

審査の結果の要旨

氏名 毛 偉

核融合炉ブランケットにおいて、炉内での自己供給が求められている燃料トリチウムの配管を通した透過漏洩による損失を抑えるため、配管にセラミックコーティングを施す技術が検討されている。酸化エルビウムを用いたセラミックコーティングにおいて、水素同位体透過の律速過程がコーティング中の欠陥の影響を受けている事を示唆する結果がこれまでに報告されており、結晶粒界などの欠陥と水素同位体の相互作用についての解明を行うことが極めて重要となっている。本研究は、酸化エルビウムコーティング中の水素同位体透過過程について、これまで全く行われてこなかった計算機によるシミュレーションを実施し、コーティングと水素同位体との相互作用に関するいくつかの重要な特性を明らかにしたものであり、5章から構成されている。

第1章は序論であり、本研究の背景と目的について述べている。トリチウム透過漏洩低減のためのセラミックコーティングの研究開発状況について概観し、割れや剥離が原因と考えられる低い透過低減性能を指摘するとともに、そのメカニズムの解明のためには、結晶粒界などのコーティング中の欠陥と水素同位体の相互作用を研究することがきわめて重要であると述べている。また、結晶粒内、粒界、表面などの欠陥等と水素同位体の相互作用についてのシミュレーション手法として密度汎関数法と分子動力学法を紹介するとともに、本研究の目的について述べている。

第2章では、密度汎関数法を用いた計算により、完全結晶の酸化エルビウム表面における水素同位体挙動について検討している。水素同位体の酸化エルビウム表面への吸着、表面からバルクへの進入について厳密な計算を行うために、まず密度汎関数法により立方晶の酸化エルビウム結晶を構築し、その構造と電子状態について評価している。次に、(001)面を中心として、(110)および(111)面における水素分子の解離、吸着、バルクへの進入について、表面エネルギー、各サイトにおける吸着熱、進入時の活性化エネルギーを求めている。水素分子の解離については、分子が表面に対して平行に配置される過程が支配的であることを明らかにするとともに、吸着においては、表面において水素が原子状で吸着することと、表面拡散の検討より安定な吸着サイトとして四面体空隙が存在することを明らかにしている。また、面が異なると吸着熱に変化が起こることについても言及している。バルクへの進入については、安定位置である四面体空隙までの活性化エネルギーを求めることにより、(111)面において他の面より高い活性化エネルギーが得られることを明らかにしている。さらに、本研究で解析した軽水素と核融合炉で使用されるトリチウムとの間の同位体効果についてまとめている。

第3章では、第一原理計算により酸化エルビウム結晶粒内の水素拡散について検討している。水素拡散を記述するために、密度汎関数法による計算の詳細と酸化エルビウム

の構造について述べ、欠陥の無い酸化エルビウムにおける水素原子の専有サイトが四面体空隙と八面体空隙であることと、それぞれの拡散経路を明らかにし、その時の活性化エネルギーを得ている。また、第一原理分子動力学法を用いて単結晶酸化エルビウム中の水素拡散係数を算出し、過去の研究で得られている実験値との比較を通して、結晶内に存在する欠陥が透過挙動に大きく影響を与えることを明らかにするとともに、酸化エルビウム中の点欠陥サイトに水素がトラップされることを見出している。さらに、電荷によるトラップ挙動の変化や、水素拡散における同位体効果について拡散係数や活性化エネルギーを計算し、比較を行っている。

第4章では、酸化エルビウム結晶粒界の水素拡散について検討している。計算に先立ち、水素同位体透過試験後の酸化エルビウムコーティング試料の柱状結晶の粒界に対する透過型電子顕微鏡観察を行うことにより、実際に観察された[111]方向に配向した Σ 13粒界をモデル化し、古典分子動力学法による水素拡散挙動の計算を実現した。これにより、結晶粒界における水素拡散係数が初めて明らかにされ、粒内拡散より粒界拡散が2~4桁速いことが示された。さらに、傾角を変えることによる拡散係数への影響についても議論を行っている。

第5章では、本論文の結論を述べている。各章で得られた結論の概要を示すとともに、実験で得られた透過の律速過程の活性化エネルギーが、本研究で得られた結晶粒界における水素拡散の活性化エネルギーに近いことを示し、透過の律速過程が結晶粒界拡散であると結論づけている。また、結晶粒界密度の低減がさらなる水素透過低減に有効であることから、大結晶粒コーティングの作製手法について提言している。

以上をまとめると、本研究は、酸化エルビウムコーティング中の水素同位体透過の律速過程を解明する上で重要な水素同位体の原子過程について、計算科学的手法を用いることにより明らかにしたものであり、核融合炉ブランケット研究開発に関して有益な知見を与えるものであるのみならず、核融合炉工学に寄与するところが少なくない。

よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。