原子炉起動後の腐食環境緩和及び放射性核種付着抑制技術の開発 (8)酸化皮膜溶解過程の超高速化量子分子動力学シミュレーション

Development of Suppression Method for Deposition of Radioactivity and Mitigation of Corrosive Environment (8) Ultra-Accelerated Quantum Chemical Molecular Dynamics Simulations of Dissolution Behavior of Oxide Layer

*畠山 望¹, 稲葉賢二¹, 石澤由紀江¹, 宮本 明¹, 大橋利正², 伊藤 剛², 細川秀幸², 川嵜 透³ ¹東北大学, ²日立・研開, ³日立 GE

BWR 再循環系配管に Pt ナノ粒子を被覆することにより、腐食環境を緩和し、放射性核種の付着を抑制す る技術の開発を進めている。その中で、独自に開発した従来手法比 1000 万倍高速な超高速化量子分子動力 学法を用いて、Pt ナノ粒子の存在による酸化被膜との反応過程について、解析を行った。 **キーワード**:再循環系、白金、配管、計算化学、⁶⁰Co、被ばく低減

1. 緒言

様々な産業分野で実践的な応用を進めている、超高速化量子分子動力学(UA-QCMD)[1]による計算化学手 法を、Pt と酸化被膜の反応過程の解明に適用した。量子論に基づいた原子レベルのダイナミックス計算を 行うことで、酸化皮膜内の金属-酸素間の化学結合の変化について、理論的に検討した。

2. 計算手法

UA-QCMD は、独自の Tight-Binding 近似とポテンシャル関数の構築によって、従来手法に対して約 1000 万倍の高速化を達成している。計算精度についても、多くの金属・化合物について、密度汎関数法(DFT) の結果や実測に基づく熱力学データをよく再現することが可能である[2]。

3. 計算結果

図1に、計算モデルの一例を示す。図2に示すよ うに、本計算で用いる金属・酸化物について、 UA-QCMDはDFTや実測による結合エネルギーをよ く再現する。図3に、Pt表面で発生する活性水素が、 外層酸化皮膜である Fe₂O₃表面に次々と到達して反 応していく様子について、UA-QCMD により計算し

た結果を示す。H と反応した最表 層のOが、隣接するFe との結合 を保ったまま下層のFe との結合 を切って、水中に移動していく。 Pt によるFe₂O₃溶解過程に、H が 関与する機構が明らかになった。 参考文献





図3 水中の Fe2O3 表面の水素原子による還元溶解ダイナミックス

[1] Md. K. Alam et al., J. Phys. Chem. C, 113, 7723, 2009; F. Ahmed et al., ibid., 117, 5051, 2013.

[2] A. Miyamoto et al., SAE Technical Paper 2012-01-1292, 2012.

^{*}Nozomu Hatakeyama¹, Kenji Inaba¹, Yukie Ishizawa¹, Akira Miyamoto¹, Toshimasa Ohashi², Tuyoshi Ito², Hideyuki Hosokawa² and Toru Kawasaki³

¹Tohoku Univ., ²Hitachi, Ltd., Research & Development Group, ³Hitachi-GE nuclear Energy, Ltd.