

核燃料部会・計算科学技術部会合同セッション

核燃料開発におけるシミュレーション技術の活用【討論編】

Application of numerical simulation technology to the development of nuclear fuels

-Discussion version-

佐藤 勇¹、*宇田川 豊²、*加藤 正人²、*沖田 泰良³、*中村 博樹²¹東京都市大学、²日本原子力研究開発機構、³東京大学

1. はじめに

日本原子力学会 2023 年春の年会における企画セッション「核燃料開発におけるシミュレーション技術の活用－討論編－」は、2022 年春の年会における企画セッション「核燃料開発におけるシミュレーション技術の活用」から継続するものである。また、これらの企画セッションは、核燃料部会と計算科学技術部会の合同セッションとして開催されている。

当該企画セッションでは、前回企画セッションに関する簡単なレビュー講演を行い、特に「ニーズとシーズの融合」に的を絞って、発表者と会場出席者による総合討論を行う。なお、今回の深堀テーマである「ニーズとシーズの融合」は、講演者及び座長・佐藤の間で事前にメール等の手段を用いて、事前検討が行われており、その際の議論も参照することとする。今回は、講演よりも議論に主眼を置き、総合討論に十分な時間を割り当てる。

2. 核燃料開発におけるシミュレーション技術の活用【レビュー】

(1) 公開燃料コード FEMAXI-8 における軽水炉燃料挙動モデル整備の現状と課題【レビュー】

(日本原子力研究開発機構・宇田川 豊)

軽水炉燃料の照射挙動解析モデルについて、JAEA が開発する国産/公開コードである FEMAXI を例に、近年の開発状況と課題、今後期待される計算科学的手法の寄与について紹介する。

核燃料や燃料被覆管のふるまいに係る研究で得られた知見やデータは燃料挙動解析コードに「モデル」として集約され、長期の照射に伴う燃料の構成要素に生じる諸々の変化/現象やそのフィードバックが燃料の健全性に及ぼす影響を把握する手段として、燃料設計や安全評価に活用される。2019 年に公開した燃料挙動解析コード FEMAXI-8 の開発では、諸要素モデルの改良や機能拡充に加え、より幅広いユーザにとって利用しやすい評価ツールとなるよう、一定の信頼性が確認されたモデルセット（標準解析条件）を併せて提供した。

これらは、別途整備した軽水炉燃料の照射試験データベース（DB）とコード検証システムを使った総合的な性能評価を通じ成立している。すなわち、現行の照射挙動解析モデルは、物理定数他の経験パラメータ、またモデル同士の組み合わせが、蓄積された照射試験の知見に照らし合わせて取捨された末の、経験的な要素の集合といえる。諸条件下の燃料挙動をより高い信頼度で評価するためには、引き続きモデル構築の拘束条件として、さらにモデルの不確かさ把握の手段としても、照射試験 DB を最大限活用しつつ、機構論的モデルへの置き換えを段階的に進める必要がある。特に、早期の実用化が期待される事故耐性燃料については、照射試験データの新規取得が限定的な状況が続く程、挙動評価は蓄積された UO_2 /ジルカロイ燃料挙動の知見/モデルに大きく依拠することとなり、この観点でもモデルの信頼性向上は重要な位置づけを占める。

モデル高度化の基礎となる現象解釈に関し、事故条件下で問題となる燃料ペレット粒界分離現象のモデル化に有効な知見を与えた MD 研究の例がある。事故模擬実験 DB の解析から見積もられる粒界結合力は MD 予測等に比して小さく、照射の影響が存在することの論拠の一つとなっている。このように、実験データを補完し、モデリングの妥当性を検証する手段として、照射効果や熱過渡の微視的シミュレーション、そのツールとしての計算科学的手法の寄与が期待される。

(2) 高速炉 MOX 燃料挙動のシミュレーション解析技術開発【レビュー】**(日本原子力研究開発機構・加藤 正人)**

高速炉の実用炉用の燃料として、廃棄物減容・有害度低減を目的としたマイナーアクチニド (MA) 含有 MOX 燃料の開発が進められてきた。MA 含有 MOX 燃料の照射試験は、常陽において 2006 年に高線出力照射試験が実施された。当時は、基礎物性や、照射挙動へ及ぼす Am など MA 含有の影響がわからず、燃料設計において大きな安全裕度を見込んでキャプセル照射が行われた。新しい組成の燃料開発において、照射中の性能や安全性を評価するためには、熱伝導率をはじめとする基礎物性が不可欠であり、照射挙動への影響も評価する必要がある。しかし、MA や Pu を含む酸化物の基礎物性測定は、原料の確保、設備、規制上の問題など解決することが多く、容易ではない。開発当初からおよそ 20 年が経ち、MA 含有 MOX の融点、熱伝導率などの基礎物性や、照射挙動へ及ぼす Am 及び Np の影響が明らかとなってきた。その結果、Am の影響は、当初、推定していたほど小さくなく、融点及び熱伝導率低下は限定的であることが分かった。現在、革新炉の燃料として様々な仕様が提案されている。それらの燃料開発のために、基礎物性及び照射挙動を事前に評価し、安全性を評価する技術が求められている。

MA 含有 MOX 燃料の開発は、基礎物性測定や照射試験によって進められ、組成に対して外挿性のある物性モデルの開発や、照射中の組織変化挙動など、メカニズムに沿ったモデルの開発が進められた[1]。照射初期のペレット径方向の密度変化は、気孔内の蒸発・凝集による気孔移動メカニズムが支配的であることに着目し、Pu 含有率、MA 含有率及び O/M 比に依存する蒸気圧の変化を計算することによって、世界で初めて MA 含有率及び O/M 比の影響を評価するためのモデルを開発した。これらの物性及び照射挙動モデルは、日米協力において、米国で開発を進めてきた 3 次元照射挙動解析コード BISON への組み込みを共同で進め、Am 含有 MOX 燃料について組織変化と温度解析を評価することを可能とした[2]。

燃料開発における課題は多く、2000 K を超える高温の基礎物性や、燃料及び被覆管材料の燃焼効果による特性変化などなど、実験だけで明らかにすることは難しい。例えば、燃料の高温における比熱及び熱伝導率の上昇や、ブレディック転移のメカニズムは、いまだに統一的な答えはない。また、燃料の寿命評価に重要な被覆管のクリープ現象は、熱クリープと照射クリープが複雑に関係する現象であり、この現象についてもメカニズムの理解はできていない。現在、西側諸国で照射試験を行う高速炉が『常陽』に限られている中で照射試験を必要最低限にし、燃料開発を加速するために、シミュレーションへの期待は大きい。メカニズムを理解し、定量的な評価を行うためには第一原理計算や分子動力学計算によるシミュレーションが期待される。また、照射中に起こる複雑な現象をモデル化するためには、これまで得られた多くのデータを基にした機械学習モデルを適用するデータ科学による研究開発も有効と考えられる。

[1] Kato, M. and Machida, M., <https://doi.org/10.1201/9781003298205>

[2] Ozawa, T., et al, J. Nucl. Mater., 553, Sep. 2021, 153038

(3) 構造材料を対象とした分子シミュレーションの現状と課題【レビュー】(東京大学・沖田 泰良)

原子炉で使用される金属材料の劣化挙動を微視的挙動に基づいて把握するため、分子動力学 (MD) などの分子シミュレーションが用いられてきた。特に従来から用いられてきた古典 MD は、原子間ポテンシャルを簡単な関数で近似する手法であり、第一原理 MD と比較して計算コストが低いことを活かし、照射下における結晶欠陥の形成過程、並びに転位と微細組織の相互作用に伴う硬化のメカニズム解明などの計算が行われてきた。しかしながら、古典 MD で用いる原子間ポテンシャルは、パラメータを経験に基づいて決定するため、考慮した物性値以外を再現できず、第一原理 MD と比較して精度が低いことが課題であった。

近年、これを解決する手法として、機械学習ポテンシャル (MLP) が用いられるようになってきた。MLP は、密度汎関数などの電子構造計算結果を人工ニューラルネットワークなどに学習させることで原子間ポテンシャルを構築する方法であり、第一原理 MD と同等の高い精度を維持しつつ計算コストを大幅に削減することが可能である。また、MLP は添加元素、不純物元素の影響を取り入れることも比較的容易であるため、実用材料へ適用することもできる。

MLP の適用の一例として、on-the-fly kinetic Monte Carlo を用いた拡散過程のモデル化が挙げられる。同法

は、各タイムステップの原子配置に基づいた鞍点探索により、発生しうるイベントとその活性化エネルギーを算出するものである。これにより、原子レベルの精緻性を保ちつつ、MD では到達困難な時間スケールの現象も再現できる。実用材料の MLP を用いた on-the-fly kinetic Monte Carlo により、微細組織発達の時間進展を精緻に模擬することも可能となる。その他、劣化を検出する非破壊検査や合金設計にも適用でき、MLP により第一原理計算に基づいた技術の構築が可能となった。

(4) 計算科学を用いた核燃料物性研究【レビュー】(日本原子力研究開発機構・中村 博樹)

核燃料開発においては、高温状態などの様々な状況での物性に関する幅広い知識を蓄積することが非常に重要であるが、実験によってあらゆる物性値を測定することはコストと安全上の問題から、厳しい制限がついてしまい困難である。このような場合に活躍が期待されるのが数値シミュレーションである。これまでに行われてきた原子レベルのミクロシミュレーションを用いた核燃料の熱物性評価は、構造材料の場合と同様に、古典分子動力学と第一原理計算によるものである。古典分子動力学に関しては、多体効果を考慮した原子埋め込み法 (EAM) を用いたポテンシャルが開発され、高温物性を含め、多くの物性量を再現することが可能となっているが、すべての物性量を精度よく再現するには至っていない。一方、第一原理計算に関しては、アクチニド原子の局在化した f 軌道電子を強相関電子系として扱わなければならないという問題が存在する。これにより、通常の密度汎関数法 (DFT) が適用できず、強相関効果を考慮した DFT+U 法や Hybrid-DFT 法を用いることが必須となっている。加えて、スピン軌道相互作用も考慮する必要があるため、通常物質に比べて、DFT の計算負荷がさらに大きくなっているため、第一原理計算のみで高温物性を評価するのは困難である。それでも、フォノンを用いた比熱や熱伝導率は精度よく評価することが可能である。さらに、これらの強相関効果を考慮した手法を使っても、多くの酸化アクチニドの磁気秩序を再現することは成功していないため、磁性の影響する物性値に関しては現状では信頼性が十分高いとは言えない。今後は、より洗練された手法を用いた第一原理計算によって、酸化アクチニドの磁気秩序を含めた物性の再現を目指すと共に、構造材料の場合と同様に機械学習分子動力学を用いた物性評価の発展が期待される。

3. 結言

本予稿は、2022 年春の年会で報告いただいた 4 件の講演内容の概要を紹介している。これを 2023 年春の年会の年会企画セッションで有意義な議論に発展するためのツールとして活用する。そこで、議論で活用していくうえで、利便性の観点から下記の通り、手を加えた。

核燃料部会からの 2 件の報告と計算科学技術部会からの 2 件の報告はいろいろな方法での分類ができるが、前者をニーズ側の見解、後者をシーズ側の見解とすることができると思われる。また、文中のキーワードを拾い集めると、図 1 のような構造になっている。すなわち、図中のニーズにおける「←」の部分として要求事項が示されていて、「モデルの不確かさ把握の手段」等が計算科学に期待が示されている。一方、図中のシーズにおける「→」の部分として可能性が示されており、「on-the-fly kinetic Monte Carlo を用いた拡散過程のモデル化」等が提案されている。これらを組み合わせていくと、期待と手段が適合していく可能性が感じられる。

このほか、講演者間での議論の中から以下のような命題・論点も提示されており、当日は議論の方向を見極めて、適宜、以下のような論点も挟み込んでいきたいと考えている。

- ニーズ・シーズのギャップを埋めていく上で現状は何が欠けているか
- 照射に伴う材料物性の変化
- 核燃料のシミュレーション技術に係る望ましい産官学連携の在り方・役割分担
- ミクロ側での研究テーマ・対象選定のあり方

【ニーズ】

- ・ 照射挙動の説明性（許認可）

・ 長期の照射に伴う燃料に生じる諸々の変化/現象  照射試験データベース

 ・ **モデルの不確かさ** 把握の手段
 ・ 照射効果や熱過渡の**微視的シミュレーション**、そのツールとしての計算科学的手法の寄与

- ・ 燃料開発の加速（許認可）

・ 廃棄物減容・有害度低減を目的とした
 マイナーアクチニド（MA）含有MOX燃料の開発

 ・ 組成に対して外挿性のある**物性モデル**の開発や、照射中の組織変化挙動の**モデル開発**

【シーズ】

従来型

- ・ 金属材料の劣化挙動を微視的挙動に基づいて把握
- ・ 照射下における結晶欠陥の形成過程、並びに転位と微細組織の相互作用に伴う硬化のメカニズム解明

機械学習ポテンシャルの活用

- ・ on-the-fly kinetic Monte Carloを用いた拡散過程のモデル化（発生しうるイベントとその活性化エネルギーを算出）
- ・ 劣化を検出する非破壊検査技術
- ・ 合金設計 など

 第一原理計算に基づいた技術の構築が可能となった。

- ・ DFTの計算負荷がさらに大きくなっているため、第一原理計算のみで高温物性を評価するのは困難
 - ・ フォノンを用いた比熱や熱伝導率は精度よく評価することが可能
 - ・ 磁性の影響する物性値に関しては現状では信頼性が十分高いとは言えない

 ・ 構造材料の場合と同様に**機械学習分子動力学**を用いた物性評価の発展

図1 各講演のキーワードの抽出

Isamu Sato¹, Yutaka Udagawa², Masato Kato², Taira Okita³ and Hiroki Nakamura²

¹Tokyo City Univ., ²JAEC, ³Univ. of Tokyo