1. 照射損傷過程の材料モデリング

関村 直人¹, 森下 和功¹, 蔵元 英一², 曾根田 直樹³, 沖田 泰良⁴, 平谷 正人⁴

(東京大学大学院工学系研究科,¹京都大学エネルギー理工学研究所,

²九州大学応用力学研究所,³電力中央研究所,⁴ローレンスリバモア国立研究所)

Theory and Modeling of Radiation Damage Processes in Materials

SEKIMURA Naoto, MORISHITA Kazunori¹, KURAMOTO Eiichi²,

SONEDA Naoki³, OKITA Taira⁴ and HIRATANI Masato⁴

Graduate School of Engineering, University of Tokyo, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8656, Japan

¹*Institute of Advanced Energy, Kyoto University, Uji, Kyoto 611-0011, Japan*

²*Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University, Kasuga, Fukuoka 816-8580, Japan*

³*Central Research Institute of Electric Power Industry, Komae, Tokyo 201-8511, Japan*

⁴*Lawrence Livermore National Laboratory, Livermore, CA 94551, USA*

(Received 28 January 2004)

Present knowledge is reviewed of radiation damage processes in materials. These processes cover various time - and length-scales, from ballistic binary collision process to collective atomic motion in the thermal spike stage, followed by the thermally activated processes involved in defect aggregation. It is emphasized that greater researches are required to understand these processes and their interplay in the multiscale modeling approach, before a prediction of a given material's response to fusion irradiation conditions is possible. In addition, a predictive capability is also needed to develop new, advanced materials.

Keywords:

radiation damage, multiscale modeling, computer simulation

1. はじめに

未来の基盤エネルギー源として期待される核融合炉の実現の成否は、材料の技術開発研究に依るところが大きい[1]. つまり、核融合炉がエネルギー源として成立するためには、厳しい供用環境に耐え、要求される機能を十分に維持し続ける材料を開発する必要がある。近年、核融合炉材料となり得る候補材を試作し、照射試験により機能・特性変化を評価し、その結果を次の候補材試作に役立てる、という循環型の方法論を用いた材料開発研究が精力的に行われ、成果を挙げている。本講座では、それとは異なる核融合炉材料研究のアプローチの一端を3ヶ月連載で紹介する。

原子力材料の使用条件が他の工業材料ときわだって異なる点は、放射線の下で使われるということである[2]. 特に、核融合炉の場合、重水素と三重水素の核融合反応を考えると、その環境は14 MeVの中性子エネルギーで特徴付けられる。このエネルギーは通常の化学反応で関与するエネルギーの一千万倍に相当するが、この中性子が材料中に入射することにより、材料中では種々の特有な現象がひきおこされる。その結果として起こる材料物性や材料特性の劣化が懸念されている。

核融合炉を含む原子力施設に要求される項目として一番に挙げられるのが「絶対的安全性」およびそれに基づく「信頼性」である。施設の安全性は、構造物の健全性確保および構造材料の機能維持に強く関わっている。材料学の観点から構造材料の機能維持に必要な技術開発項目を挙げると、おおまかに、(1)材料機能の現状評価技術、(2)材料の修復技術、(3)材料挙動予測技術の3つである。(1)の「現状評価技術」とは、照射環境下における材料の機能評価を精確に行うことであり、現在稼働中の原子炉(軽水炉)で言えば、監視試験に相当する。監視試験とは、軽水炉の心臓部とも言える圧力容器を構成する材料(原子炉圧力容器鋼)の構造材料としての機能を、シャルピー衝撃試験(破壊靱性試験)によって評価するための方法である。ただし、圧力容器鋼そのものと監視試験片とでは、それらがおかれている環境(中性子による粒子負荷や応力負荷など)が異なるという問題もあり、近年では、従来の監視試験に加えて、圧力容器そのものを直接評価する試みもある。この場合、圧力容器自体に破壊試験を行うわけにはいかないため、超音波診断や材料の電磁気的な性質を用いた欠陥探傷など、さまざまな非破壊評価技術が検討されている[3]。(2)の「修復技術」に関しては、原子炉配管破損部の補修溶接や材料

author's e-mail: sekimura@q.t.u-tokyo.ac.jp, morishita@iae.kyoto-u.ac.jp, kuramoto@riam.kyushu-u.ac.jp, soneda@criepi.denken.or.jp, okita1@lnl.gov, hiratani1@lnl.gov

の焼きなましによる機能回復などの技術が挙げられる。(3)の挙動予測技術は本講座の中心課題であり、放射線照射下における材料の物性変化や機能変化などを、ミクロ構造変化等に基づいて予測する技術である。検査によって取得された材料の現状評価をもとに次の検査まで機能が維持できるかどうか判断したり、新たな材料を開発するための指針を与えたりすることが役目となる。後述するように、この技術は照射環境下の材料中で起こる物理現象の機構論的説明が前提となるため、残されている課題も多く、技術確立に向けた精力的な研究が急務である。

2. 照射損傷過程

2.1 照射による材料劣化

結晶性固体物質では、原子が空間的な周期性をもって3次的に配列している。材料のもつ性質は、その材料を構成する元素の種類や組み合わせなどの他、原子配列(材料のミクロ構造)やその不完全性にも強く依存する。その依存性は、注目する材料の性質に依る。一般的に、原子配列に強く依存する性質を「構造敏感な性質」とよぶが、その代表的なものとして、材料の力学特性が挙げられる。材料への放射線照射効果の中でもっとも代表的なものは、このような材料物性を決定づける元素の種類(組成)や原子配列(構造)を変化させる効果である。前者は、放射線の入射により材料を構成する元素の種類そのものが変化(核変換)し、組成変化や不純物形成を通じて、特性が変化することである。また後者は、材料中の原子配列もしくはその不完全性が変化し(ミクロ構造変化)、構造敏感な性質が変化することである。どのような照射効果がどの程度現れ、どの程度材料特性を変化させるかは、材料を構成する元素の種類や放射線の種類、入射粒子のエネルギー、入射粒子フラックス、照射温度、照射時間など多くのパラメータに依存する。ここで注意しておきたいことは、照射効果は照射時間の関数であるという点である。つまり、照射効果として現れるミクロ組成変化やミクロ構造変化は照射時間に依存し、したがって、照射による材料特性変化も照射時間の関数となる。材料特性が時々刻々と変化しつつ、さらに照射を受けることになるため、基本的に照射効果は照射履歴に強く依存することになる。

2.2 はじき出し損傷過程

高速中性子や重イオンなどの放射線の照射下にある結晶性固体物質では、高い運動エネルギーをもった放射線が結晶構成原子と衝突する場合がある。もしこの衝突によって十分なエネルギーが結晶構成原子に与えられるならば、原子は正規の格子位置から格子間にはじき出され、あとに原子空孔が残る。これが照射損傷のもっとも単純な描像である。この考え方によると、照射を行うことにより、格子間原子および原子空孔の対(これをフレンケル対とよぶ)が形成されることになる。このとき、入射粒子と直接衝突した結晶構成原子を一次はじき出し原子(PKA: Primary Knock-on Atom)とよび、その運動エネルギーをPKAエネルギーという。結晶構成原子が格子位置からはじき出されるかどうかは、PKAエネルギーがある値より大きいかと

Fig. 1 Schematic representation of a displacement cascade in materials.

うかに依存する。そのしきいエネルギー(はじき出しエネルギーとよぶ)は、だいたい25 eV程度であるが、材料に依存し、また、同じ材料でも結晶方位に対するはじき出しの方向にも依存する。PKAエネルギー E_p が十分に大きい場合(すなわち、 $E_p \gg 25$ eV)、はじき出された結晶構成原子は、さらに別の結晶構成原子と衝突し、新たなはじき出し原子を形成する。このように結晶構成原子が連鎖的に衝突反応を繰り返し、次々にはじき出し原子を形成するプロセスを変位カスケード損傷とよぶ。Fig. 1に変位カスケード損傷を模式的に表す。重水素(D)と三重水素(T)による核融合反応を考えた場合、14 MeV中性子の入射によって形成されるPKAのエネルギーは、最大で数100 keV以上にも及ぶ。すなわち、核融合炉材料中の照射効果は、高エネルギー一次はじき出し原子から始まる変位カスケード損傷によって特徴付けられる。そして、この照射損傷過程は、関与する物理現象、もしくはその時定数によって、衝突過程、冷却過程、熱的過程、拡散過程の4つのプロセスに分類することができる。照射損傷過程の時間発展をFig. 2に示す[4 6]。Fig. 2に示すように、この各々の過程が、大きさ(エネルギー)のみではなく、時間にも依存するのは、これらの過程が、非定常な過渡的現象であることに起因する。

2.3 衝突過程

衝突過程は、入射粒子(放射線)と標的原子の、もしくは、標的原子どうしの衝突反応によって、材料中にはじき出し原子が局所的かつ高密度に形成されるプロセスである。だいたい 10^{-13} 秒程度の時定数で、ナノメートル程度の範囲で起こる。PKAエネルギーが大きくなれば影響を受ける領域は大きくなるが、PKAエネルギーがだいたい30 keV程度以上になると、そのような領域の大きさはおよそ10 nm程度で飽和し、代わりにその領域が複数形成するようになる。これを変位カスケード構造がサブカスケードに分岐したという。標的原子が受け取ったエネルギーのうち、正味のはじき出しに使われるエネルギー、すなわちPKAエネルギーから電子励起など非弾性衝突に使われるエネルギーを差し引いたエネルギーを損傷エネルギーとよぶ。(PKAエネルギーを E_p 、非弾性エネルギーを Q とすると、損傷エネルギーは $E_D = E_p - Q$ と書ける。)PKAエネルギーが大きくなるにつれて、損傷エネルギーの占める割

Fig. 2 Schematic representation of time evolution of radiation effects on materials behavior in fusion reactors.

合は小さくなり、逆に非弾性衝突に使われるエネルギーの割合が増大していく。ひとつの PKA から形成されるサブカスケードの数は、ほぼ損傷エネルギーに比例すると考えられている。

高いエネルギーを付与された原子は、格子位置から押し出され、その結果、規則的に配列していた原子が不規則になる。衝突過程における特徴的なはじき出しの現象として、受け渡された運動エネルギーが軽元素で 1~10 eV、重元素で $10^2 \sim 10^3$ eV 程度の範囲にあると、集束置換衝突連鎖(RCS: Replacement Collision Sequence)が起こることがある。これは、低指数の結晶方位(基本的には結晶の最密方向)に衝突と置換が一次元方向に起こる連鎖反応のことである。すなわち、原子が元の格子位置を離れ、その方向にある隣の格子位置を占めるようになり、元々その格子位置にあった原子はさらに隣の格子位置を占めるようになる。その結果、集束置換衝突連鎖の最初の格子位置には原子空孔が、最後の位置には格子間原子が、RCS の起こった長さだけ離れて形成される。これは、照射下の結晶性材料中で形成される原子空孔と格子間原子の間の距離をより効率的に引き離し、変位カスケード損傷が起こる前の結晶構造に戻りにくい構造欠陥を形成する。金属材料中、数 10 keV 程度以上の PKA によって形成された変位カスケード損傷周辺部においては、この RCS メカニズムが起こるのに適した範囲になっている。

Fig. 3 は、分子動力学法という数値解析手法を用いて行った、金属バナジウム中に形成した 10 keV の PKA による変位カスケード損傷の時間変化を表している。図ではポテンシャルエネルギーの高い原子を示している。PKA 形成後、わずか 0.2 ps 程度の間に、多くの原子間衝突が起こり、多くのはじき出し原子が形成される様子がわかる。これが衝突過程である。ひとつの粒子がもつ大きな運動エネルギーが、衝突によって多くの粒子に分配される過程であると考えることができる。

2.4 冷却過程

衝突過程によってはじき出し原子が高密度に形成された領域においては、格子系のもつ運動エネルギーは非常に高く、温度に換算すると数万度以上になる。この領域は、次の 10 ps 秒程度の間に熱伝導によって冷えていくが、このプロセスを冷却過程とよぶ。電子-格子相互作用が比較的

Fig. 3 Time development of a displacement cascade in vanadium initiated by 10 keV PKA.

弱い銅などの場合、時定数 10 ps 程度の電子-格子相互作用と、時定数 0.1 ps 程度の電子伝導により、エネルギーが散逸していく。冷却過程において影響を受ける領域の大きさは、格子系においては変位カスケード損傷の大きさと同じ 1 nm ~ 10 nm 程度となるが、電子系まで含めると、その 10 倍程度の大きさになる。さらに、冷却過程は数万度の温度が雰囲気温度まで下がっていくプロセスであり、このプロセスで対象となるエネルギーの幅は非常に広く、数 10 keV ~ 0.01 eV になる。

Fig. 4 は、変位カスケード損傷中心付近の原子配置の二体分布関数である。冷却過程の間、原子の配列は液体と同じ構造をもっている。この擬液体構造は時間とともに消滅し、数 10 ps 後には固体結晶構造を示すようになる。擬液体構造を形成している間、はじき出された原子の移動度はとても大きく、原子 1 個あたりの平均の移動距離は衝突過程の間のそれよりも大きい。変位カスケード損傷領域の温度が次第に下がっていくにしたがい、この領域内の原子は格子位置におさまっていく。分子動力学法によって求められた Fig. 3 において、0.2 ps 以降の様子が冷却過程を表している。PKA 生成後およそ 0.2 ps 程度経過した際最大に達したはじき出し原子数は、その後、徐々に減少していく。この場合、はじき出された原子がもとの格子位置に戻って消滅するということは期待できず、ほとんどがもとの格子位置ではない空の格子点と消滅反応している。それでもなお、高々 10 ps の間にはじき出し原子が格子位置を見つけ再結合していくことは驚くべきことである。これは、冷却過程

Fig. 4 Time development of radial pair distribution functions for a 10 keV cascade in Nb.

の間のはじき出し原子の移動度がとても高いこと、中心部が高く周辺部が低いという特徴的な温度勾配を有していること、および、周辺部の格子の影響、などの効果がはたらくためと考えられている。衝突過程で生じたはじき出し原子のおよそ8割が、この冷却過程で再結合・消滅する。一方、衝突過程において集束置換衝突を起こし、変位カスケード損傷中心部から効率よく遠くに離れたはじき出し原子については、この数10 psの間に変位カスケード損傷中心部に戻って空の格子位置と消滅反応することができないため、周辺部に格子間原子として残る。はじき出し原子数と空の格子数は必ず同数なので、周辺部において形成された格子間原子の数だけ、中心部に原子空孔が形成される。その結果、中心部は原子空孔の数密度が高く、周辺部は格子間原子の数密度が高い、という特徴的な欠陥分布が形成されることになる。

原子空孔や格子間原子は、それぞれ単独で存在する場合のほか、同種の欠陥どうしが集合したもの（クラスター）として形成される場合がある。それぞれ原子空孔集合体、格子間原子集合体とよばれる。この場合、単独であるか、集合体であるか、あるいは、集合体ならばどれくらいのサイズがどれくらいの割合で形成されたか、どのような形状を持っているのか、といった評価は重要である。なぜなら、欠陥（または欠陥集合体）の移動度や欠陥の反応度は、それらのサイズや形状に強く依存するため、これらの分布の相違によって、欠陥の成長過程、そして、材料物性変化・材料挙動が、大きく異なるからである。原子空孔型にしる格子間原子型にしる、これらの集合体の形成については、以下の熱的・拡散過程の間に、単独の点欠陥がひとつずつ時間をかけて集まる場合と、上述した変位カスケード損傷から短時間の間に直接形成される場合がある。後者の場合は、原子空孔型なら変位カスケード損傷中心部でのエネルギー密度が、格子間原子型なら変位カスケード損傷の溶融

領域と固体領域の界面におけるひずみや集団的なRCS発生などが重要になる。

2.5 熱的過程

通常の金属材料は、非照射材であっても完全結晶から構成されていることはない。絶対零度以外ならば、必ず原子空孔が含まれる（これを熱平衡空孔とよぶ）。原子空孔が存在すると、空孔形成エネルギーの分だけ系の内部エネルギーが上昇するが、原子配置のエントロピーも増大するので、全体として系の自由エネルギーが下がることもある。すなわち、ある程度の原子空孔が存在した方が系の自由エネルギーは最小になる。一方、格子間原子の形成エネルギーは非常に高い（例えば鉄の場合、空孔形成エネルギーが1.7 eV程度であるのに対し、格子間原子形成エネルギーは5 eV程度である）、エントロピーの増大分を考慮しても、格子間原子が導入されると系の自由エネルギーが増大する。したがって、熱平衡状態にある金属中において格子間原子は無視できる。

さて、話を照射損傷に戻すと、照射によって金属内部には、極端に高濃度の原子空孔と格子間原子が導入され、熱的に非平衡な状態になる。照射条件（入射する放射線の種類、入射粒子フラックス、照射温度、照射時間など）にもよるが、照射によって金属材料内部に形成される原子空孔の数は、熱平衡空孔数の数桁も多いことがある。熱平衡状態では存在しない格子間原子にいたっては、基本的に照射の手段でしか金属内部に形成されない。これら熱力学的に非平衡な欠陥は、不安定であるがゆえに形成された場所に留まっていることができず、より安定な場所を求めて移動する。移動は熱活性化過程であるので、どの程度移動するかは時間と温度の関数になる。欠陥移動の際、格子間原子と原子空孔のような異種の点欠陥どうしが出会えば、それらは再結合し、対消滅する。一方、格子間原子どうしあるいは原子空孔どうしのように、同種の点欠陥が出会えば、それぞれ、格子間原子集合体や原子空孔集合体のように、より大きなサイズの欠陥に成長する。さらに、格子間原子集合体に原子空孔が出会ったり、原子空孔集合体に格子間原子が出会ったりすると、それぞれの集合体のサイズは1だけ小さくなる。このような点欠陥や欠陥集合体どうしの結合・消滅反応などが、変位カスケード損傷の熱的過程や拡散過程で起こっており、この結果、より複雑な欠陥が形成されていく[7]。なお、同一の変位カスケード損傷で生成した欠陥どうしの反応は、もともと空間的に近い位置に生成した欠陥どうしの反応であるため、反応が起こるのに必要な欠陥の移動距離は短く、つまり、より短い時定数で起こる反応である。一方、異なる変位カスケード損傷で生成した欠陥どうしの反応は、互いに十分に離れた位置で生成した欠陥が関与する現象であり、反応するまでの欠陥の移動距離は長く、したがって、より長い時定数の反応となる。便宜上、同一の変位カスケード損傷内での欠陥反応プロセスを熱的過程とよび、異なる変位カスケード損傷で生じた欠陥どうしの反応プロセスを拡散過程とよぶ。両者は反応の時定数が異なるだけで、実際に起こっている物理現象（欠陥の移動・結合反応・消滅反応など）における相異はな

い．熱的過程において再結合反応を逃れた欠陥のみが，次の拡散過程の反応に寄与することになる．熱的過程は，時間的には10 ps～1 ns程度，大きさ的には1 nm～10 nm程度の範囲で起こる．一方，拡散過程の方は，時間的には1 μ s～1 ms程度，大きさ的には μ m～mm程度の範囲の現象である．また，どちらの過程とも通常の熱活性化過程であるので，関連する現象に参与するエネルギーは kT 程度（ここで， k はボルツマン定数， T は雰囲気温度）である．

2.6 拡散過程

拡散過程の定義はすでに述べた．すなわち，この過程では，はじき出し損傷によって形成された欠陥の移動と欠陥どうしの反応（集合化，解離，消滅，など）が起こっている．それぞれの欠陥濃度は，照射開始直後は過渡的に大きく変化するが，次第に定常に達していく．定常に達するまでの時定数は，反応の種類，境界条件，照射条件などに依存する．原子のはじき出し損傷においては，生成する原子空孔の数と格子間原子の数は全く同じである．したがって，生成した原子空孔と格子間原子がすべて再結合・消滅反応を行えば，最終的に照射によるはじき出し損傷の痕跡は残らない．しかしながら実際は，照射効果が材料中に残存し，その結果，照射脆化などの材料機能損失がもたらされる．これは第1に，原子空孔と格子間原子の挙動の違いによる．一般的に金属中においては，原子空孔より格子間原子の方が移動しやすく，また，それぞれの集合体については，原子空孔集合体より格子間原子集合体の方が安定である．第2に，同じ数だけ生成した原子空孔と格子間原子の数が，欠陥反応の諸過程を経る中で異なってくるということが挙げられる．これは，2つのバイアス効果[8] - 転位バイアス効果と生成バイアス効果 - と言われるもので，ポイド（空洞）と呼ばれる原子空孔集合体の形成に強く関与する効果として知られている．2つのバイアス効果については，第3章（Vol.80 No.5）で詳しく解説する．

2.7 特性変化

これまで述べてきたようなさまざまな過程を経ることによって，次第に，照射を受けた材料のミクロ構造やミクロ組成が変化していく．その結果，寸法や強度など，材料のマクロ特性も変化する．例えば，照射によって形成した格子間原子が，転位に吸収されることで格子点の数を増加させ，その結果，材料の体積を増大させる（体積膨張，スエリング）．また，物体の変形は転位の移動にともなう起こるため，転位の移動のしやすさが材料の変形しやすさ（硬さ）を決定することになるが，照射材では，転位の移動を照射欠陥が阻害するため照射硬化が起こる．Fig. 5は，照射欠陥（ここでは，積層欠陥四面体）と転位の相互作用を分子動力学法により評価したものであるが，積層欠陥四面体によって転位の移動が阻害されている様子がわかる[9]．高々数 nm 程度の小さな欠陥であっても，転位の移動を支配することによって，数メートルにおよぶ構造材料のマクロな機械的特性まで変化させる，極めて興味深い現象である．照射硬化をミクロ組織と結び付けて議論する場合，これまででは，照射欠陥の数密度とサイズの平均によって評価するという極めて簡略化したモデルのみであった．しかし

Fig. 5 A molecular dynamics simulation of interaction between dislocation and stacking fault tetrahedra (SFT) in copper.

ながら，原子レベルの材料挙動が明確になったことにより，従来の簡略化したモデルがそのまま成立するのか，照射硬化に関する新しいモデルを構築する必要があるのか，についての動向を注目していく必要がある．

3. 照射損傷過程の評価

前章で示したように，照射損傷過程は，高エネルギー粒子と固体を構成する原子の衝突反応に始まり，運動エネルギーの分配，非平衡欠陥の形成，欠陥の移動（拡散），そして，再結合・集合化・解離などの欠陥反応といった，さまざまな物理素過程から構成される．そしてこれらの過程は，時間的にも，大きさ的にも，エネルギー的にも，数桁にわたる，非常にレンジの広い現象を含有している．このような現象をマルチスケールな現象という．このようなさまざまなスケールで起こる現象を単一の評価手法で評価することは非常に困難であり，そのため，それぞれのスケールごとにさまざまな評価手法を用いた研究が進められている．

Fig. 2には，それぞれのスケールの現象に対する評価手法も明記されている[1]．比較的小さな時間・大きさスケールで記述される現象に関しては，数値シミュレーションに基づく解析が行われることが多い．一方，比較的大きな時間・大きさスケールで記述される現象については，実験の評価が可能である．数値シミュレーションに基づく解析は，多くの場合，すでに明確になっている物理モデルを導入して初めて，その系統的な理解が得られるものである．物理モデルが明確になっていない場合や，未発見の物理現象が存在する場合，数値シミュレーションは正しくない解を与える．一方，実験的手法に基づく評価では，確定した物理モデルとの比較において，新たな物理現象を発見することもできる．しかしながら，実験で制御可能なパラメータ（例えば，入射粒子のエネルギーやフラックス）には基本的に実験装置の制約があり，必ずしも必要としている実験パラメータ（この場合は核融合炉供用条件）を実現することができるとは限らない．このような双方の課題を念頭におきながら，以下では照射損傷過程におけるマルチスケール現象の数値シミュレーションによるモデル化手法について，簡単に説明する．

(1) 二体衝突近似法（BCA）

改良したクーロンポテンシャル等を用いて高エネルギー粒子の衝突反応を記述することにより，照射材料中のはじ

き出し欠陥の空間分布を求める方法である。衝突過程の記述に使われる。有名なものとして、MARLOWE コード [10] などがある。

(2)分子動力学法 (MD)

近年さまざまな分野で使われている数値解析手法であり、原子間ポテンシャル関数で記述された原子間相互作用をもとに、ニュートンの運動方程式に従って、原子位置と速度の時間変化を追跡する方法である。統計力学的処理を行えば、数多くの熱力学パラメータを評価することができる。衝突過程と冷却過程の記述に使われる場合の他、熱的過程や拡散過程で起こる欠陥反応の基礎パラメータを求めることにも使用される。照射損傷の分野では数百万個以上の原子からなる大規模な系を扱うこともあるため、並列計算機を用いた解析が主流になっている。原子間ポテンシャル関数は、第一原理計算や実験データのフィッティングから求められる。有名なものとして、MOLDY [11] や MDCASK コード [12] などが挙げられる。

(3)機構論的モンテカルロ法 (KMC)

分子動力学法が体系内の原子すべての挙動 (格子振動も含む) を追跡する方法であるのに対し、欠陥のみを追跡する方法である。分子動力学法に比べ、より長時間のシミュレーションが可能である。欠陥挙動の記述に必要な活性化エネルギー等のパラメータは、分子動力学法による解析や実験から与えられることが多い。基本的に、熱的過程や拡散過程の記述に用いられる。

(4)反応速度論的手法

照射によって形成される点欠陥濃度の時間変化を数式で表し、差分法を用いて、欠陥濃度の時間発達を求める方法である。拡散過程における欠陥反応の解析に用いられ、実験データとの直接比較が容易である。濃度変化を表す式に必要な数多くのパラメータには、上述した数値解析手法より得られた結果や実験結果などが使われる。

(5)転位動力学法 (DD)

固体物質の変形は固体内の転位 (線状欠陥) の移動により決定される。転位動力学法では、各々の転位をいくつかのセグメントに分け、それぞれの動きを追跡する。その結果、外部応力に対する固体の変形挙動を評価することができる。特に、照射によって形成した欠陥と転位との相互作用に関するモデルを取り込むことにより、構造材料の健全性評価に重要な機械的特性が照射によってどのように変化するかを明らかにすることができる。

4. 核融合炉材料研究におけるマルチスケールモデリング研究

核融合炉材料開発研究におけるモデリング研究の役割をおおまかに言えば、(1)照射損傷メカニズムを明らかにすること、および、(2)照射下材料挙動予測手法の開発を通じて、新材料開発研究や炉の健全性評価の高度化に寄与すること、の2点であろう。

上記(1)のメカニズム解明に関しては、基本的に、より大きな時間・大きなスケールの現象は、より小さなスケールで起こっている現象に支配されている、という前提のもと

に行う。そこで必要なのが、マルチスケール現象を意識したモデリング研究である。Fig. 2には、あらゆるスケールの現象すべてに対して何らかの評価方法が示されている。しかしながら、それぞれのスケールの現象をそれぞれの評価手法で単に評価すればよいというだけではなく、それぞれの評価結果をどのように相補的に組み合わせるかが問題となる。例えば、分子動力学法を用いることによって、材料中の原子空孔や格子間原子などの点欠陥の位置を追跡し、移動の活性化エネルギーを求めることができる。しかしながら、主に分子動力学法の解析に伴う計算機時間の制約から、よりサイズが大きく、移動度の低い欠陥複合体の移動を追跡することは困難である。そこで、まず複合体を構成する原子の移動などに関するエネルギーを分子動力学法により評価し、その結果を入力パラメータとして機構論的モンテカルロ法の解析を行うことにより、複合体そのものの移動メカニズムを明らかにしようとする試みが行われている [13]。また、別の例を示すと、分子動力学法を用いれば、照射欠陥と転位の近接コア反応を原子レベルで記述することが可能である。しかしながら、計算可能な体系の大きさの制限から、この結果をマクロな機械的特性に直接結びつけることは困難である。そこで、分子動力学法で得られた物理モデルを転位動力学法に導入することによって、マクロな機械的特性を記述する方法論の開発が進められている [14]。このように、マルチスケールな現象の解明には、複数の評価手法を組み合わせることによって、初めて、より明確な因果関係が得られ、また、こうして得られるメカニズム解明が前提となって、初めて、(2)の予測ツールが完成するのである。

核融合炉材料開発研究における課題のひとつに、照射相関機構構築の問題がある。核分裂炉やイオン加速器などの代替照射手段を用いて得られた材料照射データから、実存しない核融合炉の照射環境下における材料挙動をいかに予測するか、という問題である。照射手段 (照射場) の違いは、PKA エネルギースペクトルの違いや損傷速度の違いをもたらす。また、これらの違いは、一般的に、異なるミクロ構造・組成変化、材料物性・挙動変化を与える。Fig. 6 は、14 MeV の中性子が銅中に作り出す PKA エネルギースペクトルを表す。参考のため、照射手段として頻繁に使用される日本原子力研究所の材料試験炉 (JMTR) やイオン加速器 (3 MeV Cu イオン照射と 14 MeV プロトン照射の場合) のエネルギースペクトルも併せて示している。照射場によって PKA エネルギースペクトルが大きく異なることがわかる。一般的に、照射損傷量の単位として dpa (displacement per atom) が広く使われているが (照射損傷量の評価については、解説記事 [15, 16] が参考になろう。)、これは、一個のはじき出し欠陥が生成するかどうかのモデルを高エネルギーまで拡張することによって得られた欠陥生成量評価モデルをもとに、それを重みとして PKA エネルギーを積分したものに相当する。PKA エネルギーが大きくなればなるほど、PKA 一個あたりが生成するはじき出し欠陥数は増大し、変位カスケード損傷から直接生成する欠陥集合体の割合も増大するが、同時に、冷却過程および熱的過程に

Fig. 6 PKA energy spectra produced in copper at several irradiation conditions.

おいて再結合・消滅する欠陥の割合も増大する。残念ながら、dpa はこれらの事情を反映したものではなく、したがって、照射場が異なると、同じ dpa であっても同じ照射効果をもたらすとは限らない。また、実際の核融合炉において数十年で達成するような dpa 量も、イオン加速器の場合ではわずか数週間で達成してしまう。このような損傷速度の違いは、系の欠陥濃度が定常に達するまでの時定数の違いをもたらす。同時に、欠陥の定常濃度にも違いをもたらす。したがって、たとえ同じ PKA エネルギー分布を持つような照射場を選んだとしても、損傷速度が異なるならば同じ照射効果をもたらすとは限らない。

現在稼働中の軽水炉の例で言えば、材料試験炉と実機の間で照射場が異なるという問題は、材料の健全性を安全側に見積もるといふ工学的取り扱いにより解決している。しかしながら、その基準を極度に安全側に設定することは、経済性の観点を軽視しているだけでなく、そこから思わぬ人為的トラブルを誘発しかねない状況になっており、そのような事態を避けるためにも、より精度の高い材料挙動予測手法が望まれる。そういう意味でも、マルチスケールモデリングアプローチによる材料挙動予測は、物理的根拠を

明確にした上で行う新しい照射材料評価手法として期待されている。

5. まとめ

放射線照射によって材料中に起こる損傷形成について、そのマルチスケール性に注目しながら解説し、それを評価するための方法論について記述した。さらに、核融合炉材料の健全性評価に関わる照射関連の問題についても触れた。マルチスケール現象である照射損傷過程のより深い理解、および、それに基づく照射相関法の構築は、ここで紹介した計算機手法やその他の手法、さらには実験手法など、複数の評価手法をいかに相補的に活用し、時間スケールや大きさスケールの壁をいかに克服するかに関わっている。前者に係するものについては第 2 章 (Vol.80 No.4) で、後者については第 3 章 (No.5) で詳細に解説する。

参考文献

- [1] 関村直人：プラズマ・核融合学会誌 74, 1245 (1998).
- [2] 石野 稔：照射損傷 (東京大学出版会, 1979).
- [3] 宮 健三, 高木敏行, 中曽根祐司 編：材料劣化の電磁解明と電磁非破壊 (日本 AEM 学会・普遍学国際研究所, 2001).
- [4] 関村直人：原子力と先端技術 [I] (日本原子力産業会議, 1994年 6 月).
- [5] S. Ishino, J. Nucl. Mater. 206, 139 (1993).
- [6] 桐谷道雄：DT 核融合中性子による照射損傷のシミュレーション研究 (文部省科研費補助金報告書, 1988).
- [7] 例えば, M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 216, 220 (1994) など.
- [8] 蔵元英一：日本物理学会誌 58, 158 (2003).
- [9] Y. Yang, H. Abe and N. Sekimura, Phys. Lett. A 315, 293 (2003); to be published in J. Nucl. Mater.
- [10] M.T. Robinson and I.M. Torrens, Phys. Rev. B9, 5008 (1974).
- [11] M.W. Finnis, Harwell Report AERE-R-13182 (1989).
- [12] T. Diaz de la Rubia and M.W. Guinan, J. Nucl. Mater. 174, 151 (1990).
- [13] K. Morishita, R. Sugano and B.D. Wirth, J. Nucl. Mater. 323, 243 (2003).
- [14] T. Diaz de la Rubia, H.M. Zbib, T.A. Khraishi, B.D. Wirth, M. Victoria and M.J. Caturla, Nature 406, 871 (2000).
- [15] 室賀健夫：プラズマ・核融合学会誌 74, 9 (1998).
- [16] 関村直人：プラズマ・核融合学会誌 76, 376 (2000).

おき た たい ら
沖 田 泰 良

米国ローレンスリバモア国立研究所所属。2002年東京大学大学院工学系研究科修了。主な研究分野は、材料照射の基礎過程を解明していくこと。学生時代には、電子顕微鏡による実験をしてきたが、現在は数値解析が中心。趣味は、旅行、映画鑑賞、自然巡り。最近、ギターも始めたが、本人以外には不快なようだ。カリフォルニア生活を楽しんでいるが、唯一の不満は日本の映画が見れないこと。現在は、「踊る大捜査線2」鑑賞のため、一時帰国を模索中。

くら もと えい いち
蔵 元 英 一

九州大学応用力学研究所教授。研究分野：結晶中の格子欠陥、特に転位、点欠陥の基礎的性質について実験、シミュレーション両面から研究を行ってきた。また、照射下における材料の特性変化を、特に核融合炉環境下を想定して研究を進めてきた。具体的には、照射欠陥の基本特性の陽電子消滅法による研究、ボイドスエリングの基礎的過程の解析などである。趣味は自然散策、昆虫、鳥、草木など何でも。最近温暖化に伴い生息している蝶、トンボなどが徐々に変化している。環境変化を足元から見ていきたい。

せき むら なお と
関 村 直 人

東京大学大学院工学系研究科システム量子工学専攻教授。1986年東京大学大学院工学系研究科修了。研究分野：複雑システムの保全学研究、マルチフィジックスシミュレーション・マルチスケールモデリングによる物質材料の照射効果研究、原子力材料、新物質・材料創成に関する実験研究。趣味は音楽鑑賞、演奏、歌を唄うこと。各種ハードウェアいじり。ボーリング。子育て。

そね だ なお き
曾 根 田 直 樹

電力中央研究所所属。経歴；1989年東京大学大学院博士課程修了工学博士，1989年～(財)電力中央研究所，2000～2002年東京大学客員助教授。主な研究分野は、原子炉压力容器鋼の中性子照射脆化メカニズムの研究、照射損傷のマルチスケール計算機シミュレーション。趣味はテニス。

ひら たに まさ と
平 谷 正 人

2000年ミシガン工科大学大学院修了(物理学専攻)Ph.D., ワシントン州立大研究員を経て、現在ローレンスリバモア国立研究所所属。専門は結晶中欠陥に関するモデリング、転位動力学など。

もり した かず のり
森 下 和 功

京都大学エネルギー理工学研究所助教授。1994年東京大学工学系研究科修了。九州大学応用力学研究所助手を経て、1999年より現職。主な研究分野は、数値解析と実験の両面から材料照射損傷機構を解明することと照射相関則を構築すること。学会誌編集委員として、これまで原稿締切を著者に厳しく求めてきたが、今回の執筆にあたり自ら締切を大幅超過。著者の苦しみを痛感した。家族は妻と息子。現在の趣味は育児で、毎晩、どんぐりコロコロを熱唱。