

核データ部会・材料部会合同セッション

「材料損傷評価のための核データおよび材料照射研究への活用」

(2) 材料照射損傷モデリングによる照射場の定量化

京都大学

エネルギー理工学研究所

森下 和功

morishita@iae.kyoto-u.ac.jp

1. はじめに

軽水炉圧力容器や核融合炉構造物の使用環境においては、高速中性子照射の影響により材料内に高密度のはじき出し欠陥が生じ、材料のマイクロ構造が変化することで機械特性も変化（劣化、照射脆化）する。現行の軽水炉圧力容器の脆化管理においては、脆化の程度を正しく評価・予測するための方法論が採用されるが、特に今後懸念される長期運転炉の保全を考えると、従来の決定論的な方法論に加え、構造健全性尤度の定量化に適した確率論的な方法論も相補的に構築する必要がある。

照射脆化予測の高度化の課題として、(1) 予測の外挿性、および、(2) 材料照射のスモールデータ性の問題がある。前者は、高々40年間の照射実績をもとに運転開始60年の脆化量を予測する問題（時間軸に対する外挿性）や、その時間的外挿性を克服するために行われる加速照射試験の取り扱いの問題（照射速度依存性の問題）などを含む。異なる照射場であっても照射量（＝照射脆化の程度を示す指標）の定量的記述を統一的行おうとする思いから、いわゆるdpaなるものが数十年前に発明されたが、その後“材料脆化のdpa/s依存性”なる問題が提起され、しかも未だに残されている現状を鑑みると、所期の目的はあまり達成されていないように思う。後者のスモールデータの問題については、たとえば40年程度の長期運転実績の商用高経年炉でさえ、圧力容器監視試験の時系列データはたった4点程度に過ぎないこと、それゆえにその後の脆化傾向を精度よく予測することには非常な困難を伴うこと、などの問題を含む。材料照射劣化を定量的評価するという観点から、さまざまな照射環境・照射条件を統一的に数値化する試み、もしくは、照射材料のモデリング研究を通じて異なる照射場での照射劣化を定量的に予測する取り組みが望まれる。こうした課題の解決に向け、私たちは、照射脆化メカニズムの解明を目指した材料シミュレーション研究や、データ同化法や最新AI技術を用いるデータサイエンス研究、さらには、リスク論に基づく材料劣化評価法の研究などに取り組んでいる。確率論的評価法の構築を踏まえると、統計学に基づく評価、予測のあいまいさ（不確実

さ) の評価も重要になる。

以下では、(1) 照射下材料内のはじき出し欠陥生成率を定量評価するための分子動力学解析研究、(2) 照射下マイクロ構造形成 (=材料劣化) に最も寄与するパラメータを見つけるための反応速度論解析研究、(3) 最近の機械学習技法を適用し、現行の照射劣化予測法 (日本電気協会規程) を高度化する研究、について紹介する。

2. 照射場と材料損傷

2.1 はじき出し欠陥生成率・カスケードクラスター生成率の評価 (分子動力学解析)

図1は、分子動力学 (MD) 手法を用いてシミュレートした原子間衝突連鎖 (はじき出しカスケード損傷) の例を示す。体心立方構造をもつ Fe 中の原子のひとつをランダムに選び、それを一次はじき出し原子 (PKA) と見立てて、その原子に 20 eV ~ 50 keV の運動エネルギー (PKA エネルギー, E_p) をランダムな方向に与え、その後の 100 ps 程度の間の原子衝突の様子をシミュレートしている。はじき出し欠陥生成率やカスケードクラスター生成率が PKA エネルギーの関数として得られる。ここでカスケードクラスターとは、PKA の発生からおよそ 100 ps 程度の間非熱的に形成する欠陥集合体のことを指し、ns ~ μ s 以上の時間をかけ、点欠陥の移動および離合集散により熱活性化プロセスとして形成する欠陥集合体とは区別する。なお、本研究では、現象の統計的性質を明らかにするために、ひとつの 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。

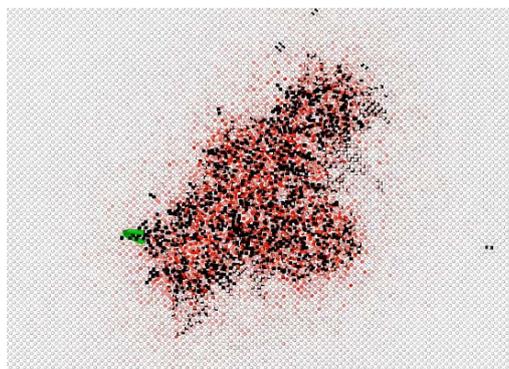


図1 Fe 中の 50 keV PKA の発生から 2.5ps 後のカスケード溶融領域。この後、ほとんどの欠陥は再結合消滅する。

図1は $E_p = 50$ keV の例であるが、カスケードの中心部分は一時的に溶融している。溶融している時間は 1~10 ps ほどであり、その後急速に冷却し固体に戻る。Averback らは、カスケードが溶融している間に、溶融領域の外に逃げ出ることができたはじき出し原子が最終的に欠陥 (自己格子間原子) として生き残り、一方、溶融領域内に留まったはじき出し原子は冷却期間中にほぼ再結合・消滅するとしている。私たちのシミュレー

ションも同様の傾向を示す。欠陥の生成機構をこのように考えると、いわゆる NRT-dpa 評価で使っているような“はじき出ししきいモデル”は、少なくともこのエネルギー範囲では使えないことになる。はじき出ししきいモデルが使えるのは、 E_p がせいぜい 0.1~1 keV 程度のときである。軽水炉压力容器や核融合炉第一壁のような照射条件であれば、 E_p は平均でも数百 keV になることから、欠陥生成率の評価においては、この“溶融領域モデル”を考慮しなければならないことになる。なお、図 1 の溶融領域境界などには、格子間原子型欠陥クラスターが観察されるが、こうしたカスケードクラスターの形成は、次節で示すように、マイクロ構造発達に大きな影響を及ぼす。NRT-dpa 評価のもとになっているのははじき出し原子総数よりはむしろ、カスケードクラスター数の方がマイクロ構造発達を決定づけているのではないかとさえ思える。

図2 は、本研究のMD計算によって得られたのはじき出し欠陥生成数 N_f のPKAエネルギー依存性である。PKAエネルギー E_p が0.1 keV までははじき出し欠陥生成数 N_f は E_p の1 乗に比例し、いわゆるKinchin-Pease モデルに整合する。 E_p が0.1 keV から10 keV までは N_f は E_p のおよそ0.7 乗に比例し、いわゆる溶融モデル（上述のAverbackモデル）となる。さらに、 E_p が10 keV から50 keV の間は、 N_f はふたたび E_p の1 乗の関数となったが、この挙動はサブカスケード構造の形成に対応すると考えられる。本研究では、 N_f 評価の統計についても調べたが、 N_f の標準偏差も E_p の増加関数となることが明らかになった。図3は、カスケードから直接生成する欠陥クラスターのサイズ分布を表す。 E_p が大きくなるほどクラスター生成の確率は増大し、生成可能なクラスターサイズの最大値も大きくなる。

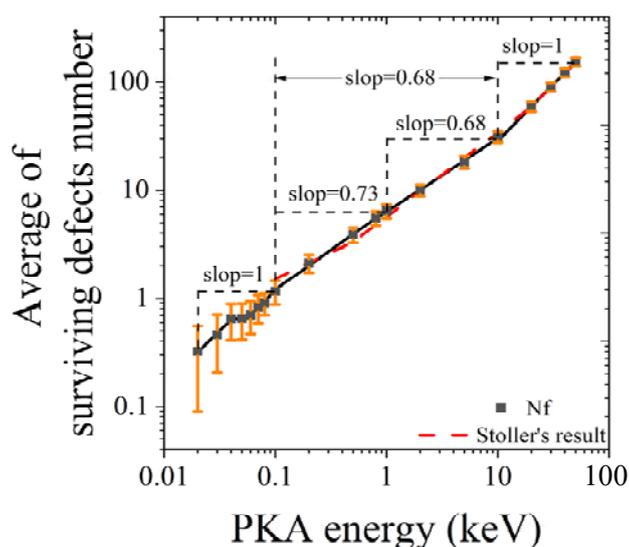


図2 $E_p = 0.1 \text{ keV} - 50 \text{ keV}$ のカスケードにおけるはじき出し欠陥生成数（平均値）

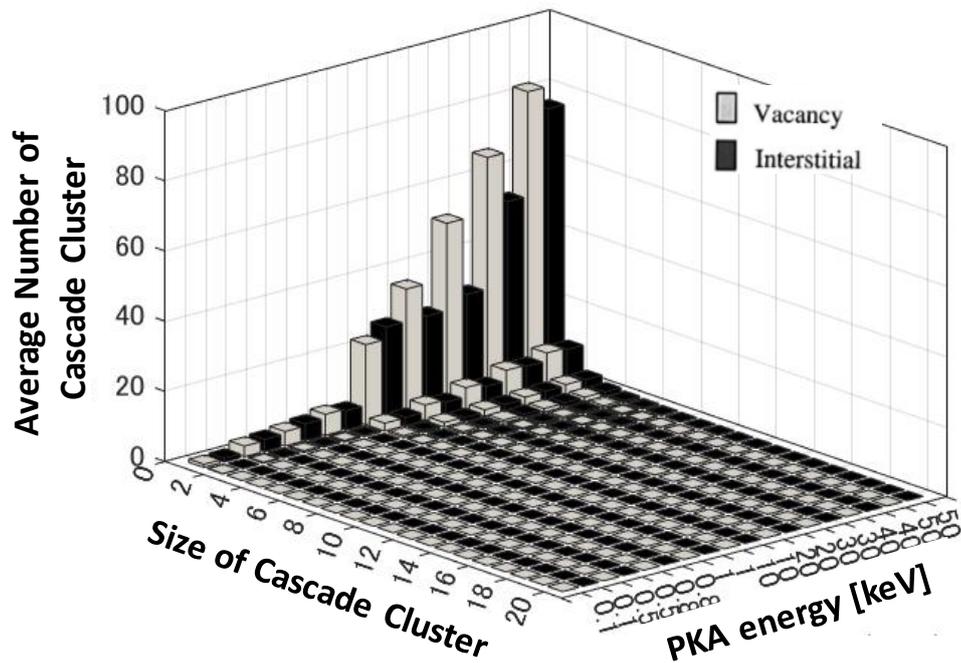


図3 $E_p = 0.1 \text{ keV} - 50 \text{ keV}$ のカスケードにおけるカスケードクラスター生成数（平均値）

2.2 HFIR 照射環境下におけるマイクロ構造発達（反応速度論解析）

米国オークリッジ国立研究所の HFIR（High Flux Isotope Reactor）炉照射試験キャプセル環境における中性子エネルギースペクトルを例に、モンテカルロ計算コード PHITS（Particle and Heavy Ion Transport code System, Version 3.28）を使って PKA エネルギースペクトルを求めた。使用した核データは JENDL-4.0 である。この結果と上述の MD 解析結果とを合わせることで、HFIR 照射場特有のはじき出し欠陥生成率やカスケードクラスター生成率を求めることができる。また、これらの評価結果を照射下材料内マイクロ構造解析コード（欠陥蓄積過程の反応速度論解析）の欠陥生成項（入力値）とすることで、HFIR 照射場特有のマイクロ構造発達を定量評価することができる。さらに、はじき出し欠陥生成率やカスケードクラスター生成率のゆらぎが、マイクロ構造発達に及ぼす影響についても評価することができる。

図4は、上述の PKA エネルギースペクトルから HFIR 照射場特有のはじき出し欠陥生成率 n_f を評価した結果である。ほぼ正規分布の確率密度関数の形をしている。 n_f の平均値は 2.05×10^{-17} 個/s となったが、この値は、HFIR 照射場の NRT-dpa/s 平均値のおよそ3分の1程度である。ゆらぎの大きさ（標準偏差）は n_f 平均値より2桁ほど低く、変動係数（標準偏差を平均値で割った値）は0.015になった。変動は高々1%程度であることから、ゆらぎの効果はほぼ無視しうる。

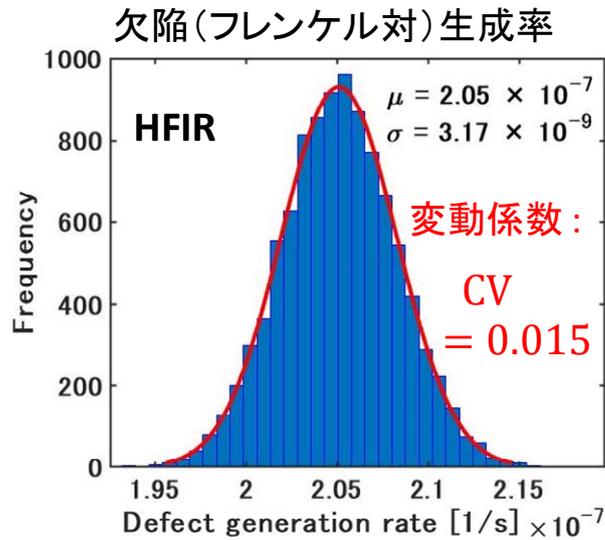


図4 HFIR 炉におけるはじき出し欠陥生成率

図5は、HFIR 照射場におけるカスケードクラスター生成率を示す。横軸は、カスケードクラスターのサイズ（＝クラスターに含まれる点欠陥数）を表している。カスケードクラスター生成率のサイズ分布は、サイズのおよそ-2.7乗に比例した。図5の右縦軸は各サイズの変動係数を表すが、クラスターサイズが大きくなるにつれて変動係数は大きくなり、およそ10%で飽和する。

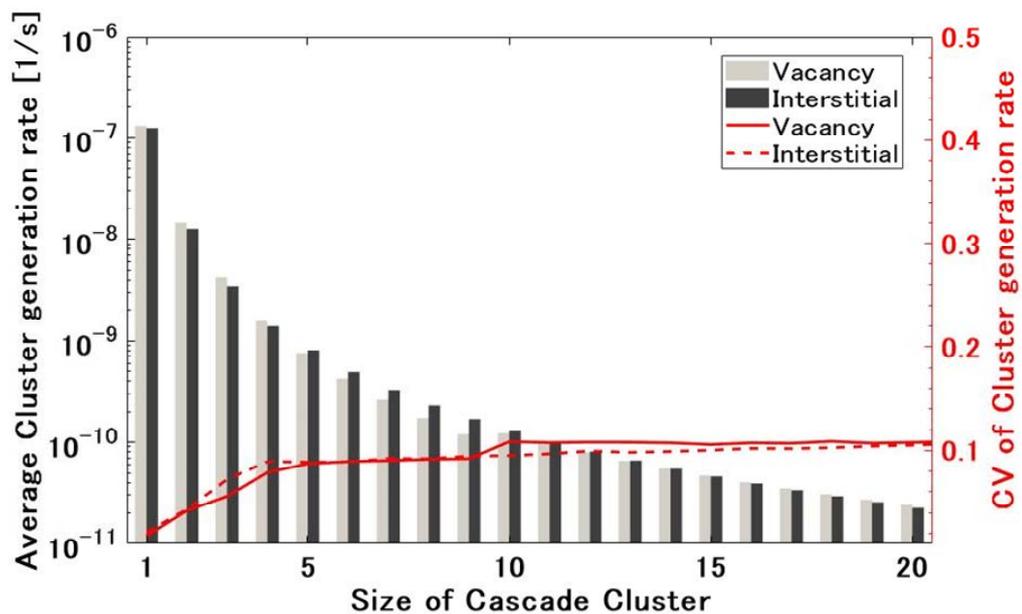


図5 HFIR 炉におけるカスケードクラスター生成率

上述したはじき出し欠陥生成率、カスケードクラスター生成率を欠陥生成項の入力値とし、反応速度論解析により、その後の欠陥クラスター蓄積のようすを調べた。その結果、はじき出し欠陥生成率の1%のゆらぎが欠陥クラスター蓄積プロセスに大きな変動を与えることはなかった。はじき出し欠陥生成率のあいまいさが1%であれば、最終的なクラスター蓄積のあいまいさは完全に無視しうる。一方、カスケードクラスター生成率が欠陥クラスター蓄積に及ぼす影響は著しく大きいことも明らかになった。図6は、カスケードクラスター生成の効果を取り入れた場合と取り入れない場合の反応速度論解析結果(欠陥クラスター蓄積量の時間発達)を表している。カスケードクラスターの効果を取り入れると、欠陥クラスターの蓄積量が著しく増大する。カスケードクラスター生成率のゆらぎの効果も調べたが、カスケードクラスター生成率のゆらぎ(図5によると、ゆらぎは最大で10%)が最終的な欠陥クラスター蓄積に及ぼす影響は無視できなかつた。条件によっては、最終的なクラスター蓄積が40%も異なる結果が得られている。

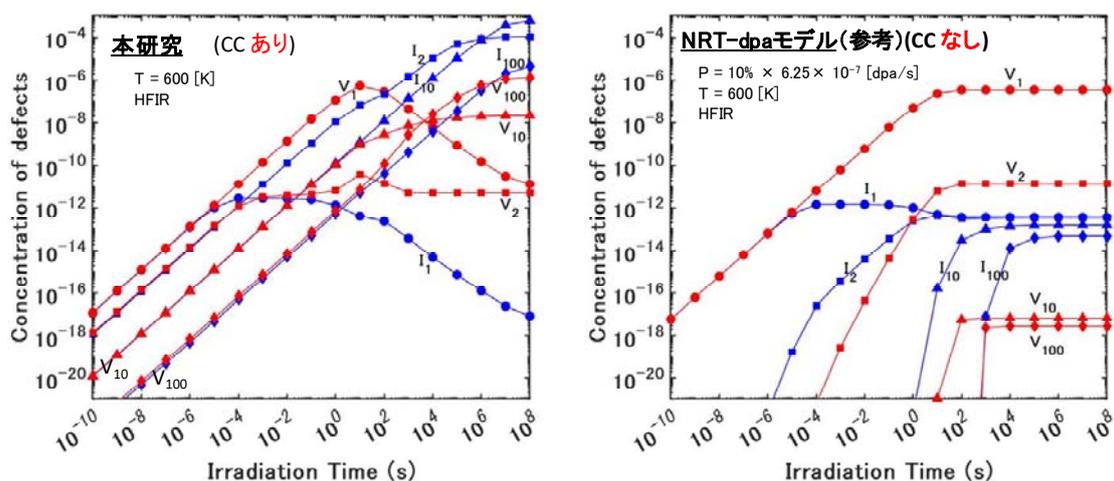


図6 欠陥蓄積過程の反応速度論解析 右図は従来のNRT-dpa/sによる評価であり、カスケードクラスター(CC)発生は無視している。左図は本研究の結果に基づいて欠陥生成率およびカスケードクラスター生成率の効果を取り込んだモデルである。欠陥クラスターの蓄積が著しく増大している。

2.3 機械学習を用いた照射脆化予測法の高度化

我国の商用軽水炉圧力容器の照射脆化を表す $\Delta DBTT$ の予測は、日本電気協会JEAC4201-2007に規定されている。炉運転開始当初に圧力容器内に装荷しておいた監視試験片の脆化量を定期的に測定し、事前の予測と相違ないことを確認する。しかし近年、高照射領域においてこの予測の計算値と実際の測定データの間に乖離が散見されるようになった。予測精度を上げるには、(1) 予測の外挿性を向上させるのに必要な脆化機構論の確立と、(2) 新知見を迅速に予測の改定版に反映させるための方法論の開発が必要になる。前者はマルチスケールモデリング技法、後者は最新AI技術の応用が期待される。

本研究では、材料モデリングと機械学習技法を組み合わせた予測法の構築を試みた。

JEACの予測式では、 $\Delta DBTT$ は、反応速度論式で計算されるマイクロ構造変化を示すパラメータ (C_{SC} , C_{MD}) を変数として、経験的に求めた関数： $\Delta DBTT = f(C_{SC}, C_{MD})$ を使って計算している。本研究では、このようなデータ間の相関を、現行JEACのように式を使って明示的に表現するのではなく、図7のように、機械学習の教師あり学習によって表現することにした。新たに実測データを取得するたびに機械学習のパラメータを更新することで、予測法の改定（更新性）を容易に行えるようにした。

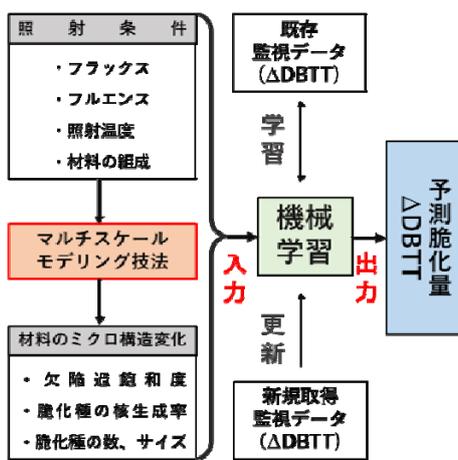


図7 機械学習を用いた照射脆化予測

機械学習においてデータ間の相関を高めるには、脆化現象を定量的に表現するのに最適な“特徴量”をパラメータ（入力データのひとつ）として使用する必要がある。ここでは前節2.2に述べたような反応速度論計算によって算出されるマイクロ構造パラメータ (C_{SC} , C_{Loop}) を、機械学習の教師データの入力値（特徴量）とした。そして、このマイクロ構造パラメータを機械学習に使わなかった場合（ケース①）と使った場合（ケース②）の比較を行い、機械学習技法を取り込むことの有用性を検証した。

ケース①および②で得られた $\Delta DBTT$ の機械学習予測値と、実測値および真値の関係を図8および図9に示す。横軸は $\Delta DBTT$ の実測値（左図）及び真値（右図）であり、また、縦軸は両図とも機械学習予測値である。図中に記載の σ 値は標準偏差、斜めの赤線（直線 $y = x$ のグラフ）はそれぞれ実測値と機械学習予測値、もしくは、真値と機械学習予測値が正確に一致する場合の線である。ケース①（マイクロ構造パラメータは入力データとして使わず、温度、フラックス、フルエンス、Cu濃度、Ni濃度の照射条件のみを入力データとした場合）については、高 $\Delta DBTT$ の領域においてデータ値が $y = x$ の線からずれており、すなわち予測がずれていることを示す。これは特徴量抽出がうまくできていないためと考えられる。一方、ケース②（マイクロ構造パラメータを含む）は全ての範囲にお

いて、概ね精度のよい予測ができていることがわかる。マイクロ構造変化を特徴量として入力データに加えることにより、機械学習におけるデータ相関の質が向上したと考えられる。

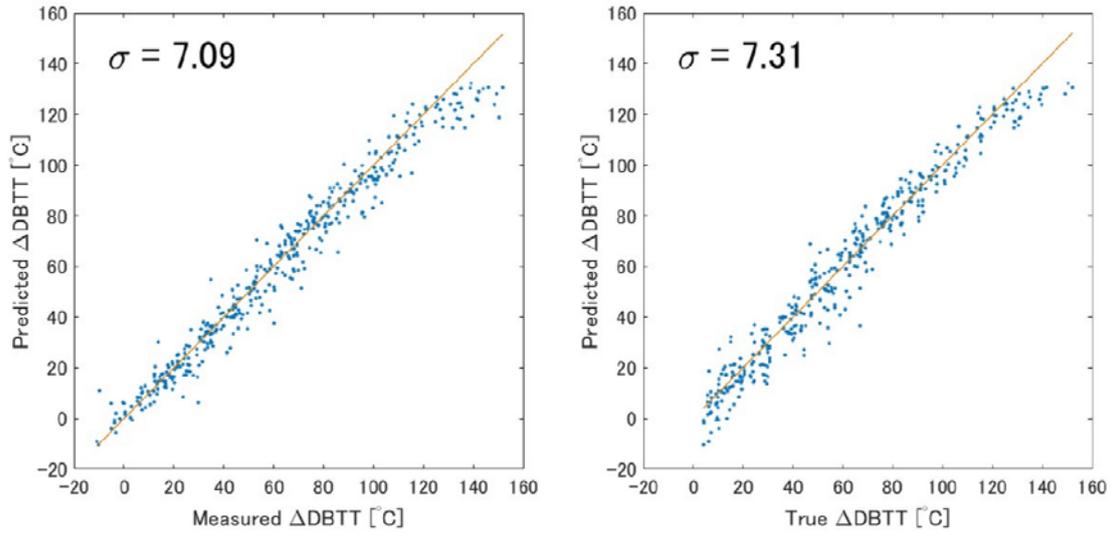


図8 ケース①の Δ DBTTの予測値と実測値（左）及び真値（右）の関係（内挿範囲）

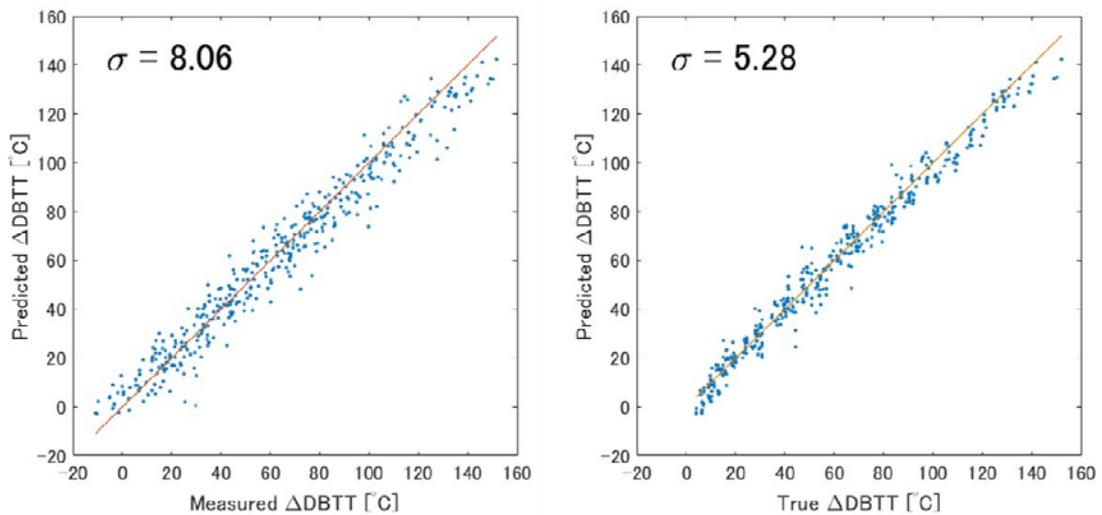


図9 ケース②の Δ DBTTの予測値と実測値（左）及び真値（右）の関係（内挿範囲）

3. まとめ

照射相関則の構築を目指した研究、特に、材料シミュレーション技法を用いた機構論研究と機械学習技法を用いた予測の研究の概略を紹介した。

NRT-dpaは、照射によって材料内に導入されるはじき出し欠陥濃度の評価値として解釈されるが、実は、数10 eV程度の“原子はじき出しのしきい現象”を、そのまま高いエネルギー領域まで外挿したものにすぎず、欠陥導入量の評価値としての精度はあまりよくない。分子動力学研究によると、実際の欠陥導入量はNRT-dpa値のおよそ0.2~0.3倍になる。

欠陥導入量評価値に補正を施すこのような試みは、すでに20年以上前から行われており、上述の0.2~0.3の値は損傷効率などとよばれてきた。最近では、arc-dpaという評価式も提案され、この数十年間の分子動力学研究の成果が反映されるようにはなってきたものの、一方で、いくら欠陥導入量を精度よく評価しても、それがそのまま“照射相関則パラメータ”としての役割を果たすわけではないことも事実である。照射劣化のdpa/s依存性なる学術課題はいまだに存在しており、ゆっくり照射するか短時間で照射するかで照射効果が異なるようであれば、加速係数のベースとなるdpaは照射相関パラメータとして利用できないことは自明である。

照射場の違い（dpa/sの違い）が照射効果の違いをもたらす要因のひとつに、PKAエネルギーの違いがある。dpa/sが同じ照射場であっても、PKAエネルギーの大きい照射場ではカスケードクラスターの生成率が高く、また、カスケードクラスターが生成するほどミクロ構造変化に与えるインパクトは大きいので、要するに、dpaで想定しているような全欠陥導入量よりはむしろ、カスケードクラスター生成量の方が照射相関パラメータに向いているのではないかとさえ思える。照射相関則構築の研究は道半ばである。

本報告では、照射相関則構築に機械学習技法を導入する試みについても紹介した。従来の照射相関研究は、材料照射効果メカニズムを明らかにすることで機構論をベースに脆化予測に迫ろうとする試みであるが、こうした方法論はいわゆるunknown-unknownsに有効ではない。いまだに明らかになっていない照射損傷現象が未経験の高照射領域において発現するかもしれない、存在すらわかっていない現象をモデル化することは原理的に不可能だからである。かと言って、脆化予測をすることは原子炉の構造健全性確認のための現実的な問題であるから、予測を放棄するわけにもいかない。機械学習技法やベイジック統計等のデータサイエンス技法を使った照射脆化予測の試み（もしくは、新たなデータや新知見を迅速に次の予測に取り込む試み）は、従来の機構論研究とともに、今後取り組むべき課題である。

本報告は、京都大学エネルギー科学研究科エネルギー変換科学専攻エネルギー機能変換材料分野の大学院生Yuting Chen氏、Liangfan Zhu氏、西川さくら氏、Yu Shi氏、さらに元院生の中筋俊樹氏（現 IIU）、Xiaoyong Ruan氏（現 福井大学）、山本泰功氏（現 JANUS）の博士論文研究、修士論文研究をもとに構成しています。日頃のみなさまの努力に深く

感謝いたします。

参考文献

- [1] Chen Yuting, 森下和功, “カスケード衝突による大体積クラスター生成のメカニズムに関する検討：分子動力学シミュレーション”, 日本原子力学会秋の大会要旨集, 講演番号[2A10], 名古屋大学東山キャンパス, 2023年9月7日
- [2] 祝 梁帆, 西川さくら, 陳 昱婷, 森下和功, “中性子照射下における Fe 内のミクロ構造発達に関する統計的評価”, 日本原子力学会秋の大会要旨集, 講演番号[2A11], 名古屋大学東山キャンパス, 2023年9月7日
- [3] 西川さくら, 祝 梁帆, 陳 昱婷, 森下和功, “機械学習を用いた照射脆化予測法の高度化”, 日本原子力学会秋の大会要旨集, 講演番号[2A18], 名古屋大学東山キャンパス, 2023年9月7日