

# 複雑かつ階層構造を有する材料の中で起こるマルチスケールな 照射損傷プロセスをいかに予測するか？

How can we predict microstructural changes caused by the  
multiscale irradiation process occurred in materials having  
complicated and hierarchical structures?

京大エネ理工研 森下 和功 Kazunori MORISHITA Member  
京大院エネ科 渡辺 淑之 Yoshiyuki WATANABE Non-member  
京大院エネ科 吉松 潤一 Jun-ichi YOSHIMATSU Non-member

Challenging efforts are discussed to establish an advanced methodology for prediction of material's property and performance changes by irradiation, which will be necessary by all means for the advanced reactor maintenance technology in the future. The changes of material's properties and performance caused by irradiation, such as irradiation-induced hardening, ductility loss, and material's degradation leading to reduction in reactor lifetime, are primarily determined by microstructural changes in materials during irradiation, where athermal lattice defects are continuously produced by collisions between an irradiating particle and a target material atom, and subsequently the defects are aggregated via diffusion in the form of dislocation loops, voids, and solute precipitation. These radiation damage processes are in essence multiscale phenomena, which involve varying time- and length-scales, from ballistic binary collisions to collective atomic motion in the thermal spike stage followed by the thermal activation process. In this report, the multiscale modeling approach is proposed to understand the processes in materials having complicated and hierarchical structures.

**Keywords:** Irradiation, Multiscale modeling, Microstructural evolution in metals

## 1. 緒言

原子炉や核融合炉で使われる材料が、他の工業材料と比べて大きく異なるのは、放射線照射という特殊な環境で使用される点である。照射を受けた材料では、非平衡な格子欠陥が形成し、それによって材料の機能が喪失し、特性が劣化する。

照射による欠陥形成を容認するのであれば、欠陥検出の方法（たとえば非破壊評価法）を充実させるとともに、破壊力学に基づいた材料健全性評価法の高度化が重要になる。しかしながら、より安全かつ安心な炉システムの構築を目指すのであれば、それだけでは不十分であり、欠陥形成を抑制するための方法論を開発し新材料開発に役立てるとか、定期検査によって健全性を確認した材料が次の定期検査までその健全性を維持できるかなどの予測をするための方法論の開発が必要になる。

連絡先：森下和功，〒611-0011 京都府宇治市五ヶ庄，  
京都大学エネルギー理工学研究所，電話：0774-38-3477，  
e-mail：k-morishita@iae.kyoto-u.ac.jp

本研究の目標は、照射による材料劣化の機構論を明確にし、それに基づいて、あいまいさを排除しながら、材料内の照射欠陥の形成を予測したり、抑制したりするための方法論を開発することにある。

## 2. 照射プロセスのマルチスケール性

放射線の照射によって材料の中には、多量のはじき出し欠陥（原子空孔と自己格子間原子）や不純物（H, He, 核変換生成物）が生成する。はじき出し欠陥の生成そのものは、ピコ秒かつナノメートルオーダーの、極めて短時間かつ局所的な現象である。しかしながら、このような材料が使用される温度では、多くの欠陥は移動（拡散）することができる。そのため、照射の影響は時間とともに徐々に材料全体に広がっていく。その結果、材料のマイクロ組織や特性が変化（劣化）する。時間的にも空間的にも多岐のスケールにわたる現象をマルチスケールな現象とよぶが、照射損傷プロセスはその代表である。照射下材料挙動を予測するには、このような「現象のマルチスケール性」を克服する必要

がある。ただし、このように、照射の影響（マイクロ組織変化）が時間とともに徐々にひろがっていくとは言え、たとえば材料強度などは、材料の平均的な特性（の劣化）で決まるのではなく、材料内の最も弱い部分で決まる。材料内の最弱部分がなぜ形成されるのか、すなわち、一見、均一に照射されているはずの材料の強度になぜ強い部分と弱い部分ができるのかについては、照射欠陥集合体形成の本質であるゆらぎの効果、および、材料が本来もっている不均一性などの性質に由来する。

### 3. 材料の不均一性

ここでは、材料が本来有する不均一性（構造階層性と多要素性）について述べる。

材料は、注目する現象の空間スケールに応じて、電子、原子、原子集団、連続体などの系として扱われる。系の見方に応じて、分子動力学法や有限要素法など、解析方法が異なることになる。そのような構造階層性の中に、さらに、材料の多要素性の問題が絡んでくる。すなわち、通常使用される材料は、材料全体にわたって均一であることはなく、母相、表面、粒界、転位、析出物等、異なる多くの要素を含む系になっている（Fig. 1）。要素還元論的に考えるのであれば、材料を個々の要素に分解し、ひとつひとつの要素に対して照射特性を調べ上げ、そののちに、再構成する。”個々の要素の性質が分かれば、それらから構成される材料全体の挙動は理解できるはずだ”という思い込みが真であればよい。しかしながら、このような還元論が照射損傷の問題に適応できないことは言うまでもない。すなわち、照射損傷プロセスは、要素ごとに閉じた現象というわけではない。母相で生じたはじき出し欠陥は、拡散というメカニズムによって、時間をかけて、

粒界や析出物などの異なる要素に侵入する。その逆の移動もある。このように、要素間の欠陥の行き来（拡散）によって、各要素は実質的に相互作用することになる。ゆえに還元論で論じることにはできないのである。このことは、「通常、多要素からなる実用合金の照射効果を調べるために、純金属を照射しても意味がない」ことを示す。しかしながら残念なことに、我々の材料照射研究の分野では、従来から、この手の材料の置き換えが数多く行われてきた。おもに、単に解析しやすいという理由で、シンプルかつ理想化された系が選ばれてきたのである。こうして構築されたモデルと現実との乖離をいかに埋めればよいか？

### 4. 多要素系と欠陥の拡散

構造階層性をもち、しかも多くの要素からなる系（材料）で起こる、時間的にも空間的にもエネルギー的にもマルチスケールな現象をいかにモデル化するか、というのが「照射材料モデリング」の課題である。

はじき出し欠陥の生成をもたらすカスケード損傷は、先述したように、高々ナノメートルオーダーの現象である。かつ、原子どうしの衝突連鎖が基本である反応であることから、この現象を解析するには、系を原子集団にとることになる。このとき、その原子集団がどんな要素（母相か？粒界か？・・・）に属しているのかは重要であるが、その隣の要素が粒界なのか？表面なのか？は重要ではない。なぜなら、カスケード損傷は解析対象となる要素のみに限定される現象であるからである。

一方、カスケード損傷によって生成した欠陥は拡散し、そのため、解析対象は時間とともに徐々に拡大する。その結果、可動な欠陥は、やがては隣の要素に到

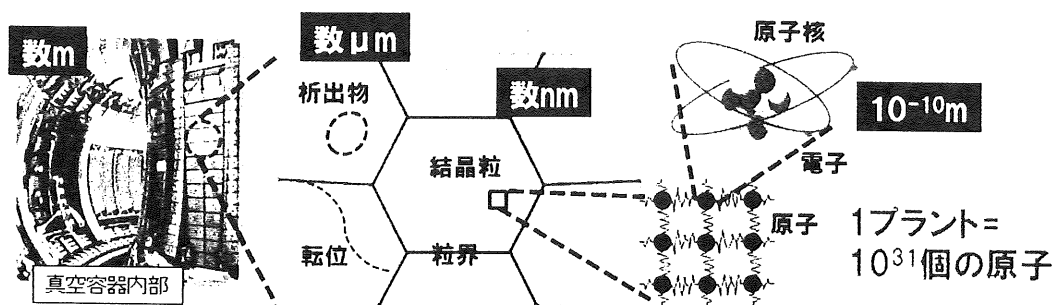


Fig. 1 Schematic view of the complicated and hierarchical structure of materials

達するので、材料が複数の要素から構成されているという問題が顕在化する。

こうして、多要素であるという空間スケール上の材料の性質は、注目している現象の時間スケールによって顕在化する場合としない場合があることになる。長時間スケールの拡散プロセスでは、材料が多要素であるという性質が重要になるが、短時間スケールのはじき出しプロセス（変位カスケード損傷）では、さほど問題にはならない。

さて、このように考えていくと、拡散の効果の有無がひとつのキーになる。すなわち、低温ゆえに欠陥の拡散が顕著でないとか、あるいは、現象の短時間スケールの部分しか見ていないために拡散の効果が発現しないといった場合には、要素間の相互作用（=拡散）を考える必要はなく、したがって、要素ごとのモデル化が可能になる。つまり、はじき出し損傷プロセス（変位カスケード損傷）は、要素還元論的に思考して構わない。一方、拡散の効果が顕著となる現象（高温、長時間）を見る場合は、多要素であることが結果に大きく影響する。

前節の議論を言い換えると、「注目している現象の時間スケールによって、対象となる空間スケールが決定される」ことになる。これを模式的に表したのがFig. 2である。時間スケールが増大するにつれて空間スケールも増大する。照射損傷プロセスは、図の左下から右上に向かって進展する。ここで、横軸は、どの程度のモノサシを使って現象を見るか、どの程度の倍率の顕微鏡を使って現象を見るのかを表す空間スケールである。マイクロメートルオーダーより大きなスケールで見ると、粒界の存在が確認されるので、系全体としては、複数の要素から構成されることがわかる。一方、縦軸は、1コマ何秒程度のコマ送りで現象を見るかの時間スケールを表す。図にあるように、はじき出し欠陥の生成はピコ秒オーダーであり、このような超高速現象をいくら秒、ミリ秒、ナノ秒程度のコマ送りのカメラで見ても、所詮、ピコ秒は一瞬でしかない。逆に、数時間という時間スケールの現象を、いくら1コマ1ピコ秒の超々高速度カメラで撮影したとしても、1コマ目と100万コマ目の間に何ら変化は認められない。すなわち、現象には、それを見るために必要な適当な時間スケールと、それに対応する適当な空間スケールが存在するのである。換言すれば、どの程度のモノサシとどの程度のコマ送りのカメラを使うかによって、

## 5. マルチスケールモデリング

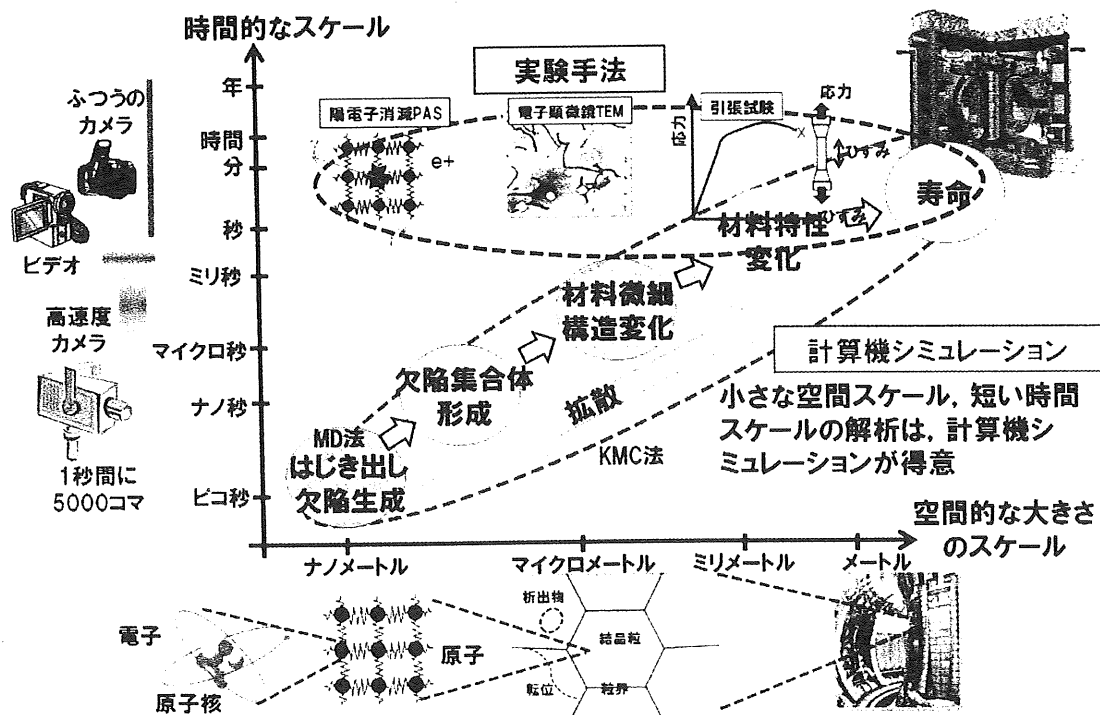


Fig. 2 Multiscale radiation damage processes in materials during irradiation

同じ現象 (=照射損傷プロセス) であっても見え方が異なることになる。

さて、このようなマルチスケールな現象をモデル化することを考える。

まずは系の取り方であるが、図の一番左、すなわちナノメートル以下の領域では、原子や電子を扱うことになる。これが第一原理計算である。精度の高い解析法である。できることなら、この手法をそのまま数 10 メートル規模の原子炉・核融合炉に適用したいところであるが、そこに含まれる原子の数は  $10^{31}$  個程度、電子数はその 100 倍弱ということになる。原子や電子の 3 次元的な位置や速度を考えると、系の自由度はその 6 倍になる。これは、実質的に無限大である。現在の計算機を使っても、第一原理計算可能な系の大きさは、原子数にして、高々 100~1000 個でしかない。

そこで、系の大きさをいきなり炉の規模にするのはあきらめ、まずは、電子の存在を原子間ポテンシャル関数とよばれる「ばね」に置き換えることにする。電子の役目をうまくポテンシャル関数の中に繰り込むことができれば、系の自由度は下がる。下げた自由度の分だけ、系の大きさを大きくすることができる。これが、いわゆる分子動力学法とよばれる方法である。これなら、百万~一億個の原子を扱うことができる。この方法を用いて、原子はじき出しによるカスケード損傷のシミュレーションが行われている。

生成した欠陥は、先述したように、拡散というメカニズムにより材料内を駆け巡る。そのため、時間が経過すればするほど、必要な系の大きさはどんどん大きくなっていく。幸いにして我々の研究分野は、欠陥の挙動に興味があるのであって、正規の格子位置の原子は対象ではない。そこで、分子動力学法によって同定された欠陥のみを抜き出し、正規の格子位置にある原子の情報は捨象する。このように、欠陥の挙動のみに注目する解析手法をキネティックモンテカルロ法と言う。

さらには、欠陥 1 個 1 個の位置に関する詳細情

報をモンテカルロ法から捨象し、あらかじめ空間内に設定したメッシュの中の欠陥数の変化のみを注視する。これが反応速度論解析である。メッシュごとに評価される欠陥濃度の時間発展を追跡する方法である。

このように、系の自由度を次々に下げていき、その代わりに解析可能な系の大きさを拡大させていく方法が、照射損傷プロセスにおけるマルチスケールモデリングである。解析法を変える際、情報の受け渡し (繰り込み) がうまく行われないと、自由度を下げた分だけ誤差が蓄積することになる。

系が熱的に平衡な状態であれば、熱力学・統計力学の知識を使って、じょうずに繰り込むことが可能になる。この場合、たとえ 1 モル ( $=6 \times 10^{23}$  原子) もの原子のふるまいであっても、 $\rho, V, T$  等の少数のパラメータを使って系を記述することができる。しかしながら、一方、照射損傷を含む非平衡プロセスにおいては、繰り込みに関する方法論が必ずしも明らかになっているわけではない。従来の熱力学・統計力学にかわる非平衡系のミクロマクロ相関に関する記述法が求められている。

## 6. まとめ

原子カシステムの材料健全性評価の高度化に必要な照射材料マルチスケールモデリング手法の開発に関して、特に、材料の階層構造性および多要素性について検討した。

なお、当日は、核融合炉第一壁や次世代原子炉の燃料被覆管として有望な SiC/SiC 材料に関するモデリング研究の成果を織り交ぜながら報告する。