

小特集 マルチスケールでのプラズマ・壁相互作用の理解の現状

5. マルチスケールシミュレーション

5.2 核融合材料のマルチスケールリングモデル

森下和功

京都大学エネルギー理工学研究所

(原稿受付：2008年4月2日)

ここでは、プラズマ・材料相互作用における材料側の挙動、特に材料のマイクロ組織発達に関して述べる。材料は本来、構造階層性をもち、しかも、多くの場合不均一であるが、そのような系の中で起こるマルチスケールな現象—照射プロセス—を解説し、それをモデル化するための方法論について議論する。

Keywords:

radiation damage, displacement cascade, helium damage

5.2.1 はじめに

核融合炉のダイバータや第一壁などで使われる材料は、外界のプラズマと粒子および熱のやりとりをする。そんなやりとりを通じて材料は変質し、また、その変化はプラズマの安定性に少なからずの影響を与える。核融合炉中のプラズマや材料の挙動をよく理解しようとするなら、プラズマおよび材料に関するそれぞれの理解だけでなく、両者のやりとり、すなわち、プラズマ・材料相互作用の理解が必要である。本来なら前節のプラズマモデリングと本節の内容をカップリングさせて議論すべきかもしれないが、現時点で、そのような理解はあまり進んでいない。そこで、ここでは、プラズマ・材料相互作用のうち材料側のモデリング研究について書く。プラズマ・材料相互作用に関する真のマルチスケールモデリング研究を今後進展させるための糸口になればと思う。次節では、材料照射損傷の概略を説明する。より詳しくは、4年前の講座記事[1]を参照された。

5.2.2 材料照射損傷プロセス

サブナノのスケールで材料を眺めると、空間上の決められた位置（格子点）に原子が規則正しく配列し、それ以外に原子は存在しない。このような配列が無限に繰り返されるのが完全結晶であり、核融合炉ダイバータやブランケット第一壁などで使われる結晶性材料の基本配列である。原子配列のしかたは、その材料の諸特性を支配する。このような結晶性の材料に、外界から高エネルギーの粒子が混入すると、材料内の局所的な領域（ $10^1 - 10^2$ nm）に高密度のエネルギーが付与される。DT核融合炉なら、混入する粒子はD, T, He, n等であり、そのときの入射粒子のエネルギーは $10^0 \sim 10^7$ eV程度である。

高エネルギー粒子の混入により、材料内の原子に1個あたり約30 eV以上の運動エネルギーが付与されると、その原子は正規の格子点からはずれ、格子配列は乱れる。室温における原子の振動エネルギーが $k_B T \approx 0.025$ eVであることを考えると、この30 eVというエネルギーは桁違いに高いことがわかる。格子位置からはずれ原子は“はじき出し原子”とよばれ、一方、後に残された格子点は空（カラ）になる。標的原子（格子原子）に付与されるエネルギーが十分に高いときは、ビリヤードのように、多数の原子間の衝突連鎖が起こる。この衝突連鎖のプロセスは、時間にして0.1 ps程度の極めてはやくい現象であり、「カスケード損傷の衝突過程」とよばれる（図1）。材料照射研究で使われる照射量単位DPAは、この衝突過程でののはじき出し原子数をもとに算出される。

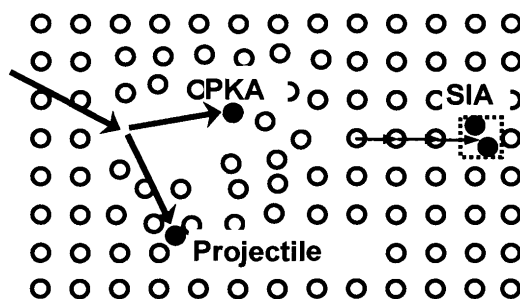


図1 カスケード損傷の模式図。照射材料内では、入射粒子(Projectile)と格子原子の衝突により、原子が正規の格子位置からはじき飛ばされる。この原子を一次はじき出し原子(PKA)とよぶ。衝突した入射粒子や一次はじき出し原子のエネルギーが十分に高いと、さらなる原子間衝突連鎖反応が起こる。これをはじき出しカスケードとよぶ。この結果、材料内には、多量の格子間原子(SIA)や原子空孔(Vacancy)が高密度に生成される。

衝突過程によって局所的に付与されるエネルギーは数 eV/atom 程度であり、これを単純に温度換算すると 1 万度にもなる。この付与されたエネルギーは熱として周囲に散逸するので、即座に雰囲気温度と同一になる。その間、たった 10 ps である。この急激な冷却のプロセスを「カスケード損傷の冷却過程」と呼ぶ。驚くべきことに、衝突過程の間に生成したはじき出し原子のうちの 8~9 割は、実にこのたった 10 ps の間に、空の格子点と結合して消滅する。しかしながら、それでも 1~2 割のはじき出し原子は格子間に残され、また、それと同数の格子点は空のまま残る。これらは、それぞれ格子間原子 (Self-Interstitial Atom; SIA) および原子空孔 (vacancy) とよばれる点欠陥である。このときの点欠陥濃度は、いわゆる熱平衡欠陥濃度よりもはるかに大きい。

点欠陥は、その種類や温度等の条件に応じて材料内を移動する。そのため、上述の原子のはじき出しの影響は、材料の局所領域に留まることなく、拡散というメカニズムによって、時間をかけながら徐々に、材料全体に拡がることになる。拡散の途中で、原子空孔と格子間原子が出会うと再結合して消滅する。また、原子空孔どおしとか格子間原子どおしのように、同種の点欠陥が出会うと、結合して欠陥集合体を形成する。このとき生成した欠陥集合体の熱的安定性によっては、集合体から点欠陥が解離するプロセスも加わる。

こうした拡散・集合化・解離のプロセスが材料内で繰り返されると、「格子配列の乱れ」は、より高次元な構造をもつようになる。例えば、原子空孔が多数集合すればポイド(空洞)とよばれる 3 次元欠陥になり、格子間原子が多数集合すれば転位ループと呼ばれる 2 次元欠陥になる。また、移動する欠陥が、材料内の特定の元素と選択的に相互作用することがあれば、結果として、たとえば固溶していた溶質原子が析出したり偏析したりすることになる。このような拡散・集合化・解離のプロセスは、すべて熱活性化過程である。

可動な欠陥は時間をかければかけるほど遠くまで拡散する。拡散係数を D とすれば、時間 t だけ経過後の拡散距離は、およそ \sqrt{Dt} 程度になる。カスケード損傷によって生成する欠陥は、もともと $10^1 - 10^2$ nm 程度の領域に局在化しているから、同一のカスケードから生成した欠陥どうしの反応と、異なるカスケードにより生成した欠陥どうしの反応は、それぞれ異なる時定数になる。なぜなら、相互作用するまでに必要な拡散距離や時間が、それぞれの反応の間で桁違いに異なるからである。前者が 1 ns 程度以下であるのに対し、後者は 1 μ s 以上にもなる。そこで、これらのプロセスを区別し、それぞれ「カスケード損傷の熱的過程」および「拡散過程」と呼ぶ。

以上が照射損傷過程の簡単な描像である。要は、高エネルギー粒子の入射により、格子欠陥が材料内に過剰に導入され、それらが拡散・集合化・解離・消滅反応を起こす結果、材料のミクロ構造やミクロ組成が変化するのである。

5.2.3 照射損傷プロセスのマルチスケールモデリング

上述の照射損傷プロセスの特徴は、時間的にも空間的にも、そしてエネルギー的にもマルチスケールな現象であるという点である。また、主として、エネルギー的なマルチスケール性ゆえに、照射損傷プロセスはマルチフィジックスな現象であるとも言われ、「衝突過程」「冷却過程」「熱的過程」「拡散過程」などに分類される[2-5]。このような多様な物理プロセスを含む現象を評価するためには、複数の手法を相補的に活用する必要がある[1]。

図 2 は、照射損傷プロセスに関する時間・空間スケールの広がりを表したものである(注 1)。図の左下から右上への流れが照射損傷プロセスであり、その流れに沿うように、下から Ab-initio (第一原理計算), MD (分子動力学法), KMC (キネティックモンテカルロ法), 反応速度式などの各計算機シミュレーション手法の領域が存在する。大雑把な言い方をすれば、マルチスケールモデリングというのは、それぞれの手法で使われるパラメータを受け渡し (parameter passing) ながら、図 2 の左下から右上までを連結させ、現象の全体像を明らかにすることである。ここで、パラメータパッシングが左下から右上に進むにしたがい、各手法で使われる系の自由度が次第に小さくなっていることに注意されたい。すなわち、イオン・電子系を解析対象とする Ab-initio 法から、電子の振る舞いに関する詳細情報を捨て、イオンの振る舞いに関する情報のみを原子間ポテンシャルとして定式化し、それを MD 法に受け渡す。次に、イオンのみの系を解析対象とする MD 法から、格子原子の振る舞いに関する詳細情報を捨て、格子欠陥に関する情報のみを抜き出し、それを KMC (キネティックモンテカルロ) 法に受け渡す。そして、KMC 法から欠陥の位置に関する詳細情報を捨て、欠陥の濃度に関する情報を反応速度式に受け渡す、といった具合である。このように Ab-initio \rightarrow MD \rightarrow KMC \rightarrow 反応速度式と進むに従い、系の自由度は次第に小さくなるものの、代わりに取扱い可能な系の大きさや時間は、飛躍的に増大させることができる。これがマルチスケールモデリングの基本原則である。ただし、どのようなパラメータをどの程度、そして、どのタイミングで次の手法に受け渡すかについては、不明な部分も多い。なぜなら、一般に、照射損傷は非平衡プロセスであるので、系が熱平衡状態のときにのみ成り立つミクロ・マクロ間の関係式 (たとえば、イオン速度の分布から、その系の温度を求める式など) は必ずしも成り立たず、何を受け渡しに使うべきか明らかでないからである。言い換えれば、照射損傷プロセスのマルチスケールモデリングとは、非平衡系において成り立つミクロ・マクロ間の関係式を探し出す行為なのかもしれない。

図 2 の時空間スケールダイアグラムには、材料照射研究で使われる種々の実験手法についても示されている。大雑把に言えば、実験手法は、空間スケールに関しては広がっ

注 1 図 2 は、文献[1-3]の著者のほか、核融合研加藤太治先生、北大坂口紀史先生、PNNL H.L. Heinisch 博士の協力、および、<http://www.naka.jaea.go.jp/ITER/official-J/index.htm> により作成した。ここに深く謝意を表する。

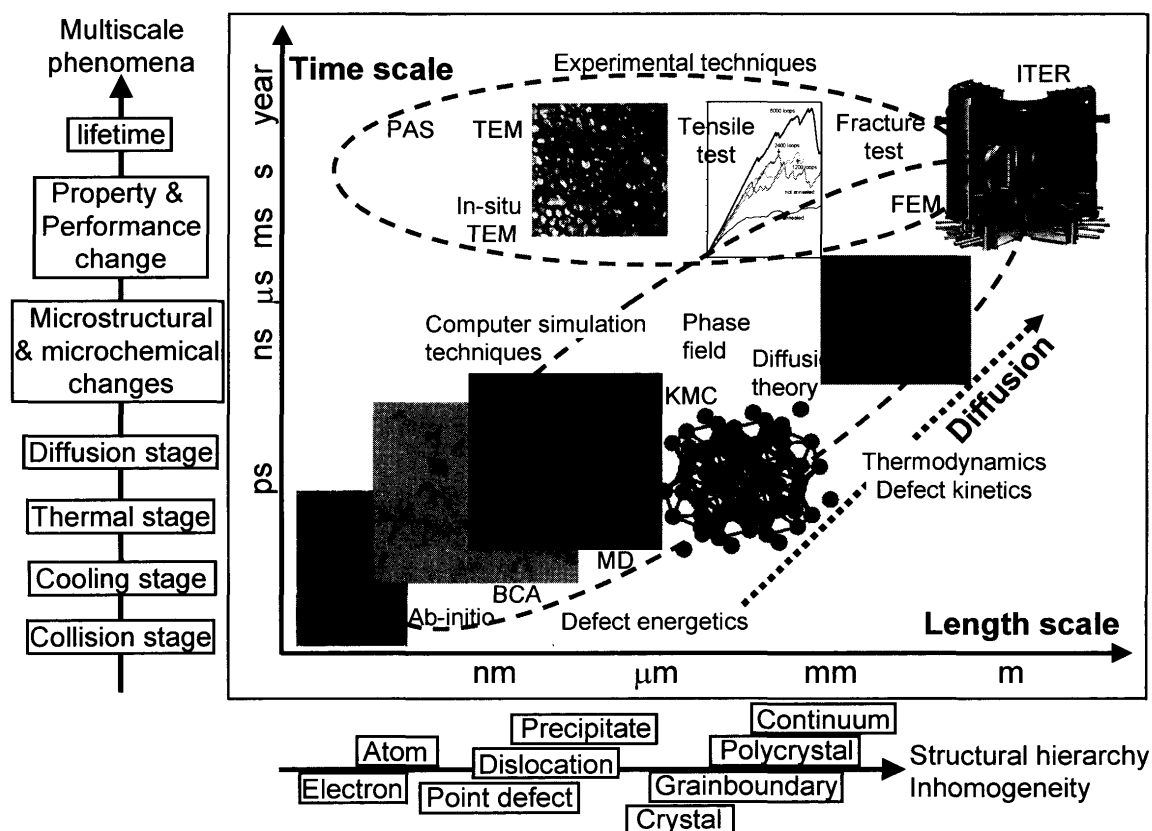


図2 照射材料分野で使われる各評価法が対象とする時間・空間スケールの分布。Ab-initio(第一原理量子計算)、BCA(二体衝突近似法)、MD(古典的分子動力学法)、KMC(キネティックモンテカルロ法)、DD(転位動力学法)、FEM(有限要素法)等の計算機シミュレーション手法と、PAS(陽電子消滅法)、TEM(透過型電子顕微鏡)、Tensile test(引張試験)、Fracture test(破壊試験)等の実験的評価手法が対象とする時間・空間スケールはそれぞれ異なる。照射損傷プロセスの時間・空間スケールは、左下から右上に向かって進む。

ているものの、時間スケールに関しては、特に短時間スケールにおける評価に空白があることがわかる。すなわち、たとえば0.1 psの衝突過程を直接実験的に観測する術がないのである。このように、計算手法および実験手法のそれぞれが得意とする時間・空間スケール領域は明確に分かれているので、その点をしっかりと認識することは、照射損傷プロセスを研究する上で重要である。

ここで、図2を見る際の注意点を述べる。それは、この図が単にひとつの現象を現象本位で追跡しているにすぎない、ということである。照射下にある材料を材料本位で眺めると、あちらこちらで0.1 psの衝突過程が起こり、また、同時に、あちらこちらで10 psの冷却過程が起こっている。さらにまた、別の場所では、やはり同時に、熱的過程や拡散過程が起こっているのである。この点の認識に誤りがあると、図2の左下から右上へ、順繰りに解析を行うだけで、自ずと現象の全体像が明らかになると誤解してしまう。もちろん、そんなに単純な話ではない。あくまで図2は象徴的な意味合いでしかないことを理解すべきである。

材料内の任意の場所における原子はじき出しプロセスの発生頻度やその規模は、外界(プラズマ側)から飛び込んでくる入射粒子のフラックスやそのエネルギーと深く関係する。一方、そのような入射粒子の状態を支配するプラズマの状態は、材料挙動(例えば、照射による材料表面のプリスタ形成と剥離、および、その剥離物のプラズマへの混

入など)にも深く依存する。こうして、材料にとっても、プラズマにとっても、互いを単に“外界”とよんだり、境界条件を適当に与えたりするだけではすまされない事情が明確に存在することになる。一方の挙動を知らなければ、他方を知ることもできないのである。したがって、5.2.1節にも書いたように、プラズマ・材料相互作用研究の今後は、材料およびプラズマの両方の挙動をいかにカップリングさせながら全体を読み解いていくか、ということになるだろう。もちろん、両者それぞれのマルチスケール性が重要なのは言うまでもない。

5.2.4 材料の構造階層性と不均一性

照射損傷モデリングを考えると、現象のマルチスケール性だけでなく、材料が本来もっている構造階層性も重要になる。すなわち、どんな材料も、サブナノのスケールで見ると原子であり、マクロスケールで見ると連続体である。また、たとえば純鉄も実用鋼も、ナノスケールで見ると体心立方晶の鉄であるが、ナノからマクロへ徐々にスケールアップしていく途中の段階ではじめて、材料内にある先在欠陥(転位、粒界、析出相など)の有無が見え出し、また、材料の不均一性の違いが両者間で顕在化しはじめる。すなわち、かなり大雑把な言い方をすれば、純鉄と実用鋼の違いは、ある空間スケール以上でしか見えないことになる。

この性質を利用すると、たとえば、核反応で決まる材料の放射化特性とか、微小欠陥のエネルギー論とか、ナノ領域に限定される原子はじき出しプロセスなどの性質については、たとえ実用鋼におけるそれらの性質が知りたい場合であっても、実用鋼そのものの代わりに、純鉄や2元系モデル合金など、単純な系を使って求めることができることになる。言い換えれば、このような性質に対しては、実用鋼を母相、転位、粒界、析出相などの各要素に分離した上で、単純系を使うなどして、各要素を個別にモデル化(要素還元論的なアプローチ)することが可能である。一方、点欠陥の長距離拡散のように、ナノ領域に留まらない現象が絡んでくる性質(例えば、高温での欠陥集合体形成など)については、当然のことながら、それらは材料の不均一性の違いに大きく影響される性質なので、たとえば純鉄と実用鋼の違いは明確に区別しておく必要がある。このような場合、上述の要素還元論的アプローチは不适当であり、複雑な系を複雑なままとらえて理解する必要がある。

5.2.5 He 損傷のマルチスケールモデリング

ここでは、He 照射が引き起こす材料ミクロ構造変化に関するモデリング研究を紹介する。一般に He は金属材料中にほとんど固溶しないので、照射の影響によって材料内に入り込んだ He は析出し、He バブル(気泡)とよばれる

He ガス風船を材料内に形成させる。これは、He 原子と原子空孔の複合的な集合体であるが、このような欠陥の形成は、実用上問題とされるスエリング現象(照射によって構造物の体積が膨張する現象)の要因とされている。

He バブルのような欠陥集合体の核生成・成長プロセスは、材料内の点欠陥濃度(He や原子空孔など)や温度に依存する。核生成に要する時間(潜伏時間)は、通常、第一原理 MD や古典 MD では追跡不可能なくらい長い。時間スケールで言えば、核生成は、KMC 法や反応速度解析がカバーする領域なので、従来から、このプロセスの解析には、反応速度式による方法が主流であった。しかしながら、MD 法とは異なり、KMC 法や反応速度解析は、すでに明らかになっている反応(known events)に関する微分方程式を積分する方法である。そのため、当然のことながら、明らかでない反応は考慮のしようがない。それでも、He バブルが形成することは実験事実として認められるので、何らかのメカニズムによって核が生成されたことだけは確かである。そこで、従来の研究においては、そのメカニズムがわからないままであっても、また、本来、核というのは材料の状態や温度などの因子に応じて定義を変えるべき性質であるにもかかわらず、そのあたりの事情を無視し、何らかの仮定(例えば「He が 4 個、空孔が 3 個集まった集合体(He₄V₃)を核とする」というような)をアприオリに導入

He-bubble migration & microstructural evolution

MD + KMC + Rate Equation = AFM + TEM?

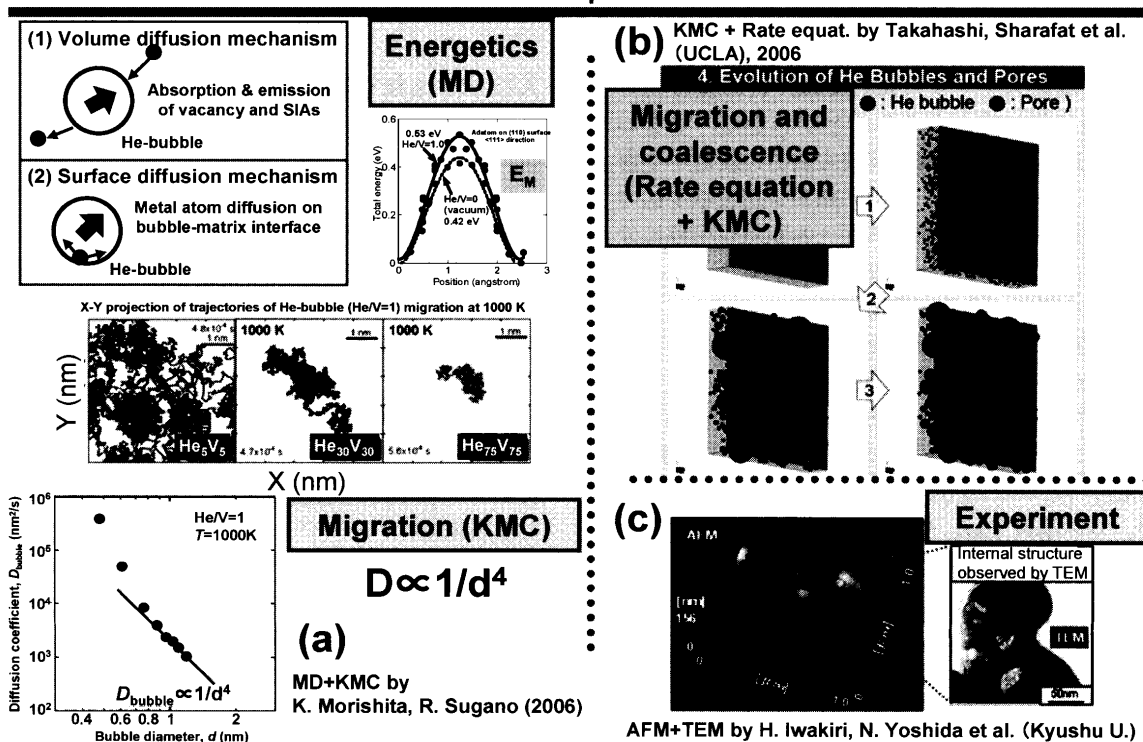


図3 He 照射による材料ミクロ構造変化のマルチスケールモデリング。数多くの点欠陥(原子空孔, 格子間原子, He 原子)の移動および集合化・解離反応により, He バブルは核生成・成長する。また, そのような点欠陥の関与により, He バブル自体も移動・合体し, さらなる成長へとつながる。このような現象は, 点欠陥の挙動を追跡する MD 法, KMC 法, および, 反応速度論解析, そして, He バブルそのものの挙動を追跡する KMC 法などの組み合わせによりモデル化することが可能になる。こうした計算手法の組み合わせ(MD+KMC+Rate theory)によってはじめて, 実験的に得られる表面形状(AFM 観察)やミクロ組織(TEM 観察)を再現することが可能になる。

することでモデル化されてきた。

核生成メカニズムの要因をより“自由度の高い（情報量の多い）”ミクロ・ナノの世界に求め、すなわち、第一原理計算で求めた原子間ポテンシャルを使ってMD解析を行い、それをもとにHeバブルの形成エネルギーを求め、さらに、それをもとにKMC計算を行うと、アприオリな仮定を導入することなく、Heバブルの核生成・成長挙動（潜伏期間、成長速度、核生成パス）を表すことができる[6]。こうして求めたHeバブル（キャビティ）の核生成メカニズムは、実は、長年別々に考えられてきた第一壁材料中のHeキャビティ形成メカニズムとダイバータ材料中のHeバブル形成メカニズムの両方を内包するものであった。すなわち、He濃度が比較的少ない場合のHeキャビティの成長は、第一壁材料の研究者には有名なMansurのキャビティ成長理論で記述されてきた。一方、He濃度が比較的高いダイバータ材料の研究者は、WolferやTrinkaららのループパンチングモデルを用いながら、Heバブルの成長を議論してきた。前者は、原子空孔をいかに吸ってバブルが成長するか、その際、Heはどのような影響を与えるかというものであるのに対し、後者は、バブルがいかにバブル界面の原子を格子間原子（またはループ）として吐き出すことによって自らが成長するか、というものである。詳細は[6]にゆずるが、両メカニズムの根源は、ともに、Heバブルに対する点欠陥（可動欠陥）の結合エネルギーであり、両者の違いは、バブル内のHe圧力に応じて、バブルから原子空孔が取れやすいのか、あるいは、バブル界面の原子が取れやすいのか、という違いでしかない。

Heバブルは、点欠陥を吸収・放出しながら成長・収縮する。また同時に、バブル界面の原子の移動も起こる（表面拡散）。これらの現象は、いずれもバブルの重心を動かすことにつながるため、結果的に、バブルそのものが移動することになる（バブルのブラウン運動）。バブルの拡散は、原子空孔の拡散と同様、拡散係数で記述される。すなわち、点欠陥の吸収・放出、界面原子の表面拡散など、非常に多くの原子もしくは欠陥の運動（非常に多くの自由度）が関与しているはずのバブルの拡散であっても、結局、拡散係数とよばれるたったひとつのパラメータ（ひとつの自由度）により記述されることになる。スケールアップによって自由度を減らすということは、こういうことである。こうして求められたバブルの拡散係数は、バブル径の4乗に反比例し[7]、従来の理論式に一致する（図3(a)）。

こうして、バブル移動に関する自由度を下げることで

できれば、解析対象となるバブルの個数を1個から複数個に増やすことも可能になる。図3(b)は、バブルの拡散係数がバブル径の4乗に反比例するとし、また、バブルどおしが接触するとそれらは合体吸収すると仮定したときのKMC計算である[8]。材料のミクロ構造は、照射によって、かなりポーラスな構造に変化している様子がわかる。こうして求められた計算結果は、He照射された材料の電子顕微鏡観察（SPMおよびTEM）で現れる構造（図3(c)）[9]によく似ている。

5.2.6 まとめ

材料照射損傷プロセスとそのモデリングの方法論を述べ、さらに、He損傷に関するモデリング研究の例を紹介した。今後は、プラズマ挙動のマルチスケール性を意識しながら、それに対応する材料応答のモデル化を検討していきたい。

参考文献

- [1] 関村直人, 森下和功, 蔵元英一, 曾根田直樹, 沖田泰良, 平谷正人: J. Plasma Fusion Res. **80**, 228 (2004); **80**, 318 (2004); **80**, 492 (2004).
- [2] 桐谷道雄: 62年度文部省科研費成果報告書「D-T中性子による放射線損傷過程シミュレーション」研究会報告書 p.97, 1988年3月; M. Kiritani, Rep. Japan-US Workshop, Radiation Damage: Theory and Calculation, 167 (1989); J. Nucl. Mater. **216**, 220 (1994).
- [3] 石野栞, 岩田修一, 関村直人: エネルギーレビュー **13**, 20 (1993); 石野栞, 照射効果(第8章), イオンビーム工学 イオン・固体相互作用編(藤本文範, 小牧研一郎共編), (内田老鶴圃, 1995) p. 307; S. Ishino, J. Nucl. Mater. **206**, 139 (1993).
- [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] K. Morishita, N. Sekimura and T. Diaz de la Rubia, J. Nucl. Mater. **248**, 400 (1997).
- [6] K. Morishita, Philos. Mag. **87**, 1139 (2007); 森下和功: 金属 **77**, 412 (2007).
- [7] K. Morishita and R. Sugano, Nucl. Instrum. Methods. B **255**, 52 (2007).
- [8] A. Takahashi, S. Sharafat, N. Ghoniem *et al.*, Proc. ANS 17th Topical Meeting on the Technology of Fusion Energy (TOFE2006), November 13-16, 2006, Albuquerque, New Mexico, USA.
- [9] 吉田直亮: J. Plasma Fusion Res. **83**, 1003 (2007); 岩切宏友: 私信.