UO2 および ZrO2 の表面張力の計算による評価

Calculation of Surface tension in Liquid UO2 and ZrO2

*板倉　充洋 [1]，中村 博樹 [1]
[1]JAEA,

過酷事故解析に必要となる燃料溶融物の表面張力を、分子動力学計算および第一原理計算で評価した結果を示し、実験結果と比較する。

キーワード：第一原理計算

1. 緒言

軽水炉の過酷事故においては酸化した被覆管である ZrO2 と燃料の UO2 が溶融、混合し落下すると考えられる。これらの物質はいずれも融点が 3000K 付近と非常に高く、液体の物性を測定する実験手法が限られるため計算・シミュレーションによる補完が重要となる。計算で評価する場合、古典的な分子動力学を用いた計算では、ポテンシャルが主に固体の物性を再現する目的で作成されていることが多いため液体の物性に関しては信頼性が低い。そのため第一原理計算を用いて評価することになるが、この場合扱える原子数が限られるために大規模な計算はできない。たとえば液体状態の気液界面の平均エネルギーは比較的容易であるが、エントロピーの効果まで考慮した表面の自由エネルギーの評価には多くの原子と長時間の計算が必要となる。実験において観測されるのはこの自由エネルギーであるため、本研究では第一原理計算で界面エネルギーおよび界面自由エネルギーを測定することを行い、どの程度の計算が必要で、どの程度の精度で計算可能かを調べた。

2. 計算結果

第一原理計算では ZrO2 と、二酸化アクチノイドで UO2 と同じ構造を持つ ThO2 について計算を行った。また UO2 については古典 MD を用いて計算を行った。これは UO2 では磁性や相対論効果、電子相互作用などを取り入れる必要があり液体状態の第一原理計算自体が困難であったためである。第一原理計算では 432 原子を用い、MD 計算では 2000 原子を用いて気液界面の計算を行った。その結果、第一原理計算では界面エネルギーは 10%の精度で評価でき、おおむね固体状態での<111>面のへき開エネルギーの 80%程度のエネルギーとなることが分かった。また応力を用いた界面自由エネルギーの計算は第一原理計算ではゆらぎが大きいため評価できなかった。MD 計算では大規模な系を扱えるため自由エネルギーを評価することができ、値は 0.5J/m2 程度、エントロピーの効果は 0.1J/m2 程度であることが分かった。また温度依存性は小さいという結果が得られた。これらの値は最近行われた実験の結果と矛盾しない。

3. 結論

計算の結果、界面自由エネルギーは界面エネルギーだけでもある程度の見積もりができ、これが上限を与えることが分かった。実験との比較においてこの情報は有用となる。エントロピーの効果まで取り入れるためには第一原理計算をもとに機械学習で作成したニューラルネットポテンシャルを用いて評価する必要がある。そのためには各原子の電荷が状況によって変化する効果を取り入れる必要があると考えられる。

*Mitsuhiro Itakura[1] , and Hiroki Nakamura[1]
[1]JAEA