

照射による材料劣化現象のマルチスケールのなものの見方と原子炉の保全

Multiscale viewpoint of material's degradation due to irradiation and its possible application to the lifetime assessment of nuclear power plants

京大エネ理工研	森下 和功	Kazunori MORISHITA	Member
京大院エネ科(M2)	吉松 潤一	Jun-ichi YOSHIMATSU	Non-member
京大院エネ科(M1)	山本 泰功	Yasunori YAMAMOTO	Non-member
京大院エネ科(PD)	渡辺 淑之	Yoshiyuki WATANABE	Non-member

A multiscale viewpoint is introduced into the modeling methodology of radiation damage processes in fission and fusion materials, where the processes occur at a wide variety of time and length scales. Attempt is also made to apply this viewpoint to the reactor integrity technology.

Keywords: Materials degradation by irradiation, Multiscale modeling, Reactor integrity

1. はじめに

原子力発電設備の健全性は、原子力の『安全論理』と『保全論理』の2つにより確保される[1]。前者が、深層防護や多重構造の考えを原則として、様々な事故を想定しながら、安全な原子炉を設計・建設するためのものであるのに対し、後者は、運転開始後の機器・系統の機能維持など、原子炉の保全にかかわるものである。機器・系統の機能維持の基本は、それを構成する材料健全性の確保にほかならない。

原子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。照射を受けた材料中では、原子サイズの非平衡な格子欠陥が局所的に高密度に形成し、それらが及ぼす効果によって、材料機能が喪失し、特性が劣化する。このような特殊な環境で使われる材料の健全性を確保するには、材料が本来もっている構造階層性と、その中で起こる材料照射損傷プロセスのマルチスケール性（時間的・空間的尺度の階層性）を考慮しなければならない。

本稿は、材料照射損傷プロセスの時間的および空間的構造に関する以下の種々の関係性について、まず明らかにする。そのうえでマルチスケール性の観点に立

脚した原子炉保全を検討する。

- ・材料の空間的階層性、多要素性
- ・照射プロセスの時間・空間的マルチスケール性
- ・照射劣化と照射場の因果性（照射相関）
- ・マイクロマクロの関連性をつなぐ微視化と粗視化
- ・自然環境中の物質循環現象との類似性

2. 照射プロセスのマルチスケール性

放射線照射によって材料中には、多量のはじき出し欠陥（原子空孔と格子間原子）や不純物（H, He, 核変換生成物）が生成する。このうち、はじき出し欠陥は、外部からの高エネルギー粒子が引き起こす標的原子どうしの衝突連鎖反応（原子球を使ったビリヤード）によって形成される。これを模式的に図1に示す。原子のはじき出し現象そのものは、極めて短時間かつ局所

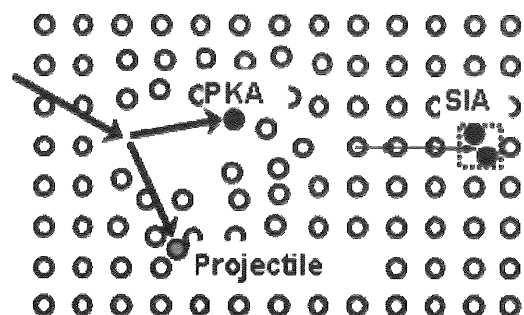


図1 照射による材料内の原子衝突連鎖

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：morishita@iae.kyoto-u.ac.jp

的な(10ピコ秒, ナノメートルオーダー)現象である。こうした特徴や入射粒子フラックス(たとえば 10^{20} n/m²/s 程度)を考えると, 異なる入射粒子によって引き起こされる2つの原子衝突連鎖反応が, この短時間のうちに相互作用することはない。しかし, こうして生成したはじき出し欠陥は, 通常の使用温度域でじっとしていることはなく, 熱活性化過程で材料内部を移動(拡散)する。そのため, ナノメートル程度の空間領域に限定されていた照射(原子はじき出し)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, 多くの欠陥どうしが交わり相互作用し, 材料内部に照射欠陥集合体が形成する。そしてマイクロ組織が変化する。このような照射損傷プロセスは, 時間的尺度にせよ, 空間的尺度にせよ, 多岐のスケールにわたる現象である。これを一般にマルチスケールな現象とよぶ。図2は, 時間・空間スケールのそれぞれでどのような現象が起こるかを示している。現象が図の左下から右上へと流れているのは, 欠陥の拡散によ

て, 照射の影響が時間とともに徐々に広がることに対応する。

はじき出し欠陥濃度 C の時間変化は, 通常,

$$dC/dt = P + D(\partial^2 C / \partial x^2) - \sum_i K_i C \quad (1)$$

のように書く。ただし, ここでは, この方程式を象徴的に示したに過ぎない。右辺の第1項 P は照射による欠陥の「生成」項(dpa/s)であり, 第2項は欠陥の「拡散」項, 第3項は「反応」項である。特に第1項は, 極めて短時間かつ微小領域の原子衝突連鎖反応によって決まる。また, 照射場の状態(入射粒子の種類, エネルギー, フラックス)に強く依存する。そのため, たとえば, 「まだ存在しない核融合炉の照射下材料挙動を, 既存の核分裂炉照射によって予測する」のに必要な照射相関の問題に重要である。

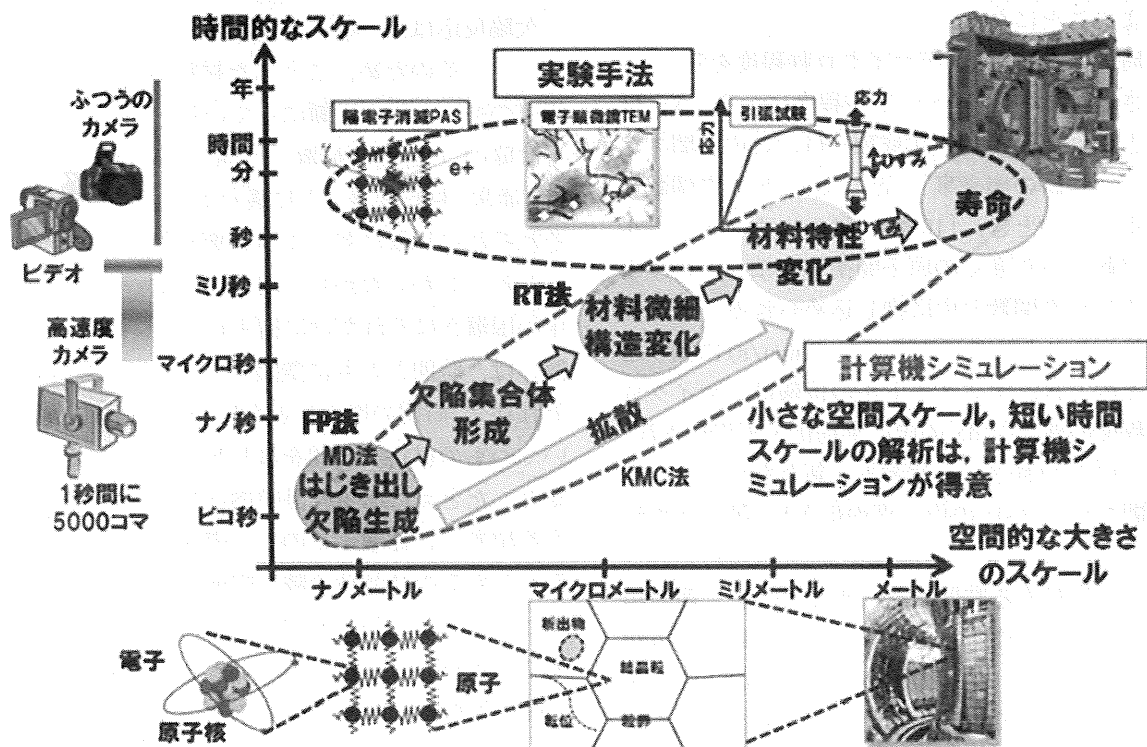


図2 マルチスケールな現象である材料照射損傷プロセス

第3項の Σ は、さまざまな欠陥反応が存在することを意味する。そこでは、比較的短時間で活性化する単純な欠陥集合体形成の反応から、長い時間かかって初めて活性化する材料表面形状変化（核融合炉ダイバータ材料表面で見られる膨れ現象＝プリスタ）などが含まれる。核融合炉の場合、こうしたプリスタが剥離し、それがプラズマ領域に侵入することによりプラズマの状態に影響を与える。それはすなわち、第1項 P （短時間スケールで支配的であった項）に影響を及ぼすことを意味する。こうして短時間スケールの現象の積み重ねが長時間スケールの現象を誘発し、長時間スケールの現象の発生が今度は逆に短時間スケールの現象に影響を及ぼすことになる。

時間的にマルチスケールな現象とは、式(1)の時間スケール (dt) の大きさ次第で、右辺の支配的な項が変化することである。たとえば、 dt が10ピコ秒なら、右辺の支配的な項は、原子はじき出し（第1項 P ）である。このとき、系の大きさ dx はナノメートルオーダーになる。このような短い時間スケールにおいては、欠陥の拡散や反応は起こり得ないので、第2,3項は無視してもよいことになる。

次に、時間スケール dt がマイクロ秒程度を考える。系の大きさ dx はマイクロメートル程度になる。さきほど支配的とされた第1項（生成項）は、この時間スケールでは、“一瞬の出来事”として、デルタ関数で表現される。このとき、「10ピコ秒かつナノメートルスケールで起こった多くの原子間衝突連鎖」という事実は、このデルタ関数の中に押し込められる。そしてそれは、たったひとつのスカラー量 $P(\text{dpa/s})$ に繰り返される。このとき、ナノメートルの情報は、マイクロメートル程度の新たな dx の中に平均化・平坦化され、埋没する。10ピコ秒という情報も、新たなマイクロ秒という時間ステップ dt の中に平均化され、押し込まれる。

このように注目する時間スケールによって、照射損傷プロセスは多様な姿を見せる。そのため単一の方法だけでは評価できず、後述のように、複数の手法を活用する必要性が生じてくる。また、小さなスケールから大きなスケールに情報が橋渡しされる際、上述のような平均化（＝繰り返りこみ・押し込み・平坦化・粗視化）の作業が必要とされ、そのとき、曖昧さが発生する。こうして、どのスケールをどのような方法で評価する

か、また、異なるスケールどうしを接続するにはどうしたらよいのかという問題が生じる。こうした問題を克服することがマルチスケールモデリングである。

3. 材料の構造階層性と多要素性

照射損傷プロセスは、短時間に生成したはじき出し欠陥が、拡散によって、時間の増大とともに徐々に材料全体にひろがっていく現象である。時間的・空間的マルチスケール性という意味においては、たとえば自然環境中の物質移行現象にもその類似性がある。いずれの場合も、時間とともに空間スケールはひろがっていく、その結果、空間の不均一性が顕在化する。もしくは、より顕著になる。不均一性の要因は、材料の構造階層性と多要素性である。前者は、注目の空間スケールに応じて、電子・原子、原子集団、連続体などとして表現されるものである。後者は、材料を構成する最小単位を原子にすると、その空間配列の多様性によって、結晶粒とか、粒界とか、転位とか、析出物とか、表面など、多様な材料要素が構成されることを示す。

欠陥反応は、一般に材料要素ごとに違ったふるまいをする。そのため、こうした材料の不均一性は、照射損傷のモデル化を困難にしている。

欠陥の「生成」「拡散」「反応（集合化・解離など）」は、通常、材料要素ごとに異なる現象である。つまり、それぞれの現象に対して材料要素数分のモデルが必要になる。しかしながら、材料の不均一性に伴うモデル化の困難さはそれだけに留まらない。特に、欠陥の「拡散」は、時間とともに空間的にひろがる現象であり、それゆえ、時間の増大とともに、たとえ同じ欠陥でも、いくつもの材料要素間を渡り歩くことになる。そうなると、たとえばある結晶粒内に生成した欠陥が、隣接する粒界へと拡散するのか、表面へと拡散するのか、そもそもその結晶粒の隣に表面はあるのか、などが問題になる。すなわち、隣接する材料要素どうしは、欠陥の拡散を介して相互作用することになる。要するに、欠陥の拡散により、要素分割・還元論が適用できなくなっている。

こうした材料の不均一性は、原理的に、予測を不可能にする。すなわち、たとえ材料内の欠陥挙動の物理のすべてが明らかになったとしても、そしてまた、そ

れらを十分な精度で解くことができたとしても、材料要素（結晶粒、粒界、転位など、原子の配列によって定義される媒質）が実際にどうなっているのかは一般には明らかでない。そのような不明瞭な媒質の中で動く欠陥の挙動をいかに予測すればよいのか？実は同様の問題は、自然環境中の物質移行現象（原子力施設付近の放射性同位元素（トリチウムなど）の移行現象とか、自然環境中のCO2の循環など）のモデル化にも存在する。

4. マルチスケールモデリング

さて、こうした時間的・空間的なマルチスケール性を含む照射損傷プロセスをどのようにモデル化するか？上述のように、時間スケールに応じて注目すべき空間スケールはほぼ決まる。欠陥生成なら10ピコ秒かつナノメートルスケールである。欠陥の拡散なら $Ddt/(dx)^2 \sim 1$ 程度になる。そのような組 (dt, dx) のそ

れぞれに対して、照射材のマイクロ組織変化のモデリングに関して我々は、図2に示す計算機シミュレーションや実験手法の利用を提案している。欠陥生成については分子動力学（MD）法（原子1個1個の挙動を追跡する方法）を使い、欠陥の拡散や集合体形成については、キネティックモンテカルロ（KMC）法（欠陥1個1個を追跡する方法）や、反応速度論解析（RT）（欠陥濃度の時間変化を追跡する方法）を使う。MD法の実行に必要な原子間ポテンシャルの導出には、第一原理（FP）計算（電子・イオンの挙動を解析する方法）を用いる。

こうして、FP→MD→KMC→RT という複数のシミュレーション手法が必要になる[2-4]。ただし、ここで注目すべきは、FPから順に右に行くにしたがい、解析対象となる系の自由度が小さくなっていることである。系の自由度を下げることは、表現の精確さを犠牲にすることである。しかしながら一方で、取扱い可能な系の

He-bubble migration & microstructural evolution

MD + KMC + Rate Equation = AFM + TEM?

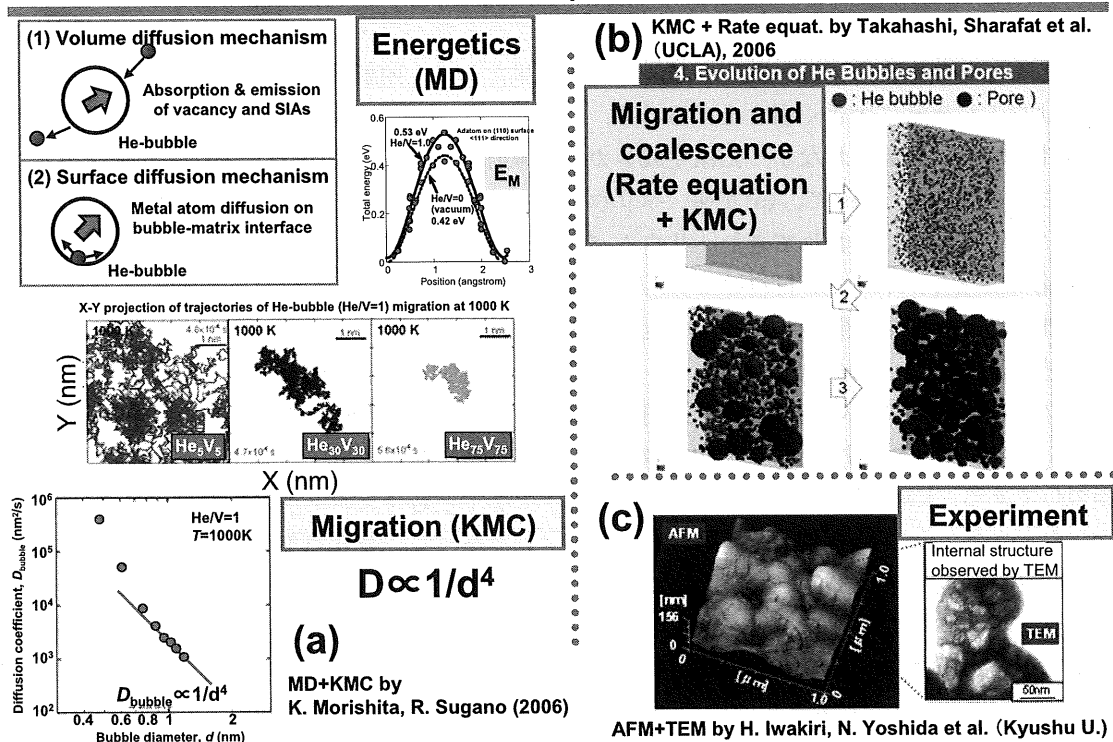


図3 種々の計算手法の組み合わせにより再現される表面形状変化

大きさを大きくとれるとか、追跡可能な時間スケールを長く取れるなどの利点が発生する。マルチスケールモデリングは、このようなトレードオフの関係をうまく利用する解析法である。

次は、これらの手法によって得られる結果をいかに接続するかの問題である。時間的な意味でも空間的な意味でも、多自由度のミクロと少数自由度のマクロの関連性が問題になる。ミクロの世界は自由度が高く、多くの情報にあふれている。そこで、一般に、現象のメカニズム究明には、ミクロの世界を覗く行為（微視化）が行われる。これは、たとえば照射材料の内部を電子顕微鏡で観察し、照射による硬化要因を欠陥集合体の形成にあるとする作業である。あるいはまた、従来、透過型電子顕微鏡観察実験や反応速度論解析によってモデル化されてきた欠陥集合体の形成プロセスを、原子レベルの MD 法で調べることにより、従来では得られなかった知見を取得することである。このアプローチにより、我々は、(1)ヘリウムキャビティ（ヘリウムと原子空孔の欠陥集合体；ヘリウムバブル）等の欠陥集合体の熱的安定性の詳細を調べ、(2)その集合体の核生成・成長のモデル化に成功した。また、(3)欠陥集合体の熱的安定性は、そのサイズと内部の欠陥組成により決まることを示した。さらには、(4)バブルの熱的安定性をヘリウムが異常に大きく引き上げる結果、他の欠陥集合体の場合には見られなかった核生成メカニズムが働くことを示した。そして、(5)従来、ヘリウム濃度の大小によって別々に扱われてきたヘリウムバブルの成長理論（核融合ダイバータ材料のモデル化には Wolfer の理論、核融合第一壁材料のモデル化には Mansur 理論）を統合することに成功した。

こうしたミクロを覗く（時間スケール dt や空間スケール dx を小さくする）行為、すなわち微視化に対し、その逆が粗視化である。未来予測は dt を大きくする行為にほかならないから、したがって、材料の未来を予測するには、粗視化の作業が必要になる。（図 2 にあるように、微視化と粗視化の方向は逆である。ゆえに、メカニズム究明のための微視化の作業が、即、未来予測につながるわけではないことになる）。

上記で、ヘリウムバブルの核生成・成長モデルについて述べたが、このとき、バブルの「集合体としての拡散係数」も求めたところ、バブル径の 4 乗に反比例

することがわかった。バブルの拡散係数とは、バブル近傍に存在するすべての点欠陥の挙動を粗視化し、それらをたったひとつのパラメータの中に押し込んだ（繰りこんだ）ものである。こうしてバブルの拡散係数がわかると、今度は、先の無数の点欠陥挙動については忘れることにして、拡散係数のみを使った KMC 解析を行う。すると、より長時間のバブル挙動が明らかになる。その結果、図 3 にあるように、照射表面近傍にスポンジ構造が出現する。これは、He 照射した材料を電子顕微鏡観察することにより（SPM, TEM）得られる構造によく似ていることが分かる。こうして短時間・小空間スケールの挙動の粗視化により、時間・空間スケールを伸ばすことが可能になる。こうして実験事実を再現することができるようになる。

ただしこうした粗視化は、自由度を下げる行為である。そのため、粗視化の際に様々な曖昧さ（系の記述のイイカゲンさ）が入ることに注意すべきである。たとえば、照射量の単位である dpa は、照射場の状態（入射粒子の種類、エネルギー、フラックス）や欠陥生成に関与する多くの原子の情報を、たったひとつのパラメータに押し込んだ（粗視化）ものである。できればこうしたパラメータを使って未来を予測したいのだが、果たして、照射場の状態が大きく異なる場合（たとえば、核分裂炉照射 100dpa のデータを使って、核融合炉照射 100dpa における材料挙動を予測する）でも予測可能であろうか？粗視化に伴って発生した曖昧さが、未来予測を不可能にしないか？

あるいはまた、そのような曖昧さを避けるために、粗視化せずに未来予測をすることを考える。たとえば系を電子・原子の集合体として扱ったまま、30 年間照射した材料の挙動を調査する。図 2 からわかるように、系を電子・原子の集まりとして表現することは、少なくともフェムト秒の時間刻みを考えることである。したがって、30 年は無限大の時間ステップ数を意味する。当然、30 年に対応する空間の広がりも、電子・原子が占有する空間スケールからすれば無限大である。こうして時間的にも空間的にも無限を対象にすることになる。こうした問題を解くことは現実的でない。やはり、注目する時間・空間スケールごとに適切な系の取り方（自由度の数）というものがあるのだ。

5. 原子炉保全に関わるマルチスケール性

話しを保全に戻す。材料学の観点からの原子炉保全を「照射を受けている材料がいつ壊れるかを予測し、事前に、合理的な措置を講じること」であるとすれば、まず、材料の照射損傷をいかに予測するかが問題になる。

そこで、損傷予測の第一歩として、材料中で起こっている劣化現象のメカニズムを知る必要が出てくる。これは、図2で見たように、微視化によって系の自由度を増やす行為、ミクロの世界を覗くこと、すなわち、図2の左下の方の情報を取得する行為である。具体的には、電子顕微鏡などで、材料の微細構造を観察し、劣化の要因を突き止める行為である。しかしながら一方で、そのような行為は、より小さな空間スケールを対象にする行為であるから、自らの視野を狭めることになる。はたして電子顕微鏡によって観察されたミクロ組織変化が本当に照射脆化の要因なのか？顕微鏡で観察していない部位とか、観察できないくらい小さな組織変化が要因になっているということはないのか？たまたま見えたものだけで話しを進めてもよいのか？などの疑問はいつまでも残る。それでも因果関係をなんとか明らかにできたとしても、今度は、なぜ (why) そのようなミクロ組織変化が生じたのか？という疑問が発生する。こうして、ついには、プラント内の 10^{32} 個以上の原子・電子の状態を知りたくなる。原子・電子を扱うことはより正確な情報を得ることではあるが、上述のように、空間的にも時間的にも無限大の自由度を扱うことになる。実際には解けない。

そこで、微視化作業をほどほどにして、材料劣化の未来予測 (粗視化) を考える。図2でも議論したように、未来予測は、微視化とは逆の向きであり、そのとき、系の自由度を絞り込む必要が生じる。時間的にも空間的にもマクロなスケールに必要な自由度は少数だからである。これは、原子・電子の世界の実質無限大の自由度を、有限のパラメータに落とし込む作業である。具体的には、莫大な数の原子の速度分布から温度と呼ばれるひとつのパラメータを抽出したり、10ピコ秒かつナノメートル領域に発生する多くの原子のはじき出し状態を dpa と呼ばれるひとつのパラメータに表現したりする行為である。ただし、自由度の減らし方 (絞

り方) は、目的に応じて幾通りも存在するので、自由度をいかに (how) 減らすかは難しい問題である (たとえば先の温度というマクロパラメータも、熱平衡という状態でないと意味がない)。また、それとも関連して、上述のように、このような粗視化 (平均化, 平坦化) にあたっては、自由度を減じる際に多くの曖昧さが発生する。その曖昧さゆえに、いくらでも粗視化を行うわけにはいなくなる。そこで、たとえば時間を区切って、その限定された時間の中で予測を行うことになる。原子炉保全に関わる予測時間の最大値は、こうして、定期検査から次の定期検査までということになる。このような意味合いからすると、人間が制御しうる時間スケールから見て、事実上無限とも思える時間スケールを想定しなくてはならない放射性廃棄物の保管・制御に関する予測は、ここでの「保全論理」とは別の論理が必要になる。

6. まとめ

供用中の原子炉の材料劣化に重要な照射損傷プロセスに関して、種々の関係性 (階層性, 多要素性, マルチスケール性, 因果性, ミクロ・マクロの関連性) をつなぐ微視化・粗視化, 類似性) に留意しながら、そのモデル化について検討した。さらに、そこで検討されたマルチスケールの見方に立脚しながら、原子炉の保全について議論した。

参考文献

- [1] 保全学会原子力論点評価会議, “原子力発電設備の「新検査制度」に関する論点評価 (概要)”, 保全学 Vol. 7, No. 4 (2009) pp. 23-26.
- [2] Shahram Sharafat, 森下和功, “今, 核融合炉の壁が熱い! - 数値モデリングでチャレンジ 第6回 VI-1. 壁の中は傷まないか”, 日本原子力学会誌 Vol. 50, No. 11 (2008) pp. 724-729.
- [3] 森下和功, Shahram Sharafat, “今, 核融合炉の壁が熱い! - 数値モデリングでチャレンジ 第7回 VI-2. 壁の中は傷まないか”, 日本原子力学会誌 Vol. 50, No. 12 (2008) pp. 803-808.
- [4] 森下和功, “マルチスケールでのプラズマ・壁相互作用の理解の現状 5-2 核融合材料のマルチスケールモデリング”, プラズマ・核融合学会誌 Vol. 84, No. 12 (2008) pp. 941-945.

