

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 5 年 6 月 26 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K04177

研究課題名(和文) ミクロからマクロまでを総動員して老朽化設備の破損リスクを管理する方法

研究課題名(英文) Multiscale management method to reduce the risk of age-related degradation of energy plant components

研究代表者

森下 和功 (Morishita, Kazunori)

京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授

研究者番号：80282581

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：軽水炉圧力容器は中性子照射の影響により脆化する。照射により材料内部には非平衡欠陥が生成しそれがナノレベルの欠陥クラスターを形成するが、これが照射脆化の原因となる。こうしたナノ欠陥生成を機構論に基づき予測することができれば、高経年炉圧力容器の劣化の程度予測・評価、それに基づく予防保全策の策定が可能になる。本研究では、(1)非平衡欠陥材料学に基づき非平衡欠陥生成率評価を行い、統計学的に整理すること、(2)マルチスケールモデリングにより、欠陥クラスター核生成現象を高精度に評価することに成功した。これらの知見は、近年注目されている確率論的リスク評価の枠組みで、脆化予測法を議論するのに有用である。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究により、照射下で使われる材料内の非平衡欠陥生成および集合体核生成に関するそれぞれモデルについて、定量的かつ統計学的な評価が可能になった。このような視点は、先行研究では十分に取り入れられてこなかったものであり、今後、これらの現象のモデルに取り込むことで、最終的な目標である照射脆化予測においても、確率論的もしくは統計学的に基づく評価が可能になる。こうした視点は、極値統計の議論が当然必要とされる材料脆性破壊の予測では必須であり、照射脆化予測の高度化、ひいては、軽水炉プラントの確率論的安全評価の高度化に欠かせない知見となる。

研究成果の概要(英文)：A pressurized water reactor vessel is embrittled due to neutron irradiation. Non-equilibrium defects are generated inside the material due to irradiation, and they form nano-sized defect clusters, which cause irradiation embrittlement. If such nano-defect generation can be predicted based on a mechanism, it will be possible to predict and evaluate the degree of degradation of high-aged reactor pressure vessels and establish preventive maintenance measures based on it. In this study, (1) non-equilibrium defect generation rates were evaluated based on non-equilibrium defect materials science and they were formulated based on statistics, and (2) the evaluation of defect cluster nucleation phenomena was successfully made with high precision using multi-scale modeling techniques. These findings are useful for discussing embrittlement prediction methods in the framework of probabilistic risk assessment, which has recently attracted attention.

研究分野：原子力材料

キーワード：原子力材料 分子動力学 はじき出しカスケード 統計学的評価 核生成 非平衡欠陥 中性子照射 照射脆化

1. 研究開始当初の背景

我国の社会インフラの多くは、高度経済成長期に集中的に整備され、今後急速に老朽化する。一斉に老朽化する設備の維持管理・更新を戦略的かつ効率的に行うには、保全箇所や保全方式の決定および保全優先度の判断に、リスク概念を活用する必要がある。しかしながら、特に経年劣化する構造材料の保全に関しては、関連するリスクの選定、評価、管理の方法論が明確でなく、寿命判断において極端に保守的な選択がなされる場合が多い。

商用軽水炉の压力容器を例に、その構造材料は中性子照射の影響により、体積膨張(スエリング)、硬化、脆化など、機械的特性が変化(劣化)する。そのミクロ組織を見ると、照射によって非平衡欠陥が生成し、それらの集合化、解離、消滅などの反応を経て、ポイドや転位ループ、Cu、Mn、Ni、Siなどの添加元素や不純物原子の析出物(溶質原子クラスター)等、ナノレベルの微小欠陥クラスターが形成される。それが材料の外部応力応答性を左右する転位運動の阻害要因となり、材料特性が劣化(硬化、脆化)する(図1)。

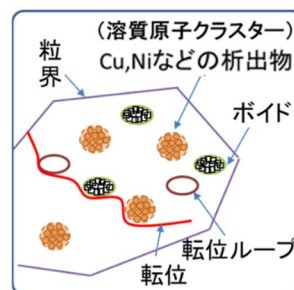


図1 照射脆化の概略図

軽水炉压力容器の健全性評価において、照射脆化の予測は重要である。しかし、それについて、先行研究はほぼ平均的な挙動しか議論されておらず、一方で材料の破壊現象そのものは、いわゆる最弱リンクモデルにおいて議論されるように、平均の議論ではないので、こうした理論構築における論理展開の齟齬を解消することが、リスク概念に基づいた構造材料保全の高度化に寄与するものと考えられる。

こうした課題を解決するには、照射材料内の諸現象(欠陥生成、析出挙動、転位との相互作用、変形挙動、脆化)のマルチスケール解析を行い、取り扱う現象の統計的性質に注目することが特に重要であると考えている。

2. 研究の目的

(1) 欠陥生成

はじき出しによる非平衡欠陥の生成について、従来の NRT-dpa モデルでは、主に PKA エネルギー依存性の、いわゆる平均的なおおよそのふるまいに関する議論が行われてきたが、生成数や空間的ゆらぎの効果についてはほぼ議論されていない。同一 PKA エネルギーであっても欠陥生成量には当然統計的ばらつきは生じ、また、生成欠陥の空間的配置にもばらつきが出る。PKA エネルギーがおよそ 10keV を超えると、空間的配置のばらつきによっては、いきなりクラスターが生成することがある(いわゆる、カスケードクラスター)。照射脆化は、材料内のミクロな構造が変化することにより起こる材料特性変化であるから、このようなカスケードクラスターの出現は、照射脆化の予測に大きく影響を与える因子となる。そのため、点欠陥やカスケードクラスターの生成率のばらつきやゆらぎによって生じる効果は、照射脆化予測を高度化する上で重要な論点である。

本研究では、衝突カスケードによる非平衡欠陥生成現象に対して、MD シミュレーションを実施し、中性子照射下における Fe 材料中の、衝突カスケードによる点欠陥生成現象に対し統計学的視点からも耐えうるモデルを構築していく。点欠陥やカスケードクラスターの生成率の分布の評価やゆらぎの評価を行う。

(2) 析出挙動

欠陥クラスターの析出について、比較的古い压力容器鋼には不純物である Cu が含まれ、Cu リッチクラスターの析出により脆化が生じることが分かっている。先行研究では、照射速度の速い場合は空孔型欠陥クラスター、照射速度の遅い場合は Cu 原子を多く含む欠陥クラスターが形成されることが明らかになっている。このことは実験でも検証されている^[1]。しかし、近年の压力容器鋼には Cu の含有量は少なくなったものの、Mn、Ni、Si などの添加物元素や不純物原子がクラスターを形成し、脆化を引き起こすことが実験的に明らかになってきている^{[2][3]}。そして、これらの元素が溶質原子クラスター析出に与える影響、ならびに、析出プロセスそのものについては詳しく分かっていない。こうした溶質原子クラスター(脆化種)の析出プロセスをモデル化し、その発生を予測することができれば、照射脆化予測の高精度化、ひいてはそれに基づく予防保全の高度化が可能になる。

本研究では一般化された溶質原子クラスターの形成エネルギーを定式化し、核生成モデルを構築する。そして、モンテカルロ法を用いて、中性子照射下における Fe 材料中の Cu、Mn、Ni、Si などの溶質原子がクラスターの形成に与える影響について調べる。

3. 研究の方法

(1) 欠陥生成

カスケード統計の計算においては、まず Mendeleev 原子間ポテンシャルを用いた分子動力学解析を行い、 α -Fe 材料中で生じるカスケード衝突をシミュレーションする。計算条件は、初期温度 0K、シミュレーションセルの境界に周期境界条件を課した。系内の原子のひとつをランダム

ムに選び、それを一次はじき出し原子 (PKA) とし、その原子に 20eV ~ 50 keV の運動エネルギー (= PKA エネルギー) をランダムの方に与え、その後の系内の全原子のふるまいを観察した。同一の PKA エネルギーに対し 1000 ケースのシミュレーションを実施した。シミュレーション結果に対して、Wigner-Seitz 法に基づき点欠陥 (フレンケル対) を同定し、PKA エネルギーの関数として欠陥生成数の統計的な分析を行った。

(2) 析出挙動

溶質原子クラスターの核生成モデルでは、その形成エネルギーが必要であるため、本研究では正則溶体近似に基づき、混合エンタルピーや界面エンタルピーなどを考慮し、一般化された溶質原子クラスターの形成エネルギーを定式化した。

図2のように Fe 中に A, B 原子が球状のクラスターを形成すると考えると、その形成エネルギーは

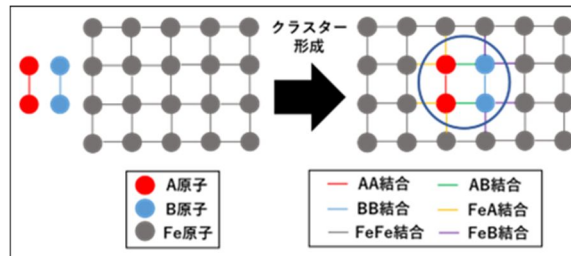


図 2 溶質原子クラスター形成に関する模式図

$$F_{AB \text{ cluster}}^{Formation} = \alpha_A F_A^F(N_{cluster}, \Omega_{FeA}) + \alpha_B F_B^F(N_{cluster}, \Omega_{FeB}) + N_{cluster} \alpha_A \alpha_B \Omega_{AB} + N_{cluster} k_B T (\alpha_A \ln \alpha_A + \alpha_B \ln \alpha_B) \quad (3.1)$$

となる。ここで、 $N_{cluster}$ はクラスターのサイズ、 α_A 、 α_B はそれぞれクラスター中に占める A および B 原子の割合である。 $F_A^F(N_{cluster}, \Omega_{FeA})$ 、 $F_B^F(N_{cluster}, \Omega_{FeB})$ はそれぞれ Fe 中に球状の A クラスターあるいは B クラスターの形成エネルギーである。 k_B はボルツマン定数、 T は温度、 Ω_{FeA} 、 Ω_{FeB} 、 Ω_{AB} はそれぞれ FeA 原子間、FeB 原子間、AB 原子間の相互作用パラメータである。

次に、正則溶体近似法で得られた欠陥エネルギー論をもとに構築した空孔 溶質原子クラスターの核生成プロセスを取り扱うモンテカルロモデルについて説明する。

照射環境下では、中性子により材料中に空孔や格子間原子などの非平衡欠陥が存在するが、それらの平均的なふるまいを追跡したところで核生成プロセスを明らかにすることは不可能である。そこで本モデルでは、ある一つの空孔もしくは溶質原子に着目し、それに対する空孔、溶質原子、格子間原子(SIA)の流入および流出を確率論的に考慮し、ゆらぎの効果を取り込むことで核生成現象を追跡する。また、反応と反応間の時間を確率論的に決定して、その核生成プロセスを時間発展を解析した。

4. 研究成果

(1) 欠陥生成

図3に、PKA エネルギー 20eV ~ 50 keV の衝突カスケードによって生成する点欠陥数 (フレンケル対) N_f の確率密度分布を示す。横軸は N_f で、縦軸は生成割合 (シミュレーション総数 1000 に対する、横軸で指定した欠陥数を生成したケース数の比率) である。

図3の(a)は、PKA エネルギーが 20eV ~ 80eV の結果を示している。 N_f はほとんど 0 または 1 であり、非常にまれなケースで $N_f = 2$ になる。 $N_f = 1$ となる生成割合は PKA エネルギーとともに増加し、80eV で 0.85 になる。面白いことに、PKA エネルギーが 20eV ととても低くとも (はじき出ししきいエネルギーよりずっと低い) $N_f = 1$ となる割合はゼロではない。Wooding の報告にもあるように、この結果は NRT モデルと整合しない^{[4][5]}。

図3の(b)、(c)、(d)は、PKA エネルギーが 0.1keV ~ 50 keV の結果を示している。 N_f の確率分布はガウス分布で表されることがわかる。分布のピーク位置での N_f の値 (ガウス分布の平均値) や分布の広がり (分散) は PKA エネルギーとともに増加することがわかる。

図4の(a)は、20eV ~ 100eV 範囲の N_f 平均値 μ と PKA エネルギーの関係を示している。点は個々の PKA エネルギーにおける N_f の平均 μ を示し、エラーバーは標準偏差を表す。図にあるとおり、20 eV から 100 eV までの PKA エネルギーにおける μ の変化は単純ではなく、この範囲でのエラーバーは比較的大きいように見える。このエネルギー範囲では、欠陥生成の過程は強い結晶学的配向依存性が見られるが、このことがおそらく平均値 μ の奇妙なエネルギー依存性の理由になっていると思われる。それにもかかわらず、この PKA エネルギー範囲において最小二乗近似を行うと、 N_f の平均値 μ は PKA エネルギーにほぼ比例することがわかる。この線形依存性は、明らかに NRT モデルと一致する。

図4の(b)は、0.1keV ~ 50 keV 範囲の N_f 平均値 μ と PKA エネルギーの関係が対数座標系で示している。点は個々の PKA エネルギーにおける N_f の平均 μ を示し、エラーバーは標準偏差を表す。図より、PKA エネルギーが 100 eV から 10 keV の場合、 N_f の平均 μ は PKA エネルギーの 0.68 乗に比例する関係を示している。 N_f の平均値 μ のエネルギー依存性は、Bacon と Stoller による研究^[4,6,7]と一致するが、このシミュレーションでは、Stoller によって報告された 500 eV 付近での屈曲点は見出されていない。PKA エネルギーが 10 keV から 50keV の場合、 N_f の平均値 μ と PKA エネルギーとの関係は線形関係になる。これは、Stoller が示したように、サブカスケードの発現による効果であると考えられる^[8]。ただし、以前の研究と比較すると、

Bacon モデルからサブカスケードモデルへの変換エネルギーは、Stoller が 30 keV としていたのに対し、本研究では 10keV になった。これは、原子間ポテンシャルの選択の影響によると思われる。

(2) 析出挙動

モンテカルロ法を用いて、Cu、Mn、Ni、Si を基に相互作用パラメータを設定し、空孔 溶質原子クラスターの核生成プロセスをシミュレーションした。そして、その核生成経路は主に分離型と混合型の 2 種類があることを見出した。

図 2 に、この 2 種類を代表するシミュレーション結果を示している。上側の等高線図において、横軸はクラスター内空孔の数、縦軸はクラスター内の溶質原子の数、また、各サイズに対応す

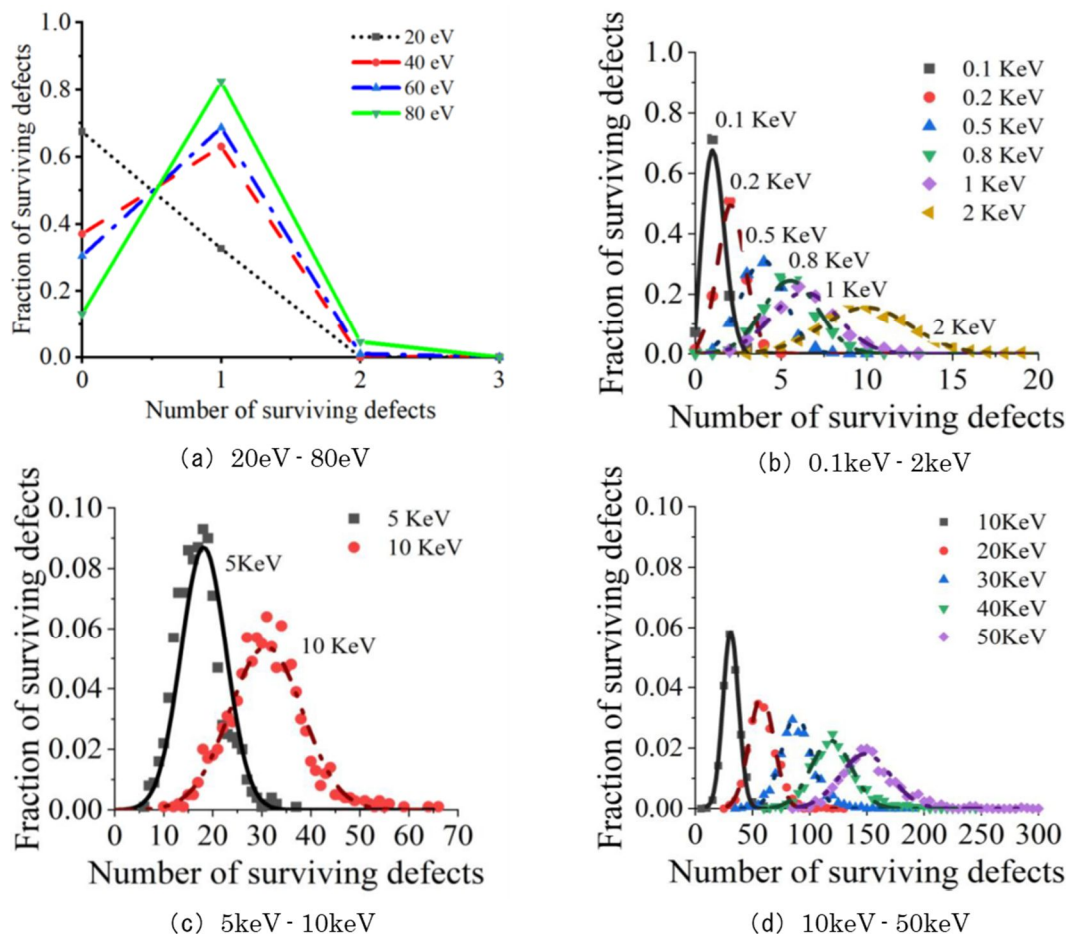


図 3 PKA エネルギー 20eV ~ 50 keV 生成欠陥数 (フレンケル対) の確率密度分布

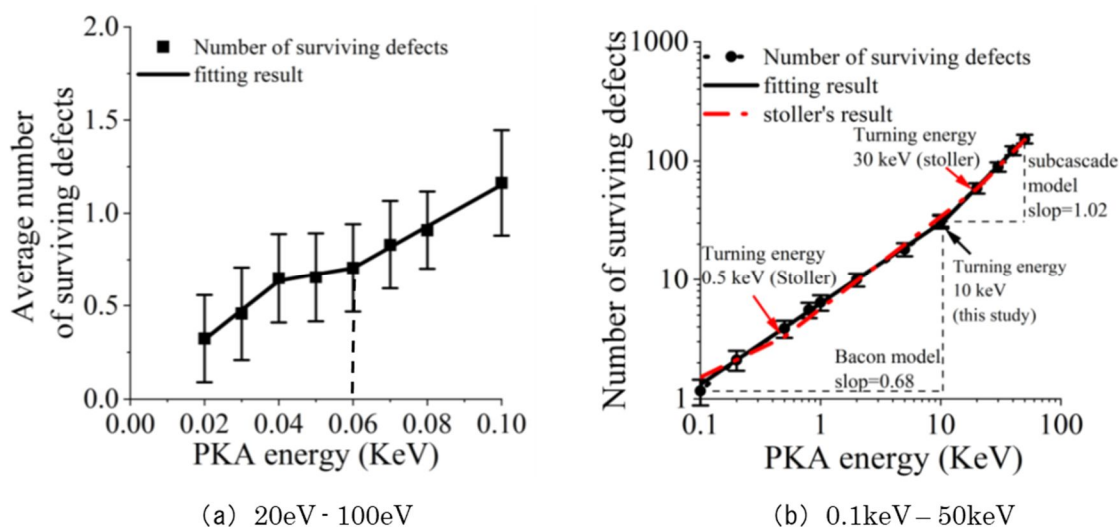


図 4 20eV ~ 50 keV 生成欠陥数 (フレンケル対) の平均値と PKA エネルギーの関係

る核生成臨界エネルギーの値を色によって表す。黒色の部分はエネルギーが 0 eV 以下、深赤色の部分はエネルギーが 1.5 eV 以上の数値を表している。下側のヒストグラムは 10000 回の核生成シミュレーションにおいて、クラスターが核生成するときのクラスター内の組成比(クラスター内に溶質原子が占める割合)の統計である。

図 5 の(a)は分離型を示す。Fe と溶質原子の相互作用パラメータ Ω_{FeX} が正で、Fe と溶質原子が反発し、核生成エネルギーの低い方向へ迂回して、高い組成比(0.6 を中心)のクラスターが核生成される。Cu リッチクラスターは分離型のクラスターに属すると考えられる。

図 5 の(b)には混合型を示す。空孔と溶質原子の相互作用パラメータ Ω_{VX} が負で、空孔と溶質原子が引き合い、核生成エネルギーの低い谷を通過し、その結果、低い組成比(0.4 を中心)のクラスターが核生成される。MnNiSi クラスターは混合型のクラスターに属すると考えられる。

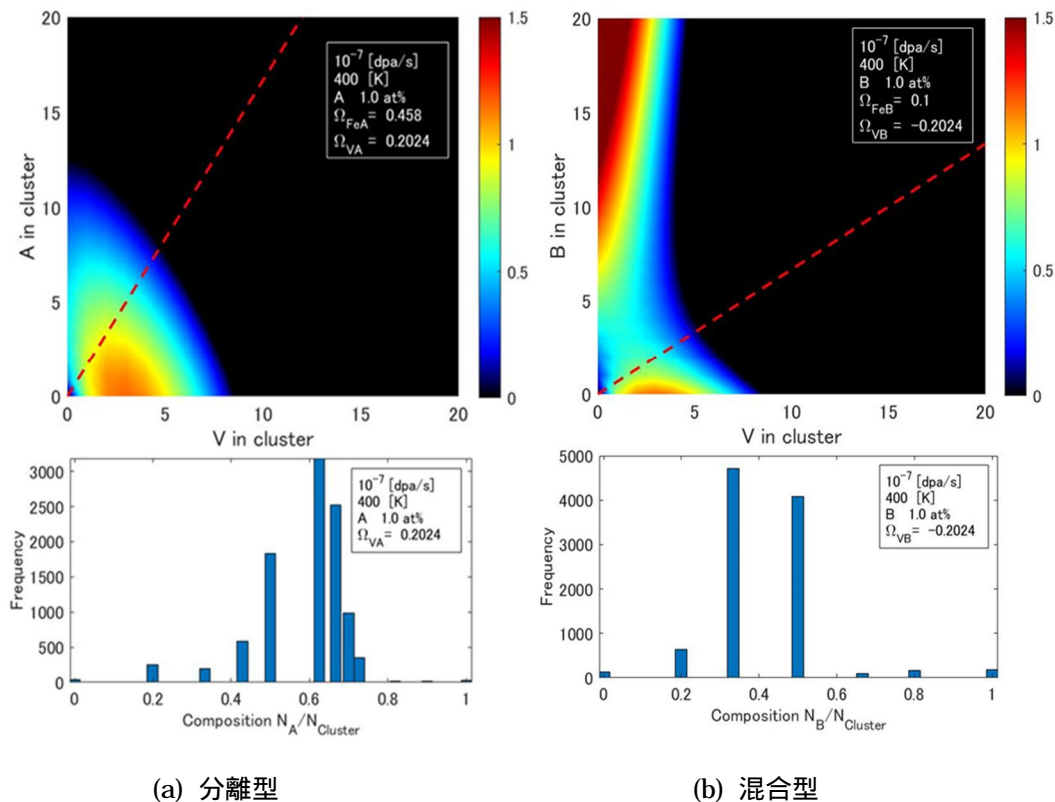


図 5 空孔-溶質原子クラスターの核生成経路

5 . まとめ

本研究により、照射下で使われる材料内の、非平衡欠陥生成および集合体核生成に関するそれぞれモデルを詳細化することができた。ともに、確率論もしくは統計学的視点をこれらの現象のモデル化に取り込むことで、最終的な照射脆化予測にも確率論的もしくは統計学的視点を盛り込むことが可能になる。このような視点は、極値統計の議論が当然ながらに必要とされる材料脆性破壊の予測では必須であり、照射脆化予測の高度化に欠かせない知見となる。

< 引用文献 >

- [1] Y. Nagai et al., Applied Physics Letters, Vol.87, 261920, (2005).
- [2] 藤井克彦, 福谷耕司 .アトムプローブによる PWR 原子炉容器監視試験片のミクロ組織分析 . INSS JOURNAL, Vol. 20, NT-8, 2013
- [3] 藤井克彦, 他 .中性子照射ステンレス鋼の硬化機構 . INSS JOURNAL, Vol. 26, pp.89-97, 2019 .
- [4] K. Nordlund, M. Ghaly, R.S. Averback, et al, Defect production in collision cascades in elemental semiconductors and fcc metals, Phys. Rev. B. 57.13 (1998) 7556.
- [5] S. J. Wooding, D. J. Bacon, Computer simulation of low-energy displacement events in pure HCP metals, Radiat. Eff. Defects Solids, 130.1 (1994) 461-469.
- [6] D.J. Bacon, A.F. Calder, F. Gao, et al, Computer simulation of defect production by displacement cascades in metals, Nucl. Instrum Methods Phys Res B. 102.1-4 (1995) 37-46.
- [7] R.E. Stoller, A. F. Calder, Statistical analysis of a library of molecular dynamics cascade simulations in iron at 100 K, J. Nucl. Mater. 283 (2000) 746-752.
- [8] R.E. Stoller, The role of cascade energy and temperature in primary defect formation in iron, J. Nucl. Mater. 276.1-3 (2000) 22-32.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Chen Yuting, Morishita Kazunori	4. 巻 30
2. 論文標題 Molecular dynamics simulation of defect production in Fe due to irradiation	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Nuclear Materials and Energy	6. 最初と最後の頁 101150 ~ 101150
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nme.2022.101150	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Ruan Xiaoyong, Morishita Kazunori	4. 巻 373
2. 論文標題 Pressurized thermal shock analysis of a reactor pressure vessel for optimizing the maintenance strategy: Effect of asymmetric reactor cooling	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Engineering and Design	6. 最初と最後の頁 111021 ~ 111021
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.nucengdes.2020.111021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 0件/うち国際学会 5件）

1. 発表者名 阮小勇, 森下和功
2. 発表標題 RPV保全最適化のための3D-CFD & FEMによるPTS時の構造健全性評価：非対称原子炉冷却の効果
3. 学会等名 日本保全学会第17回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuting Chen, Tatsuya Toyoda, Liangfan Zhu, Kazunori Morishita, Yoshiyuki Watanabe, Takashi Nozawa
2. 発表標題 PKA energy dependence of defect production in collision cascades
3. 学会等名 12th International Symposium of Advanced Energy Science, Institute of Advanced Energy, Kyoto University (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 祝 梁帆, 森下和功, 渡辺淑之, 藪内聖皓
2. 発表標題 中性子照射下における材料損傷過程の反応速度論解析
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 豊田達也, 森下和功, 藪内聖皓
2. 発表標題 破壊き裂進展における照射効果の分子動力学評価
3. 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yuting Chen, Kazunori Morishita, Yoshiyuki Watanabe, Takashi Nozawa
2. 発表標題 Molecular Dynamics Simulation of Defect Production in Fe due to Irradiation
3. 学会等名 International Conference on Fusion Reactor Materials (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 國分悠輔, 藪内聖皓, 森下和功
2. 発表標題 Deep Learningを用いた透過型電子顕微鏡画像解析技術の開発
3. 学会等名 日本金属学会2021年秋期大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Xiaoyong Ruan, Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Masami Ando, Takashi Nozawa
2. 発表標題 Relaxation volume of irradiation-induced defects in pure iron: Molecular-statics calculation with linear elasticity theory
3. 学会等名 International Conference on Fusion Reactor Materials (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Hirotomo Iwakiri, S. Fujita, Kazunori Morishita, Y. Watanabe
2. 発表標題 Behavior of hydrogen on the surface of fusion reactor materials by computer simulation
3. 学会等名 11th International Symposium of Advanced Energy Science (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yutin Chen
2. 発表標題 Irradiation impact on the microstructural evolution in ferritic alloy
3. 学会等名 11th International Symposium of Advanced Energy Science (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 角田陽太郎、藪内聖皓、森下和功
2. 発表標題 FeCrNi合金中に形成する積層欠陥四面体と空孔集合体のエネルギーヒラキーについての検討
3. 学会等名 日本金属学会2020年秋季第167回講演大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 水田航平、中筋俊樹、藪内聖皓、森下和功、青木孝行
2. 発表標題 リスクに基づく事故炉廃止措置の最適化
3. 学会等名 日本原子力学会2020年秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Chen Yuting;、水田航平、豊田達也、祝梁帆、森下和功、阮 小勇、渡辺淑之、野澤貴史
2. 発表標題 核融合中性子照射場の理論的定量化に関する研究
3. 学会等名 量子科学技術研究開発機構 令和2年度共同研究成果報告会（BA報告会）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 水田航平、中筋俊樹、藪内聖皓、森下和功、青木孝行
2. 発表標題 事故炉廃止措置最適化のための評価手法の検討
3. 学会等名 第6回次世代イニシアティブ廃炉技術カンファレンス
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 岩切宏友、藤田旺生、森下和功、渡辺淑之、加藤太治
2. 発表標題 核融合炉材料表面における水素の基本的な挙動についてのコンピュータシミュレーション
3. 学会等名 京都大学エネルギー理工学研究所ゼロエミッションエネルギー研究拠点2020年度共同利用・共同研究成果報告会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------