

DFT 計算による Cs-B-O 系化合物の熱力学特性評価

Evaluation on thermodynamic properties of Cs-B-O compounds using DFT calculations

*鈴木 知史¹

¹ 日本原子力研究開発機構

軽水炉過酷事故において、BWR 制御材であるホウ素(B)はセシウム(Cs)と化学反応を生じて Cs-B-O 系化合物が形成され Cs の化学挙動に影響を与える可能性が示されている。そこで、SA 時の Cs 化学挙動の基礎的理解のため、Cs-B-O 系化合物の熱力学特性を DFT 計算と格子振動計算により評価した。

キーワード：ホウ素，DFT 計算，熱力学特性

1. 緒言

軽水炉過酷事故時のソースターム評価精度向上や福島第一原発炉内の核分裂生成物(FP)の挙動評価のための基礎知見の拡充に資するため、セシウム(Cs)等の放出移行に影響を与える FP の化学挙動を評価しモデル化するための基礎基盤研究を実施している。この中で BWR 制御材であるホウ素(B)は、Cs と化学反応を生じて Cs-B-O 系化合物が形成され Cs の化学挙動に影響を与える可能性が示されているものの[1]、その知見は僅少である。そこで、Cs-B-O 系化合物として CsB₅O₈ について、DFT 計算と格子振動計算により熱力学特性の評価を行った。

2. 評価手法

CsB₅O₈ の DFT 計算には Vienna Ab-initio Simulation Package (VASP) [2]を用いた。また、熱力学特性を評価するための格子振動計算には Phonopy [3]を用いた。格子振動計算は、CsB₅O₈ の 2×2×2 のスーパーセルを用いた DFT 計算から直接法により行った。このような DFT 計算と格子振動計算について格子定数を-5%~10%として計算した結果を用いて、擬調和振動子近似により CsB₅O₈ の熱力学特性を計算した。

3. 結果

まず、CsB₅O₈ の格子振動計算の結果としてフォノン状態密度を図 1 に示す。図 1 より格子振動の周波数の虚数成分がほぼないことから、最安定構造により適切に格子振動計算が行われたことを確認した。次に、擬調和振動子近似により計算した熱力学特性として CsB₅O₈ の定圧モル比熱と定積モル比熱を図 2 示す。このように非経験的な手法によって、これまで測定されていなかった CsB₅O₈ の熱力学特性を計算することができた。また、定圧モル比熱の方が大きく、熱膨張の効果を取り込んだ計算ができていることを確認した。

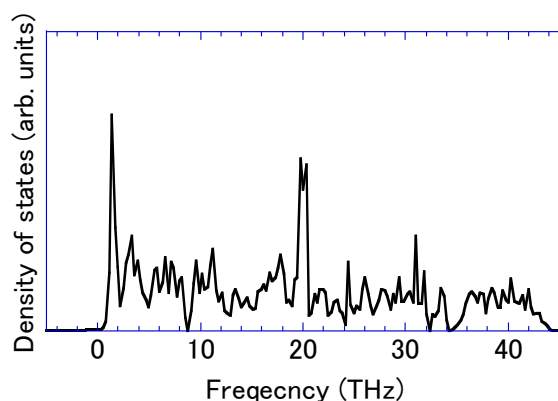


図 1 CsB₅O₈ のフォノン状態密度

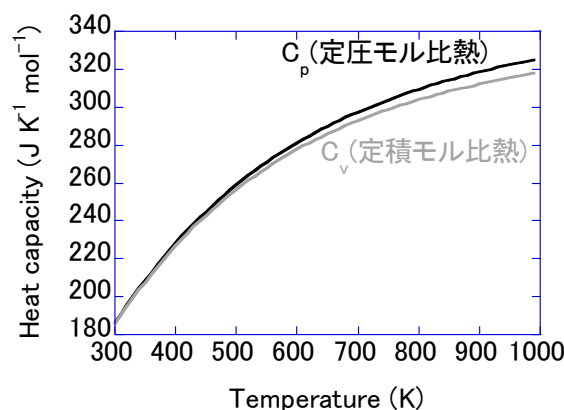


図 2 CsB₅O₈ の定圧モル比熱と定積モル比熱

参考文献

- [1] T. Haste, et al., Annals Nucl. Energ. 61 (2013) 102.
- [2] G. Kresse and J. Hafner, Phys. Rev. B47 (1993) 558.
- [3] A. Togo, F. Oba, and I. Tanaka, Phys. Rev. B78 (2008) 134106

*Chikashi Suzuki¹

¹Japan Atomic Energy Agency