

## 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：18001

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2009 ～ 2011

課題番号：21760692

研究課題名（和文） プラズマ対向材料中に存在し得る各種格子欠陥における水素同位体捕獲機構の解明

研究課題名（英文） Behavior of hydrogen isotope retention in lattice defects of Plasma Facing Materials

研究代表者

岩切 宏友（IWAKIRI HIROTOMO）

琉球大学・教育学部・准教授

研究者番号：80325480

研究成果の概要（和文）：鉄中のヘリウムバブルに関する分子動力学法を用いたシミュレーション計算を行った。その結果、照射中の結晶擾乱過程がヘリウムバブルのサイズ成長に影響を与えていること等を明らかにした。また、ベリリウム金属間化合物である  $\text{Be}_{12}\text{Ti}$  における水素の固溶状態についての知見を得るために、第一原理電子状態計算を行った。その結果、 $\text{Be}_{12}\text{Ti}$  格子間には 4 タイプの水素原子の存在位置があり、その固溶エネルギーは 0.1eV から 0.7eV の範囲である。

研究成果の概要（英文）：

Molecular dynamics simulations of helium atoms in Fe were performed. As a result, the new knowledge about the growth process of a helium bubble was acquired.

The interaction of atomic hydrogen with  $\text{Be}_{12}\text{Ti}$  has been also studied by means of first principles electronic-structure methods. Hydrogen atoms accommodated with in twenty different sets of lattice site, resulting in solution energy of 0.1 eV ~ 0.7 eV.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2010 年度	700,000	210,000	910,000
2011 年度	600,000	180,000	780,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：水素・格子欠陥・分子動力学法・第一原理計算・金属間化合物

## 1. 研究開始当初の背景

ITER 以降の“定常運転”磁気閉じ込め核融合実験炉ではプラズマの放電時間が極めて長くなるため、炉心から漏洩してくる粒子とプラズマに対向した材料表面との相互作用についての十分な理解が必要不可欠である。

特に、使用温度がそれほど高くない（高くできない）第一壁材料における水素同位体保持・放出特性はプラズマ密度に影響を与えるほか、トリチウムインベントリに関わる大きな問題となる。さらに、ITER では D-T プラズマを用いた自己点火を目指しており、核融

合反応によりヘリウムが生成される。ヘリウムは、材料(特に金属)において欠陥との相互作用が水素同位体と比べ著しく強いため、材料の特性に大きな影響を与える。そのため、これらの現象の十分な理解及びその解決法を導く必要がある。

このような将来的状況を踏まえ、水素同位体やヘリウム粒子とプラズマ対向(候補)材料との相互作用に関する研究が国内外の複数の研究機関で行われるようになり、多くの有用な研究成果が得られている。特に、ヘリウムは希ガスという特徴を有するため、各種の純金属中における定性的な振る舞いは非常に類似しており、「金属中におけるヘリウムの挙動」に関する本質的理解は相当進んでいる。一方、水素同位体と金属材料との相互作用についての研究はヘリウム以上に多く、また長年に渡って行われているのにも関わらず、依然としてその本質的な理解は十分とは言えない。水素同位体は 1s の電子をひとつしか持たないため、金属材料中では常に内部の電子となんらかの結合軌道を形成することとなる。そのため、その挙動が内部の格子欠陥種に対して非常に鋭敏となり、各金属材料における定性的な違いも大きい。水素同位体やヘリウム照射を受けた材料は、その内部に様々な格子欠陥を形成する。結晶格子中における原子が抜けた穴である「原子空孔」、格子位置から抜けた原子が二次元状に集合した「転位ループ」、原子空孔が三次元的に集合した「ボイド」等がある。特に、原子空孔が水素の有力な捕獲サイトになりうることは PSI 研究が始まった当初より強く認識されており、多くの研究がなされている。最近、核融合炉第一壁として有力な候補材料である低放射化フェライト鋼と水素同位体との相互作用に関する研究が活発に行われるようになり、さまざまな研究成果の報告が

なされている。F82H などの低放射化フェライト鋼の実用合金中には各種の先在欠陥 ( $M_{23}C_6$  析出物, 加工転位, 粒界・ラス境界, 置換型不純物など) が存在するが、これらの欠陥が水素同位体の保持・放出特性にどのような影響を及ぼすのかは全く理解されていないのが現状である。また、ヘリウム照射効果の定性的な理解はかなり進んできたが、ヘリウムと水素同位体の相互作用に関する研究はあまり行われていない。

## 2. 研究の目的

本研究では、各種のシミュレーション計算及び検証実験を相補的に行い、金属材料中における各種欠陥と水素同位体との相互作用についての本質を掴み、「照射下における水素同位体の振る舞いについての普遍的性質の把握」を目指す。本研究期間内においては、以下の点に焦点を絞った研究を行うことを目標とした。

- (1) ヘリウムバブルと母相金属界面における重水素捕獲特性: ヘリウムバブルが重水素に対する比較的強い捕獲サイトとして機能することが申請者等の実験によって示されているが、これもその実態が全く理解されていない。この現象に関する理論的な解釈を試みる。
- (2) 核融合環境下で使用される材料における水素の捕獲状態: ITER の第一壁材料にはベリリウムとタングステンが使用される。また、中性子増倍材としてベリリウム金属化合物が使用される。これらの材料の水素に対する基礎的な振る舞いに関する知見はほとんどないため、その基本的な挙動(たとえば水素の溶解度)に関する理論的研究を行う。

## 3. 研究の方法

- (1) ヘリウムバブルと母相金属界面におけ

る重水素捕獲特性に関する研究

分子動力学法は2体(あるいはそれ以上)の原子間ポテンシャル関数の下に、古典力学における運動方程式を解いて、系の静的、動的安定構造や、動的過程を解析する手法である。本研究では純鉄にヘリウムを照射する系についての分子動力学計算を行う。Fe-Fe間は、金属中における自由電子が及ぼす多体効果を含んだFinnis-Sinclairポテンシャルを、Fe-He間は第一原理電子状態計算法(ABINIT)で導出した2体型ポテンシャルを用いた。実験系としては、(100)面を表面とした $10 \times 10 \times 30 a_u$  ( $a_u$ : 格子定数)のFeスーパーセル(原子数6000個のシミュレーション結晶)を構築し、1個のヘリウムにエネルギーを与えて表面から入射させた。それと共に、結晶構造内にあらかじめヘリウムバブルを構築した $10 \times 10 \times 10 a_u$  (原子数2000個)のFeセルを構築し、同様の計算を試みた。

(2) 核融合環境下で使用される材料における水素の捕獲状態についての研究

まず、結晶描画ソフトを用いて $Be_{12}Ti$ 結晶のスーパーセルの生成を行う。得られた初期構造を用いて、SIESTA (Spanish Initiative for Electronic Simulations with Thousands of Atoms)の入力ファイルを作成する。SIESTAは、密度汎関数法による電子構造計算と分子・結晶の第一原理分子動力学シミュレーションを目的として開発されたコンピュータプログラムであり、基底関数として1sや2s, 2pなどの実在軌道を用いる。また、SIESTAは複数の手法による構造最適化が可能である。なお、SIESTAの実行、解析は本研究室のLinuxワークステーションを用いた。試行計算の結果、 $Be_{12}Ti$ 計算で使用する主要なパラメータを

下記のように決定した。

- 各原子のポテンシャル: ノルム保存型 Troullier-Martins 擬ポテンシャル
- 波動関数の形: splitgauss 型
- 交換相関相互作用: Wu-Cohen によって修正された Perdew-Burke-Ernzerhof 型 (Wu, Cohen 2006)
- k点サンプリング: Monkhorst-Pack 法で  $4 \times 4 \times 4$
- 構造最適化: FIRE Coordinate optimization (E. Bitzek 2006)

#### 4. 研究成果

(1) ヘリウムバブルと母相金属界面における重水素捕獲特性に関する研究

まず、第一原理計算によりHe-He間ならびにW-He間における原子間ポテンシャルの作成を行った。その結果、いかなる原子間距離にあっても、He-He間のポテンシャルエネルギーはW-He間のポテンシャルエネルギーよりも小さかった。これは、He原子が周囲をW原子で囲まれるよりは、He原子で囲まれた方が系の内部エネルギーが小さくなることを示している。すなわち、He原子は、W格子内でばらばらに存在するよりも、集合化した方が内部エネルギー的に有利であるということになる。次に本研究で作成した原子間ポテンシャルとGEAM04ポテンシャルを用いて、タングステン中における原子空孔とヘリウム原子との相互作用についてのモデル計算を行った。その結果、0Kの場合は1つの原子空孔に対して、最近接が $1.8 \text{ \AA} \sim 1.9 \text{ \AA}$ となる状態で6個のヘリウムが捕獲され、それ以上の数のヘリウムは空孔の外に押し出された。300Kの場合、原子空孔中央付近に3個のヘリウムが配置し、その周囲の格子がひずんだ部分に2個のヘリウムが捕獲されている状態となった。残り1個のヘリウム

は原子空孔から完全に離脱した。500K で同様の計算を行ったところ、原子空孔中心部に1個のヘリウムが捕獲され、残り5個のヘリウムは完全に格子外に飛び出していた。精度と汎用性の高いヘリウムバブル成長モデルを構築するためには本研究で得られたような複雑な捕獲状態を考慮する必要があると考えられる。

様々な条件を想定し、系統的に計算を進めていった結果、ヘリウムバブルを配置したセルにおいて従来のモデルを改善しうる結果が得られた。1980年代に構築された従来のモデルでは、

- 原子空孔にヘリウムが捕獲されていく。
- ヘリウムの個数の増加によって周囲に格子間原子を放出し、バブルが成長する
- バブルサイズが大きくなると、格子間原子をまとめて押し出す。

ということがわかっていた。本研究のモデル計算により、ヘリウムバブル成長プロセスについて下記のあらたなメカニズムが明らかになった。

- バブル近域での結晶擾乱によってバブルが原子空孔を獲得し、サイズが成長する。
- バブル周囲ではより多くのダンベル型格子間原子を形成する。
- ダンベル型格子間原子がバブルに近づくと格子間原子の集合体が形成され、転位ループの核となる。

## (2) 核融合環境下で使用される材料における水素の捕獲状態についての研究

Be<sub>12</sub>Ti は核融合環境下で使用される材料であり、結晶内部に多量の水素が注入されることになる。しかし、実験的手法だけでは Be<sub>12</sub>Ti 中における水素の原子レベルの振る舞いに関する情報はほとんど得ることはできない。

そこで、本年度は、第一原理電子状態計算法を用いて Be<sub>12</sub>Ti における水素存在状態についての第一原理計算を行った。使用した計算コードは SIESTA である。

まず、完全結晶 Be<sub>12</sub>Ti のスーパーセルを作成し、最適な格子パラメータの導出を試みた。Be<sub>12</sub>Ti は正方晶であり、格子定数は  $a=b=7.36 \text{ \AA}$ 、 $c=4.195 \text{ \AA}$  であるが、理論計算を行うときにはその計算系で最適化された格子定数を使用する必要がある。c/a 比の導出を行ったところ、 $c/a=1.14708 \text{ \AA}$  となった。この手順を繰り返すことで、最適な格子定数の導出を試みたが、結晶内のいくつかの Be 原子に  $0.9 \text{ eV/\AA}$  程度の力が作用していた。固体中の水素の挙動はこのような力の影響を強く受けることが予測されるため、格子定数及び c/a 比を導出する際にスーパーセル内の原子配置も変化させ、最適な格子定数及び c/a 比、原子配置を得た。次に、Be<sub>12</sub>Ti スーパーセル中における水素の固溶状態を調べるため、Be<sub>12</sub>Ti の格子間位置に水素を配置し、水素を含めた構造最適化及びエネルギー計算、分子軌道計算を行った。第一原理電子状態計算における構造最適化計算は「準安定状態」を探索する手法のため、原子の初期配置の影響を受ける場合がある。特に、本研究で用いた Be<sub>12</sub>Ti は非常に複雑な結晶構造を有するため、水素の初期配置の影響を受けやすい。そこで、Be<sub>12</sub>Ti における結晶構造の対称性を考慮し、ある領域内において 20 パターンの初期配置を設定し、それぞれについての計算を行った。その結果、4 種類の準安定状態を発見し、いずれも正の値を示した。これは、Be<sub>12</sub>Ti は安定な水素化合物を形成しないということを示している。

## 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 6 件)

1. T. Akiyama, N. Yoshida, K. Kawahata, M. Tokitani, H. Iwakiri, S. Okajima, K. Nakayama, Studies of reflectivity degradation of retroreflectors in LHD and mitigation of impurity deposition using shaped diagnostic ducts and protective windows, Nucl. Fusion 52 (2012) 063014 (査読あり)
2. D. Kato, H. Iwakiri, K. Morishita, Formation of vacancy clusters in tungsten crystals under hydrogen-rich condition, Journal of Nuclear Materials, Vol. 417, p1115-1118, 2011 (査読あり)
3. Q. Xu, H. Iwakiri et al., Annihilation of interstitial-type dislocation loops in  $\alpha$ -Fe during He irradiation, Journal of Nuclear Materials, Vol. 417, p1022-1025, 2011 (著者 7 名中 4 番目, 査読あり)
4. Y. Oya, H. Iwakiri et al., Journal of Nuclear Materials, Behavior of hydrogen isotope retention in carbon implanted tungsten, Vol. 390-391, p390-391, 2009 (査読あり)
5. Ueda. Y, H. Iwakiri et al., Simultaneous irradiation effects of hydrogen and helium ions on tungsten, Journal of Nuclear Materials, Vol. 390-391, p390-391, 2009 (査読あり)
6. D. Hamaguchi, H. Iwakiri, H. Kawamura et al., The trapping behavior of deuterium in F82H ferritic/martensitic steel, Journal of Nuclear Materials, Vol. 386-388, p375-378, 2009 (査読あり)

〔学会発表〕 (計 3 件)

1. 岩切宏友, 半導体・絶縁体による粒子線照射損傷のモニタリング～光学特性変化を

中心として～, 軽水炉燃料に関する研究会, 2011 年 11 月 30 日, 京都大学宇治キャンパス (京都府宇治市)

2. 岩切宏友, ヘリウムイオン照射を受けた固体材料におけるナノ構造変化, 第 10 回琉大物性研究会, 2010 年 12 月 11 日, 琉球大学 (沖縄県西原町)

3. 岩切宏友, 核融合炉材料照射下挙動のマルチスケールモデリング ～制御イオン照射実験, プラズマ・核融合学会年会, 2009 年 12 月 3 日, 京都市国際交流会館 (京都府京都市)

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

出願年月日 :

国内外の別 :

○取得状況 (計 0 件)

名称 :

発明者 :

権利者 :

種類 :

番号 :

取得年月日 :

国内外の別 :

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

岩切 宏友 (IWAKIRI HIROTOMO)

琉球大学・教育学部・准教授

研究者番号：80325480

(2) 研究分担者

( )

研究者番号：

(3) 連携研究者

( )

研究者番号：