

令和 6 年 6 月 7 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K18682

研究課題名（和文）量子・分子・統計論的解析に基づいた金属内部における水素輸送特性の解明

研究課題名（英文）Analysis of hydrogen transport in a metal by quantum/molecular/statistical dynamics

研究代表者

徳増 崇（Tokumasu, Takashi）

東北大学・流体科学研究所・教授

研究者番号：10312662

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：金属は鉄とし、水素の系を行う前段階として炭素とし、鉄内部の炭素の拡散現象を解析するシミュレータを構築した。鉄原子の原子間ポテンシャルとしてはEAMポテンシャルを用い、炭素はBecquart & Mayerポテンシャルで表現した。この系の炭素の輸送に関するエネルギー障壁を計算したところ、量子化学計算の結果とほぼ一致し、分子間ポテンシャルの妥当性が示された。この系を用いて温度をパラメータとして炭素の拡散係数を計算したところ、拡散係数から計算されたエネルギー障壁が量子化学計算で計算された値よりも低めに出ることが確認されたが、その原因の解明には至らなかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水素は金属内部を移動して金属の脆化を引き起こすため、水素の金属内部の移動現象を把握することは水素危機の安全性を保障する上で極めて重要である。この意味でこの研究は極めて社会的意義の大きい研究である。しかしながら水素は通常の分子に比べて質量が軽いため、不確定性原理の影響を強く受け、通常の分子動力学法による解析が困難である。この問題を克服するため、本課題では量子効果を取り込んだ分子動力学計算手法を確立することを目的とした。これは学術的にも極めて挑戦的かつ価値の高い研究であると言える。

研究成果の概要（英文）：The metal was iron, and carbon was used as a preliminary step to the hydrogen system, and a simulator was constructed to analyze the diffusion phenomenon of carbon inside iron. The EAM potential was used as the interatomic potential for iron atoms, and carbon was expressed using the Becquart & Mayer potential. When the energy barrier for the transport of carbon in this system was calculated, it was almost consistent with the results of quantum chemical calculations, demonstrating the validity of the intermolecular potential. When the diffusion coefficient of carbon was calculated using this system with temperature as a parameter, it was confirmed that the energy barrier calculated from the diffusion coefficient was lower than the value calculated by quantum chemical calculations, but the reason for this was not clarified.

研究分野：分子流体工学

キーワード：水素 輸送現象 量子効果 分子動力学法

1. 研究開始当初の背景

水素はその特徴の1つとして、金属などの固体結晶中に侵入し、固体内を拡散することが知られている。この金属内部における水素の輸送現象に関しては未解明な点が多く、水素をより安全・効率的に取り扱うには現象の詳細な理解が必要不可欠である。しかしながら、この輸送現象は、水素の原子径が非常に小さいこと、拡散速度が非常に速いことなどから、実験による直接的な観察が極めて難しい。このようなナノスケールの流動現象の解析には分子動力学法が有効であるが、水素は原子位置の不確定性や量子トンネル効果などの量子効果の影響が大きく、古典分子動力学法の範疇での解析は意味をなさない。このうち前者を直接的に考慮した研究は行われているが、計算負荷が大きく、大規模系への適用が難しい。また、量子トンネル効果を考慮した研究例に至っては存在していないのが現状である。

2. 研究の目的

本課題では、金属内部における水素の輸送現象を、量子効果を考慮した大規模数値計算により解析し、そのミクロ・マクロ特性を把握することである。そのために、(1) 原子の不確定性や量子トンネル効果を考慮し、かつ大規模計算が可能な金属内部における水素輸送特性評価シミュレータの構築 (2) 金属内部における水素輸送ミクロ・マクロ特性の解明 を行う。以下にその具体的な内容を示す。

(1) 量子効果を考慮し、かつ大規模系に適用可能な水素輸送特性評価シミュレータの構築

水素が金属内部を移動する際には、安定サイト間に存在するポテンシャルエネルギー障壁(以下ポテンシャル障壁)を越える必要があり、この大きさによって拡散速度が決定される。しかし水素は質量が軽いため原子位置の不確定性が生じ、ポテンシャル障壁が温度により変化する。また、水素は量子トンネル効果により運動エネルギーがポテンシャル障壁以下でも障壁を越えて移動することがある。この2つの量子効果を取り込んで水素原子の拡散現象を分子動力学法により解析し、この知見をモデル化して統計論的手法に組み込むことにより、量子効果を考慮し、かつ大規模系に適用可能な水素輸送特性評価シミュレータを構築する。

(2) 金属内部における水素輸送ミクロ・マクロ特性の解明

金属内部における水素の拡散係数を求め、実験値と比較することで構築したシミュレータの妥当性を検証する。次に、様々な温度における拡散係数を求め、その温度依存性を評価することで水素の拡散係数の活性化エネルギーに関する知見を得る。また、古典分子動力学法による計算結果との比較により、金属内部の水素輸送に対する量子効果の影響を定量的に評価する。以上の解析より、金属内部の水素の輸送特性に影響を及ぼす因子を特定する。

3. 研究の方法

(1) 量子効果を考慮し、かつ大規模系に適用可能な水素輸送特性評価シミュレータの構築

量子化学計算により、金属内部の水素の最安定位置(サイト)や水素がサイト間を移動するときの移動経路やポテンシャル障壁のデータを取得する。金属としては鉄を仮定する。次にこのデータを用いて水素原子-鉄原子間のポテンシャルモデルを構築する。このように構築されたポテンシャルモデルを用いて経路積分法によりポテンシャル障壁の温度依存性を評価し、原子位置の不確定性がポテンシャル障壁に与える影響をモデル関数として表現する。また、水素の量子トンネル効果を考慮するため、水素原子を波束で表現し、その波束をあるポテンシャル障壁に入射させてその透過波・反射波を解析することにより、水素原子がこの障壁を越える確率を求める。この確率を数式化してモデル関数として表現する。これらのモデル関数を動的モンテカルロ法に組み込むことにより、水素のサイト間移動を確率的に計算して水素の拡散現象を評価するシミュレータを構築する。

(2) 金属内部における水素輸送ミクロ・マクロ特性の解明

(1)により構築されたシミュレータを用いて、ある温度・圧力条件において鉄内部の水素原子の拡散係数を求め、実験結果と比較することにより、構築されたポテンシャルモデルの妥当性や経路積分法や波束法の妥当性、モデル関数の改善を行う。この計算を様々な温度、圧力条件下で行い、水素の拡散係数の活性化エネルギーを求める。さらに、量子効果を考慮しない計算結果との比較により、量子効果が水素の拡散現象に与える影響を評価する。以上の解析より、金属内部における水素の輸送特性に影響を及ぼす因子を特定する。

4. 研究成果

金属は鉄とした。水素の分子間ポテンシャルを量子論的に扱う手法の構築に時間を要したため、水素の系を行う前段階として炭素とし、鉄内部の炭素の拡散現象を解析するシミュレータを構築した。鉄原子の原子間ポテンシャルとしてはEAMポテンシャルを用い、炭素はBecquart &

Mayer ポテンシャルで表現した。この系の炭素の輸送に関するエネルギー障壁を計算したところ、量子化学計算の結果とほぼ一致し、分子間ポテンシャルの妥当性が示された。この系を用いて温度をパラメータとして炭素の拡散係数を計算したところ、拡散係数から計算されたエネルギー障壁が量子化学計算で計算された値よりも低めに出ることが確認されたが、その原因の解明には至らなかった。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件）

1. 発表者名 Ryuta Onozuka, Patrice, Chantrenne, Takashi Tokumasu
2. 発表標題 Molecular Theory Analysis of Carbon Diffusion in Iron which is Happened Phase Transformation under Electric Field
3. 学会等名 ELyT Workshop
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 北快理, 馬淵拓哉, Patrice Chantrenne, 徳増崇
2. 発表標題 電場下における金属結晶内部の炭素拡散に関する分子論的解析
3. 学会等名 日本機械学会2021年度年次大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Kairi Kita, Takuya Mabuchi, Sofia Molina-Montoya, Christophe Adessi, Patrice Chantrenne and Takashi Tokumasu
2. 発表標題 Multiscale Simulation of Carbon Electromigration in Iron
3. 学会等名 The 18th International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Ryuta Onozuka, Patrice, Chantrenne, Takashi Tokumasu
2. 発表標題 Investigation of the Electric Field Dependence of Carbon Diffusion in Fe-C Alloys during Spark Plasma Sintering
3. 学会等名 The 20th International Conference on Flow Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------