

論文内容の要旨

論文題目

Modelling of Interaction of Fuel Particles with Surfaces in Nuclear Fusion Reactor by use of Cellular Automaton

(セルオートマトン法による核融合炉燃料粒子-表面相互作用のモデル化)

氏名 志村 憲一郎

(本文)

はじめに

核融合炉の開発では、プラズマ壁相互作用 (Plasma-Wall Interaction; PWI) の解明が重要な課題の一つである。PWI として主に、壁面物質の蒸発、スパッタリング、水素リサイクリングなどが挙げられる。これらの現象は、プラズマ燃焼性の低下や燃料となるトリチウムの環境への漏洩など、好ましくない結果を生ずる。これらがいかに引き起こされるかを知ることが、高い安定性を持ったプラズマの維持、トリチウムを含む燃料粒子の管理などの要請から是非必要であり、プラズマ対向材料に関する水素粒子挙動を把握することが重要である。

本研究の目的

燃料粒子-表面相互作用は、材料表面付近における燃料粒子のダイナミクスが重要となり、気相と表面、表面とバルクの2つの相互作用から形成される。材料表面は燃料粒子の輸送挙動からみた場合、2次元の非連続面として解釈でき、様々な素過程が混在する。これらの素過程を統一的に反応速度論で扱うことは困難である。また、従来の微分方程式を基礎とするモデルでは、バルク内における入射粒子の挙動は拡散方程式に従うことから、「表面」は単なる拡散方程式の境界条件としての扱いがされる。しかし、表面をさらに厳密に扱うには、関数の連続性、飽和などの非線形性などの問題が浮上する。また、通常、表面には不純物や欠陥などが存在し、平滑ではなく局所的に非常に活性な部分などが局在する。この状況を考えると、微分方程式に依存したモデルによる解析手法では各条件の決定が難しく非効率的だ。以上の理由から、離散的な手法であるセルオートマトン (Cellular Automaton; CA) 法を利用したモデル化の可能性、妥当性、応用性を検討し、燃料粒子-表面相互作用の理解をさらに深めることを目的とする。

水素輸送の概念、従来モデルとその問題点

材料中に注入された水素は、あるプロファイルを持って深さ方向に分布する。注入された水素は、格子間原子として拡散し表面に到達し、再結合により気相中に脱離する。これらは、バルク内拡散、バルクから表面への偏析、表面から気相 (真空中) への脱離から成る。水素は、バルク内では原子状態で拡散するが、表面及びその近傍で再結合により水素分子を形成し、分子状態で放出される。また気相中に水素がガスとして存在する場合、この逆方向の輸送として気相から表面への吸着、表面からバルクへの溶解が同時進行する。表面付近における水素の挙動はいくつかの素過程から成り、各素過程の

複合的な結果としてバルク方向へ原子状での拡散、または分子状での脱離が起こる。従来の手法では、再結合係数と呼ばれる現象的パラメータを導入することで各素過程を考えずに、それらの複合的要素として再結合を扱う。同時に、表面—サブ表面間における輸送が平衡状態にある(Surface Sub-surface Equilibrium, SSE)と仮定する。すなわち、気相とバルクを直接的な関係として表すことで、表面過程をバルク拡散方程式の境界条件として扱える。しかし、表面—サブ表面間における輸送の平衡条件においては、表面方向またはバルク方向実質的な水素原子の輸送が無視されており、この扱いは定常状態において有効であるが、過渡状態への適用は懐疑的である。ゆえに、過渡状態を表すためには SSE 条件からの脱却が必要であり、各素過程を忠実に扱う必要がある。これらの過程は、気相(真空)、表面、バルクの三種類の違った性質を持つ媒体中の水素原子、分子の輸送であり、それらのダイナミクスもまた違ったものとなる。気相(真空)と表面、表面とバルクの二つの界面があり、その間にある表面は輸送挙動に大きく関係するため表面過程は燃料・粒子相互作用の理解において重要な意味を持つ。

モデリング

本研究では、大別して真空—表面相互作用、表面—バルク相互作用、ガス—表面相互作用の三つのモデルを開発した。第一に、真空—表面相互作用では水素の金属表面からの脱離モデルを開発した。主な脱離のメカニズムは、表面上に化学吸着した水素原子が表面拡散により表面上を移動し2つの原子が会合し、水素分子を生成し脱離すると考えられる。化学吸着はシノソイダルに二次元表面に広がったポテンシャルの谷間に吸着原子が位置しており、表面拡散は、吸着原子がその谷間から隣の谷間へ熱活性化過程でホッピングする事により起こる。この現象により吸着原子は会合し、また会合した原子同士のみが脱離しうる確率を持ち、脱離の活性化エネルギーを越えるもののみが脱離する。このメカニズムにおける脱離モデルでは、二次元正方格子及び一次元正方格子を用いたモデルを開発した。まず、二次元正方格子を用いた脱離モデルでは、Chopard らによる拡散 CA モデルを用いて表面拡散を表す。これは、 2×2 セルのマーグラス近傍を用い、セル内部を粒子が左右に回転する遷移ルールを用い拡散現象が表せる。脱離は表面拡散した二つの原子が会合することが必要条件となるため、各マーグラスブロック中に二つ以上の粒子が隣り合って存在する時にのみ起こり、脱離の成功は、ブロック中から二つの粒子が消えることで表され、その遷移確率は熱活性化過程に依存する。すなわち、ポテンシャル障壁を越えるか越えないかを判断する事で脱離の成功、不成功を決定する。反対に脱離が失敗ならばブロック中の状態は変化しない。しかし、燃料—粒子相互作用のシミュレーションへの応用を考えた場合、バルク拡散を扱う必要がある。二次元格子モデルでは、表面を2次元として扱っているが、バルクの効果を入れた場合、全体で3次元のモデルが必要となり、同時に計算コストが非常に大きくなる。そこで、表面過程の一次元化を検討し、一次元表面からの脱離モデルを開発した。通常、表面からの水素の脱離は二次反応で表され、ある意味では、表面拡散による表面原子の会合確率を表している。それゆえ、一次元正方格子中に存在する粒子は、各時間ステップごとにランダムに置き換わることで表面拡散を表すことができると考えられる。すなわち、各粒子の存在確率は被覆率と一致し、それらが隣り合う確率は被覆率の二乗に一致する。脱離に関しては、基本的に2次元の時と同じ考えに基づく。1次元の格子を端から順番に各セルの状態を見て行き、隣り合った2つのセルに同時に粒子が存在した時、熱活性化過程による確率で脱離が決定され、セル中から二つの粒子が消えることで脱離を表す。第二に、表面—バルク相互作用をモデル化しバルクとの輸送の関係付けを行った、バルクは二次元正方格子で表し、同時に表面は一次元正方格子で表される。表面脱離は、上記し

た一次元脱離モデルを適用し、バルク拡散は前述した拡散 CA モデルを用いる。しかるに、表面—バルク間の輸送をモデル化する必要がある。バルク第一層をサブ表面と見なし、表面—サブ表面間の輸送と考えられる。表面格子上的の粒子は、その真下のサブ表面セルに粒子が存在しない場合またはその逆の条件を満たすことで粒子の移動の必要条件が満たされ、移動の成功、不成功は各移動に必要なポテンシャル障壁を越えるか越えないかの熱活性化過程による。第三に、ガス—表面相互作用のモデルを概説する。二次元正方格子を材料表面と見なし、各吸着サイト等を配置し、その真上に同サイズの二次元正方格子を配置しこれを気相とする。気相中は、各分子が気体分子運動論に沿って配置され、表面に入射していると考え。気相と表面の正方格子間で熱活性化過程を考えることで、表面での吸脱着を表す。

結果と考察

真空—表面相互作用、表面—バルク相互作用のモデルで、水素と金属の相互作用を主体とし、主に昇温脱離の模擬を行った。昇温脱離実験は表面過程の理解の上で重要な手法で、様々な素過程の複合的な結果をもたらす。また、これは過渡的な手法であり高温領域での水素注入による昇温脱離実験では、しばしば説明の難しい結果となる。そこで、昇温脱離は CA 法を利用したモデル化の可能性を探る上で重要な位置づけを持つと考え、基本的な仮定のもとに単純な昇温脱離のシミュレーションを行った。一次元及び二次元脱離モデルでは、速度論による結果との一致が見られ、モデルの妥当性、自己完結性が確認された。これは、バルク相互作用を入れたモデルへの適用の妥当性を示唆している。再度、昇温脱離の模擬を行った結果、脱離スペクトラムに新しいピークが観られ、実験結果との定性的な一致が観察された。昇温脱離におけるバルクの効果が明らかとなり、それは昇温時におこる律速過程の変化に起因するものと結論づけられた。ガス—表面相互作用モデルでは、水素と水の酸化リチウム(トリチウム増殖材)における吸脱着反応を模擬し、速度論的アプローチとの比較から定性的な議論が成された。

総括

本研究では、表面を介する輸送の CA モデルを開発した。水素、金属における相互作用では表面で濃度の連続性を失うような系を一般的に扱える。また、表面をバルクの一部として扱う従来の輸送モデルに比べ、各界面を明確に区別していることから、過渡状態を表す上で有利であるといえる。しかし、従来の方法に比べ、さらに詳細なパラメータが必要であり、それらが既知の材料のみシミュレーションが可能である。また、計算結果から速度論的な手法との定性的な一致がみられ、単一の素過程のモデルにはある程度の定量性がみられた。しかし、複合的な素過程における定量性は確認されていない。また、実験結果の定性的な議論に効果があり、有用である。計算コストの面から観ると、速度因子が指数関数的であるため比較的大きなサイズの格子が必要であるといえる。最後に、定量的な議論にはさらなる理論的な解析が必要と考える。