

# 照射劣化の中性子照射場依存性に関する数値解析

Numerical evaluation of radiation damage in metals  
under various neutron irradiation conditions

京都大学	中筋 俊樹	Toshiki NAKASUJI	Student Member
京都大学	山本 泰功	Yasunori YAMAMOTO	Student Member
京都大学	森下 和功	Kazunori MORISHITA	Member

## Abstract:

Since structural materials used in a fission reactor are subjected to irradiation by high energy neutrons, materials degradation due to irradiation should be taken into account when reactor design and maintenance are made. One of significant issues to be solved for a realization of long term operations beyond 40 years is to clarify the validity of a prediction of material's degradation due to long term irradiation that is not experienced yet. Material's behavior due to 60 years irradiation in a reactor should be understood using accelerated irradiation conditions provided by a different irradiation facility from the actual reactor environment. Therefore, we should obtain a precise, quantitative relationship between irradiation conditions and materials degradation on a basis of damage mechanisms. To do this, in the present study, material's degradation under various irradiation conditions has been evaluated by numerical calculations based on the defect reaction rate theory. Our calculation results have showed that volume swelling due to irradiation is very much different depending on irradiation facilities such as HFIR, JOYO, KUR, 14MeV fusion neutrons that are quantitatively characterized by the irradiation dose rate of dpa/s. An establishment of irradiation correlation rule is discussed, where material's degradation due to long term irradiation are precisely predicted using material's irradiation data obtained at the existing irradiation facilities.

**Keywords:** Radiation damage, Rate theory, Defect cluster, Neutron spectrum, Irradiation correlation

## 1. はじめに

原子炉や核融合炉の構造物は中性子等の高エネルギー粒子の照射を受ける。照射によって材料内の原子は格子位置からはじき出され、材料中に欠陥（格子間原子および空孔）が生成、それらが拡散して集合体（キャビティおよび転位ループ）を形成する。こうした材料内のミクロ構造変化がもとになって、体積膨張（ボイドスエリング）、延性-脆性遷移温度の上昇や上部棚エネルギーの低下で表される脆化、照射誘起応力腐食割れなどの問題が発生する。炉設計および炉の保全には、経年劣化事象としての、こうした照射劣化を考慮することが重要である。

新しい原子炉等規制法では、軽水炉の40年運転を基本としているが、特別点検の結果次第によっては、最長60年までの運転が許可される。しかし、現時点での日本の軽水炉の運転実績が精々40年程度であることを考える

と、60年までの延長の妥当性を検討する際、いかに材料劣化を正しく見積もれるかが問題となる。照射速度、中性子スペクトル、照射時間、温度等、照射条件の違いをしっかりと説明できるメカニズムベースの予測法の構築が求められている。これらの結果を用いて運転延長の判断あるいは適切な保全活動を計画することはとても重要である。

照射による材料劣化を整理するとき、照射損傷量を示す指標として dpa が使われる。dpa とはターゲット原子あたりのはじき出し数であり、はじき出し欠陥の生成量を示す指標である。加速照射試験では、はじき出し損傷速度 (dpa/s) を用いて実際の条件との違いを表現することが多い。しかしながら、dpa の評価には欠陥生成後の格子間原子と空孔の再結合消滅や欠陥集合体形成過程が含まれていない。これらの挙動は、生成した欠陥の拡散および欠陥どうしの反応によるものであり、欠陥濃度や温度に強く依存する。したがって、同じ dpa 値であっても、照射施設が異なると、必ずしも材料劣化は同じに

連絡先: 中筋俊樹、〒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、  
E-mail: t-nakasuji@iae.kyoto-u.ac.jp

ならない。加速照射を行って短期間のうちに60年分の照射をしたとしても、それが本当に実条件における60年照射に相当するかは、dpa 値だけでは判断できないのである。材料劣化の原因である材料マイクロ構造変化（欠陥集合体形成）と照射条件の関係をメカニズムベースで明らかにしておく必要がある。

また、たとえ同一原子炉であっても、炉心部と外壁部などといった照射部位の違いにより、中性子エネルギースペクトルや照射温度は異なる。すなわち、dpa/s 値、ひいては、はじき出し欠陥の生成や欠陥集合体形成プロセスが部位によって異なることになる。その結果、たとえばスエリングの部位依存性に起因して、チャンネルボックスの移動時に燃料集合体のスペーサーがずれるといったトラブル事例も報告されている<sup>[1]</sup>。放射線照射の環境で使用される以上、照射による材料劣化は免れないにしても、こうしたトラブルを極力さけるためにも、炉全体の照射劣化挙動（部位依存性）を正しく把握しておくことが、保全の高度化に重要である。

本研究では、照射による材料劣化の機構論をもとに、照射条件の違いがどの程度材料劣化の違いをもたらすかについて議論する。特に、はじき出し過程と欠陥集合体形成過程の2つに分けて検討し、損傷速度及び照射温度とスエリングの関係を明らかにし、中性子照射条件の違いが欠陥集合体形成に及ぼす影響を評価する。さらに、この評価によって照射劣化の照射場依存性を考慮した、設計・保全方法についても議論する。

## 2. 照射場の定量化

### 2.1 数値解析手法

中性子エネルギースペクトルからはじき出し損傷速度 dpa/s の算出には、SPECTER コード<sup>[2]</sup>を用いた。SPECTER コードは  $10^{10}$  MeV から 20 MeV までの中性子エネルギースペクトルから、はじき出し損傷速度 (dpa/s)、PKA（一次はじき出し原子）エネルギースペクトル、ガス生成率、損傷エネルギー (Kerma) を計算することができる。ターゲットとしての元素は41種類を取り扱うことが可能である。各反応断面積については米国の核データライブラリー ENDF/B-V を使用している。今回の評価で用いる元素は鉄原子とした。

### 2.2 各照射場のはじき出し損傷速度

既存の照射施設において得られた中性子スペクトルを

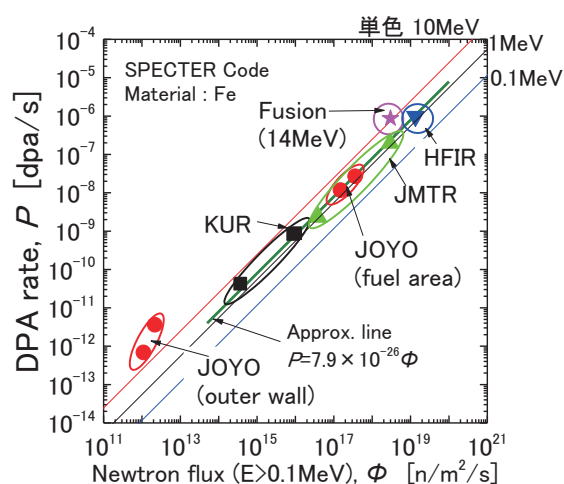


図1 各照射場の中性子束と損傷速度

用いて、各照射場の中性子束とはじき出し損傷速度を算出した。照射施設には、日本原子力研究開発機構の高速実験炉「常陽」(JOYO)、材料照射試験炉 (JMTR)、京都大学研究用原子炉 (KUR)、米国オークリッジ国立研究所 High Flux Isotope Reactor (HFIR)、および核融合中性子として 14 MeV の単色中性子を選んだ。

図 1 には各照射場における中性子束と損傷速度 dpa/s の関係を示す。照射場によって中性子束、損傷速度は桁違いである。さらに核分裂炉の炉心付近に限定すると、中性子束  $\phi$  と損傷速度  $P$  に良い線形性が見られる。最小二乗法により次の近似線を得た。

$$P = 7.9 \times 10^{-26} \phi$$

これは、炉壁部のような軽水や反射体などによって十分に減速された領域でなければ、中性子エネルギースペクトルの違いによる影響は少ないことを意味する。

## 3. 欠陥集合体形成過程

### 3.1 反応速度論モデルについて

欠陥集合体形成過程の評価には反応速度論解析を行う。本研究では分子動力学法を用いて評価されたエネルギー論<sup>[3]</sup>を取り入れ、欠陥集合体の核生成プロセスを理論的に正しく扱うことが可能なモデルを構築した。モデルを構築するにあたって以下の仮定を行った。

- はじき出し損傷過程において自己格子間原子 (SIA) と空孔のみが同数生成される。
- SIA と空孔のみが材料中を拡散する。
- SIA と空孔は対消滅 (再結合) する。
- 転位ループ (SIA 集合体) は円盤状として扱う。

- ・ ボイド（空孔集合体）は球状として扱う。
- ・ 点欠陥の消滅サイト（シンク）は転位線とし、SIAが優勢的に吸収される転位バイアスの効果を導入する。
- ・ 転位ループについてもSIAを優勢的に吸収するバイアス効果を導入する。

以上の仮定のもと、点欠陥（格子間原子および空孔）の集合化や消滅、熱的解離を表現する反応速度式をサイズ500までの集合体は個別に立てた。それ以上のサイズに関しては数密度およびサイズの平均値を扱って、成長・収縮を追った。それぞれの式をギヤ法<sup>4)</sup>により数値積分し、欠陥濃度の経時変化を解いた。今回の評価では、材料はフェライト鋼に限定した。

### 3.2 欠陥濃度の時間変化

図2に計算によって得た各欠陥濃度の経時変化を示す。損傷速度は $1 \times 10^{-8}$  dpa/sであり、照射温度は573 Kの条件である。照射初期（ $\sim 10^{-5}$  s）において点欠陥濃度は上昇する。その後、転位バイアスによる効果によって空孔よりもSIAが優勢的に転位線や欠陥集合体に吸収され、濃度は一定になる（ $10^5$  s $\sim 10^1$  s）。空孔濃度がある程度増加すると空孔集合体を形成し、成長するが、空孔とSIAの再結合・消滅も同時に生じるため、SIA濃度は減少し（ $10^1$  s $\sim 10^7$  s）、その後、定常に達する（ $10^7$  s $\sim$ ）。このようなプロセスを経て、照射後期には空孔濃度が高く、ボイドが生じやすい条件となっていることがわかる。図3には照射温度を変化させた時の単欠陥濃度の経時変化を示す。損傷速度は $1 \times 10^{-8}$  dpa/sであり、照射温度は473 K, 573 K, 673 Kの条件を選んだ。dpaという指標により整理しても、温度によって欠陥濃度は異なることが確認できた。空孔については、照射後期において温度が低いほど濃度が高くなっている。欠陥拡散のフラックスは拡散係数Dと欠陥濃度Cの積DCである。拡散係数と温度には(1)式の関係がある。

$$D \propto \exp\left(-\frac{E_m}{kT}\right) \quad \dots(1)$$

ここで、 $E_m$ は欠陥の移動エネルギー、 $k$ はボルツマン定数、 $T$ は温度である。低温であれば拡散係数Dは低下し、欠陥が動きにくくなるが、シンク源への欠陥流入フラックスは温度によらず等しいため、欠陥濃度Cが上昇したと考えられる。SIAについては、対消滅を生じる前では（ $\sim 10^9$  s）、空孔と同様に、温度が低いほど濃度が高いが、空孔濃度も高いことにより対消滅反応を長時間生

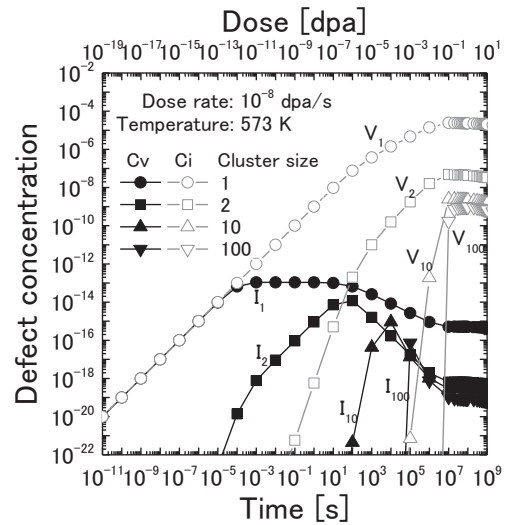


図2 欠陥濃度の時間変化

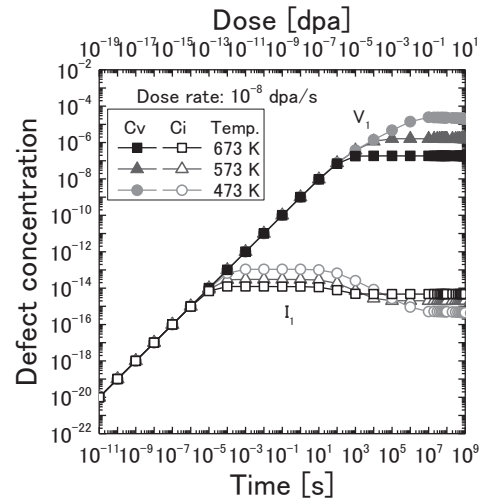


図3 単欠陥の時間変化の温度依存性

じるため、定常に達する頃には関係が逆転して温度が低いほど濃度が低くなっていると考えられる。

### 3.3 空孔過飽和度による整理

以上のことから、欠陥移動のフラックスが照射損傷挙動を明らかにする鍵になっているようである。そこで、空孔の流入フラックスとSIAの流入フラックスの差を規格化して表した空孔過飽和度 $S_V$ を以下のように定義する。

$$S_V = \frac{D_V C_V - D_I C_I}{D_V C_V^{eq}} \quad \dots(2)$$

ここで、Dは拡散係数、Cは欠陥濃度であり、添字Vは空孔、Iは格子間原子を表している。また、 $C_V^{eq}$ は熱平衡空孔濃度であり、照射されていない材料（ $C_V = C_V^{eq}$ ,  $C_I \cong 0$ ）では $S_V = 1$ となるように規格化した。 $S_V$ が正

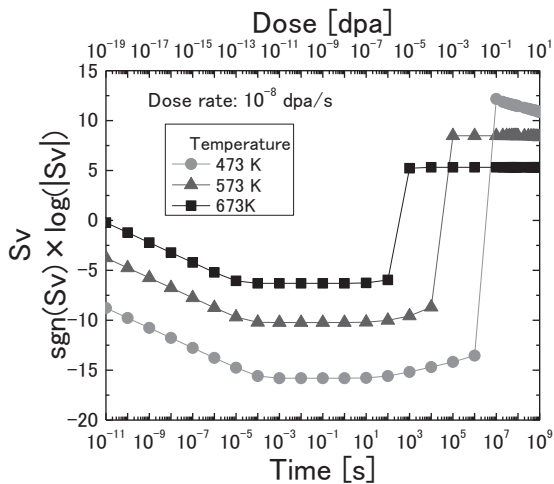


図4 空孔過飽和度の時間変化

であれば材料中の任意の点に対して、SIA よりも空孔のほうが流入しやすい状態でありボイドが成長しやすくなっていることを示す。

図4に空孔過飽和度  $S_v$  の時間変化を示す。照射の初期段階では空孔過飽和度は負であり、転位ループが形成しやすい状態となっている。空孔濃度が十分に高くなってくると、空孔過飽和度は正に転じて、ボイドが形成・成長しやすい状態に移行する。温度依存性については、低温ほど空孔過飽和度が正に転じる時間が遅延し、大きさは増大する傾向がある。これは、低温ほど欠陥が動きにくいいため、空孔過飽和な状態になるには長時間必要であるという時効の効果によるものと考えられる。図5には1dpaにおける空孔過飽和度の温度、損傷速度依存性を示す。低温では欠陥が動きにくいいため空孔過飽和度は負であり、ある温度以上で正に転じ、温度上昇とともに空孔過飽和度は減少する。損傷速度の増加に対しては、時効の効果により正に転ずる温度が高温側にシフトする。図6には、573Kおよび673Kにおける空孔過飽和度の損傷速度依存性について示す。照射量は1dpaである。損傷速度の増加に従って、空孔過飽和度も増加していることから、同じ温度でも損傷速度が高いほうがボイドを形成しやすく、成長速度は早くなると考えられる。

空孔過飽和度  $S_v$  は欠陥流入フラックスのみに着目した指標であるが、集合体のサイズによって変化する熱的安定性は考慮されていない。よって、集合体からの欠陥流出フラックスを同時に評価する必要がある。ここでは、核生成の臨界核サイズによって熱的安定性を評価する。サイズ  $n$  のボイドの成長速度は以下の式により定義した。

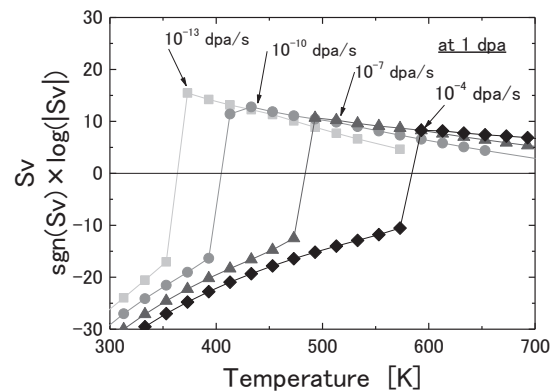


図5 1dpaにおける空孔過飽和度の温度、損傷速度依存性

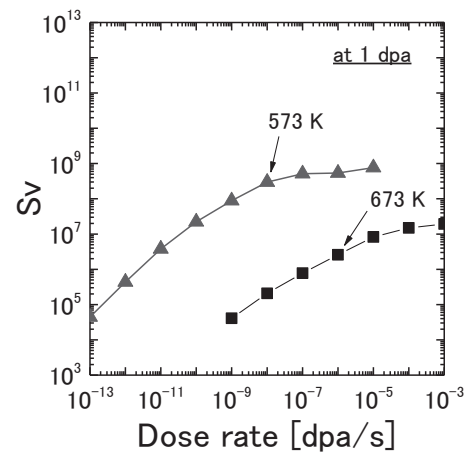


図6 1dpaにおける空孔過飽和度の損傷速度依存性

$$\frac{dn}{dt} = J_v^{\text{IN}} - J_l^{\text{IN}} + J_v^{\text{OUT}} - J_l^{\text{OUT}} \quad \dots(3)$$

ここで、 $J_v^{\text{IN}}$ は空孔流入フラックス、 $J_l^{\text{IN}}$ はSIA流入フラックス、 $J_v^{\text{OUT}}$ は空孔流出フラックス、 $J_l^{\text{OUT}}$ はSIA流出フラックスである。なお、ここでは $J_l^{\text{OUT}}$ はゼロを仮定した。したがって、成長速度が正の値を示すとき、ボイドは成長することを意味する。成長速度がゼロとなるサイズを臨界核サイズとして算出した。

図7に損傷速度、照射温度と臨界核サイズの関係を示す。照射量は1dpaである。温度上昇に対して臨界核サイズも上昇していることから、熱的不安定性(エントロピーを反映して、高温ほど不安定性は大になる)を表現できている。損傷速度依存性については、損傷速度が高いほど臨界核サイズの立ち上がりが高温側にシフトする。これは、損傷速度が高いほど、空孔過飽和度が高く、高温で発生する熱的不安定性を若干抑え込むことができているからである。ただし、いくら損傷速度を大きくして

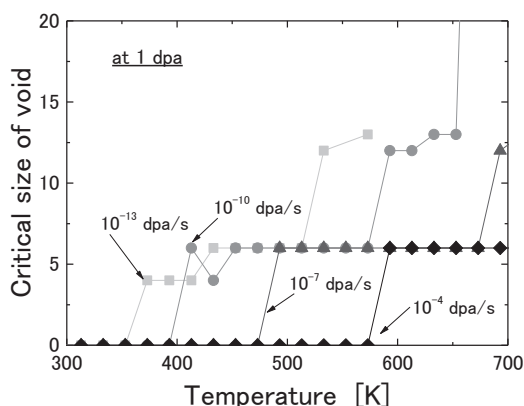


図7 1dpaにおけるボイドの臨界核サイズ

も、高温すぎると、熱的不安定性の方が勝ってしまうので、臨界サイズは増大する（つまり、ボイドは核生成しにくくなる）。

### 3.4 ボイド直径と数密度及びスエリング

図8にボイド数密度の損傷速度と温度依存性について示す。ボイド数密度は温度に対してピークを持つことがわかる。これは、低温では欠陥の動きが遅いことから、十分にボイドが生成・成長していないため、数密度は低下したと考えられる。高温ではボイドの熱的安定性が不安定となって、臨界サイズが増加する。

図9にボイド直径の損傷速度と温度依存性について示す。温度増加に対してボイド直径は大きくなり、損傷速度の増加とともにその立ち上がりは高温側にシフトする。

図8に示すボイドの数密度及び図9に示すボイド直径の結果から、高温ではサイズの大きなボイドが点々と存在している状態であり、低温ではサイズの小さいボイドが数多く分布している。この傾向は実験でも得られており<sup>5)</sup>、本モデルにおいても定性的に表現できた。

スエリングは照射による体積増加量と照射前の体積の比である。本モデルでは、はじき出しによって生じた空隙格子点の数がスエリングに寄与したとして、以下の式で算出した。

$$\text{Swelling} = \sum iC_V \quad \dots(4)$$

図10は1dpaにおける照射温度とスエリングの関係を示す。損傷速度は  $10^{-13}$  dpa/s,  $10^{-10}$  dpa/s,  $10^{-7}$  dpa/s および  $10^{-4}$  dpa/s である。スエリングは温度に対してピークを持ち、損傷速度が増加するにつれてピークは高温側にシフトする。温度によるスエリングピークが見られた原因と

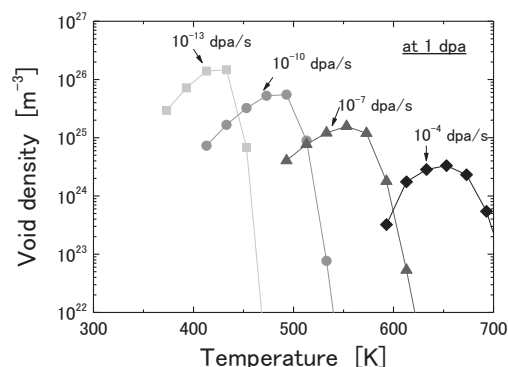


図8 1dpaにおけるボイド数密度の温度、損傷速度依存性

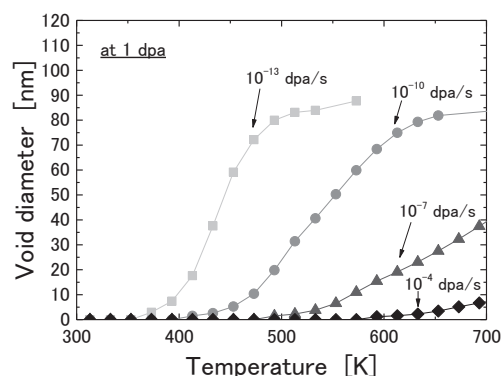


図9 1dpaにおけるボイド直径の温度、損傷速度依存性

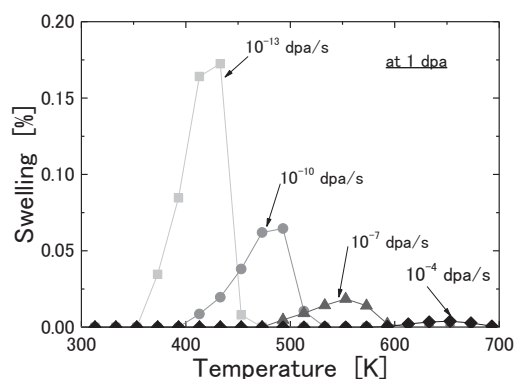


図10 1dpaにおけるスエリング量の温度、損傷速度依存性

しては、図7からわかるように高温では臨界サイズが大きく熱的解離が生じやすいためであり、低温では空隙が動きにくいためと考えられる。ピークシフトについては損傷速度を変化させると、ボイドを生成・成長させようとする方向にはたらくマトリクス中の点欠陥濃度と、ボイドを分解させようとする熱的安定性のバランスがくずれるためと考えられる。

## 4. おわりに

加速照射場や同一原子炉の炉心部と外壁部などの照射場によって異なる照射劣化挙動を理解し、必要とする照射条件での材料挙動を正しく予測するため、もしくは、照射場の違いが炉設計・保全に必要な材料照射データの曖昧さにどの程度影響するかを明らかにするために、はじき出し過程と欠陥集合体形成過程の2つについて照射場の依存性を評価した。欠陥集合体形成過程の評価には反応速度論に基づき、分子動力学法による結合エネルギーの計算結果を取り入れて、より照射欠陥集合体形成メカニズムを詳細に含んだモデルを構築した。それにより、以下の知見を得た。

- 照射場によって中性子束、損傷速度 (dpa/s) は桁違いである。ただし、核分裂炉の炉心付近に限定すると、今回調べた照射施設の範囲では、中性子束と損傷速度に良い線形性が見られる。
- ボイドの核生成・成長は空孔の流入フラックスと SIA の流入フラックスの差である空孔過飽和度と熱的安定性の両方に依存する。
- 空孔と自己格子間原子 SIA の材料内の易動度に起因して、照射の初期に SIA 優勢で進行した材料マイクロ組織発達も、照射後期になると空孔優勢で進行するようになる。その結果として、ボイドのような空孔型欠陥集合体が形成される。
- 前項の材料マイクロ組織発達に起因して、空孔過飽和度は、照射初期にマイナス、後期にプラスに転じるようになる。1dpa という損傷量に対して空孔過飽和度の温度依存性については、低温ほど正に転じる時間が遅延し、大きさは増大する傾向がある。損傷速度依存性は、損傷速度の増加にしたがい空孔過飽和度も増加する。
- 臨界核サイズは温度とともに増加する。損傷速度依存性については、損傷速度が高いほど臨界核サイズの立ち上がりが高温側にシフトする。臨界核サイズは、空孔過飽和度とボイドの熱的不安定性のバランスによって決まる。
- 同一の損傷量において、スエリングは温度に対してピークを持ち、損傷速度が増加するにつれてピークは高温側にシフトすることがわかる。

以上の知見より、照射劣化の照射場依存性を考慮した、設計・保全として以下のことが提案できる。

- 材料照射劣化データを加速照射試験によって取得するとき、照射温度を実際よりも高めにする必要がある。これは、加速試験によって加速される現象ははじき出し過程（生成欠陥量の増大）のみであり、温度を上昇させることで拡散過程（熱活性化過程）も同時に促進する必要があるためである。
- 同一原子炉でも、炉心部と外壁部などといった照射位置の違いにより温度および損傷速度が変化するため、欠陥集合体形成過程も異なり、スエリング量などの材料劣化量も異なる。ニューシアでのトラブル事例にもあるとおり、照射される場所（例えば、炉心部からその周辺にまで）によってスエリング量が異なり、保全の際、その不均一性が次のトラブルを引き起こすこともあるので、そうした効果を考えることも、保全の高度化には重要である。

## 参考文献

- [1] 原子力安全推進協会, 原子力施設情報公開ライブラリニューシア (NUCIA), <http://www.nucia.jp/>
- [2] L.R.Greenwood and R.K.Smith, Report No.ANL/FPP/TM-197, Argonne National Lab., USA (1985)
- [3] K. Morishita, R. Sugano, B.D. Wirth, "MD and KMC modeling of the growth and shrinkage mechanisms of helium-vacancy clusters in Fe", Journal of Nuclear Materials, 323 (2-3), (2003), pp. 243-250.
- [4] S. D. Cohen and A. C. Hindmarsh, "CVODE, A Stiff/Nonstiff ODE Solver in C," Computers in Physics, 10 (2), (1996), pp. 138-143.
- [5] Jia, X., Dai, Y., "Microstructure of the F82H martensitic steel irradiated in STIP-II up to 20 dpa", Journal of Nuclear Materials, 356 (1-3), (2006), pp. 105-111.