

令和 6 年 6 月 15 日現在

機関番号：63902

研究種目：若手研究

研究期間：2021～2023

課題番号：21K13903

研究課題名（和文）照射欠陥移行現象の体系化による核融合炉真空容器内トリチウムの蓄積量評価

研究課題名（英文）Evaluation of tritium inventory in the vacuum vessel of fusion reactor by modeling the irradiation defects transport behaviors

研究代表者

小林 真（Kobayashi, Makoto）

核融合科学研究所・研究部・助教

研究者番号：50791258

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,500,000円

研究成果の概要（和文）：核融合炉環境下でのトリチウム蓄積量を評価するため、タングステン中の照射欠陥蓄積量を予測するコードを開発した。本コードでは欠陥集合体の様々な輸送過程を速度論解析すると共に、集合数に応じて変化する過程については経験的物理モデルを用いて評価している。ベンチマーク試験として、6.4 MeV鉄イオン照射及び20 MeVタングステンイオン照射をタングステンに対して行った際の原子空孔密度を予測し、その予測値と、重水素ガス曝露試料中の重水素捕獲密度の実測値と比較した。その結果、予測された原子空孔密度分布と重水素密度分布の実測値と、これら両者の比率は、文献とよく一致し、これにより本コードの妥当性を確認した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

核融合炉真空容器には放射性物質であるトリチウムが蓄積し、真空喪失などの事故時に放出することが予測されるため、トリチウム蓄積量と正確に予測することで事故リスクの評価が初めて可能になる。本研究で開発した計算コードは核融合炉の運転に伴い劇的に変化するトリチウム蓄積量を定量評価可能とするものであるため、核融合炉の社会実装に大きく貢献できる成果と考える。さらに、固体中の欠陥蓄積は原子炉材料や宇宙材料などとも共通の課題であり、それを精度よく予測できる技術は様々な波及効果もあり、学術的にも意義の大きい研究であると考えている。

研究成果の概要（英文）：A calculation code to estimate the time evolution of a concentration of irradiation defect clusters in tungsten has been developed to predict the tritium inventory in fusion reactor. The model in the code was based on rate theory, taking account of various transport processes of defect clusters. The these kinetics, while increasing the size of clusters, could be estimated by an empirical physics model. A benchmark test for 6.4 MeV Fe ion irradiation and 20 MeV W ion irradiation was conducted, comparing the depth profile of vacancy concentration in tungsten evaluated by the developed code to that of deuterium which decorating vacancies reported in literature. The estimated depth profile of vacancy cluster concentration in tungsten was consistent with that of deuterium. In near-saturation conditions of deuterium decoration in vacancies, the deuterium-vacancy ratio was estimated to be about 6, agreeing with previous theoretical studies of hydrogen trapping capacity in a vacancy well.

研究分野：核融合炉工学

キーワード：照射損傷 中性子 水素同位体

1. 研究開始当初の背景

重水素(D)-トリチウム(T)核融合炉の定常運転には燃料 T をロス無く循環させる必要がある。しかしながら、T は水素同位体であるため、金属材料中に容易に溶解し、材料内を拡散し滞留する。このような T の滞留現象は、T 増殖率の要求レベル上昇、炉の立ち上げ時の T 装荷量の増加、事故時やメンテナンス時の T 放出リスクの上昇、など多くの問題を引き起こすため、その滞留量の予測と低減方法、除染方法の確立が必要である。

これまでの研究で、金属材料中の照射欠陥により T が強く捕獲されることが示された[1]。特に核融合炉壁に使用されるタングステン(W)中の照射欠陥と T の結合エネルギーは1~2 eVであり、化学結合並みに強い。この照射欠陥は放射線入射や熱負荷により材料内部での複雑な相互作用を経て生成・蓄積し、炉運転の進行により W 中の照射欠陥密度は変化していく。

金属材料は一般に、結晶粒が密集した多結晶体である。結晶粒内に高速中性子などの放射線が入射すると結晶格子の原子を弾き出し、弾き出された原子は格子間原子、元々原子が位置した部分は原子空孔となる。これら照射欠陥は対となっているため、再結合により照射欠陥は消滅する。また、これらの照射欠陥が結晶粒表面に到達することでも消滅する。一方、同じ照射欠陥同士で集積し、欠陥集合体を形成することも報告されている。この欠陥集合体は熱的に安定で高熱負荷環境でも容易に分解しない。

2. 研究の目的

中性子照射環境下では、欠陥集合体の分解、再結合、集合過程に伴い、様々な集合数の欠陥集合体が発生する。これらの相互作用の反応速度は、例えば大きな欠陥集合体は熱的に安定で熱分解しづらく、拡散速度も遅いなど、集合数に応じて変化する。同様に、欠陥集合体に捕獲される水素同位体の量や安定性も変化すると思われ。

本研究の目的は、このような様々な集合数の原子空孔集合体が核融合炉の運転に伴い W 中に蓄積した際の T 滞留量を定量的に予測する技術を開発することである。

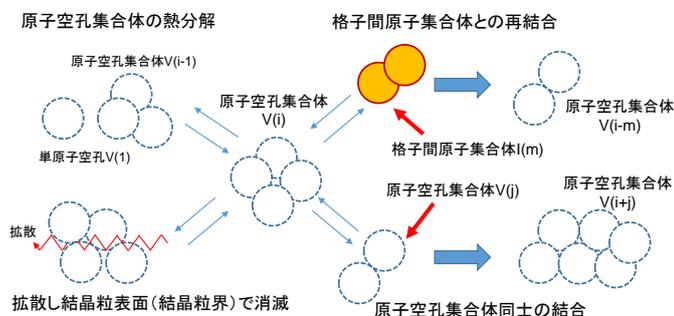


図1 原子空孔集合体の相互作用一覧。ここで、Iは格子間原子、Vは原子空孔、括弧内の文字は集合数を示す。

3. 研究の方法

本研究は、核融合炉材料中の照射欠陥の移行現象を予測するプログラムと、T 移行現象を解くプログラムを作成・結合させることで、炉運転に伴う炉内 T インベントリの定量評価を行うことを目的とする。また、加速器を利用した照射欠陥導入を行い、水素同位体の移行挙動を測定し、作成したプログラムの妥当性を評価する。

加速器を使用し、イオン種、エネルギー及び照射温度、照射量の制御により照射欠陥密度・分布を調整する。この照射試料について、水素同位体ガス曝露により定量的に水素同位体を注入し、その際の水素同位体透過速度、滞留量、脱離速度などを測定する。この加速器を用いた実験では、取扱い施設の制限や多種分析装置の利用を優先し、中性子照射はせずイオンビームによる欠陥導入を行うことでプログラムの妥当性確認を行う。

4. 研究成果

作成したプログラムの妥当性を評価するため、これまでに実施された重イオン照射した W 中の重水素捕獲密度に関する報告値について、本プログラムによる原子空孔密度との比較を実施した。計算条件として、イオン種を 6.4 MeV 鉄 (Fe)イオン または 20 MeV W イオンとし、照射時間を 52 min, 照射量を 0.24dpa とした(損傷速度=7.7x10<sup>-5</sup> dpa/s)。さらに照射温度は

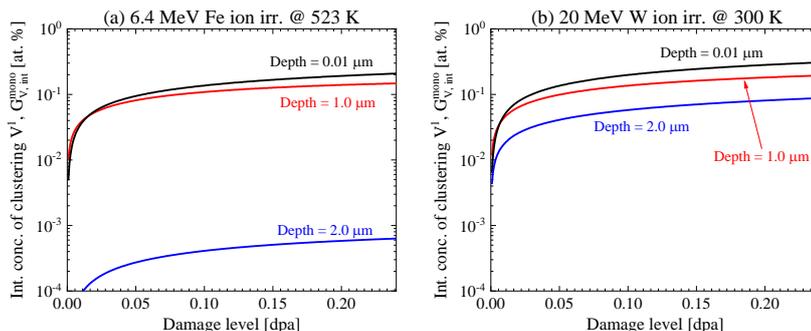


図2 6.4 MeV 鉄イオン及び 20 MeV タングステンイオン照射したタングステン中の、照射量に対する残留原子空孔密度の予測値

523m 773, 1073, 1273 K を想定し、各温度での計算を実施した。

文献において、上記と同様の照射条件で損傷を与えた W に対し、重水素ガス、原子状重水素、または重水素プラズマを曝露し、その後核反応法による重水素密度深さ分布を計測した例を採用し、計算と比較を行った。

図2は 523 K または 300 K でそれぞれ 6.4 MeV Fe イオン、20 MeV W イオン照射した W 中の原子空孔密度の照射量依存性の予測値である。照射開始初期において、原子空孔密度は比較的線形に増加するのに対し、高線量領域では飽和傾向を示した。これは W 中に蓄積した格子間原子との再結合確率が高まることで生じると考えられた。図より、原子空孔密度は 0.2dpa 相当の照射量でほぼ飽和しており、この結果は重水素密度に関する文献値と一致する[2]。

続いて図3は、と同様の条件で損傷を加えた W に対し重水素ガス曝露を 673 K にて実施した W 中の重水素密度の文献値[3,4]と本研究で開発したプログラムで予測した原子空孔密度分布を示している。まず、プログラムで予測した原子空孔の深さ方向分布は、入射面付近で密度が高く、そこから SRIM で予測した飛程付近までは比較的平坦な密度分布で、最終的により深い領域では原子空孔密度は急峻に減少する。特に表面での高い密度とその後の平坦な分布は SRIM を用いた単一イオンによる原子空孔形成分布とは挙動が異なっている。原子空孔と比較して格子間原子は拡散速度が速いため、表面に速やかに到達して消滅することで、表面領域においては原子空孔の再結合確率が減少し、結果的に密度が高くなることが考えられた。同様に、イオンの飛程

から表面にかけて格子間原子の密度分布は減少傾向であるため、この領域で比較的平坦な原子空孔密度が形成することが考えられた。これらの挙動は実際の重水素密度分布の測定結果と非常によく一致することから、本計算の妥当性が示された。

さらに、分布だけでなく原子空孔密度と重水素捕獲密度の定量的比較を可能とするため、20 MeV W イオン照射した W に対し、より低い温度(423 K)で重水素照射した W 中の重水素捕獲密度の文献値と比較したところ、重水素密度の実測値に対する原子空孔密度の予測値は最大で 1:6 程度と評価された。この結果は、第一原理計算の結果で示された、ひとつの原子空孔に最大 6 個程度の水素が捕獲されるという報告と一致しており、この比較からも、本プログラムの定量予測性を確認することができた。

更なるデータベースの確立を目標に、文献データを収集するだけでなく、W 試料に対しプロトンビームや電子線照射を行い、重水素の透過挙動、陽電子寿命測定、トリチウム深さ分布計測を進めた。特にしたプロトン照射 W に対する重水素透過実験では、未照射試料と比較して重水素透過速度が定常に至るまでに必要な時間が大幅に増加した。一方で透過量は照射試料・未照射試料間で差異は確認できなかった。この結果は、W 中を拡散する重水素が照射試料中に存在する原子空孔に捕獲されることで透過速度が定常に到達するまでに余分な時間を要すること、全ての原子空孔が重水素で占有されることで、それ以上捕獲サイトとして機能しなくなるため、定常状態における透過量に差異はない、等が理由と考えられた。今後この実時間重水素透過挙動を別に開発した材料中水素同位体移動現象予測コードにて解析することで、W 中に存在する原子空孔密度の定量評価を行い、本研究で開発したコードによる予測値との比較を行う。さらに、プロトン照射試料、電子線照射試料に対しトリチウムイオン照射を実施している。今後、これらの試料に対し、低電流電解研磨を繰り返し実施することで表面を研磨液中に溶解させ、研磨液中のトリチウム濃度と W 試料の重量減少の対応を定量評価することで、原子空孔によるトリチウム捕獲密度の高精度計測を行う予定である。現在コールド実験として、電解研磨時間と W 試料の重量減少の相関性を調べており、研磨時間と重量減少の線形関係を確認することができた。今後実際にトリチウム照射試料の実験を行い、その結果をプログラムによる予測値と比較することで、確度を高める予定である。

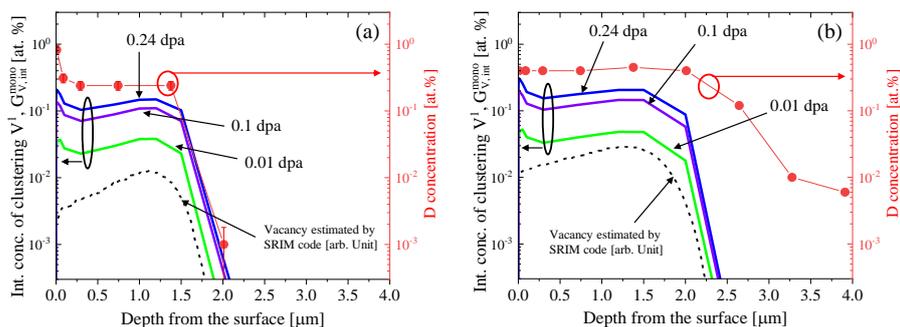


図3 6.4 MeV 鉄イオン及び 20 MeV タングステンイオン照射したタングステン中の、各照射量における残留原子空孔密度の深さ分布予測値と同様の試料へ重水素ガス曝露した際の捕獲重水素密度の実測値

[1]. Y. Hatano, et al., Nucl. Fusion 53 (2013) 073006.  
 [2]. S. Wang, et al., Act. Materialia, 244 (2023) 118578.  
 [3]. Y. Hatano, et al., Nucl. Mater. Energy, 9 (2016) 93-97.  
 [4]. V.Kh. Alimov, et al., J. Nucl. Mater, 438 (2013) S959-S962.  
 [5]. T. Oda, et al., J. Nucl. Mater, 467 (2015) 439-447.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 2件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 小林 真
2. 発表標題 タングステン中の水素同位体移行挙動に対する照射効果
3. 学会等名 日本放射化学討論会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小林 真、波多野雄治、原 正憲、大矢恭久、山内有二、大塚哲平、長坂琢也
2. 発表標題 超高流束水素の制御と応用
3. 学会等名 プラズマ核融合学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Makoto I. Kobayashi, Yasuhisa Oya
2. 発表標題 Evaluation of vacancy accumulation for the prediction of tritium inventory in tungsten
3. 学会等名 International Toki Conference (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 M.I. Kobayashi, Y. Hatano, M. Hara, Y. Oya, Y. Yamauchi, T. Otsuka, T. Nagasaka
2. 発表標題 Control and application of ultrahigh flux hydrogen in materials
3. 学会等名 International Toki Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小林 真、大矢恭久
2. 発表標題 反応速度論解析によるタングステン中照射欠陥蓄積量評価
3. 学会等名 日本原子力学会秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Makoto Kobayashi
2. 発表標題 Development of the simulation code for the migration of irradiation defects in tungsten for tritium inventory evaluation
3. 学会等名 15th International Workshop on Hydrogen Isotopes in Fusion Reactor Materials (国際学会)
4. 発表年 2021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