

ジルコニウム中水素化物の第一原理計算

A Template for Writing Manuscript for the Meeting of AESJ

First-principles study of Hydride in Zirconium

*板倉 充洋¹, 沖田 泰良²

¹原子力機構, ²東京大学

ジルカロイ燃料被覆管における水素化物析出による脆化について、照射欠陥クラスタへの水素偏析が駆動現象になると仮定し、その仮定を検証するため第一原理計算で純 Zr 中の空孔クラスタや積層欠陥への偏析エネルギー等を評価する。

キーワード：ジルコニウム, 第一原理計算, 燃料被覆管

1. 緒言

ジルカロイ燃料被覆管は一定の燃焼度あるいは時間の経過の後に水素吸蔵量が増加しはじめると共に c 軸方向への収縮ひずみが発生する。これらはジルコニウム(Zr)の c 成分転位ループの生成がトリガーとなっていると考えられているが、具体的なメカニズムは不明である。本発表では第一原理計算により、空孔が集合して転位ループとなるプロセスと、そこに水素が吸着されるメカニズムを推定する。

2. 計算結果

これまでの研究では、Zr 中で底面{0001}のエネルギーが柱面{1-100}よりも低いために原子空孔が平面状に集積すると仮定されていた。今回、六方晶金属で重要だが今まで計算されていなかった錐面{1-101}のエネルギーを計算したところ、底面とほぼ同じエネルギーが得られた。したがって単純にエネルギー的な議論では空孔は単純に球状に集積することになり、平面的クラスタを作る理由とはならない。既往研究では、Zr 中の空孔や格子間原子は面方向へ拡散しやすいことが分かっている[1]、平面クラスタはこうした異方的拡散によるものと考えべきである。

このようなプロセスで生成した平面状の空孔クラスタの上下の原子面が接近して閉じ、さらに面方向にずれて ABAB_BABA という構造が ABABCBCB となることで積層欠陥をもった転位ループとなる。積層欠陥への水素の吸着エネルギーは既往研究で 0.1eV 程度と計算されているが[2]、我々は面が閉じる途中の状態への水素吸着エネルギーを計算したところ、より強く吸着されることが分かった。この状態は局所的に fcc 格子となっており原子間隔も Zr より大きく水素化物 ZrH の fct 構造に近くなることが分かった。

3. 結論

ジルカロイは様々な添加元素を含むため、純粋な Zr での計算がどの程度応用できるかは不明である。しかし本発表のような基礎物性の知見を集積していくことは経年変化を理解するうえで重要であると考えられる。

参考文献

- [1] Iwasawa, M., Ohnuma, T., & Soneda, N. (2008). Ab Initio Electronic Structure Study of ALPHA-Zirconium and Hydrogen. Materials transactions, 49(12), 2765-2769.
- [2] Varvenne, C., Mackain, O., Proville, L., & Clouet, E. (2016). Hydrogen and vacancy clustering in zirconium. Acta Materialia,

*Mitsuhiro Itakura¹, Taira Okita²

¹JAEA, ²Univ. Tokyo.