

二国間交流事業 共同研究報告書

令和5年4月28日

独立行政法人日本学術振興会理事長 殿

[日本側代表者所属機関・部局]

富山大学・学術研究部理学系(水素同位体科学研究センター)

[職・氏名]

教授・波多野 雄治

[課題番号]

JPJSBP 120204808

1. 事業名 相手国: ロシア (振興会対応機関: RFBR) との共同研究

2. 研究課題名

(和文) 水素同位体をプローブとした W および W 合金における照射欠陥の拡散に関する研究

(英文) Study of defect diffusion in tungsten and tungsten alloys using hydrogen isotope as

probe of defect distribution

3. 共同研究実施期間 2020年4月1日 ~ 2023年3月31日 (3 年 0 ヶ月)【延長前】 2020年4月1日 ~ 2022年3月31日 (2 年 0 ヶ月)

4. 相手国側代表者(所属機関名・職名・氏名【全て英文】)

National Research Center Kurchatov Institute, Head of Laboratory, Spitsyn Alexander Viktorovich

5. 委託費総額(返還額を除く)

本事業により執行した委託費総額		4,370,000 円
内訳	1年度目執行経費	2,303,750 円
	2年度目執行経費	2,066,250 円
	3年度目執行経費	- 円

6. 共同研究実施期間を通じた参加者数(代表者を含む)

日本側参加者等	6 名
相手国側参加者等	10 名

* 参加者リスト(様式 B1(1))に表示される合計数を転記してください(途中で不参加となった方も含め、全ての期間で参加した通算の参加者数となります)。

7. 派遣・受入実績

	派遣		受入
	相手国	第三国	
1年度目	0	0	()
2年度目	0	0	()

3 年度目			()
-------	--	--	-----

* 派遣・受入実績(様式 B1(3))に表示される合計数を転記してください。

派遣:委託費を使用した日本側参加者等の相手国及び相手国以外への渡航実績(延べ人数)。

受入:相手国側参加者等の来日実績(延べ人数)。カッコ内は委託費で滞在費等を負担した内数。

8. 研究交流の概要・成果等

(1)研究交流概要(全期間を通じた研究交流の目的・実施状況)

全期間を通じて、新型コロナウイルスによる感染拡大と、ロシアによるウクライナ侵攻の影響を受けたため、対面での交流は実現しなかった。しかし、オンライン会議で研究打合せを行い、日露双方で実験に取り組むと共に、データの共有、共同での解析・考察を行い、当初の研究目標をほぼ達成した。

本研究の目的は、高エネルギー粒子の照射によりタングステン(W)結晶中に形成される格子欠陥の拡散挙動に及ぼす合金元素の影響を、日露の合金製造技術、照射装置および材料分析装置を駆使して明らかにすることである。背景にあるのは、W 中の格子欠陥による水素同位体の捕捉現象と、それによるトリチウムの蓄積である。W は将来のエネルギー源として期待される核融合炉の炉心内壁材料の候補である。重水素とトリチウムの核融合反応で発生する高エネルギー中性子が W に入射すると、結晶中で W 原子のはじき出しが起こり、格子間原子と空孔が形成される。空孔およびその集合体(以下、空孔型欠陥)は W 中に溶解している水素同位体原子を強く捕捉するため、空孔型欠陥が多量に形成されると、W 中に放射性同位元素であるトリチウムが高濃度に蓄積されることになる。万一の事故時の放射能漏洩リスクを低減するため、炉心中に蓄積するトリチウム量は極力小さく抑える必要がある。そのためには、空孔型欠陥の生成を抑制しなければならない。空孔と格子原子が再結合すれば欠陥は消滅するが、個別に拡散してそれぞれの集合体を形成してしまうと、多量の空孔型欠陥が残存することとなる。このように、残留する空孔型欠陥の濃度と欠陥の拡散挙動とは密接に関係している。そこで、合金元素を添加することにより、空孔および格子間原子の拡散を制御し、空孔の消滅を促進することを着想した。

ロシアにて、アーク溶解法を用いて格子欠陥をほとんど含まない W、W-Re(レニウム)、W-Ta(タンタル)、W-Mo(モリブデン)合金試料を作製した。蒸気圧が大きく異なることからアーク溶解法では W-Cr(クロム)合金は作成できなかったため、同合金は日本において粉末冶金法で作製した。はじき出し損傷を生じさせるため、これらの試料に 523~1273 K で高エネルギー中性子あるいは鉄(Fe)イオンを照射した。重水素ガスあるいは重水素プラズマに曝露したのち、重水素保持量を測定することで、重水素を捕捉している欠陥量を評価した。重水素保持量は昇温脱離法および核反応法で測定した。また、空孔型欠陥のサイズ分布を陽電子寿命測定により評価した。

Wに CrおよびReを添加した場合には、中性子およびFeイオンを照射しても陽電子寿命に変化は見られず、重水素保持量も増大しなかった。すなわち、陽電子寿命や重水素をプローブとする方法では検出できないレベルまで、空孔型欠陥の生成が抑制された。一方で、Ta および Mo を添加した場合には、Fe イオン照射後に純 W と同程度の陽電子寿命と重水素保持量の増大が見られた。すなわち、TaおよびMoは格子欠陥の拡散にほとんど影響を与えなかった。

Suzudo らは第一原理計算によりW中の格子欠陥と合金元素原子の結合エネルギーを評価し、CrおよびReは空孔とはほとんど相互作用しないものの、格子間原子とは強く結合することを報告している(Suzudo et al., Journal of Nuclear Materials, 505, 15-21, 2018)。また、同様に Suzudo らによると、Ta および Mo は空孔、格子間原子のいずれとも強い結合は形成しない。以上のことを踏まえると、Cr および Re を添加することで空孔の形成が著しく抑制されたのは、これらの添加元素が W 格子間原子と結合を形成し、その拡散を抑制することで、空孔との再結合を促進したためと考えられる。すなわち、添加元素がない状態であれば空孔と比べ遥かに拡散係数が大きい格子間原子は、単独で格子中を拡散し、結晶粒界や転移などのシンクへ移動して消滅してしまう。これにより、再結合の相手を失った空孔が残存し、トリチウムの捕捉サイトとして働く。Re と Cr が格子間原子と結合

してその拡散を抑制すると、結果として格子間原子が空孔の近くに長時間留まることとなり、空孔と格子間原子の再結合が促進される。

なお、高エネルギー粒子を照射し欠陥を生成した温度と、その後の重水素保持量の相関を調べた結果、空孔消滅反応の見かけの活性化エネルギーは W-Cr 合金と W-Re 合金で違いはなく、いずれの場合も約 0.6 eV であった。この値は、格子間原子の拡散の活性化エネルギーと比べると著しく大きく、また非照射下での空孔の拡散の活性化エネルギー (1.78 eV) と比べると明らかに小さな値であった。連続的に原子のはじき出しが起こっている照射下では、結晶格子の乱れにより空孔の拡散の活性化エネルギーが 0.6 eV 程度まで低下したものと考えられる。我々が知る限り、これはタングステンについて照射下での空孔の拡散の活性化エネルギーを評価した世界初のデータである。Re あるいは Cr 原子によって足止めされた W 格子間原子に向かって空孔が拡散することにより、再結合による欠陥の対消滅が生じたと推察される。

(2)学術的価値(本研究交流により得られた新たな知見や概念の展開等、学術的成果)

核融合炉材料の開発には、高エネルギー中性子の照射に対する耐性を評価することが不可欠である。しかし、中性子照射は研究用原子炉を用いて行うことが一般的であり、多額の予算を必要とする。また、中性子照射により核変換が生じ試料が誘導放射能を帯びるため、短半減期核種による放射能が十分に減衰してから実験を行う必要があり、5~10 年程度の長期のプロジェクトとなる。従って、候補となる材料について手当たり次第に中性子照射を行うことは現実的でなく、高い照射耐性が得られると予想される材料を十分に絞り込んでから試験に供する必要がある。本研究では、W 格子間原子と強く結合する元素を添加することで、格子間原子の実効的な拡散係数を減少させ、空孔との再結合を促進できることを明らかにした。W 格子間原子と添加元素の結合エネルギーは第一原理計算等で評価が可能であり、本研究の成果は、計算機シミュレーションにより照射耐性が高い材料を予測する場合の精度を大きく向上させる。すなわち、本研究の成果は、耐照射性に優れるタングステン合金の設計指針を与え、将来の中性子照射試験に供するための材料選定に大きく貢献する。

(3)相手国との交流(両国の研究者が協力して学術交流することによって得られた成果)

新型コロナウイルスによる感染拡大と、ロシアによるウクライナ侵攻に伴い、日露間の往来は実現しなかった。一方で、オンライン会議システムおよび電子メールでの研究打ち合わせや情報交換を頻繁に行いつつ、日露それぞれで実験を行うことで、上述のような成果を得ることができた。国内の移動も新型コロナウイルスの影響で大きく制限されたが、同様にオンライン会議システムおよび電子メールでの打ち合わせや情報交換により研究を進めた。

タングステンおよびその合金は室温近傍では脆く、製造および加工が困難な材料である。しかし、ロシア側は高い脆性材料製造・加工技術を有しており、アーク溶解法により、格子欠陥の濃度が極めて低い試料を調製することができた。これにより、高エネルギー粒子の照射によって形成される格子欠陥を高感度に検出することが可能となった。また、ロシア側研究者は核反応法による重水素の分析や、水素同位体の昇温脱離スペクトルの解析にも習熟しており、そのノウハウを核融合科学研究所および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という共同利用機関に移転することができた。これらの技術移転の成果は、今後の核融合科学研究所および東北大学金属材料研究所の共同利用にも活かされることから、中長期的に関連研究の進展に大きく寄与すると考えられる。

(4)社会的貢献(社会の基盤となる文化の継承と発展、社会生活の質の改善、現代的諸問題の克服と解決に資する等の社会的貢献はどのようにあったか)

核融合炉は二酸化炭素を放出しない大規模エネルギー源として期待されており、地球温暖化防止のキーテクノロジーの一つと認識されている。内閣府にはイノベーション政策強化推進のための有識者会議「核融合戦略」が設置され、令和 5 年 3 月には「フュージョンエネルギー・イノベーション戦略(案)」が策定された。発電実証を目指す原型炉の設計が量子科学技術研究開発機構、核融合科学研究所、大学、民間企業の協力で進められると同時に、より早期の商業発電を目指したスタートアップ企業も数多く立ち上がっている。多くの核融合炉実現構想においてタングステン炉心内壁材料として用いることが想定されており、本研究の成果は、これら産官学における核融合開発に貢献するものである。

(5)若手研究者養成への貢献(若手研究者養成への取組、成果)

本研究には、若手研究者として核融合科学研究所で加速器の運転を担当している矢嶋美幸氏が参加していた。材料中の水素同位体の検出には核反応法が有効であるが、矢嶋氏にはその経験がなく、核融合科学研究所にも設備は存在しなかった。一方で、上述のようにロシア側には豊富なノウハウがあった。核反応法で高感度かつ高精度に水素同位体濃度を定量評価するためには、核反応で生成する粒子のエネルギー分布を測定するのに十分な立体角を有する半導体検出器の選定や、一次ビーム・試料・検出器の配置の最適化などが必須である。そこで、オンライン会議を通してロシア側のアドバイスを得ながら、半導体検出器の選定、試料ステージの設計などを行った。また、同氏は水素同位体の昇温脱離試験も実施しているが、脱離スペクトルの解析手法についても、矢嶋氏、参加大学院生を含む日本側へ技術移転がなされた。

矢嶋氏ならびに大学院生にロシアでの研究経験を与えたかったが、新型コロナウイルスによる感染拡大と、ロシアによるウクライナ侵攻により実現しなかったのは残念であった。一方で、オンライン会議で外国人研究者と討論する技術(安全保障貿易管理上の注意、プレゼン資料の準備、議事録の作成および決定事項の確認など)については、大きな教育効果があった。

(6)将来発展可能性(本事業を実施したことにより、今後どのような発展の可能性が認められるか)

空孔に比べ格子間原子の方が遥かに大きな拡散係数を有するということは、タングステンに限らず、ほとんどの金属で見られる普遍的な現象である。合金元素を格子間原子と結合させることで実効的拡散係数を減少させ、空孔近くに足止めすることで再結合を促進するという手法は、他の合金系にも適用できる可能性がある。核融合炉内壁材料に限らず、同様に高エネルギー粒子の照射を受ける原子炉材料、加速器材料、宇宙機器の材料等の耐照射性の向上に本研究の成果が活きる可能性がある。また、これらの分野における国際共同研究に発展する可能性もある。

(7)その他(上記(2)~(6)以外に得られた成果があれば記載してください)

例:大学間協定の締結、他事業への展開、受賞など

招待講演

(1) T. Toyama, M. Yajima, T. Kuwabara, V. Kh. Alimov, K. Suzuki, Y. Nagai, N. Ohno, Y. Hatano, Application of positron annihilation spectroscopy and compact divertor plasma simulator for studies of hydrogen retention in neutron-irradiated tungsten, 20th International Conference on Fusion Reactor Materials, October 24–29, 2021, Online.

(2) Y. Hatano, M. Yajima, V. Kh. Alimov, T. Toyama, Y. Nobuta, Y. Oya, T. Kuwabara, K. Suzuki, T. Schwarz Selinger, A. V. Spitsyn, A. Matsumoto, N. Ohno, Fuel Retention in and Removal from Neutron Irradiated Tungsten, 18th International Conference on Plasma-Facing Materials and Components for Fusion Applications, May 17-21, Online.