-I における転位活動が特に顕著になり、著しい機械的焼鈍が生じて転位密度が大幅に減少する（図 3）。対照的に、Model-II および Model-III では転位運動がより限定的であり、

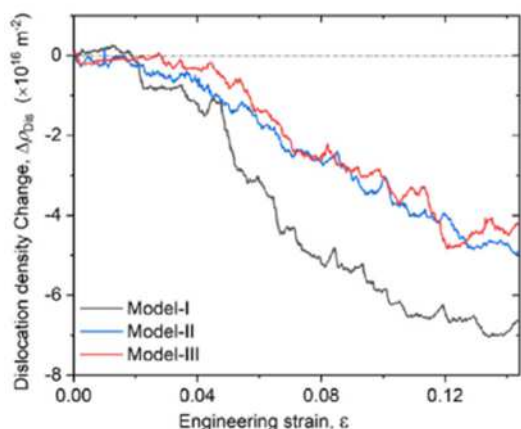


図 3：変形中の転位密度変化

転位密度の減少は緩やかになる。とりわけ Model-III では、炭素および水素が移動する転位と相互作用してその運動をさらに阻害するため、転位運動の抑制がより顕著である。ひずみ 0.04 を超えると、すべてのモデルで流動応力がほぼ一定となる。この時点で Model-II と Model-III を比較すると、Model-III の流動応力がわずかに高い。この違いは、水素が転位に及ぼす抵抗に加え、図 4 に示すように Model-III が Model-II よりも多くの空孔を生成することで転位運動が制限され、必要な応力が上昇することに起因する。一方、Model-I と Model-II は炭素も水素も含有量が異なるにもかかわらず、ひずみ 0.04 以降で非常に類似した流動応力を示す。これは、Model-I ではより広範な機械的焼鈍によって転位密度が大幅に減少する（図 3）とともに、生成された空孔・空孔クラスターが転位運動を阻害し、塑性変形への抵抗を増大させるためである。

図 4 に示すように、塑性変形の進行に伴い空孔および空孔クラスターが形成される。これらの

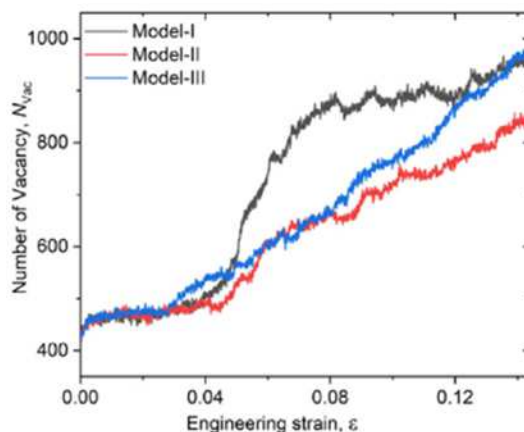


図 4：変形中の空孔数変化

欠陥は後続の転位との相互作用を通じてさらなる空孔・空孔クラスターの生成を促進し得る。ただし、空孔・空孔クラスターの生成には自己侵入型格子間原子の形成も伴い、格子間原子は室温でも急速に拡散するため、その多くは空孔・空孔クラスターと再結合してこれらの欠陥を消滅させる。分子動力学シミュレーションにおける高いひずみ速度はこうした再結合を制限するが、純粋な α -Fe に対する実験的なひずみ速度下では、多くの空孔・空孔クラスターが再結合によって除去される可能性が高い。一方、炭素や水素が存在する場合は前節で示したとおり溶質と空孔との間に引力相互作用が生じ、炭素および水素は空孔と複合体を形成することでこれらの空孔を安定化させる。図 5 はその証拠として、空孔に捕捉された炭素および水素原子数の時間変化を示している。この安定化により格子間原子との再結合による空孔の消滅が抑制され、空孔の生成や空孔クラス

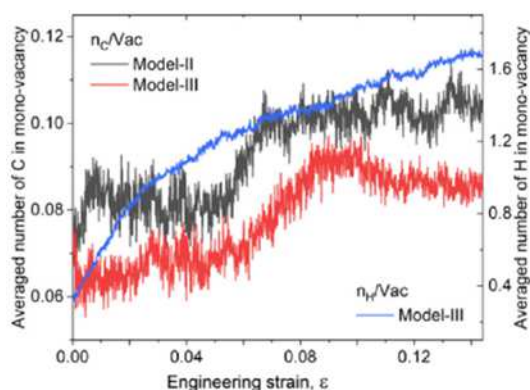


図 5：変形中のトラップ炭素・水素原子数変化

ターの成長が促進される結果、最終的には材料の破損を早めることにつながる恐れがある。

各モデルの塑性ひずみ速度が異なるため、図4のデータをモデル間で直接比較することは必ずしも適切ではない。そこで、各ひずみにおける空孔生成率 $\dot{N}_{\text{vac}}$ を相当塑性ひずみ速度 $\dot{\epsilon}_{\text{eq}}$ で正規化し、正規化空孔生成率 $\dot{n}_{\text{vac}} = \dot{N}_{\text{vac}} / \dot{\epsilon}_{\text{eq}}$ を定義する。相当塑性ひずみ速度は次式で与えられる：

$$\dot{\epsilon}_{\text{eq}} = \sqrt{\frac{2}{3} \dot{\epsilon}_{ij}^p \dot{\epsilon}_{ij}^p}, \quad \dot{\epsilon}_{ij}^p = \dot{\epsilon}_{ij}^{\text{tot}} - \dot{\epsilon}_{ij}^e, \quad \dot{\epsilon}_{ij}^e = S_{ijkl} \dot{\sigma}_{kl}$$

ここで、 $\dot{\epsilon}_{ij}^p$ 、 $\dot{\epsilon}_{ij}^{\text{tot}}$ 、および $\dot{\epsilon}_{ij}^e$ は、それぞれ塑性ひずみ速度テンソル、全ひずみ速度テンソル、および弾性（真）ひずみ速度テンソルである。全ひずみ速度テンソルはシミュレーションセルの変形から直接得られる。弾性ひずみ速度テンソルは、変形中に弾性コンプライアンステンソル S_{ijkl} が変化しないと仮定し、純鉄の S_{ijkl} を用いて、シミュレーションセルに作用する真応力 σ_{ij} から算出する。塑性変形が顕著になるひずみ 0.05～0.14 の範囲における $\dot{n}_{\text{vac}}$ の平均値を図6に示す。3つのモデルのうち Model-I が最も低い正規化空孔生成率を示し、Model-II、Model-III の順に高くなる。この生成率は空孔-格子間原子間の再結合による空孔消滅を暗黙的に考慮している点に留意されたい。これらの知見は、炭素または水素を添加すると塑性変形中に空孔・空孔クラスターなどの格子欠陥の形成が促進され、特に水素が

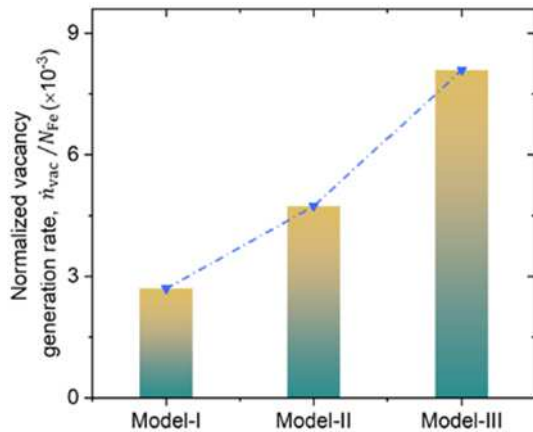


図6：各モデルの正規化空孔生成率

この効果を増幅させる傾向があることを示している。空孔・空孔クラスターの増殖は転位とこれらの欠陥との衝突確率をさらに高め、より多くの空孔やより大きな空孔クラスターの形成につながる。以上のことから、水素の存在は塑性変形に伴う材料損傷を加速させ得ると考えられる。

4. おわりに

本研究では、 α -Fe-C-H系を対象とした、第一原理計算によって得られる広範な材料特性を再現可能な高精度な NNIP を構築し、100 万原子規模のモデルを用いた MD 引張シミュレーションを実施した。その結果、炭素と水素の両方が転位の移動を阻害すること、また塑性変形中に新たに形成される空孔（および空孔クラスター）も同様に転位の運動を妨げることが明らかになった。炭素および水素による溶質-転位相互作用や、空孔-炭素/水素複合体の形成が、空孔と格子間原子の再結合を阻害するため、空孔の生成速度が加速され、最終的には空孔のさらなる蓄積を促進し、材料損傷を激化させることを示した。本シミュレーションにおけるひずみ速度は、実験で一般的に用いられるものよりもはるかに高いものの、これらの知見は、欠陥を介した塑性変形における固溶原子の基本的な役割に関する重要な洞察を提供する。

参考文献

- (1) G. Kresse and J. Furthmüller, Phys. Rev. B, **54**, 11169, (1996).
- (2) A. Singraber, et al., J. Chem. Theory Comput., **15**, 3075-3092, (2019).
- (3) K. Xu, et al., MGE Advances, **3**, e70028, (2025)
- (4) A.P. Thompson, et al., Comput. Phys. Commun., **271**, 108171, (2022).
- (5) F.S. Meng, et al., JOM, **77**, 8101-8117, (2025).
- (6) M. Wen, Comput. Mater. Sci., **197**, 110640, (2021).