

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月26日現在

機関番号：63902

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2018

課題番号：15K18309

研究課題名(和文)照射欠陥材料の水素同位体吸蔵・放出特性に関するプラズマ照射エネルギー依存性研究

研究課題名(英文) Dependence of Plasma irradiation energy on hydrogen isotope retention and release characteristics in damaged materials

研究代表者

矢嶋 美幸 (Yajima, Miyuki)

核融合科学研究所・ヘリカル研究部・助教

研究者番号：70749085

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：核融合炉環境下では中性子照射によりプラズマ対向壁材料中に欠陥が形成し、その欠陥が水素同位体を強く捕獲する可能性がある。そのような環境における水素同位体輸送を理解するため、本研究では、昇温脱離ガス分析装置付き小型ダイバータ模擬プラズマ曝露試験装置(CDPS)を用いて、中性子照射タングステン(プラズマ対向壁の有力候補材料)中の重水素保持量のプラズマ曝露時間変化と昇温脱離特性を調べた。その結果、中性子照射試料に保持されていた重水素の総量は、プラズマ曝露時間の平方根に比例することが分かった。この結果から、中性子照射試料中の重水素の総量は重水素の拡散深さによって決定されることが明らかとなった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

核融合炉の実現において、中性子照射がタングステンの水素吸蔵特性に与える影響に関する系統的な実験研究は急務な課題の一つである。そのような背景の中、本研究により損傷材料中の水素同位体拡散モデルを実験的に明らかにしたことは非常に大きな成果である。また、中性子照射試料に対する重水素プラズマ曝露実験は国内初の試みであり、酸化膜の影響(試料の前処理として電解研磨を実施)やプラズマ曝露後大気開放の影響を排除することで、より核融合炉内環境に近い条件で実験を実施したという点では世界初の成果である。得られた知見は、将来の原型炉の設計および炉内トリチウム管理において、大きな貢献となると期待される。

研究成果の概要(英文)：The objective of this study is to investigate the effects of neutron (n) irradiation on hydrogen isotope transport in tungsten (W). W samples were irradiated with neutrons in a fission reactor and then exposed to high flux deuterium (D) plasma at 563 K and 773 K in a linear plasma device. The fraction of D released in a high temperature region increased with increasing exposure time. In addition, the D retention in n-irradiated W increased in proportion to the square root of the plasma exposure time. These observations were explained by increase in the penetration depth of D with filling up displacement damages acting as strong trapping sites.

研究分野：核融合学

キーワード：タングステン 重水素プラズマ 水素同位体 照射損傷 中性子照射 昇温脱離ガス分析 プラズマ・核融合

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

核融合炉の実現において、核融合燃料でありかつ放射性物質であるトリチウムの炉内保持量の正確な把握と制御は、経済性および安全性の観点から必要不可欠である。核融合装置のプラズマ対向壁材料としては、水素同位体との化学反応が無く、高い融点を持つタンゲステン(W)の使用が検討されており、Wと水素同位体の相互作用は非常に重要な研究課題として位置づけられている。通常的环境下ではトリチウム保持量が少ないWであるが、核融合反応により生成された中性子や高エネルギーイオンに曝されると、材料内部に照射欠陥が形成され、この欠陥に多量のトリチウムが捕獲・保持されてしまう可能性がある。実際に、富山大学の波多野らが行った日米共同研究(TITAN計画)によって、中性子照射Wに対する重水素プラズマ曝露により、導入された照射欠陥が水素同位体の捕獲サイトとなり、水素同位体の保持量を増加させることが示された[]。よって、中性子照射がWの水素吸蔵特性に与える影響に関する系統的な実験研究が急務となっている。

2. 研究の目的

本研究では、既存の中性子照射材料に対して、東北大学金属材料研究所附属量子エネルギー材料科学国際研究センターの放射線管理区域に設置されている昇温脱離ガス(TDS)分析装置付き小型ダイバータ模擬プラズマ曝露試験装置(Compact Divertor Plasma Simulator、CDPS [])を用いることで、大気開放することなく水素同位体の吸蔵・放出特性に対する中性子照射効果について明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

本研究は下記の2段階によって実施することを計画した。

(1) 中性子を照射していない試料(以下、未照射試料)を用いた、重水素プラズマ曝露条件導出実験

(2) 中性子照射材料を用いた重水素プラズマ曝露実験

具体的な研究手法については、以下に記載する。

試料は円盤状W試料(Φ6 mm、A.L.M.T.社製、厚み0.5 mm)を用いて実験を行った。試料の両面研磨を実施した後、内部応力を除去するため、真空中(10^{-6} Pa)で900、30 minの加熱を行った。この試料を未照射試料とする。一方中性子照射試料は、BR2(ベルギー国原子力研究所所有)にて照射温度290で損傷量0.06 dpaまで照射した試料を用いた。中性子照射試料に対しては、表面の汚れ・酸化膜を除去するために、下記実験を行う前に電解研磨を実施した。

重水素プラズマ曝露はCDPSを用いて行った。曝露条件は粒子束 $5.4 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、入射イオンエネルギー100 eV、目標温度290であった。未照射試料は100 min、中性子照射試料は25 min、100 min、400 minのプラズマ曝露を行った。プラズマ曝露後直ぐに空冷量を最大値にして真空中(10^{-5} Pa)で試料を60 min冷却した後、試料を大気に曝露することなく赤外線加熱炉に搬送しTDS計測を行った。プラズマ曝露後からTDS分析までの時間はどの試料も90 minとした。試料の昇温条件は室温から1200まで、昇温速度は 0.5 s^{-1} で昇温脱離ガス分析を行った。

4. 研究成果

図1にプラズマ曝露中の試料温度の経時変化を示す。プラズマ(イオン)曝露開始前に低密度プラズマを生成し、試料を正にバイアスすることで、イオンの流入なしで試料温度を目標値まで加熱した(電子加熱)。そして試料温度が目標値まで到達後、直ぐに高密度プラズマに切り替えると同時に試料を負にバイアスし、プラズマ曝露を開始した。プラズマ曝露中に適宜空冷流量を適宜変化させ、試料温度を制御した。その結果、今回のプラズマ曝露条件では目標温度290に対して ± 5 以内で制御可能となった。

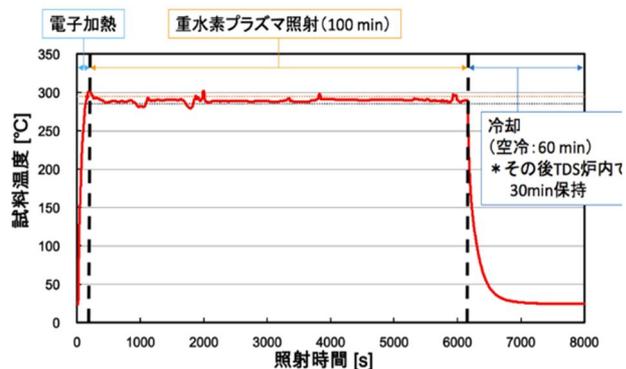


図1) 試料温度の経時変化。

図2に中性子照射試料(n-irr. W (XXX min)、XXXは各試料のプラズマ曝露時間を示す)と未照射試料(W)から放出された重水素の脱離スペクトルをそれぞれ示す。未照射試料に比べて、中性子照射試料では高温側に至る幅広いピークおよび、著しい重水素吸蔵量の増加が観測された。中性子照射試料に保持されてい

た重水素の総量は、プラズマ曝露時間の平方根に比例することが分かった(図3)。

この結果は、中性子照射試料中の重水素の総量は重水素の拡散深さによって決定されることを示している。中性子照射試料中の重水素の深さ方向分布についてはまだ本実験では得られていないが、仮に1)濃度(約0.2 at.% = $1.3 \times 10^{26} \text{ Dm}^{-3}$ [])で重水素が均一に分布、2)プラズマ曝露面からある深さまでの捕獲サイトが重水素で飽和され、それより深い領域には重水素は存在しない、3)プラズマ曝露面から重水素が捕獲されている最も深い領域までの距離を平均拡散距離と仮定すると、本実験における中性子照射試料中での重水素の拡散係数は $5.0 \times 10^{-14} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ と導出される。一方、WertとZener[]による同位体効果を考慮した上でFrauenfelder[]によって報告されている未照射W中の重水素拡散係数を導出すると、290では $9.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ となる。本実験により得られた重水素の拡散係数 ($5.0 \times 10^{-14} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) が文献から導出した理論値 ($9.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$) よりも小さくなったのは、照射欠陥による捕獲効果が反映されたものと推察される。

以上のように、管理区域に設置された昇温脱離ガス分析装置付き小型ダイバータプラズマ模擬試験装置を用いて、中性子照射タングステンへの重水素プラズマ曝露実験を実施した。本研究により損傷材料中の水素同位体拡散モデルを実験的に明らかにしたことは非常に大きな成果である。また、中性子照射試料に対する重水素プラズマ曝露実験は国内初の試みであり、1)酸化膜の影響を排除し、2)プラズマ曝露後大気開放することなく水素同位体の吸蔵・放出特性研究を実施したことは、核融合炉内環境模擬という点で、世界初の成果となる。本研究を通して得られた知見は、将来の原型炉の設計や炉内トリチウム管理に大きく貢献しうると考える。

<引用文献>

- Y. Hatano *et al.*, J. Nucl. Mater. **438** (2013) S114-S119.
 N. Ohno *et al.*, PFR **4** (2017) 1405040.
 Y. Hatano *et al.*, Nucl. Fusion **53** (2013) 073006.
 C. Wert and C. Zener, Phys. Rev. **76** (1949) 1169.
 R. Frauenfelder, J. Vac. Sci. Technol. **6** (1969) 388-397.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 1 件)

- N. Ohno, T. Kuwabara, M. Takagi, R. Nishimura, M. Yajima, A. Sagara, T. Toyama, K. Suzuki, H. Kurishita, T. Shikama, Y. Hatano, N. Yoshida, "Development of a Compact Divertor Plasma Simulator for Plasma-Wall Interaction Studies on Neutron-Irradiated Materials", Plasma and Fusion Research: Regular Articles, 査読有り, 12巻, 2017, pp. 1405040.
 DOI: <https://doi.org/10.1585/pfr.12.1405040>

[学会発表](計 10 件)

- 大野哲靖、足立博昭、乗原竜弥、高木誠、矢嶋美幸、波多野雄治、外山 健、鈴木克弥、"プラズマ・中性子照射材相互作用研究のための小型高密度プラズマ発生装置の高性能化"、第12回核融合エネルギー連合講演会、2018年6月28日-29日、ピアザ淡海(滋賀県立県民交流センター)、滋賀県、日本、ポスター 28P-54。
 大宅諒、Lee Heun Tae、中村揚、伊東英貴、乗原竜弥、矢嶋美幸、外山健、鈴木克弥、高木誠、大野哲靖、上田良夫、波多野雄治、"プラズマ・中性子照射材相互作用研

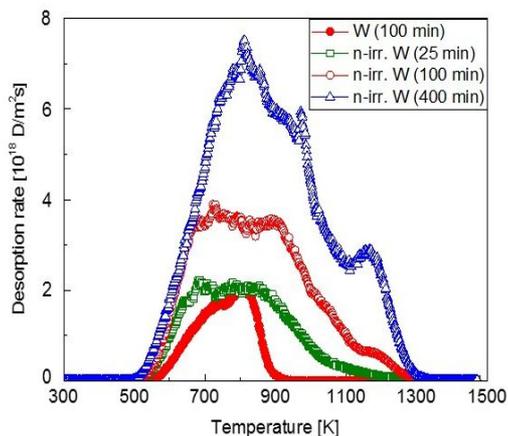


図2) 各試料からの重水素脱離スペクトル。

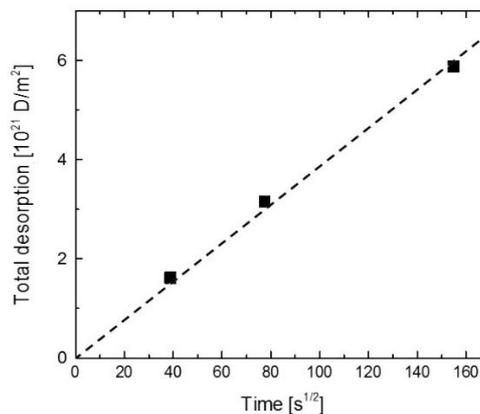


図3) 中性子照射試料中の重水素総保持量とプラズマ曝露時間の関係。

究のための小型高密度プラズマ発生装置の高性能化”、第12回核融合エネルギー連合講演会、2018年6月28日-29日、ピアザ淡海(滋賀県立県民交流センター)、滋賀県、日本、ポスター 28P-51.

M. Yajima, Y. Hatano, N. Ohno, T. Kuwabara, T. Toyama, K. Suzuki, M. Takagi, “Kinetics of Deuterium Penetration into Neutron-irradiated Tungsten”, 23rd International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, June, 17-22, 2018, Princeton, USA, poster 417.

M. Oya, H.T. Lee, T. Yamane, A. Nakamura, H. Ito, T. Kuwabara, M. Yajima, T. Toyama, K. Suzuki, M. Takagi, N. Ohno, Y. Ueda, Y. Hatano, “Deuterium retention in neutron irradiated tungsten-rhenium alloy and potassium-doped tungsten”, 23rd International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices, June, 17-22, 2018, Princeton, USA, poster 400.

波多野雄治、大矢恭久、外山 健、矢嶋美幸、桑原竜弥、大野哲靖、“中性子照射を受けたタングステン中の水素同位体挙動研究の進展”、Plasma Conference 2017、2017年11月20日-24日、姫路商工会議所、兵庫県、日本、口頭発表(招待講演) 22Ga-01.

M. Yajima, N. Ohno, T. Kuwabara, T. Toyama, Y. Hatano, S. Masuzaki, M. Tokitani, Y. Oya, S. Kondo, T. Hinoki, “Study of Deuterium Retention Property of Heavy Ions Beam Irradiated Tungsten Using Compact Divertor Plasma Simulator for Hot Laboratory”, The 8th International Symposium of Advanced Energy Science - Frontiers of Zero Emission Energy, Sept., 5-7, 2017, Kyoto Univ., Kyoto, Japan, poster ZE29C-9.

M. Yajima, Y. Hatano, T. Kuwabara, T. Toyama, K. Suzuki, M. Takagi, H. Adachi, N. Ohno, “Plasma Exposure Time Dependence of Deuterium Retention in Neutron-irradiated Tungsten”, 16th International Conference on Plasma-Facing Materials and Components, May, 16-19, 2017, Dusseldorf, Germany, poster P2-29.

M. YAJIMA, S. Masuzaki, N. Ohno, M. Tokitani, Y. Hatano, Y. Oya, S. Kondo, T. Hinoki, “Study of Deuterium Retention Property of Heavy Ions Beam Irradiated Tungsten Using Compact Divertor Plasma Simulator for Hot Laboratory”, The 7th International Symposium of Advanced Energy Science - Frontiers of Zero Emission Energy, Sept., 5-6, 2016, Kyoto Univ., Kyoto, Japan, poster ZE28C-8.

大野哲靖、西村凌、桑原竜弥、高木誠、矢嶋美幸、中村涼介、梶田信、相良明男、時谷政行、栗下裕明、四竈樹男、外山健、吉田直亮、“放射線管理区域内で運用可能な小型ダイバータプラズマ模擬装置の開発と性能試験”、第32回プラズマ・核融合学会年会、2015年11月24日-27日、名古屋大学東山キャンパス、愛知県、日本、ポスター 25aB02.

西村凌、桑原竜弥、矢嶋美幸、大野哲靖、高木誠、中村涼介、梶田信、相良明男、時谷政行、栗下裕明、四竈樹男、外山健、吉田直亮、“放射線管理区域内での小型高密度プラズマ照射装置の開発とタングステン材への適用”、平成27年電気学会基礎・材料・共通部門大会、2015年9月17日-18日、金沢大学、石川県、日本、ポスター.

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。