

INTELIGENCIA ARTIFICIAL APLICADA A SIMULACIONES ATOMICAS DE TEMAS NUCLEARES

APPLICATION OF AN ARTIFICIAL INTELLIGENCE AIDED ATOMISTIC SIMULATION TO NUCLEAR RELATED PROBLEMS

M. I. Pascuet¹, N. Castin² y L. Malerba²

¹CONICET - Av. Rivadavia 1917 - (1033) Buenos Aires - Argentina

²SCK-CEN - Boeretang 200 - (2400) Mol - Bélgica

e-mail: pascuet@cnea.gov.ar

Recibido 28/02/11; aprobado 09/07/11

La principal causa de endurecimiento y fragilización de un reactor nuclear bajo presión es la formación de precipitados ricos en cobre, porque actúan como obstáculo para el movimiento de las dislocaciones. El método de Monte Carlo cinético atomístico (AKMC) es una herramienta ampliamente utilizada para el estudio de para el estudio de la difusión controlada por la microestructura y la evolución microquímica en el envejecimiento de aceros bajo irradiación. Se desarrolla un novedoso método de Inteligencia Artificial, mediante redes neuronales artificiales (ANN) para calcular las energías de migración de defectos puntuales. Se utilizan potenciales interatómicos que tienen en cuenta efectos de relajación de largo rango. El propósito de este trabajo es la aplicación de este método para el cálculo de los coeficientes de difusión, frecuencias de salto y tiempo de vida de clusters de Cu-vacancias y en un entorno de Fe-Ni y de Fe puro.

Palabras Claves: Fe-0.75%Ni, Inteligencia Artificial, AKMC, Simulaciones Atómicas

The formation of copper-rich precipitates under irradiation is accepted to be among the main causes of hardening and embrittlement of reactor pressure vessel steels during operation, in consequence of their acting as obstacles to dislocation motion. Atomistic kinetic Monte Carlo (AKMC) methods are widespread tools to study diffusion-controlled microstructural and microchemical evolution in alloys during thermal ageing under irradiation. A novel AKMC was developed, that utilizes artificial neuronal networks (ANN) to calculate the point-defects migration energies, taking all the long-ranged relaxation effects, as predicted by a given interatomic potential, into account. The propose of this work is the application of the method to the calculation of the diffusion coefficients, jumps frequencies and lifetimes of Cu-vacancies clusters in Fe and in Fe-Ni environments.

Key Word: Fe-0.75%Ni, Artificial Intelligence, AKMC, Atomistic Simulations

I. INTRODUCCIÓN

El ternario Fe-Cu-Ni es de interés en aplicaciones nucleares porque se considera que tanto el Cu como el Ni tienen efectos importantes en la fragilización bajo irradiación de los aceros que componen la vasija del reactor⁽¹⁻²⁾. Los precipitados ricos en Cu han sido claramente detectados en una amplia gama de aceros irradiados usando diferentes técnicas experimentales^(3, 8). Dichas técnicas no han sido capaces de revelar la concentración de vacancias en los precipitados, por este motivo se han desarrollado modelos computacionales que describen la cinética de la microestructura y los procesos involucrados. Este estudio es de importancia porque está enmarcado en el proyecto de extensión de vida útil de las centrales nucleares⁽⁹⁾.

Los modelos que predicen el endurecimiento de los aceros de vasija versus la dosis de irradiación deben tener en cuenta la aparición de precipitados y el correspondiente efecto en las dislocaciones. Para simular dicho fenómeno las técnicas de Monte Carlo cinético atomístico (AKMC) son herramientas adecuadas por el compromiso entre la fiabilidad y el

tiempo computacional que demandan^(10,11). Este método requiere conocer previamente los mecanismos térmicamente activados que gobiernan la evolución del sistema, intercambios entre vacancias y átomos vecinos. Las energías de activación de los saltos de la vacancia son función de la configuración atómica local, que está determinada por el entorno químico diferente.

En este trabajo se utiliza el método redes neuronales artificiales ANN⁽¹²⁾ acoplado al código de AKMC para modelizar la evolución de la microestructura del ternario Fe-Cu-Ni. La novedad del método⁽¹³⁾ radica en que las barreras de energía son calculadas bajo la influencia de 23^{avos} vecinos. A su vez, no es necesario calcular las energías de todos los saltos previamente, sino que el ANN lo realiza según la demanda del entorno químico local específico de cada salto. En este sistema se ha utilizado para el cálculo de las energías del entrenamiento el método de *nudget elastic band* (NEB) y para la interacción, potenciales interatómicos de átomo embebido (EAM) obtenidos de la literatura⁽¹⁴⁾. El ANN entrenado previamente se denomina *synapsis* (grados de libertad de ANN), con dicho método se calculan los coeficientes de difusión, frecuencias de salto y tiempo de vida de los clusters:

Cu_3V , Cu_2V_2 y CuV_3 . Para cada uno se realizaron dos simulaciones, una en un entorno químico Fe-0.75%Ni y la otra en Fe puro, utilizando *synapsis* entrenadas especialmente ("*FeCuNiVac-8nn*"). Este último caso se hizo con el fin de comparar con resultados obtenidos previamente mediante otra *synapsis* del sistema Fe-Cu ("*FeCuVac-5nn*") y así asegurar la confiabilidad de dichos resultados^(15,16). Finalmente se analiza la influencia que el Ni tiene en la movilidad de los clusters.

II. METODO

Entrenamiento

El desarrollo de ANN requiere la producción de ejemplos de barreras de energías de activación para diferentes saltos. Estas energías se calcularon usando el método de nudged-elastic-band (NEB). El ANN fue entrenado teniendo en cuenta 23^{avos} (651 átomos) conteniendo Cu y vacancias en un entorno de Fe-0.75%Ni. La figura 1 muestra la calidad de la predicción para dicho sistema. En el se grafican los resultados obtenidos mediante NEB y los predichos por ANN, con muy buen acuerdo entre ellos (Correlación: 0.9375).

Resultados

Los clusters Cu_2V_2 , CuV_3 y Cu_3V , fueron creados de manera aleatoria de manera de minimizar su energía de formación en el centro de una caja de simulación (20x20x20, 1600 átomos) que contiene Fe-Ni y en otra

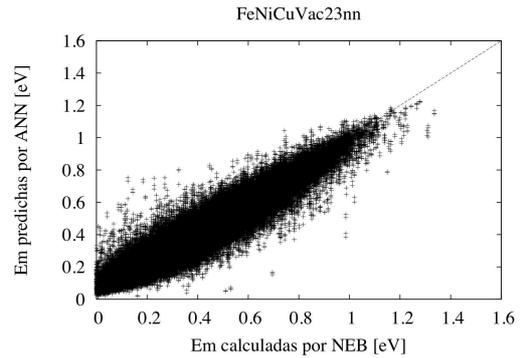


Figura 1. Predicción del sistema *FeCuNiVac*

conteniendo Fe puro. El sistema se dejó evolucionar de acuerdo al esquema de AKMC. La movilidad fue estudiada a diferentes temperaturas entre 400 y 700K con el mismo procedimiento usado en un trabajo previo⁽¹⁶⁾. Se considera que el cluster se desarma o desaparece cuando la distancia entre alguno de sus componentes es mayor que una distancia de quintos vecinos. A su vez, el tiempo de vida del cluster se define cuando alguna de las vacancias que componen el cluster aleja más que dicha distancia. Del análisis de las sucesivas posiciones del centro de masa del cluster y los distintos tiempos es posible deducir las frecuencias de salto y los coeficientes de difusión mediante:

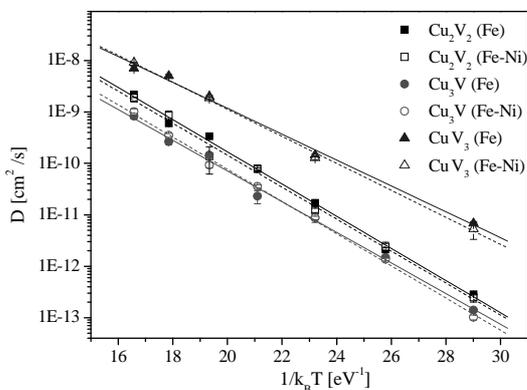


Figura 2: Coeficientes de difusión

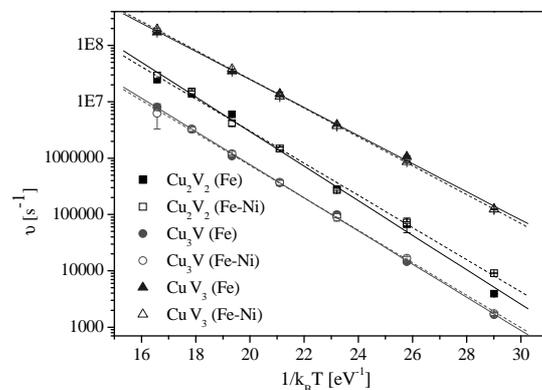


Figura 3: Frecuencias de salto

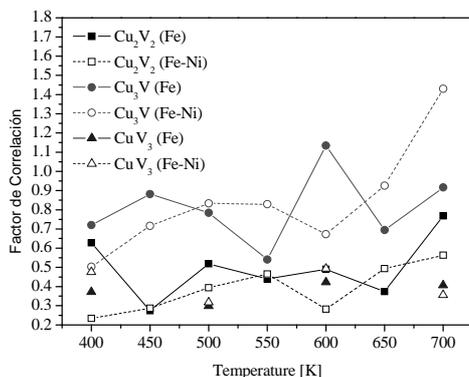


Figura 4: Factores de Correlación

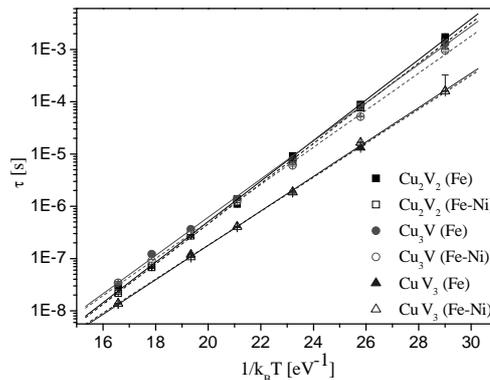


Figura 5: Tiempo de vida

$$v(T) = \frac{1}{N^{sim}} \sum_{i=1}^N \frac{n_{saltos}^i(T)}{\tau_{vida}^i} \quad (1)$$

$$D(T) = \frac{1}{N^{sim}} \sum_{i=1}^N \frac{R_i^2(T)}{\tau_{vida}^i} \quad (2)$$

Donde N^{sim} es el número simulaciones realizadas en el AKMC para el mismo cluster con diferentes semillas para la generación de números aleatorios (se realizaron 100 simulaciones en cada caso para mejorar la estadística, dado que el tiempo de vida de los clusters es muy corto, en algunos casos a temperaturas bajas se hicieron 200 o 300 casos); n_{saltos}^i es el número de saltos que el centro de masa realiza a primeros vecinos durante el tiempo de vida del cluster, τ_{vida}^i ; y R_i^2 es el cuadrado del desplazamiento del centro de masa del defecto. La distancia promedio de salto a primeros vecinos es $\sim 0.92 a_0$. Un poco menor que el valor de red perfecta. Las energías de migración y los prefactores $v(T)$ y $D(T)$ fueron obtenidos del gráfico de Arrhenius (Figs. 2 y 3) para diferentes temperaturas mediante:

$$v(T) = v_0 \exp(-E_m^v / k_B T) \quad (3)$$

$$D(T) = D_0 \exp(-E_m^D / k_B T) \quad (4)$$

Los resultados v_0 , D_0 , E_m^v y E_m^D para los clusters estudiados se muestran en la Tabla 1. Las barras de error han sido estimadas como se explica en Pascuet⁽¹⁶⁾. Se comparan los valores con los previamente obtenidos con la misma técnica para los mismos clusters en un entorno de Fe puro⁽¹⁶⁾. Las energías de migración que resultan de los coeficientes de difusión y las que resultan de las frecuencias de salto en general no coinciden, debido a los efectos de correlación. Dichos

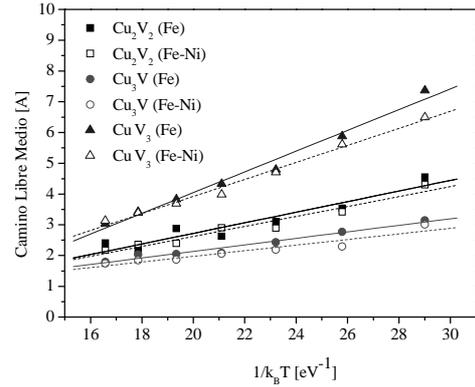


Figura 6: Camino Libre Medio.

efectos están relacionados con movimiento de vacancias que contribuyen a la frecuencia de salto pero no al coeficiente de difusión, por ejemplo si una vacancia se intercambia varias veces con el mismo átomo no produce movimiento efectivo del cluster. La relación entre ambos esta dada por:

$$D(T) = f_c(T) \frac{v_j(T) \Delta^2}{6} \quad (5)$$

donde Δ es la distancia de salto del cluster a primeros vecinos y f_c es el factor de correlación. La figura 4 muestra los distintos factores de correlación, en general menores que uno.

La energía de disociación, E_{dis} , y el prefactor, τ_0 , son estimados similarmente utilizando los gráficos de Arrhenius (Fig.5) mediante:

$$\tau_{life}(T) = \tau_0 \exp(E_{dis} / k_B T) \quad (6)$$

TABLA 1: PREFACTOR, D_0 , ENERGIA DE MIGRACION, E_m^D , PREFACTOR, v_0 , ENERGIA DE MIGRACION, E_m^v , PREFACTOR Y ENERGIA DE DISOCIACION, DE CLUSTERS Cu-Vac EN Fe PURO Y Fe-0.75%Ni USANDO "FeCuNiVac-8nn" SYNOPSIS.

	D_0 [10^{-4} cm ² /s]	E_m^D [eV]	v_0 [10^{13} 1/s]	E_m^v [eV]	τ_0 [10^{-14} s]	E_{dis} [eV]
Cu ₂ V ₂ (Fe)	3.4670 ± 1.10	0.7255 ± 0.014	0.3999 ± 0.02	0.7057 ± 0.023	0.9005 ± 0.27	0.8925 ± 0.014
Cu ₂ V ₂ (Fe-Ni)	2.1097 ± 1.09	0.7122 ± 0.023	0.1720 ± 0.06	0.6627 ± 0.016	0.9518 ± 0.16	0.8850 ± 0.007
Cu ₃ V (Fe)	0.6463 ± 0.15	0.6829 ± 0.009	0.0589 ± 0.01	0.6765 ± 0.011	3.0169 ± 0.83	0.8417 ± 0.012
Cu ₃ V (Fe-Ni)	1.5296 ± 0.78	0.7290 ± 0.023	0.0910 ± 0.06	0.6945 ± 0.031	4.0948 ± 0.99	0.8170 ± 0.011
CuV ₃ (Fe)	1.2693 ± 0.64	0.5795 ± 0.023	0.2420 ± 0.06	0.5742 ± 0.011	5.0752 ± 0.75	0.7483 ± 0.005
CuV ₃ (Fe-Ni)	1.9900 ± 0.09	0.6044 ± 0.020	0.3340 ± 0.03	0.5898 ± 0.004	4.5856 ± 0.92	0.7588 ± 0.009

Los valores τ_0 y E_{dis} se reportan en la Tabla 1.

El camino libre medio, R_i^2 , es la distancia total de movimiento del cluster desde su posición inicial hasta su posición final, durante el tiempo de vida. Dichos valores han sido calculados en el mismo rango de temperatura y para los mismos clusters ya descriptos y se muestran en la figura 6. Notar que el camino libre

III. CONCLUSIONES

Se utilizaron herramientas avanzadas de cálculos por modelización para estudiar la movilidad de algunos clusters de cobre-vacancia en Fe puro y en Fe-0.75%Ni. Se cree que dichos clusters juegan un rol importante en el proceso de precipitación bajo irradiación de los materiales del reactor nuclear. Las energías de migración de los clusters calculadas sirven de parámetros de entrada para la técnica de Monte Carlo cinético de objetos (OKMC)⁽¹¹⁾. El método utilizado para el cálculo de las energías de migración se basa en la aplicación de técnicas de inteligencia artificial donde se entrenan las redes neuronales de manera de reproducir los valores de energías de activación característicos de los eventos térmicamente activados que dependen del entorno químico local. Esta técnica es muy confiable y posee un costo computacional menor que otras. Se obtuvieron valores con bastante exactitud para este sistema aunque se esperaba una mayor diferencia en los coeficientes de difusión entre los casos de un entorno con y sin níquel. Esto podría indicar, en principio, que el níquel no afectaría la movilidad de

Referencias

- 1 - G.R.Odette, G.E.Lucas, JOM **53** (7) (2001) 18-22.
- 2 - U.Potapovs and J.R. Hawthorne, Nuclear Applied., **1**, 27 (1969).
- 3 - J.T. Buswell, W.J.Phythian, R.J.McElroy, S.Dumbill, P.H.N.Ray, J.Mace and R.N.Sinclair, Journal of Nuclear Materials, **225**, 196 (1995).
- 4 - P. Auger, P.Pareige, S.Welzel and J-C. van Duysen, Journal of Nuclear Materials, **280**, 73 (2000).
- 5 - M.K. Millar and K.F. Russel, Journal of Nuclear Materials, **371**, 145-160 (2007).
- 6 - K. Fukuya, K. Ohno, H.Nakata, S.Dumbill and J.M.Hyde, Journal of Nuclear Materials, **312**, 163 (2003).
- 7 - Y. Nagai, K. Takadate, Z. Tang, H. Ohkubo, H. Sunaga, H. Takizawa, and M. Hasegawa, Physical Review B, **67**, 224202 (2003).
- 8 - M. Lambrecht, L. Malerba and A. Almazouzi, Journal of Nuclear Materials, **378**, 282 (2008).
- 9 - J-P. Massoud, S. Bugat, J-L. Boutard, D. Lidbury, S. Van Dick and F. Sevini, "PERFECT: Prediction of Irradiation Damage Effects on reactor Components", Proc. EU Conference FISA 2006, Luxemburg, p. 123.

medio aumenta con el número de vacancias del cluster, manteniendo el número de elementos constante. El complejo CuV₃ por lo tanto contribuiría al transporte de Cu en los materiales irradiados⁽¹⁷⁾.

los clusters, aunque se planea realizar más cálculos para estudiar dicho efecto. La coincidencia no es la esperada entre los resultados en el sistema Fe puro comparados con los publicados previamente⁽¹⁶⁾. Se cree que como el tiempo de vida es tan corto, las posiciones iniciales de los elementos que forman los clusters tienen bastante influencia. Esto es porque la cantidad de pasos de Monte Carlo es escasa antes que se desrume el cluster y la diferencia se hace más notoria. En este trabajo se tomaron dichas posiciones de manera aleatoria en lugar de tomar siempre las mismas como se había hecho previamente. Se planea entonces, debido a la sensibilidad de los resultados, rehacer los cálculos en las mismas condiciones iniciales que los anteriores salvo por el uso de la nueva synapsis desarrollada. Se espera que reproduzca correctamente la movilidad de los clusters en un entorno de Fe puro, y que a su vez prediga el comportamiento en presencia de níquel para poder analizar si el cluster atrapa átomos de Ni, o si este solo sirve de barrera para el movimiento. En un futuro se extenderán los cálculos a diversos clusters, para obtener los parámetros de entrada necesarios en el OKMC.

- 10 - F. Soisson, C.S. Becquart, N. Castin, C. Domain, L. Malerba and E. Vincent, Journal of Nuclear Materials, (2010) (aceptado).
- 11 - C. Domain, C.S. Becquart and L. Malerba, Journal of Nuclear Materials, **335**, 121-145, (2004).
- 12- F. Bishop, "Neuronal Networks for pattern recognition", Clarendon press, Oxford, 1995.
- 13 - N. Castin and L. Malerba, The Journal of Chemical Physics, **132**, 074507 (2010).
- 14 - G. Bonny, R.C. Pasianot and L. Malerba, Philosophical Magazine, **89**, 1-21 (2009).
- 15- N. Castin, L. Malerba, G. Bonny, M.I. Pascuet and M. Hou, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **267**, 3002 (2009).
- 16 - M.I. Pascuet, N. Castin, Ch. Becquart and L. Malerba Journal of Nuclear Materials (enviado).
- 17 - F.G. Djurabekova, L. Malerba, C. Domain and C.S. Becquart, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B, **255**, 47-51 (2007).

AGRADECIMIENTOS

Este trabajo se realizó con el apoyo parcial de los proyectos PIP 804/10 (CONICET) y PERFORM 60, FP7-232612, (European Commission).