

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 6 月 1 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2009～2011

課題番号：21560685

研究課題名（和文） 照射下材料中の非平衡欠陥集合体核生成の機構論的解明と体系化

研究課題名（英文） Investigation of the nucleation mechanism of athermal defect clusters in materials during irradiation

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

研究成果の概要（和文）：原子炉や核融合炉などの照射環境下における欠陥集合体の形成は、材料劣化を引き起こす要因である。本研究では、現象のマルチスケール性を踏まえた欠陥集合体核生成の理論モデルを構築した。また、本研究モデルを用いた解析によって、欠陥集合体核生成プロセスの損傷速度（dpa/s）依存性を評価し、体系的に整理した。これらの知見は、加速照射等の損傷速度の異なる照射データから、実際の照射環境下における損傷速度での材料劣化を予測するために重要である。

研究成果の概要（英文）：The formation of point defects and their clusters in materials during irradiation is one of key issues for material's degradation in fission and fusion reactors. To understand the mechanism of cluster formation is important for further development of irradiation-resistant materials. In the present study, theoretical investigation was done to model the nucleation and growth process of defect clusters, which provides us the dose-rate dependence of defect cluster formation. These findings obtained here will be useful for establishment of the irradiation correlation rule that is required to predict materials degradation behavior in the realistic irradiation environments of fission and fusion reactors from the material's database already obtained at the existing irradiation facilities.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	2,400,000	720,000	3,120,000
2010年度	500,000	150,000	650,000
2011年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,700,000	1,110,000	4,810,000

研究分野：核融合材料・原子炉材料

科研費の分科・細目：材料工学・金属物性

キーワード：非平衡材料，核生成・成長理論，照射損傷，計算材料学，材料照射関連，マルチスケールモデリング

1. 研究開始当初の背景

現存しない核融合炉材料の照射効果を予測するためには、核分裂炉等の既存の照射施

設を用いた照射実験が行われる。一方、数十年間もの長期間使用される軽水炉材料の照射効果を予測するには、実際よりも損傷速度

(dpa/s)の速い照射場において照射が行われる(いわゆる加速照射試験)。このように核分裂炉・核融合炉材料の照射研究では、通常、こうした代替照射場を用いた研究がなされる。そこで、代替照射によって取得されたデータは、果たしてそのまま、必要としている照射条件下の材料挙動を表すのか、そうでなければ、いかに既存の照射データを使って必要とする環境下の材料挙動を予測すればよいのかの問題が発生する。これを材料照射相関の問題という。

照射下材料中の欠陥集合体の形成プロセスは、材料の照射による微細構造変化に大きな影響を与える。そこで本研究では、照射による材料微細構造変化、特に欠陥集合体核生成プロセスに注目し、その照射場依存性を正しく理解するためのモデルの構築を試みた。

2. 研究の目的

本研究の目的は、これまで理論的な取り扱いが困難であった欠陥集合体核生成プロセスを正しくモデル化し、核生成プロセスを機構論的に解明することである。その際、現象の時間的空間的マルチスケール性を十分に考慮したモデルとすることが肝要である。さらに、本研究モデルを用いて核生成プロセスの照射場依存性を理論的に評価し、代替照射場のデータから、必要とする環境下における材料劣化を予測するための方法論構築につながる知見を得ることである。

3. 研究の方法

欠陥集合体の核生成プロセスは、空間スケールとしては、ナノメートル (nm) オーダーの原子レベルの現象である一方で、時間スケールとしては、照射条件によって、数日以上時間を要する場合もある。そのため、現象のマルチスケール性を十分に考慮し、各種計算手法(分子動力学法、キネティックモンテカルロ法、反応速度論解析)を相補的に用いて、曖昧さの少ないモデルを構築した。ここで、本研究モデルでは、エネルギー的には不安定な核生成プロセスをきちんと理論的に取り扱うために、モンテカルロ法解析において、欠陥フラックスの統計的ゆらぎの効果を取り入れた。

4. 研究成果

核融合炉材料や長期間使用される原子炉構造材料の照射損傷を予測するために、代替照射場を用いた試験が行われている。しかし、その照射能力(損傷速度、He ガス生成率、中性子エネルギーフラックス、入射粒子等)は照射施設や材料を配置する場所等によって大きく異なる。図1に中性子エネルギースペクトルデータを基に SPECTER コード[1]を用いて算出した様々な照射施設の照射能力を

示す。本研究では、照射能力を定量化する際に一般的に用いられる指標である損傷速度(dpa/s)に着目し、原子空孔の集合体であるボイド核生成に対して、その損傷速度依存性を評価した。

(1) ボイド核生成プロセスのモデル化

本研究モデルでは、1つのボイドに着目し、そのボイドに対して空孔と格子間原子が流入及び流出する4つの事象を考慮した。

ボイドを半径 R の球体と仮定すると、ボイドの正味の成長速度は、以下の式で与えられる。

$$J^{\text{NET}} = J_V^{\text{IN}} - J_V^{\text{OUT}} - J_I^{\text{IN}} + J_I^{\text{OUT}} \\ = 4\pi R/\Omega \{ D_V C_V - D_V C_V(R) - D_I C_I + D_I C_I(R) \}$$

ここで、 J^{NET} はボイド成長に対する正味のフラックス、 J^{IN} は欠陥の流入フラックス、 J^{OUT} は欠陥の流出フラックス、 Ω は原子体積、 D は拡散係数、 $C(r)$ はボイド中心から距離 r の欠陥濃度、添え字の V, I は空孔と自己格子間原子(SIA)をそれぞれ示す。この式から、ボイドの成長速度は、空孔とSIAの流入、流出フラックスのバランスによって決まる。

通常、臨界サイズに満たないボイド(エンブリオ)の正味の成長速度はマイナスであり、平均的には収縮へと向かう。そのため、従来の研究においては、ボイド核の存在を適当に仮定する必要があった。本研究では、空孔とSIAの流入及び流出の4つの事象にそれぞれ自由度を持たせ、実際にどの事象が起こるかを乱数を用いて確率論的に(モンテカルロ法)決定した。こうすることで、正味の成長速度がマイナスであっても統計的なゆらぎの効果によって、ボイド核の生成を理論的に評価することが出来る。ここで、それぞれの事象の発生確率は、欠陥フラックスの割合から算出される。

図2に本研究モデルを用いて算出したボイド核生成の潜伏期間(エンブリオが臨界サイズに成長するまでに要した時間)の温度と損傷速度依存性を示す。ここで、ほとんどの試行では、空孔と格子間原子の再結合によって欠陥が消滅する。図中に示されているデータは非常に低い確率であるが、核生成が起こった事象1万回分の平均値である。温度が高いほど材料中の空孔が動きやすくなるため、潜伏期間が短くなっている。また、同一温度で比較すると、損傷速度が高いほど材料中の空孔過飽和度が高くなるため、潜伏期間が短くなる傾向が見られる。

次に、潜伏期間とボイド核の生成確率を基に、ボイド核生成率(単位時間当たりに生成

するボイド核の数)を評価した。図3にボイド核生成率の温度と損傷速度依存性を示す。ここで、縦軸は核生成率を損傷速度で割って規格化した。この結果から、ボイド核生成にはピーク温度が存在することが明らかになった。これは、低温側では空孔が動きにくく、また、高温側では、ボイドが熱的に不安定になるためである。さらに、核生成のピーク温度は、損傷速度が高いほど高温側へとシフトしている。これは、損傷速度が高いほど材料中の空孔過飽和度が高くなり、より高温でもボイドが安定に存在することが可能になるためである。本研究で得られたこれらの結果は、実験結果と定性的に一致している。

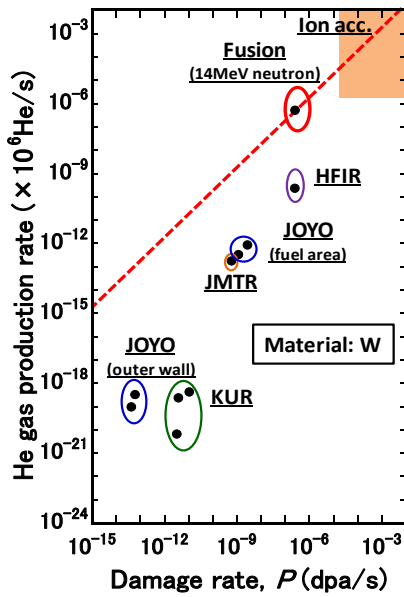


図1 照射能力の照射場依存性

(2) ボイド核生成の照射施設依存性

図4にボイド核生成率の温度と損傷速度依存性を示す。また、赤の破線でそれぞれの照射施設における損傷速度の目安を示している。500Kでは、ボイド核生成率が損傷速度にほぼ比例している。これは、低温ではボイドが熱的に安定であり、欠陥の解離がほとんど起こらず、核生成率が空孔過飽和度だけに依存するためである。このような条件では、損傷速度の異なる照射場を用いても比較的容易に、実際の使用環境下におけるボイド核生成を予測できると考えられる。

しかし、温度が高くなるほどボイドが熱的に不安定になり、ボイド核生成率と損傷速度の間の単純な関係が崩れ、損傷速度依存性が大きくなる。さらに、900Kや1000Kといった高温では、ボイドが核生成する確率があまりに低くなり過ぎるため、損傷速度が低い条件

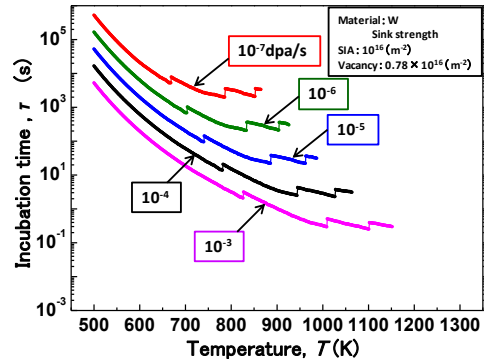


図2 ボイド核生成の潜伏期間の温度、損傷速度依存性

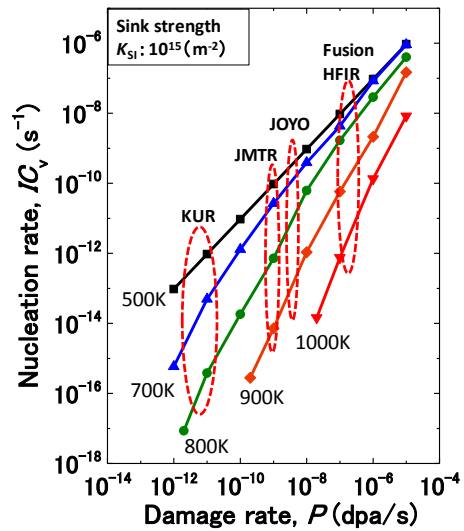


図3 ボイド核生成率の温度、損傷速度依存性

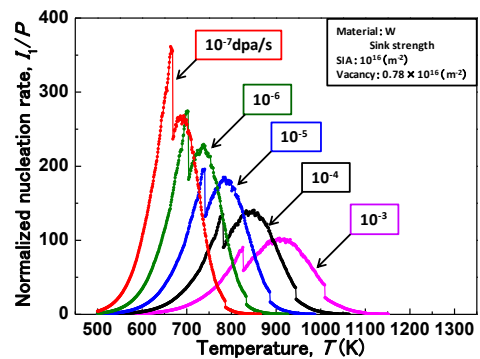


図4 ボイド核生成率の温度、損傷速度依存性と各照射施設の損傷速度

では計算データを得ることが出来なかった。このような条件では、実験的にもボイドが生成することは非常に難しいと考えられる。例えば、損傷速度が低い核分裂炉を用いて、核融合炉の高温、高損傷速度で使用される材料中のボイド形成を模擬するためには、同一温度ではなく、実際よりも温度が低い条件で試験を行わざるを得ないと考えられる。

このように代替照射場を用いて照射損傷を予測するために重要なボイド核生成と損傷速度の関係が明らかになった。

参考文献

- [1] L. R. Greenwood and R. K. Smither, Report No. ANL/FPP/TM-197, Argonne National Lab., USA (1985)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

- [1] Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, “Nucleation and growth of self-interstitial atom clusters in β -SiC during irradiation: Kinetic Monte-Carlo modeling”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B 269 (2011), pp. 1698-1701
- [2] Daiji Kato, Hiroto Iwakiri, Kazunori Morishita, “Formation of vacancy clusters in tungsten crystals under hydrogen-rich condition”, Journal of Nuclear Materials 417 (2011), pp. 1115-1118
- [3] Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Akira Kohyama, “Composition Dependence of Formation Energy of Self-interstitial Atom Clusters in β -SiC: Molecular dynamics and molecular statics calculations”, Journal of Nuclear Materials 417 (2011), pp. 1119-1122
- [4] Daiji Kato, Hiroto Iwakiri, Kazunori Morishita, “First-principle Study on Binding Energy of Vacancy-Hydrogen Cluster in Tungsten”, Journal of Plasma and Fusion Research SERIES 8, (2009), pp. 404-407
- [5] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, H.L. Heinisch, F. Gao, “Energetics of Defects in β -SiC under irradiation”, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B267, (2009) pp. 3223-3226.
- [6] Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Akira Kohyama, Howard L. Heinisch, Fei Gao, “Defect Properties in β -SiC under Irradiation –Formation Energy of Interstitial Clusters–”, Fusion Science and Technology 56 (2009), pp. 328-330
- [7] Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama,

“Capture Efficiency for Clustering Reaction between Charged Defects in β -SiC under irradiation”, Journal of Nuclear Materials 386-388, (2009) pp. 199-202

- [8] K. Morishita, Y. Watanabe, A. Kohyama, H.L. Heinisch, F. Gao, “Nucleation and growth of vacancy clusters in β -SiC during irradiation”, Journal of Nuclear Materials 386-388, (2009) pp. 30-32

[学会発表] (計 76 件)

- [1] ○Y. Watanabe, K. Morishita, A. Kohyama, Modeling and simulation of defects in SiC during irradiation, Korea-Japan Symposium 2012 on Advanced Energy System and Materials, Busan, Korea, March 26-27, 2012
- [2] ○山本泰功, 岩切宏友, 森下和功, 渡辺淑之, 金田保則, 加藤太治, 「ジルコニウム酸化膜成長速度の応力依存性」, 日本原子力学会「2012 春の年会」, 福井大学, 2012 年 3 月 19-21 日
- [3] ○渡辺淑之, 森下和功, 濱口 大, 谷川博康, 「照射下材料ミクロ構造変化のモデル化」, 京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」, 2011 年 12 月 16 日
- [4] ○山本泰功, 泉 裕太, 岩切宏友, 森下和功, 渡辺淑之, 「ジルコニウム酸化膜中の欠陥エネルギー論」, 京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」, 2011 年 12 月 16 日
- [5] ○山本泰功, 岩切宏友, 泉 裕太, 渡辺淑之, 森下和功, 金田保則, 加藤太治, 「Zr 酸化膜の成長速度～ZrO₂ 中の欠陥エネルギー評価～」, 軽水炉燃料に関する研究会, 京都大学, 2011 年 11 月 30 日～12 月 1 日
- [6] ○泉 裕太, 山本泰功, 渡辺淑之, 森下和功, 「Zr 合金の酸化膜成長速度」, 軽水炉燃料に関する研究会, 京都大学, 2011 年 11 月 30 日～12 月 1 日
- [7] ○森下和功, 渡辺淑之, 濱口 大, 谷川博康, 「核融合材料設計に向けたマルチスケールモデリング」, PLASMA 2011 (Plasma Conference) (プラズマ・核融合学会第 28 回年会, 応用物理学会第 29 回プラズマプロセッシング研究会, 日本物理学会(領域 2), 石川県立音楽堂, 2011 年 11 月 22-25 日
- [8] ○Y. Watanabe, K. Morishita, Y. Yamamoto, KMC Simulations of Defect Cluster Formation in β -SiC during Irradiation, 15th. International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-15), South Carolina,

- USA, October 16-22, 2011
- [9] ○Y. Yamamoto, K. Morishita, Y. Watanabe, Damage Rate Dependence of Defect Cluster Nucleation in Tungsten during Irradiation, 15th. International Conference on Fusion Reactor Materials (ICFRM-15), South Carolina, USA, October 16-22, 2011
- [10] ○森下和功, 山本泰功, 泉裕太, 渡辺淑之, 「高経年化対策に必要な材料照射相関則の構築」, 日本保全学会第8回学術講演会, 東京学士会館, 2011年10月21日
- [11] ○山本泰功, 岩切宏友, 泉裕太, 森下和功, 渡辺淑之, 金田保則, 加藤太治, 「ジルコニウム中の欠陥エネルギー論」, 日本原子力学会「2011年秋の大会」, 北九州国際会議場, 2011年9月19~22日
- [12] ○森下和功, 山本泰功, 泉裕太, 渡辺淑之, 「照射材料中の欠陥集合体の核生成シミュレーション」, 日本原子力学会「2011年秋の大会」, 北九州国際会議場, 2011年9月19~22日
- [13] ○渡辺淑之, 森下和功, 山本泰功, 徐ギユウ, 義家敏正, 「核融合炉内材料の点欠陥挙動の数値解析」, 日本原子力学会「2011年秋の大会」, 北九州国際会議場, 2011年9月19~22日
- [14] ○渡辺淑之, 森下和功, 「核融合炉材料研究分野における BA-CSC の利用について」, 核融合エネルギーフォーラム モデリング・シミュレーションサブクラスター平成23年度第1回会合, 日本原子力研究開発機構, 2011年8月29日
- [15] ○森下和功 「原子炉材料の照射損傷挙動に関するマイクロ・マクロモデルの構築」 「材料照射損傷挙動のマルチスケールモデリングと照射相関則の構築」, 第6回原子力科学技術に関する連携重点研究討論会および成果報告会, 茨城県, 2011年8月25日
- [16] ○Y. Yamamoto, K. Morishita, Y. Izumi, Y. Watanabe, Monte-Carlo simulation of void nucleation in nuclear materials during irradiation, The 3rd International Symposium: Kyoto University Global COE Program of Energy Science, August 18-19, 2011, Korea
- [17] ○山本泰功, 泉裕太, 渡辺淑之, 森下和功, 「照射下材料中のボイド核生成のモンテカルロシミュレーション (2)ボイド発生の潜伏期間を決める因子」, 日本原子力学会春の年会, 福井大学, 2011年3月28-30日
- [18] ○森下和功, 山本泰功, 泉裕太, 渡辺淑之, 「照射下材料中のボイド核生成のモンテカルロシミュレーション (1)照射場依存性」, 日本原子力学会春の年会, 福井大学, 2011年3月28-30日
- [19] ○山本泰功, 渡辺淑之, 泉裕太, 森下和功, 「欠陥集合体核生成の照射場依存性評価」, 京都大学原子炉実験所・合同研究打ち合わせ, 2011年3月25日
- [20] ○渡辺淑之, 森下和功, 山本泰功, 「SiCにおける欠陥集合体の核生成・成長のモデル化」, 京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」, 2010年12月17日
- [21] ○泉裕太, 山本泰功, 森下和功, 渡辺淑之, 「ボイド核生成潜伏期間のシンク強度依存性」, 京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」, 2010年12月17日
- [22] ○山本泰功, 森下和功, 渡辺淑之, 泉裕太, 「欠陥集合体核生成に及ぼす He 効果」, 京都大学原子炉実験所ワークショップ「材料照射効果と応用」, 2010年12月17日
- [23] ○D. Kato, H. Iwakiri, K. Morishita, T. Muroga, First-principle calculations of hydrogen interaction with dissolved carbon atoms in tungsten lattice, 20th International Toki Conference (ITC20) on the Next Twenty Years in Plasma and Fusion Science, Toki, Japan, December 7-10, 2010
- [24] ○Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, KMC Analysis of nucleation and growth of SIA-clusters in cubic silicon carbide during irradiation, Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications and Monte Carlo 2010, Hitotsubashi Memorial Hall, Japan, October, 2010
- [25] ○Daiji Kato, Hirotomo Iwakiri, Kazunori Morishita, First-principle Calculations of Hydrogen Interaction with Vacancies and Dissolved Atoms in Tungsten, Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications and Monte Carlo 2010, Hitotsubashi Memorial Hall, Japan, October 19, 2010
- [26] ○Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, Junichi Yoshimatsu, Yoshiyuki Watanabe, Yuta Izumi, Formation of Defect-cluster Embryos in Nuclear Materials during Irradiation, Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications and Monte Carlo 2010, Hitotsubashi Memorial Hall, Japan, October 18, 2010
- [27] ○Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, Formation of self-interstitial atom clusters in cubic

- silicon carbide during irradiation, Fifth International Conference on Multiscale Materials Modeling 2010 (MMM 2010), Germany, October 2010
- [28] Kazunori Morishita, Junichi Yoshimatsu, Yasunori Yamamoto, Yoshiyuki Watanabe, Yuta Izumi, Damage Rate Dependence of Void Nucleation in W, Fifth International Conference on Multiscale Materials Modeling 2010 (MMM 2010), Freiburg, Germany, 7, October 2010
- [29] Kazunori Morishita, Modeling of Multiscale Radiation Damage Processes in Nuclear Materials, The Nuclear Materials Conference (NuMat2010), An international conference in association with Journal of Nuclear Materials, Medienteater, ZKM, Karlsruhe's Centre for Art and Media, Germany, October 4, 2010
- [30] 山本泰功, 吉松潤一, 渡辺淑之, 泉 裕太, 森下和功, 「照射下材料中の欠陥集合体核生成の損傷速度依存性」, 日本原子力学会 2010 年秋の大会, 北海道大学, 2010 年 9 月 16 日
- [31] 森下和功, 山本泰功, 吉松潤一, 泉 裕太, 渡辺淑之, 「材料照射損傷プロセスのモデル化におけるパラメータの検討」, 日本原子力学会 2010 年秋の大会, 北海道大学, 2010 年 9 月 16 日
- [32] 森下和功, 「照射材料モデリング&シミュレーション」, 照射材料に関する計算科学研究交流会, 日本原子力研究開発研究機構, 2010 年 8 月 27 日
- [33] 金田保則, 森下和功, 渡辺淑之, 「核融合材料の照射下挙動のモデル化に関する研究」, 平成 22 年度第 1 回モデリング・シミュレーションサブクラスター会合, JAEA, 2010 年 8 月 23 日
- [34] Yoshiyuki Watanabe, Kazunori Morishita, Yasunori Yamamoto, Nucleation and Growth of Self-interstitial Atom Clusters in b-SiC during Irradiation, 10th International Conference on Computer Simulations of Radiation Effects in Solids, Poland, July 19-23, 2010.
- [35] Kazunori Morishita, Junichi Yoshimatsu, Yasunori Yamamoto, Yoshiyuki Watanabe, Multiscale Viewpoint of Radiation Damage Process in Fusion Materials, 10th International Conference on Computer Simulations of Radiation Effects in Solids, Poland, July 19-23, 2010.
- [36] 森下和功, 吉松潤一, 山本泰功, 泉 裕太, 渡辺淑之, 「原子力材料の照射劣化予測」, 日本保全学会第 7 回学術講演会, E-4 産学協同セッション②, 浜岡原子力館, 2010 年 7 月 15 日
- [37] 森下和功, 吉松潤一, 山本泰功, 渡辺淑之, 「照射場の定量化と核融合炉材料の照射下マイクロ組織発達」, 第 8 回核融合エネルギー連合講演会—新たなエネルギー革命を起こす科学技術“核融合”—, 岐阜県高山市, 高山市民文化会館, 2010 年 6 月 11 日
- [38] 渡辺淑之, 森下和功, 山本泰功, 「核融合炉 SiC 材料中における欠陥集合体の核生成・成長のモデル化」, 第 8 回核融合エネルギー連合講演会, 高山市民文化会館, 2010 年 6 月 11 日
- [39] 山本泰功, 吉松潤一, 渡辺淑之, 森下和功, 「照射下材料中のポイド核形成の損傷速度依存性評価」, 日本金属学会春期大会, 筑波大, 2010 年 3 月 28—30 日
- [40] 森下和功, 吉松潤一, 山本泰功, 渡辺淑之, 「金属材料における欠陥集合体核生成の照射速度依存性」, 日本原子力学会年会, 茨城大, 2010 年 3 月 26—28 日

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 0 件)
- 取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

6. 研究組織

(1) 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

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

(4) 研究協力者

- ・ 渡辺淑之 (WATANABE YOSHIYUKI)
京都大学・エネルギー科学研究科・博士研究員
- ・ 吉松潤一 (YOSHIMATSU JUNICHI)
京都大学・エネルギー科学研究科・修士課程
- ・ 山本泰功 (YAMAMOTO YASUNORI)
京都大学・エネルギー科学研究科・修士課程, 博士課程