

令和 3 年 6 月 7 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K13527

研究課題名（和文）プラズマの断続照射がタングステンの水素同位体吸蔵特性に与える影響とその機構の解明

研究課題名（英文）Effect of periodic plasma irradiation on hydrogen isotope retention in tungsten

研究代表者

大宅 諒 (Oya, Makoto)

九州大学・総合理工学研究院・助教

研究者番号：10804750

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）：本研究では核融合実験炉の炉壁への水素同位体吸蔵に関して、プラズマの断続照射がタングステン表面近傍の水素同位体吸蔵特性に与える効果とその要因を検討することを目的とした。脱捕捉エネルギーの異なる2種の捕捉サイトが関与すること、また、断続照射による影響は主に低エネルギーの捕捉サイトに表れ、これに捕捉された重水素の密度が減少することが分かった。この捕捉サイトと表面に形成されるブリスタ等との関係が予想される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

断続照射の影響を明らかにすることは、実験室のプラズマ照射実験（連続照射）から、実験炉（断続照射）の炉壁の水素同位体蓄積量を推定するために重要である。断続照射は連続照射に比べて、表面近傍の吸蔵量が減少する可能性を示すことができ、炉壁でのトリチウム蓄積量は従来の評価値より小さくなることが期待される。また、原型炉では定常運転（連続照射）が想定されるが、実験炉と原型炉での炉壁の水素同位体蓄積量の違いを見積もることにもつながり、原型炉設計開発において燃料システムを検討する上で非常に重要であると考えられる。

研究成果の概要（英文）：Related to tritium inventory in plasma-facing wall in an experimental fusion reactor (ITER), we investigated the effect of periodic plasma irradiation on hydrogen isotope retention in tungsten and clarified the mechanism. The retention properties were affected by two types of trapping sites with different detrapping energies. The periodic irradiations mainly had effects on the trapping sites with a low detrapping energy and reduced deuterium concentration in the trapping sites. The trapping sites could be related with blisters formed on in the tungsten surface.

研究分野：核融合学

キーワード：タングステン 水素同位体吸蔵 断続照射 照射欠陥

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

核融合炉の燃料である水素同位体の炉壁への蓄積は、核融合炉のトリチウム放射能安全性・燃料効率・経済的な運転等に関わる重要な問題である。このため、炉壁材料であるタングステンの水素同位体吸蔵特性に関する研究が、これまで精力的に行われてきた。この中、タングステンの水素同位体吸蔵特性を調べるため、実験室の直線型プラズマ装置では、水素同位体プラズマを休止することなく連続的に照射する(連続照射)方法が一般的であった。しかし、核融合実験炉ではパルス運転を実施するため、タングステンはプラズマに断続的に照射される(断続照射)ことになる。

研究代表者らは以前の研究(引用文献)において、直線型プラズマ装置でタングステンに重水素プラズマを断続照射し、連続照射に比べて吸蔵量が減少する可能性を実験的に示した。これにより、実験炉の炉壁におけるトリチウム蓄積量は、従来の評価値より小さくなることが期待された。

2. 研究の目的

断続照射の影響を明らかにして、連続照射との違いとその原因を明確にすることは、実験室のプラズマ照射実験(連続照射)の結果から、実験炉(断続照射)の炉壁の水素同位体蓄積量を推定するために重要である。また、原型炉では定常運転が想定されているため連続照射となるが、実験炉(断続照射)と原型炉(連続照射)での炉壁の水素同位体蓄積量の違いを見積もることもつながる。そのため、原型炉設計開発において、燃料システムを検討する上でも非常に重要であると考えられる。

そこで、本研究は、タングステン材料表面の水素同位体挙動に注目し、関与する素過程の理解を通して、断続照射がタングステン表面近傍の水素同位体吸蔵特性に与える効果とその要因を明らかにすることを目的として実施された。

3. 研究の方法

まず、断続照射がタングステン表面近傍の水素同位体挙動に与える素過程を明らかにするため、断続照射実験をモデル化し、断続照射の効果を調べるシミュレーション研究を行うこととした。そのために、タングステン材料中の水素輸送(注入・拡散・捕捉・脱捕捉・再結合放出といった素過程を含む)に関するシミュレーションコードを開発した。このコードを用いて、以前の重水素プラズマ断続照射実験を再現して、断続照射と連続照射におけるタングステン中の重水素挙動の違いを素過程から評価した。実照射条件(照射フラックスや休止時間を含む照射シーケンス)と実測による試料温度の時間変化を考慮した計算を行った。それにより、断続照射および連続照射中の材料の動的な重水素吸蔵特性を明らかにして、素過程に係る基礎量(脱捕捉エネルギー・深さ・重水素濃度)を評価した。

次に、水素プラズマ照射によって、材料表面に形成されるタングステン堆積層について、断続照射が水素同位体吸蔵特性に与える影響を調べる実験を行った。ここでは、九州大学の高周波プラズマスパッタリング装置を用いて、基板表面にタングステン堆積層を形成させ、昇温脱離分析装置によって水素吸蔵量を測定した。このとき、プラズマを断続的に点火して堆積層を形成させた。連続点火の場合と比較し、その違いを評価した。

さらに、実験炉や原型炉の実条件を想定した検討も行った。中性子照射によりタングステン内部に照射欠陥を形成し、プラズマで連続照射した後、重水素の吸蔵量を測定した。この実験には、米国オークリッジ国立研究所の研究用原子炉 HFIR で中性子照射されたタングステンを試料として用いて、アイダホ国立研究所の直線型プラズマ装置 TPE と昇温脱離分析装置で実施した(引用文献)。その結果から、断続照射が、中性子照射後の水素同位体吸蔵特性に与える影響について考察した。

4. 研究成果

(1) 断続照射下でのタングステンの水素同位体吸蔵特性の評価

休止時間を含むプラズマの断続照射実験から、照射後の昇温脱離分析まで、タングステン材料中の水素輸送特性の時間変化をシミュレーションする総合的コードを開発した。このコードでは、金属材料中の水素の拡散方程式に、プラズマからの水素同位体の注入(生成項)・捕捉サイトによる捕捉(消滅項)・捕捉サイトからの脱捕捉(生成項)を加え、捕捉水素濃度に関する連続方程式と連立させて、溶解水素と捕獲水素濃度の時間変化を計算する。境界条件として、材料表面での再結合による水素同位体の放出を与えた。プラズマからの水素同位体の注入の計算では、二体衝突モデルに基づくモンテカルロコード EDDY(引用文献)と結合し、照射中(休止時間を含む)と照射後に実測した試料温度を導入して、より正確な計算を行えるよう工夫した(引用文献)。計算結果の信頼性を確認するため、既存のコード TMAP7(引用文献)と昇温脱離分析に関する比較計算を行なった。その結果を図 1 に示す。本計算と TMAP7 計算では、同様の結果を得ることができた。

この水素輸送コードを用いて、研究代表者らが以前行った重水素プラズマ断続照射実験をシミュレーション空間上で再現し、タングステン中の重水素挙動を評価した。この実験では、照射中の試料温度が 573K の場合には、断続照射により重水素吸蔵量が減少していることが示された。その一方、試料温度が 643K の場合には、断続照射による重水素吸蔵量の変化は少ないことが示されている（引用文献）

図 2 に断続照射下におけるタングステン中の動的な重水素吸蔵特性（溶解状態にある重水素の濃度）の計算結果を示す。ここで、連続照射を 1-shot、断続照射を 2-shot, 3-shot（それぞれ 1 回, 2 回の休止を含む）と表記している。試料温度 573K と 643K の場合、溶解重水素濃度は、照射直後のパルス的な変化に続き、プラズマ照射中に漸増し、休止中は一定になっていることが分かった。照射後は試料温度が低下しても、そのままタングステン中に残り、それに続く昇温脱離実験によって表面からすべて再放出される。また、照射中において、注入フラックスの大部分は表面から再放出されていた。溶解重水素濃度は注入フラックスと試料温度に依存しており、照射回数の影響は小さいことが分かった。

また、照射後に行われた昇温脱離測定の結果と比較して、重水素を吸蔵する捕捉サイトの密度や深さ、脱捕捉の活性化エネルギーを評価した。その結果、脱捕捉エネルギーの異なる 2 種の捕捉サイト（1.5eV と 2.1eV）が関与していることが明らかとなった。また、断続照射による影響は主に低エネルギーの捕捉サイトに表れ、これに捕捉された重水素の濃度が断続照射によって減少していた。2 つの捕捉サイトの平均深さは 2~3 μm 程度であり、表面近傍の吸蔵特性が断続照射による影響を受けていることが分かった。また、断続照射によって、表面に形成されるプリスタが減少するという実験事実（引用文献）があり、低エネルギー捕捉サイトと表面プリスタとの関係が推察される。

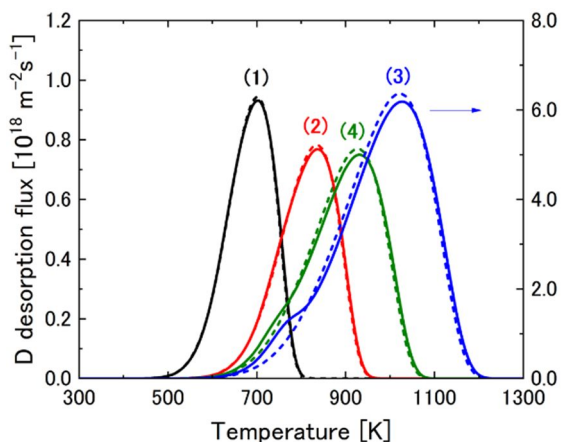


図 1. 昇温脱離スペクトルの比較計算、
実線：本計算、破線：TMAP7 計算。
（計算条件は引用文献 参照）

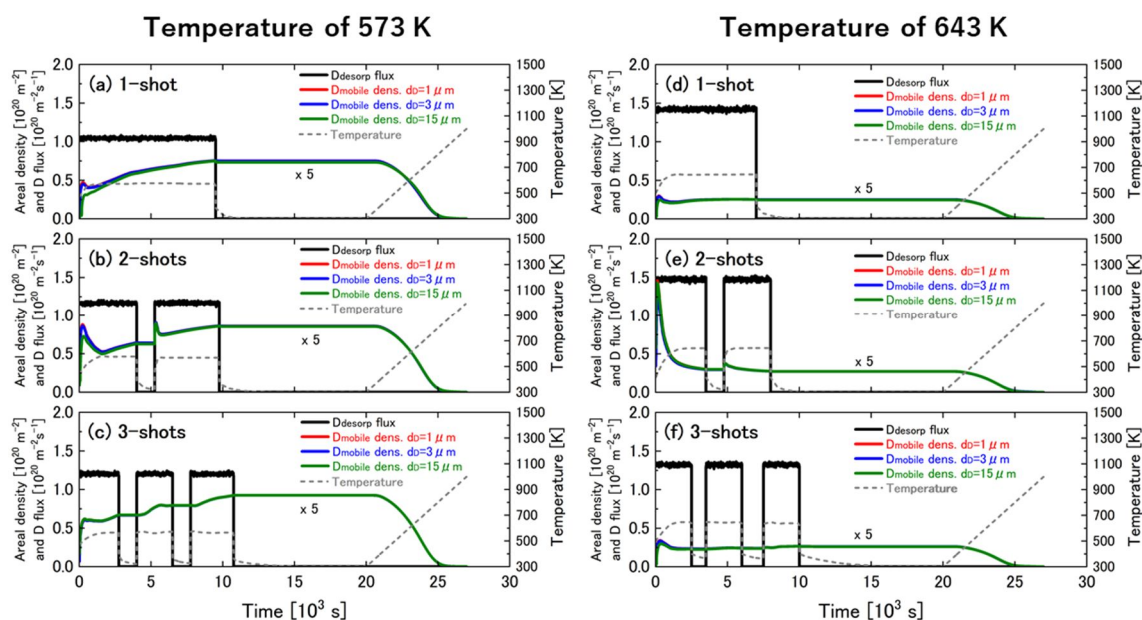


図 2. 重水素の再放出フラックス(黒線)と溶解重水素濃度(赤線, 青線, 緑線)の時間変化。
照射中の試料温度は 573K(左図)と 643K(右図)で、時間変化を灰色線で示した。
（照射条件等は引用文献 参照）

(2) 断続形成されたタングステン堆積層の水素同位体吸蔵特性

次に、断続照射によって形成されるタングステン堆積層中の水素同位体吸蔵量の変化を調べた。そのために、軽水素プラズマによるスパッタリング装置で連続形成条件(5時間×1回)と断続形成条件(1時間×5回)で堆積膜を作成した。なお、断続形成の際は、プラズマを安定的に点火させるため、投入パワーを低く設定した。堆積層を形成した後、それらの昇温脱離分析を行った。その結果の一例を図3に示す。

断続形成されたタングステン堆積層は、連続形成と比べて、400~800Kの脱離特性に明確な変化が見られ、水素吸蔵量は減少していた。形成時の実験条件(プラズマへの投入パワー等)の詳細な検討は必要であるが、断続照射はタングステン堆積層の吸蔵特性にも影響を与えている可能性が示唆された。これについて、今後、更なる詳細な実験を計画している。

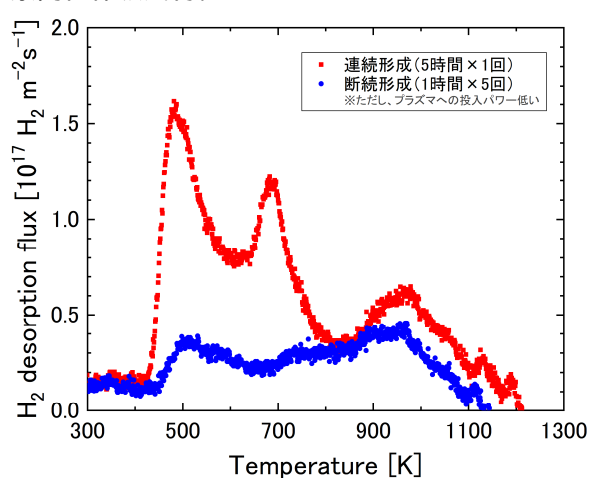


図3. 連続形成(5時間×1回)と断続形成(1時間×5回)条件で形成されたタングステン堆積層の昇温脱離スペクトルの一例

(3) 核融合炉実環境における断続照射の影響

さらに、実験炉や原型炉の実条件を想定し、中性子照射により内部に照射欠陥を与えたタングステンについて、本研究で開発したコードを用いて重水素吸蔵特性を解析した。捕捉サイトの脱捕捉エネルギー・捕捉重水素濃度・深さを評価した。その結果、脱捕捉エネルギーは2.1eV程度、D濃度は $10^{-5}D/W$ 程度、深さは30 μm 程度であった(引用文献)。捕捉重水素は、断続照射の影響が及び2~3 μm よりも深くまで侵入していることが分かった。照射欠陥はタングステン深部にまで広範囲に形成されており、水素拡散による吸蔵量増大を考慮に入れると、長時間の照射(運転)においては大きな影響をもたらすと考えられる。これらのことから、中性子による照射欠陥が炉壁の水素同位体蓄積量に与える影響は、断続照射よりも大きいと考えられる。

このように、本研究で開発した水素輸送コードでは、プラズマ照射から昇温脱離分析までの一連の実験を連続してシミュレーションすることができる。この手法により、実験で測定された水素同位体吸蔵量を用いて、タングステン表面から内部まで広範囲の深さ領域において、脱捕捉エネルギー・捕捉サイトの水素同位体濃度・深さなどの吸蔵特性に関わる重要な基礎量を評価できた。広範囲の深さ領域に適用できることは、実験炉や原型炉の水素同位体蓄積量を推定する上で極めて有用であり(引用文献)、この点も本研究の重要な成果である。

<引用文献>

- M. Oya, H.T. Lee, A. Hara et al., Effect of periodic deuterium ion irradiation on deuterium retention and blistering in tungsten, Nuclear Materials and Energy, Vol.12, 2017, 674-677.
- M. Oya, M. Shimada, C.N. Taylor et al., Deuterium retention in tungsten irradiated by high-dose neutrons at high temperature, Nuclear Materials and Energy, Vol.27, 2021, 100980.
- K. Ohya, Dynamic simulation of erosion and redeposition on plasma-facing materials, Physica Scripta, Vol.T124, 2006, 70-75.
- M. Oya, Y. Hara, K. Katayama et al., Simulation of Experimental Deuterium Retention in Tungsten under Periodic Deuterium Plasma Irradiation, Plasma and Fusion Research, Vol.16, 2021, 2405057.
- G.R. Longhurst, TMAP 7 User Manual, Idaho National Engineering and Environment Laboratory, 2008, INEEL/EXT-04-02352 Rev 2.
- Y. Hatano and M. Oya, Comments on analysis of thermal desorption spectrum of hydrogen isotopes from neutron-irradiated tungsten, 15th International Workshop on Hydrogen Isotopes in Fusion Reactor materials. A5, Online, May 27th, 2021.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 8件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 M. Oya, Y. Hara, K. Katayama, K. Ohya	4. 巻 16
2. 論文標題 Simulation of Experimental Deuterium Retention in Tungsten under Periodic Deuterium Plasma Irradiation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 2405057
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1585/pfr.16.2405057	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 M. Oya, M. Shimada, C.N. Taylor, M.I. Kobayashi, Y. Nobuta, Y. Yamauchi, Y. Oya, Y. Ueda, Y. Hatano	4. 巻 27
2. 論文標題 Deuterium retention in tungsten irradiated by high-dose neutrons at high temperature	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nuclear Materials and Energy	6. 最初と最後の頁 100980
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.nme.2021.100980	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 M. Oya, R. Ikeda and K. Katayama	4. 巻 15
2. 論文標題 Atomic and Molecular Processes in Plasma Decomposition Method of Hydrocarbon Gas	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 2405032
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1585/pfr.15.2405032	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Q. Yue, K. Hanada, M. Oya, S. Matsuo, S. Kojima, H. Idei, T. Onchi, K. Kuroda, N. Yoshida, R. Ikezoe, Y. Liu, M. Hasegawa, S. Shimabukuro, A. Higashijima, T. Nagata and S. Kawasaki	4. 巻 15
2. 論文標題 Measurement of Dynamic Retention with Fast Ejecting System of Targeted Sample (FESTA)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 2402013
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1585/pfr.15.2402013	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 大矢恭久, 波多野雄治, 信太祐二, 山内有二, 小林真, 大宅諒, 片山一成, 大塚哲平, 上田良夫	4. 巻 96
2. 論文標題 プロジェクトレビュー日米科学技術協力事業 PHENIX 計画 6年間の成果と次期計画 4. タスク3 トリチウム挙動および中性子照射効果	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Plasma and Fusion Research	6. 最初と最後の頁 140-144
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 H. Ito, K. Katayama, D. Mori, Y. Hara, M. Oya	4. 巻 162
2. 論文標題 Hydrogen permeation behavior through tungsten deposition layer	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Fusion Engineering and Design	6. 最初と最後の頁 112083
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.fusengdes.2020.112083	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計20件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 10件)

1. 発表者名 M. Oya, M. Shimada, C.N. Taylor, M.I. Kobayashi, Y. Nobuta, Y. Yamauchi, Y. Oya, Y. Ueda and Y. Hatano
2. 発表標題 Deuterium retention in tungsten irradiated by high-dose neutrons at high temperature
3. 学会等名 24th International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 M. Oya, Y. Hara, K. Katayama and K. Ohya
2. 発表標題 Simulation of Deuterium Retention in Tungsten under Periodic Deuterium Plasma Irradiation
3. 学会等名 29th International Toki Conference on Plasma and Fusion Research (国際学会)
4. 発表年 2020年

1 . 発表者名 M. Oya, R. Ikeda and K. Katayama
2 . 発表標題 Atomic and Molecular Processes in Plasma Decomposition Method of Hydrocarbon gas
3 . 学会等名 28th International Toki Conference on Plasma and Fusion Research (国際学会)
4 . 発表年 2019年

1 . 発表者名 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
2 . 発表標題 Deuterium retention in neutron irradiated tungsten-rhenium alloy and potassium-doped tungsten
3 . 学会等名 23rd International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices (国際学会)
4 . 発表年 2018年

1 . 発表者名 Q. Yue, K. Hanada, M. Oya, H. Ide, R. Ikezoe, S. Matsuo, S. Kojima, T. Onchi, K. Kuroda, N. Yoshida, M. Hasegawa, S. Shimabukuro, A. Higashijima, T. Nagata, S. Kawasaki, Y. Liu
2 . 発表標題 Research on Dynamic Retention Measurement Using Fast Ejecting System of Targeted Sample (FESTA) in QUEST
3 . 学会等名 24th International Conference on Plasma Surface Interactions in Controlled Fusion Devices (国際学会)
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 Q. Yue, K. Hanada, M. Oya, S. Kojima, H. Idei, T. Onchi, K. Kuroda, N. Yoshida, R. Ikezoe, M. Hasegawa, S. Shimabukuro, A. Higashijima, T. Nagata, S. Kawasaki
2 . 発表標題 Difference of Dynamic Retention from Different Samples Using Fast Ejecting System of Targeted Sample (FESTA)
3 . 学会等名 29th International Toki Conference on Plasma and Fusion Research (国際学会)
4 . 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Hara, K. Katayama, M. Oya and D. Mori
2. 発表標題 Modeling of Hydrogen Permeation Behavior through Tungsten Deposition Layer Growing on Nickel Substrate by Hydrogen Plasma Sputtering
3. 学会等名 3rd Asia Pacific Symposium on Tritium Science (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 H. Ito, K. Katayama, D. Mori and M. Oya
2. 発表標題 Hydrogen permeation behavior through tungsten deposition layer
3. 学会等名 14th International Symposium on Fusion Nuclear Technology (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Q. Yue, K. Hanada, M. Oya, S. Matsuo, S. Kojima, H. Idei, T. Onchi, K. Kuroda, N. Yoshida, R. Ikezoe, Y. Liu, M. Hasegawa, S. Shimabukuro, A. Higashijima, T. Nagata and S. Kawasaki
2. 発表標題 Measurement of Dynamic Retention with Fast Ejecting System of Targeted Sample (FESTA)
3. 学会等名 28th International Toki Conference on Plasma and Fusion Research (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大宅諒, 原優樹, 片山一成, 大宅薫
2. 発表標題 断続照射下におけるタングステン中の水素同位体挙動のシミュレーション解析
3. 学会等名 第36回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大宅諒, Masashi Shimada, Chase N. Taylor, 小林真, 信太祐二, 山内有二, 孫飛, 大矢恭久, 上田良夫, 波多野雄治
2. 発表標題 高温・高照射量で中性子照射されたタングステンの水素同位体吸蔵特性
3. 学会等名 日本原子力学会 2020秋の大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 大宅諒, 池田遼介, 片山一成
2. 発表標題 炭化水素ガスのプラズマ分解を利用した水素同位体の抽出
3. 学会等名 第36回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大宅諒, Lee Heun Tae, 中村揚, 伊東英貴, 衆原竜弥, 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
2. 発表標題 中性子照射されたW-Re合金とK-doped Wの水素同位体吸蔵特性
3. 学会等名 第12回核融合エネルギー連合講演会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大宅諒, 片山一成, 深田智
2. 発表標題 プラズマ中の炭化水素ガス分解を利用した水素生成とプラズマ-壁相互作用
3. 学会等名 第35回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 池田遼介, 大宅諒, 片山一成
2. 発表標題 高周波プラズマによる水蒸気の直接分解
3. 学会等名 第36回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 平中芳樹, 花田和明, 片山一成, 大宅諒, 恩地拓己, 原優樹
2. 発表標題 タングステン堆積層形成過程における水素透過挙動のモデリング
3. 学会等名 第36回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 岳其霖, 花田和明, 大宅諒, 小島信一郎, 松尾祥吾, 出射浩, 恩地拓己, 黒田賢剛, 吉田直亮
2. 発表標題 QUESTにおける高速試料搬送装置での動的吸蔵量の計測
3. 学会等名 第36回プラズマ・核融合学会年会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------