

複雑な酸化物材料の放射線障害

- 原子ポテンシャルのフィッティングによる正確で迅速なシミュレーション

Australian Nuclear Science and Technology Organization とシドニー大学の研究者たちは原子シミュレーションツールである GULP を用いて、 $(\text{Sr}_{1-3x/2}\text{La}_x)\text{TiO}_3$ ペロブスカイト システムを研究してきました。原子論的な手法を用いると、以前に使われていた密度汎関数論 (DFT) よりも時間やコストを大幅に減らすことができ、部分的な order/disorder 効果など、バルク特性や短距離特性を正確に再現できます。

酸化マテリアルはハイレベル放射性廃棄物に対するホストマテリアルに適しており、実験的に説明することが困難な原子レベルの放射線障害の影響を理解することが重要になります。Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B ¹ に報告されたように、研究者たちは GULP² プログラムを用いて $(\text{Sr}_{1-3x/2}\text{La}_x)\text{TiO}_3$ ペロブスカイトマテリアルを研究し、その複雑な構造の故に外部の放射線下で興味深い挙動を示すことを明らかにしました。

従来の原子シミュレーションに関する研究では、体積弾性率、熱膨張度、熱容量、欠陥エネルギーなどの基本物性の計算を誤ることが多くありました。研究者たちは GULP の力場フィッティング能力を用いて、部分的な order/disorder 効果など、バルク特性や短距離特性を正確に再現する力場の開発に成功しました。

最初に、 TiO_2 結晶構造に適応する能力について、さまざまな力場のポテンシャル表現を検討するために GULP が用いられました。この検討で、最も簡単で実用的なように調整された部分電荷をもつ、簡単な Born - Mayer 対ポテンシャルモデルが得られました。このポテンシャルは原子タイプに対して2つだけの適合パラメータと電荷をもち、これらは Mulliken ポピュレーション解析を用いて DFT 方式から決定することができます。

最初に、公知の結晶学的データおよび弾性定数データを使用することによってパラメータ調整が行われ、ペロブスカイト SrTiO_3 のモデルが開発されました。次に、非経験的に生成された $(\text{Sr}, \text{La})\text{TiO}_3$ ペロブスカイトの一連の構造に適合させることでランタンが付け加えられました。

Module Used

GULP

Industry Sectors

原子力、発電

Organization

Australian Nuclear Science and Technology Organization
Sydney 大学

この結果は非経験的に求められた構造、エネルギー相対値および形式電荷モデル(図1、2)に対して検証され、このモデルが欠陥のある状態を表すことができ、放射線障害による原子レベルの影響をシミュレートするのに適していることが明らかになりました。

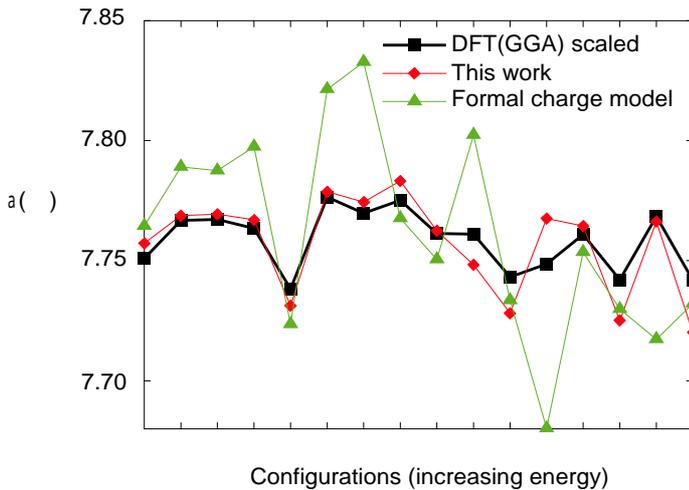


図 1 非経験的構造、エネルギー相対値および形式電荷モデルに対するモデルテスト

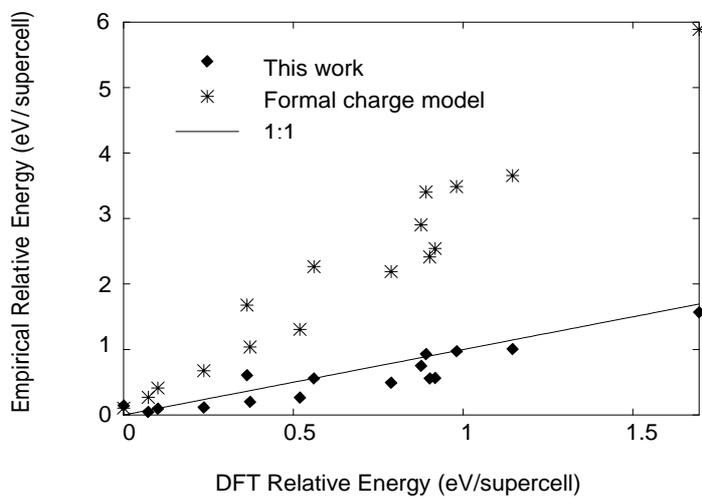


図 2 実験値 vs DFT 相対合計エネルギーのモデルの検証

Australian Nuclear Science and Technology Organization の Dr. Thomas は次のように語っています「計算ツール(GULP)により、簡単で正確な力場を作成できるようになりました。これによって、これらの複雑なプロブスカイトにおける欠陥の配列と放射線障害についての研究がさらに進められています。」

「実験によって興味深い現象、すなわち短距離あるいは長距離範囲の欠陥の配列や予期しない放射線耐性の特性がいくつも明らかになりましたが、これらを説明することはできませんでした。計算科学手法は、そのような原子スケールの現象の基礎物理を研究するために非常に適しています。特に、(Sr, La) TiO₃ プロブスカイトの欠陥の配列の物理に関するわたしたちの最近の研究は、Phys. Rev.B に提出し、現在レビューされています。

本研究では、DFT手法、実験データおよびGULP 力場フィッティング方式を組み合わせることで、どのようにして、非常に複雑なマテリアルの簡単、迅速でしかも正確なモデルを開発できるかが説明されています。

References

1. Thomas, B.S., Marks, N.A., Begg, B.D., *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 2005, 228, 288-292.
2. Gale, J.D., Rohl, A.L., The General Utility Lattice Program (GULP), *Molecular Simulation*, 2003, 29, 291.