

材料照射劣化における階層性と照射相関

東京大学大学院工学系研究科・関村 直人
Naoto SEKIMURA

1. 材料の役割と環境による劣化

物質には、物理的性質、化学的性質の他に、社会的な性質がある。物質が材料として、社会的性質を表すのは、材料は目的を負わされた物質あるいは物質のシステムであるからである⁽¹⁾。機器・設備を設計する場合、それらがどのような目的を負わされ、どのような環境で利用されるかを考える必要がある。

ここで扱うべき材料の挙動とは、上記のように定義されるべき材料が、ある環境におかれた時の材料と環境の動的な相互作用である。

原子力材料が他の材料と比べ最も異なる点は、放射線照射環境においてその機能を果たさねばならないことであろう。原子力機器の高信頼性、長寿命化への要求がますます高まるのに伴い、様々な照射環境で用いられる材料の挙動を評価・予測することによって、機器のパフォーマンスの定量的な予測を行うことが必要となっている。

原子力システムとその高経年化に係る課題を解決する手段として、有効かつ経済的な保全を計画し実施するためには、目的を負わされた物質と物質のシステムとしての材料挙動をその環境との相互作用の観点から明らかにすることが必要となってくる。

材料の健全性は、総合的な科学技術の課題である。材料研究開発のコミュニティにおける従来の知見の範囲、あるいは材料に関わる技術の進展のみによって、材料の健全性が担保できるものではないことは明確である。一方で、材料に関する科学技術は、主として経験によって進展してきたことも明白である。

ここでは、高経年化を念頭に置きながら、経験の集積以外のアプローチをどのように組み合わせた研究開発が進められるべきかについて、材料が置かれる環境として、中性子照射環境を採り上げ、時間的・空間的に階層構造をもつ材料情報と解決の方法論を議論する。

2. 放射線照射環境パラメータと照射相関

放射線照射環境における原子炉用材料挙動を表すために、今まで経過時間以外にいろいろのスケールング・パラメータが用いられてきている。これらをまとめて表-1に示す⁽²⁾。

材料劣化に関わる本質的な問題の一つは、既存のデータ存在領域からデータの存在しない領域への機能指標あるいは特性値の外挿の問題である。

これは「ある照射環境で得られた材料照射効果を他の照射環境での照射効果に結びつけるパラメータ或いはパラメータの関数の探求」⁽³⁾を意味する「照射相関法」の一分野と考えられる。材料の劣化を示すための機能指標あるいは特性値の種類は極めて多い。放射線照射効果に対しては、環境変数（フラックス、フルエンス、スペクトル、温度等）、材料変数（ベース金属、加工、熱処理、履歴、材料特性等）の組み合わせは極めて多様であって、原子炉用材料の照射劣化の課題もある断面のみでその全容を理解することは一般的に困難である。

このように材料劣化評価には、ある材料・特性で得られた知見や方法が他の材料、特性へ適用できるかといった普遍化に関わる学問的な基盤そのものが重要な

表-1 中性子照射環境パラメータと材料の分類

| | |
|-------------------|---|
| 照射場のパラメータ | 照射時間、 EFPD (Effective full power days)、 EFPY (Effective full power years)、 全中性子フルエンス、 高速中性子フルエンス ($E > 1 \text{ MeV}, E > 0.1 \text{ MeV}$)、 熱中性子フルエンス |
| 材料特性が入った パラメータ | 燃焼度 (MWd/tM 或いは MWd/tF) 損傷エネルギー、 dpa (displacements per atom)、 残存欠陥量 ヘリウム生成量 |
| 問題別PKA依存 パラメータ | 可動点欠陥濃度、 クラスター密度 |
| 問題別評価式 | 脆化評価式 (照射・環境及び材料変数を含む) 劣化相関式 |

問題となる。これには、特性評価や環境モニタリングの誤差、環境、材料変数への感度の違い等も材料劣化度の不確実性として、影響を及ぼす。

照射相関を意識的に取り上げてきた研究分野においては、既に1970年代から劣化機構に立脚した体系的考察によって、材料挙動評価の不確実性を減少させることが重要であることが認識されていた。この頃から、環境パラメータとしての高速中性子フルエンスにある係数を掛けたり、環境パラメータを含む相関式によって材料劣化を評価することが行われてきた。

このような分野で、そのもっとも進んだ形のもの、圧力容器鋼の遷移温度上昇と上部棚エネルギー低下に関する照射脆化式であろう。これらの多くは環境パラメータとしての高速中性子フルエンスを含む関数と材料変数として、脆化に対して感度の大きいCu、P、Niなどの含有量を含む関数として表現されているものが多く⁽⁴⁾、現在でも有効に使用されているが、統計解析を活用した現象論的な手法に止まっている。

機構論に基づいてこのような相関式を導出する試みもなされてきたが、なお十分とは言えない状態にある。いずれにしても、このような現象論的な相関手法の持つ本質的制約を解決するためには、材料劣化機構に基づく照射相関手法の探求が要請されている。

このような照射相関が必要とされるようになった背景には、未踏の或いは容易には到達できない照射環境条件下の照射挙動を予測する必要に迫られるようになったことがあげられる。

高経年化に伴う材料照射劣化においては、これを加速試験によってデータを蓄積してゆく場が、国内でもJMTR等の限られた中性子照射場によってのみ可能であることに加え、全世界的に照射場が決定的に不足していることも、このような強い要請の根本にある。また、1987年ころには、研究炉や軽水炉の圧力容器での予測に反する大きな照射脆化が相次いで見出された^(5,6)ことも契機となった。

3. 照射相関とその方法論

軽水炉圧力容器の照射脆化、超高燃焼度高速炉燃料の被覆材料開発に加え、炉内構造材料のIASCC、軽水炉燃料の高燃焼度化に係わる燃料被覆材料劣化などによる環境劣化はいずれも現在データの存在しない領域

の材料挙動を評価しなければならないという意味で、共通して予測性を要求される問題である。

これらは、例えば材料試験炉で得られた照射データをそのまま他の炉型、他の照射条件における材料の照射効果として適用できるか、また、加速器による荷電粒子照射で得られたいわゆるシミュレーション照射データを中性子照射下の材料に適用できるかと言う問題も、共通の問題をはらんでいる。

すなわち「ある照射環境で得られた照射効果を他の照射環境での照射効果に結びつけるパラメータ或いはパラメータの関数の探求」⁽³⁾という意味での「照射相関法」の問題と考えられる。寿命評価或いは余寿命予測の問題も、既存のデータ存在領域からデータの存在しない領域への機能指標或いは外挿の問題であるから、「照射相関法」の一分野と考えられる。

照射相関の方法論は従来より様々な議論がなされてきた⁽⁷⁾。照射データの他の領域への投影の基軸となるのは材料のミクロ組織であると言えよう^(8,9)。これによれば、照射相関法とは、表-2に示すような階層構造をもっている⁽²⁾。

表-2 照射相関のための材料知見の階層構造例

| |
|---|
| 1) 素過程の基本定数の整備 |
| 点欠陥の基本定数：空格子点、格子間原子等の形成エネルギー、移動エネルギー、結合エネルギー、形成体積、溶質原子、転位等との相互作用エネルギー等 転位等欠陥の基本定数：自己エネルギー、積層欠陥エネルギー、表面エネルギー、その他 熱力学的特性：溶質原子溶解度、化合物形成自由エネルギー、界面エネルギー、ヘリウム等状態方程式等 |
| 2) 要素過程の機構 |
| 例えば転位ループ等二次欠陥形成、照射硬化、照射脆化、クリープ及び照射下クリープ、照射下疲労、ポイドスエリング、ヘリウム脆化、水素脆化、照射誘起偏析・析出、粒界脆化、各種モードの破壊等 |
| 3) 要素過程のモデル化 |
| 例えば転位バイアス、カスケードバイアス、臨界キャビティ径等を取り入れたポイドスエリングモデル、上昇運動律速すべり機構(CCG)、応力誘起優先核生成機構(SIPN)、応力誘起優先吸収機構(SIPA)等を取り入れた照射下クリープモデル等組織構成要素と照射下組織変化のモンテカルロ法、化学反応速度論、Fokker-Planck方程式など輸送方程式による手法等によるモデル化 |
| 4) モデル統合 |
| 例えば照射下クリープ、スエリング統合モデル 種々のミクロ組織要素(転位ループ密度、転位網密度、ポイド、析出物)に基づく硬化モデル |
| 5) 挙動モデル |
| 例えば高燃焼度燃料被覆材の挙動、炉内構造材料のIASCC挙動、核融合炉第一壁の長時間後の疲労、クリープ、スエリング等による変形と応力状態の変化及び遷移状態での挙動 |
| 6) モデル検証 |
| 方法論=モデルの予測性の検証 |

これらの各階層は統べうまくつながっている訳ではない。今後、少なくとも隣の階層とのつながりを意識した研究が必要であろう。モデル化についても機構を捨象した現象論的モデル化がかなり広く行われ、それなりの実証性を獲得している場合が多いが、一度モデルの非保守性が現れると結局、機構の追及を行わなければならないことになることは圧力容器照射脆化の例でも明らかである。表-2にも示したようにモデル化は現象論からスタートしても機構論に進んでいかなければならない。我々が取り入れ得るパラメータの数は制限されているから、少なくともモデル化の構成式は機構論に基づいた項がきちんと取り込まれていることが望ましい。

挙動モデル化 (Performance modelling) は核燃料設計などでは、そのサブモデルが機構論に基づくものであるか否かは別として、設計手法の一環としてすでに行われている。照射関連の成果を実際の問題につなげるためには、挙動モデルの開発は必須と考えられる。しかし、多くの問題、例えば核融合第一壁やブランケット構造設計では、モデルの実際条件での検証は不可能で、モデルの予測性を妥当な例題で検証するような方法をとらざるを得ないであろう。

前項に述べた照射関連の方法論は照射損傷の基礎から応用に至る統一的理解の重要性を示している。この階層構造が時間的、空間的に広範囲な領域をカバーするものであることを図-1に示す⁽¹⁰⁾。

この図は、原子炉の中で、シュラウドのような炉心構造材料あるいは燃料被覆管材料として厳しい放射線環境においてその機能を果たす物質とそのシステムの挙動を時間軸に沿って示したものである。高いエネルギーを持つ放射線は、物質中の結晶原子を、0.1ピコ秒 (10^{-13} 秒) 程度の時間領域において、連鎖的にはじき出す。これは従来は原子核物理学のみの対象領域であった。はじき出された原子は、擬似的に液体状態となり数十ピコ秒までの間にエネルギーを失って、材料中には点欠陥が残る。材料物性論で扱われてきた格子欠陥物理学分野で研究されてきた分野である。これらの点欠陥は、熱運動によって相互作用し、また、拡散方程式に支配される拡散によって運ばれてゆく。これらは、やがて点欠陥集合体を形成し、材料中に蓄積してゆく。このようなマイクロな欠陥は、材料の強度、靱性、亀裂進展に対する抵抗を変化させることとなる。これは、旧来の冶金学、材料工学の取り扱う範囲であった。このように特性の変化した材料で構成される機器は、例えばある応力が加わった環境においては、いったん表面から亀裂が生成し始めるとある亀裂進展速度を持って結晶粒界の割れが進行することとなる。このような過程は計算機シミュレーションで取り扱う材料力学あるいは破壊力学の範疇である。一方、そのような機器の点検を計画的に行い、経済的な寿命を定め、システム全体のリスクを定量的に評価することによって、より合理的な保全策を立案することが求められる。これは信頼性工学をさらに発展させた新しい工学分野としてのシステム保全学が取り扱う領域である。

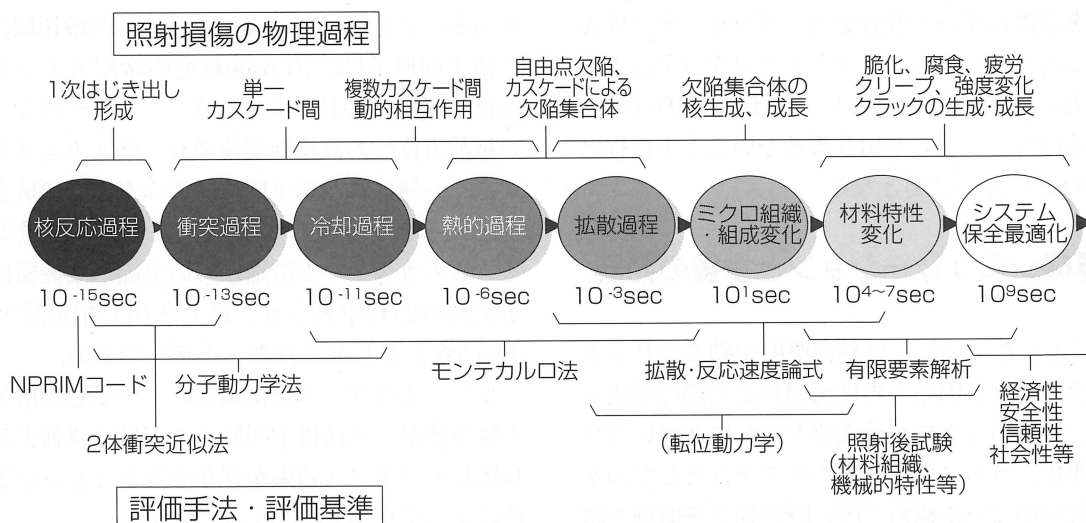


図-1 中性子照射環境での材料物理過程、材料情報と評価手法の時間軸における階層構造

以上で見てきたように、原子炉炉心材料劣化を記述する学術的領域を列挙するだけで、図-1の左から右への矢印方向に示すような「階層構造」が存在する。

従来の原子核物理、物性物理、材料工学、材料力学、破壊力学、構造健全性工学、システム工学に関する専門家が集合するだけで、この問題を解決することは困難であろう。このようなある物質、材料、機器とシステムを一貫して見られる構造を明示してゆくこと、その構造化に基づいて解決の方法論を見いだしてゆくことが要求される。

その学術面からの解答の一つは、マクロな事象はおりミクロ・短時間現象を支配する原理によって決定づけられるとした要素還元主義であった。上記の例であれば、近年進展著しい分子動力学法によって、原子1個1個の挙動をシミュレーションすることによって、長時間の機器構造物のマクロの挙動を評価しうるマルチスケールモデリングを進めようとするものである。しかし、社会から要請される回答を得るために、さらに深い要素へと研究は進むのがこれまでの大学における細分化された領域での研究と教育であった。

一方、社会における知識と課題は、否応ながらもデータベースとして蓄積しているのである。このような社会の課題と爆発的ともいえる知識の増大にどのように対処するか、対処できる人材の養成には、いかなる教育システムを構築すべきかが問われているのである。

ここで、従来の要素還元型で学術領域を深めてゆくことを念頭においた教育をボトムアップ型と呼ぼう。一方、社会における解決すべき課題を提示し、その解決の方法論の探索を進めつつ、課題の本質を明らかにすることを念頭においた教育をトップダウン型と呼んでみる。これらのボトムアップとトップダウンによる教育は、対立する概念ではない。これからの日本をリードするには、これらが切り離せないことを前提とした教育のあり方が必要となる。

4. 計算機シミュレーションと今後の発展

図-1に示したように、材料の照射挙動モデリングには、中性子と材料内原子の衝突過程と欠陥の形成・相互作用、材料のミクロ組織変化とこれに基づいたマクロ特性変化、さらに機器とそのシステムとしての挙動から寿命評価に至る極めて広い時間軸と空間軸を結合するモデル化が含まれる。狭い意味でのマルチス

ケールモデリングとは、原子・分子レベルの離散モデルを連続体力学モデルに結びつける方法論であり、近年のシミュレーション科学と計算機工学の進展によって、大きく進展している分野である。

ここでは、新しい原子力システム開発や高経年化システムにおける保全高度化のために、材料の複雑な挙動を予測・評価するために広く様々なレベルのモデルを階層的に結合してゆくアプローチを、マルチスケールモデリングとシミュレーション技術の役割として位置づけ、その現状と発展の方向を述べる。

4-1) 分子動力学法による欠陥形成モデル

高エネルギー一次はじき出し原子からはじまるはじき出し損傷連鎖（カスケード損傷）は、ピコ秒オーダーのきわめて短い時間内に、ナノメートル程度の限られた空間内で起こる現象である。実験的にこれらを直接計測することは困難であり、計算機シミュレーションによる評価が必須となる。運動エネルギーが十分高い領域での原子間相互作用評価には、二体衝突近似モデルは合理的であるが、数eV以下で重要となる低エネルギー部分の多体相互作用に基づく欠陥形成評価は困難となる。近年EAM法（Embedded Atom Method）による多体ポテンシャルが、分子動力学法による損傷形成シミュレーションに多く用いられるようになり、計算機の高高速化とともにカスケード損傷の形成過程とこれに伴う欠陥形成の定量的評価に大きく寄与してきた。

Averbackら⁽¹⁾は、分子動力学計算によって、固体内のカスケード中心部分が液体構造に近く、溶融状態にあることを示している。さらに、溶融領域に残された格子間原子は、10 psec程度の冷却ステージの間に空格子点位置におさまり消滅してしまうので、低次元の結晶方位への置換衝突連鎖などのメカニズムによって遠くへ運ばれた格子間原子のみが溶融領域を逃れて生き残るという新しい欠陥生成モデルを提唱している。このカスケード溶融からの欠陥形成機構は、二体衝突近似から定義されたはじき出し損傷量としてのdpaの考え方と全く異なるモデルである。

また、カスケード損傷によって生成した格子間原子の集合体が、単独格子間原子より早く移動すること起因してバイアス効果が存在することも、分子動力学法によって明らかにされてきた。

なお、分子動力学法のシミュレーション結果とその

基礎となるポテンシャル等については、よりマイクロな観点から高度な実験的手段による検証をあわせて検討してゆく必要がある。また、第一原理的な分子動力学法は、欠陥を含む材料への適用へ拡大されつつあるが、照射損傷過程における格子系と電子系のエネルギーのやりとりを含めた動的過程を取り扱うことは、現段階ではかなり困難な課題である。

4-2) 分子動力学法とモンテカルロ法の結合

高速中性子による一次はじき出し原子エネルギー範囲をカバーする100 keV程度までのカスケード分子動力学計算が進められており、多くのデータベースが構築されつつある。Baconらは、EAMポテンシャルを用いた(決定論的な個々の)分子動力学法から得られる残存フレンケル対数に関する計算結果を評価し⁽¹²⁾、 $A(T)E_p^m(T)$ のような一次はじき出し原子エネルギー E_p のべき乗の形で整理できることを示した。ここでAとmは物質に固有の(温度Tに依存した)パラメータである。mの値は、一次はじき出し原子エネルギーが1 keV程度以上では、材料依存性が少なく、0.75程度となることがわかってきた。即ち、残存欠陥数はNRTモデルによる計算値に比べて小さく、一次はじき出し原子エネルギーが高くなるほど低くなる。残存欠陥は、熱的過程を経て、再結合したり、自由点欠陥としてマイクロ組織発達に寄与してゆく。この過程は、原子間ポテンシャルに基づいて、欠陥のジャンプと相互作用を扱うモンテカルロ法による評価が進められている⁽¹³⁾。

4-3) 転位動力学法の進展

転位の弾性場における長距離の転位間相互作用、及び短距離の点欠陥集合体と転位、あるいは転位同士の直接相互作用によるジョグの生成や消滅を取り扱うのが、転位動力学法である。この手法によって取り扱える範囲は数十 μ m以上に及び、分子動力学計算等の結果からマクロな材料変形挙動を評価する手法として、今後の進展が期待される。T. Diaz de la Rubiaら⁽¹⁴⁾は照射欠陥集合体の形成と応力下転位ダイナミクスを分子動力学法とモンテカルロ法をも組み合わせ、局所的な転位チャンネルの形成と均一伸び低下を含む応力歪関係を評価している。これはオーステナイト鋼のIASCC挙動評価に重要な照射硬化と延性低下を伴う変形・破壊挙動を評価する基盤となるものと期待される。なお、米国MRSでは、LLNLのグループが、 10^6 個の原子を含む体系での分子動

力学計算と転位動力学計算によってノッチ付き試験片の破壊挙動シミュレーションを行った結果をデモンストレーションしている。

4-4) ミクロ組織発達過程の反応速度論モデル

照射によって導入された熱平衡濃度を越えた濃度の点欠陥は、拡散し、会合して合体・消滅したり、表面や内部の様々な消滅場所(シンク)で消えたりする。このような点欠陥とその集合体挙動の基礎的メカニズムに基づいてマイクロ組織発達過程を速度論的に定式化し、マクロな材料特性変化評価に利用しようとするのが、反応速度論モデルである。例えば、照射下クリープ変形やヘリウム挙動に基づく溶接熱負荷時の粒界脆化割れ評価、IASCCの要因の一つと考えられる結晶粒界での照射誘起偏析過程評価などに活用されている。また、照射フラックスのマクロ特性への影響についても、転位ループの形成、成長、相互作用を定量的に取り扱うモデルの高度化によって、よい見通しが得られつつある。

ただしこの手法は、取り扱う対象が複雑になるとともに、定式化に必要なパラメータ数が膨大になってゆく欠点を持っている。

5. 今後への展望

照射関連の問題を極めて一般的に考察すると次のようになる。照射に係わる材料の特性は極めて多数の材料変数、照射・環境変数で作られる多次元空間の離散的なデータ点と考えられ、通常はごく限られた変数からなる平面に投影された形でデータが表現されている。材料や環境を特性づける変数としては、元素組成だけをとっても原理的に約100個の変数があるように、主なものだけでも容易に数十個を挙げることができる。従ってこの多次元データ空間内のデータ点は極めて稀薄に分布していると言わざるを得ない。しかも、照射環境下では系は本質的に開放系であり、常時エネルギー注入があり散逸が起きている。エネルギー注入密度は1原子当たり 10^6 eVを単位とする程大きく、非照射系とは質的に全く異なる事象が起りうることは否定できない。

照射関連や余寿命評価の問題はこの空間内のある照射・環境条件下の軌跡を知って、他の照射・環境条件下の軌跡を知ることができるかということに帰着す

る。この軌跡と特性あるいは特性セットに対する制限値との関係で（例えば軌跡と制限値の交点を時間軸状に投影した値として）寿命が規定される。多くの場合、寿命終期近傍のデータ点はほとんどないと考えられるので、この近傍の軌跡をどのように評価するかが照射関連のモデリング手法にかかっている。

このような一般的とらえ方にも多くの問題が内在している。例えば、材料の履歴効果を考えると、材料特性はデータ空間の状態量になるのか？といった問題がある。また、軌跡の分岐、複数解の存在、空間内の特異点の存在の可能性等にどう対処するかもよく分からない。結局のところ、照射関連のような非線形的多次元の複雑系の問題では意外性を全く排除することは困難かもしれない。しかし、照射関連は予測性の獲得、即ち既存のデータベースから未知、未踏条件のデータベースを如何に”生産”するかが主要な目標である。対象とする領域で特異な挙動が予想されないことを基礎的、原理的知見によって確認しつつ、この手法を適用することは、全く現象論的なアプローチに比べればはるかに高い予測性と信頼性を獲得することにつながると考えられる。

材料長期間挙動の予測シミュレーションは、実証的データのみに基づいた過度の保守性を排除することへの要請に答えるとともに、加速試験データを実機評価に活用するための基礎としても重要である。また材料の補修・取替工法開発、検査技術開発、材料寿命決定とそれらの合理性評価に機構論的基盤を与える。これらの材料システムの様々なモデルとシミュレーション手法は、「仮想プラント」などの概念による俯瞰的な手法によって統合化される必要がある。

材料に関わる研究開発には多くの情報から有効な知識を集約することが必要であり、ミクロな普遍的情報に基づく階層的モデリングに加え、種々の俯瞰的手法の活用を含む知識の活用、さらにデータベースの不完全な知識を補完する発見的手法を支援するシステムが必要となる。最近では、このようなデータマイニングに、遺伝的アルゴリズムなどによる大規模な計算科学的手法が適用されつつある。また、ネットワークによる既知情報の効率的探索や材料情報の可視化等も援用することによって、ブレイクスルーをもたらす材料技術基盤を形成することも必要となろう。

参考文献

1. 石野 葉、「照射損傷」東京大学出版会（1981年）
2. 石野 葉、余寿命評価と材料 第5章
3. D.G.Doran,G.R.Odette,L.K.Mansur and R.L.Simons : Radiation Effects in Breeder Reactor Structural Materials,Eds.M.L.Bleiberg and J.W.Bennett, (AIME,New York,1977) ,pp.591-611.
4. 照射関連による寿命評価研究専門委員会報告書、「軽水炉圧力容器鋼材の照射脆化研究と寿命評価への課題」(日本原子力学会、1992年6月) pp.49-98.
5. L.K.Mansur and K.Farrell,J.Nucl.Mater.,170, (1990) 236.
6. K.Kussmaul,J.Fohl and T.Weissenberg. ASTM STP 1046 (1990) 80.
7. 石野 葉、関村直人、鈴木雅秀、浅野恭一、永川城正、柴原 格、「照射関連に立脚した圧力容器鋼の照射脆化機構の研究」日本原子力学会誌 Vol.36, No.5, (1994) pp.396-404.
8. S.Ishino and T.Muroga : J.Nucl.Mater.,133&134, (1985) 78.
9. S.Ishino : J.Nucl.Mater.,206, (1993) 139-155.
10. 関村直人：原子力と先端技術 [I], NSA/ COMMENTARIES : No.2, (1994).
11. R.S. Averbach and T. Diaz de la Rubia, Nucl. Instr. Meth. B33 (1988) 693.
12. B.J. Bacon, A.F. Calder, F. Gao, V.G. Kapinos and S.J. Wooding, Nucl. Mesho. In Phys. Res. B102 (1995) 37.
13. N. Sekimura, T. Morioka and K. Morishita, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 758.
14. T. Diaz de la Rubia et al, Nature letter (2000).