

令和元年6月7日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06964

研究課題名(和文)大型計算機を用いた核燃料熱物性の第一原理計算による評価手法の開発

研究課題名(英文) Development of evaluation method of nuclear fuel thermophysical properties by first-principles calculation using large-scale computing

研究代表者

中村 博樹 (Nakamura, Hiroki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・システム計算科学センター・研究主幹

研究者番号：40350483

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：原子力開発において、シミュレーションを用いた解析は必須のものである。この解析には、核燃料の熱物性値が必要であるが、このような熱物性値の取得は様々な制限のため、実験のみによって詳細に得ることは難しい。そこで、本研究では、経験的なパラメータを必要としない第一原理計算と呼ばれる手法を用いて、核燃料物質の熱物性値を評価する手法を開発し、その信頼性を確認した。これによって、信頼性の高い数値計算で実験値を補間することが可能となり、燃料開発や原子炉の安全研究に貢献することが期待される。

研究成果の学術的意義や社会的意義

第一原理計算によって核燃料の熱物性がシミュレーションできるようになったことで、燃料照射解析コードやシビアアクシデント解析コードに信頼性の高い熱物性値をデータの少ない高温領域でも提供することが可能となる。これによって、解析コードの信頼性が向上し、燃料開発や原子炉の安全研究に資することができる。また、今回は核燃料に注目したが、ここで開発する手法自体は他の物質への応用も可能であり、物性シミュレーションの発展に寄与し、計算機による材料設計等にも貢献することができる。

研究成果の概要(英文)： Analyses by numerical simulation are needed in the development of nuclear power plants. Though these analyses require thermophysical data of nuclear fuels, it is difficult to accumulate experimental data owing to various limitations. In this study, adopting a first-principles calculation method which does not require any empirical parameter, we developed the scheme to evaluate thermal properties of nuclear fuel materials and confirmed its reliability. By this scheme, we can interpolate experimental thermophysical data with reliable numerical simulations and thus contribute to nuclear fuel developments and nuclear safety research.

研究分野：物性物理学

キーワード：核燃料 第一原理計算 熱伝導率 比熱 二酸化トリウム 二酸化プルトニウム

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

現在の原子力開発においては、燃料照射解析コードやシビアアクシデント解析コードによるシミュレーションは必須のものとなっている。これらのコードには、核燃料の熱物性値(比熱、熱膨張率、熱伝導率など)が入力データとして必要であるが、このような熱物性値は実験値に対して単純な近似式を適合させて用いることが多い。しかし、2000K を超える高温領域では実験データが不足するため、この近似式の信頼性は高くない。結果として、近似式を使用することは、解析コードの信頼性にも影響を与えてしまう。この問題を解決するためには近似式を用いるのではなく、原子レベルのシミュレーションを用いて、実験値の補間を行なうことが最善の策である。特に、この方法では熱物性のメカニズムも原子レベルから理解することが可能となる。

2. 研究の目的

核燃料の熱物性値は主に実験値に適合させて得られており、実験データの不足する高温などでは信頼性が高い予測ができない。これに対して、原子レベルのシミュレーションによって実験値を補間することで予測の信頼性を向上させることが期待できる。本研究では、大型計算機を用いて、第一原理計算に基づく原子レベルのシミュレーションによる熱物性値評価手法を確立し、解析コードの信頼性向上、ひいては、燃料開発や原子炉の安全研究へ寄与することを目的としている。

3. 研究の方法

本研究では以下に示す 2 つの第一原理計算に基づく手法により、燃料物質の熱物性シミュレーションを行なった。

(1) 第一原理分子動力学に基づく熱物性評価

熱物性を直接的に評価する手法としては第一原理分子動力学を用いるのが最善と考えられる。しかしながら、第一原理分子動力学法による熱物性評価は計算コストが大きいと、これまで余り多くは実行されてこなかった。そこで、本研究では、大規模並列計算機を用いて、第一原理分子動力学を実行し、1500K 以上の高温での熱物性値(比熱、熱膨張率など)を評価する方法を採用した。この温度領域では、Bredig 転移と呼ばれる、比熱などの熱物性値に急速な変化が起こることが知られている。このような現象を再現するには非常に大規模な計算を必要とすることが古典分子動力学の計算結果からわかっており、Bredig 転移を再現できる程度に大規模な系での第一原理分子動力学を実行した。

(2) 第一原理格子力学に基づく熱物性評価

第一原理計算に基づく固体材料の熱物性の評価としてこれまで主に用いられてきたのは、調和振動子近似を基に得られた格子振動(フォノン)から熱物性を求める手法であった。しかし、この方法では非調和振動(非線形フォノン)の効果を考慮することができず、熱膨張や熱伝導率といった重要な熱物性を評価することができなかった。そこで、本研究では非調和格子力学に基づき、1500K 以下での熱伝導率について評価した。

4. 研究成果

(1) 第一原理分子動力学に基づく熱物性評価

本研究項目における対象物質として二酸化トリウムを選んだ。二酸化トリウムは次世代の核燃料の有力な候補であるが、その物性値については二酸化ウランと比べて、十分に理解されているとは言えない。特に 2000K を超える高温領域では物性データが不足している。そこで、第一原理分子動力学を用いて、融点近くの高熱領域での熱物性を評価した。

図 1 に第一原理分子動力学によって計算した二酸化トリウムのエンタルピーを示した。図にあるように実験値をよく再現している。加えて、3000K 付近で急激な傾きの変化が起きている。エンタルピーの傾きは比熱に相当するので、これは 3000K で比熱の急激な変化が起きていることを意味しており、いわゆる Bredig 転移に相当するものと考えられる。

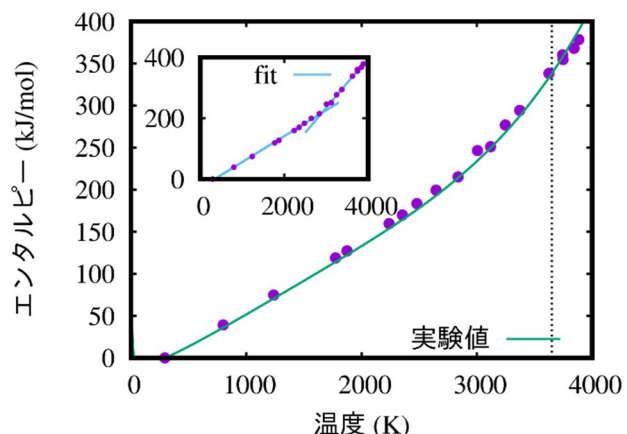


図 1: 二酸化トリウムのエンタルピーと温度の関係。エンタルピーは第一原理分子動力学による結果。実験値と一致すると共に、3000K 付近で急激な変化が見られる。

この Bredig 転移の原因は酸素の無秩序化によるものと考えられている。それを確かめるため、酸素原子の 2 体相関関数を求めた。その結果を図 2 に示す。この図からわかるように、Bredig 転移前の 1800K では第 1 ピーク及び第 2 ピーク及びのその間の谷が明確になっており、酸素原子が秩序を保っているのが分かる。それに対して、3500K の場合は第 2 ピークが分かりにくくなっており、Bredig 転移以上の高温では酸素原子の無秩序化が起きていることを示している。また、酸素座標の平均 2 乗変位を評価したところ、3500K では時間に対してほぼ線形に増加していた。これによって、酸素原子の拡散が起きていることが確かめられた。これらの結論から、Bredig 転移は酸素原子の無秩序化に伴う拡散によって起きていることが確認できた。酸素原子の拡散の様子を観察したところ、従来考えられていた空孔拡散ではなく、むしろ集団的な拡散機構が起きていることが分かった。

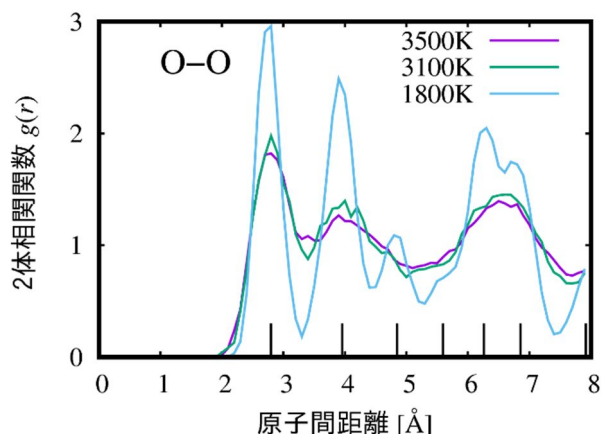


図 2：酸素原子の 2 体相関関数。

これまででは、大規模系に対しては計算負荷の低い古典分子動力学が用いられることが多かったが、信頼性に関してはそれほど高いものではなかった。今回、大規模計算機を用いることで、信頼性の高い第一原理分子動力学を可能とし、それを用いることで既存の実験値を再現し、その有用性も確認できた。これによって、実験の困難だった高温物性も精度よく予測することが可能となり、これらの物性データを燃料照射解析コードやシビアアクシデント解析コードに提供していくことで、燃料開発や原子炉の安全研究に資することが期待される。

(2) 第一原理格子力学に基づく熱物性評価

本研究課題では二酸化トリウムと二酸化プルトニウムの格子熱伝導率を第一原理計算による非線形フォノンの評価から求めた。具体的には第一原理計算で評価した原子間力からフォノンの分散と緩和時間を求め、それらを基にして熱伝導率を評価した。

二酸化トリウムと二酸化プルトニウムの計算結果をそれぞれ図 4 と図 5 に示す。若干実験値よりも大きめではあるが、どちらの計算結果も実験値をよく再現しているといえる。

これらの計算は対象の物質が単結晶であることを仮定して計算したものである。しかしながら、実際の燃料は多結晶であり、一般には多結晶の熱伝導率は単結晶より減少することが知られている。そこで、本研究では、多結晶の影響を調べるため、粒界散乱による熱伝導率の減少について評価を行なった。その結果、結晶粒が小さいほど熱伝導率が下がったが、現実的な結晶粒サイズである 5 μm 以上では、最大でも数%程度、熱伝導率が減少するだけであることが分かった。

今回の研究によって、核燃料物質の精度の高い熱伝導率予測に第一原理計算を用いた手法が有効であることが確認された。本手法は容易に他の物質に応用が可能であるため、例えば、実験データの不足しがちなマイナーアクチニドを含んだ混合酸化物燃料

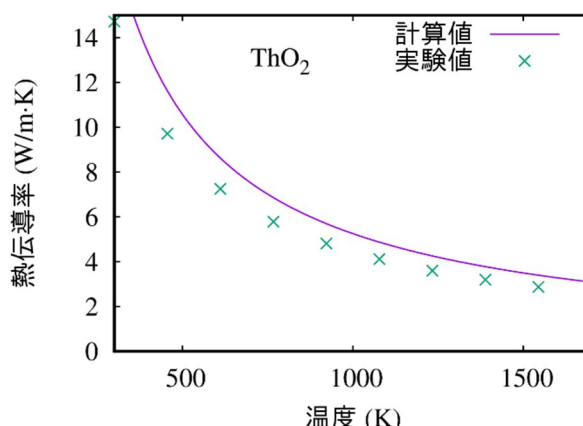


図 3：二酸化トリウムの熱伝導率

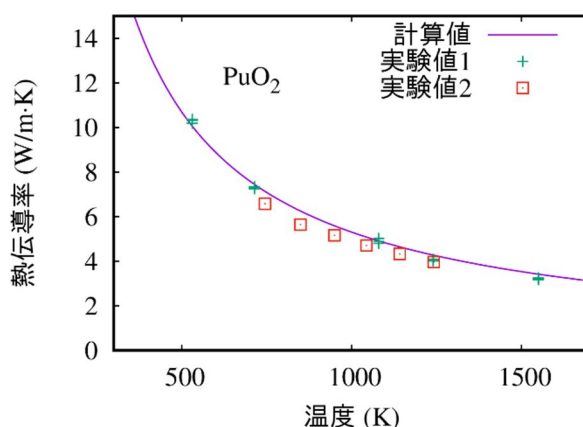


図 4：二酸化プルトニウムの熱伝導率

の熱伝導率予測も期待される。また、この手法は前項の第一原理分子動力学を用いた手法よりも計算コストが小さいため、適用範囲も広い。未だ、スピン-フォノン散乱やポーラロン熱伝

導など解決すべき問題は残っているが、今後、研究を続けていけば、燃料開発などに直接貢献していくことが可能な技術であると考えられる。

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計4件)

Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, First-principles calculation study on phonon thermal conductivity of thorium and plutonium dioxides: Intrinsic anharmonic phonon-phonon and extrinsic grain-boundary-phonon scattering effects, Journal of Nuclear Materials, vol. 519, 2019, p.45-51, 査読有.
DOI: 10.1016/j.jnucmat.2019.03.033

Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, A first-principles study on point defects in plutonium dioxide, Progress in Nuclear Science and Technology, vol. 5, 2018, p.132-135, 査読有.
DOI: 10.15669/pnst.5.132

Masato Kato, Hiroki Nakamura, Masashi Watanabe, Taku Matsumoto, Masahiko Machida, Defect Chemistry and Basic Properties of Non-Stoichiometric PuO₂, Defect and Diffusion Forum, vol. 375, 2017, p.57-70, 査読有.
DOI: 10.4028/www.scientific.net/DDF.375.57

Hiroki Nakamura, Masahiko Machida, High-temperature properties of thorium dioxide: A first-principles molecular dynamics study, Journal of Nuclear Materials, vol. 478, 2016, p.56-60, 査読有.
DOI: 10.1016/j.jnucmat.2016.05.042

[学会発表](計16件)

中村 博樹、町田 昌彦、二酸化アクチニドにおけるポーラロンの第一原理計算、日本原子力学会 2019 年春の年会(2019/03)

奥村 雅彦、小林 恵太、中村 博樹、板倉 充洋、町田 昌彦、二酸化トリウムの機械学習分子動力学法シミュレーション、日本原子力学会 2019 年春の年会(2019/03)

Nakamura, Hiroki; Machida, Masahiko, A First-principles study on the mechanical properties of (Th,Pu)O₂, Nuclear Materials Conference 2018 (NuMat 2018) (2018/10)

加藤 正人、松本 卓、中村 博樹、町田 昌彦、蛍石構造酸化物の熱物性評価、日本原子力学会 2018 年秋の大会(2018/09)

板倉 充洋、沖田 泰良、中村 博樹、二酸化ウランおよびガンマ鉄のノンコリニア常磁性状態の第一原理計算、日本原子力学会 2018 年秋の大会(2018/09)

加藤 正人、森本 恭一、中村 博樹、町田 昌彦、MOX 燃料基礎特性の機構論的統合モデル,3; 比熱及び熱伝導率、日本原子力学会 2018 年春の年会(2018/03)

中村 博樹、町田 昌彦、第一原理計算による(Th,Pu)O₂の機械的物性評価、日本原子力学会 2018 年春の年会(2018/03)

中村 博樹、第一原理計算による核燃料物質の物性評価、第 22 回原子力計算科学セミナー(2018/02)

中村 博樹、町田 昌彦、二酸化プルトニウムの点欠陥に関する第一原理計算、日本原子力学会 2017 年秋の大会(2017/09)

Nakamura, Hiroki; Machida, Masahiko, A First-principles study on point defects in plutonium dioxide, ACTINIDES 2017 (2017/07)

Machida, Masahiko; Nakamura, Hiroki; Kato, Masato, Ab-initio calculations of thermal properties of actinide dioxides, ACTINIDES 2017 (2017/07)

中村 博樹、町田 昌彦、第一原理計算による MOX 燃料の物性評価、日本原子力学会 2017 年春の年会(2017/03)

Nakamura, Hiroki; Machida, Masahiko, A First-principles study on thermal conductivity of actinide dioxides, Nuclear Materials Conference 2016 (NuMat 2016) (2016/11)

Machida, Masahiko; Nakamura, Hiroki, First-principles molecular dynamics study of high-temperature properties of thorium dioxide, Nuclear Materials Conference 2016 (NuMat 2016) (2016/11)

加藤 正人、渡部 雅、中村 博樹、町田 昌彦、(U,Pu)O₂の酸素ポテンシャルモデル、日本原子力学会 2016 年秋の大会(2016/09)

中村 博樹、町田 昌彦、第一原理計算による核燃料の熱伝導率評価、日本原子力学会 2016 年秋の大会(2016/09)

6 . 研究組織

(1)研究分担者

(2)研究協力者

研究協力者氏名：町田 昌彦

ローマ字氏名：Machida, Masahiko

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。