



JAEA-Review

2022-035

DOI:10.11484/jaea-review-2022-035

令和 3 年度  
大型計算機システム利用による研究成果報告集

Summaries of Research and Development Activities  
by using Supercomputer System of JAEA in FY2021  
(April 1, 2021 – March 31, 2022)

高性能計算技術利用推進室  
HPC Technology Promotion Office

システム計算科学センター  
Center for Computational Science & e-Systems

January 2023

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の条件で利用してください。(<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>)  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト (<https://www.jaea.go.jp>)より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.  
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).  
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.  
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.  
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

令和 3 年度  
大型計算機システム利用による研究成果報告集

日本原子力研究開発機構  
システム計算科学センター  
高性能計算技術利用推進室

(2022 年 9 月 6 日受理)

日本原子力研究開発機構では、原子力の総合的研究開発機関として原子力に係わるさまざまな分野の研究開発を行っており、これらの研究開発の多くにおいて計算科学技術が活用されている。日本原子力研究開発機構における計算科学技術を活用した研究開発の論文発表は、全体の約 2 割を占めている。大型計算機システムはこの計算科学技術を支える重要なインフラとなっている。

大型計算機システムは、優先課題として位置付けられた福島復興（環境の回復・原子炉施設の廃止措置）に向けた研究開発や、高速炉サイクル技術に関する研究開発、原子力の安全性向上のための研究、原子力基礎基盤研究等といった主要事業に利用された。本報告は、令和 3 年度における大型計算機システムを利用した研究開発の成果を中心に、それを支える利用支援、利用実績、システムの概要等をまとめたものである。

Summaries of Research and Development Activities  
by using Supercomputer System of JAEA  
in FY2021 (April 1, 2021 – March 31, 2022)

HPC Technology Promotion Office

Center for Computational Science & e-Systems  
Japan Atomic Energy Agency  
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received September 6, 2022)

Japan Atomic Energy Agency (JAEA) conducts research and development (R&D) in various fields related to nuclear power as a comprehensive institution of nuclear energy R&Ds, and utilizes computational science and technology in many activities.

As shown in the fact that about 20 percent of papers published by JAEA are concerned with R&D using computational science, the supercomputer system of JAEA has become an important infrastructure to support computational science and technology.

In FY2021, the system was used for R&D aiming to restore Fukushima (environmental recovery and nuclear installation decommissioning) as a priority issue, as well as for JAEA's major projects such as research and development of fast reactor cycle technology, research for safety improvement in the field of nuclear energy, and basic nuclear science and engineering research.

This report presents a great number of R&D results accomplished by using the system in FY2021, as well as user support, operational records and overviews of the system, and so on.

Keywords: Supercomputer System, Computational Science and Engineering, Simulation,  
Numerical Analysis, Annual Report

## 目 次

1. はじめに.....	1
2. 原子力機構の大型計算機システム環境.....	4
3. 令和3年度における計算機利用実績.....	6
3.1 システム稼働率・コア利用率.....	6
3.2 大型計算機システムの組織別利用実績.....	7
4. 大型計算機システムの利用支援.....	10
4.1 計算機利用における支援.....	11
4.1.1 利用相談.....	11
4.1.2 プログラム開発整備.....	11
4.1.3 プログラム最適化チューニング.....	14
4.2 計算機利用技術の向上に向けた教育（講習会・セミナー）.....	16
5. 大型計算機システム利用による研究成果.....	18
5.1 安全研究センター.....	18
5.1.1 原子力発電所の内部火災等を対象としたシミュレーションを用いたリスク評価手法の開発.....	18
5.1.2 ニトロシルルテニウム錯体の溶存状態に関する理論的研究.....	21
5.1.3 熔融炉心挙動シミュレーションに向けた高精度解像度可変型粒子法の開発.....	23
5.1.4 多忠実度シミュレーションを用いた動的PRA手法の開発.....	26
5.1.5 CIGMA装置における浮力噴流により誘起される熱および物質輸送に関するLES解析.....	29
5.1.6 S-CLSVOF法によるEuler-Lagrangeシミュレーションソルバの実装.....	32
5.1.7 FEMAXI-8コードの高速化.....	34
5.2 J-PARCセンター.....	35
5.2.1 PHITSを用いた加速器駆動核変換システムに関するシミュレーション.....	35
5.2.2 密度汎関数理論を用いた固体の格子ダイナミクスの研究.....	37
5.3 原子力基礎工学研究センター.....	40
5.3.1 福島沿岸における放射性核種の海底堆積に関するモデル研究.....	40
5.3.2 局所域高分解能大気拡散・線量評価システム「LHADDAS」の開発.....	42

5.3.3	パラジウムの配位型/イオン会合型抽出機構の解明に向けた密度汎関数研究.....	45
5.3.4	PHITS および DCHAIN の改良 .....	48
5.3.5	PHITS ユーザー入力支援ソフトウェアの作成.....	49
5.3.6	PHITS における高度な分析機能の開発.....	52
5.3.7	PHITS の粒子別タリー出力機能の改良.....	55
5.3.8	放射性雲からの外部被ばく線量評価コードにおける入出力データの可視化環境整備 .....	58
5.3.9	界面追跡法に基づく混相流解析手法開発.....	61
5.3.10	$\beta$ 崩壊半減期の理論予測.....	64
5.3.11	加速器駆動システム上部構造の放射線遮蔽解析.....	67
5.3.12	積分実験データを用いた JENDL-5 のベンチマークテスト.....	70
5.3.13	対流ヘリウムガス中における酸素の輸送解析 .....	72
5.3.14	未臨界体系の中性子世代と時間の関係 .....	74
5.3.15	回転照射法における核物質の偏在が与える影響.....	76
5.3.16	下部ヘッドにおける溶融物挙動解析手法の開発.....	78
5.3.17	過酷事故時及び定常時における炉心内非定常熱流動事象評価解析手法の開発 ...	79
5.3.18	機構論的限界熱流束予測評価手法確立のための二相流挙動解析 .....	82
5.3.19	飛散微粒子捕集挙動の予測評価手法の開発に関する研究.....	85
5.3.20	マルチフィジックスシミュレーション用プラットフォームの評価のための気液二相流解析 .....	88
5.3.21	MCCCE 法を用いたリチウム-7 濃縮技術のためのイオン挙動数値シミュレーション .....	91
5.3.22	合金化と組織制御のための原子・電子シミュレーション .....	94
5.3.23	アルミニウム合金中のナノクラスタと転位との相互作用の解明 .....	97
5.3.24	DFT 計算による Cs-B-O 系化合物の熱力学特性評価.....	100
5.3.25	高濃度合金の人工ニューラル ネットワークポテンシャル開発.....	103
5.4	先端基礎研究センター .....	106
5.4.1	超伝導体と強磁性体の接合における量子輸送現象.....	106
5.4.2	低次元強相関係の基底状態および励起ダイナミクスの研究 .....	109
5.4.3	SrTiO <sub>3</sub> 中の格子間水素に束縛された Ti <sup>3+</sup> スモールポーラロンの安定性 .....	112
5.4.4	Hex-Au(001)再構成表面上に形成したグラフェンのバンド構造の解明.....	115
5.5	環境技術開発センター（大洗研究所） .....	118
5.5.1	PHITS を用いた放射性廃棄物保管時の $\gamma$ 線スカイシャイン線量評価 .....	118

5.6	高温ガス炉研究開発センター .....	121
5.6.1	HTTR 臨界制御棒位置を自動で探索するユーティリティツールの開発.....	121
5.7	高速炉サイクル研究開発センター .....	124
5.7.1	高速炉蒸気発生器内ナトリウム-水反応現象数値解析コードの高度化 .....	124
5.7.2	SPIRAL による自然循環条件下における大型燃料集合体試験解析 .....	127
5.7.3	ガス巻込み評価に係る渦の最適抽出手法の整備.....	130
5.7.4	高速炉の炉心の核-熱-構造連成解析手法の開発.....	133
5.7.5	連続エネルギーモンテカルロコード MVP を使用した「常陽」MK-II 炉心の中 性子束計算 .....	136
5.8	敦賀総合研究開発センター .....	138
5.8.1	レーザー溶融・凝固解析コードの検証 .....	138
5.9	燃料サイクル設計部.....	141
5.9.1	CNWG・先進燃料物性計算科学研究.....	141
5.9.2	マイナーアクチノイド回収用抽出剤 HONTA の電子構造及び電荷移動に係る 研究.....	144
5.10	炉設計部.....	147
5.10.1	高温ガス炉燃料製造時の臨界安全のための可燃性毒物混合燃料概念の研究.....	147
5.11	廃炉環境国際共同研究センター .....	150
5.11.1	福島第一原子力発電所の廃炉技術へのレーザー加工技術適用に向けたシミュ レーション手法の開発 (1) .....	150
5.11.2	福島第一原子力発電所の廃炉技術へのレーザー加工技術適用に向けたシミュ レーション手法の開発 (2) .....	153
5.11.3	水域動態モデル 3D-Sea-SPEC の河口・沿岸域への適用 .....	156
5.12	核不拡散・核セキュリティ総合支援センター.....	158
5.12.1	粒子拡散モデル FLEXPART の SGI8600 への移植と並列実行確認.....	158
5.12.2	中性子飛行時間測定のためのモデレータ設計 .....	160

5.13	原子力人材育成センター .....	162
5.13.1	放射線の測定実習に係る放射線挙動解析シミュレーション .....	162
5.14	システム計算科学センター .....	165
5.14.1	材料における核量子効果の計算科学研究.....	165
5.14.2	原子力分野での物性計算科学技術の高度化.....	168
5.14.3	機械学習を用いた放射性物質の原子スケールシミュレーション .....	170
5.14.4	第一原理分子動力学法による液体金属の計算 .....	173
5.14.5	粘土鉱物へのラジウムの吸着構造の解明.....	175
5.14.6	第一原理計算による原子力材料劣化機構の研究.....	178
5.14.7	福島第一原子力発電所港湾内の放射性物質動態解析シミュレーション .....	180
5.14.8	水素材料の第一原理分子動力学計算.....	183
5.14.9	機械学習分子動力学によるコンクリート中の放射性セシウムの吸着挙動の解 析.....	186
5.14.10	原子・分子シミュレーションによる核燃料の物性評価 .....	189
5.14.11	液体材料の第一原理計算 .....	192
5.14.12	DFT-MD によるグラファイトの照射中挙動解析 .....	195
5.14.13	照射材料の微細構造発達シミュレーションのための原子論的シミュレーショ ン.....	197
5.14.14	大規模流体計算に対する混合精度前処理の開発.....	200
5.14.15	アンサンブルシミュレーション向け In-Situ 可視化手法の開発.....	202
5.14.16	適合細分化格子版 JUPITER の界面追跡モデルの高度化.....	205
5.14.17	機械学習を用いた都市汚染物質拡散の即時予測手法の開発 .....	208
5.14.18	オクラホマシティの野外拡散実験におけるパフ放出実験の CityLBM コードを 用いた再現計算.....	211
6.	おわりに .....	214
	付録 .....	215
	著者名別 論文索引.....	217

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Supercomputer System of JAEA.....	4
3. Computer Usage Records in FY2021 .....	6
3.1 Availability and Utilization Rate .....	6
3.2 Sector Computer Time .....	7
4. User Support of Supercomputer System of JAEA.....	10
4.1 Support for the Use of Supercomputer System of JAEA.....	11
4.1.1 Help Desk.....	11
4.1.2 Program Development and Maintenance.....	11
4.1.3 Program Optimization Tuning .....	14
4.2 Training for Computer Usage Techniques (Tutorials, Seminars) .....	16
5. Research and Development Activity by using Supercomputer System of JAEA .....	18
5.1 Nuclear Safety Research Center .....	18
5.1.1 Development of Simulation-based Risk Analysis Methodology for External Events Including Internal Fire in Nuclear Power Plants.....	18
5.1.2 A Theoretical Study on Ruthenium Nitrosyl Complexes in Aqueous Solution .....	21
5.1.3 Development of Multi-resolution Particle Method with High Order Accuracy for Simulating Molten Core.....	23
5.1.4 Development of Dynamic PRA using Multi-fidelity Simulation.....	26
5.1.5 LES on Heat and Mass Transfer Induced by the Buoyancy Flow in the CIGMA Facility .....	29
5.1.6 Implementation of Euler-lagrange Simulation Solver using S-CLSVOF Method .....	32
5.1.7 Optimization/Refactoring of Fuel Performance Code FEMAXI-8 .....	34
5.2 J-PARC Center.....	35
5.2.1 Simulation of Accelerator Driven Transmutation System using PHITS .....	35
5.2.2 Simulating Phonon Cross Section using Density Functional Theory .....	37

5.3	Nuclear Science and Engineering Center.....	40
5.3.1	A Modeling Study on Sedimentation of Radionuclides in Fukushima Coast..	40
5.3.2	Development of Local-scale High-resolution Atmospheric Dispersion and Dose Assessment System.....	42
5.3.3	Density Functional Theory Study for Elucidation of Coordinative/Ion-associative Extraction Mechanism of Palladium .....	45
5.3.4	Improvement of PHITS and DCHAIN.....	48
5.3.5	Development of PHITS User Input Support Software .....	49
5.3.6	Development of Advanced Analysis Function in PHITS .....	52
5.3.7	Improvements of Particle Differential Tally Functions in PHITS .....	55
5.3.8	Visualization of Input and Output Data of the Dose-estimation Code for External Exposure to Radionuclides in Air and on Ground.....	58
5.3.9	Development of Multiphase Flow Analysis Method Based on Interface Tracking Method .....	61
5.3.10	Theoretical Prediction of Beta-decay Half-lives.....	64
5.3.11	Radiation Shielding Analysis of the Upper Structure of an Accelerator-driven System.....	67
5.3.12	JENDL-5 Benchmark Test with Integral Experiments .....	70
5.3.13	Simulation of Oxygen Mass Transfer in Flowing Helium Gas .....	72
5.3.14	Relationship between Neutron Generation and Time of Subcritical System..	74
5.3.15	Effects of Eccentric Distribution of Nuclear Material in the Rotation Method .....	76
5.3.16	Development of Numerical Simulation Method for Molten Core Behavior in Lower Head.....	78
5.3.17	Development of Numerical Simulation Method for Thermal Fluid Flow Phenomena on Severe Accident Condition in Reactor Pressure Vessel .....	79
5.3.18	Numerical Simulation on Two-phase Flow for Development of Prediction Method of Critical Heat Flux Based on a Mechanism.....	82
5.3.19	Development of Numerical Simulation Method of Aerosol Particle Capturing Behavior.....	85
5.3.20	Two-phase Flow Analysis for Evaluation of Multiphysics Simulation Platform .....	88
5.3.21	Numerical Simulation of Ion Behavior for Li-7 Enrichment Technology Development by MCCCE Method .....	91

5.3.22	Atomic and Electronic Structure Calculations for Alloying and Defect Structures .....	94
5.3.23	Atomistic Modeling of Interaction between Nanocluster and Dislocations .....	97
5.3.24	Evaluation on Thermodynamic Properties of Cs-B-O Compounds using DFT Calculations .....	100
5.3.25	Development of Artificial Neural Network Potential for High-concentration Alloys.....	103
5.4	Advanced Science Research Center .....	106
5.4.1	Quantum Transport in Superconductor-ferromagnet Junctions .....	106
5.4.2	Research for Ground State and Excitation Dynamics in Low-dimensional Strongly Correlated Systems.....	109
5.4.3	Stability of $Ti^{3+}$ Small Polaron Bound to Interstitial Hydrogen in $SrTiO_3$ .....	112
5.4.4	Band Structure of Graphene on Hex-Au(001) Reconstructed Surface.....	115
5.5	Waste Management and Decommissioning Technology Development Center(Oarai Research and Development Institute) .....	118
5.5.1	Study on Evaluation Method of Gamma-ray Skyshine Radiation Dose Rate during Storage of Radioactive Waste by PHITS .....	118
5.6	HTGR Research and Development Center.....	121
5.6.1	Development of Utility Tool for Auto Seeking Critical Control Rod Position of the HTTR .....	121
5.7	Fast Reactor Cycle System Research and Development Center.....	124
5.7.1	Advancement of a Computer Program for Sodium-water Reaction Phenomena in a Steam Generator of Fast Reactors.....	124
5.7.2	Analysis of Large-scale Fuel Assembly Experiment with Natural Circulation Condition by SPIRAL.....	127
5.7.3	Development of Optimal Vortex Identification Method for Gas Entrainment Evaluation.....	130
5.7.4	Development of Coupled Analysis Method for Neutronics, Thermal-hydraulics, and Structure Mechanics of Fast Reactor Core.....	133
5.7.5	Calculation of Flux Distribution of Joyo MK-II Core with the Continuous-energy Monte Carlo Code MVP .....	136

5.8	Tsuruga Comprehensive Research and Development Center.....	138
5.8.1	Verification of the Simulation Code for Laser Processing.....	138
5.9	Fuel Cycle Design Department .....	141
5.9.1	Numerical Study of Physical Properties of Advanced Fuel in CNWG .....	141
5.9.2	Investigation of the Electronic Structure and Charge Transportability of HONTA for Minor Actinide Recovery.....	144
5.10	Reactor Systems Design Department .....	147
5.10.1	Study on Burnable Poison Mixed Fuel for Criticality Safety of HTGR Fuel Fabrication.....	147
5.11	Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science .....	150
5.11.1	Simulation Method of Laser Processing Technology for Applying to Decommissioning Technology of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1) .	150
5.11.2	Simulation Method of Laser Processing Technology for Applying to Decommissioning Technology of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (2) .	153
5.11.3	Application of the Numerical Model of Radionuclide Migration in Water to a River Mouth and Coastal Areas in Fukushima .....	156
5.12	Integrated Support Center for Nuclear Nonproliferation and Nuclear Security .	158
5.12.1	Installation of the Numerical Dispersion Model FLEXPART on the SGI8600 and Confirmation of Parallel Execution .....	158
5.12.2	Design of a Moderator for Neutron Time-of-flight Measurements.....	160
5.13	Nuclear Human Resource Development Center .....	162
5.13.1	Monte Carlo Simulations for Radiation Measurement Practice .....	162
5.14	Center for Computational Science & e-Systems .....	165
5.14.1	Computational Studies for Nuclear Quantum Effects of Materials.....	165
5.14.2	Development of Numerical Techniques for Materials in the Research Field of Atomic Energies.....	168
5.14.3	Atomic Scale Simulations of Radioactive Materials using Machine Learning.....	170

5.14.4	Calculation of Liquid Metal by First-principle Molecular Dynamics Method .	173
5.14.5	Investigation of Adsorption Structure of Radium on Clay Minerals.....	175
5.14.6	First-principles Study for the Degradation of Nuclear Materials .....	178
5.14.7	Simulation for Radioactive Nuclides Transport Inside Harbor of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station .....	180
5.14.8	Ab Initio Molecular Dynamics Simulation of Hydrogen in Materials.....	183
5.14.9	Analysis of Cesium Adsorption in Concrete using Machine Learning Molecular Dynamics.....	186
5.14.10	Atomic Simulations of Physical Properties for Nuclear Fuel .....	189
5.14.11	First-principles Calculation of Liquid Materials .....	192
5.14.12	DFT-MD Analysis of Irradiation Behavior of Graphite.....	195
5.14.13	Atomistic Simulations for Microstructural Evolution of Irradiated Materials.....	197
5.14.14	Development of Mixed-precision Preprocessing for Large-scale Fluid Flow Calculations .....	200
5.14.15	Development of In-Situ Visualization Method for Ensemble Simulation.....	202
5.14.16	Development of Interface Capturing Model for JUPITER-AMR.....	205
5.14.17	Development of a Deep Learning Model for Predicting Plume Concentrations in the Urban Area.....	208
5.14.18	Validation of the Puff Release Experiment in the Field Experiment at Oklahoma City using CityLBM.....	211
6.	Conclusion.....	214
	Appendices.....	215
	Author Name Index .....	217

This is a blank page.

## 1. はじめに

日本原子力研究開発機構（以下「原子力機構」）では、福島第一原子力発電所事故への対応、原子力の安全性向上研究、核燃料サイクルの研究開発、放射性廃棄物の処理・処分技術開発といった分野の研究開発などを重点的に実施している。原子力のような巨大技術においては、安全面や時間・空間の制約等により実験が困難な場合が多く、原子力機構においても従来から多くの研究開発に計算科学技術が用いられている。特に、大型計算機システムは計算科学技術を駆使した研究開発を進めることで大型実験施設に頼らないイノベーション創出に貢献が期待される重要インフラとして不可欠なものとなっている。

原子力機構の研究開発における計算科学技術の重要性は、発表論文数に見てとれる（図 1.1）。令和 3 年度に原子力機構の発表した査読付論文の総数は 862 件であった。このうち計算科学技術を利用した論文は 189 件（21.9%）である。この論文数は、全論文の 20%以上を占めており、原子力機構の研究成果に対する計算科学技術の貢献度の高さを示している。

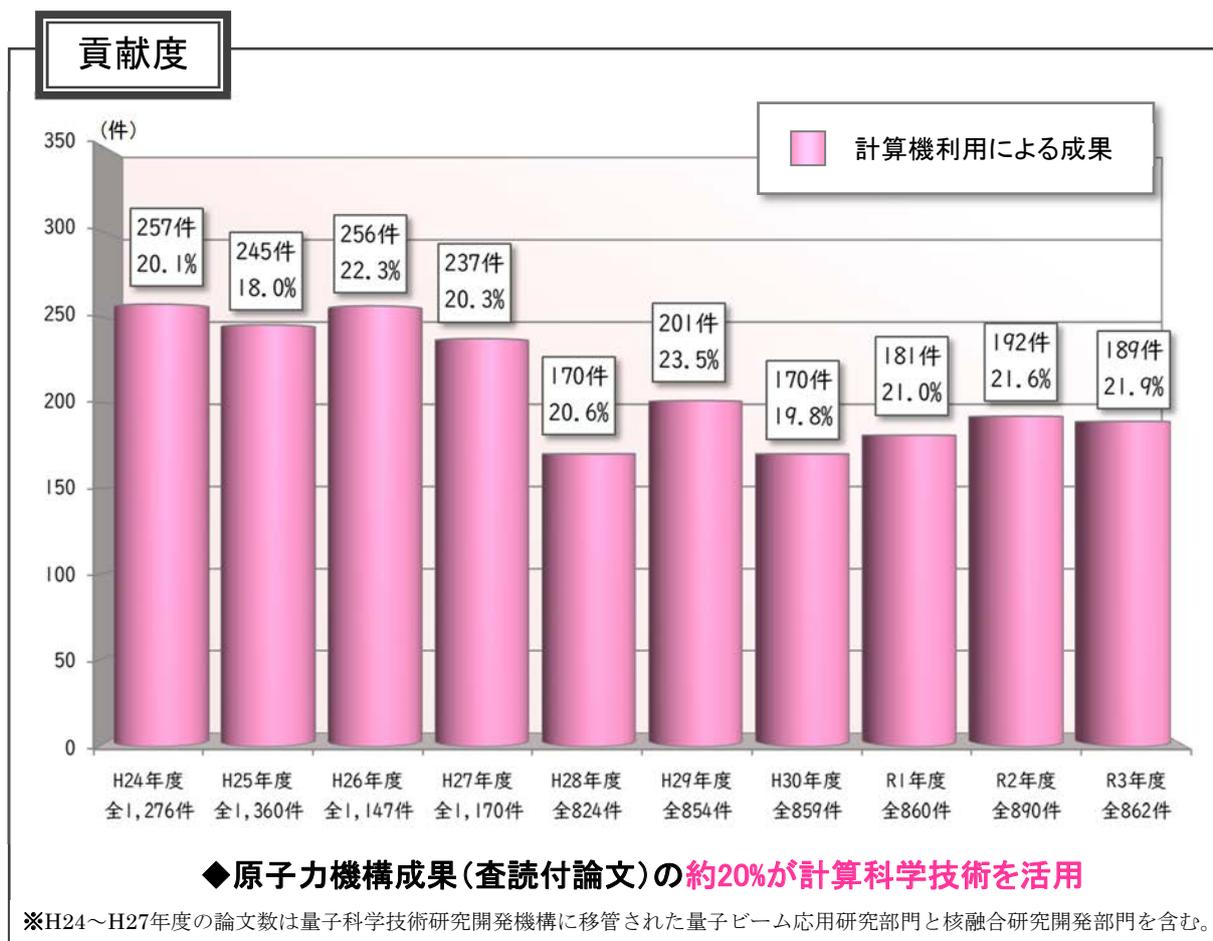


図 1.1 計算科学技術による研究成果創出貢献度 [平成 24 年度～令和 3 年度]  
 (原子力機構が発表した査読付き論文における計算科学技術を活用した論文の割合)

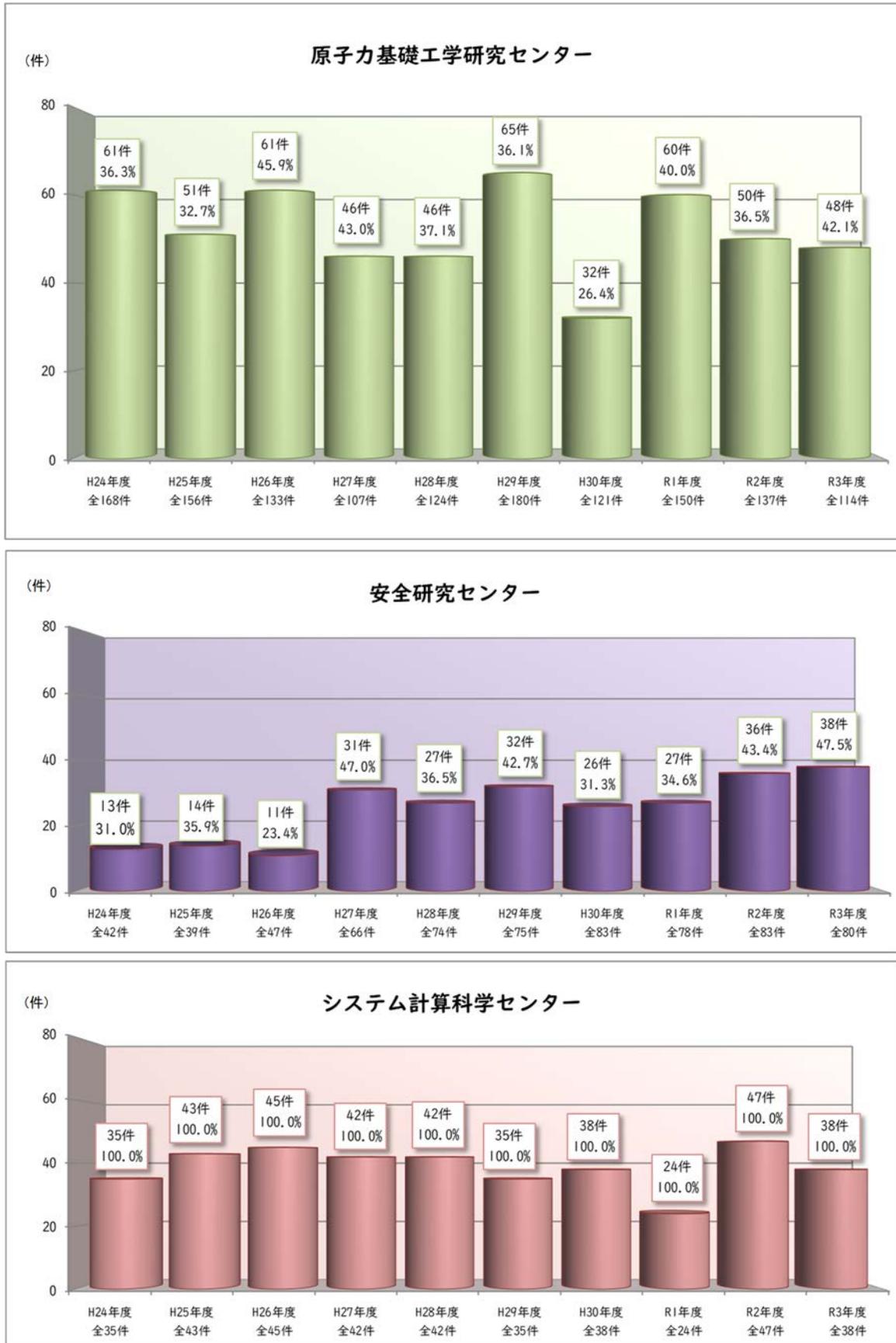


図 1.2 組織別計算科学技術による研究成果創出貢献度 [平成 24 年度～令和 3 年度]



図 1.2 組織別計算科学技術による研究成果創出貢献度 [平成 24 年度～令和 3 年度] (2/2)

大型計算機システムの利用者数が多い 4 組織（原子力基礎工学研究センター、安全研究センター、システム計算科学センター、高速炉・新型炉研究開発部門）の研究成果創出貢献度を図 1.2 に示す。

本報告は、原子力機構における令和 3 年度の大型計算機利用成果をまとめたものである。2 章に原子力機構の大型計算機システムの構成概要を、3 章に大型計算機システムの利用状況を、4 章に大型計算機システムの利用支援について示す。さらに、5 章では、原子力機構の大型計算機システムが具体的にどのような研究開発に利用され、どのような成果を創出しているかを示す。

## 2. 原子力機構の大型計算機システム環境

令和2年12月より運用を開始した大型計算機システム(原子力機構スーパーコンピュータシステム)は、GPGPU演算部とCPU演算部のGPU+CPUのハイブリッドシステムを中核とし、ISVアプリ処理部、ログイン処理部を加えたシステム全体として総理論演算性能12.6PFLOPS(旧システムの約5倍)の性能を有している。大型計算機システムの構成を図2.1に示す。GPGPU演算部のノードには、インテルXeonプロセッサ(24コア、3.0GHz)を2プロセッサ、主記憶384GB、NVIDIA Tesla V100 32GB×4枚、CPU演算部のノードには、インテルXeonプロセッサ(20コア、3.1GHz)を2プロセッサ、主記憶192GB、ISVアプリ処理部のノードには、インテルXeonプロセッサ(28コア、2.7GHz)を4プロセッサ、主記憶1,536GB、ログイン処理部のノードには、インテルXeonプロセッサ(20コア、3.1GHz)を2プロセッサ、主記憶384GBを搭載している。また、GPGPU演算部とCPU演算部のノード間通信機構は、InfiniBand EDRの片方向50GB/s(4ポート接続)、ISVアプリ処理部とログイン処理部はInfiniBand EDRの片方向25GB/s(2ポート接続)の帯域を有している。ストレージは、12TB HDD×2,040本、I/O性能400GB/sの磁気ディスク装置(17.6PB)で構築した大容量の並列ファイルシステムに、不慮のデータ消失に備えるための磁気テープライブラリー装置(4PB)で構成している。主な仕様を表2.1に示す。

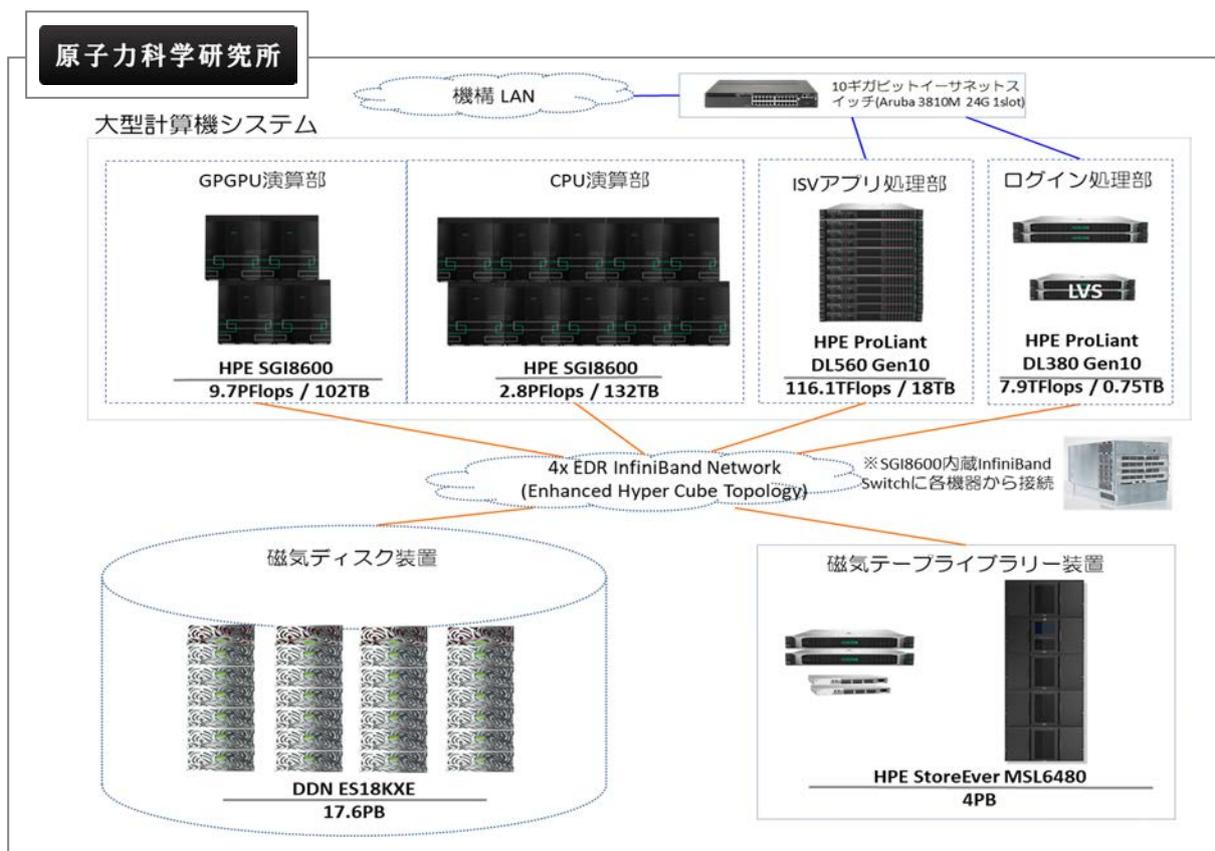


図 2.1 大型計算機システムの構成

表 2.1 大型計算機システムの性能(主な仕様)

	GPGPU 演算部 HPE SGI8600		CPU 演算部 HPE SGI8600	ISV アプリ処理部 HPE ProLiant DL540 Gen10	ログイン処理部 HPE ProLiant DL380 Gen10
タイプ	スカラ		スカラ	スカラ	スカラ
総演算性能 (TFLOPS)	1,253	8,486	2,801	116.12	7.936
総主記憶容量 (TB)	102	-	132.375	18	0.768
コア数/ノード	48		40	112	40
ノード数	272		706	12	2
CPU	Intel Xeon Gold 6248R 24core 3.0GHz ×2CPU	NVIDIA Tesla V100 SXM2 32GB Memory x 4	Intel Xeon Gold 6242R 20core 3.1GHz ×2CPU	Intel Xeon Platinum 8280 28core 2.7GHz ×4CPU	Intel Xeon Gold 6242R 20core 3.1GHz ×2CPU
演算性能/コア (GFLOPS)	96.0	162.5	99.2	86.4	99.2
メモリ/ノード (GB)	384	128	192	1536	384
ノード間通信性能	片方向 50GB/s (全二重)		片方向 50GB/s (全二重)	片方向 25GB/s (全二重)	片方向 25GB/s (全二重)
OS	Red Hat Enterprise Linux 7.7		Red Hat Enterprise Linux 7.8	Red Hat Enterprise Linux 7.8	Red Hat Enterprise Linux 7.8
コンパイラ	Fortran C/C++		Fortran C/C++	Fortran C/C++	Fortran C/C++
バッチシステム	PBS Professional		PBS Professional	PBS Professional	PBS Professional
ファイルシステム	DDN EXAScaler (Lustre)		DDN EXAScaler (Lustre)	DDN EXAScaler (Lustre)	DDN EXAScaler (Lustre)

令和4年3月末 現在

### 3. 令和3年度における計算機利用実績

#### 3.1 システム稼働率・コア利用率

大型計算機システム（SGI8600）は、システム保守メーカーとの連絡を緊密に行いバッチシステム不具合の早期解消に努めた結果、稼働率は99%を達成した（図3.1：紺の棒グラフ）。運用の停止は、年度切替え作業（4月）、構内全域停電（7月）、臨時保守作業（9月、11月）によるものである。また、コア利用率は91%であった（図3.1：黄の棒グラフ、詳細な利用実績は付録Aに示す）。

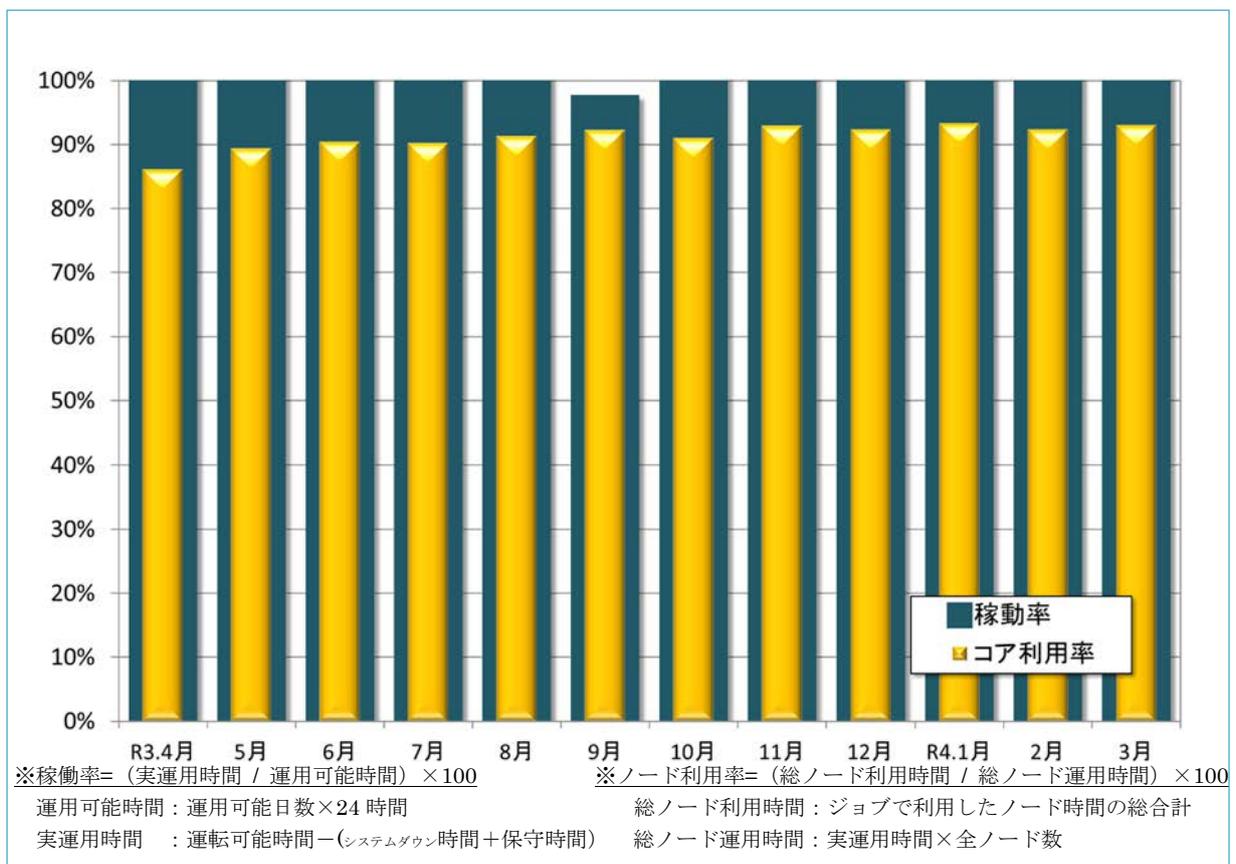


図 3.1 大型計算機システムの稼働率・コア利用率（年間）

### 3.2 大型計算機システムの組織別利用実績

令和3年度の大型計算機システム（SGI8600）の利用者数は398名である（システムの運用要員を除く）。組織別利用者数においては、原子力基礎工学研究センター、システム計算科学センター、安全研究センター、及び高速炉サイクル研究開発センターの4つの組織で大きな割合を占めている（図3.2）。

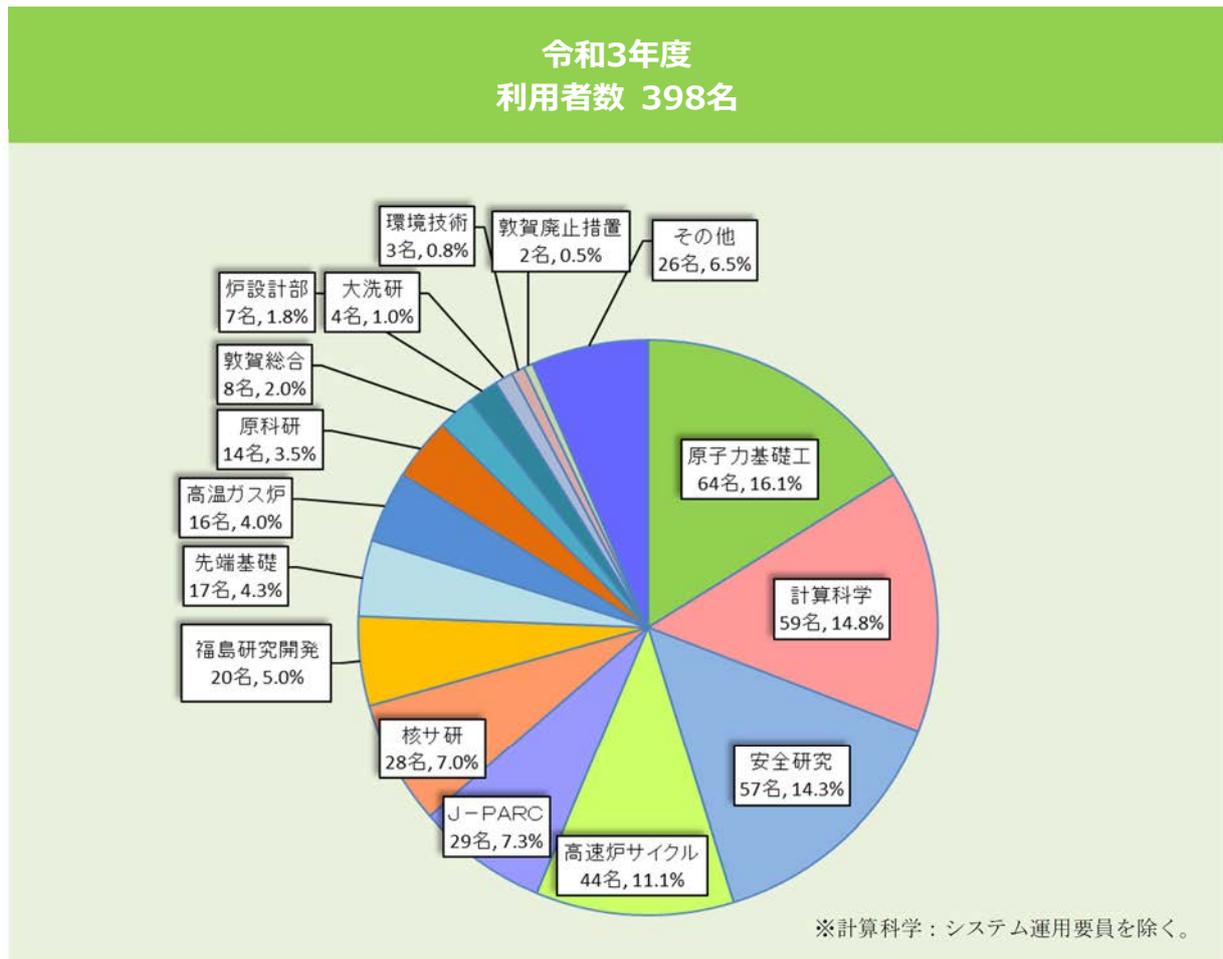


図 3.2 大型計算機システムの組織別利用者数

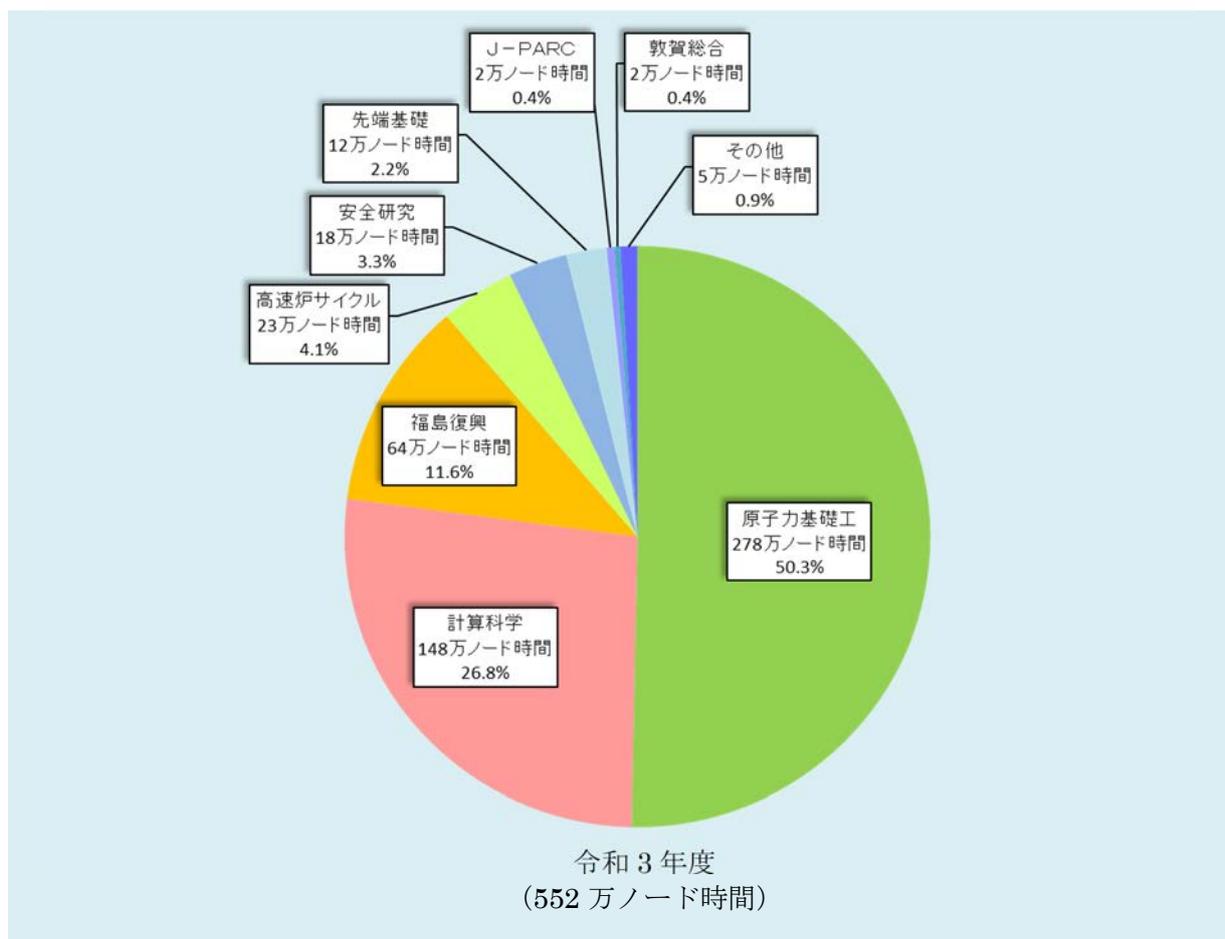


図 3.3 大型計算機システムの分野別ノード時間利用実績

大型計算機システムのノード時間は、4月からの累積で552万ノード時間が利用された。分野別のコア利用時間を図3.3に示す。福島復興では原子力基礎工学研究センター、システム計算科学センターがそれぞれ福島研究開発部門と連携し、廃炉、地層処分に関わる物質の物性評価、燃料デブリ空冷解析手法、コンクリート中のセシウム拡散や処理水放出の放射線物質の挙動などの解析計算に利用された。本報告に集録した福島復興に係る対応の一覧を表3.1に示す。

表 3.1 主な大型計算機システムを利用した福島復興に係る対応 (1/2)

項	計算内容	組織	プログラム名 最大並列数	利用時間 (ノード時間)	関連する 成果報告
1	放射性物質の存在様態解析等の数値シミュレーション	システム計算科学センター 廃炉環境国際共同研究センター	VASP 1,440	236,422	5.14.3 項

表 3.1 主な大型計算機システムを利用した福島復興に係る対応 (2/2)

項	計算内容	組織	プログラム名 最大並列数	利用時間 (ノード 時間)	関連する 成果報告
2	1F 燃料デブリ自然対流冷却・多孔質体流れに関する解析	原子力基礎工学 研究センター 廃炉環境国際共同 研究センター	JUPITER 7,200	165,302	5.3.17 項
3	界面追跡法に基づく混相流 解析手法開発	原子力基礎工学 研究センター 廃炉環境国際共同 研究センター	TPFIT 7,200	144,979	5.3.9 項
4	Cs 化合物の熱力学特性評価・ラマン分光解析	原子力基礎工学 研究センター 廃炉環境国際共同 研究センター	VASP 520	21,943	5.3.24 項
5	福島第一原発事故において コンクリートに吸着した放射 性セシウムの解析	システム計算科学 センター	VASP 1,600	19,986	5.14.9 項
6	福島第一原子力発電所港湾 内の放射性物質動態解析シ ミュレーション	システム計算科学 センター 福島研究開発部門 企画調整室	3D-Sea-SPEC 3,072	18,289	5.14.7 項
7	材料機能における核量子効 果 (特に水素の同位体) の計 算科学研究	システム計算科学 センター 廃炉環境国際共同 研究センター	VASP 2,560	12,957	5.14.1 項
8	福島第一原発事故のデブリ 物性に関する解析	システム計算科学 センター	VASP 1,920	8,584	5.14.11 項
9	燃料デブリの物性評価	システム計算科学 センター 廃炉環境国際共同 研究センター	VASP 2,560	6,552	5.14.10 項

## 4. 大型計算機システムの利用支援

大型計算機システムを利用した成果の着実な創出には、研究者における創意工夫によるところが第一ではあるが、システムを運用管理する部門における利用者への充実した支援が欠かせない。大型計算機システムは、大規模かつ複雑なシステム（ハードウェア、ソフトウェア）の組み合わせにより成り立っている。利用者の多くはプログラミングの専門家ではないため、プログラム自体の開発や改良が利用者任せになると、多大な時間を費やすことになり、本来の研究の効率的な推進の妨げになる。また、システムの運用管理面からは、利用率と利用効率の低下を招くことになる。

原子力機構では、専門スタッフによる階層的な利用支援体制を整備することにより、初歩的な大型計算機システムの利用相談から、高度な技術を要するプログラムの開発や改良（最適化）に至るまでをカバーするとともに、大型計算機システムの利用技術の習得・向上を目的とする講習会・セミナー開催などの教育を実施することにより、利用者の研究活動を計算機利用技術の向上と利用効率化の両面から体系的に支援している（図 4.1）。この利用支援への取り組みは、3章に示したように、大型計算機システムの利用促進に寄与している。

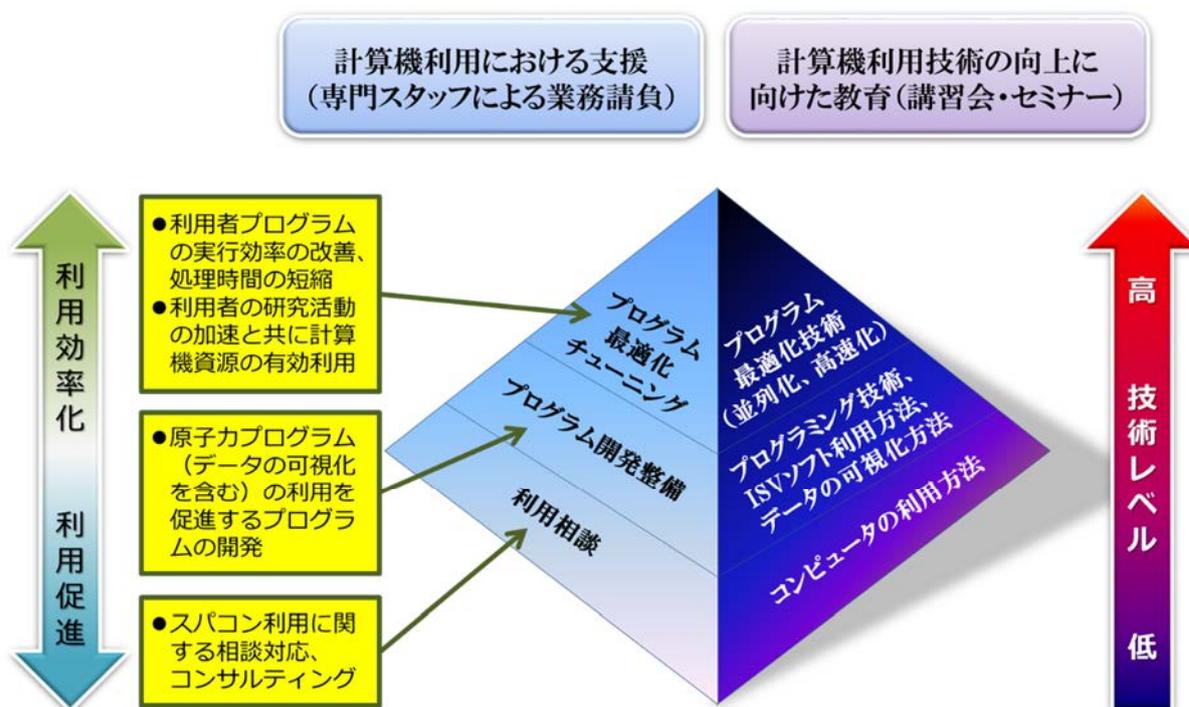


図 4.1 利用支援体制

## 4.1 計算機利用における支援

### 4.1.1 利用相談

利用相談では、1) 計算機全般の利用に関する相談対応、2) 大型計算機システムの効果的利用についてのコンサルティング（可視化の技術支援を含む）、3) 大型計算機システム利用に関する有用な情報（ツール類を含む）やソフトウェア等のマニュアルの提供を行っている。

令和3年度の利用相談（可視化に係る相談等を除く）は、年間463件（月平均：約38件）寄せられた（詳細は付録Bに示す）。そのうち約80%が大型計算機システム（SGI8600）に関するものである。

### 4.1.2 プログラム開発整備

プログラム開発整備は、利用者に代わって専門スタッフにより効率的にプログラム開発を行うもので、原子力機構内各部門で共通に使用される原子力プログラムなどの新規プログラムの作成、及び既存プログラムの整備・改良を行っている。また、計算機性能の飛躍的向上に伴い、シミュレーション計算結果のデータも莫大なものになっており、これら計算結果の理解には可視化が欠かせない。このため、データの可視化に対するプログラム開発整備も利用支援の重要な構成要素の一つである。令和3年度は表4.1に示す選定要件に基づき、9件のプログラム開発整備作業を採択・実施した。

表 4.1 プログラム開発整備における選定要件と選定件数

選定要件	選定件数
(P1) 原子力機構内で共通に使用されるプログラム	7件
(P2) 大規模課題で使用するプログラム	—
(P3) 解析の大規模化等、大規模利用（大規模並列化）が必要なプログラム	—
(P4) 大規模データの可視化処理を行なうプログラム	—
(P5) 福島支援等、緊急対応が必要なプログラム	2件
(P6) SGI8600への整備が必要なプログラム	—

令和3年度の主な作業について表4.2に示す。原子力機構内で共通に使用されるとして選定したアプリケーションのプログラム開発整備作業では、令和2年度に引き続き、国内外のユーザ数が4,000名を超える汎用モンテカルロ計算コード（PHITS）について、PHITS利用のGUI上から外部ソフトウェアを実行する機能、計算条件を変更した場合の計算結果への影響を分析する機能、1回の実行で複数の線源に対して計算する機能、全粒子による寄与から指定された粒子の寄

与を除いた結果を出力する機能などの開発作業を4件実施した。これらの開発した機能は、PHITS公式版で一般公開され、更なる研究成果の増加や利用者拡大が期待される。

表 4.2 主な令和3年度プログラム開発整備作業 (1/2)

項	作業件名 (選定要件)	作業概要、及び結果	関連する 成果報告
1	PHITS ユーザ入力支援ソフトウェアの開発 (P1)	汎用モンテカルロ計算コード (PHITS) の利用において、多くの入力ファイルのパラメータ等を視覚的に理解して入力できる GUI (PHACE) の開発を支援。令和2年度に開発した Windows®版 PHACE 上から新たに3次元描画ソフトウェア (PHIG-3D) を実行する機能とヒント機能の開発を支援。これにより、PHITS 入力データに定義された Cell 情報を図形表示することや、編集中に記述されたパラメータなどの正誤の自動チェックや入力キーワードに対する説明が表示されるなど PHACE の利便性が向上した。	5.3.5 項
2	PHITS における分析機能の開発 (P1)	任意の形状・物質内における多様な放射線の挙動を解析可能な PHITS の開発を支援。令和2年度に開発した [t-track] や [t-deposit] タリーの系統的不確かさなどの分析機能を高度化し、[t-product]、[t-yield]、[t-interact] といった主要な 11 タリーでも利用できるように機能拡張を実施。これにより、計算条件の一部を変化させた場合の粒子輸送計算を複数回実施するために、シェルスクリプト等の外部プログラムを用意する必要がなくなり複数タリーの解析が容易となった。	5.3.6 項
3	ガス巻込み評価に係る渦の最適抽出手法の整備 (P1)	ナトリウム冷却高速炉における種々の熱流動現象の重要課題であるカバーガス巻込みの既存評価ツール「Stream Viewer」の渦抽出機能を、オープンソースの可視化ソフトウェア「ParaView」で実現できるように開発を支援。これにより、並列版に対応した新たなシステムが構築され、大規模な解析結果を可視化処理することが可能となった。	5.7.3 項
4	DCHAIN 及び PHITS の改良 (P1)	PHITS で線源粒子の種類を“all”と定義した時に放射性核種が放出可能な放射線種が自動で設定できる機能の開発を支援。これにより、現実で生じる物理現象を1度のシミュレーションで可能となり、加速器施設や原子炉などの誘導放射能の計算における PHITS の利便性が向上した。	5.3.4 項

表 4.2 主な令和 3 年度プログラム開発整備作業 (2/2)

項	作業件名 (選定要件)	作業概要、及び 結果	関連する 成果報告
5	PHITS の粒子別タ リー出力機能の改 良 (P1)	PHITS の主要な 16 タリーに対し、各物理量計算タリー設定 のオプションとして用意されている part パラメータに負符 号を指定した場合、全粒子による寄与から負の符号を指定し た粒子の寄与を除いた結果を出力する機能の開発を支援。こ れにより、一次粒子の寄与を除いた二次粒子による線量寄与 等を簡単に調査できるようになり、PHITS の利便性が向上し た。	5.3.7 項
6	福島第一原子力発 電所の廃炉技術へ のレーザー加工技 術適用に向けたシ ミュレーション手 法の開発 (P5)	レーザーによる燃料デブリ切断現象を定量的に予測できる解 析手法の基礎検討を行うため、多相多成分詳細熱流動解析コ ード JUPITER を使用し、レーザー照射を模擬した金属溶融 と水噴流条件（噴流速度：10m/s、20m/s、60m/s、90m/s、 126.9m/s ノズル先端距離：20mm、50mm）を同時に計算す るモデル系を作成して解析を実施し、溶融によって生じた溶 融スラグの移行挙動を模擬した評価解析を実施。これによ り、レーザーを利用した燃料デブリ加工・切断時の複雑な物 理現象の解明が期待できることや原子炉熱設計コードの予測 精度向上が期待できる見通しを得られた。	5.11.1 項 5.11.2 項
7	放射性雲からの外 部被ばく線量評価 コードにおける入 出力データの可視 化環境整備 (P1)	原子力施設から環境中に排出される放射性物質による外部被 ばくを評価するため、令和 2 年度に開発した GUI for SIBYL に対し、計算結果データの表示領域への補完機能と、VTK フ ォーマットを ParaView 起動時に自動的に可視化を行う自動 生成機能の開発を支援。これにより、放射性雲からの外部被 ばく線量評価コード SIBYL における入出力データを、 ParaView を用いて適切に可視化することが可能となった。	5.3.8 項

### 4.1.3 プログラム最適化チューニング

プログラム最適化チューニングでは、大型計算機システムで実行されるプログラムについて、高速化・並列化チューニングを行い、実行効率の改善、処理時間の短縮を実現することで、利用者の研究活動を加速させるとともに計算資源の有効活用を図っている。例えば、チューニングにより、計算時間が 20%短縮されれば、計算機資源が 20%増加した効果をももたらすため、不足する計算機資源をより有効活用する上で重要な施策となっている。並列度の高い大型計算機システムにおいて、その性能を十分に発揮させるためには、並列化メリットを最大限に引き出せるようにプログラムをファインチューニングすることが不可欠である。このチューニングには特に高度な技術を要し、一般の利用者が行うにはハードルは高く、専門スタッフの支援が欠かせない。

プログラム最適化チューニング（高速化・並列化）は、毎年原子力機構内の募集に加え、大型計算機利用委員会にて承認された課題で利用するプログラムにおいて、並列化効率・実行効率の改善や GPGPU 化の必要があるプログラムを対象に実施している。令和 3 年度は表 4.3 に示す選定要件に基づき、9 件のプログラム最適化チューニング作業を採択・実施した。

表 4.3 プログラム最適化チューニングにおける選定要件と選定件数

選定要件	選定件数
(T1) 大規模課題で使用するプログラム	4 件
(T2) 解析の大規模化等、大規模利用（大規模並列化）が必要なプログラム	—
(T3) 原子力機構内で共通に使用されるプログラム	3 件
(T4) 福島支援等、緊急対応が必要なプログラム	—
(T5) SGI8600 への整備が必要なプログラム	2 件

令和 3 年度の主な作業について表 4.4 に示す。大規模課題で使用するプログラムとして選定した GPGPU 利用者支援においては、GPU 版 VASP に対して、MPI 通信環境（GPUDirect）の整備とスレッド並列化を実施し、CPU 版に比べ 8.1 倍の速度向上を得た。また、TPFIT-LPT 及び SERAPHIM については、GPGPU 利用のために OpenACC 化と GPUDirect 化を実施し、それぞれ 9.6 倍、3.9 倍の速度向上を得た。これらのコードは、令和 4 年度における使用ノード時間（4 月現在の予定）から算出すると 776,000 ノード時間を要する計算が GPGPU 化により 99,500 ノード時間で計算できるようになった。

表 4.4 主な令和 3 年度高速化・並列化作業 (1/2)

項	プログラム名 (選定要件)	高速化・並列化 チューニングの概要	高速化・並列化 チューニングによる 速度向上、及び作業結果	関連する 成果報告
1	GPU 版 VASP の最適化及び高速化作業 (T1)	① 通信ルーチンの GPUDirect 化 ② スレッド並列化	CPU 版に比べ 8.1 倍の高速化を達成	5.14.10 項
2	TPFIT-LPT の GPU 移植作業 (T1)	① OpenACC 化 ② 通信ルーチンの GPUDirect 化	CPU 版に比べ 9.6 倍の高速化を達成	5.3.9 項
3	GPU 版 JUPITER の最適化及び高速化作業 (T1)	① 関数 Level_Set の OpenACC 化 ② 通信ルーチンの GPUDirect 化	オリジナル比 1.27 倍の高速化を達成	5.3.17 項
4	GPU 版 SERAPHIM の最適化及び高速化作業 (T1)	① OpenACC 化 ② 通信ルーチンの GPUDirect 化	CPU 版に比べ 3.9 倍の高速化を達成	5.7.1 項
5	緊急時海洋環境放射能評価システム STEAMER の移植作業 (T5)	① 高速化版 SEA-GEARN 用入力ファイルの作成処理の組み込み ② MATLAB ライセンスの確認処理 ③ ISV アプリ処理部の動作確認	SGI8600 への移植	5.3.1 項
6	FEMAXI-8 コードの高速化作業 (T3)	① サブルーチンの定義・参照関係調査 ② 使用 DATA 文の調査 ③ 使用 SAVE 文の調査 ④ カーネルループに対してスレッド並列化	コード全体を対象に共有属性の module 変数の修正が必要	5.1.7 項

表 4.4 主な令和 3 年度高速化・並列化作業 (2/2)

項	プログラム名 (選定要件)	高速化・並列化 チューニングの概要	高速化・並列化 チューニングによる 速度向上、及び作業結果	関連する 成果報告
7	粒子拡散モデル FLEXPART の SGI8600 への移植と並 列実行確認 (T3)	① シリアル版と並列版(ス レッド、MPI、スレッド +MPI) の整備 ② シリアル版と並列版(ス レッド、MPI、スレッド +MPI) で計算結果が一 致するように修正	SGI8600 への移植	5.12.1 項
8	汎用非線形構造解析プ ログラム FINAS の移植 作業 (T5)	① 整数オーバーフローの 対処 ② COMMON 配列の順序 付け配置	SGI8600 への移植	5.7.4 項

## 4.2 計算機利用技術の向上に向けた教育(講習会・セミナー)

利用者の計算機利用技術の向上に向けた教育として、大型計算機システム上で利用されるソフトウェアや高速化等のプログラミング方法等について講習会を開催しており、利用者のスキルアップに努めるとともに大型計算機システムの利用促進を図っている。なお、これらの教育は、新型コロナウイルス (COVID-19) 感染拡大の状況を踏まえ、オンラインで実施した。

令和 3 年度の講習会は、SGI8600 の利用講習会、可視化講習会を 5 回開催(初級レベル:3 回、中級レベル:2 回)、延べ 197 名が参加した(表 4.5)。実習による講習会や実機を使って確実な技術習得を指向した。

表 4.5 令和 3 年度講習会 (1/2)

項	技術レベル	開催日時	開催場所	内容	形式	参加者
1	利用方法 初級	令和 3 年 7 月 26 日	オンライン	GPGPU プログラミング講習会 (入門編)	講義	39 名
2	利用方法 中級	令和 3 年 8 月 25 日	オンライン	GPGPU プログラミング講習会 (実践編)	講義	35 名

表 4.5 令和 3 年度講習会 (2/2)

項	技術レベル	開催日時	開催場所	内容	形式	参加者
3	利用方法 初級	令和 3 年 10 月 27 日	オンライン	ディープラーニング講習会 (入門編)	講義	95 名
4	可視化 中級	令和 3 年 11 月 9 日	オンライン	ParaView 講習会	講義 実習	18 名
5	可視化 初級	令和 4 年 1 月 26 日	オンライン	MicroAVS 講習会	講義 実習	10 名

## 5. 大型計算機システム利用による研究成果

### 5.1 安全研究センター

#### Nuclear Safety Research Center

---

##### 5.1.1 原子力発電所の内部火災等を対象としたシミュレーションを用いたリスク評価手法の開発

##### Development of Simulation-based Risk Analysis Methodology for External Events Including Internal Fire in Nuclear Power Plants

久保 光太郎

シビアアクシデント研究グループ

###### (1) 利用目的:

原子力発電所の安全性を定量的に評価する手法として確率論的リスク評価（PRA）が、電力事業者や規制機関で実施されている。当該手法により、シビアアクシデントの発生頻度、機器や運転員操作の重要度等を定量化することで、効果的な安全性向上が可能になる。

近年、この手法と多様なシミュレーションを組み合わせることにより、より現実的かつ詳細なリスク評価を行い、従来の PRA 手法では得られなかったリスク情報を取得する取り組みが様々な研究機関で実施されている。原子力機構では、その取り組みとして、シミュレーションに基づくリスク評価手法及びそのための解析ツール RAPID を開発中である [1]。この手法におけるシミュレーションでは、プラント応答評価のための熱水力解析、火災進展評価のための数値流体解析、地震影響評価のための地震時信頼性解析等の多種かつ大規模な解析を組み合わせることで評価を行うため、HPE SGI8600 の利用が必要不可欠であった。

令和 3 年度は、①火災進展解析コード FDS [2] と RAPID による内部火災用リスク評価モデルの構築、②内部溢水のリスク評価、③地震起因内部溢水のリスク評価及び④地震時 PRA 手法の高度化に取り組んだ。

###### (2) 利用内容・結果:

本報告では、上記の②内部溢水のリスク評価に係る取り組みについて記載する。評価対象は、加圧水型原子炉（PWR）のタービン建屋で発生する内部溢水を選定した。熱水力解析には、シビアアクシデント総合解析コード THALES2[3]を使用し、溢水伝播解析にはベルヌーイ則に基づく簡易シミュレーションを使用した。この評価では、図 1 のように上記のシミュレーションを RAPID によって結合することにより、機器の水没する時刻や水没によるプラント応答を考慮したリスク評価を実施した。また、内部溢水に対する対策として、運転員による溢水源の隔離操作とポンプによる排水の効果を検証した。

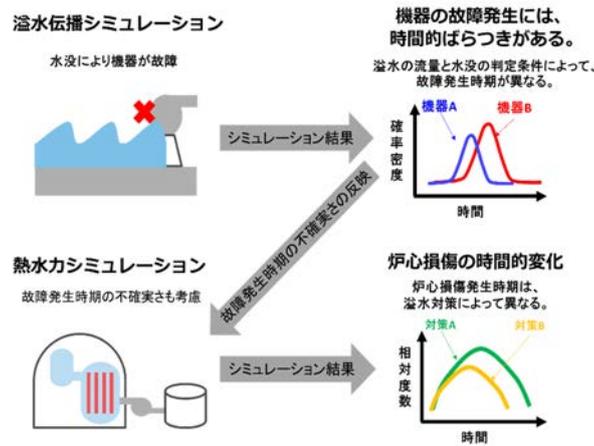


図1 不確かさを考慮したシミュレーションの結合

評価結果として、対策毎の炉心損傷発生時間のヒストグラムを図2に示す。運転員による隔離操作は、後期に生じる水没による機器の故障を回避させ、5時間以降に生じる炉心損傷を効果的に低減することがわかった。ポンプによる排水は、水没による機器の故障発生時期を遅らせ、炉心損傷発生時間を遅らせることがわかった。それらの対策の組み合わせは、相乗効果によって、より効果的に炉心損傷を回避させ、溢水発生を仮定した際の条件付炉心損傷確率を1桁程度低減させることがわかった。これらの結果から、動的PRAによって、内部溢水に対する対策の炉心損傷発生時間への影響及び溢水の発生を仮定した際の条件付炉心損傷確率を定量的に評価できることを示した。

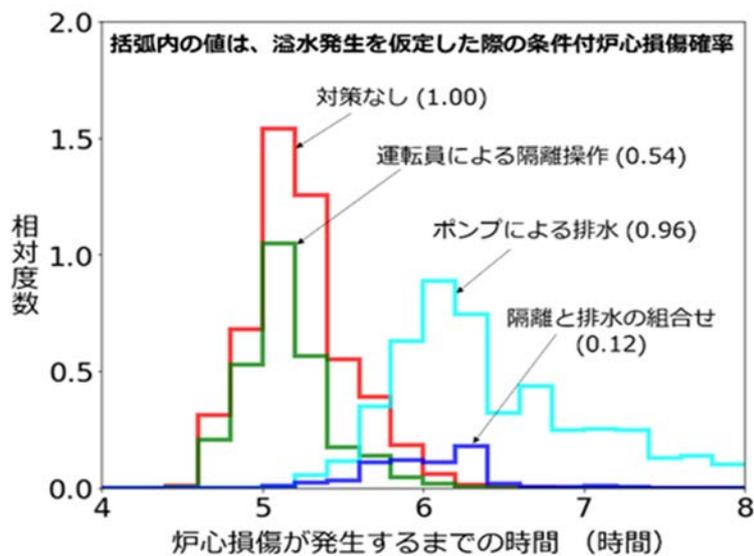


図2 炉心損傷発生時間のヒストグラム

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) K. Kubo, et al., “Simulation-based dynamic probabilistic risk assessment of an internal flooding-initiated accident in nuclear power plant using THALES2 and RAPID”, Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers, Part O: Journal of Risk and Reliability, in press. DOI: 10.1177/1748006X221091604.
- 2) K. Kubo, et al., “Dynamic probabilistic risk assessment of seismic-induced flooding event in pressurized water reactor by seismic, flooding, and thermal-hydraulics simulations”, Journal of Nuclear Science and Technology, in press. DOI: 10.1080/00223131.2022.2100837.
- 3) K. Kubo and Y. Tanaka, “Application of polynomial chaos expansion technique to dynamic probabilistic risk assessment of nuclear power plants”, Asian Symposium on Risk Assessment and Management 2021 (ASRAM2021), online, 2021.
- 4) K. Kubo, et al., “A scoping study on the use of direct quantification of fault tree using Monte Carlo simulation in seismic probabilistic risk assessments”, 29th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE29), Shenzhen, China, 2022.

**(4) 今後の利用予定:**

今後も HPE SGI8600 並びに構築したリスク評価手法及びモデルを用いた検討を継続し、従来の PRA 手法では取得困難なリスク情報の抽出やリスク評価手法の高度に取り組む。

参考文献

- [1] X. Zheng, et al., “Severe accident scenario uncertainty analysis using the dynamic event tree method”, 14th International Conference on Probabilistic Safety Assessment and Management (PSAM14), Los Angeles, CA, 2018.
- [2] K. McGrattan, et al., “Fire dynamics simulator technical reference guide volume 1: Mathematical model”, NIST Special Publication 1018-1 Sixth Edition, 2013.
- [3] M. Kajimoto, et al., “Development of THALES-2: A computer code for coupled thermal-hydraulics and fission product transport analyses for severe accident at LWRs and its application to analysis of fission product revaporization phenomena”, International Topical Meeting on Safety of Thermal Reactors, Portland, 1991.

## 5.1.2 ニトロシルルテニウム錯体の溶存状態に関する理論的研究

### A Theoretical Study on Ruthenium Nitrosyl Complexes in Aqueous Solution

城戸 健太朗

シビアアクシデント研究グループ

#### (1) 利用目的:

ニトロ配位子や硝酸配位子を持つニトロシルルテニウム錯体は貴金属の抽出溶液や核燃料再処理後の廃液などに含まれる。水溶液内におけるニトロシルルテニウム錯体の構造や溶媒和などの溶存状態に関する知見は、効率的な貴金属回収及び廃液沸騰乾固事故のルテニウム挙動の把握などソースターム評価の観点でも有用である。廃液沸騰時にはニトロシルルテニウム錯体が揮発性の高い四酸化ルテニウムなどに酸化される事実はよく知られている一方、溶存状態の情報の欠如から、その反応過程は依然として解明されていない。

本研究では、 $[\text{Ru}(\text{NO})(\text{OH})(\text{NO}_2)_4]^{2-}$  (complex A)、 $[\text{Ru}(\text{NO})(\text{OH})(\text{NO}_2)_3(\text{ONO})]^{2-}$  (complex B)、 $[\text{Ru}(\text{NO})(\text{OH})(\text{NO}_2)_3(\text{H}_2\text{O})]^{-}$  (complex C) を対象に、分子軌道法と分子性液体の積分方程式理論を結合した NI-MC-MOZ-SCF 法を用いて水溶液内の自由エネルギーと錯体付近の水分子の分布を計算した。この方法では、静電ポテンシャルを錯体周りのすべてのグリッド点について評価する必要があり、計算の効率性から並列数の大きな大型計算機の利用が不可欠である。また、分子軌道計算に計算負荷の極めて大きい RI-CCSD(T)法を採用しており、その実行にも大型計算機が重要な役割を果たしている。

#### (2) 利用内容・結果:

本稿では紙面の都合上、complex A と B について述べる。図 1 は NI-MC-MOZ-SCF 法と PCM 法 (溶媒を連続媒体とみなす簡易な溶媒モデル) を用いて MP2、RI-CCSD(T)、密度汎関数法 (BP86、CAM-B3LYP、 $\omega$ B97X-D、M06、M06-L、TPSS、TPSSh) によって得られた complex A と B の水溶液内における割合である。基底関数には LanL2TZ(f) (Ru)、aug-cc-pVTZ (他の原子) を用いた。NI-MC-MOZ-SCF のジョブは我々が改変した量子化学計算パッケージ GAMESS を用いて HPE SGI8600 の CPU 計算部において実行された。complex A 及び B の計算時間は、RI-CCSD(T)法を除いて 400 並列の場合、実時間でおよそ 120 分であった。RI-CCSD(T)では、480 並列でおよそ 24 時間 (実時間) を要した。

本稿には示していないが、complex B ではニトリト配位子の配向について 9 種類の構造異性を考慮しており、図 1 に示された割合はそれらの和である。NI-MC-MOZ-SCF 法では、MP2 によって実験値が再現されている。それ以外の方法では complex B が 9 割以上占めており、実験とは逆の傾向である。採用した計算方法の中で最も信頼性が高いのは RI-CCSD(T)法であるため、MP2 の結果は偶然の一致と考えられる。興味深いことに、RI-CCSD(T)法は密度汎関数法に似た結果を与えた。一方で、PCM 法では計算方法によるばらつきが大きく、参照できる実験値が無いような錯体の場合に、計算結果の信頼性をどのように判断するかに課題がある。本稿には示していないが、最も割合が高い complex B のコンフォーマーは NI-MC-MOZ-SCF と PCM では異なっており、溶存状態を正確に議論するために溶媒を露わに考慮したモデルの必要性を示唆している。

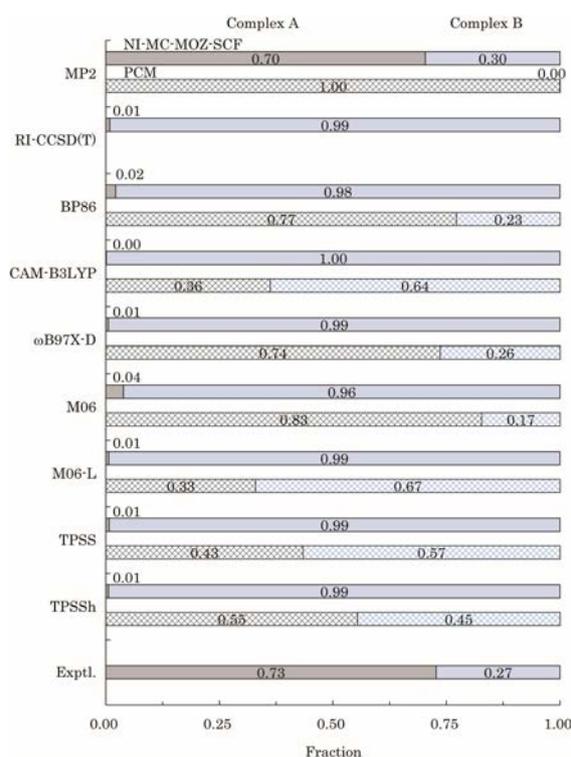


図 1 NI-MC-MOZ-SCF 法と PCM 法によって評価した complex A と B の割合。

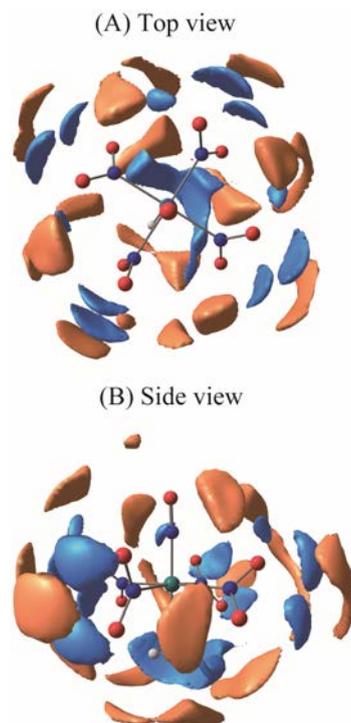


図 2 NI-MC-MOZ-SCF(MP2)法によって得られた complex A 付近の水分子の分布。オレンジは酸素原子の、青は水素原子の分布をそれぞれ表す。

図 2 は complex A 付近の水分子の分布を等値面で示したものである。等値面の値はバルク密度 ( $1\text{g}/\text{cm}^3$ ) に対する比に相当する。オレンジ (等値面の値は 6) は酸素原子の、青 (等値面の値は 5) は水素原子の分布をそれぞれ表す。ニトロ配位子やヒドロキシル配位子の近くには水素結合を表す分布が見られる一方で、ニトロシル配位子の周りに高密度の分布はない。水溶液内では、他の配位子よりもニトロシル配位子へ接近しやすいことを示唆している。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) K. Kido and M. Kaneko, "Conformation, hydration, and ligand exchange process of ruthenium nitrosyl complexes in aqueous solution: Free - energy calculations by a combination of molecular - orbital theories and different solvent models", J.Comput. Chem., in press, DOI: <https://doi.org/10.1002/jcc.27021>.

### (4) 今後の利用予定:

本稿では水溶液内における溶存状態を議論したが、実際には大抵の場合、濃度の高い硝酸水溶液が使われる。配位子の種類や数は硝酸濃度に依存することが実験的に示されており、今後はその分子レベルの理解を目指す。NI-MC-MOZ-SCF 法では、今回とほぼ同じ計算コストで硝酸水溶液内の溶存状態を評価でき、引き続き大型計算機の利用が必須である。

5.1.3 溶融炉心挙動シミュレーションに向けた高精度解像度可変型粒子法の開発  
 Development of Multi-resolution Particle Method with High Order Accuracy  
 for Simulating Molten Core

汪 子迪

シビアアクシデント研究グループ

(1) 利用目的:

In a hypothetical severe nuclear accident, undesirable melting or solidification, e.g., fuel melting and molten core solidification, might occur. Given the unlikely event of a large-scale core meltdown, the molten core may be released from the reactor pressure vessel. The efficiency of heat removal and related corium retention strategies, such as the in-vessel retention, ex-vessel core melt spreading, and core catcher, is strongly dependent on the corium phase change process. This study aims to develop a particle method for accurate and efficient simulation of solid-liquid phase change coupled with the thermal flow.

(2) 利用内容・結果:

For a solid-liquid phase change problem, the temperature gradient is not continuous on the interface owing to the latent heat. In this study, instead of including the latent heat in the governing equation, the heat equations for solid and liquid phases are solved separately. With this, the arbitrary high order scheme can be adopted. A sharp interface model is proposed to represent the solid-liquid interface explicitly, as illustrated in Fig.1. Owing to the meshless particle framework and Arbitrary Lagrangian Eulerian (ALE) formulation, the sharp interface, represented by discrete nodes, moves freely during the phase change. Moreover, to save the computational cost, a multi-resolution scheme is developed to refine the spatial resolution near the interface dynamically.

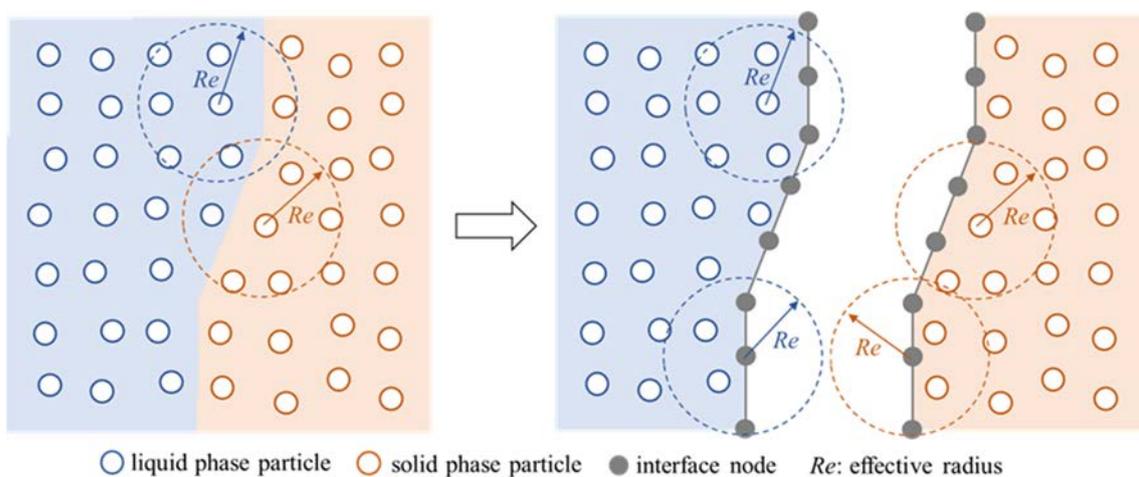


Fig. 1 Illustration of the proposed sharp interface model

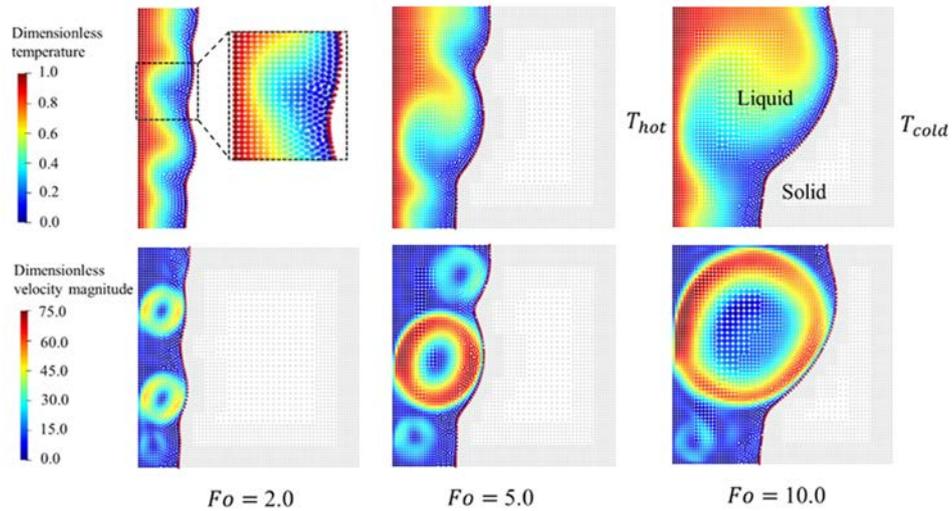


Fig. 2 Distributions of temperature and velocity magnitude in natural convection melting

The problem of melting by natural convection has been studied using the developed method. The computational domain, which is a square, is assumed to be solid in the first place. The temperature on the left wall is kept higher than the melting temperature, while a smaller constant temperature is imposed on the right wall. Homogeneous Neumann boundary condition for temperature is enforced on both top and bottom walls. Figure 2 shows the distributions of dimensionless temperature and velocity magnitude at different Fourier numbers. Heat conduction initially dominates the heat transfer mechanism, leading to a nearly parallel relation between the phase interface and the left wall. Subsequently, convection heat transfer becomes more prominent, making the top part melt faster than the bottom. Due to the large Rayleigh number, which is  $2.5 \times 10^5$ , small vortices are generated and merged as melting proceeds.

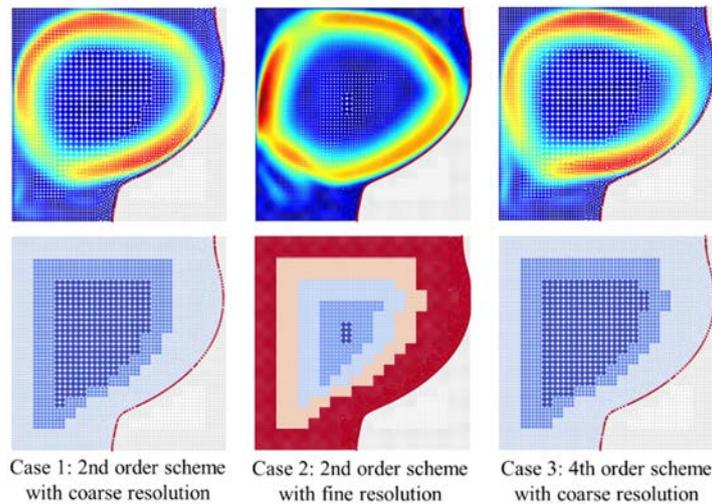


Fig. 3 Velocity magnitude and particle distributions using different schemes and resolutions

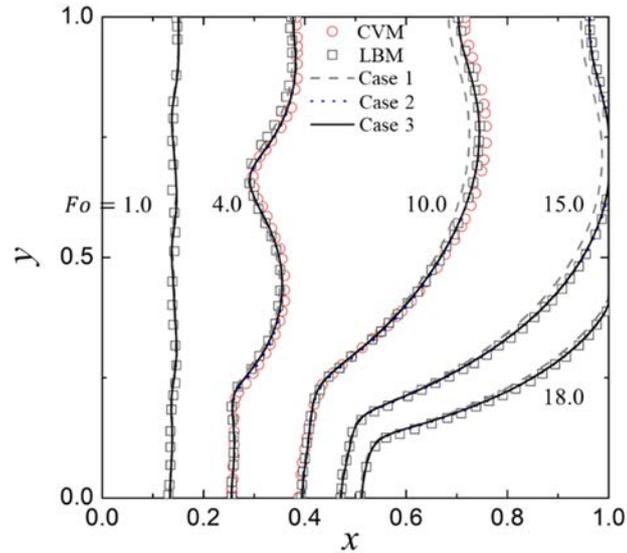


Fig. 4 Evolution of solid-liquid interfaces

To further investigate the effectiveness of high order schemes, three cases with different spatial resolutions have been simulated. The 2nd order scheme is employed for Case 1 and Case 2, while the 4th order scheme is applied in Case 3. As shown in Fig. 3, the spatial resolution arrangement is almost the same between Case 1 and Case 3. A higher spatial resolution is adopted in Case 2. Figure 4 presents the evolution of solid-liquid interfaces by the present method and the results by the Control Volume Method (CVM) as well as the Lattice Boltzmann Method (LBM). Satisfying agreements have been achieved, indicating that the present method can accurately simulate the solid-liquid phase change coupled with the thermal flow. In addition, one may conclude that more accurate results can be obtained by either increasing the spatial resolution or employing a higher order scheme. Compared with Case 2, the computational cost is reduced by approximately 62 % in Case 3. This indicates that a higher order scheme with a lower spatial resolution has great potential to save computational cost, which is rather important for large-scale simulations.

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) W. Zidi, T. Sugiyama, T. Matsunaga, and S. Koshizuka, "A multi-resolution particle method with high order accuracy for solid-liquid phase change represented by sharp moving interface", *Computers & Fluids*, vol.247, 105646, 2022.

### (4) 今後の利用予定:

Extending the present method to deal with liquid-gas phase change and topology change are considered as future work. The developed method will be applied to investigate melt spreading and Molten Core Concrete Interaction (MCCI) in the future.

### 5.1.4 多忠実度シミュレーションを用いた動的 PRA 手法の開発

#### Development of Dynamic PRA using Multi-fidelity Simulation

鄭 嘯宇

シビアアクシデント研究グループ

##### (1) 利用目的:

動的確率論的リスク評価 (PRA) は、原子力発電所の事故進展における時間的な要素 (非常用炉心冷却系による注入水の挙動等) を考慮して潜在的なリスクを定量化する手法であり、ランダムサンプリング等により生成した多数の事故シーケンスの解析を行う。動的 PRA 手法を確立するため、安全研究センターでは、動的 PRA ツール RAPID [1] を開発し、シビアアクシデント (SA) 解析コード MELCOR2.2 [2] 等との連携解析を行い、事故シーケンスの影響と発生頻度 (確率) を含むリスクトリプレット (Risk Triplet) [3] の推定を行っている。しかし、SA 解析コードによる事故進展解析は時間を要し、一方で、発生頻度を計算するために大量のケース数の解析が要求されるため、動的 PRA の実施には膨大な計算コストが発生する。

上記の課題を解決するため、HPE SGI8600 を用いた並列処理機能と機械学習のモデルを導入し、動的 PRA の計算コストを削減しつつ、結果の精度を維持する方法の検討を進めた。

##### (2) 利用内容・結果:

原子炉事故時の挙動を忠実に模擬する機構論的な解析コード (高忠実度モデル) とその挙動を統計的に予測する機械学習モデル (低忠実度モデル) を組み合わせることにより、多忠実度の動的 PRA 手法を開発した。図 1 に示すように、モンテカルロ法で生成した入力条件から、結果を予測する計算コストの低い低忠実度モデルにより解析結果を予測する。ここで、予測結果の信頼度が高い場合や成功基準に対して余裕がある場合など許容基準を満たす場合はその結果を採用し、許容基準を満たさない場合は同入力を用いて高忠実度モデルによる解析を実施し、それらの結果からリスクを求める。構築した多忠実度の動的 PRA 手法と並列処理機能を動的 PRA ツール RAPID に実装した。

上記の手法の有効性を確認するため、事故シナリオは「TBP: 全交流電源喪失 (SBO) + SRV 再開失敗」を選定し、図 2 のように、簡略的な ET モデル [4] を対象として動的 PRA 解析を行った。高忠実度モデルとして、MELCOR 用の BWR モデルを作成して TBP シナリオを解析した。低忠実度のモデルとしては、サポートベクターマシン (SVM) を用いて訓練・更新した機械学習モデルを用いた。RAPID により、事故シーケンスの生成、HPE SGI8600 でのシミュレーションの制御、機械学習モデルの訓練と更新とリスク指標の計算を行った。

保守的に代替注水の投入時間を仮定する従来の PRA に比べて、動的 PRA ではより複雑な事象の組合せを考慮したため、多くの事故シーケンス (#4、#7、#10、#11) が生成された。多忠実度モデルを用いた動的 PRA 手法の結果 (条件付き炉心損傷確率、CCDP) は、高忠実度モデルだけを用いた結果 (20000 ケースの MELCOR 解析) と一致し、また、従来の PRA 結果と比べて大きな乖離がなかった。HPE SGI8600 における並列処理及び多忠実度モデルを利用することにより、高忠実度モデルだけを用いる場合に対して 90.3%の計算コスト (CPU 時間) を削

減できた。

上記の手法をレベル1動的PRAへ適用したところ、従来のPRAと比べて事故シナリオの網羅性を向上させると共に、計算コストを大幅に削減することが可能になった。また、開発した手法をレベル2動的PRAへ適用し、早期大規模放出頻度の計算に対する有効性を確認した。モンテカルロ法その他、稀な事象を効率的に分析できる重点サンプリング (Importance Sampling) 法と多忠実度モデルを結合することにより、動的PRAの効率を更に向上した。

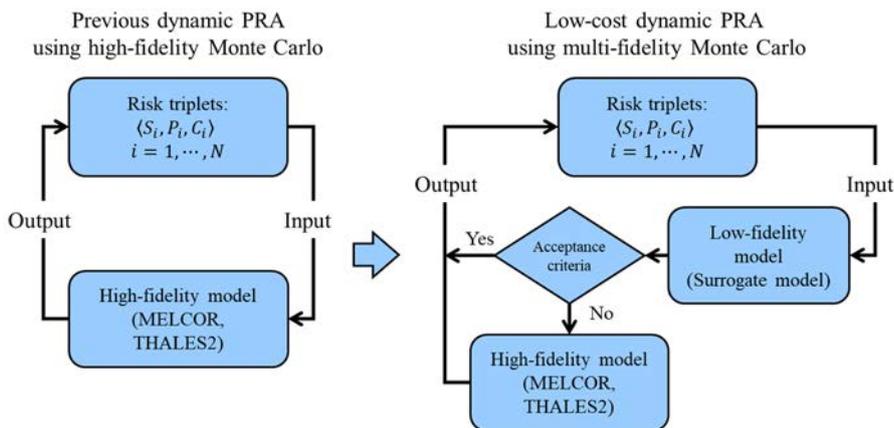


図1 多忠実度モデルを用いた動的PRA手法のイメージ図

SBO	SRV Close	HPCI or RCIC	Alternative Water Injection	Offsite or EDG Recovery	#	End State	Traditional PRA (INL PRA)	High-Fidelity DPRA (INL RELAP5-3D)	High-Fidelity DPRA (MELCOR)	Multi-Fidelity DPRA (MELCOR+Surrogate)
					1	OK	2.10E-01	1.00E-01	2.27E-01	2.26E-01
					2	OK	7.70E-01	8.60E-01	7.54E-01	7.54E-01
					3	CD	1.70E-02	1.00E-02	1.25E-02	1.23E-02
					4	OK	N/A	2.10E-02	8.99E-04	1.30E-03
					5	OK	8.60E-04	5.60E-03	2.90E-03	3.50E-03
					6	CD	3.30E-03	5.00E-03	1.40E-03	1.50E-03
					7	OK	N/A	9.90E-06	1.90E-04	1.94E-04
					8	OK	8.20E-04	1.70E-06	6.04E-04	6.00E-04
					9	CD	1.10E-04	2.10E-07	5.81E-05	5.70E-05
					10	OK	N/A	6.70E-07	1.37E-06	1.03E-06
					11	OK	N/A	9.70E-07	2.31E-06	2.14E-06
					12	CD	4.00E-06	5.00E-07	5.99E-07	2.14E-06
CCDP							2.04E-02	1.50E-02	1.40E-02	1.39E-02

図2 動的PRAの結果と従来イベントツリー解析の結果の比較

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) 鄭嘯宇ほか, 多忠実度モデルを用いた動的 PRA 手法の開発, 日本原子力学会 2021 春の年会, オンライン (2021) .
- 2) 鄭嘯宇ほか, 動的レベル 2PRA 手法の早期大規模放出頻度評価への適用に関する研究, 日本原子力学会 2021 秋の大会, オンライン (2021) .
- 3) X. Zheng, et al., Dynamic Probabilistic Risk Assessment of Nuclear Power Plants Using Multi-Fidelity Simulations, Reliability Engineering and System Safety, 223: 108503 (2022).

**(4) 今後の利用予定:**

今後、HPE SGI8600 を継続利用し、シミュレーションに基づく動的 PRA を用い、リスク情報に含まれる認識論的不確かさ評価方法の構築や原子力規制検査における検査指摘事項の安全重要度評価等への適用性の検討を行う予定である。

参考文献

- [1] X. Zheng, et al., Severe Accident Scenario Uncertainty Analysis Using the Dynamic Event Tree Method, Proceedings of 14th International Conference on Probabilistic Safety Assessment and Management (PSAM-14) 10p, September 16-21, Los Angeles, California, USA (2018).
- [2] L.L. Humphries, et al., MELCOR Computer Code Manuals. SAND2018-13559 O, Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexico, USA (2018).
- [3] S. Kaplan and B.J. Garrick., On the Quantitative Definition of Risk., Risk Analysis 1(1):11-27 (1981).
- [4] D. Mandelli, et al., Dynamic and Classical PRA: a BWR SBO Case Comparison, Proceedings of International Topical Meeting on Probabilistic Safety Assessment and Analysis (PSA 2015), April 26-30, Sun Valley, Idaho, USA (2015).

### 5.1.5 CIGMA 装置における浮力噴流により誘起される熱および物質輸送に関する LES 解析 LES on Heat and Mass Transfer Induced by the Buoyancy Flow in the CIGMA Facility

安部 諭、大宮 聡人  
熱水力安全研究グループ

#### (1) 利用目的:

軽水炉のシビアアクシデント時、格納容器内は高温の気体が噴出することで、高温・高圧状態になる。また、燃料棒の損傷に伴い、炉心に含まれるジルコニウム金属と高温の蒸気が反応（水-Zr 反応）することで大量の水素が発生する。高濃度の水素が一か所に留まる（局在化する）と水素爆発の脅威が高まる。2011 年の東京電力福島第一原子力発電所事故では、格納容器の破損により水素が原子炉建屋に漏洩し、爆発によって建屋が大破した。

熱水力安全研究グループでは、シビアアクシデント時の格納容器内における高温・多成分気体の複雑な熱および物質輸送現象を把握するために、実験および数値シミュレーションを駆使した研究を進めている。図 1 に示されている CIGMA は、一連の研究の中核をなし、直径 2.5 m、高さ 11 m（体積 48 m<sup>3</sup>）の試験容器を持つ大型装置である。特徴として、最高 700 °C までの高温ガスを注入、試験容器壁は 300 °C まで耐えることが出来るように設計されて

おり、既往の実験装置よりも高温条件でのデータを取得することが出来る。本報告では、CIGMA 実験で実施した SB-AJ-15 実験とその数値流体解析（Computational Fluid Dynamics 以下、CFD）の結果について述べる。SB-AJ-15 実験では、水素のような軽い気体が容器内の上部に留まり形成される密度成層を空気（およそ 58%）とヘリウム（水素の代替）（およそ 42%）の混合気体により形成した後に、およそ 390 °C の高温気体を 15 g/s で横向きに注入し、成層に衝突させることで誘起される熱と物質の輸送挙動を観察することを目的とした。原子力機構の大型計算機で実行した CFD 解析は、格子解像度以上の流れ場を詳細にとらえることが出来る LES（Large-Eddy Simulation）を用いて、実験ではとらえることが出来ない流れ場の詳細を把握することを目的として実施した。CFD 解析ツールとしては、汎用性が高く、多くの研究者・技術者が使用しているオープンソースコードの OpenFOAM-8 により実行した。

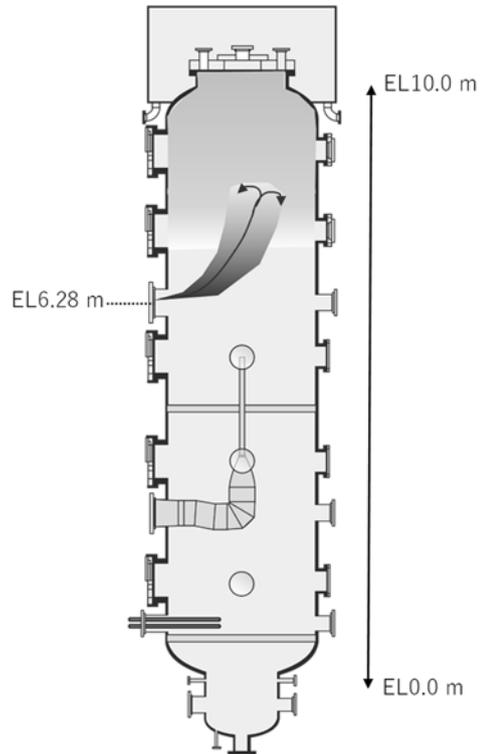


図 1 CIGMA 装置

**(2) 利用内容・結果:**

以下に、CFD 解析の概要を述べる。

基礎方程式は、フィルター操作された混合気体の質量保存式、運動量保存式、化学種およびエネルギーの輸送方程式である。乱流モデルは、減衰関数を必要としない WALE (Wall-Adapting Local Eddy) モデルを採用した。解析メッシュに関しては、およそ 2000 万程度で、浮力噴流と密度成層の相互作用を詳細にとらえることが出来るように試験容器上部でメッシュが密になるように作成した。

図 2 に解析結果の可視化図 (上図: 速度ベクトルとヘリウム濃度分布、下図: 温度分布) を示す。横向きに注入された噴流は、浮力の影響により進行方向を上方に変え、成層に衝突している。噴流の注入開始から 60 秒後では、噴流が成層に衝突した後は横向きに流れが生じている一方、200 秒後および 500 秒後では、試験容器壁に沿って下向きの流れが生じている。ヘリウム濃度に関しては、噴流が成層に衝突したことで乱流混合が促進されたために、時間経過とともに高濃度部分が小さくなっている (成層浸食)。それにともない、試験容器内の高温部は上方に広がっている。ヘリウム濃度の時間変化について、図 3 に CIGMA 実験との比較結果を示す。大局的には、本 CFD 解析で得られた結果は、実験データと良好な一致を示している。また、CFD 解析では大きな変動が確認できる。これは、浮力噴流が上下動を繰り返しながら成層を浸食したことを表している。

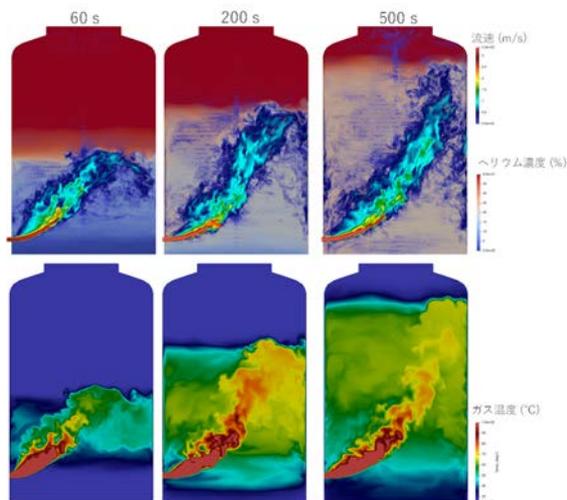


図 2 CFD 解析結果の可視化図 (上図: 速度ベクトルとヘリウム濃度分布、下図: 温度分布)

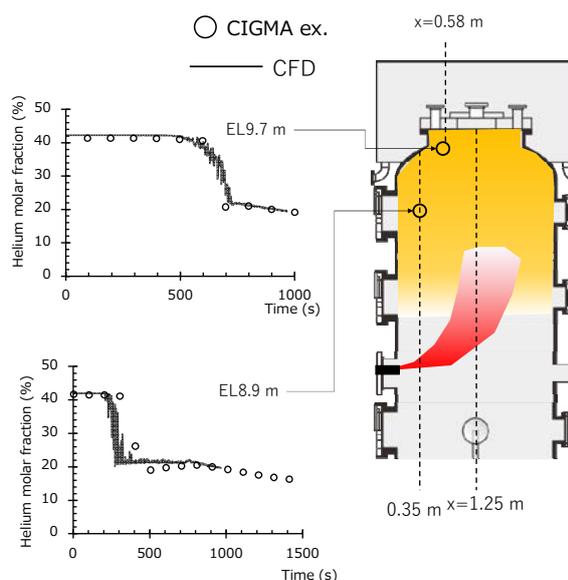


図 3 CIGMA 実験と CFD 解析の比較 (ヘリウム濃度の時間変化)

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

シビアアクシデント時の格納容器熱水力挙動は、様々な現象を把握する必要があることに加え、3次元的に複雑な熱流動挙動となる。そのため、実験では取得することが難しい詳細なデータはCFDを使って予測する必要がある。今後も、原子力機構の大型計算機の利用を予定している。

## 5.1.6 S-CLSVOF 法による Euler-Lagrange シミュレーションソルバの実装 Implementation of Euler-lagrange Simulation Solver using S-CLSVOF Method

岡垣 百合亜  
熱水力安全研究グループ

### (1) 利用目的:

シビアアクシデント時のプールのスクラビングにおける気泡挙動およびエアロゾル粒子除去メカニズムの解明のため、数値流体力学 (Computational Fluid Dynamics, CFD) コードによる界面追跡法 (Volume Of Fluid (VOF) 法、Simple Coupled Volume Of Fluid with Level Set (S-CLSVOF) 法) を用いた気泡流解析[1]および Euler-Lagrange 法による解析を実施している。このシミュレーションでは、十分な計算解像度を必要とし、計算コストが膨大となるため、大規模並列処理が可能な HPE SGI8600 を利用した。以下では、その解析結果の一部を示す。

### (2) 利用内容・結果:

令和 3 年度は、Euler-Lagrange 法によるプールのスクラビング解析を実施するために、オープンソース CFD コード OpenFOAM-8 に実装した S-CLSVOF 法のソルバに、適合格子細分化 (Adaptive Mesh Refinement, AMR) 法機能および Lagrange 粒子追跡機能を追加し、検証解析を行った。S-CLSVOF 法は、一般的な界面追跡法である VOF 法に比べ、界面をより滑らかに予測することができるが、計算精度を確保するためには十分な計算解像度を必要とする。気泡界面が広範囲を移動するような解析では、AMR 法を用いて注目すべき気泡付近のみ計算格子を細分化することが、計算コスト節約の観点から有効である。また、Lagrange 粒子追跡モデルは、Multi-Phase Particle In Cell (MP-PIC) 法に基づいており、エアロゾル粒子挙動を模擬するために導入した。

検証解析は、単一上昇気泡解析の既往研究[2]を元に実施した。図 1 に計算体系と初期条件を示す。水中を浮力上昇する気泡径  $D = 4 \text{ mm}$  の気泡内部に、粒径  $1 \mu\text{m}$ 、粒子個数 1000 個、粒子密度  $2,000 \text{ kg/m}^3$  の初期粒子を図 2 で示すようにランダム配置した。計算体系は  $8D \times 8D \times 48D$  であり、計算初期の計算格子数は約 38 万セル ( $40 \times 40 \times 240$  セル) の均一セルサイズの六面体格子を用いた。計算格子の最大細分化レベルは 3 とした。図 3 に AMR 法を適用した計算格子を示す。気相域から界面付近の計算格子は細分化されており、AMR 法が適用されたことが確認できる。図 4 に時刻  $t = 0.020\text{-}0.055 \text{ s}$  での計算結果 (体積率 0.5 の等値面と粒子) を示す。気泡の上昇とともに気泡形状が徐々に扁平になるにつれて、粒子が気泡中心から左右対称に循環する様子が見られる。気泡内部で左右対称な循環流が発生することは、これまでの既往研究[3]で明らかにされており、妥当な結果といえる。以上より、実装した Euler-Lagrange 法による計算ソルバは、正常に動作することを確認した。

### 参考文献

- [1] Y. Okagaki, Y. Sibamoto, S. Abe, Numerical study on bubble hydrodynamics with flow transition for pool scrubbing, Proceedings of the 8th Computational Fluid Dynamics for Nuclear Reactor Safety (CFD4NRS-8), Virtual meeting, 2020, 12p.

- [2] J.C. Cano-Lozano, R. Bolaños-Jiménez, C. Gutiérrez-Montes, C. Martínez-Bazán, The use of Volume of Fluid technique to analyze multiphase flows: Specific case of bubble rising in still liquids, Applied Mathematical Modelling, vol.39, 2015, pp.3290-3305.
- [3] K. Fujiwara, W. Kikuchi, Y. Nakamura, T. Yuasa, S. Saito, A. Kaneko, Y. Abe, Experimental study of single-bubble behavior containing aerosol during pool scrubbing, Nuclear Engineering and Design, vol.348, 2019, pp.159-168.

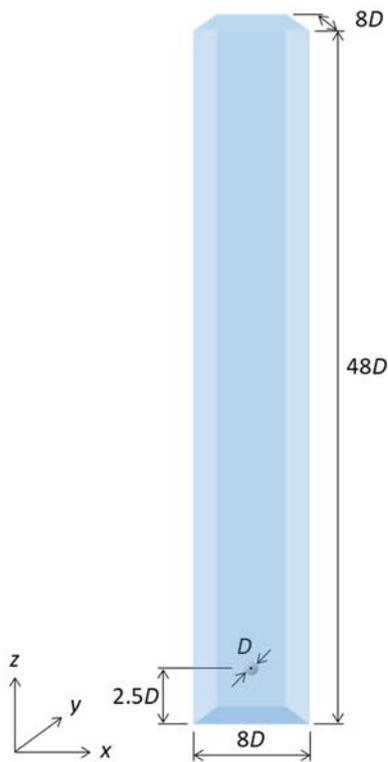


図1 計算体系及び初期条件

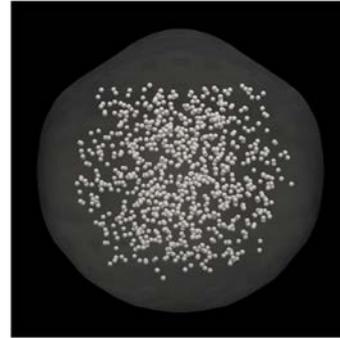


図2 計算初期の粒子配置 ( $t = 0.005$  s)

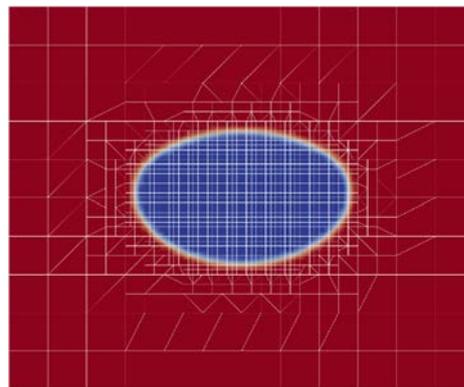


図3 AMR法を適用した計算格子

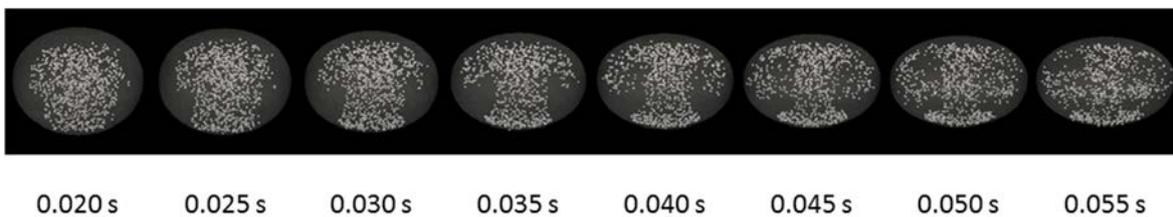


図4 体積率0.5の等値面と粒子

(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

なし

(4) 今後の利用予定:

今後も OpenFOAM を用いて、気泡流解析等の検討を継続していく予定である。

## 5.1.7 FEMAXI-8 コードの高速化

### Optimization/Refactoring of Fuel Performance Code FEMAXI-8

宇田川 豊

燃料安全研究グループ

#### (1) 利用目的:

FEMAXI は、1.5 次元の有限要素力学計算モデル、径方向と軸方向各 1 次元の熱計算、各熱計算メッシュに割り当てられた種々の常微分方程式系の組み合わせ連成によって構成される、燃料棒の照射挙動解析コードである。最新バージョン FEMAXI-8 は 2019 年に外部公開し、原子力規制庁、大学、研究所、燃料メーカー、電力会社等で幅広い利用がある。JAEA 内でも、燃料安全研究への適用の他、事故耐性燃料、加速器駆動未臨界型原子炉向け窒化物燃料、高富化度 MOX 燃料等新しいタイプの燃料の設計開発研究に活用されている。本作業では、大規模な統計解析への応用等、同コードの今後の更なる活用範囲の拡大に備え、特にプログラムの高速化、乃至、高速化に必要なコードのリファクタリングを実施する。

#### (2) 利用内容・結果:

本年度は昨年度に引き続き、Intel コンパイラによるビルドにおける課題整理、スレッド並列化に必要なリファクタリング項目の整理課題の抽出とその対応、OpenMP によるスレッド並列化指定下のビルド、テストラン等の作業を実施した。FEMAXI において多くの運用で解析全体に占める計算コストの割合が最も大きく、且つメッシュ間の依存性が極めて小さい FP ガス移行モデルを並列化対象として検討を進め、スレッド並列化指定に必要な共有変数の整理、構造体へのポインタアクセスの削除、SAVE 属性変数の整理、この過程で判明したバグの除去等、ビルドエラー回避に必要な修正を実施した。これらの修正を経て、スレッド並列化オプション有効時のビルドにより、解析が問題無く実行できることが確認された。一方、並列数を増やしたケースでは、newton 法ソルバー変数を保持する構造体への複数スレッドからのアクセスが原因と思われるプログラム実行停止が生じることが確認された。

#### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

なし

#### (4) 今後の利用予定:

本年度検討で得られた成果を踏まえ、並列実行時に問題を生じることが判明した一部の構造体の設計変更等、スレッド並列化対応を進める。

## 5.2 J-PARCセンター J-PARC Center

### 5.2.1 PHITS を用いた加速器駆動核変換システムに関するシミュレーション

#### Simulation of Accelerator Driven Transmutation System using PHITS

中野 敬太

核変換ディビジョン施設利用開発セクション

##### (1) 利用目的:

加速器駆動核変換システム (ADS) は高レベル放射性廃棄物 (HLW) の有害度低減や減容化を図る有望な技術の一つである。原子力機構が提案している ADS は大強度陽子加速器と未臨界炉心を組み合わせたシステムであり、中性子源標的兼冷却材として鉛ビスマス共晶合金 (LBE) の使用を想定している。LBE に 1.5 GeV の大強度陽子ビームを照射することで核破碎反応を発生させ、得られた核破碎中性子により炉心に装荷したマイナーアクチノイド (MA) の核変換を行う。数百日以上の大強度陽子ビーム照射により LBE 中には様々な核反応生成物が蓄積されるため、安全性の評価には誘導放射能の評価が重要である。また、未臨界炉心と大強度陽子加速器はビーム窓と呼ばれる数 mm 程度の非常に薄い構造物により隔てられている。ビーム窓は大強度陽子ビーム照射及び LBE の腐食や熱にさらされ、過酷環境下での使用が想定されている。前述の通りビーム窓は加速器部と炉心部を隔てる構造体であり、その成立性や寿命の評価は ADS 開発を行う上で非常に重要である。

本研究では昨年度に引き続き、モンテカルロ粒子輸送計算コード PHITS を用いて ADS を模擬したシミュレーションを実施し、ビーム窓の損傷評価に必要なガス生成量等の見積もりと LBE 中の誘導放射能の評価を行う。未臨界炉心の燃焼を伴う ADS のシミュレーションには膨大な時間を要するため、HPE SGI8600 を利用することで、十分な統計にて ADS シミュレーションを行うことが可能である。

##### (2) 利用内容・結果:

原子力機構が提案している ADS 体系にて粒子輸送シミュレーションを行い、運転に伴う LBE の誘導放射能及びビーム窓内部のガス生成量、原子の弾き出し数、発熱密度を計算した。図 1 は ADS の運転中及び運転後の LBE の全誘導放射能推移と主要な核種の放射能推移を示した図である。照射開始とともに放射能が急激に立ち上がり、数十日 (Full Power Days, FPDs) 経過後には増加が緩やかになっている。照射終了後は Po-210 の崩壊とともに全放射能も減衰していくが、照射終了後 2 年程度経過すると全放射能は H-3 に概ね依存して減少していくことがわかった。表 1 は ADS の運転に伴うビーム窓内のガス生成量の推移を示している。日数の経過につれてビーム窓内のガス生成量は増加し、300 日 (Full Power Days, FPDs) 経過後には水素が 10418 appm、ヘリウムが 1501 appm 生成されることが判明した。水素とヘリウムの生成量

を比較すると水素が 7 倍程度多く、陽子による生成量と中性子による生成量を比べると陽子による生成量が多い傾向が見られた。これらの結果は、今後 ADS の放射線安全評価やビーム窓の成立性を検討する上で重要なデータとなる。

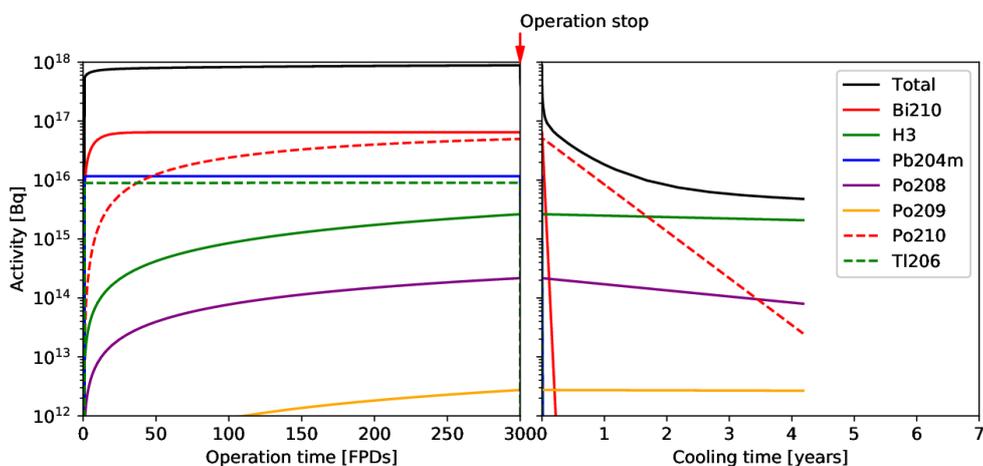


図 1. LBE の誘導放射能

表 1. ビーム窓内のガス生成量の推移

経過日数 [FPDs]		100	200	300
H [appm]	陽子起因	2747	5905	9063
	中性子起因	407	881	1355
	計	3154	6786	10418
He [appm]	陽子起因	401	863	1324
	中性子起因	53	115	177
	計	454	978	1501

(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) 中野敬太ら, 加速器駆動核変換システムビーム窓と LBE の核解析, JAEA-Research 2021-018, (2022) , 41p.

(4) 今後の利用予定:

なし

## 5.2.2 密度汎関数理論を用いた固体の格子ダイナミクスの研究

### Simulating Phonon Cross Section using Density Functional Theory

村井 直樹

中性子利用セクション

#### (1) 利用目的:

非弾性中性子散乱は有限の運動量遷移におけるフォノンを観測する上で不可欠な計測手法であるが、弾性散乱に比べて数桁弱い非弾性散乱のシグナルを効率的に計測することは決して容易ではない。従って、フォノン計測手法の高効率化は今後検討すべき重要な課題であると言える。

フォノンの散乱断面積は還元 Brillouin zone 内の運動量遷移ではなく全運動量遷移に依存するため、運動量空間中のどの領域で実験を行うかによって測定効率は大きく異なる。従って、フォノンが強い強度で現れる運動領域を実験に先立って予想する事が出来れば、測定効率を劇的に向上させる事が可能である。近年、密度汎関数摂動理論 (Density Functional Perturbation Theory; 以下 DFPT と略) に代表される第一原理フォノン計算手法の発達により、結晶構造の情報だけを元に、実測のフォノン分散を非常に高精度に再現することが可能となった[1]。また、このようなフォノン計算手法から得られるフォノンの固有値、固有ベクトルを用いることで、近似的にフォノン散乱断面積を構成することも可能である。本研究課題の目的は、第一原理フォノン計算手法を用いたフォノン散乱断面積の評価手法を確立し、測定効率や解析技術の向上を実現することである。

#### (2) 利用内容・結果:

2021 年度に取り組んだ研究課題は以下の 2 つである。

1. 4 次元  $Q$ - $E$  空間上のフォノン散乱強度の第一原理評価

2. 遷移金属カルコゲナイド  $ZrTe_3$  の CDW 波数近傍における Kohn 異常の研究

これらの研究課題はともに、J-PARC と SPring-8 の非弾性分光装置を用いて得られたフォノン計測結果を第一原理計算に基づいて理解するという試みである。これら 2 課題に対する研究成果の自己評価 (当初想定した到達目標、得られた成果のその重要性など) を以下に示す。

##### [1] 4 次元 $Q$ - $E$ 空間上のフォノン散乱強度の第一原理評価

###### [到達目標]

パルス中性子施設における現代的な非弾性中性子散乱装置は、位置敏感検出器を大型真空槽内に円筒状に配置した大面積検出器を有する先進的な設計がなされている。そのため、4 次元  $Q$ - $E$  空間上 (運動量 3 方向+エネルギー) における励起スペクトルの効率的なマッピングが可能である。本研究課題の到達目標は、J-PARC におけるパルス中性子分光装置から得られるフォノンのスペクトル構造を高精度に予想するシミュレーション技術を確立することである。

###### [得られた成果とその重要性]

熱電材料物質として知られる  $SnS$  を対象に、フォノン散乱断面積の第一原理シミュレーショ

ンを実施し、実験・理論間の定量比較を行った。図 1 に得られた結果の一例を示す。実測のフォノン分散・散乱強度は、DFPT によるシミュレーションにより極めて高精度に再現されることがわかる。このような計算手法を応用することで、大きなフォノン散乱断面積が予想される Brillouin zone の選定が可能となり、測定効率の劇的な効率化が実現される。従って、本研究で検討したフォノン散乱断面積の第一原理的評価手法は、測定効率や解析技術の向上を実現するための重要な基盤技術であると言える。

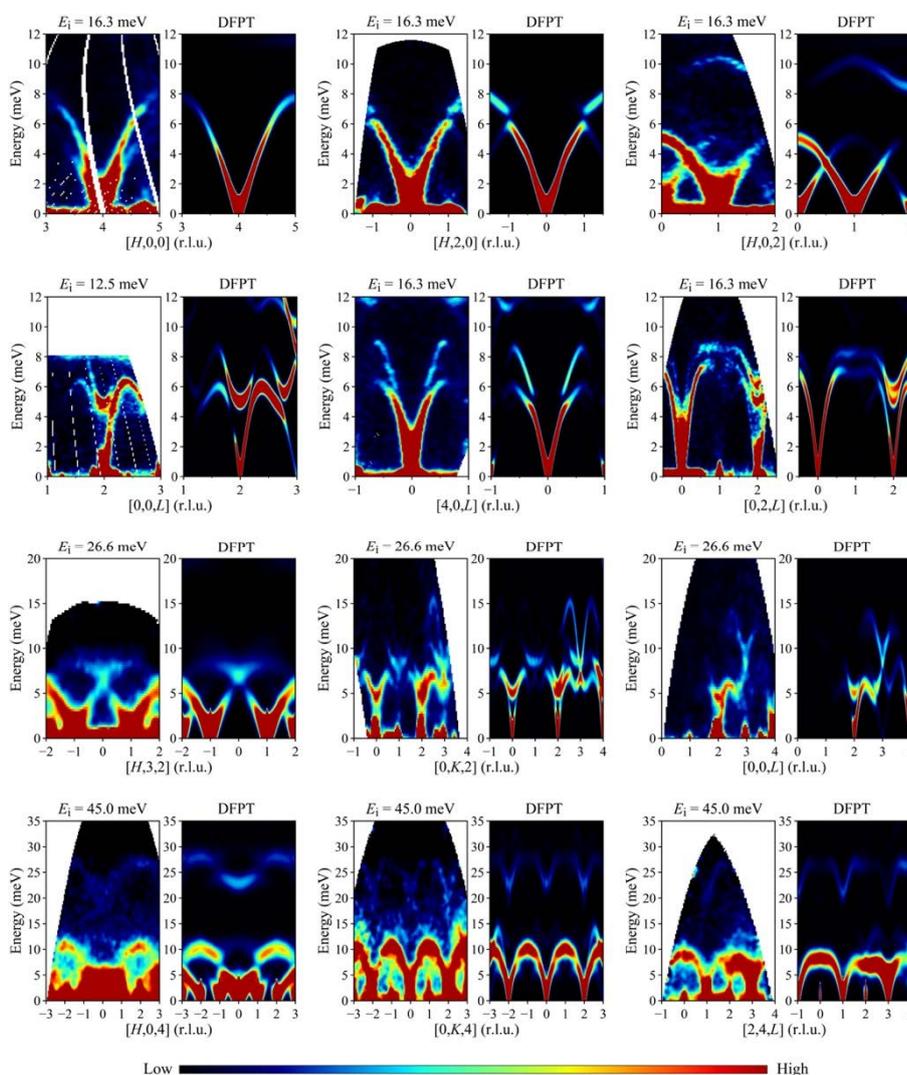


図 1 熱電材料物質 SnS のフォノン散乱強度のマッピング。DFPT を用いた第一原理計算により、フォノン分散曲線だけでなく、その散乱強度も非常に高精度に再現されていることがわかる。

[2] 遷移金属カルコゲナイド ZrTe<sub>3</sub> の CDW 波数近傍における Kohn 異常の研究  
[到達目標]

遷移金属カルコゲナイド物質で広く観測される CDW は Fermi 面の不安定性と格子の周期的な歪みが現われる相転移現象である。本研究課題の目的は、CDW を示す遷移金属カルコゲナイ

ドのモデル物質である  $\text{ZrTe}_3$  のフォノン分散測定を行い、CDW の主要因となる電子格子相互作用を実験・理論の両面から定量的に評価する事である。

[得られた成果とその重要性]

$\text{ZrTe}_3$  は  $\mathbf{Q}_{\text{CDW}} = (0.07, 0, 0.33)$  という格子周期と非整合な波数領域において、CDW に起因する超格子 Bragg ピークを示す。その近傍でフォノン分散測定を行ったところ、 $\mathbf{Q}_{\text{CDW}}$  におけるフォノン分散の Dip と温度低下に伴うソフト化を観測した。これは、Kohn 異常と呼ばれる Fermi 面のネスティングを反映したフォノン異常である。得られた実験データを理解するために、DFPT による第一原理フォノン計算を行い、CDW 波数近くでソフトモード (imaginary phonon) の存在を確認した (図 2 参照)。これは、CDW 転移を反映した構造不安定性に対応する。 $\mathbf{Q}_{\text{CDW}}$  における Kohn 異常は運動量空間上のかなり狭い領域に局在しているため、ソフトモードを計算で再現するためには、かなり細かい  $\mathbf{q}$  点メッシュを用いた DFPT フォノン計算が必要であった。ソフトモードが現れる波数ベクトルと Fermi 面のネスティングとの関係を調べる事が今後の課題である。

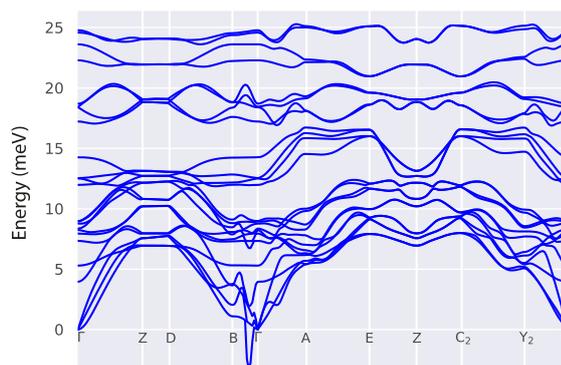


図 2 第一原理計算によるフォノン  $\mathbf{k}$  計算により得られた  $\text{ZrTe}_3$  のフォノン分散曲線。 $\Gamma$ -B 方向に CDW 転移を反映した構造不安定性 (imaginary phonon) が現れる。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

[学会発表]

- 1) 村井直樹, Peng Wu, 古府麻衣子, 中島健次, 中村充孝, 梶本亮一, “フォノン散乱断面積の第一原理的評価とそのベンチマーク”, 日本中性子科学会第 21 回年会, 2021, Online, P3-2.

### (4) 今後の利用予定:

今後、フォノンの散乱断面積を評価するための手法の更なる高度化を目指す予定である。具体的には、(1): 粉末試料に対するフォノン散乱強度 (neutron-weighted phonon DOS) の計算、(2): 装置分解能を考慮したより現実的なスペクトルの評価法の確立を目指す。

## 5.3 原子力基礎工学研究センター Nuclear Science and Engineering Center

---

### 5.3.1 福島沿岸における放射性核種の海底堆積に関するモデル研究

#### A Modeling Study on Sedimentation of Radionuclides in Fukushima Coast

上平 雄基、根本 宏美  
環境動態研究グループ

##### (1) 利用目的:

東京電力ホールディングス福島第一原子力発電所事故によって海洋中に放射性物質が放出され、周辺海洋環境への影響評価が喫緊の課題となった。このような課題に対応できるようにするため、海洋環境中の放射性核種の懸濁物への吸脱着、海底土への吸脱着、堆積、海底土からの再懸濁を詳細に解析し得る海洋中放射性核種移行モデルを HPE SGI8600 上で開発し、福島沿岸海域に適用した。なお、開発したモデルの HPE SGI8600 への導入は令和 3 年度スーパーコンピュータ利用に係るプログラミング支援作業「緊急時海洋環境放射能評価システム STEAMER の移植作業」の一環として実施されたものである。

##### (2) 利用内容・結果:

領域海洋モデリングシステム Regional Ocean Modeling System (ROMS) をベースに海水中放射性核種の溶存相、懸濁相、海底堆積物相の各相への移行を考慮した海洋中放射性核種移行モデルを開発し、福島沿岸海域に適用した。海洋研究開発機構が開発した北西太平洋海洋長期再解析データセットによる再解析データを初期及び境界条件とし、ROMS を用いたネスティング計算によって、ROMS-L1 (水平解像度 3 km) から ROMS-L2 (水平解像度 1 km) へダウンスケーリングによる高解像度化を行った。対象核種は  $^{137}\text{Cs}$  とし、福島第一原子力発電所から直接漏洩された  $^{137}\text{Cs}$  と大気から海表面に沈着した  $^{137}\text{Cs}$  を放出源として与えた。現地観測結果との比較によるモデルの精度検証の結果、良好な再現性を確認した (図 1)。

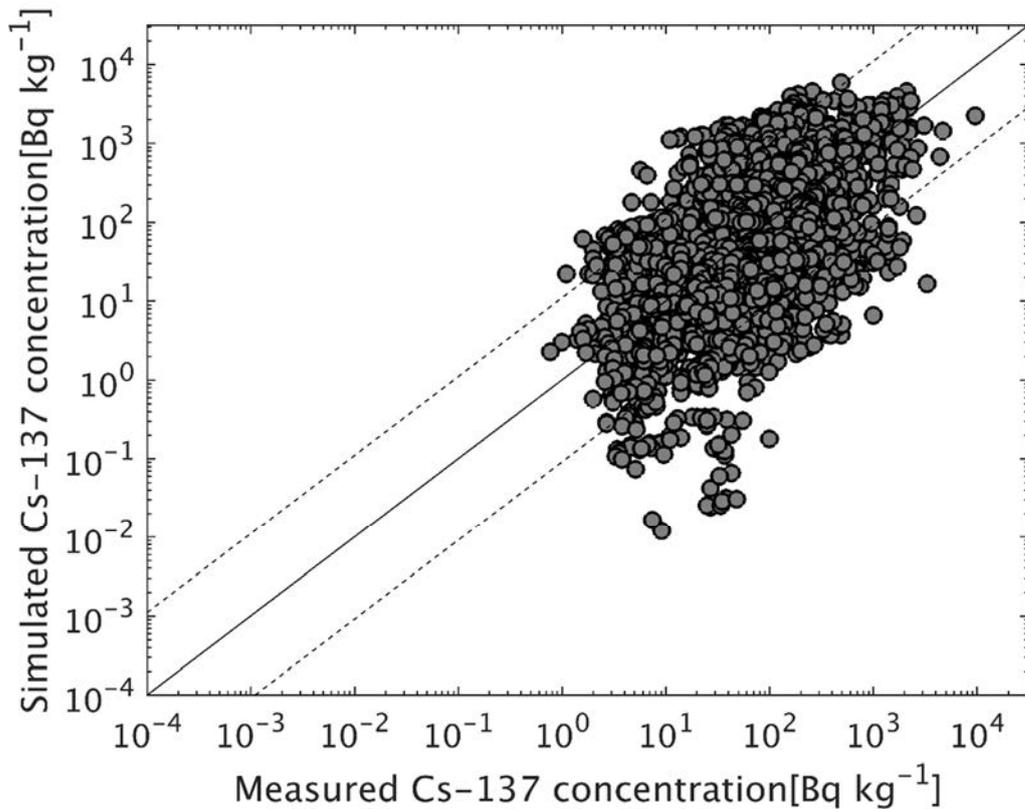


図1 海底土砂中  $^{137}\text{Cs}$  濃度の観測値（横軸）と計算値（縦軸）との散布図。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) Y. Kamidaira, Y. Uchiyama, H. Kawamura, T. Kobayashi and S. Otsuka, A modeling study on the oceanic dispersion and sedimentation of radionuclides off the coast of Fukushima, *J. Environ. Radioact.*, 238-239, 2021, 106724, doi:10.1016/j.jenvrad.2021.106724.

**(4) 今後の利用予定:**

現在、緊急時海洋環境放射能評価システム STEAMER は課室計算機で運用し、毎日予測結果を原子力機構の内部サーバーにアップロードしている。今後は、ダウンスケール機能及び本研究で開発した放射性物質堆積モデルを実装した STEAMER を HPE SGI8600 上で運用する予定である。

### 5.3.2 局所域高分解能大気拡散・線量評価システム「LHADDAS」の開発

#### Development of Local-scale High-resolution Atmospheric Dispersion and Dose Assessment System

中山 浩成  
環境動態研究グループ

#### (1) 利用目的:

原子力施設の運転時や事故時、あるいは都市域での放射性物質拡散テロへの対応における影響評価では、放射性物質の大気放出に対する放出点近くでの建物の影響を考慮した大気拡散計算と線量評価が必要となる。しかし、これまでの放射性物質の大気拡散・線量評価システム（原子力機構の SPEEDI、WSPEEDI など）では、このような詳細な大気拡散計算と建物による遮蔽を3次元で考慮した線量評価はできなかった。そこで、個々の建物の影響を受けた風の流れを考慮した高分解能大気拡散計算コード（LOHDIM-LES）<sup>1)</sup>と建物の遮蔽効果を考慮した線量率評価コード（SIBYL）<sup>2)</sup>および都市大気拡散の高速計算が可能な計算コード（CityLBM）<sup>3)</sup>を統合した局所域高分解能大気拡散・線量評価システム「LHADDAS」<sup>4)</sup>（図1）を、システム計算科学センターとの連携研究により開発した。

「LHADDAS」は、原子力施設の安全審査における線量評価について、これまで用いられてきた風洞実験では困難な実際の気象条件を取り込んだより現実的な評価手法としての利用が期待できる。また、大型計算機を用いた事前・事後の大規模詳細解析により、原子力事故時の施設内外作業員の被ばく線量評価、都市域での放射性物質拡散テロに対する汚染状況の把握と住民および対応要員の被ばく線量評価が可能である。また、高演算性能の画像処理装置 GPU を搭載した大型計算機での実行により、即時解析による都市大気拡散テロ時での迅速な拡散計算結果の情報提供が可能であり、局所域大気拡散の様々な課題に対応可能である。

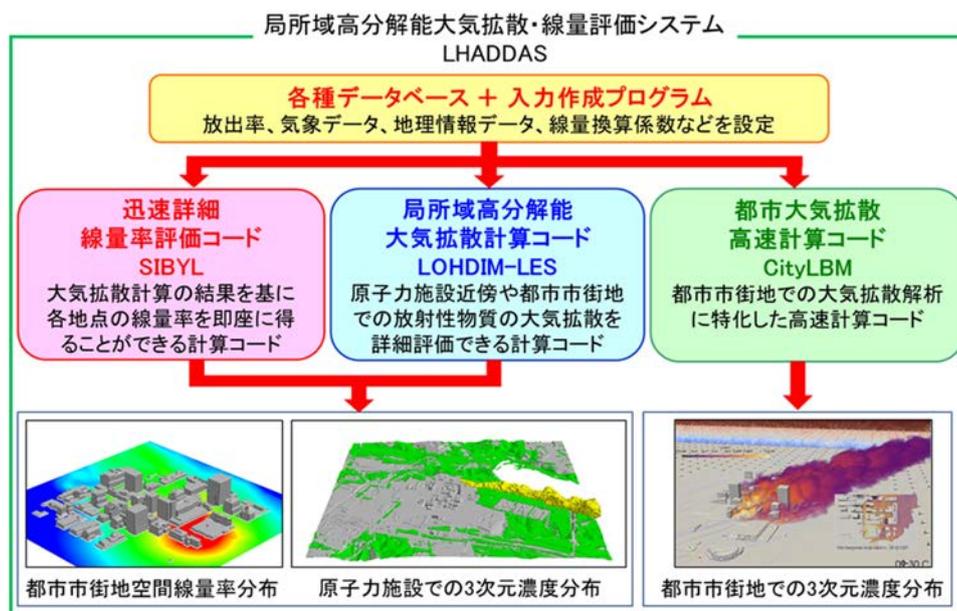


図1 局所域高分解能大気拡散・線量評価システム LHADDAS の概念図

## (2) 利用内容・結果:

### 【現実気象条件での都市市街地を対象にした拡散計算】

LHADDAS を用いて、2003 年に米国オクラホマシティーで実施された野外拡散実験を対象とする試験計算を実施した。気象モデルデータを入力条件とした LOHDIM-LES による大気中平均濃度の計算値は、測定値の 0.5 倍から 2 倍の範囲内に収まる割合 (FAC2) が 42%程度の再現精度であることを示した。また、同手法で CityLBM による大気拡散計算も実施し、FAC2 は 33%であった。予測性能の評価指標において、FAC2 は 30%以上が推奨値とされていることから、LOHDIM-LES および CityLBM とともに、測定結果を良好に再現することを確認した。さらに、CityLBM の高速計算技術を活用し、放出地点付近にある植生キャノピーの配置形態を航空写真から推定して、計算パラメータとして考慮した多数ケースの計算を実施した。計算結果の比較解析により、FAC2 が最大で 79%となった。このように、CityLBM は測定値との誤差を調べる要因解析にも利用可能であることを実証した。

これらの計算を実行する際、LOHDIM-LES ではシングルコア 2.4 GHz Intel CPU のパソコンで計算時間は 1 週間程度要した。一方、CityLBM では、HPE SGI8600 の 9 ノード (36 台の GPU) を用いて実時間より速い計算を実現させた。以上により、本計算コードは、時々刻々変化する気象条件および個々の建物の影響を同時に考慮した詳細大気拡散予測や、GPU を搭載した最先端のスーパーコンピュータと高速計算コードの組み合わせによる即時拡散解析に適用できることを実証した。

### 【原子力施設を対象にした拡散・線量計算】

LOHDIM-LES と SIBYL の組み合わせによる大気拡散計算と線量率評価について、青森県六ヶ所村の再処理工場で 2006 年から 2008 年に実施された試験運転の際のモニタリングデータを活用して総合的試験を行った。試験運転の際に管理放出された放射性希ガス ( $^{85}\text{Kr}$ ) について、敷地内のモニタリングポストで大気中濃度と空間線量率が測定されおり、この測定データの再現計算を行った。その結果、敷地内のモニタリングポストでの空間線量率の測定値を、計算により良好に再現することに成功した。

本計算を実行する際、HPE SGI8600 の 50 ノード・1200MPI を用いて、実時間の 1.5 倍程度での拡散解析を実現させ実用性を実証した。

## (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

### 査読付き論文

- 1) H. Nakayama et al., “Development of local-scale high-resolution atmospheric dispersion model using large-eddy simulation part 6: introduction of detailed dose calculation method”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, 58, 949-969, 2021.
- 2) D. Satoh et al., “Simulation code for estimating external gamma-ray doses from a radioactive plume and contaminated ground using a local-scale atmospheric dispersion model”, *PLOS ONE*, 2021. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0245932>

- 3) N. Onodera et al., “Real-time tracer dispersion simulation in Oklahoma City using locally mesh-refined lattice Boltzmann method”, *Boundary-Layer Meteorology* 179, 187-208, 2021.
- 4) H. Nakayama et al., “Development of local-scale high-resolution atmospheric dispersion and dose assessment system”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, vol.59, 2022, pp.1314-1329.

#### プレス発表

- 5) 中山浩成, 建物を考慮した詳細な放射性物質の拡散計算に基づく線量評価を初めて実現ー局所域高分解能大気拡散・線量評価システム LHADDAS を開発ー, 令和4年3月4日.

#### (4) 今後の利用予定:

「LHADDAS」を活用し、原子力施設からの放射性物質の大気放出に対して、HPE SGI8600を用いた大規模詳細計算による原子力サイト内の詳細な拡散解析と放射線計測データの融合解析により、放射性物質の分布と放出量、あるいは汚染状況を逆推定する手法の開発を進める。これにより、原子力事故時の放射性物質の漏洩や原子力施設の解体時の放射性物質の飛散の監視と環境影響評価への活用を目指している。

### 5.3.3 パラジウムの配位型/イオン会合型抽出機構の解明に向けた密度汎関数研究 Density Functional Theory Study for Elucidation of Coordinative/Ion-associative Extraction Mechanism of Palladium

金子 政志

放射化学研究グループ

#### (1) 利用目的:

白金族元素は、触媒に代表される有用な元素であり、希少金属（レアメタル）としても知られ、核分裂生成物として高レベル放射性廃液中に存在する。白金族元素の溶媒抽出分離メカニズムを明らかにすることは、都市鉱山及び高レベル放射性廃液からのレアメタル回収に資する。

白金族元素の溶媒抽出機構には、金属が抽出剤と直接結合を形成して抽出される配位型機構と、イオン会合体を形成して抽出されるイオン会合型機構の大きく 2 種類に分けられる[1]。白金族元素の 1 つであるパラジウムは、水溶液中において二価 ( $\text{Pd}^{2+}$ ) が安定であり、抽出剤によって配位型/イオン会合型で起こるかが異なることが知られているが、その理由は明らかでない。本研究では、水溶液中における  $\text{Pd}^{2+}$  の配位型及びイオン会合型の反応機構をモデル化し、密度汎関数法 (DFT) に基づく熱力学エネルギーの比較により、どちらの反応が安定に進むかを評価した。

#### (2) 利用内容・結果:

抽出剤 (L) には、塩酸水溶液において、 $\text{Pd}^{2+}$  に対して配位型機構を示すもの 2 つ (DRS[2], TRP[3])、イオン会合型機構を示すもの 2 つ (TRA[4], RPIP[5]) の計 4 つ選択した (図 1)。配位型生成物として、2 つの L が  $\text{Pd}^{2+}$  に対してトランス位に配位した *trans*- $[\text{PdCl}_2\text{L}_2]$ 、イオン会合型生成物として、2 つのプロトン化した L ( $\text{HL}^+$ ) が  $[\text{PdCl}_4]^{2-}$  に対して会合した  $(\text{HL})_2[\text{PdCl}_4]$  を考慮した (図 2)。本計算では、分子中の全てのアルキル基 (R) をメチル基に置換したものを対象とし、スカラー相対論 DFT の枠組みにおいて、BP86 汎関数による構造最適化、B3LYP 汎関数による一点エネルギー計算を行った。

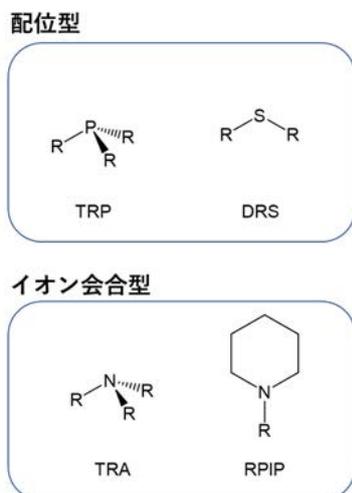
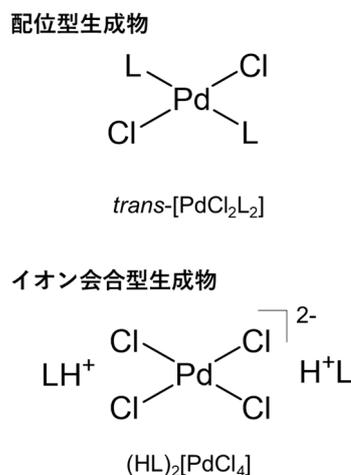
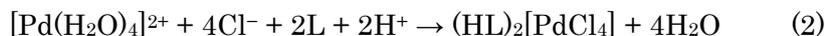


図 1 抽出剤 (L) の分子構造

図 2  $\text{Pd}^{2+}$  と L との生成物

水溶液中の反応を考慮し、Pd<sup>2+</sup>の始状態を水和錯体[Pd(H<sub>2</sub>O)<sub>4</sub>]<sup>2+</sup>とした。配位型及びイオン会合型の反応式をそれぞれ式 1、2 に示す。



式 1、2 における標準ギブズエネルギー差をそれぞれ  $\Delta G_{\text{coord}}^\circ$ 、 $\Delta G_{\text{assoc}}^\circ$  とし、表 1 にその計算結果をまとめた。その結果、配位型機構を示す DRS、TRP は、 $\Delta G_{\text{assoc}}^\circ$  よりも  $\Delta G_{\text{coord}}^\circ$  の方が小さく、イオン会合型機構を示す TRA、RPIP は、逆に  $\Delta G_{\text{coord}}^\circ$  よりも  $\Delta G_{\text{assoc}}^\circ$  の方が小さくなった。この結果は、水溶液中の配位型/イオン会合型生成物の生成ギブズエネルギーを計算によって見積ることによって、配位型/イオン会合型の抽出機構を予測・判断できることを示唆している。本結果は、計算によって、Pd<sup>2+</sup>の配位型/イオン会合型機構のどちらが起りやすいかを再現した初めての例であり、その起源についての考察を加えて、現在論文に取りまとめ中である。

表 1  $\Delta G_{\text{coord}}^\circ$ 、 $\Delta G_{\text{assoc}}^\circ$  の計算値

L	$\Delta G_{\text{coord}}^\circ$ (kJ/mol)	$\Delta G_{\text{assoc}}^\circ$ (kJ/mol)	$\Delta G_{\text{coord}}^\circ - \Delta G_{\text{assoc}}^\circ$ (kJ/mol)	実験による観測
DRS	-323.87	-165.76	-158.11	配位型 (R=hexyl) <sup>a</sup>
TRP	-433.14	-333.00	-100.15	配位型 (R=phenyl) <sup>b</sup>
TRA	-305.41	-387.11	81.70	イオン会合型 (R=octyl) <sup>c</sup>
RPIP	-304.86	-400.39	95.53	イオン会合型 (R=hexadecyl) <sup>d</sup>

<sup>a</sup>Ref. 2. <sup>b</sup>Ref. 3. <sup>c</sup>Ref. 4. <sup>d</sup>Ref. 5.

#### 参考文献

- [1] 成田弘一, 鈴木智也, 元川竜平, 溶媒抽出法による白金族金属分離に関する最近の研究, 日本金属学会誌, 81, 2017, pp.157-167.
- [2] Y. Baba, T. Eguchi, K. Inoue, Solvent extraction of palladium with dihexyl sulfide, J. Chem. Eng. Jpn., 19, 1986, pp.361-366.
- [3] N. E. El-Hefny, J. A. Daoud, Solvent extraction of palladium(II) from aqueous chloride medium by triphenylphosphine, triphenylphosphine oxide or triphenylphosphine sulphide in benzene, J. Phys. Sci., 24, 2013, pp.35-47.
- [4] Y. Hasegawa, I. Kobayashi, S. Yoshimoto, Extraction of palladium(II) and platinum(IV) as chlorocomplex acids into basic organic solvents, Solvent Extr. Ion Exch., 9, 1991, pp.759-768.
- [5] A. Cieszynska, D. Wiczorek, Efficiency and mechanism of palladium(II) extraction from chloride media with N-hexadecylpiperidinium chloride, J. Sol. Chem., 49, 2020, pp.486-503.

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

本成果は、密度汎関数計算を用いて白金族元素の溶媒抽出機構を予測できる可能性を示唆している。本計算では、計算時間の短縮のため、4つの抽出剤に絞り、さらにアルキル基をメチル基に置換した。今後は、Pd<sup>2+</sup>の配位型/イオン会合型の予測をより強固なものとするため、大型計算機を用いた並列計算により、他の抽出剤も加えたベンチマークセット、さらには実際の抽出剤に導入されている長鎖アルキルを考慮した計算も行っていく予定である。

### 5.3.4 PHITS および DCHAIN の改良

#### Improvement of PHITS and DCHAIN

安部 晋一郎

放射線挙動解析研究グループ

##### (1) 利用目的:

放射線挙動解析コード PHITS には、線源粒子の情報を定義する際に、線源から放出される放射線種を指定した上で放射性核種と放射能を与えることで、その核種の崩壊に伴って放出される放射線を線源とする機能がある。しかし、現状の PHITS では放射性核種が複数種の放射線を放出する場合、放射線種ごとに線源情報を定義しなければならず、ユーザーは自身で放射性核種が放出可能な放射線種を調べる必要があった。そこで、本開発では線源粒子の種類を“all”と定義した時に、放射性核種の崩壊に伴って放出される全ての放射線種が自動で認識されるように PHITS の改良を行う。また、高エネルギー粒子誘導放射能計算コード DCHAIN-PHITS における、誘導放射能の情報を PHITS の線源情報の形式で出力する機能についても、線源粒子の種類を“all”とした形式で出力できるように改良を行う。

##### (2) 利用内容・結果:

PHITS では、エネルギーや線種を変えた線源を複数定義するためにマルチソース機能がある。そこで、線源粒子の種類を“all”と定義した時に、指定した放射性核種が放出可能な放射線種について自動でマルチソースに展開し、放射線種以外の線源情報はユーザーが定義した設定を複製して一時ファイルに書き出し、その後その情報を再度読み込むルーチンを新たに開発した。放射性核種が放出可能な放射線種については、DCHAIN-PHITS に同梱される放射線種ファイルを参照して自動で判別を行うようにした。

本開発によって、ユーザーは放射性核種が放出可能な放射線種を意識することなく、現実を模擬したシミュレーションを実施できるようになった。また、放射線種ごとに線源情報を定義する必要がなくなったため、DCHAIN-PHITS が PHITS の線源情報の形式で出力するファイルのサイズも半分以下に圧縮できた。

##### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

なし

##### (4) 今後の利用予定:

今後も PHITS の改良を進める予定である。具体的には、PHITS に実装されている [T-DCHAIN] タリーについて、領域メッシュを使用した上で各領域の体積を指定した際に正しく認識されるように改良する。加えて、[T-Product] タリーについて、核データを用いた計算で得られる生成粒子の情報を出力できるように改良する。

### 5.3.5 PHITS ユーザー入力支援ソフトウェアの作成

#### Development of PHITS User Input Support Software

岩元 洋介

放射線挙動解析研究グループ

##### (1) 利用目的:

粒子・重イオン輸送計算コード PHITS は、任意の形状・物質内における多様な放射線の挙動を解析可能な汎用モンテカルロ計算コードである。令和 4 年 3 月現在、PHITS の国内外のユーザー登録者数は 6,000 名を超え、コードの応用分野は、放射線検出器開発、加速器遮蔽設計、医療応用、線量評価等、多岐にわたる。一方、PHITS ユーザーは多くの入力ファイルのパラメータ等をマニュアルにより理解する必要があるため、特に初心者にとっては PHITS の利用の敷居が高いという印象が持たれている。そこで、ユーザーが各パラメータを用意に理解して入力できる PHITS 入力支援のためのテキストエディタ PHACE の開発を行う。本作業により作成されたツールを用いることで、PHITS ユーザーが容易にパラメータ等を理解して入力ファイルを作成できるようになる。そのため、新規ユーザーの PHITS に対する理解促進に貢献し、ユーザー数の更なる拡大が期待される。また、既存の PHITS ユーザーに対する入力支援も可能となる。

##### (2) 利用内容・結果:

本年度は以下の条件による環境下でプログラムの開発、PHACE の実行ファイルの作成、及び動作確認を行った。

- |            |                                       |
|------------|---------------------------------------|
| ①動作環境 (OS) | Microsoft Windows 10 (PHITS の動作条件に準拠) |
| ②ハードウェア    | Windows PC (PHITS の動作条件に準拠)           |
| ③開発言語      | Python                                |
| ④開発環境      | Python3.9, wxPython                   |

令和 2 年度「PHITS ユーザ入力支援ソフトウェアの作成」の作業において作成した PHACE の機能拡充を図った。以下に主な改良点を示す。

##### ① 入力幾何形状可視化ソフトウェア「PHIG-3D」の実行機能の追加

PHITS の入力ファイルを読み込み、図 1 に示すメニューバーのアイコンの選択から「PHIG-3D」を実行する機能を追加した。以下に、具体的な実行手順について示す。まず、PHACE のエディタにおいて、面や空間領域を定義する[Surface]及び[Cell]セクションを用いて PHITS の計算体系を定義する。次に、メニューバーの「PHIG-3D」を選択することで表示される「実行(E)」メニューを選択する。「PHIG-3D」が起動すると、3次元の計算体系が表示される。なお、実行バイナリの場所指定等の環境設定は、「設定(S)...」メニュー選択によって表示されるダイアログによって予め設定する必要がある。



図 1 PHACE のメニューバー

② パラメータ認識機能の追加

エディタ上の PHITS パラメータを認識し表示を強調するため、パラメータの文字色、フォント等の自動変更が可能なパラメータ認識機能を PHACE に追加した。図 2 に入力文字列に対するパラメータの認識例を示す。図 2 の左図は、`timeout` の入力途中のため、黒色の通常フォントで表示される。一方、右図では、`timeout` の全文字入力によりパラメータの認識が行われ、暗赤色のボールドフォントに自動で変化する。

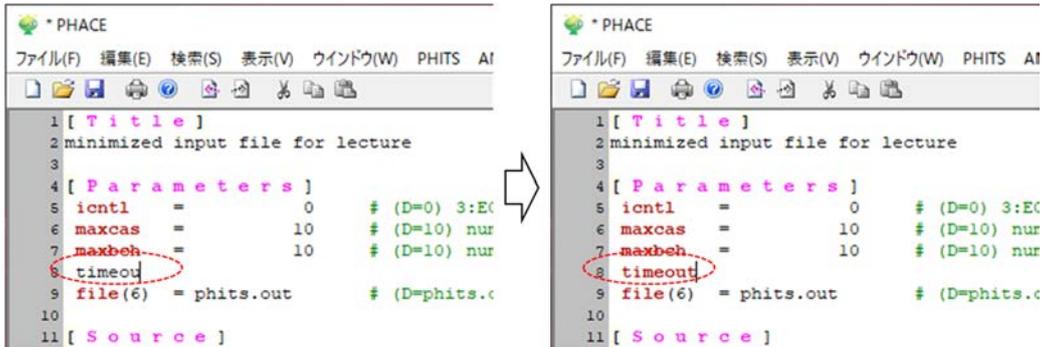


図 2 入力文字列に対するキーワードの認識例（赤点線枠部）

③ ヒント表示機能の追加

ユーザーの入力パラメータに対する迅速な理解を図るため、ポップアップでパラメータの説明が可能なヒント表示機能を PHACE に追加した。図 3 に、[Source]セクションの `dir` パラメータに対して表示されたヒントを示す。カーソルを `dir` パラメータの後ろへ移動することで、ヒントがポップアップする。

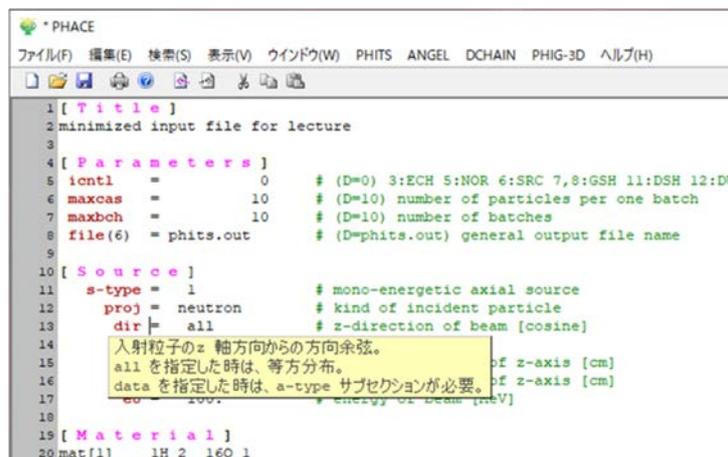


図 3 [source]セクション `dir` パラメータのヒント表示例

今年度の開発により、Windows 用の PHITS 専用テキストエディタ PHACE が完成し、PHACE 上で「PHIG-3D」の実行が可能となった。また、今回作成した PHACE が PHITS のパッケージに含まれる例題の入力ファイル (phits/lecture/basic/lec01/input/lec01-end.inp) を正しく読み込み、この入力を用いた PHITS の動作、「PHIG-3D」による 3 次元計算体系の描画、パラメータ認識機能、ヒント表示機能等の動作が正常であることを確認した。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

PHACE を PHITS ユーザーに広く公開するため、MacOS 環境上での PHACE 開発を進め、OS に依存しない PHACE を完成させる予定である。

### 5.3.6 PHITS における高度な分析機能の開発

#### Development of Advanced Analysis Function in PHITS

橋本 慎太郎

放射線挙動解析研究グループ

##### (1) 利用目的:

粒子・重イオン輸送計算コード PHITS は、任意の形状・物質内における放射線の挙動を解析可能な汎用のモンテカルロ計算コードである。幅広いエネルギー領域にある多様な放射線を取り扱うことができることから、放射線施設設計や医学物理計算、放射線防護研究などの様々な分野で利用されている。近年、物質の密度などの計算条件（インプット）に誤差が含まれている場合に、その大きさが計算結果（アウトプット）に与える影響を系統的な不確かさとして評価したい、というユーザーの要望が多くなっている。

そこで、誤差の範囲で計算条件の一部を変化させながら PHITS による輸送計算を複数回実行し、それらの結果から分散分析（ANOVA; analysis of variance）により系統的な不確かさを評価する専用スクリプト autorun の開発を進めている。2020 年度までに、粒子の飛程を出力する [t-track] タリー（ここで、タリーは計算結果を出力する機能を表す）と放射線が物質に付与する線量を出力する [t-deposit] タリーに関して autorun が利用できるよう開発を進めた。2021 年度は、PHITS に実装されている他のタリーにおいても系統的な不確かさ評価が可能となるよう autorun の機能を発展させた。開発は原子力機構の大型計算機 HPE SGI8600 を利用して進め、開発した機能は 2022 年 3 月公開の PHITS バージョン 3.27 に実装した。

##### (2) 利用内容・結果:

###### 1. 専用スクリプト autorun の概要

系統的な不確かさを評価する専用スクリプト autorun では、統計手法の一つである分散分析を導入することで、統計的な不確かさ  $U_{\text{stat}}$  と系統的な不確かさ  $U_{\text{syst}}$  及び全不確かさ  $U_{\text{tot}}$  を評価する。これらは次の関係を満たす。

$$(U_{\text{tot}})^2 = (U_{\text{syst}})^2 + (U_{\text{stat}})^2/N$$

ここで、 $N$  はモンテカルロ計算の試行回数を表しており、またモンテカルロ計算で通常出力される統計誤差  $\sigma_{\text{stat}}$  は右辺第 2 項と  $(\sigma_{\text{stat}})^2 = (U_{\text{stat}})^2/N$  の関係がある。

専用スクリプト autorun は、次の 3 つのステップで容易に利用できる。

1. PHITS の輸送計算の入力情報をまとめたインプットファイル（以下「phits.inp」）を用意
2. 専用スクリプトのためのインプットファイル（以下「autorun.inp」）を用意
3. autorun.inp をインプットファイルとして、専用スクリプトを実行

ここで、autorun.inp は次のような形式で作成する必要がある。

```
file=phits.inp
```

```
set:c1
```

```
c-type=1
```

nc=3

0.9 1.0 1.1

file=の後に PHITS の輸送計算のインプットファイル名を指定し、set:の後にそのインプットファイル内で変化させたい計算条件 c1 の情報を記載する。set:c1 の次の行から e-type 等のタリーのメッシュタイプと同じ形式で c1 の数値データを与える。上の例では、ある計算条件に±10%の誤差があるとして、その計算条件の値を 0.9 倍、1.0 倍、1.1 倍と変化させながら、合計 3 回の PHITS の輸送計算を実行する内容となっている。Phits.inp において、(計算条件の平均値) \*c1、という形で c1 を掛けるよう指定することで、±10%の誤差の影響を調べることができる。

2021 年度における機能開発により、計算体系を表示する[t-gshow]タリーなどの特殊なものを除いた全てのタリーに関して autorun が利用できるようになった。以下では、核反応により生成される粒子の情報を出力する[t-yield]タリーと指定した面を通過する粒子の情報を出力する[t-cross]タリーに関して autorun を利用した例を紹介する。

## 2. [t-yield]タリーに関して利用した例

PHITS では、[t-yield]タリーを用いることで、中性子などの放射線が物質と核反応を起こして生成される粒子の情報を出力することができる。ここでは例として、医療用の放射性核種である  $^{99}\text{Mo}$  (正確には、娘核種である  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  が利用される) を  $^{98}\text{Mo}$  サンプルに中性子を照射して生成するシミュレーションを行い、 $^{98}\text{Mo}$  サンプルの大きさに誤差がある場合の  $^{99}\text{Mo}$  生成量における系統的不確かさを評価した。

$^{98}\text{Mo}$  サンプルが半径 2.5 cm、高さ 5 cm の円柱形状であるとし、その円柱の中心軸に沿って、1 MeV の中性子を照射するシミュレーションを行った。この際、円柱の高さが±10%の誤差を含むとした場合に、生成される  $^{99}\text{Mo}$  の粒子数がどの程度誤差の影響を受けるかを評価した。簡単に見積ると、サンプルの大きさの変化と同じ 10%程度の影響があると考えられる。しかし、実際にはサンプルにおいて中性子の散乱が起こるため、サンプルが大きくなるにしたがって中性子の平均的な流量やエネルギーが変わり、生成量も変化する。Autorun を利用して評価した結果、 $^{99}\text{Mo}$  の生成量には約 6%の系統的不確かさがあることがわかった。この傾向はサンプルが大きい場合に強くなり、例えば逆に高さが 1 cm の場合は 10%の誤差の影響は 10%程度であった。なお、これらの評価結果において統計誤差は 1%以下であり無視できる程小さい。

## 3. [t-cross]タリーに関して利用した例

任意の面を指定し、その面を通過する粒子の情報を出力できるのが[t-cross]タリーである。ここでは例として、 $^{252}\text{Cf}$  から放出される中性子を線源とし、これらが 10 cm 厚さのコンクリートを透過した時の中性子のエネルギースペクトルを出力させた。コンクリート中の水の密度に誤差がある場合を考え、この誤差がコンクリート透過時の中性子のエネルギースペクトルに与える影響を調べた。

よく知られているように、水は低エネルギーの中性子に対する減速材として利用される。このため、コンクリート中の水の密度が変わることにより、低エネルギー領域の中性子が強く影響を受けることが考えられる。ここでは、コンクリート全体の密度が  $2.3 \text{ g/cm}^3$  とし、これに含まれる水の密度  $0.2 \text{ g/cm}^3$  が 30% の誤差を持つとして、その影響を評価した。図 1 に示したのが、10 cm のコンクリート透過時の中性子のエネルギースペクトルである。誤差棒で示したのは系統的な不確かさであり、統計誤差は無視できる程小さい。図からわかるように、低いエネルギーになる程系統的な不確かさは大きくなっており、コンクリート中の水の密度の誤差が強く影響している。一方、高エネルギー領域の中性子は水の密度の変化による影響をほとんど受けないことがわかった。

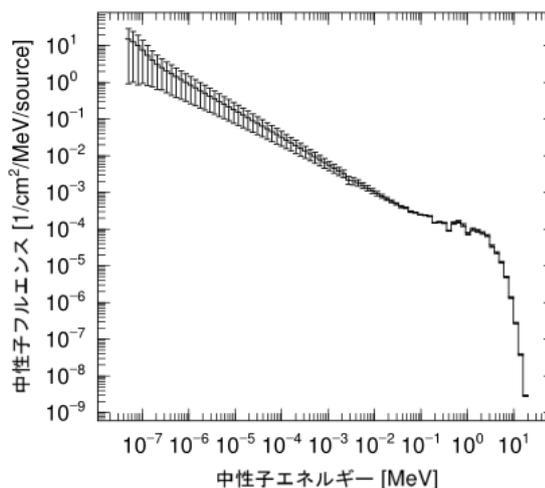


図 1 10 cm のコンクリートを透過した中性子のエネルギースペクトル。

本開発により、特殊なタリーを除いた PHITS のほぼ全てのタリーに関して、専用スクリプト autorun を利用して系統的な不確かさが評価できるようになった。2022 年 3 月現在で PHITS の国内外のユーザー数は 6,000 名を超えているが、本機能の利用を通じて、ユーザーによる研究開発の更なる進展が期待される。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) 橋本慎太郎, 「PHITS における系統的な不確かさ評価機能の開発」, PHITS セミナーにおける口頭発表, online, 2021 年 5 月 21 日.

### (4) 今後の利用予定:

今後は、複数のタリー結果を任意の計算式によって組み合わせて新しい物理量を計算するユーザー定義 anatally の機能を発展させ、全てのタリーに関して利用できるようにする。また、注目するタリー結果が最小あるいは最大となる計算条件をサーチする最適化機能を開発し、遮蔽計算などの自動化を実現させる。

### 5.3.7 PHITS の粒子別タリー出力機能の改良

#### Improvements of Particle Differential Tally Functions in PHITS

古田 琢哉

放射線挙動解析研究グループ

##### (1) 利用目的:

粒子・重イオン輸送計算コード PHITS は、任意の三次元体系中の様々な放射線挙動を模擬できる汎用のモンテカルロシミュレーションコードである。PHITS では輸送計算で計算される粒子束や付与エネルギー等の物理量を粒子毎の寄与に分けて出力する機能が各物理量計算タリー設定のオプションとして用意されている。この機能により、例えばある領域の線量に最も多く寄与する粒子の特定ができる。しかし、現状の PHITS では、指定粒子の寄与の出力ができるものの、その補集合に当たる“指定粒子以外”の寄与を出力する方法が存在しない。このため、例えば炭素線治療で  $^{12}\text{C}$  を照射した場合の  $^{12}\text{C}$  以外の二次粒子による線量寄与を PHITS の結果から導出する場合、PHITS により全粒子による線量寄与と  $^{12}\text{C}$  による線量寄与を別に計算し、出力結果の差し引きを表計算ソフト等により手動で処理する煩雑な手順が必要であった。そこで、本研究では PHITS の粒子別タリー出力機能を改良し、簡便に“指定粒子以外”の寄与をタリー出力する機能を追加する。

##### (2) 利用内容・結果:

現状の PHITS の粒子別タリー出力機能では、タリーパラメータ `part` に、`proton` (陽子)、`neutron` (中性子)、`12C` ( $^{12}\text{C}$  イオン)、`3He` ( $^3\text{He}$  イオン) のように粒子名やアイソトープ名を指定することで、その粒子による寄与を算出できる。パラメータ `part` に `all` と指定することで、全粒子による寄与の出力も可能である。そこで、この機能を拡張し、`part` の粒子名に負符号をつけて、`-proton` のように指定した場合に、“指定粒子以外”の寄与を出力する機能を追加する。

まず、粒子指定パラメータ `part` が指定可能なタリーセクション (表 1) で、負の符号が記述された場合の処理を追加した。粒子名の前の符号に対する変数を新たに用意し、その情報をメモリに格納する。粒子輸送計算時に物理量を記録するタリー処理で実行される粒子判定は、各タリーで共通のサブルーチンにより処理されている。そこで、このサブルーチンを改良し、符号変数が負である場合には粒子判定を反転させる処理を加えることで、目的とする“指定粒子以外”のタリー処理を実現した。

今回導入した負符号による“指定粒子以外”のタリー設定の機能が正しく動作することを確認するため、機能を導入した全てのタリー (表 1) で、全粒子の寄与 (`part = all`)、指定粒子の寄与 (`part = 粒子名`)、指定粒子以外の寄与 (`part = -粒子名`) を計算し、計算結果が「指定粒子以外の寄与」=「全粒子の寄与」-「指定粒子の寄与」を満たしていることを確認した。

図 1 に一例として、水中で 200 MeV の炭素 ( $^{12}\text{C}$ ) を輸送した際の粒子の軌跡、一ヒストリの入射炭素から得られるフルエンス分布を示す。それぞれ、(a) `part = all` (全粒子)、(b) `part = 12C` ( $^{12}\text{C}$ )、(c) `part = -12C` ( $^{12}\text{C}$  以外) を示している。パラメータ `part = -12C` の指定により、

$^{12}\text{C}$  以外の粒子の軌跡を正しく出力出来ていることが確認できる。また、図 2 は、入射炭素ヒストリ数を増やした際のビーム軸中心での深さ線量分布を示している。炭素線が水中深く入射されることで、徐々にエネルギーを落とし、深さ 9cm 手前の飛程端付近で急激エネルギーを付与するブラッグピークの様相が確認できる。また、part = -12C の結果により、炭素線が水中を進むにつれて、二次粒子が生成され、ブラッグピークに向けて線量寄与が増大し、ブラッグピーク後はこの二次粒子が線量寄与を担うことが確認できる。

この様に、今回導入した負符号による“指定粒子以外”のタリー設定は、放射線のダイナミクスを詳しく解析する目的で役立つことが期待できる。

表 1 機能を追加した PHITS のタリーセクション一覧。

T-track	T-cross	T-deposit	T-deposit2	T-heat	T-yield	T-product
T-DPA	T-LET	T-SED	T-time	T-interaction	T-WWG	T-WWBG

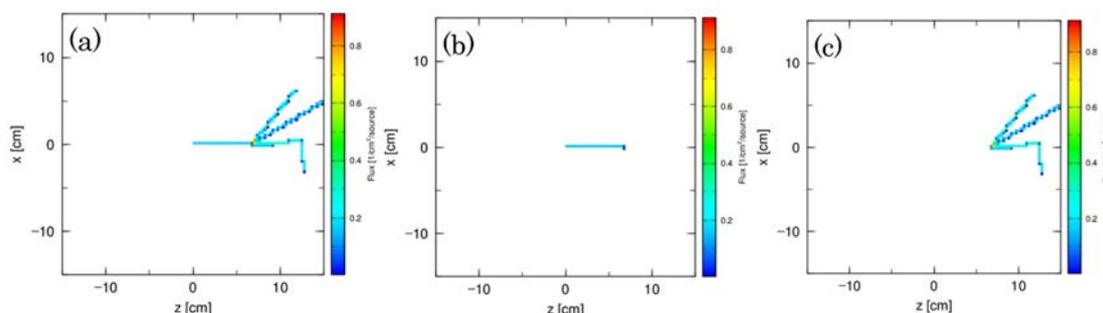


図 1 水中で 200 MeV の炭素線の輸送を行った際に得られる粒子の軌跡（フルエンス分布）。(a)全粒子の寄与（part = all）、(b)  $^{12}\text{C}$  のみの寄与（part = 12C）、(c)  $^{12}\text{C}$  以外の寄与（part = -12C）。

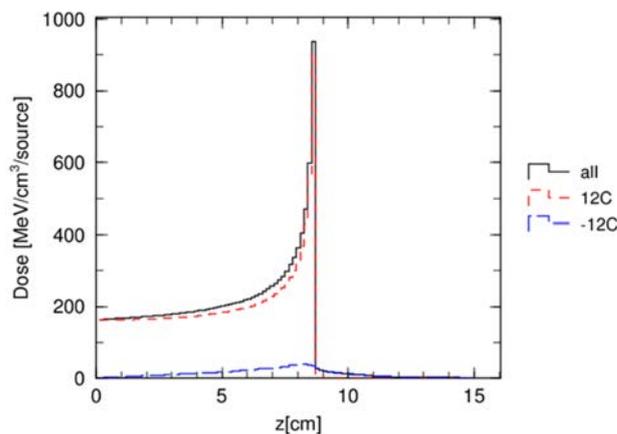


図 2 水中で 200 MeV の炭素線の輸送を行った際に得られる深さ線量分布。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

PHITS は汎用のモンテカルロシミュレーション計算コードであり、多くのユーザーが異なる目的でシミュレーション計算を実施している。長時間計算を要する計算例も多く存在し、高効率の並列計算機能は必須の技術である。今後も引き続き大型計算機を利用し、ユーザーからの要望に応えるための新規機能開発、並列計算機能の改良およびベンチマークテストを実施する予定である。

### 5.3.8 放射性雲からの外部被ばく線量評価コードにおける入出力データの可視化環境整備

#### Visualization of Input and Output Data of the Dose-estimation Code for External Exposure to Radionuclides in Air and on Ground

佐藤 大樹

放射線挙動解析研究グループ

##### (1) 利用目的:

環境中への放射性核種の流出事象が発生した場合、放射性核種から放出されるガンマ線による外部被ばく線量を把握することが求められる。これまでに、土壌および大気中に拡散した放射性核種の放射能濃度分布から、地表面での空間線量率分布を迅速かつ精度よく評価する SIBYL コード[1]を開発し、局所域大気拡散モデルと統合したシステム LHADDAS[2]を公開した。また令和 2 年度には、SIBYL 利用者の利便性を向上させるため、グラフィカル・ユーザー・インターフェース (GUI) を整備した。令和 3 年度は、さらなる利便性向上のため、SIBYL の入出力データを HPE SGI8600 にもインストールされている汎用可視化ソフトウェア ParaView を用いて可視化する環境を整備する。これにより利用者は、3 次元的な放射性雲の放射能分布や 2 次元的な地表面の線量率分布を視覚的に捉えることが可能となる。

##### (2) 利用内容・結果:

図 1 に令和 2 年度に開発した SIBYL の GUI を示す。令和 3 年度は、この GUI から選択したデータに対して汎用可視化ソフトウェア ParaView を呼び出し、データの可視化に適した初期値を与えて描画する機能を実装した。SIBYL の入力データは「放射能データ (Activity data)」、「地表面の標高データ (Elevation data)」および「障害物データ (Obstacle data)」であり、出力データは「線量率分布 (Output file)」である。GUI 上で描画の操作を行うと、選択した入出力データとパラメータを基に描画に必要なデータの最小値および最大値や描画範囲などを解析し、ParaView の起動時に読み込まれる設定ファイルを生成する。その後、指定したパスを参照して、設定ファイルを読み込んだ ParaView が起動する。

図 2 に障害物を格子状に配置した計算体系で拡散する放射性雲の放射能分布を可視化した ParaView 画面を示す。障害物は赤色のオブジェクトとして描画され、放射能 ( $\text{Bq}/\text{m}^3$ ) の分布はカラーマップにて表示される。利用者は、色の違いにより視覚的に放射能分布を理解することができる。描画後は ParaView の機能を用いて、視点の移動、断面の描画、データ解析などが可能となる。図 3 に図 2 で示した放射能分布に対する地表面の線量率分布の計算結果を示す。ParaView により、地表面より高さ 1m における周辺線量当量率 ( $\mu\text{Sv}/\text{h}$ ) の分布がカラーマップで描画されている。カラーマップを用いたことで、障害物の裏側では放射線の遮蔽効果により線量率が低下していることが視覚的に捉えられる。

ParaView による可視化は、SIBYL による数値計算の入出力データの持つ特性を、利用者に容易に理解させることを可能とする。このことから、SIBYL はその利用が想定される原子力災害時の対策立案において強力な支援ツールとなることが期待される。

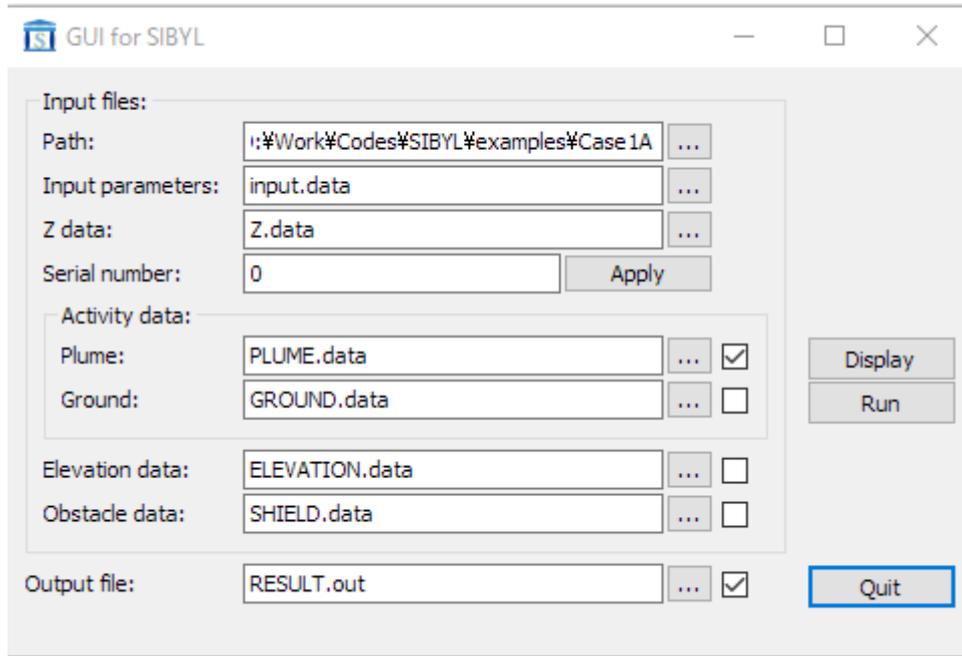


図1 SIBYL コードのための GUI。入出力ファイルの指定、ParaView による描画、線量率計算の実行が GUI を通して制御される。

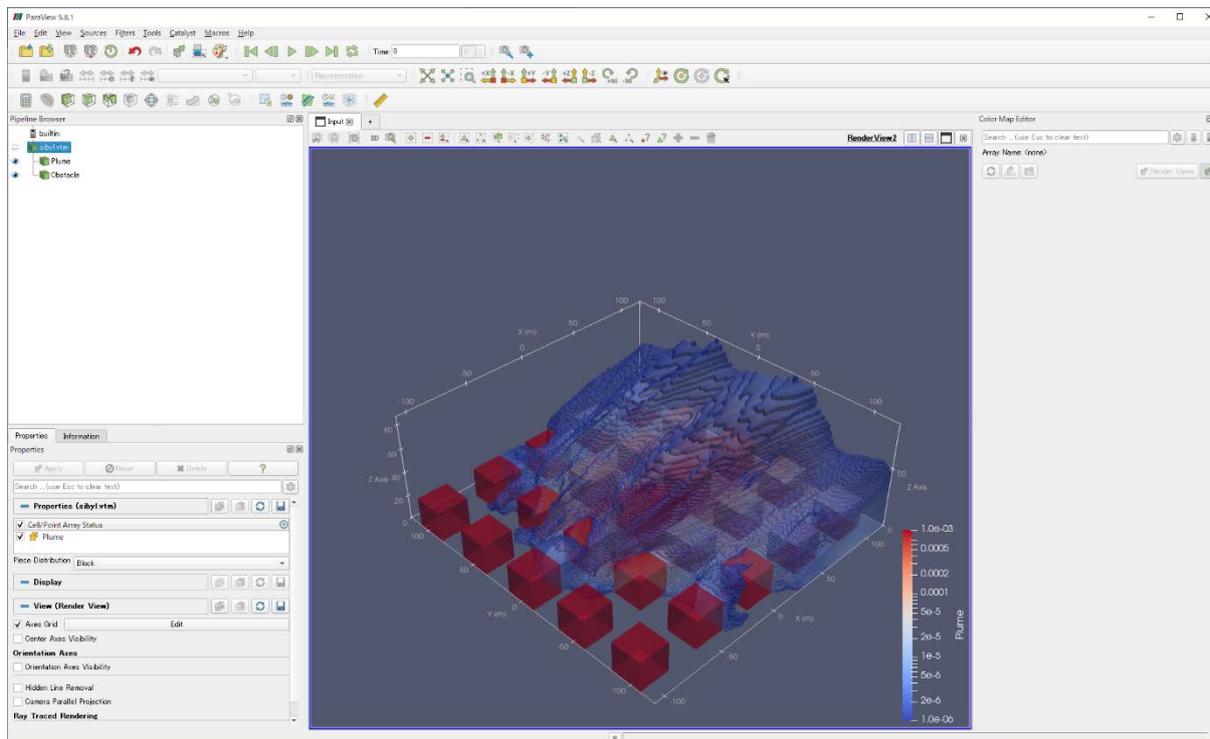


図2 ParaView 上で放射能分布を含む 3次元計算体系を可視化した例。

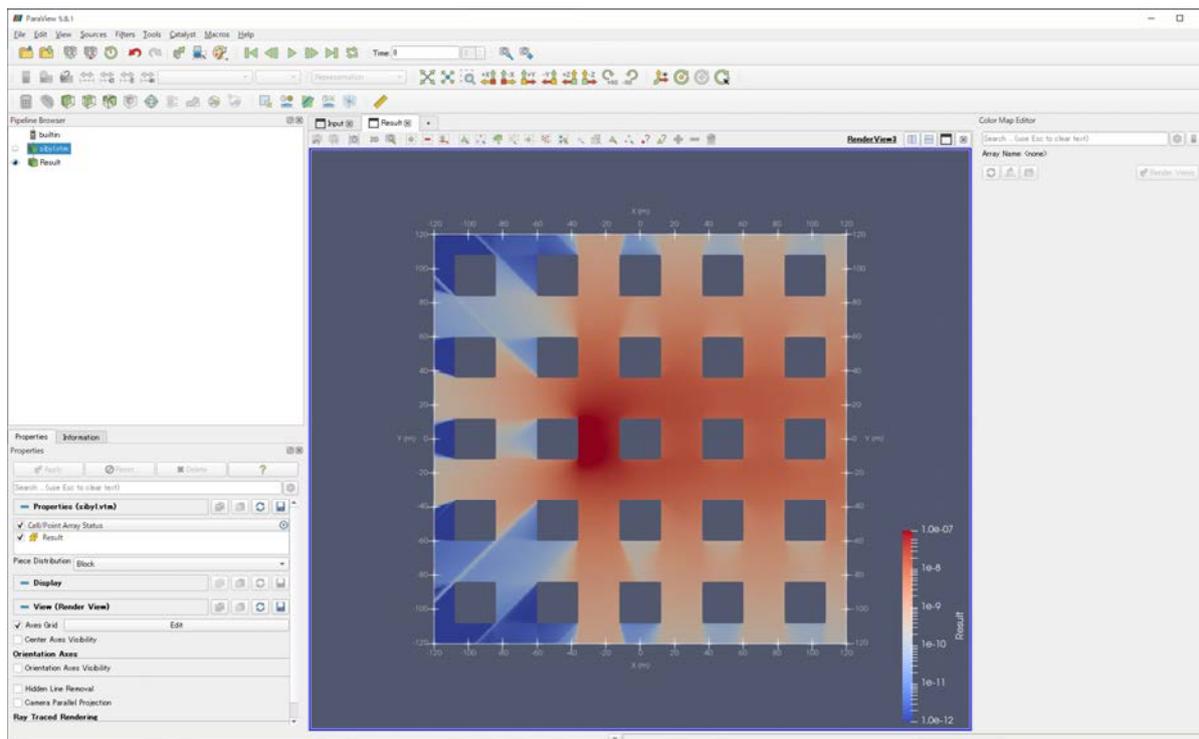


図3 SIBYLの計算結果である地表面の線量率分布の2次元可視化の例。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

(プレス発表)

- 1) 『建物を考慮した詳細な放射線物質の拡散計算に基づく線量評価を初めて実現—局所域高分解能大気拡散・線量評価システム「LHADDAS」を開発—』(2022年3月5日), <https://www.jaea.go.jp/02/press2021/p22030501/>
- 2) D. Satoh, H. Nakayama, T. Furuta, T. Yoshihiro, K. Sakamoto, “Simulation code for estimating external gamma-ray doses from a radioactive plume and contaminated ground using a local-scale atmospheric dispersion model”, PLOS ONE, 2021. DOI: 10.1371/journal.pone.0245932.
- 3) H. Nakayama, N. Onodera, D. Satoh, H. Nagai, Y. Hasegawa, Y. Idomura, “Development of local-scale high-resolution atmospheric dispersion and dose assessment system”, Journal of Nuclear Science & Technology, 2021. DOI: 10.1080/00223131.2022.2038302.

**(4) 今後の利用予定:**

令和3年度までの開発においてSIBYLコードの並列化と入出力データの可視化に成功した。令和4年度には、計算領域内の関心領域と非関心領域で異なるメッシュ解像度を採用することで計算速度の向上に資する改良を実施する。そのためには、今後もHPE SGI8600が持つ強力な演算能力が不可欠となる。

### 5.3.9 界面追跡法に基づく混相流解析手法開発

#### Development of Multiphase Flow Analysis Method Based on Interface Tracking Method

吉田 啓之、鈴木 貴行、堀口 直樹、上澤 伸一郎  
熱流動技術開発グループ

##### (1) 利用目的:

燃料集合体の熱設計は実機集合体を模擬した試験装置を高温・高圧の実機条件で運転し、局所的な温度や圧力を取得することで実施されてきた。このような試験には、事故時を含む評価に限界があること、設計変更毎に試験が必要であること、多額の費用、長い実施期間が必要であることなど多くの課題があり、近年その課題が顕在化している。このような課題に対して、二相 CFD によるデータ取得・現象把握が期待されており、原子炉サブチャンネル内の二相流を対象として、界面追跡法に基づく詳細二相流解析コード TPFIT による数値シミュレーション結果を用いた関連式の評価、これに必要な TPFIT の改良、検証などを行う。

また、原子炉過酷事故 (Severe Accident, SA) 解析コードの高度化には、発生する複雑な熱流動現象を適切にモデル化しコードに反映する必要がある。ここでは、圧力容器外への熔融燃料の移行挙動や事故進展、放射性物質の拡がりなどに影響する、炉心下部プレナムやペDESTAL などへの熔融燃料落下挙動に対応した TPFIT を用いて、熔融燃料の微粒化で起こる挙動に適用し現象や関連式を評価する。さらに、微粒子の除去に用いられ SA 時の放射性物質の拡散にも用いられる水フィルタについて、微粒子評価機能を追加した TPFIT (TPFIT-LPT) を用いた評価を行い現象の把握などを行う。

##### (2) 利用内容・結果:

###### 1) 2021 年度の達成目標 (Research targets of FY2021 project)

2021 年度の達成目標は、昨年度までに改良・機能追加を行った解析手法を用いて以下の解析を実施、結果の評価を行うことである。

1. PWR 及び BWR を想定する条件で、スパーサによる影響を評価するための解析を実施する
2. プール中の微粒子を含む二相流挙動解析を行い、気液間の微粒子挙動の詳細を明らかにする
3. 浅水プール内液体ジェットの侵入挙動解析を実施し、微粒化物挙動を実験結果などと比較する

###### 2) 2021 年度の研究成果とその重要性 (Results from FY2021 project and their significance)

###### 燃料集合体内二相流挙動の評価

燃料集合体内の二相流挙動に与えるスパーサの影響を数値シミュレーションにより評価するため、ニュークリア・デベロップメントで実施した、PWR を想定した円管流路内の気泡流試験を対象とした解析を引き続き実施した。流路内にスパーサを模擬した障害物を含む系に対する解析により、障害物後方での気泡の集まりなど、試験結果と定性的に一致する解析結果が得られた。BWR 炉心を簡易に模擬した体系について、スパーサが環状噴霧流挙動に与える影響を評価するため、BWR 燃料集合体を簡易に模擬した円管流路条件に対して TPFIT を適用して詳細解析 (格子サイズ約 100 $\mu\text{m}$  空間解像度) を実施した。解析では、スパーサの有無や流路のサイズなどをパラメータとした。解析体系及び解析結果の一例を Fig. 1 に示す。スパーサ上流 (Region A) に対して、スパーサ中心 (Region B) では液滴の存在する範囲が壁面近傍に移動し液滴の割合も減少している。スパーサ後流 (Region C) では流れの影響を受け多くの液滴が

生成され、後流 (Region D) において管中心部まで移動している。さらに後流 (Region E) において液滴は減少しており、液滴の挙動に対するスペーサの影響を評価することができることを確認した。得られた結果は、サブチャンネル解析コード内のモデル評価に活用される予定である。

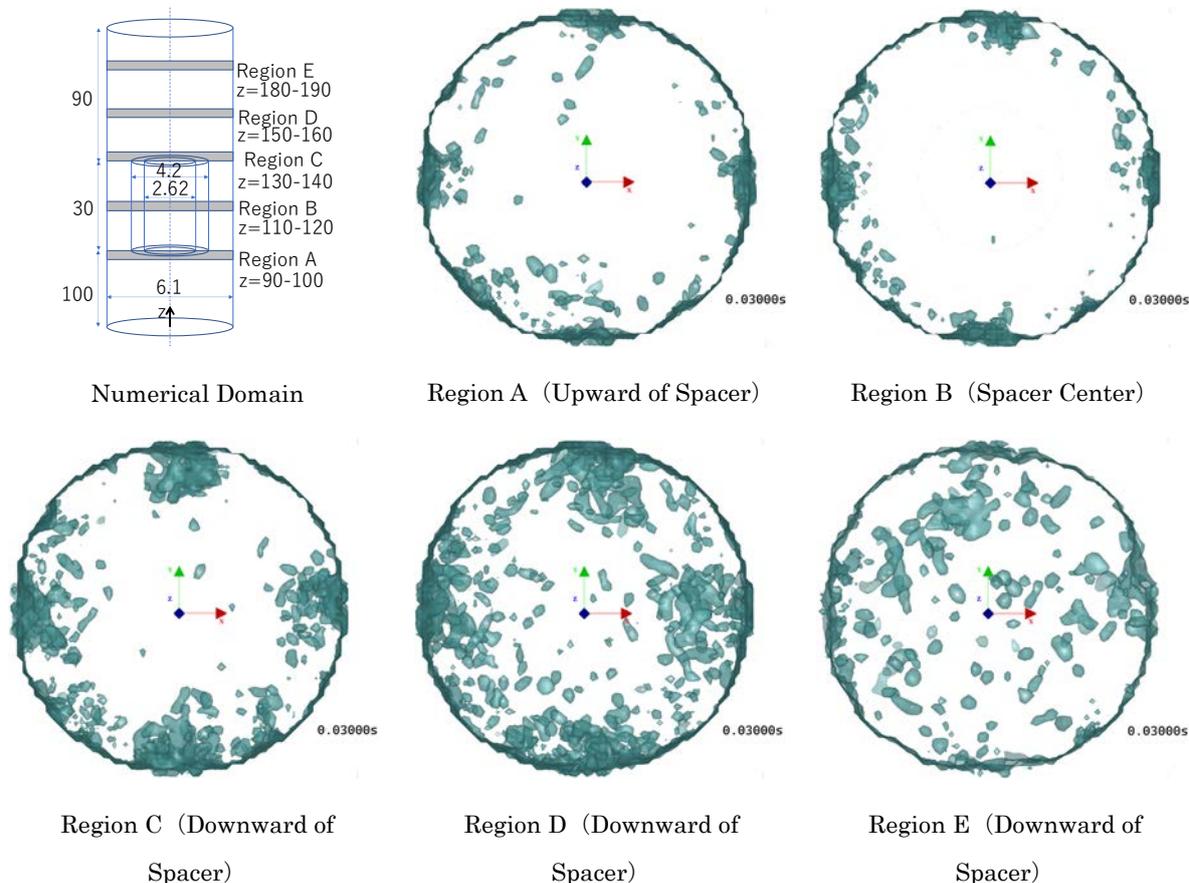


Fig. 1 Simulated Annular Dispersed Flow

プール中の微粒子を含む二相流挙動解析

水を配置した容器 (プール) に対して、微粒子に働くブラウン運動による力や気液界面における挙動を与えるモデルを付加し、底面に設置したノズルから微粒子を含む気相を注入し二相流を形成させる解析を実施した。これにより、既存の知見やこれまで実施した開発において微粒子に働く想定される力を考慮し、微粒子を含む二相流の挙動を計算できることを確認した。なお、微粒子に働くブラウン運動による力の評価手法を拡張し、イオンの水溶液中の拡散を考慮した上で電場中のイオンの挙動を評価できる手法を構築し、これによりMCCCE (Multi-Channel Counter Current Electrophoresis) 法における同位体分離に対して理論的な検討を可能とした。

浅水プールにおけるジェットブレイクアップ挙動の評価

今年度も昨年度に引き続き、浅水プール内液体ジェット侵入挙動解析を実施した。解析結果の一例として、時刻 100 及び 500ms 経過時の界面形状の可視化図を実験結果と比較して Fig. 2 に示す。左図は実験結果を、右図は解析結果を示している。なお、本研究で開発した可視化処理により、実験及び解析の双方に対して分裂して生じた液滴と液膜など区別することが可能となっており、図では液滴と判定された界面 (紫) と液柱及び液膜状ジェット (水色) と判定された界面を異なる色で表示している。実験結果と比較して、解析結果は微粒化物数が少ない傾

向となった。これは、500msにおいて顕著である、液膜状ジェット先端（外周部）での形状の違いが原因であると考えられる。壁面上での波立ち方は格子解像度の影響、壁面の接触角の取り扱い、境界条件の影響による周囲の流れ場の違いが大きいとされる。今後は壁面近傍での格子解像度を高くするなどの修正を行った上で解析を実施し、実験結果との詳細な比較を行う予定である。以上、今年度はジェットの広がりおよび微粒化物挙動の実験結果と解析結果との比較を実施した。

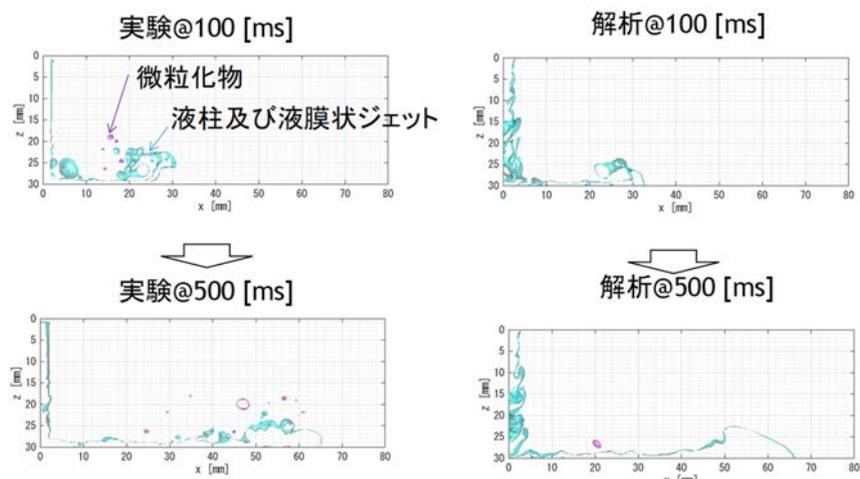


Fig.2 Jet Breakup Behavior on Pool Wall

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

国際会議

- 1) N. Horiguchi, H. Yoshida, S. Yamamura, K. Fujiwara, A. Kaneko, Y. Abe, Development of Dispersed Phase Tracking Method for Time-series 3-dimensional Interface Shape Data, Proc. of NURETH19, 2022, 14p.

国内会議

- 2) 堀口 直樹, 山村 聡太, 藤原 広太, 金子 暁子, 吉田 啓之, 浅水プール中に落下する液体ジェットの侵入挙動,11; 微粒化物の移動速度の評価, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, 2021.
- 3) 堀口 直樹, 吉田 啓之, 北辻 章浩, 福森 麻衣, 竹村 友紀, 長谷川 信. 岸本 忠史, MCCCE 法を用いたリチウム-7 濃縮技術開発 (3)単チャンネル試験による脈動流の評価と数値シミュレーション, 日本原子力学会 2022 年春の年会, 2022.
- 4) H. Yoshida, H. Naoki, A. Ono, H. Furuichi, K. Katono, NUMERICAL SIMULATION OF ANNULAR DISPERSED FLOW IN SIMPLIFIED SUBCHANNEL OF LIGHT WATER COOLED FAST REACTOR RBWR, Proc. of ICONE29, ICONE29-91630, 2022, 7p.

### (4) 今後の利用予定:

これまで、界面追跡法に基づく二相流解析手法開発のため、様々な条件での解析を大型計算機上で実施してきた。今後は、詳細な現象の把握を目的とした大規模解析の実施や、水-蒸気の相変化を伴う条件での解析を遂行するため、大型計算機を利用する予定である。

5.3.10  $\beta$  崩壊半減期の理論予測

## Theoretical Prediction of Beta-decay Half-lives

湊 太志

核データ研究グループ

## (1) 利用目的:

本研究は、実験データのない原子核の  $\beta$  崩壊半減期を数値的に予測することが目的である。陽子と中性子から成る有限多体系である原子核の物理的な振る舞いを、計算機上に再現するためには、適切な理論モデルを選択する必要がある。本研究では、Hartree-Fock-Bogoliubov + 準粒子乱雑位相近似法 (HFB+QRPA) という微視的理論モデルの数値計算コードを開発して、その達成を試みた。開発された理論モデルコードによって1つの原子核の数値解を得るためには、多次元の固有値問題を何度も解く必要がある。また  $\beta$  崩壊をする原子核の数は5,000以上あると予測されており、通常の計算機では全ての原子核の計算を現実的な時間スケールで終わらせることは難しい。大型計算機 HPE SGI8600 を利用することによって、目的とした原子核の  $\beta$  崩壊計算を全て実行し、令和3年度に公開した核データライブラリ JENDL-5 にその成果を採用した。

## (2) 利用内容・結果:

本研究では最初に、理論モデルの予測不定性を下げるために、適切な相互作用とモデルスペースの選択を行った。図1は、アイソスピン  $T=1$  対相関力として、ゼロレンジ力 (上図) と有限レンジ力 (下図) を使用した場合のカドミウム同位体の半減期計算の結果を示したものであり、モデルスペース  $\varepsilon_{cut}$  (数値計算のために取り入れる一粒子準位の最大エネルギー) を変えて、その振る舞いを調べた。ゼロレンジ力では、異なるモデルスペースによって、予測される半減期の値が大きく変わっているのが分かる。一方で、有限レンジ力のモデルスペース依存性は非常に小さく、半減期予測に適していることが分かった。

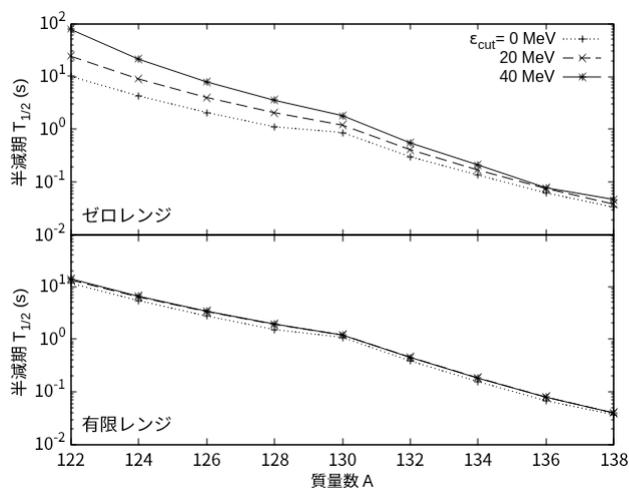


図1: カドミウム同位体の半減期の計算結果。アイソスピン  $T=1$  対相関力にゼロレンジ (Zero-Range) 力と有限レンジ (Finite-Range) 力を用い、モデルスペース  $\varepsilon_{cut}$  を変えてその性質を調べた。横軸は質量数  $A$ 、縦軸は半減期  $T_{1/2}(s)$  である。

図 2 は、今回の研究で得られた半減期の理論予測と実験データの比（理論予測÷実験データ）を、横軸を中性子数  $N$ 、縦軸を陽子数  $Z$  として示したものである。広い範囲において、実験データを良く再現していることが分かる。一方で、陽子数  $Z=45$ 、中性子数  $N=65$  近傍では、理論予測が実験データを過小評価していることが分かる。これは、今回利用した HFB+QRPA 法が原子核を球形と仮定しているのに対して、この領域の原子核は大きく変形しているためであると思われる。変形した原子核を過小評価してしまうことは、過去の研究でも指摘されていたが、大型計算機を利用することによって多くの原子核を系統的に計算することで、改めてはっきりと確認することができた。

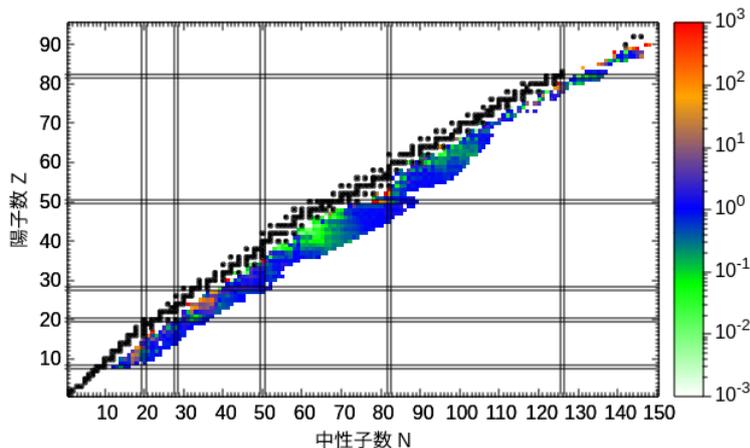


図 2：理論予測と実験データの比。横軸は中性子数  $N$ 、縦軸は陽子数  $Z$  である。

図 3 は、カドミウム同位体の半減期予測の結果を実験データと比較したものである。下図は、理論予測と実験データの比を示している。

図 2 で見たように、質量数  $A=117-120$  の比較的軽い領域では実験データを過小評価しているが、質量数  $A>120$  では実験データをよく再現していることが分かる。

本研究で得られた成果は、2021年12月に公開された核データライブラリ JENDL-5 の崩壊データに利用されている。今後は、使用済み核燃料からの放射線量予測、放射性廃棄物の減容化、非破壊分析など、幅広い研究開発分野に利用されることが期待される。

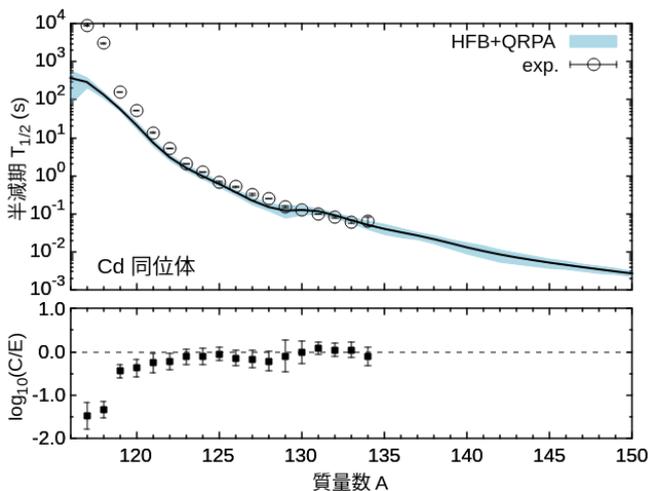


図 3：カドミウム同位体の半減期（上図）と理論予測と実験データの比（下図）。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) 湊太志, “HFB+QRPA 法による中性子過剰核のベータ崩壊半減期の理論予測”, 日本物理学会第 77 回年次大会, 2022 年 3 月 (オンライン) .
- 2) F. Minato, Z. Niu, and H. Liang, “Calculation of  $\beta$ -decay half-lives within a Skyrme-Hartree-Fock-Bogoliubov energy density functional with the proton-neutron quasiparticle random-phase approximation and isoscalar pairing strengths optimized by a Bayesian method”, *Phys. Rev. C* 106, 024306 , 2022, doi: <https://doi.org/10.1103/PhysRevC.106.024306>

**(4) 今後の利用予定:**

本研究の結果より、多くの不安定な原子核の  $\beta$  崩壊半減期を、HFB+QRPA 法によって再現できることが分かった。しかしながら、球形を仮定した理論的枠組みでは、一部の原子核の半減期をうまく再現できていない。そのため、今後は球形を仮定している現在の HFB+QRPA 法を、軸対称変形に拡張した 2 次元モデルにする必要がある。2 次元モデルへの拡張により、固有値問題の次元数が大幅に増えることが予想され、さらに計算機資源が必要となることが予想されるため、引き続き原子力機構の大型計算機を利用する予定である。

### 5.3.11 加速器駆動システム上部構造の放射線遮蔽解析

## Radiation Shielding Analysis of the Upper Structure of an Accelerator-driven System

岩元 大樹

核変換システム開発グループ

#### (1) 利用目的:

原子力機構が進めている加速器駆動システム（ADS）の研究開発において、施設の遮蔽設計は重要な課題の一つである。ADS は、陽子ビーム輸送系と原子炉がビームダクトで接続される構造上、標的および炉心で発生する中性子の炉心上部への流出は避けられない。さらに ADS は、核破碎中性子とともに核分裂連鎖反応に伴う核分裂中性子も発生することから、ADS 上部構造の遮蔽設計では、これらの中性子を適切に遮蔽するための詳細な数値解析が必要となる。

このような背景から、ADS の上部における中性子やガンマ線などの放射線の挙動をシミュレーション上で模擬し、ADS 上部構造の放射線遮蔽解析を実施した。解析の対象となる ADS の体系は極めて複雑で、取り扱う核種、エネルギーおよび空間が広範囲に及ぶため、大規模な計算資源を必要とした。本解析に原子力機構の大型計算機システム HPE SGI8600 を利用することで、短期間のうちに目的とする線量および放射エネルギーを評価することができた。以下ではその結果について記載する。

#### (2) 利用内容・結果:

解析には、モンテカルロ粒子輸送計算コード PHITS を用いた。シミュレーションでは、物質中における放射線の挙動を忠実に再現する必要があるため、図 1 に示すような ADS の炉心および上部構造を詳細に模擬したモデルを使用した。ビームダクトを介して炉外へ流出する中性子を効率よく遮蔽するため、原子炉容器の上部に鉄とコンクリートからなる遮蔽体を置いた。極めて複雑な炉心の構造と大規模な体系のため、ADS 上部における中性子およびガンマ線による線量や放射化による機器の放射エネルギーを十分な統計精度で得るには膨大な計算コストを要する。そのため解析では、次の 3 つのステップに分け、それぞれのステップに対して目的とする線量や放射エネルギーを求めた。

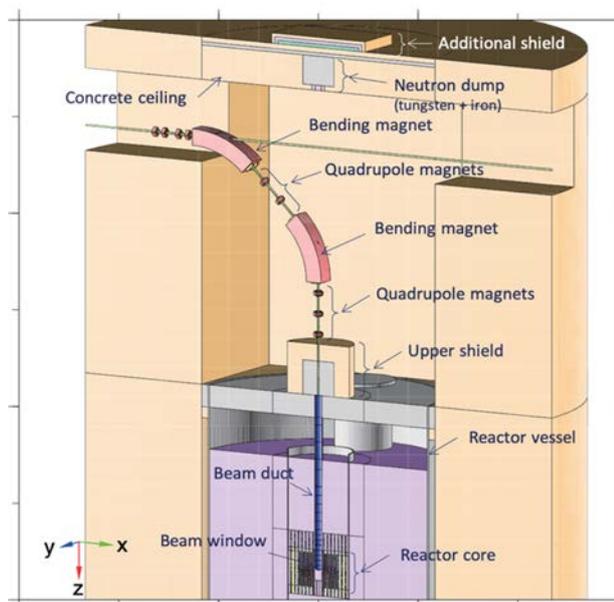


図 1 PHITS による粒子輸送シミュレーションで用いた ADS 炉心および上部構造のモデル

1. 1.5 GeV 陽子ビームを線源とした未臨界炉心の粒子輸送解析およびビームダクトの放射能解析
2. 原子炉容器上部から放出される中性子およびガンマ線を線源とした、原子炉容器上部に位置するビーム輸送室の粒子輸送解析および放射能解析
3. ビーム輸送室上部に位置する天井遮蔽体から染み出す中性子を線源とした、ADS 建家が設置された事業所および事業所境界周辺の粒子輸送解析（スカイシャインシミュレーション（図 2））

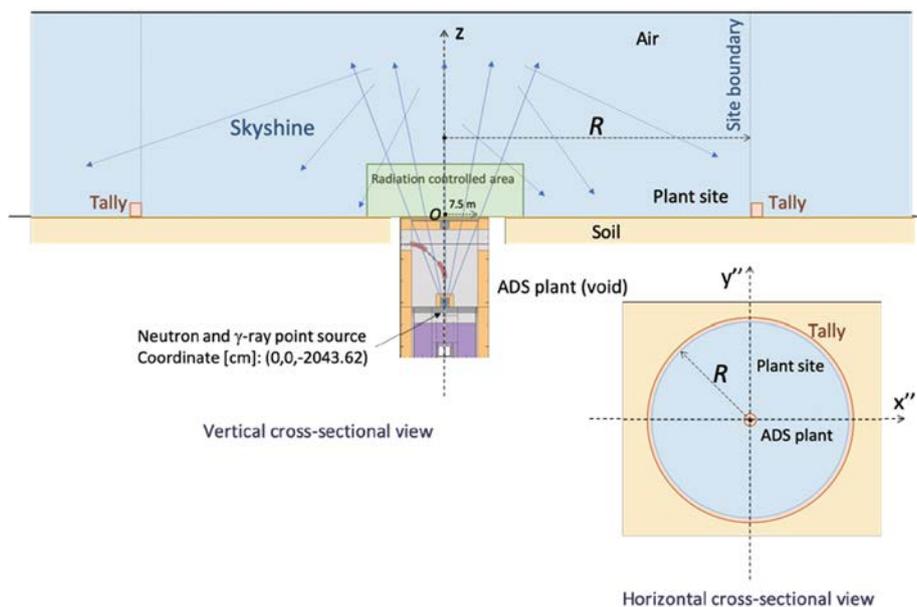


図 2 スカイシャインシミュレーションの計算体系  
 (図中の  $R$  は ADS から事業所境界までの距離を表す)

一連のシミュレーションは、複雑な計算体系とともに解析対象が半径数百メートルの広範囲に及ぶことに加えて、核燃料による核分裂連鎖反応や陽子ビームによる高エネルギー核反応を伴うため、膨大な計算資源を必要とする。解析に HPE SGI8600 による並列計算を用いることで、短期間のうちに目的とする線量および放射エネルギーを評価することができた。

図 3 にスカイシャインシミュレーションで得られた事業所境界位置に対する実効線量を示す。この図に示されているように、本解析により、図 1 に示された遮蔽構造を ADS 原子炉容器の上部に施すことで、法令で定められた線量限度（3 月につき  $250 \mu\text{Sv}$  すなわち  $0.11 \mu\text{Sv/h}$ ）を十分に下回る等の重要な知見が得られた。本解析結果を研究成果報告書 JAEA-Research としてまとめ、本年度中に公開することができた。

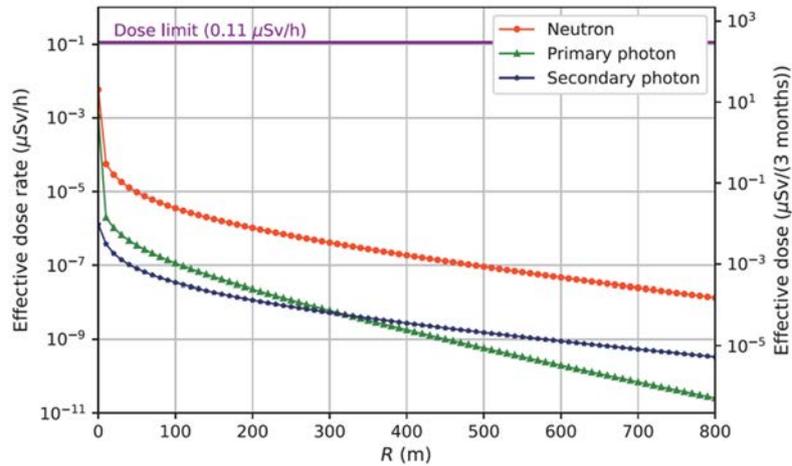


図3 スカイシャインによる事業所境界位置（図2の  $R$ ）に対する実効線量

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) 岩元大樹, 明午伸一郎, 中野敬太他「加速器駆動システム上部構造の放射線遮蔽解析」, JAEA-Research 2021-012, 2022, 72p.

**(4) 今後の利用予定:**

今後は、ADS 研究開発のための FFAG 加速器を用いた核データ測定 of 解析を実施する予定である。今年度と同様に大規模な詳細モデルで、種々の核反応モデルを用いた解析を要するため、今年度と同等の計算機資源を必要とすることが予想される。今後も HPE SGI8600 の利用を予定している。

### 5.3.12 積分実験データを用いた JENDL-5 のベンチマークテスト

#### JENDL-5 Benchmark Test with Integral Experiments

大泉 昭人、鹿島 陽夫  
核変換システム開発グループ

##### (1) 利用目的:

日本で研究開発が進められている評価済み核データライブラリの最新版 JENDL-5 が 2021 年 12 月に公開された[1]。この公開に先立ち、JENDL-5 の妥当性検証のため、これまでに高速体系臨界集合体で測定された、高速炉や加速器駆動システム (ADS) の研究開発に資する積分実験データを用いてベンチマークテストを実施した。ベンチマークテストは、連続エネルギーモンテカルロ計算コードで行うため、統計誤差の低減には膨大な計算コストがかかる。そのため、HPE SGI8600 の利用が必要不可欠であった。

##### (2) 利用内容・結果:

本報告では、検証結果の一例として、原子力機構の高速臨界実験装置 (FCA) で測定された、FCA-XXVII 炉心におけるナトリウムボイド置換反応度値[2]に関するベンチマーク結果を記載する。同測定では、炉心中央領域のナトリウムをボイド状態に置き換え、臨界法により置換前の余剰反応度の差分として反応度値が取得されている。今回、測定領域の異なる 2 ケース (4Z、6Z) を対象とした。解析は、それぞれのケースにおいて、置換前後 (ナトリウム、ボイド状態) における実効増倍率を計算し、その差分を反応度値 (解析値) とした。実効増倍率の統計誤差を低減するため、1 ケース当たりのヒストリー数を、 $2 \times 10^9$  とした。

図 1 は、横軸にケース名、縦軸に解析値 (Calculation) に対する実験値 (Experiment) の比 (C/E 値) を示したものである。青の実線で示した従来の核データライブラリ JENDL-4.0[3] による解析では過大評価していたのに対して、赤の実線で示した JENDL-5 では緑の点線で示した実験誤差内で実験値をよく再現し、解析の予測精度が改善することとなった。また、JENDL-5 を基準として、主要核種毎に JENDL-4.0 を使用した解析も実施し、どの核種の核データの更新が今回の予測精度の改善に寄与しているかを分析した。その結果、Na-23 (黒の一点鎖線)、U-235 (紫の二点鎖線)、U-238 (灰色の点線) の更新の寄与が大きいことが明らかとなった。

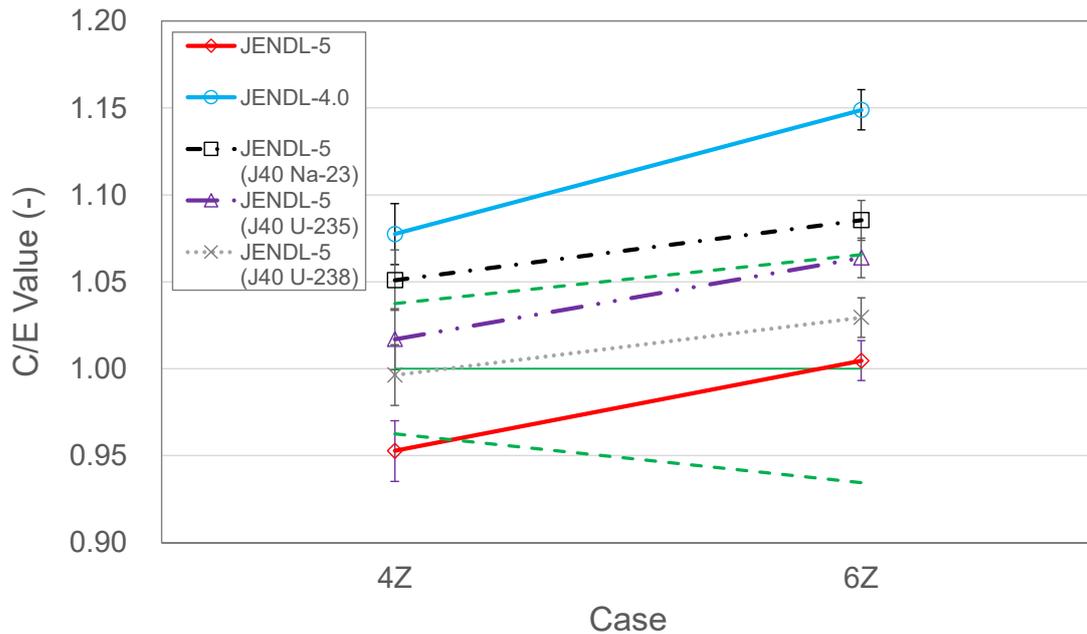


図1 Na/Void の C/E 値

参考文献

[1] O. Iwamoto, N. Iwamoto, K. Shibata, A. Ichihara, S. Kunieda, F. Minato, and S. Nakayama, “Status of JENDL”, EPJ Web of Conferences, 239, 09002\_1-6 2020.

[2] M. Fukushima, Y. Kitamura, T. Kugo, T. Yamane, M. Andoh, G. Chiba, M. Ishikawa, and S. Okajima, “Benchmark Calculations of Sodium-Void Experiments with Uranium Fuels at the Fast Critical Assembly FCA,” Progress in Nuclear Science and Technology, vol. 2, pp.306-311, 2011.

[3] K. Shibata, O. Iwamoto, T. Nakagawa, N. Iwamoto, A. Ichihara, S. Kunieda, S. Chiba, K. Furutaka, N. Otuka, T. Ohsawa, T. Murata, H. Matsunobu, A. Zukeran, S. Kamada, and J. Katakura, “JENDL-4.0: A New Library for Nuclear Science and Engineering,” Journal of Nuclear Science and Technology, 48, 1, pp.1-30, 2011.

(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) 大泉昭人, 鹿島陽夫, 福島昌宏, “JENDL-5 の検証 (5) 高速体系臨界集合体での積分実験データを用いたベンチマークテスト”, 日本原子力学会 春の年会, オンライン, 2022, 1A11, <https://confit.atlas.jp/guide/event/aesj2022s/proceedings/list>, (accessed 2022-05-11).

(4) 今後の利用予定:

今後も HPE SGI8600 を継続利用し、他の実験ベンチマークを用いた JENDL-5 の検証や分析を行う予定である。

### 5.3.13 対流ヘリウムガス中における酸素の輸送解析

#### Simulation of Oxygen Mass Transfer in Flowing Helium Gas

渡辺 奈央

核変換システム開発グループ

##### (1) 利用目的:

加速器駆動核変換システムにおける未臨界炉の設計では、冷却材である鉛ビスマス共晶合金 (LBE) による構造材料の腐食量が、炉の安全性を検討する上で重要な指標となる。腐食量抑制のための手法の一つに、構造材料表面に酸化層を形成させ、LBE に対する保護膜として機能させるものがある。しかしながら、酸化層と LBE との境界における酸素濃度が低くなると、酸化層は溶解し構造材料の腐食が加速する。すなわち、酸化層が安定して存在し、腐食速度が抑制される状態が保持できる体系を設計するためには、LBE 中酸素の移流拡散を再現し、酸素濃度分布を把握する必要がある。原子力機構では詳細熱流動解析コード JUPITER を用いた未臨界炉構造物周りの詳細な熱流動解析[1]を行っているが、これまで酸素の移流拡散については考慮していなかった。そこで本検討では、対流場における酸素の移流拡散について JUPITER を用いた非定常解析を実施し、その再現性について確認した。移流拡散の過渡的な挙動を把握するためには長時間にわたる非定常解析結果が必要であり、大型計算機による並列計算が不可欠である。

##### (2) 利用内容・結果:

本検討では対流ヘリウムガス中における酸素の移流拡散の実験結果[2,3]を参照し、解析体系と条件の設定を行った。体系は縦 15 mm、横 100mm、高さ 7 mm の直方体の左右に径 4 mm の配管を接続したものである。ヘリウムガスを流速約 0.012 m/s で流し、速度分布が定常になった時点で直方体天井面の一部に酸素を瞬間的に付加し、その後の酸素濃度分布の変化を確認した。図 1 に酸素付加直後、縦方向断面における酸素モル比率のコンター図を示す。解析結果の出力間隔を 0.1 秒としたため、図 1 は酸素付加の瞬間から最大 0.1 秒経過した後の分布であるが、その間に酸素が直方体の底まで拡散していることが分かる。図 2 に酸素付加面積から右側に約 1 cm 離れた位置 (図 1) における酸素分圧の推移について、実験結果と解析結果を比較したものを示す。図 2 の左図は Planar type と Tubular type の 2 種類の体系それぞれにおける測定結果[3]であり、どちらも酸素付加領域の下流側では酸素付加時から数秒後に酸素分圧がピークに達しその後緩やかに減衰していることが分かる。図 2 の右図は Planar type を模擬した本解析結果であるが、上記と同様の推移を示しており、定性的な再現性を確認できた。一方で、ピーク時の酸素分圧は解析結果の方が 100 倍程度過大評価されており、定量的な再現性を確認するためには解析条件の修正が必要であると考えられる。

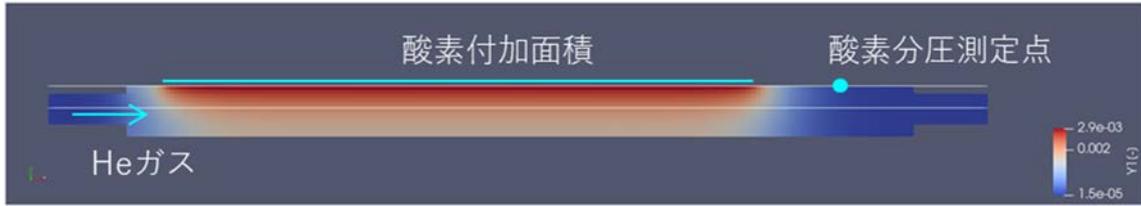


図1 酸素付加直後のヘリウムガス中酸素モル比率分布

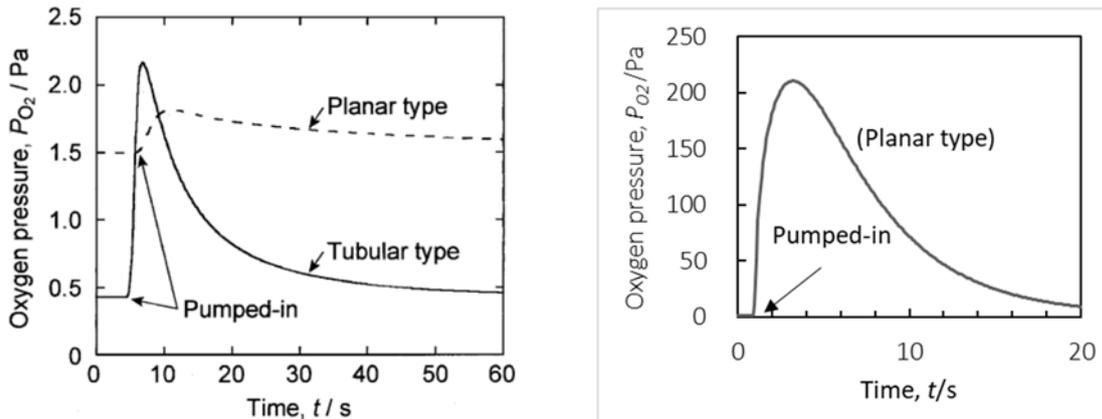


図2 酸素付加領域の下流側における酸素分圧推移の測定結果[2] (左) と本解析結果 (右)

参考文献

- [1] S. Yamashita, S. Sugawara, H. Yoshida, “Development of numerical simulation method to evaluate detailed thermal-hydraulics around beam window in ADS”, Proc. of 27th Int. Conf. on Nucl. Eng. (ICONE-27)
- [2] 佐藤正之, 金児絃征, “銀電極を用いる平板型ジルコニア酸素ポンプ・ゲージの作製とその電気化学特性”, 日本金属学会誌, 65, 9, pp.767-770, 2001.
- [3] 佐藤正之, 金児絃征, “銀電極を用いる円筒型ジルコニア酸素ポンプ・ゲージの応答特性”, 日本金属学会誌, 66, 11, pp.1143-1149, 2002.

(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

なし

(4) 今後の利用予定:

本検討では JUPITER が酸素の移流拡散を定性的に再現できていることを確認した。今後は定量評価のための解析条件の検証を実施予定であり、その計算のため大型計算機を引き続き利用したい。

### 5.3.14 未臨界体系の中性子世代と時間の関係

#### Relationship between Neutron Generation and Time of Subcritical System

方野 量太

核変換システム開発グループ

##### (1) 利用目的:

加速器駆動システム (ADS) は、陽子加速器とマイナーアクチニド (MA) を装荷した未臨界炉心からなる。炉心の未臨界度を測定する手法の一つに、パルス中性子源を用いた  $\alpha$ -fitting 法がある。 $\alpha$ -fitting 法は、パルス入射後の中性子計数の時間的減衰の速さ (即発中性子減衰定数) から未臨界度を推定する手法である。核変換システム開発グループでは、 $\alpha$ -fitting 法の高度化検討および熱中性子体系である京都大学臨界集合体 (KUCA) における実験検証などを行ってきた。しかし、高速体系である ADS でパルス中性子源実験を模擬した数値解析を行った結果、臨界計算から予測される即発中性子減衰定数より遅い減衰の成分が存在し、これによって未臨界界に対応する減衰定数の測定できない可能性があることが分かった。

本検討では、核分裂によって発生した中性子が次の核分裂を起こすまでを 1 世代とするとき、モンテカルロ粒子輸送シミュレーションコード PHITS を用いてパルス入射後の中性子計数率を世代別に評価し、中性子の世代と時間的減衰について考察する。未臨界体系では世代を経るごとに中性子数が減少するため、より高い統計精度を得るために大型計算機 HPE SGI8600 を活用した並列計算を実施した。以下では、計算結果について記載する。

##### (2) 利用内容・結果:

解析モデルを図 1 に示す。本検討では簡単のため、RZ モデルで解析を行った。また、図 1 に示す位置 (燃料領域の軸方向および径方向の中心付近) に核分裂計数管を模擬するために、U-238 の核分裂率タリーを設定した。PHITS の COUNTER を設定し、核分裂を  $N$  回起こした中性子 (すなわち  $N$  世代目) についてタリーを取るように設定した。 $N$  の範囲は 0~800 までとし、各世代のパルス入射後の計数率を計算した。各世代の計数率を  $C_N(t)$  として次式で定義される平均世代数を評価した。

$$\langle N \rangle = \frac{\sum_{N=0}^{\infty} N \cdot C_N(t)}{\sum_{N=0}^{\infty} C_N(t)}$$

図 2 に  $\langle N \rangle$  の結果と従来理論で予測される平均世代数を示す。炉内では核分裂反応によって中性子は生成され、他の原子核に捕獲されるまたは体系外に漏れることで消滅する。生成される/消滅する中性子数の比は実効増倍率 ( $k_{eff}$ ) と定義され、 $k_{eff} < 1$ 、すなわち未臨界の時、世代を経るごとに中性子数は  $k_{eff}$  倍されることから、核分裂連鎖反応が維持できなくなり炉心は停止状態へと向かう。したがって、未臨界体系ではパルス入射後の中性子計数は時間的に減衰することとなる。パルス中性子源から発生する中性子を 0 世代目とするとき、従来理論からは検出器で測定される中性子の平均世代は時間に比例し、時間的な減衰から世代的な減衰が測定により求められることがわかる。しかし、図 2 に示される通り、パルス入射後から数十  $\mu$ s 付近で平均世代数はほぼ一定となり、時間との比例関係が破れていることがわかる。この結果は、平

均世代数が増えないことから、数十  $\mu\text{s}$  以降の範囲では時間的な減衰が必ずしも世代的な減衰を代表するとは限らないことを示唆しており、結果世代的な減衰の尺度である未臨界度をうまく測定できない可能性を示している。

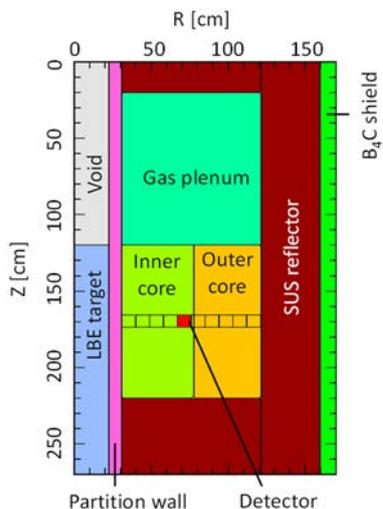


図1 計算モデル

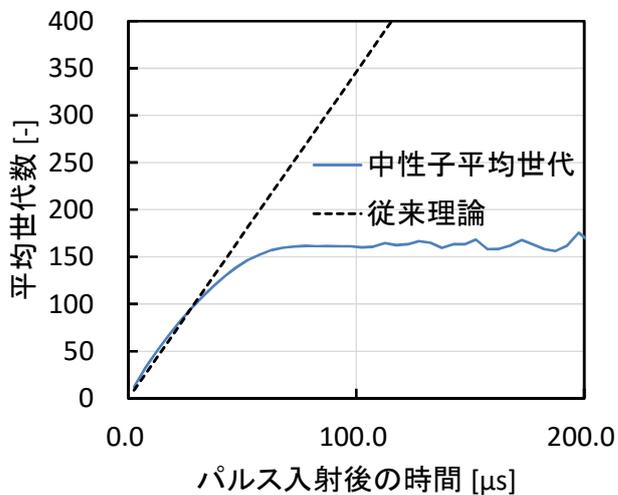


図2 検出される中性子の平均世代数

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

今回の検討では、ADS の炉心で検出される中性子の平均世代数に着目し、直感的な考察を行った。熱中性子炉でのパルス中性子実験では、このような問題は確認されなかったため、他の体系で同様の解析を HPE SGI8600 で実施し、比較検討を行いたい。

### 5.3.15 回転照射法における核物質の偏在が与える影響

#### Effects of Eccentric Distribution of Nuclear Material in the Rotation Method

米田 政夫

原子力センシング研究グループ

#### (1) 利用目的:

アクティブ中性子法は、測定対象物に外部から中性子を照射し、発生する核分裂中性子を測定することで核物質の検知や計量を行う手法である。核物質自身が放出する放射線を測定するパッシブ法に比べて、アクティブ中性子法は核物質の検知性能が高いという特長がある。代表的なアクティブ中性子法である DDA 法は、高性能である一方で、D-T 管等の非常に高価で大掛かりな中性子発生装置を用いる必要があるため、装置が高価で大型になるという短所がある。そこで、低コストで可搬性を有する新たなアクティブ中性子法を確立すべく回転照射法を考案し、その研究開発に取り組んでいる。この手法では、対象物近傍で中性子線源を高速回転させ、回転動作と同期した中性子計測を行う。対象物が核物質を含む場合、測定される中性子の時間分布に変化が生じるため、核物質を検知することができる。

これまでにシミュレーション及び核物質を用いた回転照射法実験に取り組み、本手法の原理実証を終えている。これまでのシミュレーション及び実験では、核物質を測定対象物の中心に配置していた。実用化に際しては多様な測定条件を検討する必要があり、なかでも核物質の偏在の影響評価は重要である。回転照射法は線源位置が移動するため、線源位置が固定している DDA 法に比べて高い計算機能力を要することから、本シミュレーション計算には大型計算機を用いることとした。

#### (2) 利用内容・結果:

回転照射法のシミュレーション体系を図 1 に示す。中性子線源は直径 31cm のアルミニウム製円盤の外周部に設置し、線源の回転半径は 15cm である。中性子検出器バンクは核分裂中性子を効率的に検出する構造を有する。バンクの内部には He-3 検出器を 6 本設置しており、周りをポリエチレンとカドミウムで囲んでいる。測定対象物はアルミニウム円盤と中性子検出器バンクの間に配置しており、核物質（天然ウラン）をポリエチレンで囲んだものである。本シミュレーションでは、偏在の影響を調べるため、図 1 に示すように測定対象物内で核物質を左側に偏らせている。

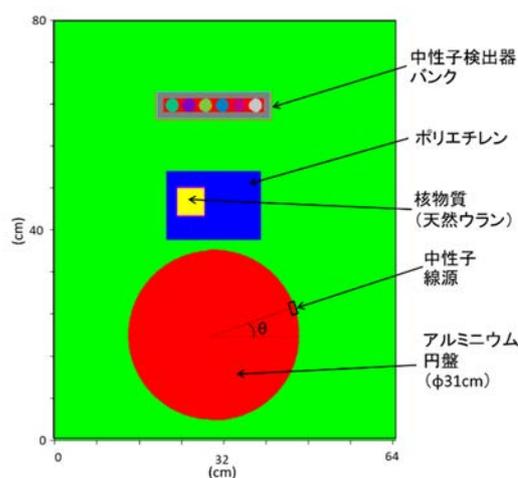


図 1 シミュレーション体系

シミュレーションには、モンテカルロコードである MVP と核データ JENDL-4.0 を使用した。中性子線源の回転速度が 750rpm と 3000rpm 時の中性子カウントのシミュレーション結果を図 2 に示す。横軸は線源の角度  $\theta$  (°) であり、縦軸は中性子カウントを示す。中性子線

源が最も対象物に近づく位置が  $90^\circ$  である。図 2 のグラフのピークが  $90^\circ$  以降に現れているのは、核物質が偏在している影響のためである。核物質が偏在している場合でも回転速度が速くなると、中性子カウントが右側にシフトし、時間分布形状が変化していることが分かる。つまり、ある基準位置（例えば  $90^\circ$  位置）前後の中性子カウントの積分値を比較することで核物質を検知できる。また、この変化量は回転速度と回転半径に依存することが分かっている。これらから、核物質の偏在に関わらず、回転照射法によって核物質を検知可能であることが示された。

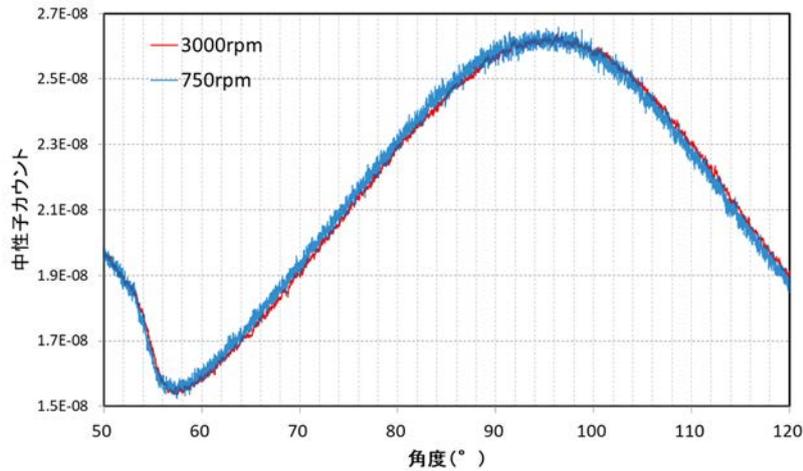


図 2 中性子カウントのシミュレーション結果

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) 米田政夫, 藤暢輔, 田辺鴻典, 低コストで可搬性を有する核物質用非破壊測定装置の開発, 日本原子力学会 2022 年春の年会, オンライン, 2022.

### (4) 今後の利用予定:

今後も回転照射法等の核物質の非破壊測定法に係る研究開発の一環として、大型計算機を用いた検出器や測定条件の検討等を実施する予定である。

### 5.3.16 下部ヘッドにおける溶融物挙動解析手法の開発

#### Development of Numerical Simulation Method for Molten Core Behavior in Lower Head

永武 拓

熱流動技術開発グループ

#### (1) 利用目的:

過酷事故時の溶融燃料挙動の把握は、原子力発電所の安全対策に重要である。本課題では、下部ヘッドにおける炉心溶融物の挙動を解析することを目的とし、粒子法を基にした数値解析手法の開発を実施する。

#### (2) 利用内容・結果:

解析手法の妥当性確認の一環として、スウェーデン王立工科大学で実施されて SIMECO 試験の一部を模擬した解析を実施した(図1)。本試験は下部ヘッドにおける溶融燃料の自然対流についての試験である。試験では、模擬流体として水を使用し、ヒーターにより内部の水を加熱し、外壁及び上部に配置された熱交換器を冷却することにより自然対流を起こし、その際の温度分布を測定している。図2にz方向(縦方向)の速度分布を示す。内部で上方向及び下方向の速度分布が見られ、これにより内部で自然対流が発生していることが確認できた。今後は計算を定常となるまで行い、試験結果との比較を行う予定である。

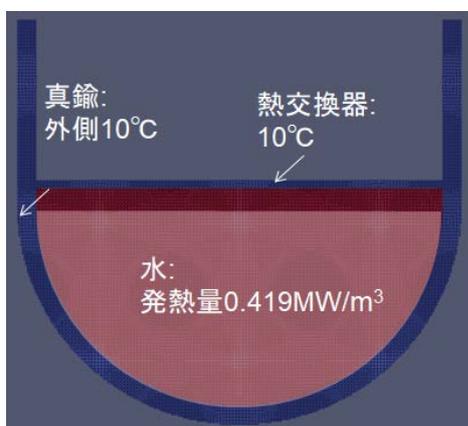


図1 計算体型

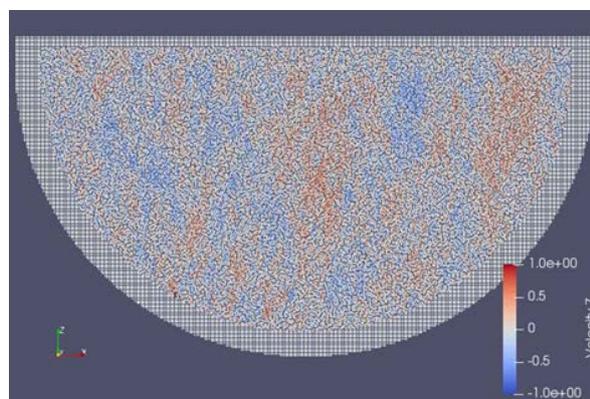


図2 縦方向速度分布(170秒後)

#### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

なし

#### (4) 今後の利用予定:

今後計算を続行し、定常状態となった際の温度分布を比較することにより、コードの問題点を抽出し、コード改良を実施する。その他、高速に計算を実施できるよう並列化を行う予定である。

### 5.3.17 過酷事故時及び定常時における炉心内非定常熱流動事象評価解析手法の開発

#### Development of Numerical Simulation Method for Thermal Fluid Flow Phenomena on Severe Accident Condition in Reactor Pressure Vessel

山下 晋、上澤 伸一郎、菅原 隆徳、堀口 直樹、永武 拓、鈴木 貴行  
熱流動技術開発グループ

#### (1) 利用目的:

福島第一原子力発電所事故後、これまで SA (Severe Accident) 解析コードで用いられてきた事故進展シナリオ (典型的シナリオ) とは異なる非典型的シナリオに基づき炉心溶融が起こったことが分かりつつあり、SA 解析コードで用いられている物理モデルをより精緻なものとした解析が重要視されている。定常時熱流動挙動においても、軽水炉安全性向上の観点から、例えば沸騰挙動や気泡流挙動など機構論的な予測が重要である。このような SA 時の SA 解析コードの事故進展及び定常時の原子炉内熱流動挙動に対する不確かさを機構論的に解析し、原子炉の安全性向上やアクシデントマネジメントに資することを目的として、数値流体力学 (CFD) に基づく多相多成分 3 次元詳細熱流動解析コード JUPITER の開発を行っている。

本課題では、発熱する燃料デブリを模擬するために必要な 2 エネルギーモデルの導入と、多孔質体モデルの Validation として空冷実験解析を行った。

なお、本課題は大口課題 1: 「過酷事故時及び定常時における炉心内非定常熱流動事象評価解析手法の開発」により実施されたものである。

#### (2) 利用内容・結果:

2021 年度の達成目標として、福島第一原子力発電所廃炉汚染水対策事業における燃料デブリ空冷解析手法の開発として JUPITER へのポーラスモデルの導入および実験解析による妥当性確認を行った。また、高速化作業として、JUPITER の hot spot であるレベルセット関数の OpenACC 化を実施し、1.27 倍の高速化を達成することができた。

##### ●ポーラスモデルの導入

燃料デブリの性質をより現実的に再現することを目的として、ダルシー則に基づく多孔質体モデルを導入した。温度場に関しては、局所体積平均理論に基づく 1 エネルギーモデル及び 2 エネルギーモデルを導入した。支配方程式は以下となる:

$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0,$	(1)
$\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \frac{u_i}{\varepsilon} \right) = -\frac{\varepsilon}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x_i} + \nu \frac{\partial^2 u_i}{\partial x_j \partial x_j} - \frac{\nu \varepsilon}{\kappa} u_i - \frac{C_E}{\sqrt{\kappa}} \varepsilon \sqrt{u_j u_j} u_i + \varepsilon g_i$	(2)
$\frac{\partial T}{\partial t} + \frac{u_j}{\sigma} \frac{\partial T}{\partial x_j} = \frac{1}{\sigma} \frac{1}{\rho_f c_f} \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ k_{\text{stag}} \frac{\partial T}{\partial x_j} \right] + \frac{(1-\varepsilon) Q}{\rho_f c_f}$	(3)
$\frac{\partial T_f}{\partial t} + \frac{1}{\varepsilon} u_j \frac{\partial T_f}{\partial x_j} = \frac{1}{\varepsilon} \frac{1}{\rho_f c_f} \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ \varepsilon^* k_f \frac{\partial T_f}{\partial x_j} \right] + \frac{1}{\varepsilon} \frac{a_{sf} h_f}{\rho_f c_f} (T_s - T_f)$	(4)
$\frac{\partial T_s}{\partial t} = \frac{1}{(1-\varepsilon) \rho_s c_s} \frac{\partial}{\partial x_j} \left[ (1-\varepsilon^*) k_s \frac{\partial T_s}{\partial x_j} \right] + \frac{\rho_f c_f}{(1-\varepsilon) \rho_s c_s} \frac{a_{sf} h_f}{\rho_f c_f} (T_f - T_s) + \frac{Q}{\rho_s c_s}$	

式(1), (2), (3), (4)はそれぞれ連続の式、ポーラスモデルを適用した Navier-Stokes 方程式、1 エネルギーモデルによる熱伝導方程式、2 エネルギーモデルによる熱伝導方程式である。これらの式を適切に離散化し JUPITER へ導入した。妥当性確認解析の一例として、熱流動技術開発グループで実施した自然対流実験体系と実験と解析の比較結果をそれぞれ図 1、2 に示す。



図 1 解析体系図。中央に SUS の球体をポーラス体として設置。その下の円形黒い部分が加熱面

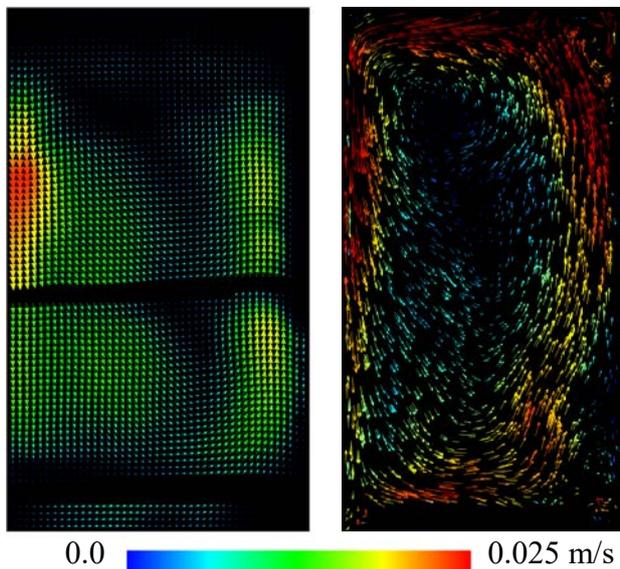


図 2 流速分布

図 2 左図は、PIV により可視化された速度ベクトル分布、右図は JUPITER により得られた速度ベクトル分布である。図より対流の様相並びに速度の大きさは概ね実験と一致していることを確認した。図 3 は図 1 で示した実験体系の中心軸上に設置した熱電対（赤点）と解析結果との比較図である。3 種類の実線は異なる熱伝導率モデルを表している。直列モデルが伝熱面

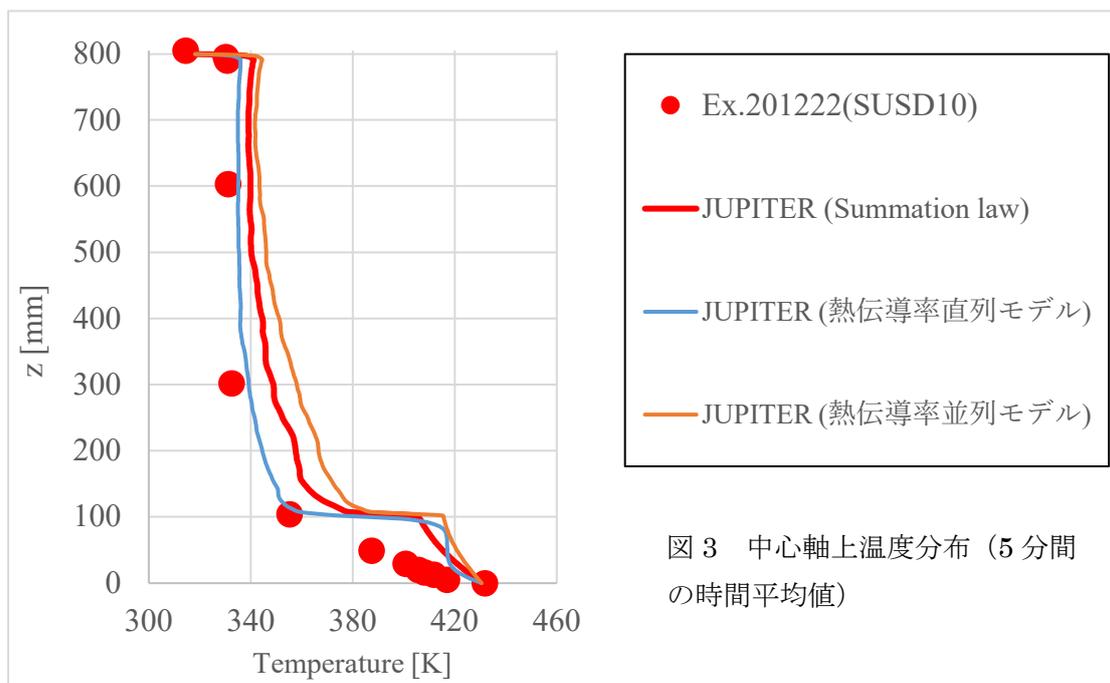


図 3 中心軸上温度分布（5 分間の時間平均値）

からの熱が伝わりにくいモデルであり、伝熱面近傍では温度勾配が最も急であるため各種モデルが適切に導入されていることが分かる。以上より、JUPITER にポーラスモデルが適切に導入されていることを確認した。これにより、新たな実験装置の策定に解析結果を用いることができ、効率的な研究実施が可能となった。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

査読付論文

- 1) S. Yamashita, and H. Yoshida, “Development of a numerical simulation method for oxidation under severe accident conditions using JUPITER”, Proc. The 19<sup>th</sup> International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH19) (Internet), (accepted).
- 2) A. Ono, S. Yamashita, T. Suzuki and H. Yoshida, “Numerical simulation of two-phase flow in fuel assemblies with a spacer grid using a mechanistically based method”, Proc. The 19<sup>th</sup> International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH19) (Internet), 16p, 2022.
- 3) T. Okawa, K. Kawai, K. Kubo, S. Yamashita and H. Yoshida, “Experimental and numerical investigations of splashing during single drop impact onto a liquid film”, Proc. The 19<sup>th</sup> International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH19) (Internet), (accepted).

講演発表及び口頭発表

- 4) 大川富雄, 川合克幸, 久保耕平, 北林草太, 山下晋, 吉田啓之, “液滴・液膜衝突における二次液滴発生条件に関する検討”, 混相流シンポジウム 2021 講演論文集, オンライン, 2021.
- 5) 小野綾子, 山下晋, 坂下弘人, 鈴木貴行, 吉田啓之, “大規模シミュレーションへ適用する簡易沸騰モデルの開発”, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, オンライン, 2021.

### (4) 今後の利用予定:

今年度は、多孔質体モデルの検証解析を行った。今後は、引き続き多孔質体モデルを用いた空冷解析を実施していくと共に、大規模二相流解析や SA 時の溶融挙動解析などを通じた妥当性確認を実施していく。

### 5.3.18 機構論的限界熱流束予測評価手法確立のための二相流挙動解析

#### Numerical Simulation on Two-phase Flow for Development of Prediction Method of Critical Heat Flux Based on a Mechanism

小野 綾子、吉田 啓之、鈴木 貴行、山下 晋  
熱流動技術開発グループ

##### (1) 利用目的:

熱流動技術開発グループでは、軽水炉安全性向上および燃料設計の評価手法の最適化をする上で、長年評価上の課題とされてきた沸騰における除熱限界である「限界熱流束 (CHF)」について、機構論的な予測手法の開発に向けた研究に取り組んでいる。また、事故時の過渡的事象における詳細な炉内出力分布の評価などを目的とした 3 次元詳細核熱カップリングコードの開発に着手している。両プロジェクトにおいては、3 次元詳細二相流解析を評価の中に組み込む必要がある。そのために、評価手法の中核をなす候補の一つである界面追跡法に基づく詳細熱流動解析コード JUPITER の二相流解析への発展・改良を行う必要がある。

本研究で発展させた JUPITER により、CHF 予測に不可欠な流路内の気泡サイズや速度の詳細情報を与えることにより、CHF の機構論に基づいた予測が可能となることが期待される。また、3 次元詳細核熱カップリングコードシステムの一つとして JUPITER を用いて時空間的に詳細な気液分布をあたえることができれば、事故時のような予測が難しい事象についても精緻な予測が可能となり、原子炉バーチャルシミュレータ構築への発展が期待される。本研究においては、数メートルの燃料集合体内の二相流挙動について VOF 法を用いたシミュレーションを行うことから、大規模並列計算を必要とするため、スーパーコンピュータを用いることとした。

##### (2) 利用内容・結果:

###### 1) 2021 年課題の達成目標

機構論的限界熱流束評価手法の中で、軽水炉の実機スペーサ付きバンドルと同等の体系でのマクロな沸騰二相流挙動の部分について、JUPITER を用いた評価方法を確立することである。これを実現させるために、2021 年度は JUPITER に対して大規模計算に適応する簡易沸騰モデルの試解析を実施すること、実機バンドル解析での沸騰解析、また、現状の JUPITER を用いた実機バンドル形状における詳細解析の妥当性検証の 3 項目を実施する。

###### 2) 2021 年度の研究成果とその重要性

JUPITER でも不可能であった、沸騰面表面からの沸騰現象の数値シミュレーションを実現するために、計算コストを大幅に削減できる沸騰モデル（「簡易沸騰モデル」）の開発を行った。沸騰開始の初期、すなわち一次気泡の発生から解析するためには、燃料集合体に対しては  $\mu\text{m}$  オーダーの解像度が必要となるが、計算コスト的に非現実的である。実際に界面追跡法を適用するため、一次気泡が複数回合体することで生成される  $\text{mm}$  オーダーの気泡（合体泡）を最小ユニットとして解析を行う革新的なモデルを着想した。これによって、シミュレーションにおける解析格子幅をサブミリ程度まで大きくすることができ、軽水炉燃料内の沸騰二相流シミュレーションが可能となる。本モデルでは、合体泡の大きさと個数を、気泡生長式、気泡運動方程

式、伝熱面での熱バランスを解くことで求める。次に、**JUPITER** の境界条件として、解析により求めた合体泡を計算体系内の沸騰面上に出現させることで、沸騰による発泡を模擬する。

開発した簡易沸騰モデルの妥当性を検証するために、伝熱面に沿って流れがある強制対流の沸騰実験と比較した。実験において計測された伝熱面近傍の気泡通過時間は、開発したモデルを用いたシミュレーションによって概ね再現される結果が得られており、簡易沸騰モデルと**JUPITER** により大規模沸騰二相流計算を実施できる見込みを得た。

これまで不可能であった軽水炉燃料内沸騰二相流に対する詳細二相流解析手法の適用を可能とするため、革新的な「簡易沸騰モデル」を開発した。この手法は界面追跡法に基づく沸騰表現の限界を大きく変えるものであり、機構論的な限界熱流束評価に加え、軽水炉工学・核工学ディビジョンで実施中の先進核熱連成シミュレーションシステムにおける熱流動評価にも適用される。

次に、気液界面での相変化を再現するために **JUPITER** へ温度回復法による相変化機能を実装し、実機バンドルにおける燃料ピン周りの沸騰解析を実施した（図 1）。単一ピンにおける相変化解析について試解析を実施し、十分な計算時間の経過が得られてはいないものの、計算が破綻することなく安定して進むことを確認しており、**JUPITER** を用いて詳細沸騰解析を実施する上での可能性を得た。

気泡が入らない水のみが流れる状態(単相流)に対して、国際協力を通じ **KAERI** から提供されたデータを用いて妥当性検証を行った後、軽水炉燃料内の二相流挙動に対する **JUPITER** の妥当性と適用性検討のため、燃料集合体の一部を模擬した縦に 4 本、横に 4 本の計 16 本の燃料棒を配置した 4×4 集合体体系内の二相流挙動について **JUPITER** による解析を実施した。シミュレーションで得られた各サブチャンネル内の気泡の通過時間について、サブチャンネル内の気泡通過時間をインピーダンス法により計測した既往研究のデータと比較することにより、定量的な妥当性検証を行った。界面追跡法に基づいた詳細熱流動解析手法を大規模燃料集合体体系の二相流動の再現に適用し、実験による既往知見を用いた定量的な妥当性検証を実施し、**JUPITER** の二相流解析への適用可能性を確認した。



図 1 実機燃料ピンからの沸騰解析

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

・国際会議における論文発表 (査読有)

- 1) A.Ono, S.Yamashita, H.Sakashita, T.Suzuki, H.Yoshida, “Development of the simplified boiling model applied to the large-scale detailed simulation”, Proc. of NUTHOS13, Taiwan, 2022 (発表済).
- 2) A.Ono, S.Yamashita, T.Suzuki, H.Yoshida, “Numerical simulation of two-phase flow in fuel assemblies with a spacer grid using a mechanistically based method”, Proc. of NURETH19, Belgium (Virtual conference), 2022.

・講演発表および口頭発表

- 3) 小野綾子, 山下晋, 坂下弘人, 鈴木貴行, 吉田啓之, “大規模シミュレーションへ適用する簡易沸騰モデルの開発”, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, オンライン, 2021.

**(4) 今後の利用予定:**

今後は、スーパーコンピュータを用いて簡易沸騰モデルの実験検証解析を行い、モデルの改良を進める他、コードへの本格実装に着手する。また、簡易沸騰モデルを燃料集合体体系への適用を進める。

### 5.3.19 飛散微粒子捕集挙動の予測評価手法の開発に関する研究

#### Development of Numerical Simulation Method of Aerosol Particle Capturing Behavior

上澤 伸一郎、吉田 啓之、鈴木 貴行、堀口 直樹  
熱流動技術開発グループ

##### (1) 利用目的:

東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故では、放射性エアロゾルが環境に放出され、帰宅困難地域が拡大するなど甚大な被害がもたらされた。事故以降、放射性エアロゾルの環境への放出を大幅に低減させる装置の改良・設計がさらに求められるようになった。その装置として、スプレーや液中へのガス吹き込みによる気中から液中へのエアロゾル粒子捕集装置があるが、それらの設計・改良などには、気液二相流の解析ならびにエアロゾルを構成する微粒子挙動の解析の実現が必要である。また近年では、廃炉作業における放射性飛散微粒子の閉じ込め管理技術として、燃料デブリ切削時に発生する気相中の微粒子の捕集技術の開発も進められていることから、粒子挙動の予測手法の重要性は高まっている。

本課題では、界面近傍の計算が重要であることから、課題担当者が所属する熱流動技術開発グループが独自に開発した、界面追跡法に基づく3次元二相流動場解析コードTPFITを使用するとともに、気液界面を介した微粒子挙動の予測手法をTPFITに追加することにより、エアロゾル粒子捕集挙動予測手法を開発する。本解析においては、マイクロからナノスケールの微粒子挙動を詳細に再現することが重要であるため、高解像度での流動場の再現が必須であり、大型計算機の利用が必要と考えられる。

本手法を開発することにより、多様な事故状況に応じた捕集装置の数値実験が可能になり、捕集性能の高性能化のための最適設計の提案が期待できる。また、実験では計測が困難な高速な流動挙動や微細な粒子挙動の可視化も可能になり、捕集挙動の現象把握も期待できる。加えて、本研究で開発する手法は、詳細な二相流解析手法をこれまで適用されていなかった微細な条件に拡張するものであるとともに、実験と解析を並行して実施することによる解析コードの検証など、解析コードの発展としての意義も大きい。

##### (2) 利用内容・結果:

###### ベンチュリスクラバの気液二相流挙動と粒子挙動の解析

原子力発電所施設内に設置されているベンチュリスクラバの性能は、実際に想定される条件のもとで、実機の同等の装置を用いて実施した定常試験により総合的に評価されている。しかしながら、内部の気液二相流挙動が複雑な故に、二相流挙動と粒子捕集挙動について十分に把握されていない。本研究では、それらの挙動を明らかにするため、本解析手法による数値解析を実施した。

図1上図は解析で得られたベンチュリスクラバの液相と粒子挙動の一例である。独自に実施したベンチュリスクラバ可視化実験結果[1]と同様に、液膜と液滴の形成を確認できた。ベンチュリスクラバ内の黒点は液相に捕集されていない粒子、赤点は捕集された粒子を示しており、

一部の粒子が内部で液相に捕集されていることがわかる。

図1下図は流れ方向の圧力分布を示す。上流側で実験との差異がみられたものの、下流では定量的に一致したことから、本解析結果が概ね妥当な解析結果と考えられる。また、水供給位置にて圧力が大きく変化しており、ベンチュリスクラバ入口出口の圧力差を生み出していることから、ベンチュリスクラバの圧力損失において水供給位置が支配的であることが本解析から明らかにされた。ベンチュリスクラバは入口出口の圧力差で駆動する装置であることから、本解析で得られた知見は今後のベンチュリスクラバの運用方法や性能向上において重要な知見といえる。

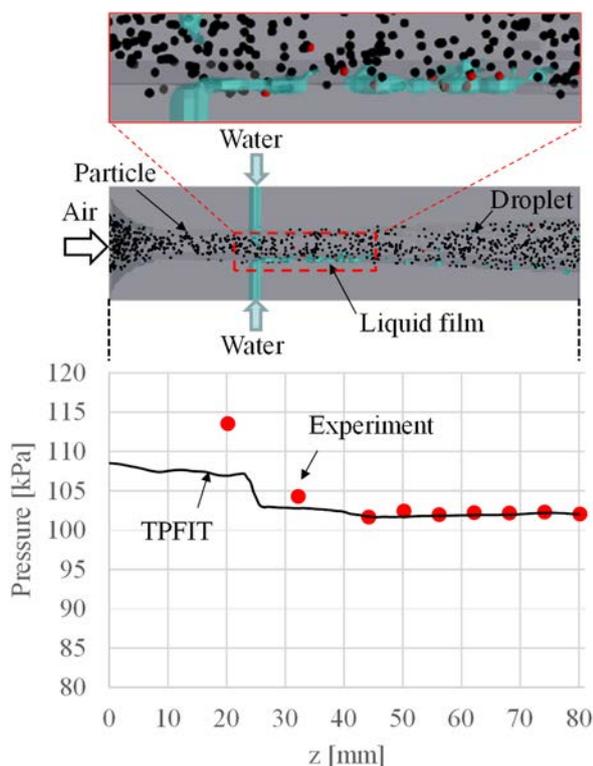


図1 ベンチュリスクラバ内の液相・粒子挙動（上図）と圧力分布（下図）

「気泡微細化現象を利用した飛散微粒子除去技術」における気液二相流挙動と粒子挙動の解析

「気泡微細化現象を利用した飛散微粒子除去技術」は、課題担当者が所属する熱流動技術開発グループが独自に開発したベンチュリスクラバを応用した技術である[2]。本技術の除去性能は従来の技術よりも高い性能であることはすでに実験にて明らかにされており、その性能が、気泡微細化現象による急激な気泡の変形や、微細気泡の発生による気液界面積増大による、より高効率な微粒子の液中への移行によるものであると考えられている。しかしながら、粒子が微細であることに加え、多数の微細気泡による可視化計測の困難さなどにより、装置内の粒子の捕集挙動を把握することはこれまで明らかにされてこなかった。本課題では、その粒子挙動を明らかにするため、本解析手法を用いて「気泡崩壊現象を利用した飛散微粒子除去技術」における気液二相流挙動と粒子挙動の解析を実施した。

図2は解析で得られたベンチュリ管内の気相と粒子挙動の一例である。実施した可視化実験結果と同様に、ベンチュリ管内で気泡が分裂し、微細化することが確認できた（上図）。下図は同時刻の粒子を表している。黒点は液相に捕集されていない粒子、赤点は捕集された粒子を示している。気相入口において、気相内に多数の粒子が存在しているが、下流では気泡の変形や分裂挙動に伴い、気相から液相へ粒子が移行していることがわかる。このように、微細化現象による気泡の変形や分裂が飛散微粒子の捕集性能に大きく寄与していることが、本解析にて明らかにされた。本解析で得られた知見は、技術の捕集性能に直結し、かつ実験で計測することが困難であったことから、今後の捕集性能を向上する上で非常に重要な知見といえる。また、

本技術の優位性を本解析で示すため、同様な流動条件のもと、縮小拡大のない直管との捕集性能の比較解析を実施したところ、実験と同様に本技術のほうが高い捕集性能を得られることを確認した。これは、本技術では直管に比べて気泡の分裂や変形がより多く起きており、微粒子の気相から液相への移行を促進したためである。この知見も、本解析により明らかにされた知見であり、今後の捕集性能向上において重要な知見といえる。

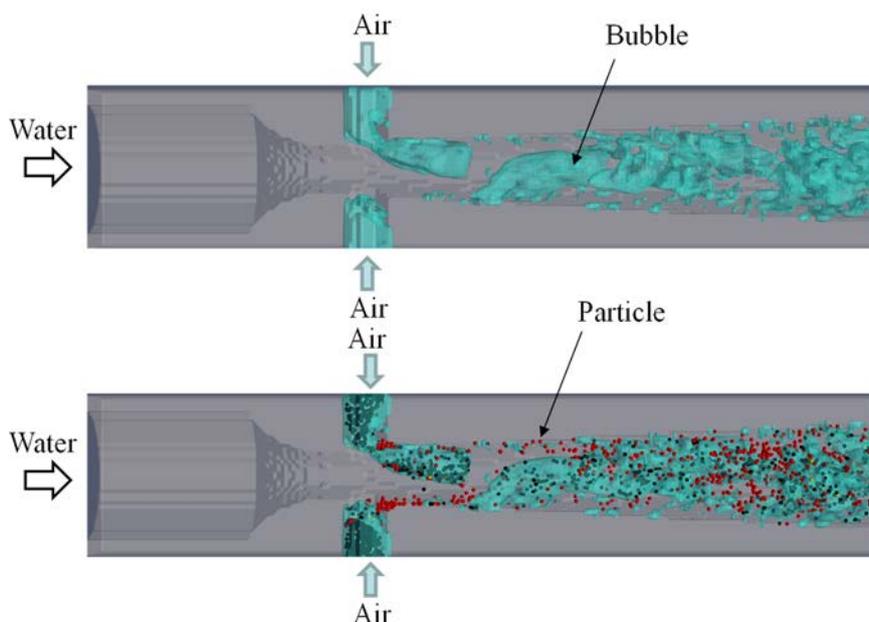


図2 ベンチュリ内の気相挙動（上図）と粒子挙動（下図）の一例

#### 参考文献

- [1] 上澤伸一郎ほか，ベンチュリ管内の水-蒸気二相流挙動に関する研究，日本機械学会論文集，84(859)，17-00392，2018.
- [2] 上澤伸一郎，気体の浄化方法及びそのための浄化装置，特願 2019-162820，2019/9/6.

#### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等)：

・講演発表及び口頭発表（査読無）

- 1) 上澤伸一郎，堀口直樹，柴田光彦，吉田啓之，ベンチュリスクラバにおける気液二相流挙動とエアロゾル粒子挙動の予測手法の開発，日本原子力学会 2022 年春の年会，2022.

#### (4) 今後の利用予定：

本解析手法を用いて、実験の効率化や装置設計の最適化に向けた解析を実施するとともに、フィルタ付ベント以外の応用先への展開を進める予定である。

### 5.3.20 マルチフィジックスシミュレーション用プラットフォームの評価のための気液二相流解析

#### Two-phase Flow Analysis for Evaluation of Multiphysics Simulation Platform

神谷 朋宏、片桐 直人  
熱流動技術開発グループ

#### (1) 利用目的:

核熱カップリング解析を実現するため、マルチフィジックス用プラットフォーム JAMPAN の開発が令和 3 年度より開始された。開発中の JAMPAN を評価するための気液二相流解析を行うことが HPE SGI8600 の利用目的である。本研究が目指している核熱連成シミュレーションでは、界面の動きを詳細に追った手法を用いて炉内の気液二相流を解析するため、計算に必要なメモリや時間が膨大になる。そのため、HPE SGI8600 の利用が不可欠であった。

今回は、4×4 バンドル体系において、燃料棒周りの複雑な気液二相流を JUPITER で解析し、その解析結果をもとに MVP を用いて燃料棒の発熱分布を求めた。なお、HPE SGI8600 は熱流動解析でのみ使用した。

#### (2) 利用内容・結果:

4×4 バンドル体系における、気液二相流のシミュレーションを実施した。図 1 は計算体系を示す。計算領域は  $x$ 、 $y$ 、 $z$  方向にそれぞれ 56、56、1500 mm とした。燃料棒は、直径が 10 mm で、13 mm の間隔で、縦に 4 本、横に 4 本の計 16 本が配置された。初期では領域が水で覆われている。下側境界には空気が流入するオリフィスを設けた。格子点数は、 $x$ 、 $y$ 、 $z$  方向にそれぞれ 56、56、1500 点とした。今回は、水の見かけの速度  $j_l$  を 0.1 m/s に固定し、空気の見かけ速度  $j_g$  を 0.021、0.036、0.094、0.16、0.31 m/s の計 5 ケースの計算を行った (表 1)。

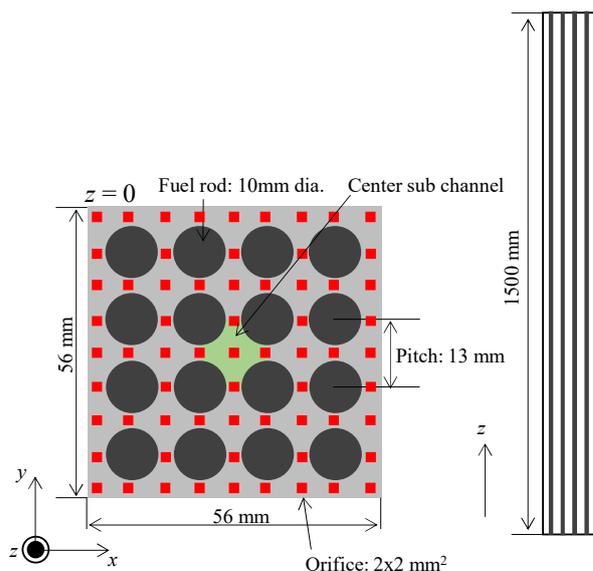


図 1 計算体系

表 1 計算条件

	$j_l$ [m/s]	$j_g$ [m/s]
Case 1	0.1	0.021
Case 2	0.1	0.036
Case 3	0.1	0.094
Case 4	0.1	0.16
Case 5	0.1	0.31

シミュレーション結果から空気の見かけ速度が増加すると、流路に占める空気の割合が大きくなり、流れ場の挙動が変化することが明らかとなった。図 2 は、 $t=8\text{ s}$  におけるシミュレーション結果であり、図 1 に示されるセンターサブチャンネルにおける、気液界面の可視結果とボイド率を示している。 $t=8\text{ s}$  は、気泡が計算領域の上側境界に到達してから数秒経過した時間であり、計算領域全体が気泡で覆われている。可視化結果から、Case1 では、センターサブチャンネルよりスケールの小さな独立した気泡が点在することがわかる。空気の見かけの速度が Case1 より大きな Case2-4 では、大きく歪んだ気泡が点在していることが確認される。空気の見かけ速度がさらに大きくなった Case5 では、独立した気泡はほとんどみられず、他のケースに比べ空気が占める割合が大きくなる。ボイド率変化から、Case1 では、ほとんどの領域においてボイド率が 0.2 を下回ることが確認できる。これは、流路のうちの大部分が水で覆われていることを示唆する。局所的にボイド率が大きくなっているところは、気泡が存在する位置である。このような、ボイド率の局所的な増加は Case2、3 においても確認され、Case1 と同様に独立した気泡の存在を示している。Case4 では、 $z=890\text{ mm}$  に見られるような、ボイド率が局所的に小さい位置がある。これは、流路の大部分に歪んだ気泡が存在し、その気泡の隙間を示していると考えられる。Case5 では、他のケースで確認されるような、目立ったピークは見られない。これは、独立した気泡がほとんど存在せず、加えて気泡の隙間が狭いからであると考えられる。

HPE SGI8600 を用いて得られた燃料棒周りの複雑な気液二相流のシミュレーション結果を考慮し、MVP を用いて燃料棒の発熱量分布を計算した。その結果、複雑な気液二相流の影響を受けた詳細な発熱量分布が得られた。

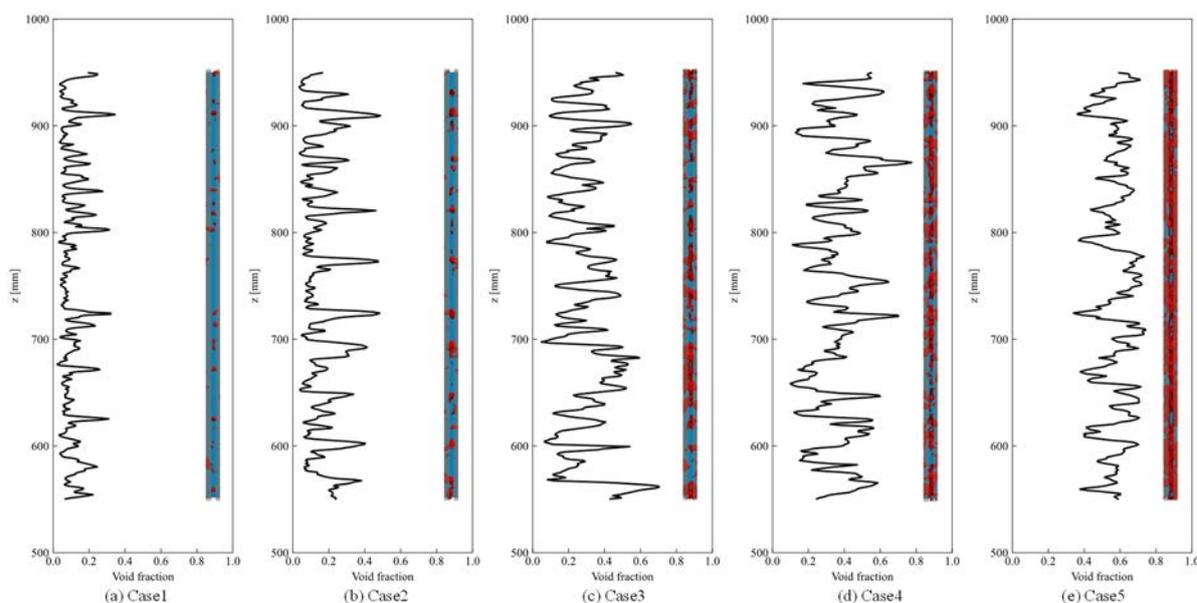


図 2 センターサブチャンネルにおける、気液界面の可視化結果とボイド率分布

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

国際会議における論文発表 (査読有)

- 1) T.Kamiya, A.Ono, K.Tada, H.Akie, Y.Nagaya, H.Yoshida, T.Kawanishi, “Development of JAEA advanced multi-physics analysis platform for nuclear systems”, 29th International Conference on Nuclear Engineering, online, 2022.

・講演発表および口頭発表

- 2) 神谷朋宏, 小野綾子, 多田健一, 秋江拓志, 長家康展, 吉田啓之, “先進的核熱連成シミュレーションシステムの開発(5) マルチフィジックスシミュレーション用プラットフォーム JAMPAN の開発”, 日本原子力学会 2022 年秋の大会, 茨城県, 2022.

**(4) 今後の利用予定:**

今後は、核熱カップリング解析の実施にあたり設定しなければならないパラメータである流入条件、格子解像度、連成を行う頻度の適切な値を求めることに HPE SGI8600 を利用する予定である。

### 5.3.21 MCCCE 法を用いたリチウム-7 濃縮技術のためのイオン挙動数値シミュレーション

#### Numerical Simulation of Ion Behavior for Li-7 Enrichment Technology Development by MCCCE Method

堀口 直樹、吉田 啓之  
熱流動技術開発グループ

#### (1) 利用目的:

我が国の軽水炉冷却材の水質管理において、安全保障や環境問題を考慮した Li-7 濃縮技術の開発が重要であり、これらの面で革新的なマルチチャンネル向流電気泳動 (MCCCE) 法による濃縮技術の実用化が期待されている。MCCCE 法を用いた濃縮装置 (以下、「実機」) を実用的な濃縮効率で運転するためには、流体中に分散する Li イオンの挙動を把握して制御することが重要である。原子力機構では、流体中のイオン挙動の数値的な把握を目的に、イオン挙動の数値シミュレーション手法を開発している。本手法は、原子力機構で開発する TPFIT-LPT をベースとしており、流動計算に加え、イオンを模擬した質点粒子 (以下、「模擬イオン」) の運動を計算する。イオン挙動の把握には模擬イオンのサンプル数を多くする必要であるため、流路内を時空間的に詳細に解像した流体計算を加えると膨大な計算資源が必要となる。そのため、HPE SGI8600 の利用が不可欠であった。令和 3 年度は、開発した手法の検証を目的とした数値シミュレーションを実施した。

なお本研究成果は、経済産業省令和 3 年度「原子力の安全性向上に資する技術開発事業」の一部として実施して得られたものです。

#### (2) 利用内容・結果:

検証に用いる流路は、マルチチャンネルの微細管流路を持つ実機の単チャンネルを模擬した。この微細管の寸法形状は  $0.7 \text{ mm} \times 0.7 \text{ mm}$  の矩形断面かつ流路長  $20 \text{ mm}$  とし、上流・下流にバッファを設けた。実機では、MCCCE 法の採用により、流路内に電場が形成されてイオン挙動が影響を受けることから、この電場の影響を模擬イオンへの付加速度として表現することとした。また、構成機器であるポンプによって脈動流が形成されることを実験的に確認していたことから、表 1 に示す微細管内の流動・付加速度条件を設定した。境界条件は、微細管上流のバッファ入口を流入境界として表 1 の値を断面積換算して与え、微細管下流のバッファ出口を流出境界とした。初期速度場は静止しているものとし、圧力・温度は常温常圧とした。

この数値シミュレーション結果を図 1 に示す。流路中心を通過する  $xz$  断面において、流体の流速ベクトルを  $2 \text{ mm}$  毎に青色で描画し、ベクトルの大きさは流速の大きさに比例させた。模擬イオンは、微細管流路中央 (バッファ入口から  $z$  方向  $35 \text{ mm}$  地点) の  $xy$  断面でランダムに 100 個初期配置した。模擬イオンの色は、流路中心付近を赤、壁面に向かうにつれ緑、青、紫と変化させた。

図 1 から、流速は流路中心側が高く、模擬イオンは流路中心側が最も下流に移動することを観察した。さらに流速の影響による移動が小さい壁近傍の模擬イオンは、付加速度による移動

量分だけ上流に移動したことから、流体中のイオン挙動および電場の影響を計算できた。また、脈動有の条件では、流動条件通りの脈動流が得られ、模擬イオンは脈動流に追従しながら流路中を拡がる様子を確認したことから、脈動流およびこの中でのイオン挙動を計算できた。これらの結果から、TPFIT-LPT によって脈動流及び電場下のイオン挙動の数値シミュレーションが可能であることを確認した。

今後は、本数値シミュレーション手法を活用し、感度解析することでイオン挙動に対する電場や脈動流の影響を把握していくことで、MCCCE 法を用いた濃縮装置の運転条件の最適化および濃縮技術の実用化に貢献する。

表 1 流動・付加速度条件

設定値 (微細管)	ケース 1 : 脈動無	ケース 2 : 脈動有
平均流速 [mm/s]	1	1
付加速度 [mm/s]	1	1
周波数 [Hz]	-	10
振幅 [mm/s]	-	1

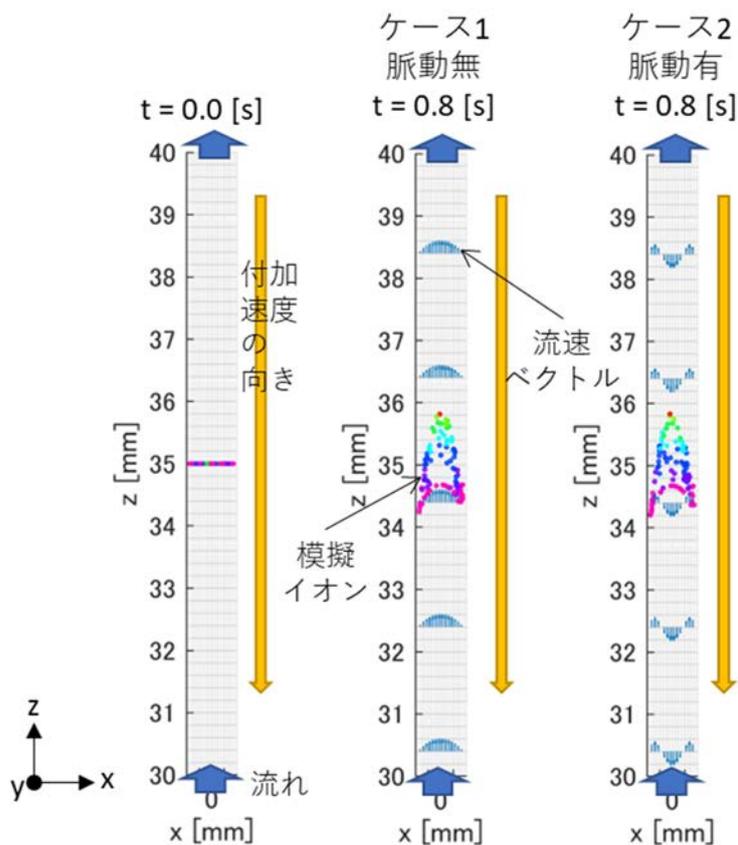


図 1 電場下におけるイオン挙動の数値シミュレーション結果

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

口頭発表

- 1) 堀口直樹, 吉田啓之, 北辻章浩, 福森麻衣, 竹村友紀, 長谷川信, 岸本忠史, “MCCCE 法を用いたリチウム-7 濃縮技術開発 (3)単チャンネル試験による脈動流の評価と数値シミュレーション”, 日本原子力学会 2022 年春の年会予稿集, オンライン, 2022, 3I11, <https://confit.atlas.jp/guide/event/aesj2022s/proceedings/list>, (accessed 2022-11-09).

**(4) 今後の利用予定:**

今後は、開発した本数値シミュレーション手法を活用し、感度解析によってイオン挙動に対する電場や脈動流の影響を把握していく。令和 3 年度と同様の計算負荷のケースを複数実施する必要があることから、今後も大型計算機を利用する予定である。

### 5.3.22 合金化と組織制御のための原子・電子シミュレーション

#### Atomic and Electronic Structure Calculations for Alloying and Defect Structures

都留 智仁、阿部 陽介、Ivan Lobzenko

照射材料工学研究グループ

##### (1) 利用目的:

強さ（強度）と伸び（延性）・粘り強さ（靱性）は構造材料の基本的な力学機能であり、その機能向上は構造材料における普遍的な課題である。その一方、強度と延性・靱性にはトレードオフの関係があり、両立が困難であることが知られている。構造材料には、強度が高いだけでなく一定の変形を許容することが求められ、このような要請から金属材料が広く用いられてきた。金属材料は、弾性変形に加えて塑性変形という特有の変形が生じ、これがセラミックスやガラスに比べて大きな伸びを生じる要因となる。一方で、加工をしていない純金属の強度は非常に低いため、構造材料に用いる際には強度を高めるための様々な工夫がなされてきた。

材料の力学特性に対する機能向上は、青銅器時代にまで遡り今日まで様々な方法で行われてきたが、それらは経験的な知見に基づくものである。様々な材料の機能向上に関するアプローチを総括すると（1）組織制御と（2）合金設計に分けることができ、実用の構造材料では、これらの組み合わせることで機能の向上が図られる。最新の加工技術や添加元素の制御によって強度と延性を兼ね備えた材料の開発が行われている一方、それらは依然として経験的な知見に基づいて行われている。新たな機能を持つ材料を戦略的かつ効率的に創成するために、欠陥組織や合金化の影響を非経験的に評価・予測する方法の開発が期待されている。そこで本研究では、電子構造に基づいて構造材料の力学機能を設計することが可能な、将来の社会基盤となる革新的な材料開発スキームを確立することを目的とする。

##### (2) 利用内容・結果:

###### ① HCP 合金の変形に対する主要合金元素の影響の評価

六方晶構造を有する材料は、結晶構造の異方性によって塑性変形の異方性が存在し、合金化によってその特性が大きく変化をすることが知られている。純チタンでは一般に柱面転位を主すべり系として塑性変形するが、広く用いられる Al や V を添加した Ti64 合金の疲労破壊は  $\alpha$  相の底面で生じる。純 Ti と異なり底面すべりが生じていることが実験観察によって確認されているが、その要因は知られていない。本研究では、HCP 構造を持つチタンを対象に、合金元素の転位運動への影響を詳細に検討した。まず、純 Ti の異なる転位芯構造とそれらが運動するときの Peierls ポテンシャルのエネルギーランドスケープをまとめたものを図 1 に示す。Ti では、錐面に広がった転位構造が最も安定である一方、転位が運動するときには柱面に広がる必要があり、これが Ti で観察される転位の jerky モーションの要因であることがわかる。さらに、底

面に転位が拡張するには大きなエネルギー障壁が存在するため、純 Ti ではほとんど底面すべりが観察されないことが説明される。一方、転位のすべりの Peierls ポテンシャルは柱面と底面で大きな違いがなく、いずれも小さい。そのため、底面に拡張しさえすればすべりは容易であると考えられる。このような、転位芯構造に対する、Al や V の合金元素の影響を評価した結果、転位芯構造の安定性が変化し、相対的に底面すべりを安定化させる効果があることを明らかにした。

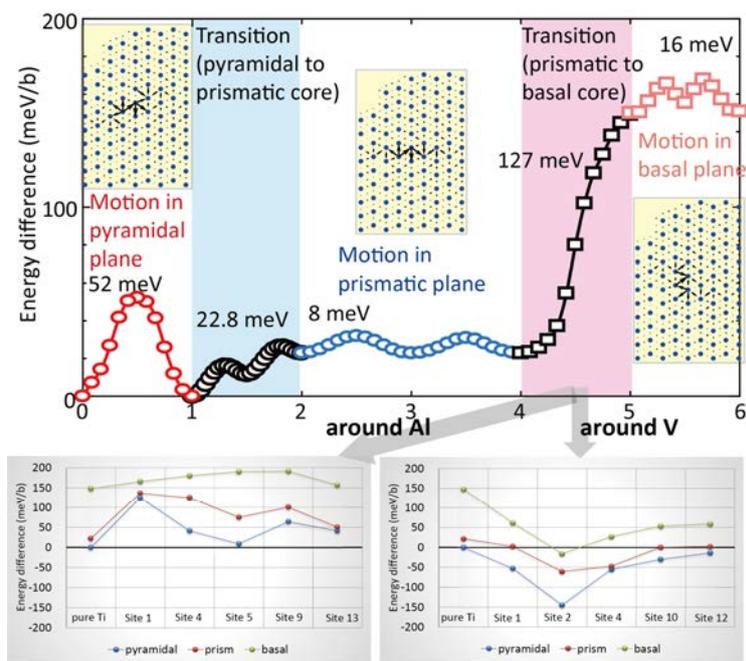


図 1 HCP-Ti 合金の転位運動のエネルギー

② FCC-ハイエントロピー合金の優れた強度・延性発現のメカニズムの提案

ハイエントロピー合金 (HEA) は、その優れた力学特性で注目を集めてきた。我々の最近の実験研究で、Si を添加した面心立方構造 (FCC) を持つ HEA が、強度と延性の両方を改善する大きな可能性を秘めていることを示唆した。本研究では、第一原理計算に基づくモンテカルロシミュレーションと構造因子分析を用いて、マクロな力学特性に対する Si 添加の影響を調査した。まず、Si の添加により、局所的な格子歪み増加することが分かり、共同上昇が格子摩擦の上昇によって生じることを説明した。

磁性は考慮しない非磁性の場合で積層欠陥 (SF) エネルギーを評価した結果を図 2 に示しているが、Si 添加により SF エネルギーを上昇させる効果があることがわかった (図 2 (a))。さらに、SRO を形成した場合の SF エネルギーを図 2 (b) に示す。興味深いことに、CoCrFeNiMn では SRO を形成しても SF エネルギーがあまり変化しないのに対して、Si 添加したものでは、SRO を形成した場合に SF エネルギーが上昇することがわかった。また、エラーバーの広がりから、SF

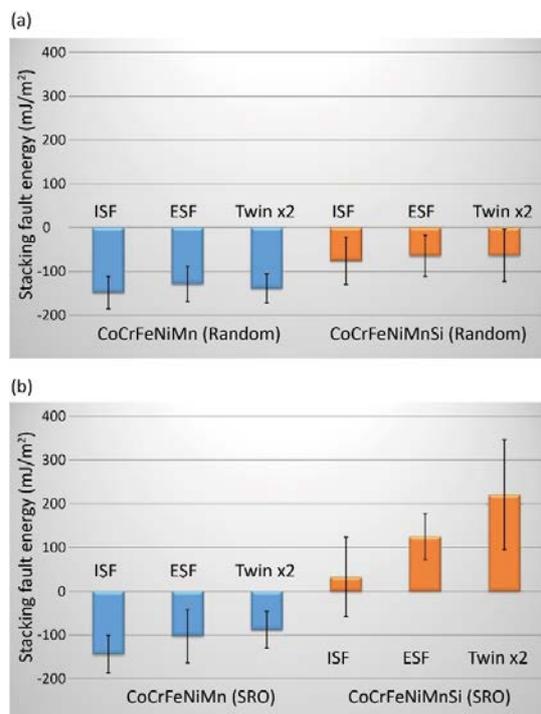


図 2 HEA の積層欠陥エネルギー

エネルギーの値が大きくばらつく特徴を示すことが確認される。すなわち、Si 添加の HEA では、SF エネルギーは場所によって大きく変動する。これは、低 SFE および高 SFE 領域がマトリックスに不均質に分布している固溶体状態が形成されることを示唆している。Si 添加の FCC-HEA のこの特有の機能により、Si 添加合金では超微細な双晶が形成され、強度と延性の両方を向上させる主要な要因となることを明らかにした。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

#### ● 投稿論文 (査読あり) (出版済 7 報)

- 1) T. Tsuru, M. Itakura, M. Yamaguchi, C. Watanabe, H. Miura, “Dislocation core structure and motion in pure titanium and titanium alloys: A first-principles study”, *Comput. Mater. Sci.* 203 (2022) pp.111081. 出版済
- 2) Y. Shiihara, R. Kanazawa, D. Matsunaka, I. Lobzenko, T. Tsuru, M. Kohyama, H. Mori, “Artificial neural network molecular mechanics of iron grain boundaries”, *Scripta Mater.* 207 (2022) pp.114268. 出版済
- 3) T. Tsuru, I. Lobzenko, D. Wei, “Synergetic effect of Si addition on mechanical properties in face-centered-cubic high entropy alloys: A first-principles study”, *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.* 30 (2022) pp. 024003. 出版済

#### ● 書籍, 解説記事 (出版済 3 報)

- 4) (書籍) I. Tanaka, et al. “The Plaston Concept: Plastic Deformation in Structural Materials”, Springer, 2022. (共同執筆) 出版済 他 2 件

#### ● 基調・招待講演 (筆頭 2 件)

- 5) (招待講演) 都留智仁, 「ハイエントロピー合金の特異な力学特性に関する計算科学研究」, 第 70 期 塑性工学/マルチスケール材料力学 合同部門委員会, 2021 年 10 月 13 日, オンライン.
- 6) (基調講演) 都留智仁, 他, 「第一原理計算によるハイエントロピー合金の諸特性の評価」, 日本金属学会 2021 年秋期 (第 169 回) 講演大会, 2021 年 9 月 14-17 日, オンライン.

#### ● 国際・国内会議 (11 件 (筆頭 3、連名 8))

- 7) T. Tsuru, K. Shimizu, M. Yamaguchi, M. Itakura, K. Ebihara, A. Bendo, K. Matsuda, H. Toda, Hydrogen-accelerated cleavage in high strength aluminium alloys, MRM2021 Materials Research Meeting, Dec.13-17, 2021, Yokohama, Japan. 他 10 件

#### ● その他

- 8) (成果普及情報誌) 都留智仁, 「4-6 高強度アルミニウム合金の自発的破壊現象の解明」, 原子力機構の研究開発成果 2021-22, 2021, p.56. 出版済

### (4) 今後の利用予定:

高濃度合金の計算では、統計的に十分なデータを取得する必要があり、大規模モデルを用いた転位芯構造解析のための第一原理計算を実施する。また、多元系の高精度な分子動力学史ミューションのために、機械学習ポテンシャルを構築するためのデータを取得する。

### 5.3.23 アルミニウム合金中のナノクラスタと転位との相互作用の解明

#### Atomistic Modeling of Interaction between Nanocluster and Dislocations

都留 智仁、芹澤 愛、栗原 健輔

照射材料工学研究グループ、芝浦工業大学

#### (1) 利用目的:

アルミニウム (Al) に Mg、Si を添加した Al-Mg-Si 系合金は強度および耐食性に優れており、焼き付け塗装時に強度が向上するベークハード性を持つことから、自動車用ボディーパネル材に用いられている。この合金では、焼入れ後室温で保持してから人工時効する二段時効を行うと、焼付塗装時に十分な時効硬化が得られない二段時効の負の効果が起こることが知られている。一方、焼入れ後 100°C 程度で保持してから人工時効を行うと、二段時効の負の効果は表れなくなる。こうした予備時効の温度条件による時効硬化量の違いは、時効初期に形成するナノクラスタの違いに起因している。しかし、その違いについては不明な点も多く、Al-Mg-Si 系合金の複雑な時効挙動を理解するためには各条件で形成するナノクラスタの相違点を明らかにすることが不可欠である。

本研究では、原子力機構の大型計算機を用いて Al-Mg-Si 系合金に形成される  $\beta''$  相と母相との界面について解析を行うことで、機械学習ポテンシャル作成へ向けた第一原理計算結果のデータセットを取得するとともに、いまだ明確でない  $\beta''$ /Al 界面の安定な界面構造および界面構造が界面の安定性に与える影響に界面の安定性および安定な界面構造について検討を行った。

#### (2) 利用内容・結果:

##### 1. 解析方法

Al  $\langle 310 \rangle$  方向を  $x$  軸、Al  $\langle 230 \rangle$  方向を  $y$  軸、Al  $\langle 001 \rangle$  方向を  $z$  軸として Al、 $\beta''$  相および  $\beta''$ /Al 界面モデルについて、単位構造の境界あるいは界面を持つ Interface モデル、および単位構造の終端あるいは界面で分割した Separation モデルの 2 種類のモデルを作成し、第一原理計算を用いて全エネルギーを算出した。この際、界面を含むモデルについては、 $\beta''$  相および Al の単位構造の終端同士で界面を形成したフラット界面モデルと、 $\beta''$  相を形成する原子クラスタの構造を界面でも維持しているクラスタ界面モデルの 2 種類を作成した。 $z$ - $x$  面における  $\beta''$ /Al 界面について、フラット界面モデルとクラスタ界面モデルを図 1 に示す。Interface モデルと Separation モデルのエネルギー差を断面積で割ったものを Separation energy と定義して第一原理計算により算出し、面

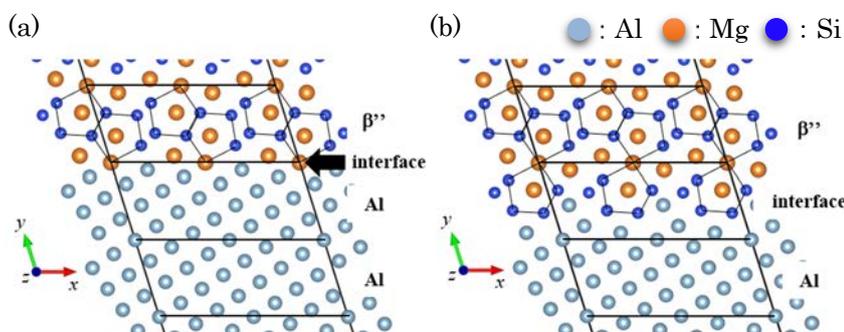


図 1 (a)フラット界面モデルおよび(b)クラスタ界面モデル

間における原子結合の強さを評価した。比較のため、Al 面心立方格子の最密面である Al (111) 面についても Separation energy を算出した。Al における Separation energy は、同じ表面を 2 面作った際のエネルギー差となるため、表面エネルギーの 2 倍となる。

第一原理計算コードには Vienna Ab initio Simulation Package (VASP) を用い、全ての計算についてカットオフエネルギーは 400 eV とした。k 点サンプリングには Monkhorst-Pack 法を用い、 $\beta''$  相の単位構造は  $15 \times 7 \times 24$  メッシュ分割し、その他のモデルはスーパーセルの大きさに応じて、単位構造を基準にメッシュ分割した。

## 2. 解析結果

Al、 $\beta''$  相、 $\beta''$ /Al 界面、および Al (111) 面における Separation energy を図 2 に示す。なお、z-x 面のクラスタ界面については、Al の配置によって 2 パターンの Separation モデルを作成した。クラスタ界面における  $\beta''$ /Al 界面の Separation energy は Al における値よりも小さいものの、 $\beta''$  相内部に匹敵する値をとっており、クラスタ構造を保持した界面を形成することで、 $\beta''$ /Al 界面は安定化されると考えられる。ただし、Separation energy は分割後の表面の安定性にも依存するため、解析方法はさらに検討する必要がある。

各界面における Separation energy を比較すると、x-y 面における  $\beta''$ /Al 界面の Separation energy が最も小さいことから、 $\beta''$  相と Al の {100} 面との間に形成される界面は不安定な界面であると考えられる。これは、この面が非整合界面であることに起因していると推察される。 $\beta''$  相は [100] 方向に伸びた針状の析出物であり、 $\beta''$  相と Al の {100} 面との間に形成される界面は針の先端にあたる。他の界面と比較して x-y 面における界面の安定性が低いことから、 $\beta''$  相はなるべくこの界面が拡大しないように成長していった結果、{100} 面が両端となる針状の析出物として成長していくことが考えられる。したがって、 $\beta''$  相と Al の {100} 面との間に形成される界面の不安定性は  $\beta''$  相の形状にも影響を与えていることが示唆された。

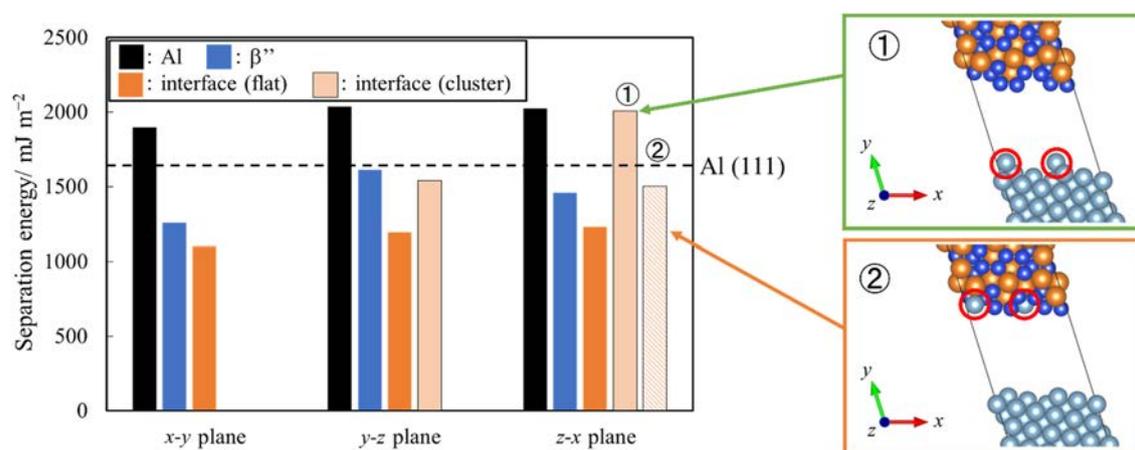


図 2 Al、 $\beta''$  相、 $\beta''$ /Al 界面および Al (111) 面における Separation energy

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

< 学術論文 >

- 1) 栗原健輔, Ivan LOBZENKO, 都留智仁, 芹澤愛: Al-Mg-Si 系合金におけるナノクラスタの形成に対する溶質原子と空孔の局所的結合の影響, 軽金属, 第 72 巻, 第 2 号, (2022), pp.47-53.

< 学会発表 >

- 2) ○栗原健輔, 芹澤愛: Al-Mg-Si 系合金に形成されるナノクラスタの安定性に対する局所的結合の影響, 軽金属学会関東支部第 6 回若手研究者講演発表会, オンライン開催, 2021 年 11 月. (口頭発表)
- 3) ○栗原健輔, 芹澤愛: Al-Mg-Si 合金における  $\beta''$  相 / 母相の整合および非整合界面構造の解析, 軽金属学会第 140 回春期大会, オンライン開催, 2021 年 11 月. (ポスター発表)
- 4) ○栗原健輔, 芹澤愛: Al-Mg-Si 系合金中に形成する 2 種類のナノクラスタの安定構造, 軽金属学会第 140 回春期大会, オンライン開催, 2021 年 5 月. (ポスター発表)

**(4) 今後の利用予定:**

来年度以降、これまで Al-Mg-Si 系合金における様々な固溶状態、および析出物について第一原理計算を行うことで収集してきたデータセットを用いて機械学習ポテンシャルを構築し、構築したポテンシャルを用いて転位とナノクラスタの相互作用の解析を行うことを計画している。

## 5.3.24 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

燃料高温科学研究グループ

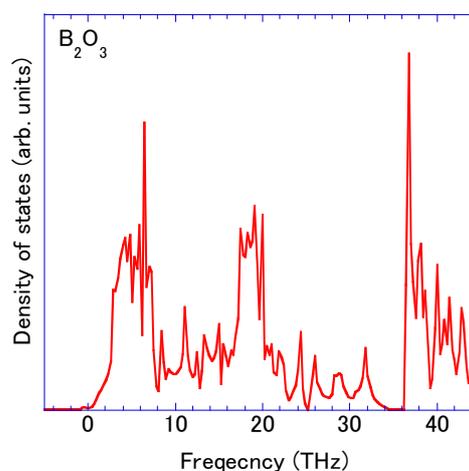
## (1) 利用目的:

過酷事故 (SA) におけるソースターム評価の精度向上、及び、福島第一原発に関する放射性物質分布の基礎的知見やデータ提供のためには、核分裂生成物 (FP) の化学挙動解明は重要である。この一環として BWR 制御材であるホウ素 (B) と FP を含む系の評価が行われている。特に、B の放出移行挙動として、熔融崩落した制御ブレード中で安定な B 化合物が残存していることや冷却系条件において B が多量に凝縮していることや格納容器のエアロゾルに B が含有していることが、分かった。これらのことから、B は炉内高温領域で保持されていると考えられる。したがって、B の放出移行挙動を明らかにするためには、高温領域から低温領域への移行時の B の化学挙動を評価することが必要である。これまで、FP や B 等の化学挙動に関して、化学反応式や反応速度定数等の評価や実験的・解析的アプローチによるデータベース化・モデル化が行われ、シビアアクシデント (SA) 解析コードの改良へ反映されてきた。これらの知見から、B は Cs と化学反応を生じて Cs-B-O 系化合物 ( $\text{CsB}_5\text{O}_8$  等) が形成されることで、Cs の化学挙動に影響を与えることが示唆されているが、Cs-B-O 系化合物の知見は僅少である。そこで、Cs-B-O 系化合物について非経験的な理論計算により熱力学特性を計算する。具体的には、DFT 計算と格子振動計算を用いて、Cs-B-O 系化合物として  $\text{CsB}_5\text{O}_8$  を計算する。なお、参照物質として  $\text{B}_2\text{O}_3$  を計算した。これらの格子振動計算に多くの計算資源が必要であるため、スパコンを利用した。

## (2) 利用内容・結果:

DFT 計算として、VASP コードを使用した。また、DFT 計算による電子状態に基づく格子振動計算は、Phonopy プログラムを使用した。格子振動計算に関して今回は直接法を用い、特に  $\text{CsB}_5\text{O}_8$  では計算負荷の低減のため  $\Gamma$  点のみで計算した。

まず、参照物質の  $\text{B}_2\text{O}_3$  についての計算結果として、図 1 に  $\text{B}_2\text{O}_3$  の振動状態密度を示す。図 1 より振動状態密度の虚数成分がほとんどないことから、 $\text{B}_2\text{O}_3$  は最安定構造で適切に計算できたことを確認した。さらに、 $\text{B}_2\text{O}_3$  について擬調和振動子近似により熱力学特性の計算し、図 2 に比熱を示し図 3 にエントロピーを示す。図 2 と図 3 より比熱とエントロピーは既報の測定結果が再現され、計

図 1  $\text{B}_2\text{O}_3$  の振動状態密度

算手法の妥当性が確認された。

これに基づいて、 $\text{CsB}_5\text{O}_8$ の熱力学特性として、図4に $\text{CsB}_5\text{O}_8$ 系と基準物質である $\text{Cs}_2\text{O}$ と $\text{B}_2\text{O}_3$ からなる系の自由エネルギーの変化、図5には $\text{CsB}_5\text{O}_8$ の線膨張率を示す。 $\text{Cs}_2\text{O}$ と $\text{B}_2\text{O}_3$ の融点は700-800 Kであることから、 $\text{CsB}_5\text{O}_8$ は固相で安定と考えられる。また、図5より、 $\text{CsB}_5\text{O}_8$ の線膨張率は低温での特徴的な挙動が予想される。さらに、図6に $\text{CsB}_5\text{O}_8$ の定圧モル比熱と定積モル比熱の計算結果を示す。図6より、定圧モル比熱が定積モル比熱より大きい計算結果となっており、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できた。さらに、図7に $\text{CsB}_5\text{O}_8$ の定圧モル比熱の計算結果と $\text{Cs}_2\text{O}$ と $\text{B}_2\text{O}_3$ を用いたNeumann-Kopp則による $\text{CsB}_5\text{O}_8$ の定圧モル比熱の推定値を示す。計算結果はNeumann-Kopp則(NKR)から少しずれている。したがって、計算精度の検討と測定データによる検証が必要である。

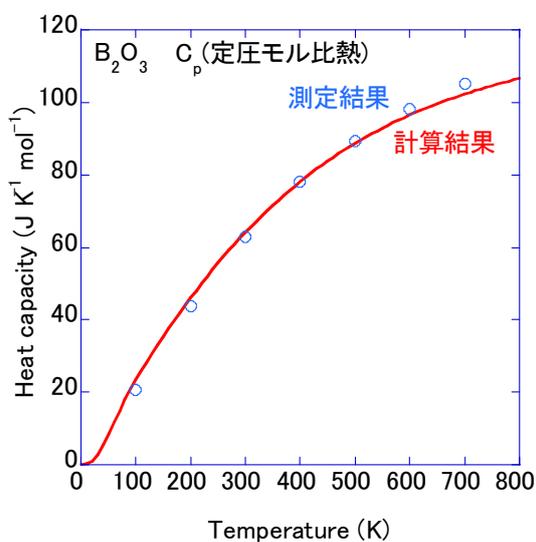


図2  $\text{B}_2\text{O}_3$ の定圧モル比熱

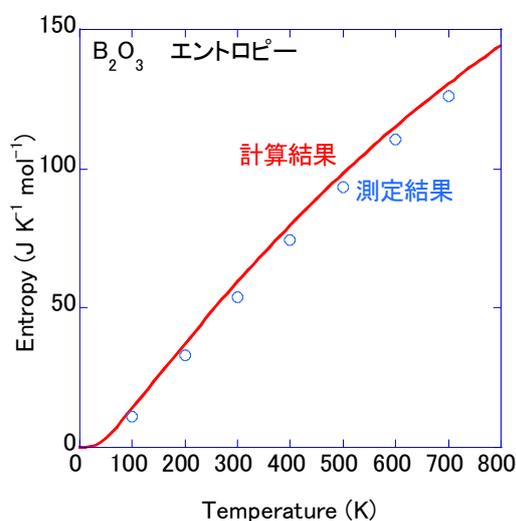


図3  $\text{B}_2\text{O}_3$ のエントロピー

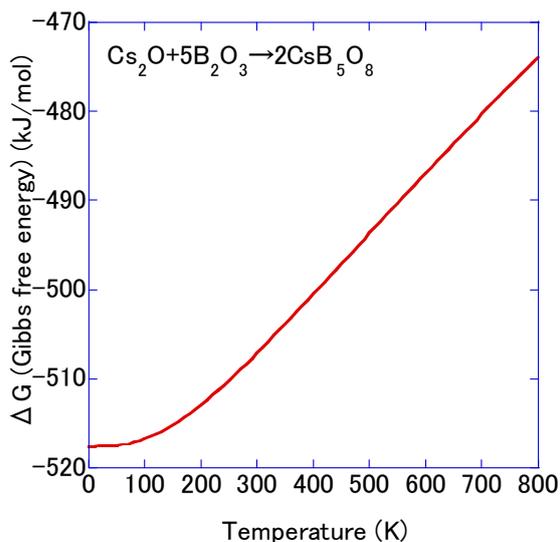


図4  $\text{CsB}_5\text{O}_8$ と基準物質のエネルギー差

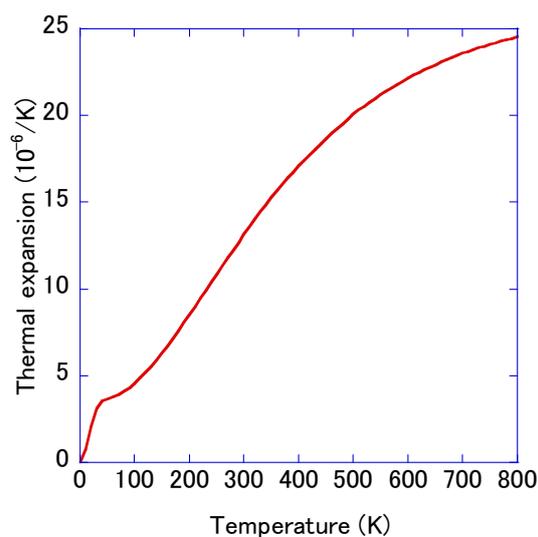


図5  $\text{CsB}_5\text{O}_8$ の線膨張率

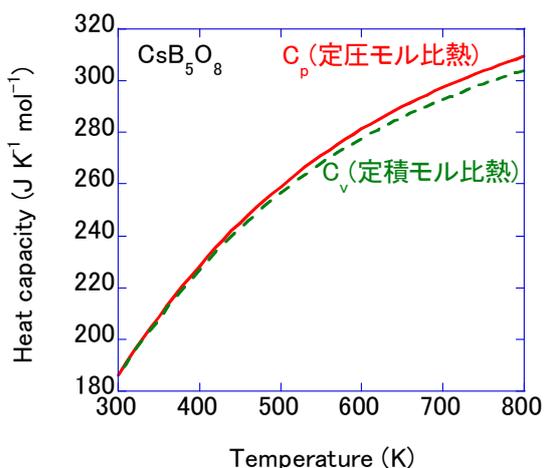


図6 CsB<sub>5</sub>O<sub>8</sub>の定圧モル比熱と定積モル比熱の計算結果

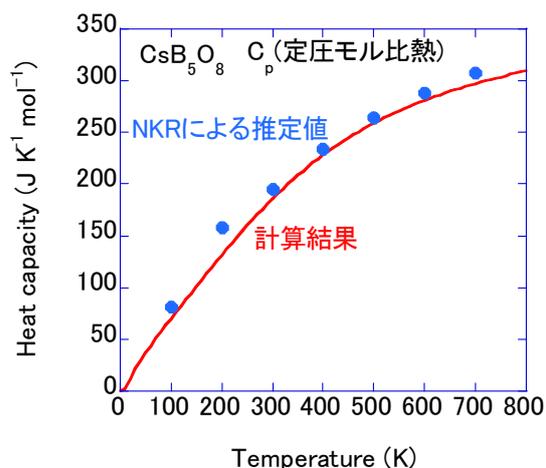


図7 CsB<sub>5</sub>O<sub>8</sub>の定圧モル比熱の計算結果とNeumann-Kopp 則による推定値

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) C. Suzuki et al., “Phase stability of Cs-Si-O and Cs-Si-Fe-O compounds on stainless steel”, J. Nucl. Sci. Technol. 59:3, pp.345-356, 2021, DOI:10.1080/00223131.2021.1971576.
- 2) 鈴木知史, “DFT 計算による Cs-B-O 系化合物の熱力学特性評価”, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, オンライン, 2021.

**(4) 今後の利用予定:**

今回は計算負荷の大きい直接法を用いた。特に、CsB<sub>5</sub>O<sub>8</sub>では1個の系で46回の計算が必要であるため、Γ点のみとして精度を低くして計算した。今後は、計算負荷の小さいDFPT法(1個の系で1回の計算)により精度を上げた計算を実施する予定である。

一方、計算の妥当性の確認のためB<sub>2</sub>O<sub>3</sub>以外の系についても検討を行う。また、Cs-B-O系化合物の計算結果の測定データとの比較により、計算の妥当性を検討する。これに基づき、測定データのないCs-B-O系化合物の計算によるデータ拡充に寄与する。

## 5.3.25 高濃度合金の人工ニューラル ネットワークポテンシャル開発

## Development of Artificial Neural Network Potential for High-concentration Alloys

Ivan Lobzenko, Tomohito Tsuru

照射材料工学研究グループ

## (1) 利用目的:

Calculations on atomic level are inevitable in studies of mechanical properties of materials. One of the main methods of simulations is classical molecular dynamics (MD). With current state of computational hard- and soft-ware it allows long time calculations in big systems (up to millions of atoms). MD can be used to shed light on peculiar mechanical behavior of high-entropy alloys (HEA). In Fig. 1 main basic effects are shown, which make mechanical behavior of HEA complicated and promising at the same time. Lattice distortions and essential randomness of HEA demand large structures in simulations, which makes it difficult to use first-principles calculations. On the other hand, classical MD lacks accuracy because of the fact that widely used potentials built by embedded-atom method (EAM-potentials) are designed to represent only one main element in an alloy. In HEA none of the constituent elements could be seen as main one, and that is why new potentials should be built for them. Current work is devoted to exactly that task – building robust potentials for MoNbTa and ZrNbTa medium-entropy alloys, and for MoNbTaVW and ZrNbTaTiHf high-entropy alloys. High accuracy and robustness of the potentials is ensured by application of new method of potential acquisition. That method is based on machine learning of artificial neural networks (that is why such potentials are referred to as machine learning potentials, MLP) on a big dataset of structural energies calculated in quantum-mechanical approximation.

## References

1. A. Amiri, R. Shahbazian-Yassar // *J. Mater. Chem. A*, 9, pp.782-823 (2021).



Fig. 1 Essential characteristics of high-entropy alloys [1]

## (2) 利用内容・結果:

In Table 1 it shown the dataset which was calculated using VASP package on SGI8600 supercomputer. The content of a data set is of course one of the main factors to affect the quality of a potential built. It is particularly important in the case of machine-learning potentials because of the fact that no physics is included in the mathematical structure of energy function. The main part consists of structures with short-range order (SRO). The Monte Carlo (MC) calculations were used to invoke SRO in initially random SQS structures. After 2000 MC steps done by DFT with low k-points density and without optimization of atomic positions, some structures were chosen for relaxation and better k-density calculations to be added to the data set. It is important that not only structures accepted during MC were chosen, but also those whose energies are higher, so that potential energy surface was covered in those regions too. All structures in the dataset went through both lattice vectors' transformations and atomic positions' distortions. We applied transformations and distortions up to 10% of lattice parameter to ensure the robustness of potentials.

Using training of artificial neural networks, we have successfully built two potentials for two target alloys. It is worth mentioning that there are no existing potentials ready for MD calculations for ZrNbTa alloy, which makes current work unique and important for further studies of high-entropy alloys.

Table 1. Structure of the data sets used for training MLPs for MoNbTa and ZrNbTa alloys. (X) stands for Mo or Zr atomic species. The magnitudes of lattice vectors' transformation and positions' distortions are expressed in percents of the cell parameter  $a$ .

Atomic species	Lattice	Lattice vectors' transformation magnitude	Positions' distortion magnitude	N data set entries
(X) Nb Ta	BCC, FCC, HCP, diamond, simple cubic	-5%, 0, +5%	5%	600
(X)NbTa →single	BCC	-3%, +3%	5%	1620
(X)NbTa	BCC with SRO	-5%, -3%, 0, +3%, 5%	5%, 10%	10780
(X)NbTa	BCC 110 slip system	-5%, +5%	5%	2000
(X)NbTa	BCC with (112) twin boundary	-5%, +5%	5%	2000
<b>Total</b>				<b>18200</b>

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

● 投稿論文 (査読あり) (出版済 4 報)

- 1) T. Tsuru, I. Lobzenko, D. Wei, “Synergetic effect of Si addition on mechanical properties in face-centered-cubic high entropy alloys: a first-principles study”, *Model. Simul. Mater. Sci. Eng.*, 30, 2022, 024003.
- 2) Y. Shiihara, R. Kanazawa, D. Matsunaka, I. Lobzenko, T. Tsuru, M. Kohyama, H. Mori, “Artificial neural network molecular mechanics of iron grain boundaries”, *Scripta Mater.*, 207, 2022, 114268.
- 3) D. Wei, L. Wang, Y. Zhang, W. Gong, T. Tsuru, I. Lobzenko, et al., “Metalloid substitution elevates simultaneously the strength and ductility of face-centered-cubic high-entropy alloys”, *Acta Mater.*, 225, 2022, 117571.
- 4) 栗原健輔, 芹澤愛, I. Lobzenko, 都留智仁, 「Al-Mg-Si 系合金におけるナノクラスタの形成に対する溶質原子と空孔の局所的結合の影響」, *軽金属*, 72(2), pp.47-53, 2022.

**(4) 今後の利用予定:**

現在、中程度のエントロピー合金の転位形状とダイナミクスのシミュレーションに新しいポテンシャルが使用されています。また、(高い計算リソースを必要とする) 五元合金のデータセットが計算中です。

## 5.4 先端基礎研究センター Advanced Science Research Center

### 5.4.1 超伝導体と強磁性体の接合における量子輸送現象

#### Quantum Transport in Superconductor-ferromagnet Junctions

森 道康

スピン-エネルギー変換材料科学研究グループ

##### (1) 利用目的:

超伝導量子干渉素子 (SQUID) (図 1 挿入図) は、マイクロ波を照射すると階段状の電流-電圧 (I-V) 特性を示す (図 1)。これは、整数  $n$ 、マイクロ波周波数  $f$ 、プランク定数  $h$ 、電子の素電荷  $e$  を持つ電圧  $V = n (h/2e) f$  に現れ、シャピロステップと呼ばれる。マイクロ波周波数と基本物理定数は極めて高精度に決まっているため、電圧は  $10^{-9}$  程度の精度で定義することが可能となる。このため、SQUID のような超伝導素子は電圧標準として利用され、電子機器の信頼性を高めることに役立っている。

2 つの超伝導体を薄い絶縁体または金属で分離したものをジョセフソン接合と呼ぶ。ジョセフソン接合に流れる最大電流は、磁束の印加によって正弦波状に変化する。強磁性体で分離されたジョセフソン接合では、正弦波電流-磁束関係が従来のジョセフソン接合 (0-ジョセフソン接合) よりも半波長分位相がずれている。これは「 $\pi$ -ジョセフソン接合」と呼ばれ、量子コンピュータ実現の鍵となる固体量子ビット ( $\pi$ -qubit) として研究されている。超伝導体を用いた量子ビットは通常、外部磁場を必要とするが、 $\pi$ -qubit は外部磁場を必要としない。このことは、量子ビットを環境ノイズから切り離す上で大きな利点となる。このような、超伝導と強磁性体を組み合わせた SQUID ( $\pi$ -SQUID) の I-V 特性を定量的に評価することが目的である。

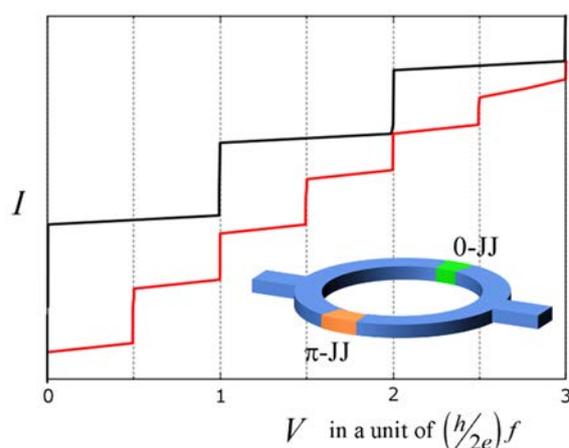


図 1 SQUID (黒) と後述する  $\pi$ -SQUID (赤) の I-V 特性。挿入図に  $\pi$ -SQUID の模式図を示す。青色領域は超伝導体。緑色の領域は通常のジョセフソン接合、オレンジ色の領域は口述する  $\pi$ -ジョセフソン接合を示す。

(2) 利用内容・結果:

図1の挿入図に示すように、0-ジョセフソン接合と $\pi$ -ジョセフソン接合からなる $\pi$ -SQUIDにおけるシャピロステップのI-V特性を計算した。I-V特性は、2つの並列回路を持つ抵抗分交流接合(RSJ)モデルを用いて、図1のように計算することができる。 $\pi$ -SQUIDでは、マイクロ波周波数の整数倍の電圧(図1黒線)に加え、半整数倍の電圧でもシャピロステップが現れる(図1赤線)。この現象は、0-ジョセフソン接合と $\pi$ -ジョセフソン接合が、ひとつのSQUIDで結び付けられていることに起因する。重要なパラメータは、2つのジョセフソン接合の非対称性( $\alpha$ )である。 $\alpha=1$ のとき、0-ジョセフソン接合と $\pi$ -ジョセフソン接合は等価だと設定した。図2に示すように、 $\alpha=1$ のとき半整数シャピロステップは明瞭になり、 $\alpha$ が1より小さくなるに連れて、半整数シャピロステップが不明瞭になることが分かった。また、半整数シャピロステップと $\pi$ -qubitが表裏一体であることを見いだした。図3に、 $\pi$ -SQUIDを特徴づけるポテンシャルエネルギー $U(x)$ の $\alpha$ 依存性を示した。ここで、 $x$ は外部パラメータで決まる変数。 $\alpha=1$ のとき、ポテンシャルは二つの等価な谷構造を持つことが見て取れる。qubitは、この谷構造を利用する。 $\alpha$ を小さくしていくにつれて、この谷構造は不明瞭になる。二つの谷を隔てる山が低くなると、qubitとして使えなくなってしまう。半整数シャピロステップの出現は、 $\pi$ -SQUIDが $\pi$ -qubitとして動作することを意味する。半整数シャピロステップは、0-ジョセフソン接合と $\pi$ -ジョセフソン接合を等価にすることで最適化される。 $\pi$ -SQUIDの2つのジョセフソン接合を等価にすることで、 $\pi$ -qubitを実現可能となることを示した。

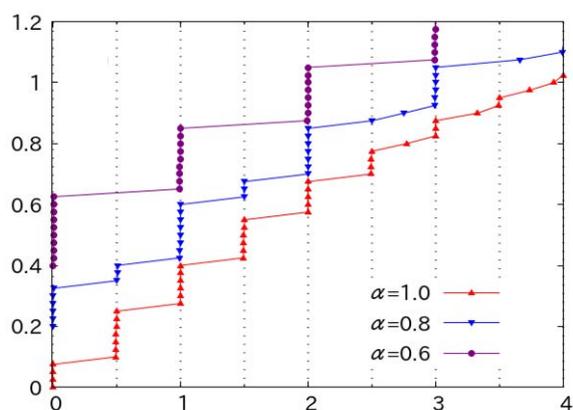


図2  $\pi$ -SQUIDのI-V特性。0-ジョセフソン接合と $\pi$ -ジョセフソン接合の非対称性を表すパラメータ $\alpha$ の依存性を示した。 $\alpha=1$ が対称な場合。

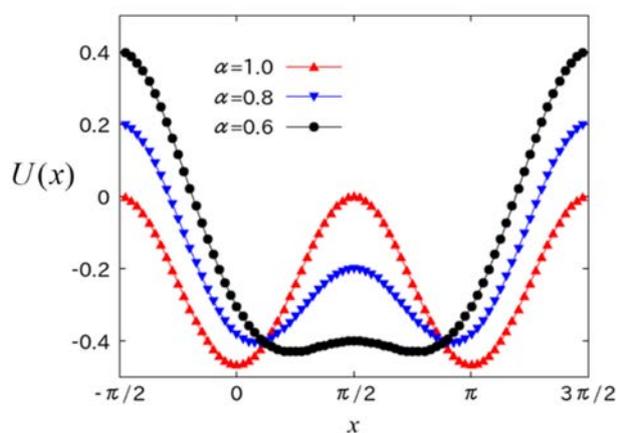


図3  $\pi$ -SQUIDを特徴づけるポテンシャルエネルギーの $\alpha$ 依存性。ここで、 $x$ は外部パラメータで決まる変数。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) M. Mori and S. Maekawa, “Half-integer Shapiro-steps in superconducting qubit with a  $\pi$ -Josephson junction”, *Appl. Phys. Exp.* 14, 103001, 2021, <https://doi.org/10.35848/1882-0786/ac211d>
- 2) Y. Yao, R. Cai, S.H. Yang, W. Xing, Y. Ma, M. Mori, Y. Ji, S. Maekawa, X.C. Xie, and W. Han, “Half-integer Shapiro Steps in Strong Ferromagnetic Josephson junctions”, *Phys. Rev. B* 104, 104414, 2021, <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.104.104414>
- 3) S. Ideta, S. Johnston, T. Yoshida, K. Tanaka, M. Mori, H. Anzai, A. Ino, M. Arita, H. Namatame, M. Taniguchi, S. Ishida, K. Takashima, K. M. Kojima, T. P. Devereaux, S. Uchida, A. Fujimori, “Hybridization of Bogoliubov-quasiparticles between adjacent  $\text{CuO}_2$  layers in the triple-layer cuprate  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10+\delta}$  studied by ARPES”, *Phys. Rev. Lett.* 127, 217004, 2021, <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.127.217004>
- 4) A. Okutani, H. Onishi, S. Kimura, T. Takeuchi, T. Kida, M. Mori, A. Miyake, M. Tokunaga, K. Kindo, and M. Hagiwara, “Spin Excitations of the  $S=1/2$  One-dimensional Ising-like Antiferromagnet  $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$  in Transverse Magnetic Fields”, *J. Phys. Soc. Jpn.* 90, 044704, 2021, <https://doi.org/10.7566/JPSJ.90.044704>
- 5) 森道康, “高分解能分光が可能にするスピントロニクス研究の展望”(招待講演), 第 35 回日本放射光学会年会, Zoom 2022 年 1 月 8 日.
- 6) A. Okutani, H. Onishi, S. Kimura, T. Takeuchi, T. Kida, M. Mori, A. Miyake, M. Tokunaga, K. Kindo, and M. Hagiwara, “Magnetic Excitations of the Spin-1/2 Quasi-One-Dimensional Ising-Like Antiferromagnet  $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$  in a Transverse Magnetic Field”, The 22nd International Society of Magnetic Resonance Conference, the 9th Asia-Pacific NMR Symposium, the 60th Annual Meeting of the Nuclear Magnetic Resonance Society of Japan (2021), and the 60th Annual Meeting of the Society of Electron Spin Science and Technology, On-line, August 22-27, 2021.

**(4) 今後の利用予定:**

鉄アルミ合金の熱電特性を解明するために、第一原理計算を行い、それを基に熱電係数などの輸送特性を明らかにする。また、非磁性ガーネットの第一原理計算を行い、フォノン分散を計算して、熱ホール効果の実証実験に役立てる。

## 5.4.2 低次元強相関係の基底状態および励起ダイナミクスの研究

### Research for Ground State and Excitation Dynamics in Low-dimensional Strongly Correlated Systems

大西 弘明、杉本 貴則、森 道康  
スピン-エネルギー変換材料科学研究グループ

#### (1) 利用目的:

低次元強相関係では、強い量子揺らぎのため平均場理論などの伝統的な手法を単純に適用できず、数値的手法による取り扱いが有効な手段として広く適用されている。本研究で使用する行列積状態変分法・密度行列繰り込み群法は、低次元強相関係の基底状態や低エネルギー励起状態、励起スペクトル、静的および動的相関関数、熱力学量など様々な物理量を計算する上で強力な手法である。特に、磁気励起スペクトルの運動量・エネルギー依存性を精密に計算でき、J-PARC や運転再開した JRR-3 の中性子散乱実験で観測される磁気励起スペクトルの実験結果と直接比較して、スピン物性の発現機構を有効多体模型に基づいて微視的に議論することができる。

しかし、幅広い運動量・エネルギー領域でのフルスペクトルを計算するには、運動量とエネルギーについてのスキャンのため、ひとつのパラメータセットに対して数千程度（システムサイズ×エネルギーメッシュ数）の独立した計算を実行することになり、膨大な計算量を要することがネックとなっている。また、高い計算精度を保つには繰り込みで残す状態数を大きくしなければならず、大容量メモリと長時間実行が必要となる。本研究では、大型計算機を活用した大規模並列計算により、こうした数値計算上の困難を克服する。

#### (2) 利用内容・結果:

最近接強磁性  $J_1$  と次近接反強磁性  $J_2$  の交換相互作用が競合するフラストレート強磁性鎖において、二つのマグノンが束縛対を形成する四極子（スピン液晶）、さらに八極子、十六極子と一連の多極子液体が実現することが理論的に示され、注目を集めている。多極子状態では、多マグノン励起がギャップレスでエネルギー損失無しに生じるため、多数のマグノンが束縛された「マグノンクラスター」の流れがスピン伝導・熱伝導現象をもたらすと考えられる。本研究では、多極子状態のマグノンクラスターが関与する輸送現象に焦点を当てて、励起スペクトル、輸送係数、波束ダイナミクスなどの多面的な解析により、磁気特性と輸送特性の関係を解き明かす。

図 1 は四極子状態でのスピン、四極子、八極子の励起スペクトルの計算結果で、(運動量  $q$ , エネルギー  $\omega$ ) 空間でのスペクトル強度分布のカラープロットである。反強四極子準長距離秩序を反映して、四極子励起スペクトルが  $q=\pi$  にギャップレス構造を持つものに対して、スピン励起、八極子励起はギャップ構造を持つ。一方、図 2 に示すように、八極子状態では、反強八極子準長距離秩序を反映して、八極子励起スペクトルが  $q=\pi$  にギャップレス構造を持ち、スピン励起、四極子励起はギャップ構造を持つ。また、バンド幅が狭まり、分散構造がより平坦になっていることが分かる。さらに、スピン流相関関数を解析した。四極子状態から八極子状態に

変化すると、まとまって流れる角運動量が 2 から 3 に増えるため、スピン伝導が増大すると素朴に期待されるが、それに反して、転移点をまたいでスピン流相関関数が急激に減少することを見出した。この振る舞いは、励起スペクトルの分散構造の傾きから決定される速度の違いとして理解できる。論文出版済[1]。

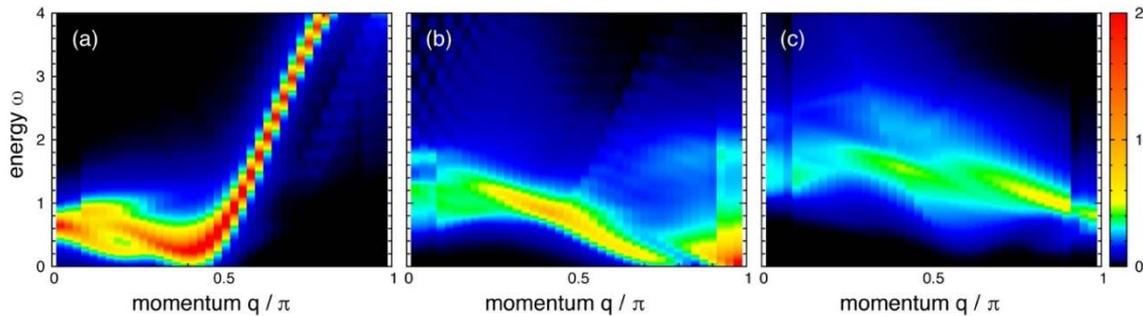


図 1 フラストレート強磁性鎖の四極子状態での(a)スピン, (b)四極子, (c)八極子の励起スペクトル.  $N=40$  サイト,  $J_1/J_2=-2$  の計算結果

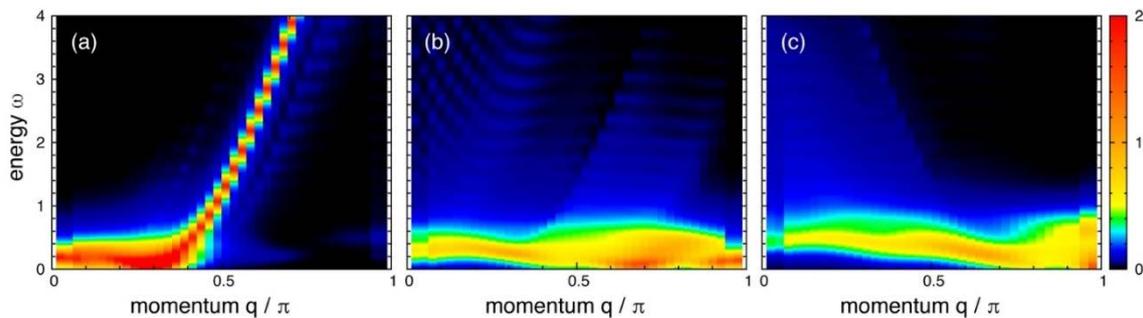


図 2 フラストレート強磁性鎖の八極子状態での(a)スピン, (b)四極子, (c)八極子の励起スペクトル.  $N=40$  サイト,  $J_1/J_2=-3$  の計算結果

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等) :

#### 学術論文

- 1) H. Onishi, “Excitation and transport of bound magnon clusters in frustrated ferromagnetic chain”, J. Phys.: Conf. Ser. Vol.2207, p.012045, 2022.
- 2) S. Kimura, H. Onishi, A. Okutani, M. Akaki, Y. Narumi, M. Hagiwara, K. Okunishi, K. Kindo, Z. He, T. Taniyama, and M. Itoh, “Optical selection rules of the magnetic excitation in the  $S=1/2$  one-dimensional Ising-like antiferromagnet  $\text{BaCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ ”, Phys. Rev. B Vol.105, Issue 1, p.014417, 2022.
- 3) T. Sugimoto and T. Tohyama, “Discord effects of inter-cluster interactions on a cluster-based Haldane state in a triangular spin tube”, J. Phys.: Conf. Ser. Vol.2164, p.012029, 2022.
- 4) S. Ideta, S. Johnston, T. Yoshida, K. Tanaka, M. Mori, H. Anzai, A. Ino, M. Arita, H. Namatame, M. Taniguchi, S. Ishida, K. Takashima, K. M. Kojima, T. P. Devereaux, S. Uchida, and A. Fujimori, “Hybridization of Bogoliubov-quasiparticles between adjacent  $\text{CuO}_2$  layers in the triple-layer cuprate  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{CuO}_{10+\delta}$  studied by ARPES”, Phys.

Rev. Lett. Vol.127, Issue 21, p.217004, 2021.

- 5) R. Ghadimi, T. Sugimoto, K. Tanaka, and T. Tohyama, “Topological superconductivity in quasicrystals”, Phys. Rev. B Vol.104, Issue 14, p.144511, 2021.
- 6) Y. Yao, R. Cai, S. H. Yang, W. Xing, Y. Ma, M. Mori, Y. Ji, S. Maekawa, X. C. Xie, and W. Han, “Half-integer Shapiro steps in strong ferromagnetic Josephson junctions”, Phys. Rev. B Vol.104, Issue 10, p.104414, 2021.
- 7) M. Mori and S. Maekawa, “Half-integer Shapiro-steps in superconducting qubit with a pi-Josephson junction”, Appl. Phys. Exp. Vol.14, p.103001, 2021.
- 8) K. Wada, T. Sugimoto, and T. Tohyama, “Coexistence of strong and weak Majorana zero modes in an anisotropic XY spin chain with second-neighbor interactions”, Phys. Rev. B Vol.104, Issue 7, p.075119, 2021.

#### 国際会議

- 9) A. Okutani, H. Onishi, S. Kimura, T. Takeuchi, T. Kida, M. Mori, A. Miyake, M. Tokunaga, K. Kindo, and M. Hagiwara, “Magnetic Excitations of the Spin-1/2 Quasi-One-Dimensional Ising-Like Antiferromagnet BaCo<sub>2</sub>V<sub>2</sub>O<sub>8</sub> in a Transverse Magnetic Field”, 22nd International Society of Magnetic Resonance Conference, 9th Asia-Pacific NMR Symposium, 60th Annual Meeting of the Nuclear Magnetic Resonance Society of Japan, and 60th Annual Meeting of the Society of Electron Spin Science and Technology, Osaka, Japan, 2021, online.
- 10) H. Onishi, “Excitation and transport of bound magnon clusters in frustrated ferromagnetic chain”, XXXII IUPAP Conference on Computational Physics, Coventry, UK, 2021, online.
- 11) R. Ghadimi, T. Sugimoto, and T. Tohyama, “Higher-dimensional Hofstadter butterfly in quasicrystalline topological insulators with an aperiodic magnetic field”, Materials Research Meeting 2021, Yokohama, Japan, 2021, hybrid.
- 12) T. Sugimoto, “Critical Behaviors in a Classical-Spin Fibonacci Millefeuille Model”, Meeting of International Research Network “Open space between aperiodic order and physics & chemistry of materials”, Carry le Rouet, France, 2021, hybrid.
- 13) T. Sugimoto and T. Tohyama, “Fractionalization of Spin in Cluster-Based Haldane State of Triangular Spin Tube”, Strongly Correlated Electron Systems 2021, 2021, online.

#### (4) 今後の利用予定:

フラストレート強磁性鎖のスピンネマティック状態を特徴付けるスピン四極子の励起を観測できる有力な実験手法として共鳴非弾性 X 線散乱 (RIXS) に着目した解析を行う。

遍歴強磁性の厳密な例として知られる長岡強磁性を有限ホール密度に拡張した拡張長岡強磁性の機構を研究してきた。この拡張長岡強磁性における強磁性相関が有限温度でどのように発達するのかを調べる。

### 5.4.3 SrTiO<sub>3</sub> 中の格子間水素に束縛された Ti<sup>3+</sup>スモールポーラロンの安定性

#### Stability of Ti<sup>3+</sup> Small Polaron Bound to Interstitial Hydrogen in SrTiO<sub>3</sub>

伊藤 孝

ナノスケール構造機能材料科学研究グループ

##### (1) 利用目的:

水素はユビキタス元素と呼ばれ、環境中のあらゆる所に様々な形態で存在する。水素は水や有機物の構成元素として生体に欠かせないのはもちろんのこと、無機物質中にも不純物として存在し得る。特に無機半導体や絶縁体といった電子材料においては、ppm レベルの微量な水素であってもそれらの電気活性を大きく変える可能性がある。このため、電子材料中における不純物水素の振る舞いを深く理解することは、それらを利用する上で大変重要になる。しかし、研究対象である水素が極めて微量であることから、その電子状態を直接観測することは通常困難である。我々はこのために正電荷を持つミュオン ( $\mu^+$ ) を水素の放射性擬似同位体として用いた研究を行っている。電子材料中に打ち込まれたミュオンは結晶格子内に止まって点欠陥を形成する(以下、これを Mu 欠陥と呼ぶ)。この Mu 欠陥の構造および電子状態は孤立水素が作る点欠陥と実質的に等価であり、ミュオンスピン回転緩和 ( $\mu^+$ SR) 法を用いることによりこれらを詳しく調べることができる。ただし、 $\mu^+$ SR 法により得られる情報は断片的であり、Mu 欠陥およびそれに対応する孤立水素欠陥の全容を明らかにするためにはしばしば固体第一原理計算の助けが必要になる。この計算は比較的大きな超格子に対して行う必要があるため、それ相応の計算資源が要求される。そのため、HPE SGI8600 の利用が不可欠であった。

令和 3 年度は、主に SrTiO<sub>3</sub> 中の Mu 欠陥についての知見を得ることを目的として、Quantum ESPRESSO を用いて密度汎関数理論に基づく電子状態計算を行った。

##### (2) 利用内容・結果:

本計算に先立ち、SrTiO<sub>3</sub> の  $\mu^+$ SR 測定を J-PARC および Paul Scherrer Institute (PSI) において行ったところ、低温で常磁性 Mu 欠陥の形成を示すスペクトルが観測された。ミュオンと局在化した不対電子の超微細相互作用を詳しく解析したところ、この欠陥の実体が格子間 Mu<sup>+</sup>に束縛された Ti<sup>3+</sup>スモールポーラロンであることが明らかになった[1]。この複合欠陥は強く局在化した不対電子を伴うにも関わらず、30 meV 程度のわずかな活性化エネルギーにより解離することもわかった。この一見矛盾する振る舞いを理解するために、Quantum ESPRESSO を用いて密度汎関数理論に基づく電子状態計算を行った。

全ての計算は一般化勾配近似 (GGA) 型の PBE 交換相関汎関数を用いて、Hubbard  $U$  補正により電子相関を取り込んだ GGA+ $U$  の枠組みにおいて行った。H(1s)、Sr(4s, 4p, 5s)、Ti(3s, 3p, 4s, 3d)、O(2s, 2p) を価電子とする PAW 型の擬ポテンシャルを採用した。波動関数の平面波展開におけるカットオフエネルギーは 70 Ry に設定した。5 原子から成る立方晶 SrTiO<sub>3</sub> 格子を単位胞として 3×3×3 超格子を構成し、その格子間位置に Mu の代わりに H 原子を 1 つ置いて格子定数を固定して構造最適化を行った。この際、 $k$  点メッシュは 3×3×3 とした。また、

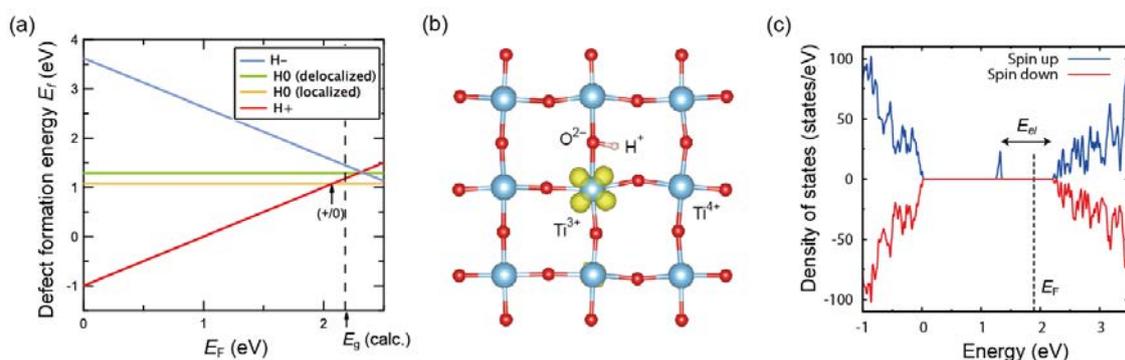


図1 (a) 欠陥形成エネルギー  $E_f$  のフェルミ準位  $E_F$  依存性。  $E_F=0$  は価電子帯上端に、  $E_F = E_g$  は伝導帯下端にそれぞれ対応する。(b) 電子局在解( $q=0$ )の欠陥構造。中央のTiに付随する等値面は、局在した不対電子のスピン密度に対応する。(c) 電子局在解( $q=0$ )の一電子状態密度(DOS)。出典: T. U. Ito, “Hydrogen-Ti<sup>3+</sup> Complex as a Possible Origin of Localized Electron Behavior in Hydrogen-Irradiated SrTiO<sub>3</sub>”, e-J. Surf. Sci. Nanotech. vol.20,no.3 (2022) pp.128-134; licensed under CC BY 4.0.

Ti 3d軌道に対する  $U$ パラメータ ( $U_{Ti}$ ) は文献[2]に従い 4.74 eV とした。熱浴との電荷のやり取りを記述するために、超格子の全電荷  $q$  を  $+e, 0, -e$  に設定した際の最適化構造と全エネルギーをそれぞれ求め、文献[3]の方法に従って欠陥形成エネルギー  $E_f(q)$  のフェルミ準位  $E_F$  依存性を得た。図 1(a) に  $U_{Ti} = 4.74$  eV の場合の結果を示す。図中の  $E_g$  は計算により得られたエネルギーギャップである。 $E_F > E_g$  において一点で交わる 3 本の直線は、非偏極初期状態から計算を始めた場合に得られた  $E_f(q)$  である。この計算条件下では、 $E_F$  の値によらず、H が電子を熱浴に放出しイオン化ドナー H<sup>+</sup> となった状態が常に最も安定である。一方で、H に隣接する Ti サイトにスピンを立てた状態から計算を始めると、 $q=0$  の場合についてより安定な電子局在解が得られる。この欠陥の構造は図 1(b) のようになっており、H から引き抜かれた電子が隣接する Ti の 3d 軌道に局在する形をとっている。これは  $\mu^+SR$  によって観測された  $\mu^+$  束縛 Ti<sup>3+</sup> スモールポーラロンの特徴によく一致している。この電子局在解に対応する図 1(a) の水平線は、 $q=+e$  に対応する傾き +1 の直線と  $E_F < E_g$  なる領域で交わる。これは伝導帯下端直下にドナー準位  $E(+0)$  が形成され得ることを示しており、 $\mu^+$  束縛 Ti<sup>3+</sup> スモールポーラロンの解離に係る活性化エネルギーが非常に小さいことによく対応している。一方で、電子局在解に対する一電子状態密度 (DOS) は、図 1(c) に示すようにギャップ内の深い位置に局在電子に対応する鋭いピークを持つ (DOS の計算には  $5 \times 5 \times 5$  の  $k$  点メッシュを用いた)。これは、一見、図 1(a) の熱力学的ドナー準位  $E(+0)$  の位置と矛盾するように思われるが、DOS は格子系の寄与を含まないのに対し欠陥形成エネルギーはそれを含むことを考慮すると、この違いをよく理解できる。つまり、電子局在による電子系のエネルギー利得がそれに伴う格子歪による格子系のエネルギー増加によりほぼ相殺されるために、ドナー準位  $E(+0)$  が伝導帯下端に近い位置までシフトすると解釈できる。これは電子格子相互作用が強い系に共通して起こり得ることであり、酸化物における常磁性欠陥を考察する際に重要な視点となると考えられる。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) T. U. Ito, “Hydrogen-Ti<sup>3+</sup> Complex as a Possible Origin of Localized Electron Behavior in Hydrogen-Irradiated SrTiO<sub>3</sub>”, e-J. Surf. Sci. Nanotech., 20(3), pp.128-134 (2022). DOI: 10.1380/ejssnt.2022-021
- 2) Takashi U. Ito, “μ<sup>+</sup>SR as a Potential Tool for Depth-resolved Detection of Oxygen Vacancies in Perovskite Oxides”, A3-08-06(I), Materials Research Meeting 2021 (MRM2021), Yokohama, Dec. 16, 2021 [invited talk]
- 3) Takashi U. Ito, “Positive Muons in SrTiO<sub>3</sub>: Electronic Structure of the Hydrogen-Like Defects and Their Potential Use in Depth-Resolved Detection of Oxygen Vacancies”, 30pC-4(I), The 9th International Symposium on Surface Science (ISSS-9), Online, Nov. 30, 2021 [invited talk]

**(4) 今後の利用予定:**

今後も HPE SGI8600 を継続利用し、μ<sup>+</sup>SR 実験より得られる情報を固体第一原理計算により得られる知見で補完することにより、電子材料中の孤立水素欠陥の電子状態解明を進めていく予定である。

参考文献

- [1] T. U. Ito, W. Higemoto, A. Koda, and K. Shimomura, “Polaronic nature of a muonium-related paramagnetic center in SrTiO<sub>3</sub>”, Appl. Phys. Lett. 115, 192103 (2019).
- [2] C. Ricca, I. Timrov, M. Cococcioni, N. Marzari, and U. Aschauer, Phys. Rev. Res. 2, 023313 (2020).
- [3] Y. Iwazaki, Y. Gohda, and S. Tsuneyuki, APL Mater. 2, 012103 416 (2014).

#### 5.4.4 Hex-Au(001)再構成表面上に形成したグラフェンのバンド構造の解明

##### Band Structure of Graphene on Hex-Au(001) Reconstructed Surface

寺澤 知潮

ナノスケール構造機能材料科学研究グループ

###### (1) 利用目的:

炭素原子のハニカム格子からなる単原子厚さのシートであるグラフェンは、既存の電子デバイスの主力を担うシリコンの 10-100 倍のキャリア移動度を示すため、次世代電子デバイス材料として期待されている。また、その動作領域が単原子厚さであることから耐放射線性においても期待が持たれる。グラフェンの電子デバイスへの応用のためには電子状態を変調させバンドギャップを導入することが必要である。そこで、一次元周期ポテンシャルの導入によって電子状態を変調させ、周期ポテンシャルを横断する方向にバンドギャップを導入する手法が研究されてきた。

この手法の一つに 1.44nm の一次元周期構造を持つ Hex-Au(001)再構成表面の活用がある。この表面上に形成したグラフェンにおいて、一次元周期ポテンシャルによる電子状態の変調とバンドギャップの形成が提唱されている。しかし、バンドギャップの存在は走査型トンネル分光法によってのみ示唆されており、バンドギャップの構造の詳細を逆格子空間において電子の運動量と紐付けるために実験と理論計算の双方からの解明が求められていた。

そこで令和 3 年度において本研究では Hex-Au(001)再構成表面上に形成したグラフェンの電子バンド構造を明らかにすることを目的とした。特に過去の研究で報告されている周期ポテンシャルを横断する方向へのバンドギャップの形成の起源を密度汎関数 (DFT) 法によって解明することを目的とした。重元素である Au を含む 126 原子のユニットセルにおける構造最適化と電子バンド構造の計算には大きな計算資源が必要であったため大型計算機 (HPE SGI8600) を活用した。

###### (2) 利用内容・結果:

本研究では平面波基底を取り扱う DFT 計算の汎用的なコードとして QUANTUM ESPRESSO を用いた。計算には図 1 の黄色の枠で示すようなユニットセルを用いた。ここで、茶色と黄色の球はそれぞれ C および Au の原子を表す。また、結晶方位を図に記入した。構造緩和後、Hex-Au(001)表面の波打ちの高さは 0.64 Å であった。これは全電子 DFT 計算の 0.65Å と定量的に一致した。また、構造緩和の結果、グラフェンと最表面の Au の距離は 3.2Å となり、Au(111)上のグラフェンに関する実験および理論計算と整合した。

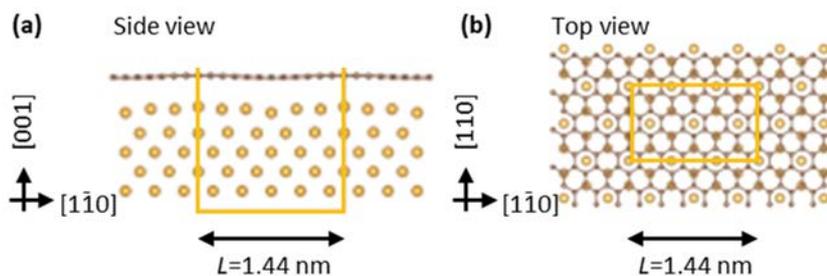


図1 構造最適化後の Hex-Au(001)再構成表面上のグラフェンの原子配置

この構造に対して電子バンド構造を計算した結果を図2のバンド図に示す。図中の黒とピンクのプロットはそれぞれ Au6sp バンドとグラフェンπバンドを示す。グラフェンのπバンド同士の間隔（図2白抜き矢印）に異常が見られないことから、周期ポテンシャルの影響を受けてもバンドギャップの形成を示さないことがわかった。これは、周期ポテンシャルの大きさがバンドギャップの大きさを決めることから、高々0.6ÅのAu原子の凹凸が形成する周期ポテンシャルはグラフェンの電子バンド構造の変調に重要な影響をもたらさないことを示している。また、グラフェンπバンドと Au6sp バンドの交点（図2紫矢印）に0.1eVに達するバンドギャップの形成を確認した。実験的には角度分解光電子分光法によって電子バンド構造を直接観察したところ、当該箇所においてグラフェンπバンドと Au6sp バンドの交点におけるバンドギャップの形成が確認されている[1]。これらの実験および計算の結果はこの系のバンドギャップの形成がこれまで言われていたような周期ポテンシャルではなく、電子軌道の混成によることを示唆する。

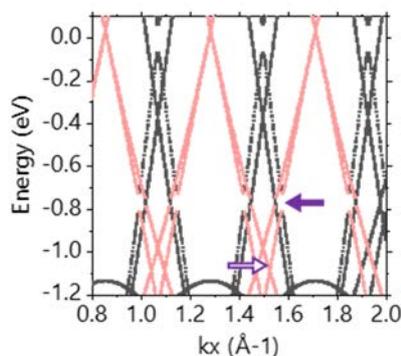


図2 Hex-Au(001)再構成表面上のグラフェンの電子バンド構造

グラフェンと Au6sp の軌道混成が観測された系は 100meV の Rashba 分裂が観測されている。すなわち、グラフェンと Au の界面はグラフェンへのスピン注入において有望であることが示されている。グラフェンはスピン散乱長が長いためにスピン FET など次世代スピントロニクス応用の観点からも注目を集めている。本研究はグラフェンと Hex-Au(001)の界面のような Au 原子の一次元周期的配列がグラフェンのスピントロニクス応用において有望である可能性を示した。

以上の研究成果は国際学会 IVC-22 において発表された。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) T. Terasawa, et al., “Band Hybridization between Graphene and Hex-Au(001) Reconstructed Surface”, The 22<sup>nd</sup> International Vacuum Congress (IVC-22), Sapporo, Japan, 2022.

**(4) 今後の利用予定:**

本研究の結果、グラフェンと Au の界面におけるバンドギャップの形成および、この界面におけるスピン注入の可能性が示された。今後も HPE SGI8600 を継続利用し、スピン軌道相互作用を取り入れた構造最適化および電子バンド構造の計算を行う。

参考文献

- [1] 寺澤知潮他、「Hex-Au(001)基板上のグラフェンのエネルギーギャップの起源」、第 68 回応用物理学会春季学術講演会、オンライン開催(2021).

## 5.5 環境技術開発センター(大洗研究所)

### Waste Management and Decommissioning Technology Development Center(Oarai Research and Development Institute)

#### 5.5.1 PHITS を用いた放射性廃棄物保管時の $\gamma$ 線スカイシャイン線量評価

#### Study on Evaluation Method of Gamma-ray Skyshine Radiation Dose Rate during Storage of Radioactive Waste by PHITS

朝倉 和基  
環境計画課

##### (1) 利用目的:

近年、計算機の性能が飛躍的に向上していることから、遮蔽計算についてもモンテカルロ計算法が広く使用されている。本計算機利用により、汎用モンテカルロ計算コード PHITS を用いて、遮蔽計算の中でも計算体系及び計算時間が大きくなる  $\gamma$  線スカイシャイン評価計算を行い、合理的な計算方法を検討した。

##### (2) 利用内容・結果:

遮蔽設計・許認可計算では、ある程度の精度を犠牲にしても一次元、二次元 Sn 法や簡易計算法が用いられる場合が多く[1]、モンテカルロ計算法は、部分的に精度を要求される領域に限定した計算に用いられる場合が多い。これは、モンテカルロ計算コードを遮蔽設計・許認可計算コードとして使用する上で、他の計算法と比べて計算時間が大きくなることが主な要因として挙げられる。また、計算時間を減らすために、ウェイトウィンドウ法を始めとする分散低減法を導入した場合は、その導入過程について保守性が担保されているか、原子力規制委員会等への説明が必要になる可能性が高い。

本計算では、分散低減法を用いず、[t-point] (ポイントタリ機能) 及び MPI 並列計算機能を用いて、モデルと評価点の条件のみ設定して結果を取得した。

まず、本計算方法 ([t-point] 及び MPI 並列計算機能) におけるスカイシャイン線量値の妥当性を確認するため、1981年に米国カンザス州立大学所有の遮蔽実験用野外実験場にて行われた Co-60 点線源を用いた実験についての測定値[2]及び MCNP5 で計算された文献値[3]と PHITS で計算した結果を比較して、スカイシャイン線評価計算の妥当性を確認した。

図 1 に実験の概要で示された簡略図、図 2 に PHITS で設定したモデル図を示す。線源は鉛製台座の上に置かれた点線源 (上方 150° でコリメート) で、地上から高さ 198 cm の位置に配している。

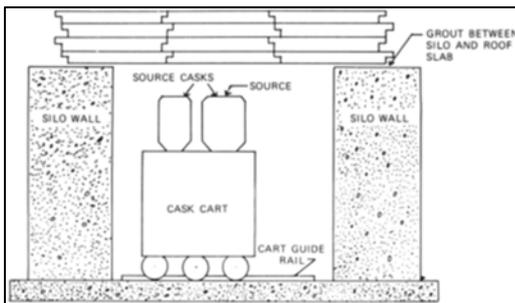


図 1 線源位置の簡略図[1]

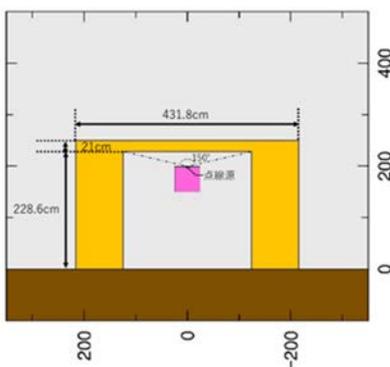


図 2 PHITS で設定したモデル図

距離ごとの線量当量率の推移を図 3 に示す。

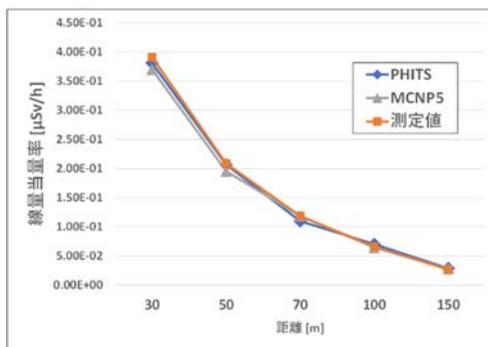


図 3 距離ごとの線量当量率の推移

PHITS と測定値の差は平均で+0.53%、PHITS と MCNP5 との差は平均で+2.59%であった。実際に Co-60 線源を用いた実験による測定値及び主要なモンテカルロ計算コードである MCNP5 との比較で良好な一致が得られたことから、PHITS によるスカイシャイン線評価計算の妥当性を確認した。

次に、放射性廃棄物保管時のγ線スカイシャイン線量評価の検討を行った。図 4 にパッケージ化された放射性廃棄物、図 5 に使用した施設のモデル図を示す。モデルは大洗研究所の廃棄物管理事業の許可を取得した放射性廃棄物を保管する施設のうち、今後、変更許可申請

を計画している施設を対象とした。モデルの線源は、3000 個を超えるものであり、 $\gamma$  線スカイシャイン評価において約 100m 先が評価点となる。

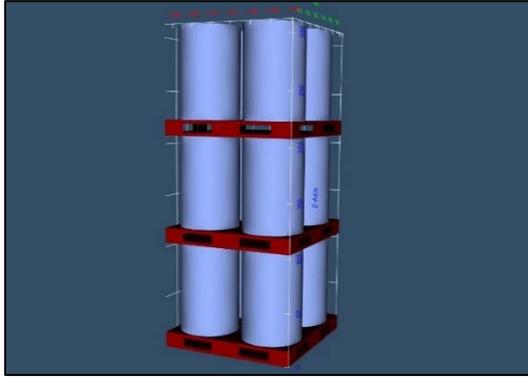


図 4 廃棄物パッケージモデル図

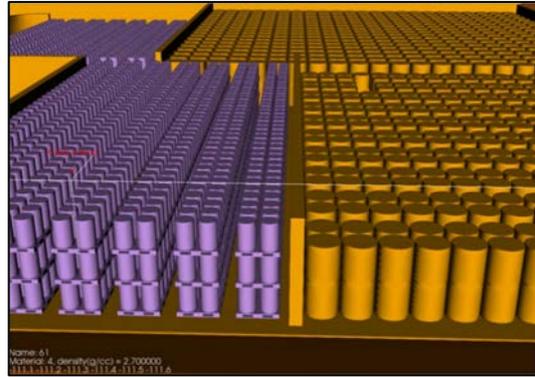


図 5 放射性廃棄物保管施設モデル図

PHITS は、現状のデフォルト線源個数の設定値が 500 であるため、本計算のように、多数の線源を設定する場合は、ソースプログラムを調整した後、コンパイルして PHITS の実行ファイルを新たに作成する必要がある。

本検討は進行中であり、その詳細については次年度以降の報告となる。

#### 参考文献

- [1] 小佐古敏荘他, “原子力教科書放射線遮蔽”, オーム社, 2010.
- [2] R. R. Nason, J. K. Shultis, R. E. Faw & C. E. Clifford, “A Benchmark Gamma-Ray Skyshine Experiment” Nuclear Science and Engineering, 79:4, 1981, pp. 404-416.
- [3] 木下郁男他, “モンテカルロコード EGS, MVP, MCNP によるガンマ線スカイシャイン線量評価性能の比較検討”, INSS journal 編集委員会編 vol.16, 2009, pp. 282-292.

#### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

なし

#### (4) 今後の利用予定:

今後についても、放射性廃棄物保管時の $\gamma$ 線スカイシャイン線量の評価結果の取得を進め、現状において利用実績の少ない、PHITS を用いた炉規法の許認可申請を検討する。

## 5.6 高温ガス炉研究開発センター HTGR Research and Development Center

### 5.6.1 HTTR 臨界制御棒位置を自動で探索するユーティリティツールの開発 Development of Utility Tool for Auto Seeking Critical Control Rod Position of the HTTR

Hai Quan Ho  
HTTR 技術課

#### (1) 利用目的:

During high power operation, the control rod of the high temperature engineering test reactor (HTTR) should be kept at the top of the active core to maintain the optimized power distribution so as to minimize the maximum fuel temperature. In previous work, the critical control rod position of the HTTR was determined by adjusting the control rod manually after each burnup step. This is because the Monte-Carlo codes such as MVP are normally incapable to change the core geometry such as control rod position during transport calculation. Manual adjusting control rod position complicates the calculation procedures and prolongs the total working time. Therefore, this study develops a new utility tool that allows seeking the control rod position automatically during burnup calculation with MVP-BURN code.

#### (2) 利用内容・結果:

##### (2.1) Methodology

The algorithm of the utility tool is shown in Fig. 1.

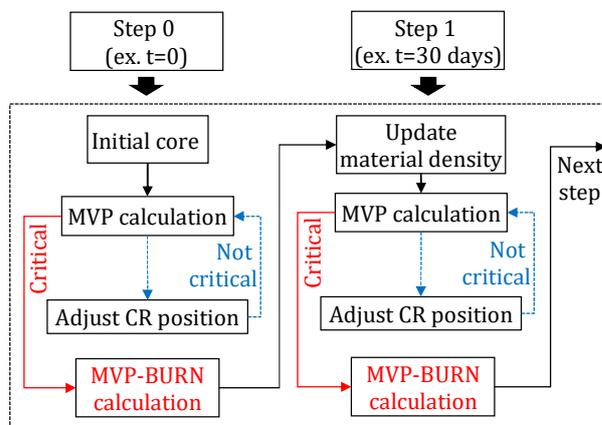


Fig. 1. Flow chart of utility tool

First, the tool calculates  $k_{\text{eff}}$  of the initial input using MVP code. Once MVP calculation finishes, the tool will check the critical state of the reactor. If the reactor is not critical, the tool will adjust the control rod position and re-execute the MVP calculation until the reactor becomes critical. When the reactor reaches a critical state, the control rod position is recorded and then MVP-BURN calculation is performed with designated power and operation time. After that, new atomic densities of all materials in the burning regions are read and updated into the new input. The tool will then seek the critical control rod position of the new input and perform the next burnup calculation steps until a specified burnup target is achieved.

(2.2) Results

The utility tool always adjusts the control rod to the critical position before executing burnup calculation so that the practical operation of the reactor could be simulated more realistically than previous work, where the control rod was set at a fixed position during the entire burnup calculation. In addition, by automating all calculations procedures such as updating nuclides density, seeking critical control rod position, submitting calculation job to a computing system, etc., the calculation working time could be reduced significantly from about 5 days to less than 2 days.

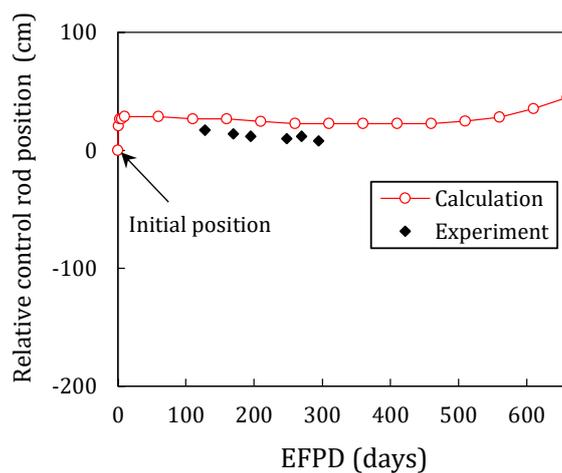


Fig. 2. Control rod position at 30MWth operation

Fig. 2 shows the comparison in control rod position between calculation and experiment at full power operation of the HTTR. It can be seen that the calculated control rod position shows a good agreement compared to the experimental position. The accuracy of the new tool was verified with less than 5% difference in control rod position for all experimental

points.

In conclusion, this study developed the new utility tool to be able to estimate the critical control rod position of the HTTR automatically. The tool gives a much simpler procedure as well as shorter working time than previous work. This tool will be useful for estimating the control rod position of the HTTR when its initial conditions change such as changing reactor power during safety demonstration test, optimizing the fuel composition for the next fuel cycle, etc. Even if this tool was developed for specific HTTR, it is also possible and easy to use for the other reactors for seeking the critical control rod position in the designing and operation phases.

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) Hai Quan Ho, Nozomu Fujimoto, Shimpei Hamamoto, Satoru Nagasumi, Miroru Goto, Etsuo Ishitsuka. "Preparation for restarting the high temperature engineering test reactor: Development of utility tool for auto seeking critical control rod position". Nuclear Engineering and Design, 377, 2021, 111161.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2021.111161>

- 2) Nozomu Fujimoto, Kenichi Tada, Hai Quan Ho, Shimpei Hamamoto, Satoru Nagasumi, Etsuo Ishitsuka. "Nuclear data processing code FRENDY: A verification with HTTR criticality benchmark experiments". Annals of Nuclear Energy, 158, 2021, 108270.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.anucene.2021.108270>

- 3) Shimpei Hamamoto, Hai Quan Ho, Kazuhiko Iigaki, Minoru Goto, Yosuke Shimazaki, Hiroaki Sawahata, Etsuo Ishitsuka. "Design of a portable backup shutdown system for the high temperature gas cooled reactor". Nuclear Engineering and Design, 386, 2022, 111564.

DOI: <https://doi.org/10.1016/j.nucengdes.2021.111564>

### (4) 今後の利用予定:

In the HTTR,  $^{252}\text{Cf}$  is used as the external neutron source, however, they must be renewed every approximately 7 years because of the short half-life of 2.6 years. The renewal of  $^{252}\text{Cf}$  sources requires a high cost and a very complicated procedure. Therefore, future study will investigate the feasibility of using BeO rods as the secondary neutron sources in the HTTR to avoid exchanging the  $^{252}\text{Cf}$  neutron sources periodically.

## 5.7 高速炉サイクル研究開発センター

### Fast Reactor Cycle System Research and Development Center

#### 5.7.1 高速炉蒸気発生器内ナトリウム－水反応現象数値解析コードの高度化

##### Advancement of a Computer Program for Sodium-water Reaction Phenomena in a Steam Generator of Fast Reactors

内堀 昭寛、小坂 亘、渡部 晃、柳沢 秀樹  
安全解析評価グループ

#### (1) 利用目的:

ナトリウム (Na) 冷却高速炉の蒸気発生器 (SG) において伝熱管壁に破損孔が生じると、高圧の水又は水蒸気が Na 中へ噴出し、Na と水の化学反応 (Na-水反応) を伴う高速・高温・腐食性ジェットが形成される (図 1)。この反応ジェットが隣接する伝熱管に衝突すると、管壁の損耗 (ウェステージ) や、温度上昇による強度低下を引き起こし、二次的な破損 (破損伝播) に至る可能性が生じる。本研究では、この伝熱管破損時事象を評価する解析手法を構築し、SG の設計及び安全評価へ適用することを目的としている。

高速炉・新型炉研究開発部門では、原子力イノベーションにおいて民間で実施される多様な炉システムの概念検討及び概念絞り込みの支援を目的とした AI 支援型革新炉ライフサイクル最適化手法 ARKADIA を開発している。ARKADIA では、これまで困難であったリスク情報を活用した安全性、経済性、保守性など様々な観点からの統合的なプラント設計評価と自動最適化を行う。本研究で開発する伝熱管破損時事象解析手法は、将来 ARKADIA の一部として、SG の設計最適化に寄与するものである。



図 1 反応ジェット、隣接管の損傷、及び破損伝播

#### (2) 利用内容・結果:

##### 1) 2021 年度課題の達成目標

SERAPHIM コードによる Na-水反応解析を実施し、その評価結果を、簡易解析コード LEAP-III の高度化に活用する。LEAP-III コードでは、従来、伝熱管破損評価のため Na 側温度分布を相関式で与えるが、高温領域が過度に広く評価される課題があった (図 2)。そこで、

SERAPHIM コードによる多次元詳細解析を援用し、Lagrange 粒子法と工学的アプローチを組み合わせた計算負荷の低い温度分布評価モデルを構築する。

また、これまで整備を続けてきた非構造格子版 SERAPHIM コードについて、試験解析の継続による妥当性根拠の拡充、及び、大型計算機を有効利用するための更なる高速化を図る。

## 2)2021 年度の研究成果とその重要性

伝熱管群における液体 Na 中への水蒸気噴出事象を解析対象とした。解析領域内は液体 Na が充填され、92 本の伝熱管が設置されている。伝熱管群下方の破損管 1 本から、高圧の水蒸気が斜め上方へ噴出される。図 3 に SERAPHIM コードおよび Lagrange 粒子法コードの解析結果を示す。SERAPHIM コードの解析結果では、破損伝熱管（斜線）から右斜め上方へ噴出された水蒸気ガスが、液体 Na との化学反応による温度上昇を伴い、浮力により伝熱管群の間隙を上昇する。一方、Lagrange 粒子法コードにおける高温領域は、SERAPHIM コードに対して過度に広い分布とはならず、最高温度は同程度となることを確認した。本解析モデルは、SG の設計において破損伝播の有無、破損伝播が発生する場合の規模を評価するための最も重要な要素モデルとなる。

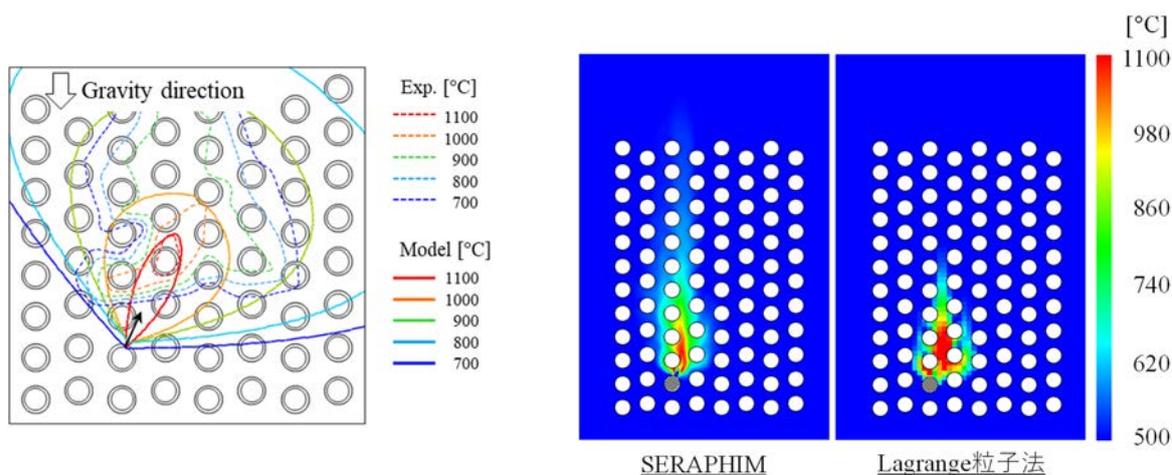


図 2 LEAP-III 温度分布モデルの評価例

図 3 解析結果

非構造格子版 SERAPHIM コードについては、実機条件、管群体系で、Na 中に水蒸気を噴出させた場合の温度分布を計測した試験の解析を継続実施し、安定に計算が進む解析条件についての知見を得たことに加え、試験と解析の間で生じた差異の原因を考察した。また、大型計算機を有効利用するため、同 SERAPHIM コードの GPGPU 化を行った。GPGPU 化には OpenACC を利用し、OpenMP スレッド並列化のディレクティブを OpenACC ディレクティブに置き換える手法を中心として作業を行った。性能測定の結果を踏まえ、GPU の利用効率を向上させるための方策を策定した。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

**【論文】**

- 1) 小坂亘, 内堀昭寛, 柳沢秀樹, 高田孝, 張承賢, “工学的近似を用いたナトリウム-水反応ジェット挙動評価用粒子法コードの研究”, 日本機械学会論文集, Vol.88, No.905, 2022.

**【国際会議】**

- 2) W. Kosaka, A. Uchibori, H. Yanagisawa, T. Takata and S. Jang, “Numerical Evaluation of Sodium-water Reaction Based on Engineering Approach with Particle Method”, ICONE28, Online, August 4-6, 2021.
- 3) W. Kosaka, A. Uchibori, H. Yanagisawa, A. Watanabe, T. Takata and S. Jang, “Development of Reacting Jet Evaluation Model Based on Engineering Approaches with Particle Method for Improvement of LEAP-III Code”, NURETH19, Online, March 6-11, 2022.
- 4) A. Uchibori, Y. Shiina, A. Watanabe and T. Takata, “Unstructured-mesh Simulation of Sodium-water Reaction in Tube Bundle System by SERAPHIM Code”, NURETH19, Online, March 6-11, 2022.

**【国内会議】**

- 5) 小坂亘, 内堀昭寛, 柳沢秀樹, 高田孝, 張承賢, “工学的近似を用いたナトリウム-水反応ジェット挙動評価用粒子法コードの研究”, 第 25 回動力・エネルギー技術シンポジウム, オンライン, 2021 年 7 月 26 日~27 日.

**【表彰】**

- 6) 小坂亘, 2021 年 日本機械学会 動力エネルギーシステム部門 優秀講演表彰「工学的近似を用いたナトリウム-水反応ジェット挙動評価用粒子法コードの研究」

**(4) 今後の利用予定:**

LEAP-III コードのモデル開発に援用した非構造格子版 SERAPHIM コードについて、実機条件への適用性を向上するための整備及び妥当性確認の拡充を継続する。LEAP-III コードの温度分布評価モデルについては、実機条件への適用性拡張を進める。

## 5.7.2 SPIRAL による自然循環条件下における大型燃料集合体試験解析 Analysis of Large-scale Fuel Assembly Experiment with Natural Circulation Condition by SPIRAL

吉川 龍志、菊地 紀宏、田中 正暁  
炉心・プラント解析評価グループ

### (1) 利用目的:

ナトリウム冷却高速炉の安全性強化の方策として、自然循環を活用した炉心崩壊熱の除去が期待されている。強制循環時に比べて炉心通過流量が大幅に低下するため、燃料集合体内の最高温度が上昇する可能性がある。また、自然循環時の炉心部では、浮力が駆動力となるとともに、隣接する集合体間の温度差に従って径方向熱移行が生じる。特に、集合体内への流れが喪失し集合体ラッパー管間ギャップの流れ（インターラッパーフロー）により集合体外側から除熱される場合、燃料集合体内の温度分布を精度よく評価することが炉心安全性評価において重要な評価項目となる。本研究では、燃料集合体熱流動詳細解析コードとして開発を進めている SPIRAL を用いて、ナトリウム冷却高速炉の大型燃料集合体体系での自然循環相当条件での予測特性の確認及び燃料集合体内部の熱流動挙動の把握を目的としている。

令和 3 年度は、「低流量条件下における実機規模の模擬燃料集合体ナトリウム試験（GR91 試験）」<sup>[1]</sup>での、模擬集合体外側にラッパー管形状に合わせた六角アニュラス流路が設定されている試験体系で、集合体内への流れが喪失し、かつ、アニュラス部に流れがあり集合体外側から冷却する条件の熱流動解析を実施し、SPIRAL の妥当性を確認するとともに、同条件下での集合体内の熱流動特性を明らかにすることを目的とした。実機規模燃料集合体を対象とするため要素数が多く、自然循環条件下では現象の進展に長時間を要することから、本解析には、高速 CPU による大規模・長時間（多ステップ）の並列計算が必要であり、スーパーコンピュータ（HPE SGI8600）の利用が必須である。

### (2) 利用内容・結果:

大規模解析として、ナトリウムを作動流体とした実機規模の模擬燃料集合体試験である GR91 試験を対象とした熱流動解析を実施した。

図 1 に解析モデルを示す。解析体系は、模擬燃料集合体領域およびその外側のインターラッパー領域（集合体間のナトリウム槽を模擬した六角アニュラス流路）とし、鉛直方向は、ヒーターによって模擬された燃料ピンの発熱部長を包含できる長さとしてワイヤースペーサー巻きピッチ 13.5 巻き分の範囲とした。集合体の発熱条件を燃料ピン内側表面に熱流束として設定し、六角アニュラス流路の外側を断熱条件とした。入口断面（図 1 の下方の境界断面、流れ方向は下から上）での水力等価直径と断面平均流速に基づくレイノルズ数は、集合体内部で 0、六角アニュラス流路で 14,700 となる。入口境界には流速及び温度一定の条件を、出口境界には圧力一定の条件をそれぞれ与えた。壁境界は Non-Slip 条件を課した上で低 Re 数効果を加味した壁関数を適用した。また、乱流モデルとして、流体の層流-乱流遷移特性を良好に再現できる Hybrid 型  $k-\varepsilon/k_0-\varepsilon_0$  モデルを採用した<sup>[2]</sup>。SPIRAL による解析で使用した解析モデルの要素総

数は約 3,200 万要素であり、2,048 CPU による並列計算を利用して、タイムステップ  $10^{-4}$  秒で 800 秒までの準定常解析を実施した。

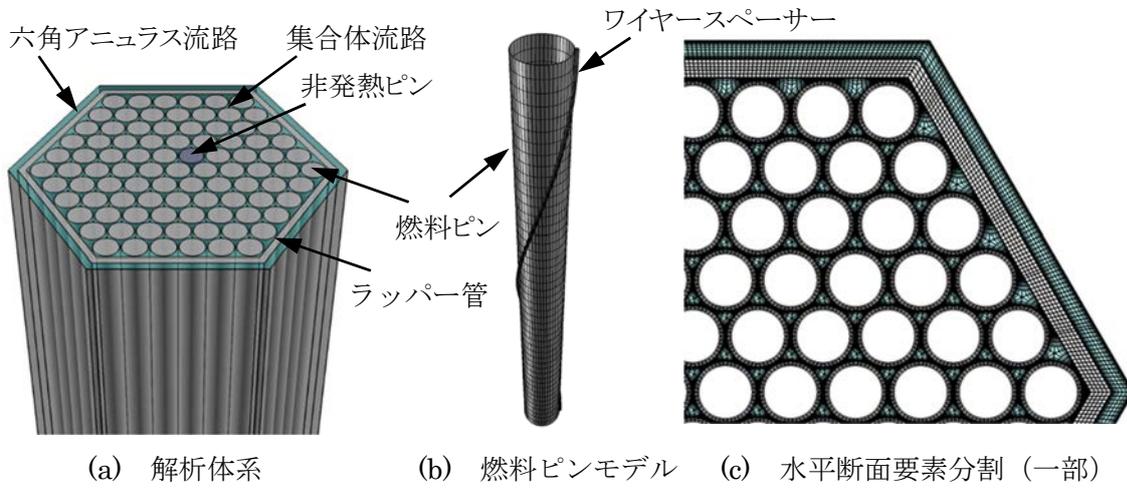


図 1 解析体系及び要素分割

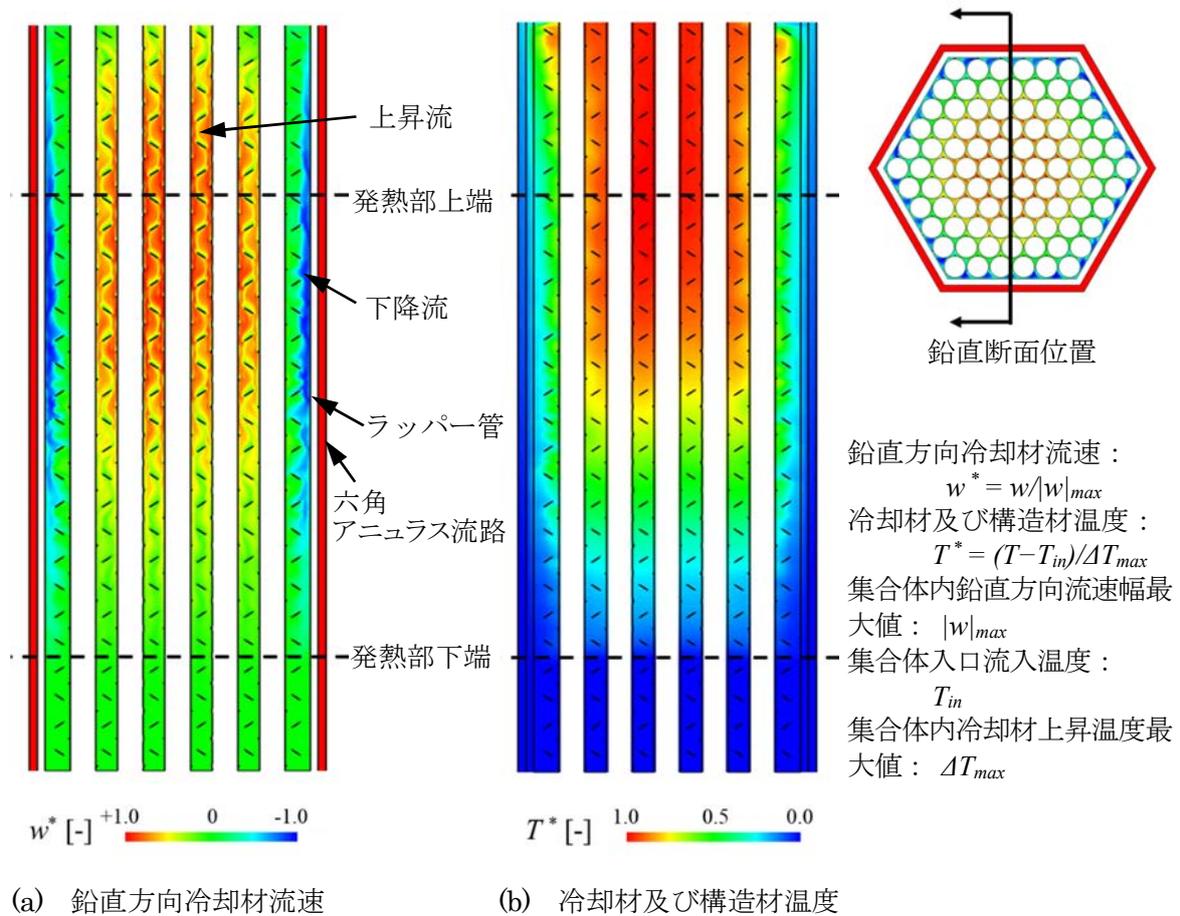


図 2 解析結果 (鉛直断面)

図2にSPIRALにより得られた鉛直断面における鉛直方向冷却材流速と冷却材及び構造材温度の分布を示す。集合体内の発熱部では、模擬燃料ピンの発熱により高温となる集合体中心側で、浮力による強い上昇流が形成される一方で、ラッパー管側では、ラッパー管を介して六角アニュラス流路から除熱されて低温となるため大規模な下降流が形成されている。集合体内の発熱条件と、ラッパー管外側からの除熱条件とのバランスにより、燃料集合体中に鉛直方向の循環流が生じ、集合体中心では高温、周辺部では低温となる温度勾配が形成されている結果を得た。

試験で計測された温度と解析で予測された温度を比較した結果、解析結果から得られた集合体内冷却材上昇温度の最大値に対して温度計測点の約50%が4%以内の相対誤差、約80%が7%以内の相対誤差に分布しており、SPIRALによる解析結果は試験結果を良好に再現していることを確認した。

#### 参考文献

- [1] R. Yoshikawa, Y. Imai, N. Kikuchi, M. Tanaka, A. Gerschenfeld, “Validation Study of Finite Element Thermal-hydraulics Analysis Code SPIRAL to a Large-scale Wire-wrapped Fuel Assembly at Low Flow Rate Condition”, Proceedings of Joint International Conference on Supercomputing in Nuclear Applications + Monte Carlo 2020 (SNA+MC2020), Japan, 2020, No.3276378, pp.73-80.
- [2] H. Ohshima, Y. Imai, “Numerical Simulation Method of Thermal-hydraulics in Wire-wrapped Fuel Pin Bundle of Sodium-cooled Fast Reactor”, International Conference on Fast Reactors and Related Fuel Cycles: Next Generation Nuclear Systems for Sustainable Development (FR17), Yekaterinburg, Russian Federation, June 26-29, 2017.

#### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) N. Kikuchi, Y. Imai, R. Yoshikawa, N. Doda, M. Tanaka, “Investigation of Applicability of Subchannel Analysis Code ASFRE on Thermal Hydraulics Analysis in Fuel Assembly with Inner Duct Structure in Sodium Cooled Fast Reactor”, Proceedings of the 28th International Conference on Nuclear Engineering (ICONE28), Virtual, Online, August 4-6, 2021, ICONE28-65662.

#### (4) 今後の利用予定:

燃料集合体熱流動詳細解析コードSPIRALの妥当性確認と、燃料集合体内混合対流(自然・強制共存対流)時の伝熱流動現象、特に圧力損失係数に対する浮力影響の把握を目的として、集合体内の浮力による流量再配分が生じる混合対流条件における19本模擬燃料ピン集合体水試験(MIT19試験)を対象に、熱流動解析を実施する予定である。また、今後も種々の燃料集合体試験による妥当性確認解析を進めるとともに、実機評価への適用として、様々な運転条件下における実機規模燃料集合体内の熱流動特性評価等の大規模解析を実施する予定である。また、この解析結果は、設計ツールとして別途整備を進めている燃料集合体サブチャンネル解析コードASFREの妥当性確認にも活用される。

### 5.7.3 ガス巻込み評価に係る渦の最適抽出手法の整備

#### Development of Optimal Vortex Identification Method for Gas Entrainment Evaluation

松下 健太郎<sup>1)</sup>、伊巻 正<sup>2)</sup>、今井 康友<sup>1)</sup>

1) 炉心・プラント解析評価グループ、2) 高性能計算技術利用推進室

##### (1) 利用目的:

ナトリウム冷却高速炉（SFR）の炉上部プレナム領域において、冷却材の自由液面部に発生するくぼみ渦によるアルゴン（Ar）カバーガスの巻込み現象が発生する。Ar ガスの気泡が冷却材中に巻き込まれることで、気泡炉心通過時における炉心反応度のじょう乱等が発生する可能性があり、SFR の安全設計上の課題となる。そのため、炉上部プレナム領域におけるくぼみ渦によるカバーガス巻込み現象の評価手法の構築が求められている。原子力機構では、炉上部プレナム領域を対象とした 3 次元数値流体（CFD）解析によって流速分布を取得し、得られた流速分布から渦を抽出し可視化するツールである「StreamViewer」の開発を進めている。

StreamViewer について、従来の Windows 環境のみならず、大型計算機 HPE SGI8600 のような Linux 環境にも対応可能とする必要がある。また、将来的に 1 億セル以上の大規模な解析結果を処理することが予想されており、計算や可視化処理の高速化および並列化に対応した新たなシステムの構築が必要となっている。そこで、オープンソースの可視化アプリケーションである「ParaView」を使用し、StreamViewer 相当の渦抽出機能を有した渦の可視化システムの開発を進めている。令和 3 年度では、3 次元 CFD 解析によって得られた流速分布から、速度勾配テンソルの第二不変量を算出し、渦の中心を示す点（渦中心点）の位置を同定し可視化する機能の実装について検討した。

##### (2) 利用内容・結果:

StreamViewer では、3 次元 CFD 解析によって得られた流速分布から、次式で定義される速度勾配テンソルの第二不変量  $Q^{[1]}$  を算出する。

$$Q = \frac{1}{2}(S_{ij}S_{ij} - \Omega_{ij}\Omega_{ij}) \quad (2.1)$$

$$S = [S_{ij}] = \frac{1}{2}[u_{i,j} + u_{j,i}] \quad (2.2)$$

$$\Omega = [\Omega_{ij}] = \frac{1}{2}[u_{i,j} - u_{j,i}] \quad (2.3)$$

$Q < 0$  のとき、式 (2.2) に示す流れの歪み成分より、式 (2.3) に示す流れの回転成分が大きくなるため、StreamViewer では  $Q < 0$  となる領域から渦の発生箇所を抽出し、渦中心点の位置を同定している<sup>[2]</sup>。

ParaView 上に同等の機能を実装するにあたり、データの読み込みから第二不変量  $Q$  の計算、および計算結果の可視化までの大枠の処理については、ParaView の制御用に組み込まれている機能限定版の Python を使用し、ParaView 上のフィルタモジュール等を組み合わせたマクロ

によって実装した。また、渦中心点の抽出を行うプログラムについては、専用のクラスモジュールを作成し、Python によるマクロと組み合わせることで実装した。

図 1 に示す側面に移動壁境界が与えられた立方体型の簡易体系における流れ場に対し、ParaView 上に実装した渦中心点抽出プログラムを適用した結果を図 2 に示す。図 2 の青色の領域は  $Q < 0$  となる領域を表し、白点は渦中心点を表す。図 2 より、 $Q$  が負となる領域の内部において、体系鉛直方向に沿った渦中心点群が抽出されていることが分かる。よって、ParaView 上に実装した本プログラムにより、流れ場中の渦中心点の位置を同定することが可能であることが確認された。

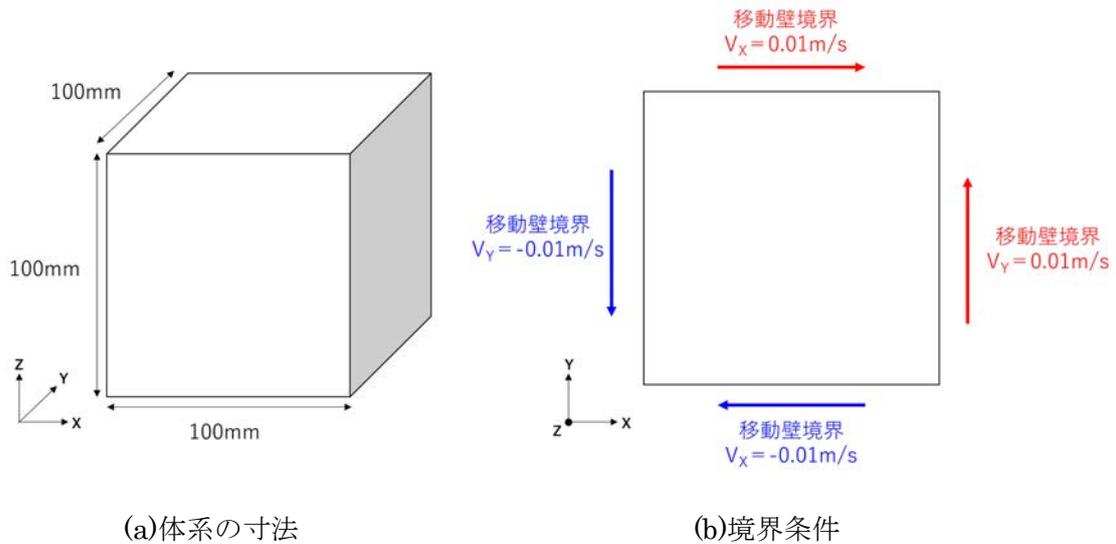


図 1 渦中心点抽出手法の検証体系

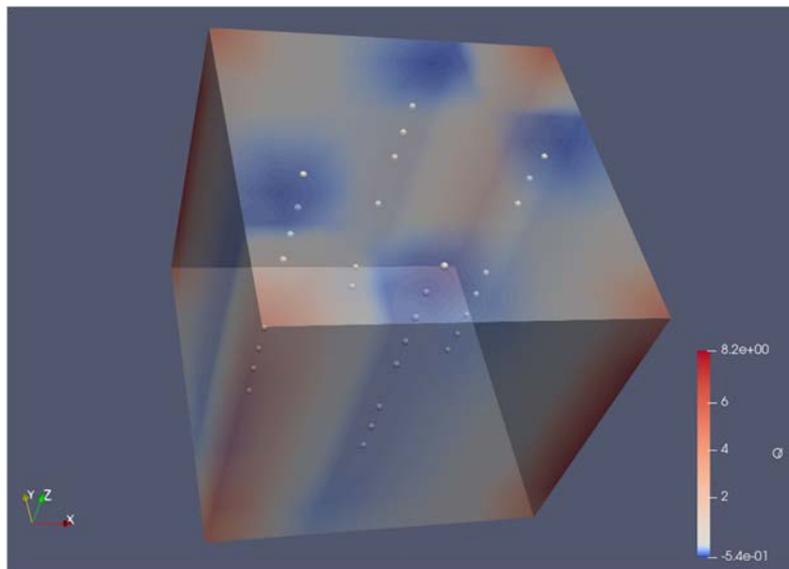


図 2 渦中心点抽出手法の適用結果

参考文献

- [1] J.C.R. Hunt, et al., “Eddies, Stream and convergence zones in turbulent flows”, Center for Turbulence Research report, CTR-S88, 1988.
- [2] D. Sujudi, and R. Haines, “Identification of Swirling Flow in 3-D Vector Fields”, AIAA Paper 95-1715, 1995.

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

今後、本渦中心点抽出プログラムの機能を拡張し、抽出された渦中心点群を接続することで渦の中心を示す線（渦中心線）を抽出する機能、ならびに渦中心点上における諸物理量（循環、下降流速勾配、渦のくぼみによる減圧量）を算出し可視化する機能を実装する予定である。大型計算機 HPE SGI8600 を活用し、Linux 環境において、本プログラムを大規模な体系に適用し、渦の抽出処理の高速化および並列化について検討する予定である。

#### 5.7.4 高速炉の炉心の核-熱-構造連成解析手法の開発

##### Development of Coupled Analysis Method for Neutronics, Thermal-hydraulics, and Structure Mechanics of Fast Reactor Core

上羽 智之、堂田 哲広、根本 俊行\*、横山 賢治、吉村 一夫、浜瀬 枝里菜、田中 正暁  
炉心・プラント解析評価グループ

\*高性能計算技術利用推進室

#### (1) 利用目的:

高い安全性及び経済性を有する高速炉プラントの実現に向けては、プラント内のあらゆる現象を適切に考慮し、プラント全体で最適な設計ができることが必要である。このため、炉物理、熱流動、構造力学分野の各解析コードをプラント動特性解析コードと連成して解析する手法の開発を進めている。特に構造分野の解析では、炉心内に装荷された数百体の集合体群の変形（炉心変形）を計算する必要がある、計算負荷が大きくなっている。この計算負荷を低減するため、構造解析に使用している炉心汎用非線形構造解析システム“FINAS”の計算の高速化・並列化ができるように、FINASをHPE SGI8600に移植する作業を進めている。FINASをベースとした炉心変形解析モデルは概ね完成しており、現在、このモデルを取り込んだ核-熱-構造連成解析モデルの開発を進めている。この連成解析モデルの開発成果について述べる。

#### (2) 利用内容・結果:

##### ① 核-熱-構造連成解析手法

運転時の異常な過渡変化や事故時の炉心温度上昇に伴う燃料集合体の熱変形による反応度フィードバック（炉心変形反応度）は、炉心の核動特性、熱流動、構造変形が複合した複雑な現象である。この現象を解析するため、炉心変形計算と熱計算を連成させ、炉心形状の時間変化が炉心出力へ与える影響を考慮する核-熱-構造連成解析手法を開発した。図1に連成解析のフローを示す。連成解析では、プラント動特性解析コード（Super-COPD）で計算した炉心温度分布を入力として構造解析コード（FINAS）で炉心変形計算を行う。この炉心変形量を入力として核特性解析コード（MARBLE）で変形反応度計算を行い、得られた反応度をSuper-COPDの核動特性計算に反映する。各解析コードの実行とコード間のデータ同期、それに必要なデータの加工と転送はPythonスクリプトによる統合インターフェース（PSSP：Programable Synchronization Script by Python）上で行い、各解析コードが互いの解析結果を入力とし、連続的に解析を実行することで核特性、熱流動、炉心変形の時間進展を計算する。

##### ② 連成解析手法の機能確認解析

連成解析手法を用いて、炉心温度上昇に伴う集合体の熱変形による炉心変形反応度を考慮できることを確認するため、米国高速実験炉「EBR-II」の炉心流量喪失時炉停止失敗模擬試験の解析を実施した。図2に炉心体系を示す。試験では、炉心流量喪失時炉停止失敗事象を模擬するため、炉停止失敗（制御棒挿入失敗）とポンプトリップ（ポンプ駆動力の喪失）が同時に行われた。この結果、炉心温度が一時的に上昇したが、主に冷却材の温度上昇による負の反応度フィードバック効果で核出力が低下するとともに冷却系の自然循環によって冷却材流量が十分

に確保され、炉心が冷却されることが確認された。

機能確認解析の結果について述べる。図 3 に炉心温度が最も高くなる時点の炉心の温度分布及び熱変形の様子を示す。温度上昇によって炉心径方向の温度勾配が増加し、燃料集合体が湾曲する。特に、燃料領域外周部には径方向の大きな温度勾配が生じるため、集合体に大きな湾曲が生じるようになる。図 4 に燃料集合体に含まれる燃料の移動及び反射体に多く含まれる構造材の移動による反応度分布を示す。燃料移動による反応度では、炉心中心付近で正（赤色）になる集合体がある。これは炉心中央部に配置された制御棒や反射体といった温度の低い集合体の方向に周りの燃料集合体が湾曲するためである。一方、構造材移動の反応度では、燃料領域の外側に位置する反射体で負（青色）になる集合体がある。これは反射体が外側に湾曲することで中性子の漏れが増加するためである。このような炉心の変形を考慮して評価した燃料及び構造材の移動による反応度を炉心全体で合計した炉心変形反応度は、図 5 に示すように負の値で推移するようになった。

以上より、核-熱-構造連成解析手法によって燃料集合体の変形による核出力へのフィードバック効果を考慮して炉心変形反応度の時間変化を適切に評価できることが確認した。

本成果は、原子炉熱流動に関する国際会議（NURETH-19）で発表した。

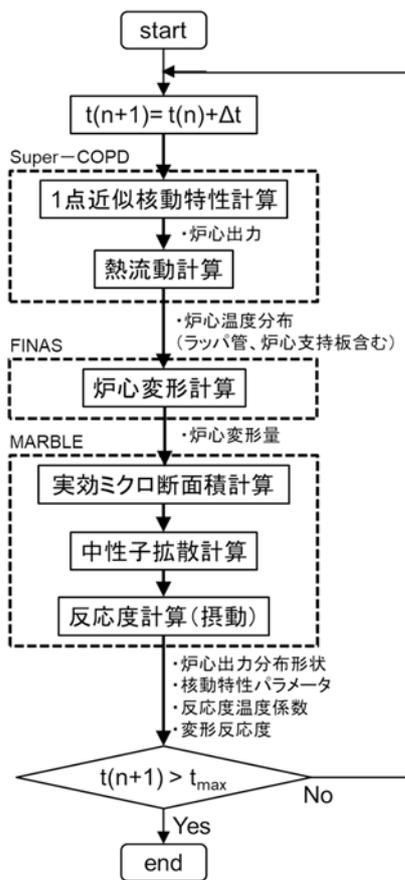


図 1 核-熱-構造連成解析のフロー

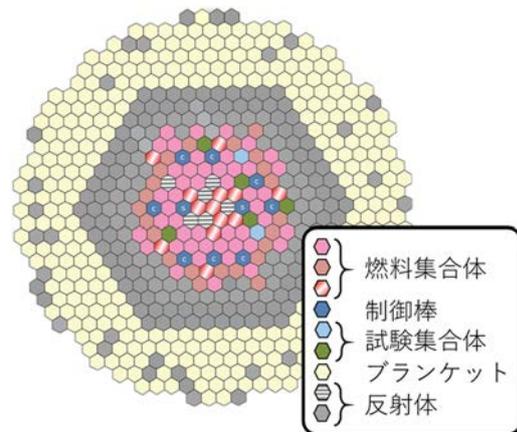


図 2 EBR-II の炉心体系（集合体数：637 体）

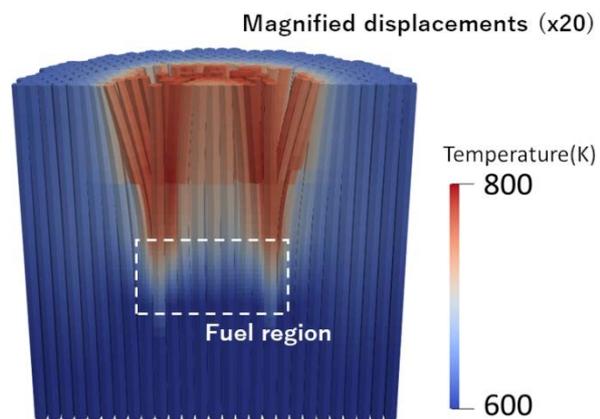


図 3 炉心の温度分布及び熱変形の様子

(a)燃料移動による反応度

(b)構造材移動による反応度

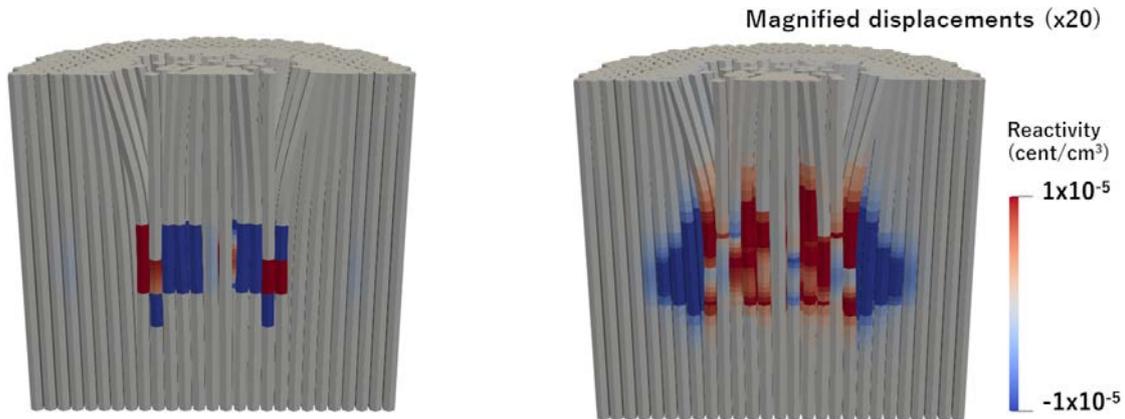


図4 炉心の変形反応度分布

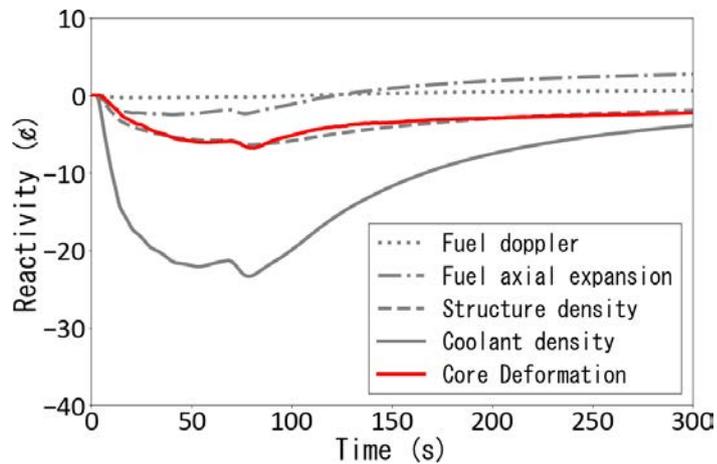


図5 反応度の時間変化(Core Deformation(—)が炉心変形反応度を示す)

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

- 1) N. Doda, T. Uwaba, K. Yokoyama, T. Nemoto, and M. Tanaka “DEVELOPMENT OF EVALUATION METHOD FOR CORE DEFORMATION REACTIVITY FEEDBACK IN SODIUM-COOLED FAST REACTOR BY COUPLED ANALYSIS APPROACH”, 19th International Topical Meeting on Nuclear Reactor Thermal Hydraulics (NURETH-19) 35413, 2022.03, pp.1-14.

**(4) 今後の利用予定:**

今後も FINAS を大型計算機で利用できるようなするための整備を継続する。この整備によって FINAS の高速化・並列化を図り、実機炉心体系での炉心変形、プラント動特性、核特性、熱流動の連成解析を効率的に実行できるように解析手法の高度化を進めていく。

### 5.7.5 連続エネルギーモンテカルロコード MVP を使用した「常陽」MK-II 炉心の中性子束計算

#### Calculation of Flux Distribution of Joyo MK-II Core with the Continuous-energy Monte Carlo Code MVP

谷中 裕、菰田 宏  
炉心・プラント解析評価グループ

#### (1) 利用目的:

燃料集合体や制御棒集合体といった炉心構成要素を忠実に模擬した全炉心の連続エネルギーモンテカルロ計算は、決定論的手法による解析と比較して計算時間を要するが、近似がほとんどない計算手法であることから、精緻な計算結果を得ることができるとともに、近似を含む手法である決定論的手法の参照解としても期待できる。

本研究では「常陽」MK-II 炉心を対象に、燃料集合体内の特定ピン位置での詳細な中性子束計算において、決定論的手法の参照解を得るために、大型計算機システム HPE SGI8600 を利用した連続エネルギーモンテカルロコード MVP による並列計算（112 並列）を実施した。

#### (2) 利用内容・結果:

燃料集合体内の燃料ピン及びラッパー管等を忠実に模擬した体系を構築し、燃料集合体の特定ピン位置での中性子束の計算を実施した。図 1 に対象とした燃料集合体の装荷位置を、図 2 に燃料集合体内のピン位置を示す。MVP の計算ヒストリー数は、約 40 億ヒストリーで十分な統計精度を得られた。

MVP により得られた結果と、決定論的解析手法で得られた計算結果の比較を実施したところ、決定論的解析手法で得られた計算結果と矛盾は見られなかった。

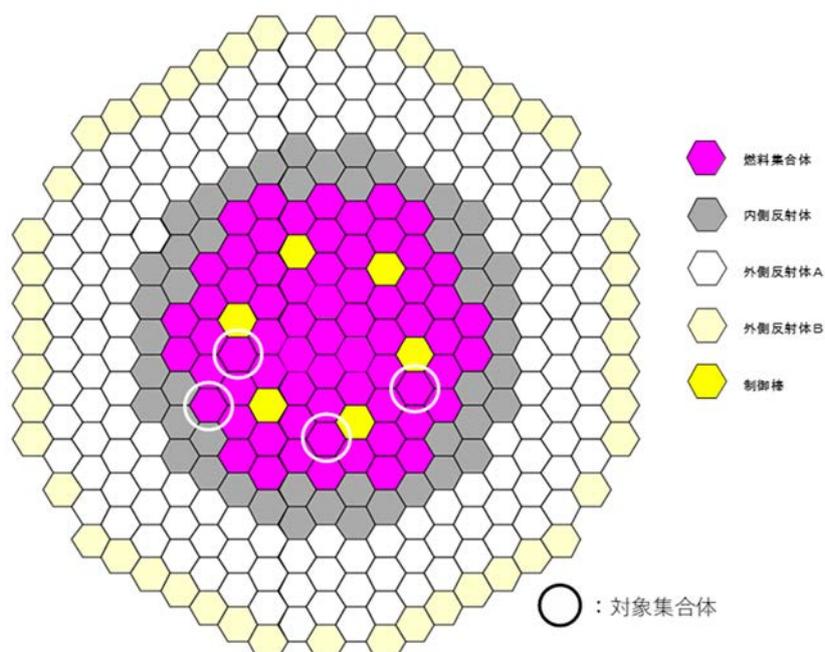
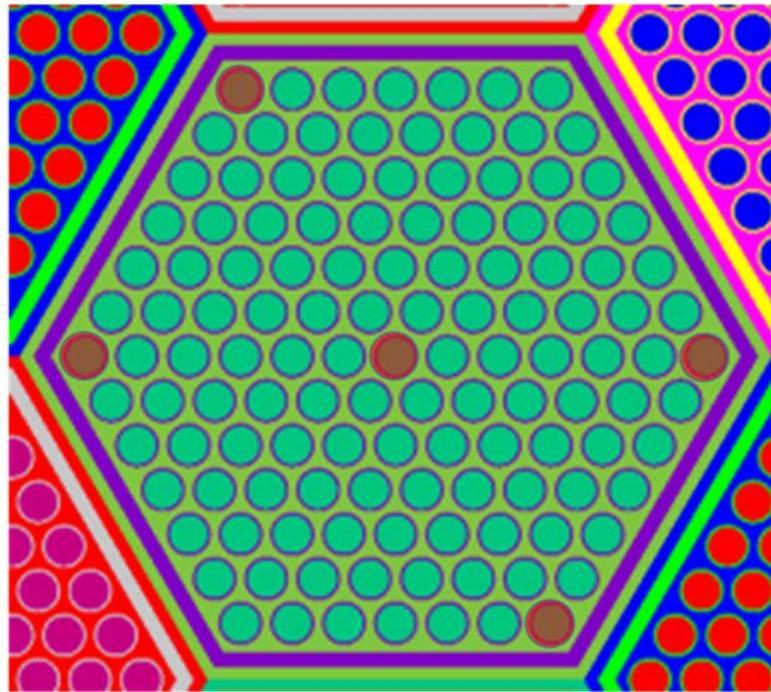


図 1 対象集合体装荷位置



● : 中性子束を求めるピン

求める軸方向位置（炉心下端から）5-10mm、25-30mm、250-255mm、535-540mm

図2 対象ピン位置

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

今後、論文発表等を通じてこれらの結果を随時発信していく予定である。

**(4) 今後の利用予定:**

今後、MVP-BURN を用いて燃焼計算を行い、出力で規格化した中性子束の計算を行う予定であるため、次年度以降も大型計算機システムの利用が不可欠である。

## 5.8 敦賀総合研究開発センター

### Tsuruga Comprehensive Research and Development Center

#### 5.8.1 レーザー溶融・凝固解析コードの検証

##### Verification of the Simulation Code for Laser Processing

田口 俊弘

レーザー応用研究グループ

#### (1) 利用目的:

レーザーを利用した加工技術や分析技術は、その非接触性や光ファイバを用いた狭隘部への輸送容易性、エネルギー密度の高さによって材料への影響を局所に限定可能といった種々の特徴から、放射線により接近が困難な箇所が多く、加工時の放射性物質の飛散量を抑制したいというニーズのある原子力施設での利用に適している。現在、原子炉の廃止措置へのレーザー技術の利用促進に資するため、種々のレーザー加工技術の高度化に向けた技術開発を行っている。その一環として、レーザーの照射条件の最適化へ活用するためのツールとして、レーザー加熱による物質の相転移解析が可能な3次元レーザー溶融・凝固解析コード<sup>[1]</sup>の開発を行ってきた。

この解析コードは非圧縮性流体モデルを用いたものであり、様々な分野のレーザー加工の解析に応用することが可能である。2020年度は従来のコードの動作確認やバグフィックス、MPI並列化による高速化などを施した上でレーザー溶融のシミュレーションを行い、コードの動作を検証したが、2021年度はコードに新しい機能をいくつか追加するとともに、より細かいメッシュサイズを利用した高精度大規模シミュレーションを大型計算機で実施することにより、コードの検証を行った。

#### (2) 利用内容・結果:

2021年度は開発中の解析コードに以下の新機能を付加し、その検証を行った。

- (a) 簡易熱膨張モデルの導入
- (b) 金属の相変態の計算機能

本解析コードは材料サイズを小さくしたりメッシュを粗くすればパソコンでも動作できるようになっているが、精度を上げたり実スケールの材料サイズを用いて長時間計算するには大型計算機の利用が必須である。また本シミュレーションにおいては、レーザー光出力やその掃引速度など複数のパラメータ空間における検証を行う必要があり、条件を変えた大量の計算が必要となるため、大型計算機を利用して実施した。

ここでは、2021年度に実施した検証例として、樹脂溶着解析を対象とした簡易熱膨張モデルの動作検証結果及び、鉄のレーザー焼入れ解析を対象としたScheilの加算則を用いた相変態解析の動作検証結果について述べる。

(a) 簡易熱膨張モデルによる樹脂溶着の解析

本解析コードは元々1種類の固体・液体・気体を取り扱うことしかできなかったが、新たに固体に対する識別変数を追加し、計算領域に応じて異なる物性値を持てるようにした。レーザーを用いた樹脂溶着の解析においては、レーザーを透過させる透過材とレーザーを吸収する吸収材を接触させ、透過材を通して吸収材との界面に到達したときに、吸収材表面でレーザーを吸収させて溶かし、これによって吸収材と透過材を接合させるのが基本であるため、この2種類の材料を取り扱える拡張によって解析が可能となった。加えて、簡易熱膨張モデルを導入して、レーザー吸収により加熱した吸収材が盛り上がり、透過材に接着する様子も解析可能となった。結果の一例を図1に示す。

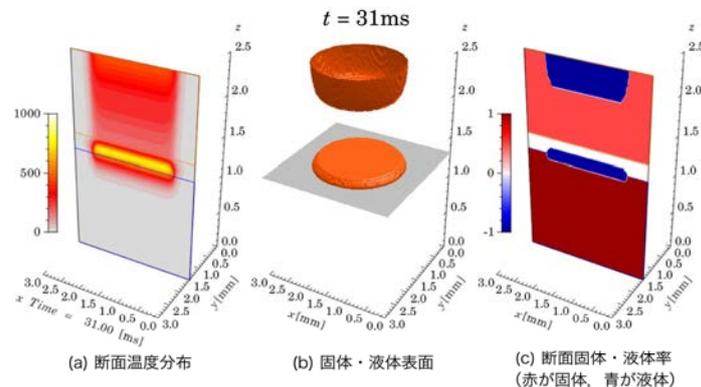


図1 簡易熱膨張モデルを用いたレーザー樹脂溶着解析の例

図1は下に厚さ1mmの吸収材を置き、0.2mmのギャップをはさんで上に透過材を置いた状態でレーザーを透過材の上面に照射したときの様子を示している。図1(a)は断面温度分布で、透過したレーザーが吸収材の上面で大きく吸収され、この結果温度が上昇していることがわかる。これに対し、図1(b)は固体と液体の表面を示した図で、灰色の平面が吸収材の表面、その上にある橙色の曲面が溶けて膨れた吸収材表面である。図の上方の茶色の面は透過材中の固体と液体の境界を示したもので、照射条件によっては透過材の下面もレーザー加熱によって溶けることがわかる。図1(c)は断面の液体率と固体率を示したものであり、吸収材の表面が溶けて膨らんでいることが確認できる。また、透過材も完全に透明ではなく、レーザー光は透過材でも吸収され光強度が減衰しながら透過していく。そのため、透過材の上面での光吸収が大きい場合、照射条件によっては透過材の上面も溶融することが模擬できていることが分かる。実際の溶着においては透過材の上面が溶融することは望ましくないため、融解しないように照射パラメータを最適化していくのに本コードを活用できるものと考えられる。

(b) Scheilの加算則を用いた焼入れ解析

原子力機構において、レーザーを利用した材料改質の研究開発の1つとして、本コードと実験を組合せて焼入れ技術の高度化を行ってきた<sup>2)</sup>。焼入れとは、鉄鋼材を高温にした後に急冷することで金属の組織を変化させ、より硬い状態にすることである。この焼入れ解析をさらに高度化するために鉄鋼材の温度の時間的変化に応じた固体相の変化を計算できるように改良することとした。本解析コードでは、この相変態を決める方法として2種類導入した。一つはCCT

線図という実験で求められた時間-温度依存性データを数値化し、この図の上をたどることで相変態を調べる方法であり、もう一つは Scheil の加算則という相変態を記述する数式を用いて変態相を決める方法である。

図2 レーザー焼入れ解析の一例

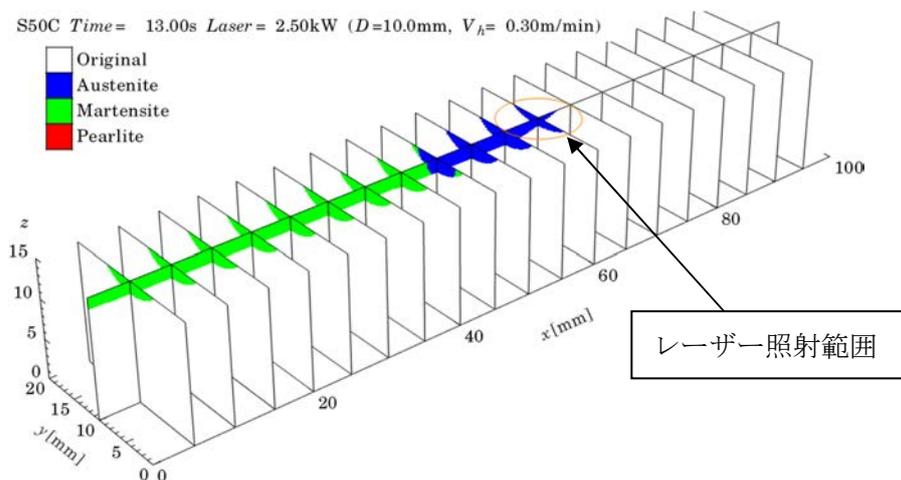


図2は Scheil の加算則を用いた計算結果の一例である。この図は鉄の表面をレーザーが走査しているときの鉄の表面の変態成分を色分けしたものである。この図で、緑の領域が冷えて硬くなったマルテンサイト状態、青の領域は高温のオーステナイト状態である。黄色の楕円がレーザーの照射スポットを示している。図より、レーザーで加熱された領域付近はオーステナイトだが、レーザーが通過後しばらくして緑のマルテンサイトに変態することがわかる。この計算ではレーザーの掃引速度が速いため、急冷が起こってマルテンサイトに変態するが、掃引速度が遅いと冷却がゆっくり起こるため、マルテンサイトではなく硬度の低いパーライトになることも模擬することができることを確認できた。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

なし

### (4) 今後の利用予定:

レーザー加工は原子炉の廃止措置に関係するものとして溶断や除染などがあるが、この他にも様々な応用分野が存在する。今後もコードの検証を兼ねて幅広い分野への応用検討を行い、コードの高度化を図っていく。その際に必要となる現実のサイズの規模で精度の高い解析を行うために、今後も大型計算機による大規模シミュレーションを継続して実施する予定である。

### 参考文献

[1] K. Sugihara, et al, Numerical simulation of thermohydraulic characteristics of dross ejection process in laser steel cutting, Proc. of 20th Int. Conf. on Nucl. Eng. and the ASME 2012 Power Conference (ICONE-20& POWER 2012).

[2] 北川他、数値解析によるレーザー焼入れ伝熱メカニズム解明と焼入れ深さ向上の実験的評価、第96回レーザー加工学会講演論文集、WEB開催、2022年、pp.91-96、(<http://www.jlps.gr.jp/>), (accessed 2022-11-14).

## 5.9 燃料サイクル設計部

### Fuel Cycle Design Department

#### 5.9.1 CNWG・先進燃料物性計算科学研究

##### Numerical Study of Physical Properties of Advanced Fuel in CNWG

加藤 正人<sup>1</sup>、町田 昌彦<sup>2</sup>、中村 博樹<sup>2</sup>

<sup>1</sup>燃料サイクル設計部、<sup>2</sup>システム計算科学センター

#### (1) 利用目的:

日米両政府は、民生用原子力協力に関する二国間委員会の下、日米民生用原子力研究開発ワーキンググループ（CNWG）を発足させた。著者等のグループは、この CNWG 内の核燃料サイクル研究開発及び廃棄物管理サブワーキンググループに所属し、先進燃料専門家会合を開催し、日米間の研究協力を行ってきた。尚、本研究協力は、5種のタスクに分かれて実施されており、その中には計算科学による協力も含まれている。著者等は、これらのタスクの中で「酸化物燃料の基礎物性」と「照射燃料を記述するモデル及びシミュレーション」を担当しており、本大型計算機利用では、前者「酸化物燃料の基礎物性」を主たる研究対象とする。

タスク「酸化物燃料の基礎物性」に関しては、実験による基礎物性評価の他に計算科学による基礎物性評価が含まれており、実験により得られる基礎物性をミクロな視点から説明することを目標とする。即ち、酸化物燃料が示す様々な物理現象の出現機構をミクロなレベルで解明し、その物性を反映し、且つ物性の様々な変化を表現可能とする計算式を導出することにある（得られる妥当な計算式は、酸化物燃料の設計、通常運転時及び異常時の照射挙動評価、シビアアクシデントの評価等、様々な用途に用いられる）。

上記目標を達成するため、具体的には米国ロスアラモス国立研究所のグループが専門とする古典分子動力学と申請者等が専門とする第一原理計算を組み合わせ、各々の短所を補うだけでなく、長所を活かす形で研究協力を行っている。これまでに行われた研究協力としては、高温における酸化物燃料の比熱の評価において、原子振動からの寄与を古典分子動力学で、電子状態からの寄与を第一原理計算で評価し、各々の成分を足し合わせることで、精密な物性推算に成功した。

その後、専門家会合では、今後の研究協力として、模擬燃料物質であるフッ化カルシウムの物性値の測定と計算による物性解明及び物性予測を実施することが決められた。尚、フッ化カルシウムを選択した理由は、酸化物燃料と同じく、Bredig 転移と呼ばれる融点付近の高温状態での比熱の急激な上昇が見られるが、酸化物燃料より遥かに低い温度でその転移が起こることから、実験的による観測が容易かつ詳細なデータが取得可能となるからである。従って、得られる詳細なデータと共に、本現象のメカニズムを理解することが主要な目的となる。尚、Bredig 転移とは、二酸化ウランを始めとする酸化物燃料で普遍的に発生し、高温での熱物性における劇的な現象であることから、燃料の安全性評価に大きなインパクトを与え、その現象の詳細な

機構解明が待たれている。

本年度の研究では、MOX 燃料を想定して、フッ化カルシウムとフッ化ストロンチウムの固溶体に注目した。これらの固溶体によって Bredig 転移がどのように変化するかを、計算及び実験の両面から確認した。計算による解析には機械学習分子動力学を用いた。この手法では第一原理計算で大規模な学習データを生成し、それを基に機械学習で原子間ポテンシャルを作成し、これを用いて分子動力学計算で物性評価する。学習データの生成及び、分子動力学シミュレーションでは大規模な計算リソースを必要とするため、大型計算機を用いた。

## (2) 利用内容・結果:

本研究の目標は、燃料物質の模擬物質である二フッ化カルシウムと二フッ化ストロンチウムの固溶体の高温での熱物性を評価するため、機械学習分子動力学を行うことである。具体的には、始めに (Ca,Sr) F<sub>2</sub> に対する機械学習ポテンシャルを作成し、次にこれを用いて高温での比熱の評価を行う。

まず、機械学習ポテンシャルを作成するためには、学習データを用意しなければならない。学習データの作成には第一原理計算パッケージである VASP を用いた。VASP では、密度汎関数法 (DFT) を用いて、原子系のエネルギーを評価することができる。学習データとしては、原子配置とそのエネルギーが相当する。今回の学習データでは、原子配置に関しては、昨年度作成した CaF<sub>2</sub> の機械学習ポテンシャルの学習データを流用した。CaF<sub>2</sub> の原子配置に対して、Ca 原子をランダムに Sr 原子に置き換えることにより、(Ca,Sr) F<sub>2</sub> の原子配置を作成し、その原子配置に対して VASP を用いて、エネルギーを計算した。用いた原子配置の総数はおよそ 12 万である。1 つの原子配置当たりの原子数は 324 個である。また、DFT に用いた交換相関相互作用としては最近開発され、信頼性の高い SCAN を用いた。

これらの学習データから、Behler-Parrinello のニューラルネットワークポテンシャルを作成した。このニューラルネットワークポテンシャルでは、原子配置から対称関数と呼ばれる記述子を作成し、その対称関数を入力とし、エネルギーを出力とする多層ニューラルネットワークを構築する。そのニューラルネットワークのパラメータを機械学習によって決定した。今回のケースでは対称関数は 1 元素当たり 132 種類用意した。また、1 元素当たりのニューラルネットワークは隠れ層 2 層で、各層あたり 20 ノードのものを用いた。学習の結果、原子当たりのエネルギーに対する平均平方根誤差は学習データ、テストデータともに  $4 \times 10^{-4} \text{eV}$  以下になった。なお、機械学習には n2p2 パッケージを用いた。

このように得られた、機械学習ポテンシャルを用いて分子動力学コード LAMMPS で NPT シミュレーションを行ない、比熱を求めた。具体的には 10K おきに NPT シミュレーションを行ない、各温度でのエンタルピーを求めて、それを温度で数値微分することによって比熱を得た。その結果を図 1 に示す。CaF<sub>2</sub> 及び SrF<sub>2</sub> は 1400K 付近にピークが見られる。これらは Bredig 転移に相当するものである。それに対して、Ca<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>F<sub>2</sub> の比熱は 1270K 付近にピークが下がっている。図 1 に示した実験結果と比較すると全体的にピークの温度を 50K から 80K 程度過小評価しているが、相対的なピークの関係はよく再現している。

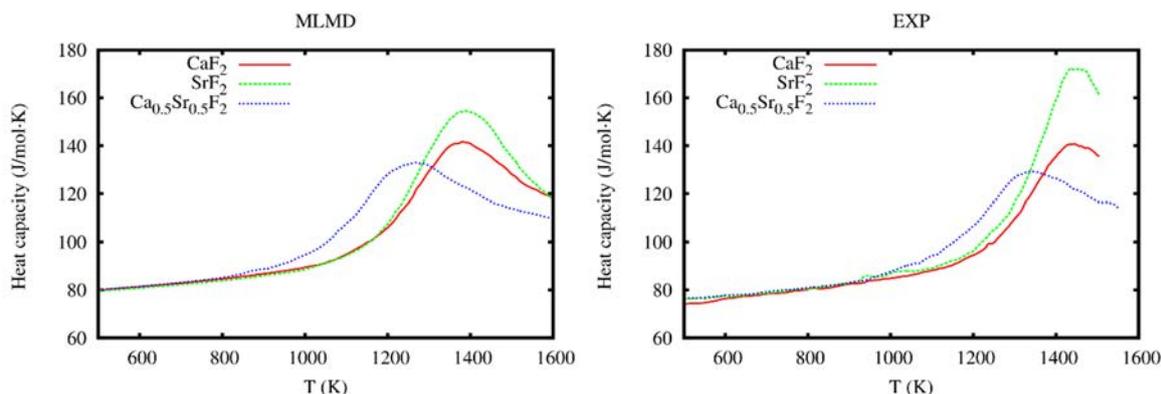


図1 機械学習分子動力学による (Ca,Sr) F<sub>2</sub> の比熱 (左) と実験値 (右)

これまで、(Ca,Sr) F<sub>2</sub> のような固溶体に対して第一原理計算を用いた大規模分子動力学は計算コストの面から困難であったが、機械学習分子動力学を用いることで、第一原理分子動力学と同等の信頼性のあるシミュレーションを低計算コストで実行可能となった。この手法の有効性が (Ca,Sr) F<sub>2</sub> 固溶体に対して示されたことで、今後、MOX 燃料物質への応用が期待できる。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

査読付論文

- 1) M. Watanabe, H. Nakamura, K. Suzuki, M. Machida, M. Kato, Defect equilibria and thermophysical properties of CeO<sub>2-x</sub> based on experimental data and density functional theory calculation result, Journal of The American Ceramic Society, 2022, vol. 105, No. 3, pp. 2248-2257.

### (4) 今後の利用予定:

今後も本研究を継続していく予定である。特に、MOX 燃料を模擬した CaF<sub>2</sub> と SrF<sub>2</sub> の固溶体に対する解析を継続し、MOX 特有の物性評価を試みる一方、中性子散乱実験の解析にも応用していく予定である。

## 5.9.2 マイナーアクチノイド回収用抽出剤 HONTA の電子構造及び電荷移動に係る研究

### Investigation of the Electronic Structure and Charge Transportability of HONTA for Minor Actinide Recovery

宮崎 康典<sup>1</sup>、町田 昌彦<sup>2</sup>

<sup>1</sup>燃料サイクル設計室、<sup>2</sup>システム計算科学センター

#### (1) 利用目的:

核燃料サイクルの確立に当たり、使用済燃料再処理で発生する高レベル放射性廃棄物 (HLW; High-Level radioactive Waste) の処理処分方法が課題となっている。核分裂生成物やマイナーアクチノイド (MA; Am, Cm) を含む再処理廃液は、ガラス固化処理後、地層処分することになるが、数万年に渡る安定な閉じ込めや放射線管理等が求められる。原子力機構では、HLW の潜在的有害度や発熱の主要因である MA を再処理廃液から分離し、MA 含有燃料に調製後、高速炉や加速器駆動システム (ADS; Accelerator Driven System) で短寿命核種や非放射性核種に変換する「分離変換」によって、放射性廃棄物の減容化および有害度低減に資する取り組みを進めている。

再処理廃液からの MA 分離は、リン酸トリブチルを抽出剤として使用する再処理 PUREX (Plutonium Uranium Redox EXtraction) と同じ溶媒抽出法を基本に、MA と選択的に錯形成する新規抽出剤の開発が積極的に行われている。図 1 の *N,N,N',N',N'',N''*-hexaocetylnitrilotriacetamide (HONTA) は、希釈剤 *n*-dodecane に対する溶解性や硝酸水溶液との相分離性が良好で、従来の新規抽出剤よりも比較的安く合成可能なため、工学規模での取扱可能性が示されている。また、再処理実廃液からの Am 回収を達成しており、将来の MA 分離プロセスに有望視されている。その一方で、有機物特有の放射線分解による安全性が懸念される。様々な放射性核種を含む再

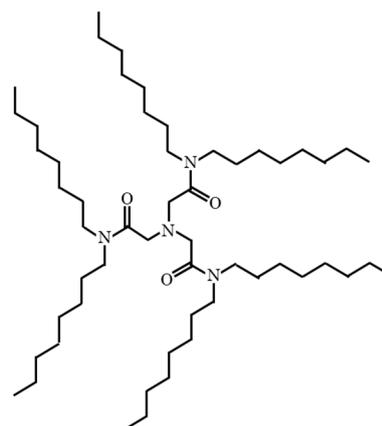
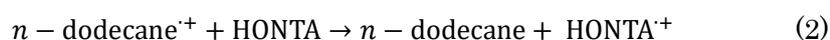


図 1 HONTA の分子構造

処理廃液からの放射線を受けて、新規抽出剤は放射線分解によって低分子化するが、相分離性の悪化だけでなく、分配比の低下や発火点・引火点の低下等を引き起こす。実用的な MA 分離プロセスの構築には、放射線分解機構を明らかにした上で、分解抑制策を提示する必要がある。

電子線を用いたパルスラジオリシスによる先行実験から、分解初期反応には電離した *n*-dodecane と HONTA の電荷移動が示唆され、その速度定数は  $(7.6 \pm 0.8) \times 10^9 \text{ M}^{-1}\text{s}^{-1}$  と見積もられている。式(1)から式(3)に放射線分解の初期反応スキームを示す。



本課題では、式(2)に示す電荷移動性の理解に向けて、*n*-dodecane と HONTA を単体ごとに

取り扱った量子化学計算を行い、電子基底 ( $S_0$ ) 状態と電離 ( $D_0$ ) 状態における分子構造と断熱遷移のエネルギーを比較した。

## (2) 利用内容・結果:

本課題では、量子化学計算プログラム Gaussian09 を用いて、密度汎関数法 B3LYP と基底関数 6-31G(d) の組合せにより *n*-dodecane と HONTA の構造最適化を行った。構造自由度の高いこれら分子は多様なコンフォメーションが可能であるため、 $S_0$  状態と  $D_0$  状態のそれぞれを最適化するに当たり、基準振動解析で虚数の現れない、少なくともローカルミニマムにあることを確認し、ゼロ点振動を考慮した電子エネルギーを算出した。また、有機相模擬として、*n*-dodecane ( $\epsilon = 2.01$ ) 溶媒和環境の連続分極体モデル (PCM; Polarizable Continuum Model) を適用し、上記同様の最適化計算を行った。

図 2 に B3LYP/6-31G(d) で計算した気相中 HONTA の (a)  $S_0$  状態と (b)  $D_0$  状態の分子構造と分子軌道をそれぞれ示す。アミン窒素の対電子が 1 つ失われることで、アミン窒素周辺の電子反発がなくなり、カルボニル酸素と  $CH_\alpha$  の分子内結合長が 2.177 Å から 2.645 Å に伸びるとともに、アミド基側鎖 CH との分子内結合を作りやすくなる結果が得られた。これらの傾向は分子軌道を反映している。

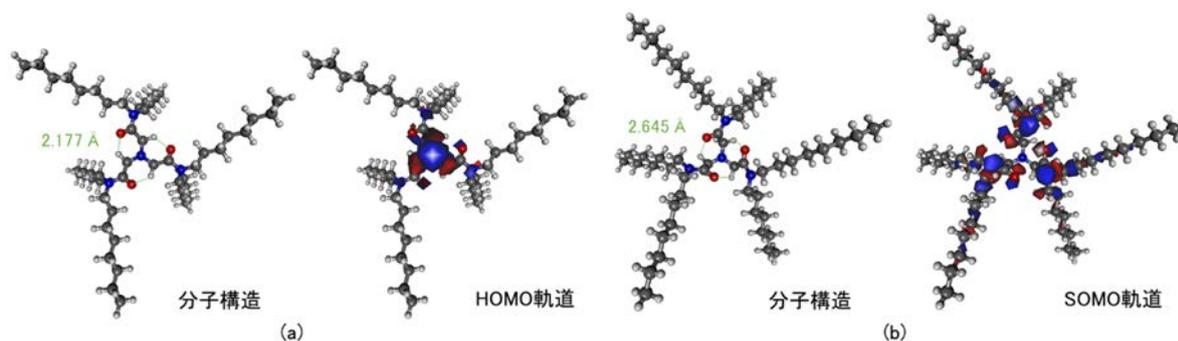


図 2 (a)  $S_0$  状態と (b)  $D_0$  状態で最適化した HONTA (気相) の分子構造と占有軌道

図 3 には B3LYP/6-31G(d)/PCM で計算した有機相模擬 HONTA の (a)  $S_0$  状態と (b)  $D_0$  状態の分子構造と分子軌道をそれぞれ示す。カルボニル酸素と  $CH_\alpha$  の分子内結合長は 2.768 Å から 2.660 Å と変化が小さく、分子構造に違いは見られなかった。本結果は、放射線による HONTA の電離 (e.g. Franck-Condon 則に従う垂直遷移、もしくは直接作用) には  $D_0$  断熱構造をそのまま適用することができ、SOMO 軌道から、主にアミド基側鎖 ( $C(=O)-NR_2$ ;  $R =$  オクチル基) の結合解離性に係る説明が可能である。

一方で、気相 HONTA と比較して、 $S_0$  状態で中心のアミン窒素周辺がすでに縮こまっている有機相 HONTA は、*n*-dodecane からの影響を受けやすいと予想される。電荷移動はその一つであり、電離後の溶媒緩和等で様々な状態に分布しているであろう *n*-dodecane と HONTA の相互作用だけではなく、電荷移動で生成する HONTA の状態や分解物を明らかにする必要がある。本課題では、それらに先駆けて、量子化学計算でそれぞれ単体ごとに取り扱ったときの断熱遷移のエネルギー差 ( $\Delta E; E_{D_0} - E_{S_0}$ ) を比較した。

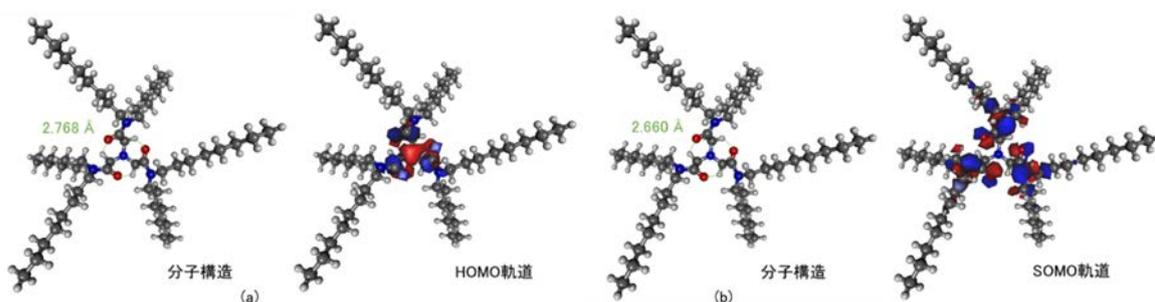


図3 (a)  $S_0$  状態と(b)  $D_0$  状態で最適化した HONTA (有機相模擬) の分子構造と占有軌道

表 1 に気相と有機相模擬の計算結果をそれぞれ示す。どちらにおいても HONTA は *n*-dodecane よりも小さく、垂直遷移でも同様の傾向が得られている。つまり、 $\Delta E$  の大きな *n*-dodecane が電離すると、 $\Delta E$  のより小さな HONTA に正孔が移動する従来通りの考え方を支持するものである。ただし、それは  $D_0$  状態間の電荷移動に限定されることに注意する。

表 1 気相と有機相模擬でそれぞれ計算した断熱遷移エネルギーの差 ( $\Delta E$ )

species	$\Delta E_{\text{gas}}$ (eV)	$\Delta E_{\text{PCM}}$ (eV)
<i>n</i> -dodecane	8.92	8.08
HONTA	6.24	5.71

Marcus 理論によると、温度一定条件下における電荷移動の反応速度は、溶質-溶媒間の電子カップリング ( $V$ ) と断熱遷移エネルギーの差 ( $\Delta E$ )、および溶媒の再配向エネルギー ( $\lambda$ ) に依存することになる。本課題では、そのうちの断熱遷移エネルギーの差 ( $\Delta E$ ) に注目した計算を行い、溶質-溶媒間で起きる正孔移動の妥当性を示した。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

今後、HONTA・*n*-dodecane の 2 量体モデルを用いて、正孔 (電子) 移動に伴う溶質-溶媒間の電子カップリングを取得する予定である。

## 5.10 炉設計部

### Reactor Systems Design Department

#### 5.10.1 高温ガス炉燃料製造時の臨界安全のための可燃性毒物混合燃料概念の研究 Study on Burnable Poison Mixed Fuel for Criticality Safety of HTGR Fuel Fabrication

深谷 裕司

高温ガス炉設計グループ

##### (1) 利用目的:

東京電力福島第一原発事故以降、高温ガス炉の高い安全性が評価され、エネルギー基本計画、2050年カーボンニュートラルに伴うグリーン成長戦略にその開発が明記されるなど、商用発電炉、熱利用炉として高温ガス炉の社会実装への期待が高まりつつある。一方で、原子力機構では、商用高温ガス炉概念として GTHTR300 の開発を進め、その設計を完成させている。この設計においては、取り出し燃焼度 120GWd/t という非常に高い燃焼度を達成するために、U-235濃縮度 14wt%の燃料を用いる計画である。そのため、燃料製造時の臨界安全対策が懸念される。

一方で、軽水炉に関しても、高濃縮度化の要求があり、次世代軽水炉では濃縮度は 10wt%程度が想定され、既存の核燃料サイクルインフラが濃縮度 5wt%に規制されているという障害を取り除く必要があり、エルビアクレジット概念が提案された経緯がある。この概念では、ウラン燃料粉末の時点で可燃性毒物を混入し、燃料製造時の臨界性も可燃性毒物により制御する画期的な概念であり、臨界安全のために既存のインフラを変更する必要もなく、その可燃性毒物は原子炉内で燃焼するため、炉心性能を低下させることもない。

本研究の目的は、このエルビアクレジット概念の高温ガス炉燃料製造への適用に関する成立性を確認するものである。なお、実際に HTTR の燃料製造にかかわった原子燃料工業と議論の上、この検討を行っている。概念の成立に対する要求としては、HTTR の燃料製造に用いた同等のインフラ、もしくは、現行軽水炉燃料施設と同等の臨界安全対策を用いて濃縮度 14wt%の燃料製造ができること、混入した可燃性毒物が高温ガス炉の炉心性能を損ねることがないことである。

##### (2) 利用内容・結果:

本研究では、モンテカルロ法に基づく、中性子輸送コード MVP による解析を行い、臨界性の評価を行っている。燃料製造性に関しては、最小臨界質量を評価するための水反射体付き燃料溶液の球体系を、高温ガス炉体系に関しては、全炉心体系において燃焼解析を実施している。特に、全炉心燃焼解析には、多大な計算コストが必要となり、大型計算機 HPE SGI8600 の利用が必須である。

初めに、燃料製造時の臨界安全に関し検討を行った。臨界安全対策は基本的に、質量管理と形状管理に分けられる。質量管理に関しては、絶対に臨界にならない質量にプロセス量を制限する。形状管理は中性子の体系からの漏洩を利用し臨界を抑制する。一方で、質量管理の基準となる最小臨界質量

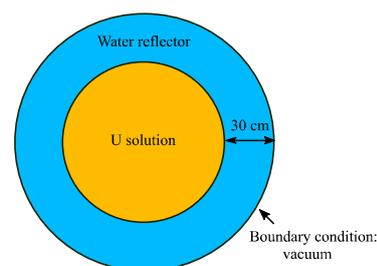


Fig.1 燃料溶液体系

も Fig.1 に示すように、中性子の漏洩を考慮に入れて決められる。具体的な体系を考慮した臨界安全評価だと設計に依存し汎用的な解が得られないことから、最小臨界質量を用いた臨界安全対策を行うこととした。具体的には、既に、国内で製造実績のある HTTR 燃料の濃縮度の 9.9wt% (HTTR 級臨界安全) および、軽水炉インフラで認められている 5wt% (軽水炉級臨界安全) の最小臨界質量を、商用高温ガス炉の濃縮度 14wt% に可燃性毒物を混ぜた燃料において実現できるように可燃性毒物の混入量を決定する。混入する可燃性毒物にはホウ素 (B)、ガドリニウム (Gd)、エルビウム (Er)、ハフニウム (Hf) を考慮した。結果を Table 1 に示す。

Table 1 可燃性毒物の U に対する質量割合 (wt%)

可燃性毒物	HTTR 級臨界安全	軽水炉級臨界安全
B	0.0605	0.181
Gd	0.0187	0.0567
Er	2.6	-*
Hf	3.14	-*

\*明らかに許容できない炉心性能の低下を招くため対象外とした。

次に、この可燃性毒物を添加した状態での臨界性の燃焼特性を無限セル計算により確認した。結果を Fig.2 に示す。なお、可燃性毒物の添加量は HTTR 級臨界安全のものである。サイクル末期 (60GWd/t) における臨界性の低下は、サイクル長の低下を招き、経済性の悪化へとつながる。そのため、サイクル末期までに可燃性毒物が燃焼し切ることが望ましい。燃料製造時の溶液体系において臨界性が同じ燃料であるにもかかわらず、高温ガス炉体系では、臨界性が大きく異なる結果となっている。B,Gd に関しては、未燃焼時に臨界性が低下していないこともあり、燃焼が進むにつれて、可燃性毒物を添加していないケースと同等の臨界性が顕在化してくる。一方で、Er,Hf に関しては、臨界性が大きく損なわれ、高温ガス炉体系にはそぐわない。このような体系の違いによる可燃性毒物の毒作用の違いは、Fig.3 に示すように中性子スペクトルの違いが原因である。燃料溶液体系では、マクスエル分布のピークが 0.06eV にあるのに対し、高温で中性子の上方散乱が多い高温ガス炉体系においては 0.3eV にピークがシフトしている。これは、燃料溶液体系でも炉心体系でも水減速で特性が余り変わらない軽水炉には見られない特徴である。Gd に関しては、断面積が大きく毒作用が顕著な Gd-155,Gd-157 の熱中性子領域における断面積が  $1/v$  特性よりも急峻であり、スペクトルが高エネルギーにシフトする高温ガス炉体系では、毒作用が弱まる特異な性質が、本概念にとって非常に有効な結果をもたらしている。

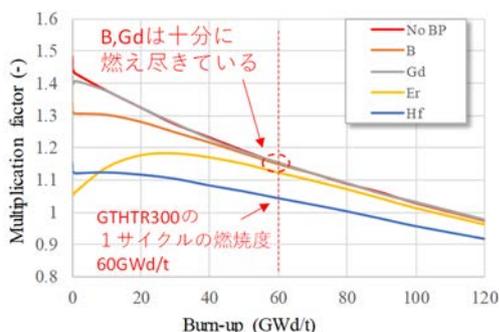


Fig.2 無限セル計算による燃焼特性係

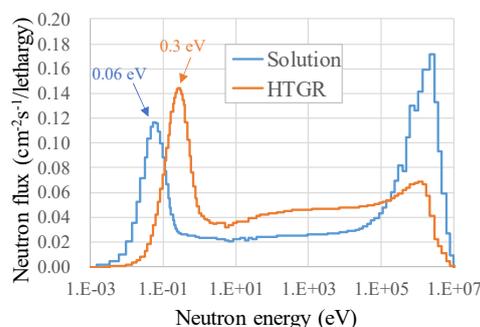


Fig.3 中性子スペクトルの比較

同様の炉心性能は全炉心燃焼解析によっても確認している。Fig.4 に計算体系を示す。最終的に確認された達成燃焼度を Table 2 に示す。

B,Gd に関しては、HTTR 級臨界安全、軽水炉級臨界安全共に、達成燃焼度の低下がみられない。B,Gd に関しては、本概念に非常に適した可燃性毒物である。一方で、Er,Hf に関しては、炉心性能を著しく低下させるため、本概念には適さないといえる。

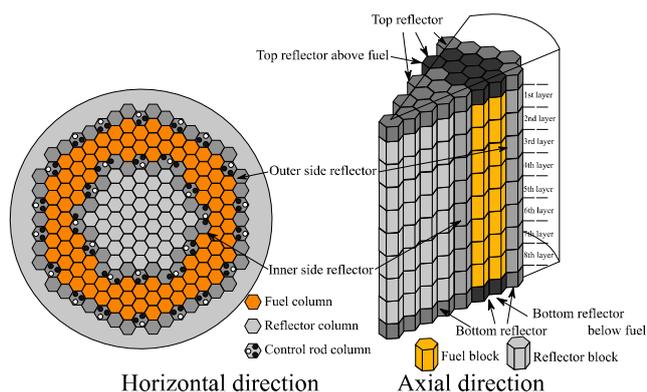


Fig.4 全炉心燃焼解析体系

Table 2 可燃性毒物燃料炉心の達成燃焼度 (GWd/t)

	HTTR 級臨界安全	軽水炉級臨界安全
No BP (参考)	107.8	107.8
B	107.8	107.8
Gd	107.8	107.8
Er	103.5	-*
Hf	77.0	-*

\*明らかに許容できない炉心性能の低下を招くため対象外とした。

このように、高温ガス炉燃料製造時の臨界安全のための可燃性毒物混合燃料概念の核的な成立性は確認できた。今後は、本テーマを基に、燃料の製造性を含めた研究へ発展させていく予定である。なお、本テーマは、その有用性が認められ、原子力機構内の競争的資金制度である令和 2 年度理事長裁量経費に採択された経緯がある。本研究もその募集テーマの一環として実施したものであり、今後は外部予算を用いて燃料製造試験を実施していく計画である。本成果が将来の商用高温ガス炉の実現に貢献することを期待する。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等) :**

- 1) Y. Fukaya, S. Ueta, M.Goto, et al. “Feasibility study on burnable poison credit concept to HTGR fuel fabrication from core specification perspective”, Ann. Nucl. Energ. 151, pp.107937\_1-107937\_9, 2021.
- 2) T. Hasegawa, Y. Fukaya, S. Ueta, et al., “Manufacturability estimation on burnable poison mixed fuel for improving criticality safety of HTGR fuel fabrication”, Proc. of ICONE28, 2021.

**(4) 今後の利用予定:**

高温ガス炉の設計を詳細化するために、設計システムの開発を進める予定である。そのため、大型計算機 HPE SGI8600 の計算能力に期待するジョブシステムの構築を期待する。

## 5.11 廃炉環境国際共同研究センター Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science

### 5.11.1 福島第一原子力発電所の廃炉技術へのレーザー加工技術適用に向けたシミュレーション手法の開発(1) Simulation Method of Laser Processing Technology for Applying to Decommissioning Technology of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1)

柴田 卓弥<sup>1</sup>、山下 晋<sup>2</sup>、北村 竜明<sup>3</sup>、坂本 健作<sup>3</sup>、赤岡 克昭<sup>1</sup>

1 先進放射線計測研究グループ

2 炉物理・熱流動研究グループ

3 システム計算科学センター 高性能計算技術利用推進室

#### (1) 利用目的:

福島第一原子力発電所（1F）の廃炉技術として、燃料デブリと構造物を回収するためのレーザーとウォータージェットを組み合わせた加工技術を開発している。この技術を確認するためには、物体表面が水流で覆われている条件で起こるレーザーによる水の蒸発や物体の溶融などの現象を明らかにするとともに、レーザー出力やエネルギー密度などのパラメータを対象物に合わせて最適に制御することが必要である。そこで、レーザーによる水の蒸発や物体の溶融などの現象をシミュレーションによって明らかにするための解析手法の開発を行った。これまでに、レーザー入熱を想定した加熱領域に対し、ノズル先端から水を噴射した場合の解析を行い、レーザー入熱量、噴流水速度、計算格子サイズなどのパラメータがシミュレーション結果に及ぼす影響を評価した。具体的には、レーザーによって材料が溶融する過程及び溶融池に水噴流が衝突する過程に対して各パラメータによる予測結果の違いを明らかにした。また、本計算体系では乱流の影響が強く、解析条件によっては計算が発散することを確認した。本研究開発は、これまでに得られた知見を基に、新たに解析条件を設定し、多相多成分詳細熱流動解析コード JUPITER を用いて評価改正を実施した。

#### (2) 利用内容・結果:

レーザーによる水の蒸発や物体の溶融等の現象をシミュレーションによって明らかにする解析手法の開発を行うため、多相多成分詳細熱流動解析コード JUPITER を使用し、レーザー照射を模擬した金属溶融と水噴流条件を同時に計算するモデル系を作成し解析を実施した。また、レーザー加熱シミュレーションで得られた解析結果から可視化画像の作成を ParaView（オープンソース可視化フリーソフトウェア）で行った。

レーザー照射を模擬した加熱による金属の溶融と水噴流による溶融スラブの移行現象をシミュレーションにより評価、検討したモデル形状を図 1 に示す。このモデルは、ステンレス鋼表

面のレーザー加熱領域に対して 15°の角度で水噴出口より水噴流が衝突する。レーザーによる加熱領域は奥行き中央部 7 mm の箇所に φ4 mm、奥行きは 30 mm、となっている。図 2 にレーザー照射を模擬したシミュレーションの評価、検討をするための解析領域メッシュを示す。

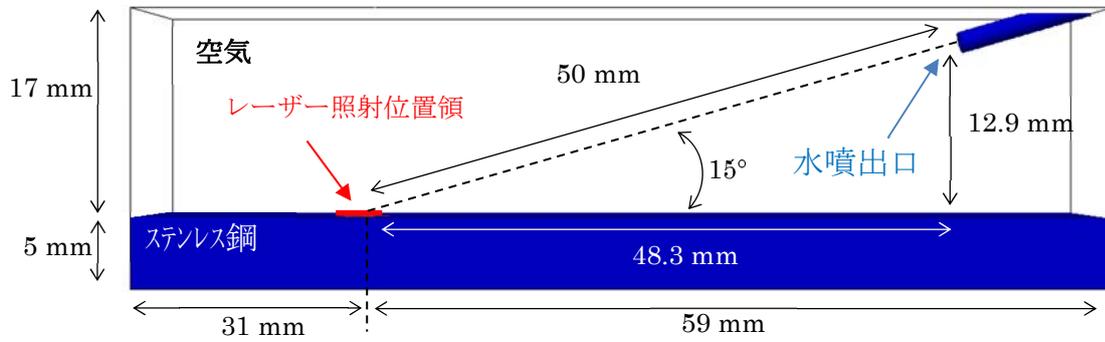


図 1 溶融モデル形状

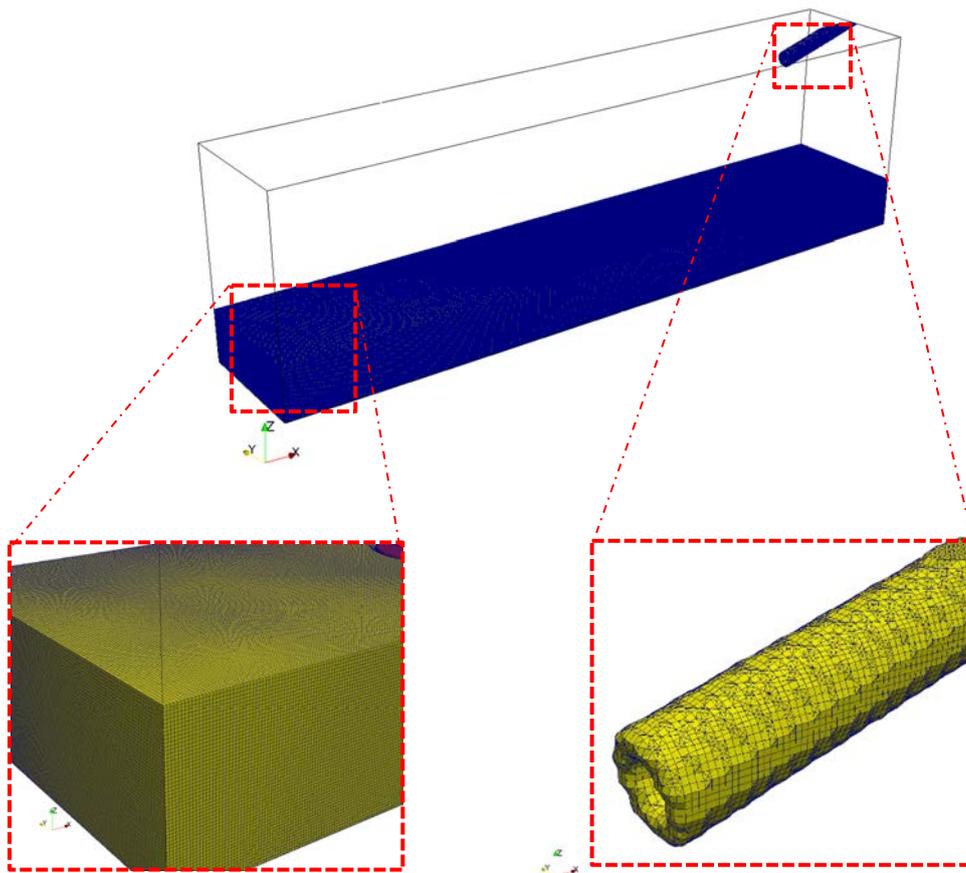


図 2 解析領域メッシュ

水噴流速度を 10、20、60、90、126.9 m/s に設定してシミュレーションを行った。図 3 に水噴流速度 90 m/s でのシミュレーション結果（体積分率）を示す。時間が経過するほど、レーザー照射部に穴が形成されていることが確認できた。噴流速度が遅い場合は、飛散した熔融スラグが熔融池周辺に付着し、噴流速度が早くなるにつれて熔融スラグは領域外へ吹き飛ばされてしまい熔融池周辺では確認できなかった。また、噴流速度が大きくなると、局所的に非常に速い流速が発生し時間ステップ幅が極めて小さくなり、計算コストが大きくなることが確認された。水の噴出速度が速くなると噴流が散乱してしまう等の現象について、メッシュサイズ等を小さくすること等で、噴出方向や散乱を短時間の解析では、安定させられることは確認できたが、計算コストが大きくなってしまい解析をするにはあまり現実的ではない。噴流を安定させるためのノズル形状についてはさらに検討が必要である。

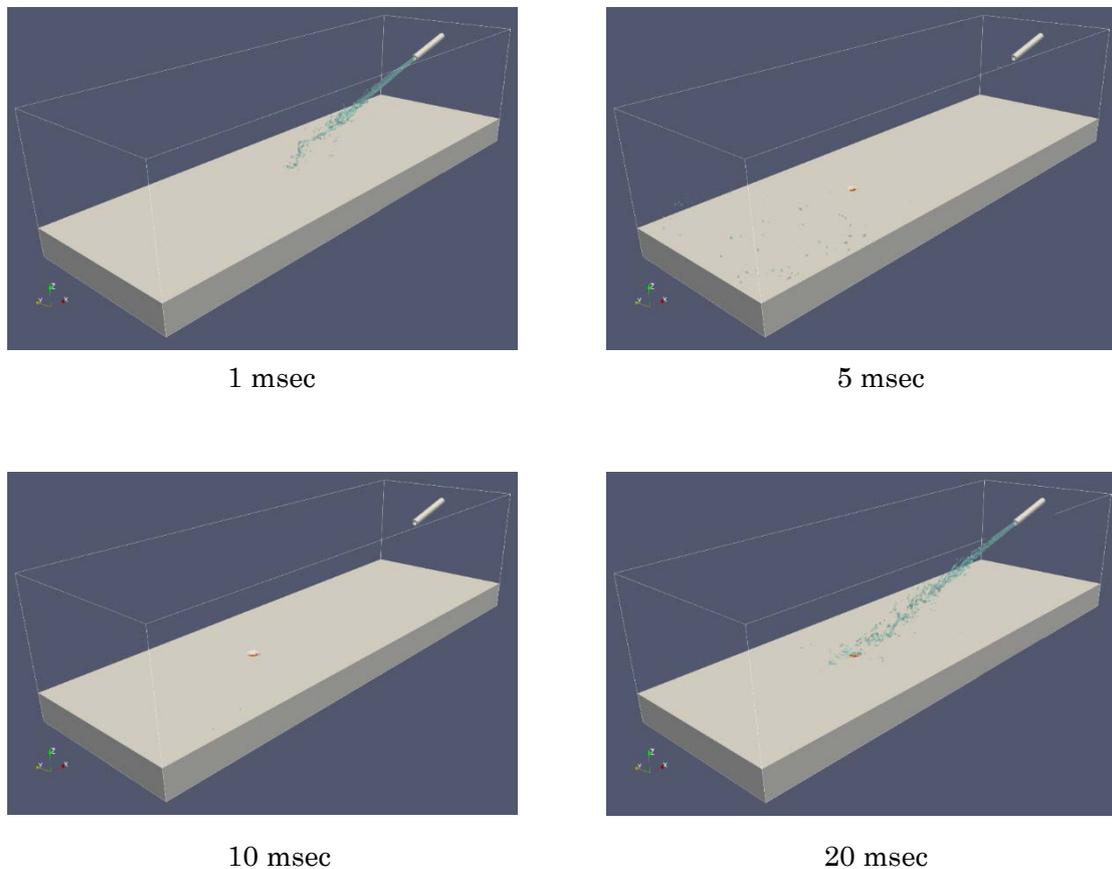


図 3 シミュレーション結果（体積分率）

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

今後も多相多成分詳細熱流動解析コード JUPITER を用いて、引き続き検討を行っていく。

## 5.11.2 福島第一原子力発電所の廃炉技術へのレーザー加工技術適用に向けたシミュレーション手法の開発(2)

### Simulation Method of Laser Processing Technology for Applying to

### Decommissioning Technology of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (2)

赤岡 克昭<sup>1</sup>、山下 晋<sup>2</sup>、北村 竜明<sup>3</sup>、坂本 健作<sup>3</sup>、柴田 卓弥<sup>1</sup>

1 先進放射線計測研究グループ

2 炉物理・熱流動研究グループ

3 システム計算科学センター 高性能計算技術利用推進室

#### (1) 利用目的:

福島第一原子力発電所（1F）の廃炉技術として、燃料デブリと構造物を回収するためのレーザーとウォータージェットを組み合わせた加工技術を開発している。この技術を確認するためには、物体表面が水流で覆われている条件で起こるレーザーによる水の蒸発や物体の溶融などの現象を明らかにするとともに、レーザー出力やエネルギー密度などのパラメータを対象物に合わせて最適に制御することが必要である。そこで、レーザーによる水の蒸発や物体の溶融などの現象をシミュレーションによって明らかにするための解析手法の開発を行った。これまでに、レーザー入熱を想定した加熱領域に対し、ノズル先端から水を噴射した場合の解析を行い、レーザー入熱量、噴流水速度、計算格子サイズなどのパラメータがシミュレーション結果に及ぼす影響を評価した。具体的には、レーザーによって材料が溶融する過程及び溶融池に水噴流が衝突する過程に対して各パラメータによる予測結果の違いを明らかにした。また、本計算体系では乱流の影響が強く、解析条件によっては計算が発散することを確認した。本研究開発は、これまでに得られた知見を基に、新たに解析条件を設定し、多相多成分詳細熱流動解析コード JUPITER を用いて評価改正を実施した。

#### (2) 利用内容・結果:

レーザーによる水の蒸発や物体の溶融等の現象をシミュレーションによって明らかにする解析手法の開発を行うため、多相多成分詳細熱流動解析コード JUPITER を使用し、レーザー照射を模擬した金属溶融と水噴流条件を同時に計算するモデル系を作成し解析を実施した。また、レーザー加熱シミュレーションで得られた解析結果から可視化画像の作成を ParaView（オープンソース可視化フリーソフトウェア）で行った。

レーザー照射を模擬した加熱による金属の溶融と水噴流による溶融スラブの移行現象をシミュレーションにより評価、検討したモデル形状を図 1 に示す。このモデルは、ステンレス鋼表面のレーザー照射領域に対して 15°の角度で水噴出口より水噴流が衝突する。レーザーによる加熱領域は奥行き中央部 15 mm の箇所に φ4 mm、奥行きは 30 mm、となっている。図 2 にレーザー照射を模擬したシミュレーションの評価、検討をするための解析領域メッシュを示す。

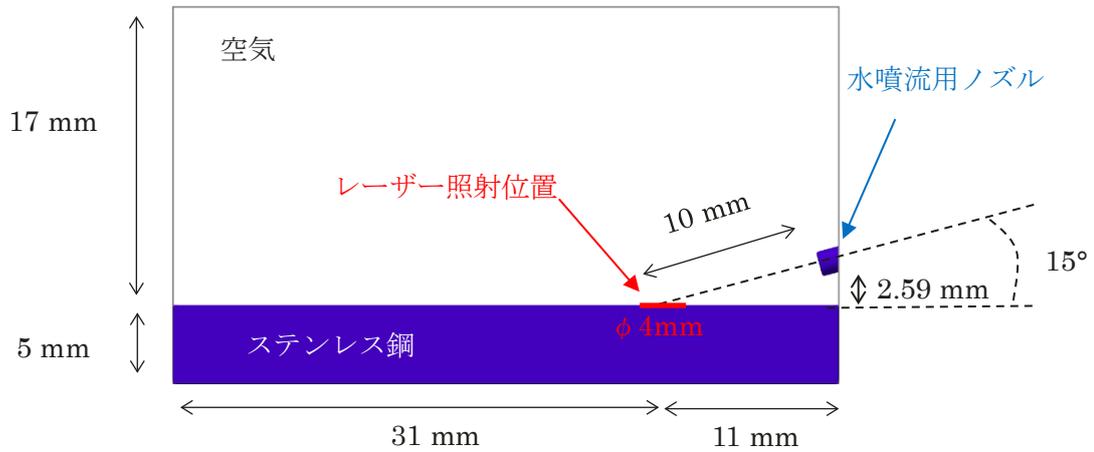
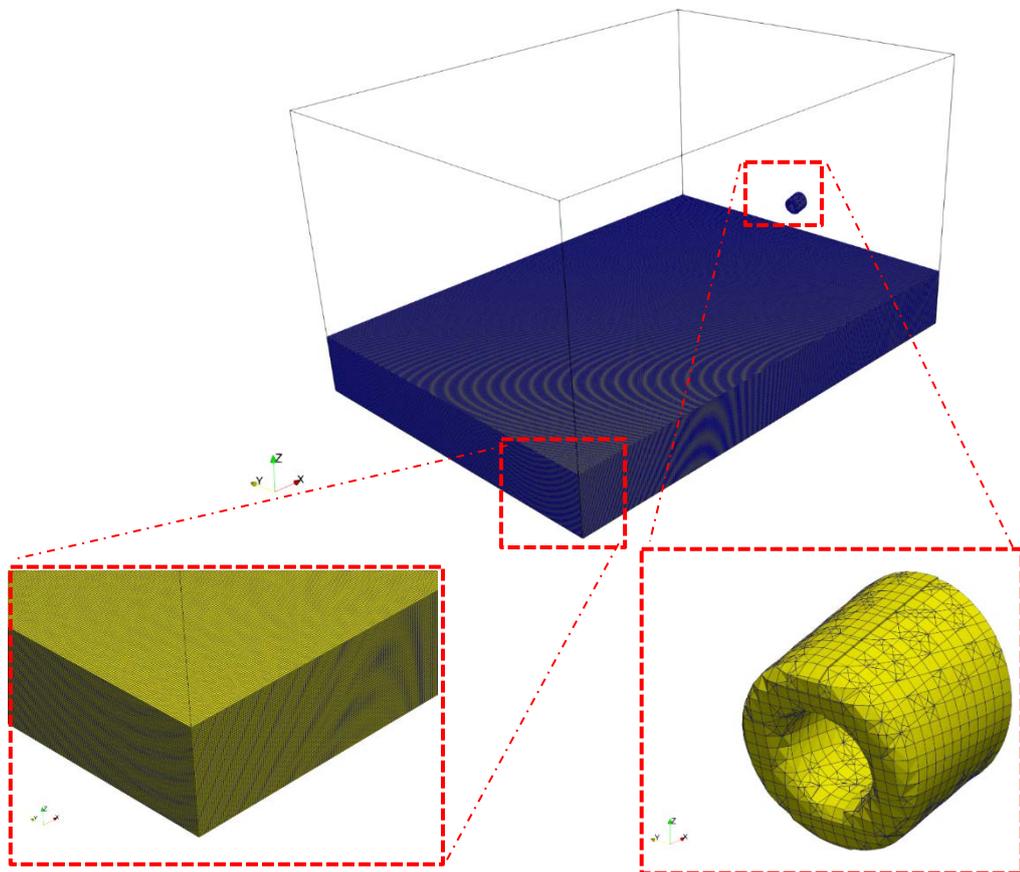


図1 溶融モデル形状



※メッシュ数：モデル形状 1,2,3 :  $x420 \times y300 \times z240 = 30,240,00$

図2 解析領域メッシュ

本モデルを用いて実験で適用している間欠式水噴流の検討を行った。水噴流速度を 20、126.9 m/s、間欠式水噴流は 0~2.3 msec 間が水噴出、2.3~18.5 msec 間を停止とした 1 周期に設定してシミュレーションを行った。また、ParaView のフィルター機能を使用し、溶融除去体積を

数値化した。図 3 に水噴流速度 20 m/s でのシミュレーション結果（体積分率）を示す。時間が経過するほど、熔融除去体積が増加し 6 周期（100 msec）までシミュレーションができることが確認できた。しかしながら、水噴流速度が早い 126.9m/s では計算が安定せず、発散や熔融した金属が消失してしまう現象が発生したため、パラメータの調整等を行ったが計算を安定させることができず、目的とした解析時刻（100msec）までの結果は得られなかったことから今後もさらに検討する必要がある。

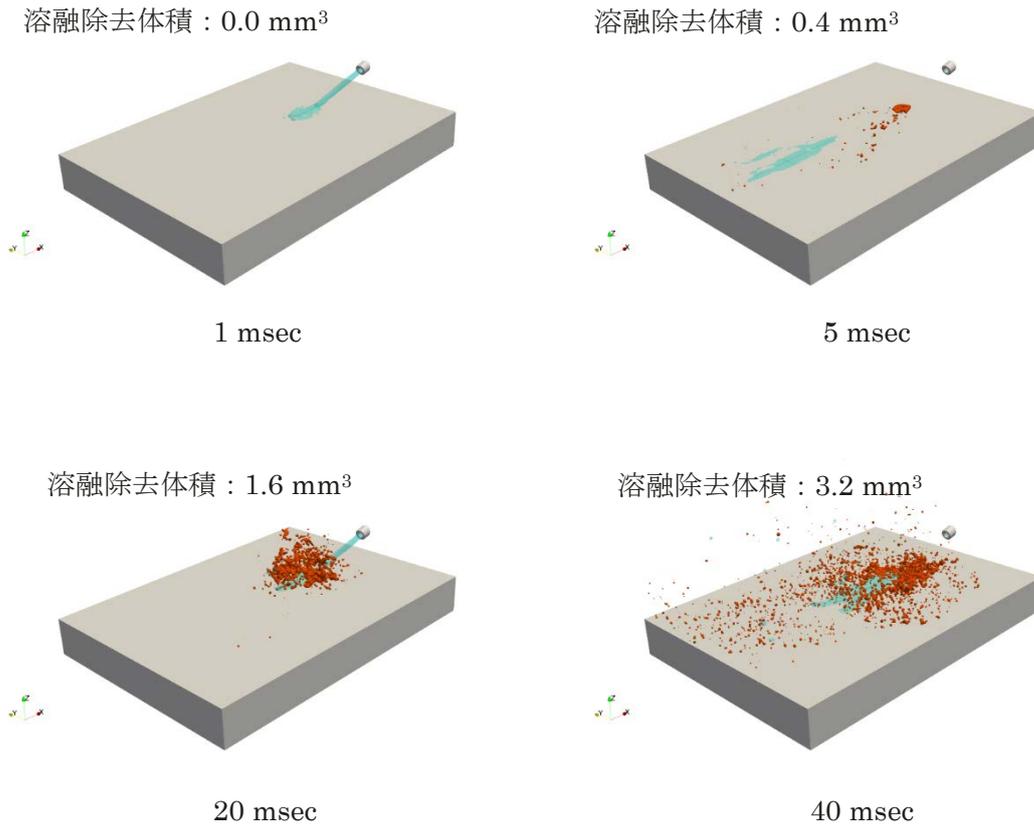


図 3 シミュレーション結果（体積分率）

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

今後も多相多成分詳細熱流動解析コード JUPITER を用いて、引き続き検討を行っていく。

### 5.11.3 水域動態モデル 3D-Sea-SPEC の河口・沿岸域への適用

#### Application of the Numerical Model of Radionuclide Migration in Water to a River Mouth and Coastal Areas in Fukushima

佐久間 一幸、吉田 航、木野 由也  
環境動態研究グループ

##### (1) 利用目的:

原子力機構では、福島第一原子力発電所の事故により環境中に放出された放射性物質の環境中における動態を調査、解析することにより、被ばく線量への影響が大きい移動経路を明らかにし、移動抑制等の対策を提案することを目指した研究開発を行っている。

原子力機構では、水域を対象とした放射性核種動態モデル 3D-Sea-SPEC の開発を継続中である。本モデルは、大規模な 3 次元空間中の水流及びそれに基づく浮遊土砂 (3 粒径) と放射性セシウムの移流拡散を計算するプログラムであるが、モデル適用対象の拡大と検証を継続的に実施する必要がある。

そのため、令和 3 年度においては、河口・沿岸域における放射性セシウム動態の定量的評価を目的とし、水域動態モデル 3D-Sea-SPEC を、福島沿岸域及び請戸川河口域へ適用した。

##### (2) 利用内容・結果:

上記の目的に資するため、福島事故初期の福島沿岸域における放射性セシウムの挙動について、3D-Sea-SPEC を用いた解析を実施し、結果を分析した。

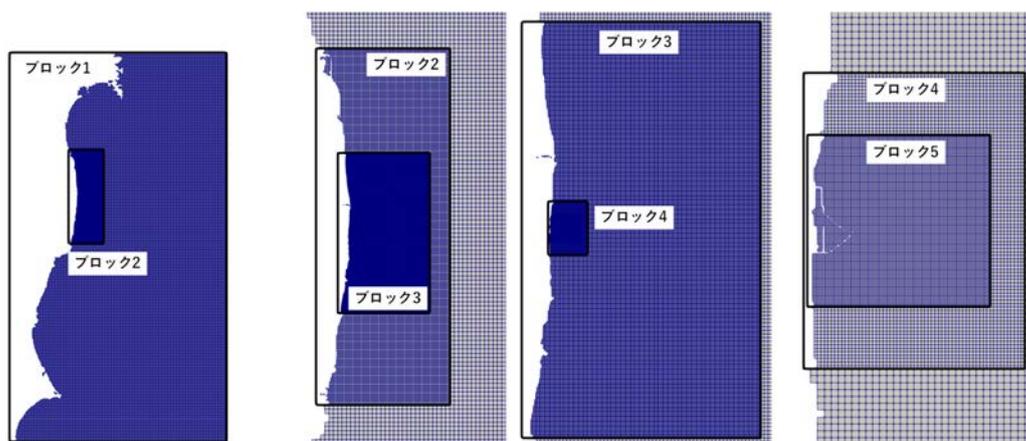


図 1 福島沿岸域を対象とした 5 段ネスティング

図 1 は福島沿岸域を対象とした 5 段ネスティングメッシュである。1F 港湾からの流出挙動を再現するために 1F 近傍を細かく、沖に行くに従い徐々に粗く設定した。

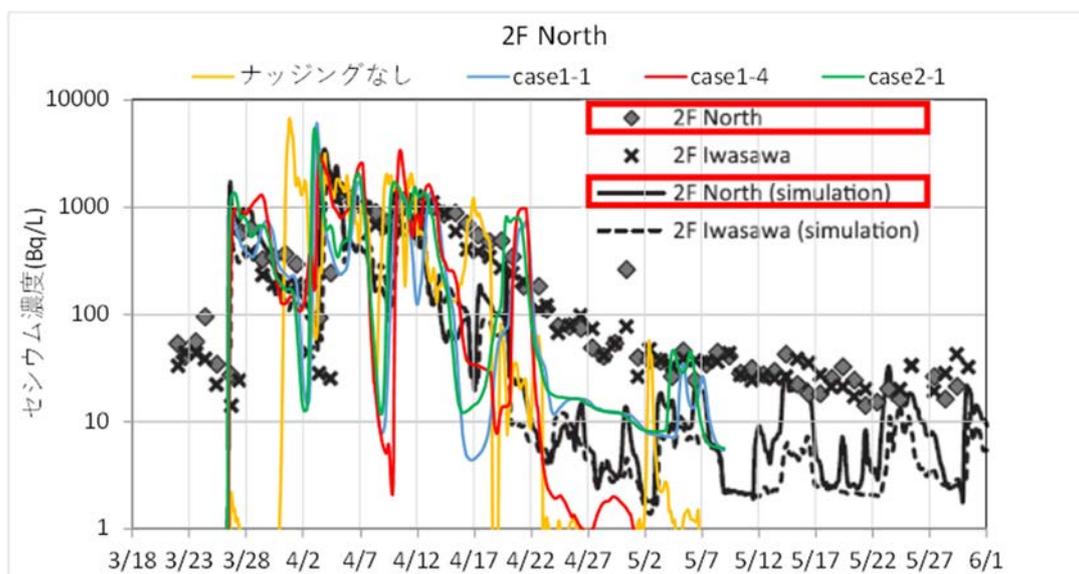


図 2 実測値と解析値の比較 (2F Iwasawa)

図 2 には、福島第二原子力発電所 (2F) の北側に位置するモニタリング地点のセシウム濃度とシミュレーションの結果を示した。解析ケースとしては、ナッジングの有無、ナッジング係数やデータ同化を表層のみか全層に適用するかの違いを考慮している。ナッジングを考慮したケースはいずれの場合も 3 月末から 4 月上旬にかけて実測値を良好に再現しており、4 月中旬ごろから過小評価する傾向にあったものの、既往研究 (図 2 の実線、Tsumune et al., 2012) と同様な傾向を示した。

河川から海へ流出した放射性セシウムの挙動評価のためのシミュレーションについては、実測している請戸川河口域へ適用した。本シミュレーションでは、令和 2 年度に懸濁態放射性セシウム濃度の再現性が低かったものの、堆積物中のセシウム濃度の空間分布を新たに入力データとして使用した結果、再現性が向上した。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

令和 4 年度においても、河口・沿岸域における放射性セシウムなどの挙動についての解析を継続して実施する予定である。

## 5.12 核不拡散・核セキュリティ総合支援センター Integrated Support Center for Nuclear Nonproliferation and Nuclear Security

### 5.12.1 粒子拡散モデル FLEXPART の SGI8600 への移植と並列実行確認 Installation of the Numerical Dispersion Model FLEXPART on the SGI8600 and Confirmation of Parallel Execution

古野 朗子  
CTBT・輸送支援室

#### (1) 利用目的:

包括的核実験禁止条約 CTBT 機関 (CTBTO) 準備委員会では、核実験の検知を目的に、放射性核種のほか、地震波、水中音波、微気圧振動波の観測を世界中で実施している。当室では、CTBTO との契約に基づき、日本国内の放射性核種監視観測所 (高崎、沖縄) および東海放射性核種実験施設を運用している。また、近年の東アジア情勢を鑑み、CTBTO と JAEA (当室) では幌延とむつに移動型希ガス観測装置を設置し、希ガスの観測を 2018 年より継続している。

これらの観測所では、不定期に高濃度の希ガスが観測される。核実験の証拠を確実に検知するためには、これらの高濃度希ガスの発生要因を突き止めることが大変重要である。このような目的のためには、大気輸送モデル (ATM) によるバックトラッキング解析が適している。

CTBTO では、世界中の観測所で放射性核種の高濃度検出事象が発生した際、ノルウェー大気科学研究所の A. Stohl 博士が開発した ATM (FLEXPART<sup>1)</sup>) によるバックトラッキング解析結果をポータルサイトに掲載している。また米国大気科学庁 (NOAA) が開発した HYSPLIT<sup>2)</sup> の利用も検討されている。当室でも 2010 年より HYSPLIT を用いてバックトラッキング解析を実施してきた。HYSPLIT のプリコンパイル版は PC でも簡単に動作し、粒子数十万個を用いた 72 時間の拡散計算が数分で終了する。濃度分布図も粒子分布図も簡単な操作で描ける。しかし水平解像度は 1.0°もしくは 0.25°の 2 種類しか選べず、詳細な放出可能領域推定は不可能である。

そこで当室では、FLEXPART を新たに導入した。FLEXPART にはいくつかバージョンがあるが、ここでは大気力学モデル WRF の出力を入力気象場として利用するバージョン (FLEXPART-WRF) を選んだ。FLEXPART は公開モデルであり、ソースコードは専用のサイト (<https://www.flexpart.eu/>) のほか論文の Supplement から取得することも可能である。利用登録も不要である。その一方でユーザーガイドや可視化支援機能などは充実していない。

そこで、令和 3 年度のプログラム高速化・並列化作業の支援を受け、FLEXPART の逐次版を機構の大型計算機に導入した。また、粒子分割による並列化により、計算の高速化を図った。

## 参考文献

- 1) Stohl A., The Lagrangian particle dispersion model FLEXPART version 6.2, Atmos. Chem. Phys., 2005, Vo1.5, 2461-2474, DOI: <https://doi.org/10.5194/acp-5-2461-2005>.
- 2) Stein A. F. et al., NOAA's HYSPLIT Atmospheric Transport and Dispersion Modeling System, Bulletin of the American Meteorological Society, Vol. 96, No. 12, 2015, 2059-2077, DOI: <https://doi.org/10.1175/BAMS-D-14-00110.1>

**(2) 利用内容・結果:**

本課題では、まず FLEXPART-WRF コードを SGI8600 に導入し、逐次版で実行する環境を整備した。さらに、FLEXPART-WRF コードが標準で装備している MPI プロセス並列、および OpenMP スレッド並列を用いて並列計算を実施した。

その結果、逐次版の結果と並列版の結果が大幅に異なることが判明したため、まずは並列実行と逐次実行との計算結果が一致するような修正および改良を施した。

具体的には、MPI プロセス並列実行、OpenMP スレッド並列実行でバグ等の問題点を修正した後、計算結果を一致させるために、並列実行時に変化するインデックス配列 `cpt(nbp)` が正常にカウントされるようなインデックス空転処理を追加した。最後に、MPI プロセス並列 + OpenMP スレッド並列のハイブリッド並列実行に対応するように、インデックス空転処理を改良した。最終的には、3 種類の並列実行で逐次実行と同じ計算結果を得られるようになった。

性能測定では、それぞれの並列化で逐次版と計算結果が一致する状態での測定を行い、逐次版で 604.14 秒の計算が、10 プロセスの MPI プロセス並列実行で 326.77 秒と 1.85 倍程度で実行できることを確認した。続いて、10 スレッドの OpenMP スレッド並列実行では 262.99 秒 (2.30 倍)、20 スレッドの OpenMP スレッド並列実行では 227.54 秒 (2.66 倍) で実行できることを確認した。ハイブリッド並列実行では、MPI プロセス数を 2 と 10 を基本として OpenMP スレッド並列数を変化させた測定を実施した。2 プロセス×20 スレッド並列実行では 245.58 秒 (2.46 倍)、10 プロセス×4 スレッドのハイブリッド並列実行では 247.78 秒 (2.44 倍) で実行できることを確認した。

並列化倍率を低下させている主な原因は、並列版であっても逐次処理部分が 3 割程度存在することであり、並列数に関わらず一定の処理時間が必要である。今後は、上記の逐次処理部分を可能な限り並列化するか、不可能な場合は可能な限り高速化することを検討する。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

令和 3 年度のプログラム高速化・並列化作業で明らかになった課題を改善するため、令和 4 年度のプログラム高速化・並列化作業で一層の高速化および利便性の向上を図る予定である。

## 5.12.2 中性子飛行時間測定のためのモデレータ設計

### Design of a Moderator for Neutron Time-of-flight Measurements

李 在洪<sup>1</sup>、弘中 浩太<sup>1</sup>、伊藤 史哲<sup>1,2</sup>、小泉 光生<sup>1</sup>、高橋 時音<sup>1</sup>、鈴木 敏<sup>1</sup>  
核不拡散・核セキュリティ総合支援センター 技術開発推進室<sup>1</sup>  
高エネルギー加速器研究機構<sup>2</sup>

#### (1) 利用目的:

原子力の平和利用を担保するため、原子力施設等においては、保有する核物質の量を計量管理し、不正な利用が行われていないことを内外に示す必要がある。しかし、原子力利用の拡大に伴い、計量管理を必要とする施設数は増え続けているため、計量プロセスの効率化が求められている。計量プロセスを効率化するためには、その場で即時・簡便に定量できる非破壊分析（NDA）技術が有用な技術として考えられており、核不拡散・核セキュリティ総合支援センター技術開発推進室では、そのための NDA 技術の高度化を進めている。

中性子共鳴透過分析（NRTA）は、加速器等を用いて発生させたパルス中性子を、核物質を含む試料に照射し、飛行時間（TOF）法を用いて、透過した中性子のエネルギースペクトルを測定する動的な NDA 技術の一つである。核物質中の原子核は、固有の共鳴エネルギーにおいて大きな核反応確率を示すため、核物質を透過した中性子のエネルギースペクトル中に現れる共鳴ピークの位置及び深さを分析することで、核種別の定量を行うことができる。

NRTA は、核種別の定量を高い精度で行える一方、その高い精度を達成するためのシステムは大規模であり、核物質が存在する原子力施設へ広く導入するためには、システムの小型化が求められている。システムを小型化するためには、TOF 測定時の中性子飛行距離を短くする必要があるが、その上で高いエネルギー分解能を達成するためには、短パルス中性子源が必要となる。そこで我々は、短パルス中性子の発生が期待できるレーザー駆動中性子源（LDNS）に着目し、LDNS を NRTA システムへ適用するための技術開発を進めてきた。その一つがモデレータ開発であった。

核物質を NRTA で分析するためには、中性子源により生成された高速中性子を、モデレータを用いて、核物質の共鳴構造がある熱～熱外エネルギー領域まで減速させる必要がある。一方で、中性子を減速させることは、パルス中性子の時間的な広がりを増大させ、TOF 測定時のエネルギー分解能を悪化させることにつながる。短パルス中性子が生成できる LDNS の特長を活かすためには、高速中性子を短いパルス幅を保ったまま熱～熱外エネルギー領域まで効果的に減速させるモデレータの開発が必要とされた。以上の理由から、本研究では、大型計算機 HPE SGI8600 を用いて、モンテカルロシミュレーションによるモデレータの設計及び性能評価を行った。

#### (2) 利用内容・結果:

本研究では、モンテカルロ・シミュレーション・コード PHITS を用いてモデレータの素材、形状及び構造を変化させながらモデレータの性能（中性子強度及びエネルギー分解能）を調査した。中性子のエネルギーが高い場合（<MeV）、モデレータの主な成分である水素原子核の中

中性子反応断面積が急激に小さくなるため、複数の素材を組み合わせたモデレータが有効であると考え、ポリエチレンモデレータの入射部に上部モデレータ、後方に散乱体を配置した複数素材モデレータを設計した。図1は、設計したモデレータの概念図を示したものである。

図2は、2 cm厚の上部モデレータの素材及び入射中性子エネルギーを変えながら、得られる中性子強度を調査した結果である。ベリリウム (Be) とタングステン (W) を上部モデレータの素材として採用した結果、それぞれ、6.5 と 8.5 MeV 以上の入射中性子に対して、ポリエチレン素材より中性子強度が大きくなったが、分解能の変化はあまりなかった。次に散乱体の素材として Be、W、鉛 (Pb)、炭素 (C) を採用した場合の中性子強度及びエネルギー分解能を調べたところ、Be と W が中性子強度及びエネルギー分解能の両方で優れた性能を見せた。以上の結果から、複数素材モデレータの有効性を確認することができた。

本成果は、文部科学省「核セキュリティ強化等推進事業費補助金」事業の成果の一部である。

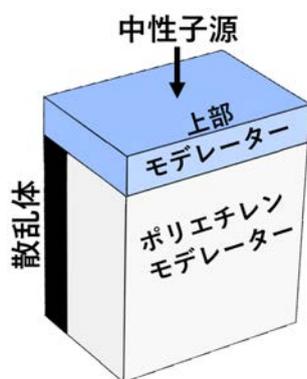


図1 モデレータの概念図

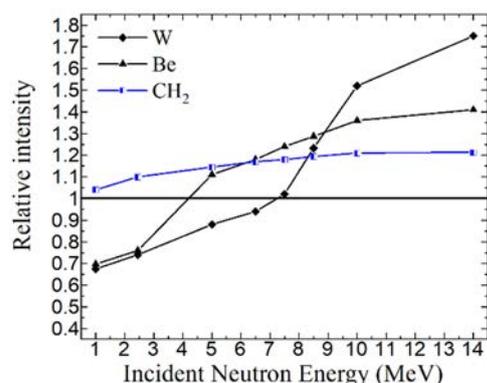


図2 上部モデレータの効果

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) J. Lee, F. Ito, K. Hironaka, T. Takahashi, S. Suzuki, and M. Koizumi, “Designs and neutronic characteristics of an epithermal neutron moderator at ambient temperature for neutron time-of-flight measurements”, J. Nucl. Sci. Technol., DOI: 10.1080/00223131.2022.2077259.

### (4) 今後の利用予定:

令和4年度からは、アクティブ中性子非破壊分析技術開発の一環で進めている中性子共鳴核分裂中性子分析技術の開発を開始する。本開発においても大型計算機 HPE SGI8600 を使用し、測定システム的设计や実験のシミュレーション等を行う計画である。

## 5.13 原子力人材育成センター

### Nuclear Human Resource Development Center

#### 5.13.1 放射線の測定実習に係る放射線挙動解析シミュレーション

##### Monte Carlo Simulations for Radiation Measurement Practice

松田 規宏  
原子力研修課

#### (1) 利用目的:

原子力人材育成センターでは、我が国における原子力人材を育成するために各種研修講座を開設している。そのなかで、放射性同位元素の崩壊に伴って放出される  $\alpha$  線、 $\beta$  線、 $\gamma$  線などの基本的な放射線に対する測定技術の習得は、多くの講座の必須カリキュラムである。現在の放射線測定実習は、実際の線源や測定装置に受講生自らの手で触れ、原理や基礎をしっかりと確かめることのできる内容となっているが、更なる理解度の促進を図るべく、粒子・重イオン輸送計算コード PHITS[1] を用いて、測定体系中での放射線の挙動（飛跡）を視覚的に表現する放射線挙動解析シミュレーションを実施した。放射線挙動解析シミュレーションに用いる数多くの飛跡データセットを短時間で得るためには、高い能力の計算機資源を必要とする。

#### (2) 利用内容・結果:

$\alpha$  線の測定実習では、 $^{241}\text{Am}$  の面状線源から放出される  $\alpha$  線を  $\text{ZnS}(\text{Ag})$  シンチレーション検出器で測定し、空気による  $\alpha$  線の減衰の様子を観察するとともに、この測定結果に基づいて空気中での  $\alpha$  線の最大飛程を推定する。この線源、及び検出器を詳細、かつ忠実に計算体系内に再現し、 $\alpha$  線測定実習の放射線挙動解析シミュレーションを実施した。 $\alpha$  線の飛跡を付加した計算体系を図 1 に示す。

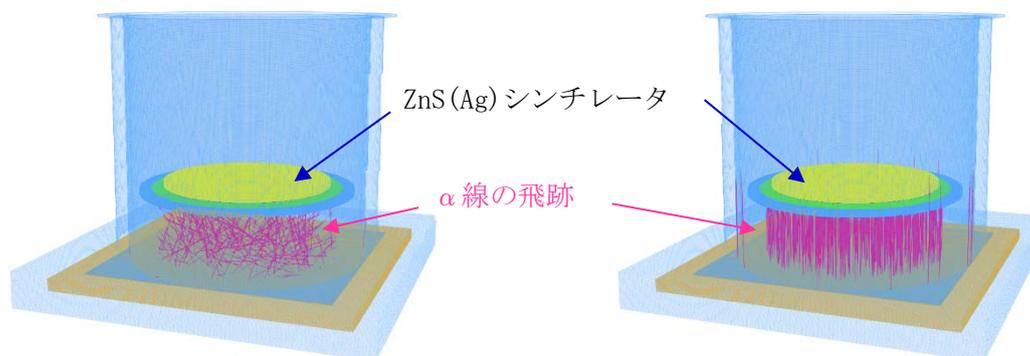


図 1 計算体系と  $\alpha$  線の飛跡（左：通常の線源、右：理想的な線源）

測定実習装置は、面状線源、検出器、及びこれらを保持するアルミニウム製の容器（図中の水色の物質）で構成されている。面状線源から放出される主な $\alpha$ 線のエネルギーは4.586 MeVで、その空気中での最大飛程は約4.2 cmになる[2]。図1左の「通常の線源」は、現実と同じく、 $\alpha$ 線を「等方」に発生させたもので、その乱雑な飛跡（桃色の線）は図中で確認することができる。もう一方の「理想的な線源」（図1右）は、線源の放出面に対して垂直に、 $\alpha$ 線の放出方向を「平行」に揃えて発生させたものである。実際のZnS (Ag) シンチレーション検出器を用いた $\alpha$ 線の計数率の測定値と、放出方向が異なる2つの計算結果（「等方」、及び「平行」）の比較を図2に示す。 $\alpha$ 線の計数率の計算結果は、ZnS (Ag) シンチレータを再現した領域を通過した $\alpha$ 線が、その領域内で0.4 MeV以上のエネルギーを失った場合に計数した。

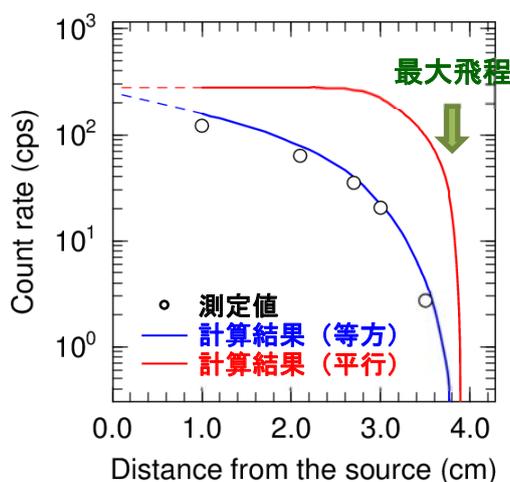


図2  $\alpha$ 線の測定値と計算結果（「等方」、及び「平行」）

「等方」の計算結果は、測定値をよく再現することがわかる。また、この図から、「平行」の計算結果による計数率の減衰曲線はわかりやすく、測定実習の目的である「空気中での $\alpha$ 線の最大飛程の推定」に有利であることがわかる。しかしながら、現実的に「理想的な線源」を再現させることは難しいため、受講生は、cm単位の検出器との距離の違いで計数率が鋭敏に変化する $\alpha$ 線測定の困難さを体感しつつ、測定値同士を結ぶことで計数率の減衰曲線を描き、「空気中での $\alpha$ 線の最大飛程の推定」を行うこととなる。測定値に基づいて描かれる減衰曲線は受講生の主観により様々であるため、その最大飛程の推定値も受講生それぞれの個性が反映されたものとなる。描かれた減衰曲線の妥当性は、図1に示した $\alpha$ 線の飛跡を観察することで明らかとなる。

$\alpha$ 線の測定実習の例で示したように、放射線挙動解析シミュレーションは、現実には再現が困難な“if”の結果を目で見て確認させることが可能で、実習を通じた放射線測定に係る原理や基礎への理解度を更に深めるための補助的なツールとして有用である。また、高校生や小中学生など、低年齢世代からの原子力人材育成においては、主要な学習ツールに成り得るものと考えている。放射線測定実習に使用される線源の放射能は弱く、測定実習を通じた受講生の被

ばく線量は十分に低く抑えられているが、ゼロにすることまでは不可能である。そのため、被ばく線量をゼロにできる放射線挙動解析シミュレーションは、年齢を問わない有効な学習ツールとなる。

参考文献

[1] Tatsuhiko Sato, Yosuke Iwamoto, Shintaro Hashimoto, Tatsuhiko Ogawa, Takuya Furuta, Shin-ichiro Abe, Takeshi Kai, Pi-En Tsai, Norihiro Matsuda, Hiroshi Iwase, Nobuhiro Shigyo, Lembit Sihver and Koji Niita, “Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02,” J. Nucl. Sci. Technol. 55, pp.684-690, 2018.

[2] The Bureau of Radiological Health and the Training Institute, “Radiological Health Handbook, Revised Edition,” U.S. Dep. of Health, Education, and Welfare, 1970.

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

放射線挙動解析シミュレーションを行うには大型計算機の支援が必須であり、引き続き利用を予定している。

## 5.14 システム計算科学センター

### Center for Computational Science & e-Systems

---

#### 5.14.1 材料における核量子効果の計算科学研究

##### Computational Studies for Nuclear Quantum Effects of Materials

町田 昌彦、志賀 基之、中村 博樹、数納 広哉、小林 恵太  
シミュレーション技術開発室

##### (1) 利用目的:

本課題では、原子力研究開発分野において研究対象となる機能分子及び材料の設計に資する計算科学技術の開発と、機能分子及び材料に関する新知見の取得を目的とする。特に、本課題では、分子に含まれる元素の質量数が軽いため、原子核の量子効果等が重要な役割を果たす元素を多く含む分子群を主たる研究対象とする。主要な対象分子としては、生体分子（有機分子）とする。

本課題にて上記のような軽元素を含む分子に着目する理由は、質量数が軽い元素が分子内に含まれることで、原子核の量子効果やその豊かな反応特性等が分子物性に重要な影響を及ぼし、それらを考慮するには、最新の計算科学技術を必要とするからである。本課題では、上記の軽元素を含む分子群に焦点を当て、その特性を高精度にシミュレーション可能とする技術を研究開発する他、開発するシミュレーション技術を用いて、特異な物性や機能（生体分子の場合は生体活性等）の解明を目標とする。また、新たな高精度な分子計算科学技術を進展させることで、広く計算科学技術の発展やイノベーション創出にも寄与することを目指す。以下に具体的な研究対象を記す。

##### i) 生体分子（有機分子）のセシウム吸着特性

これまで、生体分子がセシウムを吸着する特性を有するかどうかを調べるシミュレーション研究を実施し成果を創出してきたが、生体分子においては、水素が極めて重要な役割を果たし、水素が移動することで、セシウム吸着に好都合な状態となる分子が存在しており、本課題では、分子内水素移動等が、生体分子の機能発現に置いてどんな役割を果たすかをシミュレーションにより定量評価し、生体分子のセシウム吸着に関する新知見の取得を目指す。

##### ii) COVID-19 薬剤の生体内反応特性

社会的課題となっている COVID-19 経口薬剤の生体内反応経路を、本課題で開発する水素移動と共に起こる反応経路を基に明らかにする。特に最近になり承認された経口薬剤：モルヌピラビルの水素移動による生体内反応特性を明らかにする。目的は、その生体内反応経路を高精度に明らかにすることにより、薬剤の改善ポイントを明確化し、薬剤の改良や新規開発に資する知見の取得を目指す。

(2) 利用内容・結果:

1)2021 年度課題の達成目標:

2021 年度は生体分子の放射性セシウム吸着機構解明に向けて、主に、下記の 2 つの研究課題を実施した。

- ①地衣類代謝物のセシウム錯体形成力を計算により求め、地衣類のセシウム保持機構の一端を解明する。
- ②キノコの色素分子とセシウム錯体形成力を計算により求め、キノコのセシウム蓄積機構の一端を解明する。

2) 2021 年度の研究成果とその重要性:

2021 年度は生体分子の放射性セシウム吸着機構解明に向けて、2 つの研究成果を創出した(下記発表論文毎に成果とその意義を記載)。

論文①: Hiroya Suno, Masahiko Machida, Terumi Dohi, Yoshihito Ohmura, “Quantum chemical calculation studies toward microscopic understanding of Lichen's retention mechanism of Cs radioisotopes and other alkali metals”, Scientific Reports, 11 No. 8228 2021.

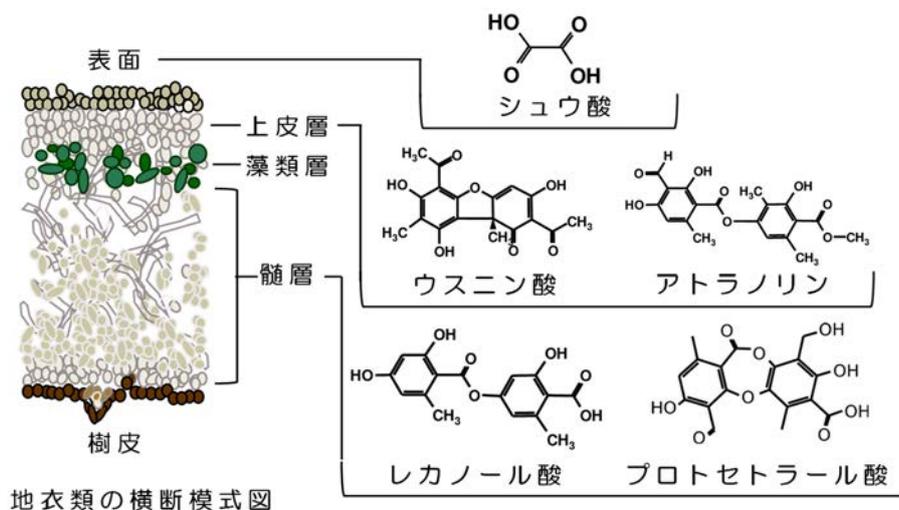


図 1 地衣類の内部構造と代謝物成分の分布

菌類と藻類の共生体である地衣類は、重金属を含む様々な金属の保持・蓄積機能を有しており、原発事故等で放出された放射性セシウムのバイオモニターとして用いられているが、その金属保持・蓄積機構はまだ解明されていない。本研究では、地衣類の放射性セシウムや他のアルカリ金属の保持・蓄積機能を解明するため、地衣類成分の錯形成能力を計算化学に基づくシミュレーションにより評価した。計算対象は、福島県で生息するウメノキゴケの主要代謝物であるシュウ酸、アトラノリン、ウスニン酸、レカノール酸、プロトセトラール酸である(図 1 参照: 左図は地衣類の層構造を示し、右図は各層にて算出される代謝物を示す)。その結果、アルカリ金属間比較では  $Li^+ > Na^+ > K^+ > Rb^+ > Cs^+$  の順で錯形成能力が高いことがわかった。また、代謝物間比較では、髓層(図 1 参照: Medulla)に分布するプロトセトラール酸の錯形成能力が高いこ

とがわかった。また、同じく髄層に分布するレカノール酸も弱酸性～中性溶液中で錯形成能力がやや高くなる一方、上皮層（図 1 参照：Upper cortex）に分布するウスニン酸やアトラノリンは中性～弱アルカリ性水溶液中で錯体形成能力が高くなることがわかった。本結果から、髄層は広い pH 域でアルカリ金属原子を保持し、また、金属ストレス増加時には上皮層がアルカリ金属原子を取り込むことが可能であることがわかった。なお、本成果については、プレス発表を行った他、国立科学博物館からも本成果が紹介された。

② Hiroya Suno, Masahiko Machida, “An Atomistic Origin of Selective Cs Accumulation in Mushrooms: DFT analysis for alkali-metal cation complexation selectivity of scissors-like pigments”, ACS Food Science and Technology, 1,8, 1381, 2021.

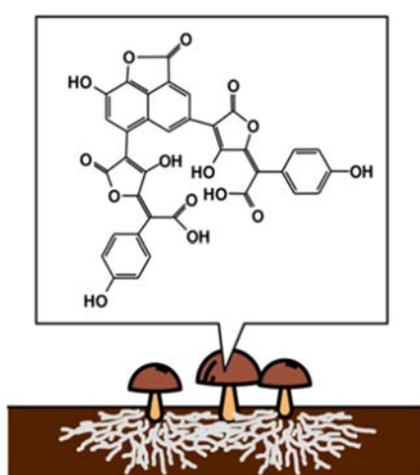


図 2 キノコの傘部分に分布するノルバジオン A 分子

キノコ（菌類）は原発事故等で放出された放射性セシウムを蓄積・保持することが知られている。この放射性セシウムに対する特性は、傘部分に分布するキノコの色素成分分子のセシウムとの選択的錯形成によるものであることが分かっている。本研究では、キノコ色素のアルカリ金属錯形成選択性を計算化学に基づくシミュレーションにより評価した。代表的なキノコ色素であるノルバジオン A とこれに類似した成分に着目した（図 2 参照）。その結果、セシウム選択性は、ノルバジオン A やそれと類似した、プルビニ酸基が 2 つ対称的に配置している分子構造を持つ分子でのみ起こり得ることがわかった。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等)：

- 1) H. Suno, M. Machida, T. Dohi, Y. Ohmura, “Quantum chemical calculation studies toward microscopic understanding of retention mechanism of Cs radioisotopes and other alkali metals in lichens”, Scientific Reports, 11, No. 8228, 2021.
- 2) H. Suno and M. Machida, “Atomistic Origin of Selective Cs Accumulation in Mushrooms: DFT Analysis for Alkali Metal Cation Complexation Selectivity of Scissors-like Pigments”, ACS Food Science and Technology, 1,8, 1381, 2021.
- 3) 数納広哉, 町田昌彦, 土肥輝美, 大村嘉人, 計算化学が紐解く放射性 Cs を長期間保持する地衣類の謎—地衣類代謝物のアルカリイオン錯体形成力と地衣類のアルカリイオン捕集機構—, Isotope News, 781, 2022, pp.8-12.

### (4) 今後の利用予定：

令和 4 年度も、大型計算機（スパコン）を利用し、生体有機物と放射性セシウム及びその他の元素との関係について研究を進める予定である。放射性セシウムの生態系内での動態については、比較的、化学的知見が不足しており、計算化学による貢献が期待できる。

## 5.14.2 原子力分野での物性計算科学技術の高度化

### Development of Numerical Techniques for Materials in the Research Field of Atomic Energies

永井 佑紀、山田 進、町田 昌彦  
シミュレーション技術開発室

#### (1) 利用目的:

システム計算科学センターシミュレーション技術開発室の中長期計画に従い、原子力分野での物性計算科学技術の高度化を目的とした計算科学研究課題を行う。本課題の研究対象は、物質材料の物性取得のための高精度量子シミュレーション技術（密度行列繰り込み群法や自己学習モンテカルロ法）の開発である。また、申請する大規模シミュレーション課題枠を利用し、2023年度までCREST（JST）受託研究にて開発してきた密度行列繰り込み群法を広く公開するレベルまで、並列化性能を高め、機能材料研究開発に資する大規模シミュレーションコードとして機構内外の研究力強化に貢献することも目的とする。

#### (2) 利用内容・結果:

##### 1. 自己学習ハイブリッドモンテカルロ法の開発と拡張

2020年度に開発に成功した「自己学習ハイブリッドモンテカルロ法」の適用範囲について調査した。また、複雑な物質系においても有効性を持つことを示すために、Pd-Ru-Al系合金における準結晶及びその近似結晶相でのシミュレーションを実行した。その際、自動構築したニューラルネットワークによる分子動力学計算が1ナノ秒以上の長時間においても破綻なく実行できることを示し、構造の揺らぎが極めて強い合金系での比熱の計算方法の確立に成功した。ある種の準結晶では高温における比熱が固体での従来の値よりも数倍大きくなる現象が実験的に観測されており、その理由は20年以上未解明である。本シミュレーション手法による比熱の値は実験値をほとんど定量的に再現しており、この未解明な現象をシミュレーションによって理解できる可能性がある。現在東京大学新領域創成科学研究科の木村研究室における実験結果との比較を行いながら、本現象の完全解明を目指しシミュレーションを遂行中である。また、NPTアンサンブル（圧力一定温度一定状況）における自己学習ハイブリッドモンテカルロ法の開発も行い、液体シリカにおける長時間のダイナミクスを捉えることに成功した。

##### 2. 超高速超伝導シミュレーション手法による超伝導物質の評価

2020年度に開発に成功した局在クリロフ空間を用いたLK-BdG法は従来のシミュレーション手法と計算速度のオーダーが異なっており、非常に高速である。本年度ではこの手法をModern Fortran(Fortran 2008)によるオブジェクト指向を用いたコードに書き直し、可読性を高めた。そして、その手法を準結晶超伝導の大規模実空間モデルに適用することで、磁場下における準結晶中の超伝導磁束が自発的にピン留めを起こすことを理論的に明らかにした。この成果は開発した手法が準結晶という特異な系でも有効であることを示しただけでなく、超伝導体における磁束ピン留め効果の新しい機構を提案したものであり、十分な学術的な意義がある。現在論文を投稿中である。また、超伝導の磁束状態について、ドイツハンブルク大学の実験グループとの共同研究を行い、その理論解析を担当した。そして、高精度なシミュレーション結果と実験結果が極めて良い一致を示し、従来型超伝導体において特異に見える磁束電子状態が

現れることを示した。この結果は *Applied Physics Reviews* という極めて impact factor の高い雑誌 (IF: 19.162) に掲載され、学術的意義が極めて高いと言える。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

#### 論文発表

- 1) K. Kobayashi, Y. Nagai, M. Itakura, and M. Shiga, “Self-learning hybrid Monte Carlo method for isothermal-isobaric ensemble: Application to liquid silica”, *J. Chem. Phys.*, 155, 034106, 2021 出版済.
- 2) T. Matsushita, Y. Nagai, and S. Fujimoto, “Spectrum Collapse of Disordered Dirac Landau Levels as Topological Non-Hermitian Physics”, *J. Phys. Soc. Jpn.*, 90, 074703, 2021 出版済.
- 3) H. Kim, Y. Nagai, L. Rózsa, D. Schreyer, and R. Wiesendanger, “Anisotropic non-split zero-energy vortex bound states in a conventional superconductor”, *Applied Physics Reviews*, 8, 031417, 2021 出版済.

#### 査読付き国際会議

- 4) S. Yamada, T. Imamura, M. Machida, High performance parallel LOBPCG method for large Hamiltonian derived from Hubbard model on multi-GPU systems, *proc. of SCFA22 (Springer Nature’s Lecture Notes in Computer Science)*. (掲載可).

#### シンポジウム講演

- 5) 永井佑紀, “空間的に非一様な超伝導体に対する超高速シミュレーション手法”, 日本物理学会 2021 年秋季大会 (物性) .

#### 招待講演

- 6) 永井佑紀, “自己学習ハイブリッドモンテカルロ法; 精度保証された機械学習分子シミュレーション”, レア・イベントの計算科学第 4 回ワークショップ「レア・イベント解析とデータ科学」, 2021.

### (4) 今後の利用予定:

2020 年度に自己学習モンテカルロ法と従来の機械学習分子動力学法を組み合わせた自己学習ハイブリッドモンテカルロ法を考案した。この手法は量子力学的効果を取り込んだ高精度な分子動力学法である第一原理分子動力学法を大幅に高速化することが可能であり、かつ、計算精度が第一原理分子動力学法と厳密に等しいという利点を持っている。第一原理分子動力学法は高精度であるが計算コストが非常に大きいため、原子力分野や材料分野で使われてはいるものの大規模な系を取り扱うことは困難であった。自己学習ハイブリッドモンテカルロ法はこの問題を根本解決できる可能性を持つ。そこで、2021 年度に引き続き、機構内で需要のある様々な合金や材料、あるいは基礎科学としても重要である様々な物質群において自己学習ハイブリッドモンテカルロ法を用い、性能を評価する。その際、スーパーコンピュータ上での大規模並列計算を試みる。

### 5.14.3 機械学習を用いた放射性物質の原子スケールシミュレーション

#### Atomic Scale Simulations of Radioactive Materials using Machine Learning

奥村 雅彦、中村 博樹、町田 昌彦、板倉 充洋、  
山口 瑛子、小林 恵太、浅野 育美、宇野 功一郎  
シミュレーション技術開発室

##### (1) 利用目的:

2011年の東日本大震災に起因する東京電力福島第一原子力発電所事故により燃料棒が溶融し、環境中に放射性核種が放出された。今後、長い年月をかけて廃炉が計画されているが、廃炉作業を安全に進めるためには、建屋内の放射性核種による汚染状況を正確に把握し、作業員の被ばく量を可能な限り低減する必要がある。また、土壌に強く吸着した環境中放射性セシウムについては、大規模除染によって排出された膨大な量の除染除去土壌の処理処分が新たな問題となっている。一方、原子力発電は、国が掲げる目標「2050年カーボンニュートラル」に貢献できる発電技術であり、その目標の実現のためには、安全な新型炉や強靱な構造材料の開発が必要とされている。また、安全な使用済み核燃料の地層処分のためには、環境中の放射性核種動体の解明が必要とされている。

廃炉、新型炉燃料、構造材料、地層処分等に係る科学的知見獲得の研究方法として、放射線の影響を受けずに研究を実施できる計算科学研究が有効である。近年のハードウェア、ソフトウェア両面の著しい発展に伴って、物質シミュレーションが飛躍的に進歩しており、複雑な現象を対象としたシミュレーションが可能になっている。特に、第一原理計算手法等を用いる事で物質の電子状態を知る事が可能になり、分子動力学 (molecular dynamics, MD) 計算を行う事によって原子・分子のダイナミクスを追う事が可能になってきた。

上記の背景の下、本課題では、福島第一原子力発電所事故、新型炉核燃料、構造材料、地層処分に関わる物理・化学現象の科学的知見の獲得を主な目的とする。特に、電子状態が物性に及ぼす影響を調べるために、第一原理計算を主な計算手法とする。第一原理計算は高精度であるが計算コストが高いため、複雑な構造を持つ現実の物質を再現する事が難しい場合がある。そこで、高精度かつ低計算コストである計算手法である機械学習分子動力学法 (machine learning MD, MLMD) を用いる計算も並行して実施する。この手法は、第一原理計算の計算結果を人工ニューラルネットワーク等に学習させて機械学習ポテンシャルを作成し、それを用いて高精度かつ低計算コストの分子動力学法シミュレーションを実現する手法である。本課題では、MLMDコードも併せて開発する。

上記の研究において、大型計算機を利用して大量の第一原理計算を実施し、MLMDの教師データとする。また、人工ニューラルネットワークの学習や、学習済みの機械学習ポテンシャルを用いたMLMDシミュレーションにも大型計算機を利用する。

## (2) 利用内容・結果:

2021年度は、年度途中においてアメリカ化学会の地球化学部門での招待公演の依頼を受けたため、急遽予定していた研究内容を変更し、招待公演に対応することとした。依頼内容は地球化学における MLMD シミュレーションであったが、セッションのテーマが「極限環境における地球化学」という内容であったため、これまで実施してきた通常環境下における粘土鉱物の機械学習分子動力学法について論文を急ぎ、さらにそれを発展させて、高圧下における粘土鉱物物性の解析を実施した。

まず、カオリナイトと呼ばれる粘土鉱物の通常環境下における機械学習ポテンシャルを作成した。カオリナイトはヒドロキシ基を多く含んでいるため(図1)、水素結合等を精度良く再現する必要がある。本研究では、ファンデルワールス力の一部を含むことが知られている SCAN 密度汎関数を用いた密度汎関数法計算の結果を教師データとして機械学習ポテンシャルを作成し、格子定数、機械特性を検証したところ、実験値と良く一致することが確認できた。そして、中性子深非弾性散乱スペクトルを評価し、実験 [Smrcok *et al.*, Phys. Chem. Miner. 37, 571 (2010)]と比較した(図2)。この観測量は、ヒドロキシ基(OH基)の振動モードに対応するものであり、既存の古典 MD (ClayFF 力場 [R. Cygan *et al.* J. Phys. Chem. B 108, 1255 (2004)]を使用)による評価

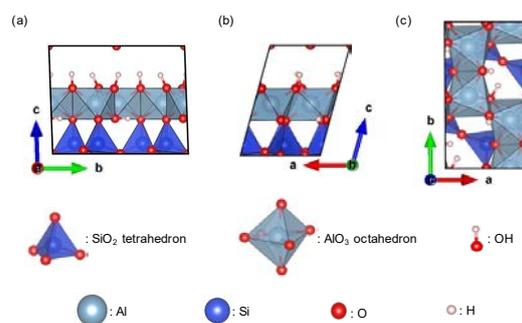


図1. カオリナイト

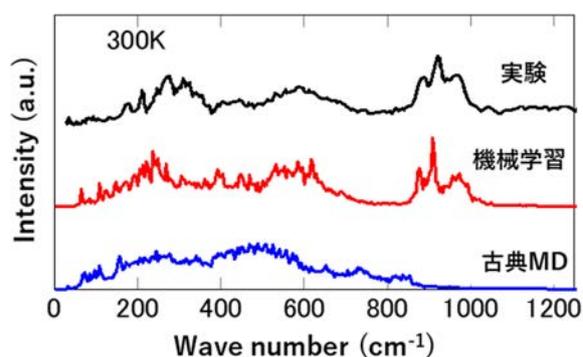


図2. 中性子深非弾性散乱スペクトル

では実験値を全く再現できず、MLMDによって初めて実験値を再現できた。これは、古典 MD では水素結合の精度が不十分であるが、SCAN 密度汎関数を用いた密度汎関数法の計算結果を基に作成した機械学習ポテンシャルは水素結合の精度が高かったためであると考えられる。

次に、カオリナイトに高圧をかけた場合を考えた。これまでの実験によって、高圧をかけたカオリナイトは、層間に水分子がいくつか入り込むことが予想されていた。そこで、層間に水分子が入ったカオリナイトのモデルを作成し、密度汎関数計算を実施して、その結果を学習して機械学習ポテンシャルを作成した。そのポテンシャルを用いて格子定数を評価した結果、高圧下の構造をよく再現することがわかった。

これらは、将来的に粘土鉱物の詳細シミュレーションにつながる結果であり、例えば、粘土鉱物による放射性核種の吸着現象について、これまでになく高精度で解析が可能になるため、放射性元素の環境動態解析の高精度化に資する。

これらの結果について、2021年度日本表面真空学会学術講演会や、国際会議 American Chemical Society 2022 Spring Meetings & Exposにて招待公演を行った。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

## 査読付き論文

- 1) 奥村雅彦, “計算科学による雲母粘土鉱物の放射性セシウム吸着現象研究”, 地球化学 55(4) (福島原子力発電所事故特集号), 2021, pp.110-121. 【依頼原稿】
- 2) A. Yamaguchi, K. Kobayashi, Y. Takahashi, M. Machida, M. Okumura, “Hydration structures of barium ions: Ab initio molecular dynamics simulations using the SCAN meta-GGA density functional and EXAFS spectroscopy studies”, Chemical Physics Letters, 2021, 138945, 5 p.

## 国際会議

- 3) M. Okumura, “Machine learning molecular dynamics simulations of silicate minerals”, American Chemical Society 2022 Spring Meetings & Expos, 20-24 March, 2022, San Diego, USA (in-person and online). 【招待講演】
- 4) M. Okumura, K. Kobayashi, H. Nakamura, A. Yamaguchi, M. Itakura, and M. Machida, “Machine learning potentials for cement and clay minerals”, 2021 International Chemical Congress of Pacific Basin Societies, December 16-22, 2021, online.

## 国内学会

- 5) 奥村雅彦, “珪酸塩鉱物の機械学習分子動力学シミュレーション”, 2021 年度日本表面真空学会学術講演会, 2021 年 11 月 3-5 日. 【招待講演】
- 6) 奥村雅彦, 小林恵太, 山口瑛子, “カオリナイトの機械学習分子動力学法シミュレーション”, 第 64 回粘土科学討論会, 2021 年 9 月 7-8 日, online.
- 7) 小林恵太, 中村博樹, 山口瑛子, 板倉充洋, 町田昌彦, 奥村雅彦, “多成分系における機械学習分子動力学法”, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, 2021 年 9 月 8-10 日, online.
- 8) 板倉充洋, 中村博樹, 奥村雅彦, “過酷事故における熔融物の多孔質浸透のモデル化”, 日本原子力学会 2021 年秋の大会, 2021 年 9 月 8-10 日, online.
- 9) A. Yamaguchi, A. Nakao, M. Okumura, “雲母の構造が剥離強度に及ぼす影響の数値的評価”, 第 64 回粘土科学討論会, 2021 年 9 月 7-8 日, online.
- 10) A. Yamaguchi, K. Nagata, K. Tanaka, K. Kobayashi, M. Okumura, T. Kobayashi, K. Shimojo, H. Tanida, T. Sekiguchi, Y. Kaneta, S. Matsuda, K. Yokoyama, T. Yaita, T. Yoshimura, Y. Takahashi, “ラジウムの水和構造及び粘土鉱物への吸着構造の解明”, 日本地球化学会第 68 回年会, 2021 年 9 月 1-15 日.
- 11) A. Yamaguchi, K. Nagata, K. Tanaka, K. Kobayashi, M. Okumura, T. Kobayashi, K. Shimojo, H. Tanida, T. Sekiguchi, Y. Kaneta, S. Matsuda, K. Yokoyama, T. Yaita, T. Yoshimura, Y. Takahashi, “EXAFS による Ra の水和状態と粘土鉱物への吸着状態の解明”, 日本放射化学会第 65 回討論会, 2021, 2021 年 9 月 22-24 日.

**(4) 今後の利用予定:**

今後は、粘土鉱物による放射性核種吸着反応の詳細解明研究の基礎研究として、他の粘土鉱物や粘土鉱物のエッジの分子動力学法シミュレーションを実施する予定である。

#### 5.14.4 第一原理分子動力学法による液体金属の計算

##### Calculation of Liquid Metal by First-principle Molecular Dynamics Method

海老原 健一

シミュレーション技術開発室

###### (1) 利用目的:

高レベル放射性廃棄物の減容化を目指した加速器駆動核変換システム（ADS）の研究開発において、加速器駆動未臨界炉のターゲット窓に使用する金属材料の選定がなされている。ターゲット窓材は、ターゲットであり冷却材である熔融鉛ビスマスに接することから応力腐食割れを起こす懸念があり、その原因の1つと考えられる液体金属脆化について調べられている。近年、第一原理計算を用い、液体金属脆化を起こす液体金属と材料金属の組み合わせに対する考察が網羅的になされている。第一原理計算では、金属原子の特定の配置に対するエネルギーを高精度に評価できることから、配置の違いに対するエネルギーの違いから、実際に起こりうる現象について議論可能である。しかし、温度0の状態に対する計算であるため有限温度での考察には、熱力学などの理論が必要となる。一方、分子動力学法は、有限温度での原子配置の変化のシミュレーションが可能であるが、その結果の妥当性は、使用する原子間ポテンシャルの精度に大きく依存する。このことから、第一原理計算の精度を保ちつつ、有限温度の分子動力学シミュレーションを行う第一原理分子動力学法が開発されている。この手法では、時間ステップ毎に、その時点での原子配置から第一原理計算によって算出したポテンシャルを用いて分子動力学計算を行うため、広く用いられている近似的なポテンシャルを用いた計算に比べ、高精度な計算が可能である。その一方、少ない原子数でも長時間の計算が必要となる。以上のことから、本研究では、第一原理分子動力学法を用いた液体金属のシミュレーションを行うため、大型計算機を利用した。

###### (2) 利用内容・結果:

今回、第一原理分子動力学コードとしてPIMDコード用い、いくつかの金属元素の融点付近での密度を、粒子数、温度、圧力を一定とした条件で計算（NPT分子動力学計算）することで、それらの金属の熔融状態再現の可能性について検討した。圧力は1気圧、時間ステップは0.5fs、圧力一定条件にはParrinello-Rahmanの方法、温度一定条件にはNose-Hooverの方法を用い、周期境界の条件で計算した。計算結果は表1の通りとなった。この表から、融点付近での金属の密度の計算値は、概ね実測値に近い値となることが分かった。また、質量数が大きな元素ほど計算値が実測値に近くなる傾向が見られた。NaとBiについては、粒子数の異なる場合についても計算したが、どちらの場合も、粒子数が大きくなると、計算値が実測値に近づく傾向となった。

表 1 溶融状態の金属の密度の実測値と計算値の比較

元素	Li	Na	Al	Zn	In	Pb	Bi
計算							
粒子数	16	16、54	32	16	16	32	8、27
温度[K]	454	371	934	693	430	601	545
計算密度[g/cm <sup>3</sup> ]	0.5665	(16)1.035 (54)1.025	2.543	7.319	7.087	10.64	(8)10.58 (27)10.23
実測							
融点温度[K]	453.7	370.9	933.5	692.7	429.7	600.6	544.7
融点密度[g/cm <sup>3</sup> ]	0.512	0.927	2.38	6.57	7.02	10.7	10.1
計算値/実測値	1.11	(16)1.12 (54)1.11	1.07	1.11	1.01	1.00	(8)1.05 (27)1.02

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

今後、今回の結果に基づき、液体金属の溶融状態に対する鉄への溶解エネルギー等の計算を予定している。

### 5.14.5 粘土鉱物へのラジウムの吸着構造の解明

#### Investigation of Adsorption Structure of Radium on Clay Minerals

山口 瑛子、小林 恵太、奥村 雅彦  
シミュレーション技術開発室

##### (1) 利用目的:

ラジウム (Ra) はウランやトリウム放射壊変により生成する放射性元素であるため、ウラン鉱山周辺の環境汚染問題や放射性廃棄物の処理問題の解決にあたり、Ra の環境動態の解明は必須である。特に近年、自然由来の Ra による基準値超過も報告されていることから、Ra の環境動態解明の重要性はさらに高まっている。しかし、Ra に安定同位体が存在せず、一定量あたりの放射能が高いこと、さらに  $\alpha$  崩壊で生成するラドンが希ガスのため内部被ばくを引き起こす要因となるといった、Ra の危険性の高さから分光法の適用が難しく、未解明な点が多い。しかし上記のような重要性から、近年、環境中の Ra に関する研究報告例は増加しており、実験室での吸着実験や子孫核種の同位体比を用いた分析の結果から、環境中の Ra が粘土鉱物に吸着して固定されることが示唆されている。Ra はアルカリ土類金属であるため環境中で +2 価で存在し、移行性が高いと考えられてきたことから、Ra が粘土鉱物に固定されうるということは重要な新知見であるが、その吸着様態、吸着機構は不明である。

粘土鉱物は、地球表層に広く存在し陽イオン吸着容量が高いことから、多くのイオンの環境挙動を支配し、放射性廃棄物の地層処分にも使用される。しかし、粘土鉱物の吸着能は吸着イオンによって異なり、その原因は吸着構造の違い、特に吸着時の水和状態にあることが報告されている。例えば、原子力発電所の事故で放出される元素にセシウム (Cs) とストロンチウム (Sr) があるが、Cs は土壌表層に固定されるのに対し、Sr は固定されず、両者の環境動態は正反対である。この原因は、Cs は粘土鉱物に対して脱水和して吸着する (内圏錯体の形成) ため吸着力が強い一方で、ストロンチウム (Sr) は水和したまま吸着する (外圏錯体の形成) ため吸着力が弱いことが考えられている。従って粘土鉱物に対する吸着挙動を明らかにするには、それぞれのイオンの吸着構造、特に吸着時の水和状態を解明する必要がある。

Cs や Sr など、多くの陽イオンの粘土鉱物に対する吸着構造の解明は分光学的手法を用いた実験やシミュレーションにより行われてきたが、Ra に関しては、上記の実験の難しさから分光学的手法が適用されておらず、シミュレーションの先行研究も少ない。そこで本研究では、Ra の水和構造および粘土鉱物への吸着構造について、世界初となる広域 X 線吸収微細構造 (EXAFS) 法を用いた解明を目指すとともに、シミュレーションを用いた解明も実施し、Ra の吸着挙動、ひいては環境中での挙動を解明することを目的とする。尚、より大きな系について精度の高い計算を実施するため、大型計算機を用いて計算を実施した。

##### (2) 利用内容・結果:

2020 年度の研究成果として、Ba の水和構造を VASP により求め、EXAFS の実験結果と整合的な結果を得た。2021 年度では、この結果をもとに、他の汎関数との比較や水分子のダイナ

ミクスの解明も行った。その結果、第一水和殻における水分子の配位数及び水分子中の酸素と Ba イオンの距離( $r_{Ba-O}$ )及びその平均( $\bar{r}_{Ba-O}$ )については、汎関数間での違いは見られなかった一方、配位数のヒストグラムや動径分布関数 (RDF) において違いが見られ、水分子のダイナミクスの解明においては汎関数の影響が大きいということが分かった。これらの内容をまとめて国際査読付き論文に投稿し、受理された。

Ra のアナログ元素である Ba の水和構造について、EXAFS 実験及び AIMD 計算によって解明できたことから、同じ手法を用いて Ra の水和構造の解明を行った。Ra の EXAFS 実験については、許認可の申請から着手し、安全面や子孫核種の影響などに配慮しながら実施した。EXAFS 実験で得たスペクトルを解析し、Ra の水和構造について、第一水和殻の水分子の配位数及び水分子中の酸素との距離( $\bar{r}_{Ra-O}$ )を求めた。

Ra の AIMD 計算については、Ba と同様、ユニットセル中に 100 個の水分子と 1 個の Ra イオンを配置した系について、複数の汎関数を用いて VASP により行った。AIMD 計算の結果から、第一水和殻の水分子の配位数及び  $\bar{r}_{Ra-O}$  を求め、EXAFS の結果と比較したところ、整合的であった (表 1)。ここで EXAFS 実験により得られた  $\bar{r}_{Ra-O}$  の値 (2.87 Å) は  $\bar{r}_{Ba-O}$  の値 (2.79 Å) よりも 0.08 Å 大きい。この差は先行研究で求められた有効イオン半径の差 (0.06 Å) とほぼ同じである。

また、水分子の構造について、AIMD 計算の結果を解析することでより詳細に調べたところ、Ra に配位した水の方が Ba よりも動きやすいことがわかった。このことは、様々な反応において重要である。例えば、環境中に多く存在する石英の溶解反応は、石英に吸着したイオンの配位水のダイナミクスにより促進されることが知られている。アルカリ土類金属でイオン半径の大きい Ba イオンについては、配位した水分子の交換反応速度定数が高い (水分子が動きやすい) ことが知られているが、今回の結果から、Ra に配位した水分子は Ba よりさらに動きやすいことから、石英の溶解をより促進する可能性がある。また前述の通り、粘土鉱物への吸着反応においては、イオンが水和したまま吸着するか (外圏錯体)、脱水して吸着するか (内圏錯体) が非常に重要であり、環境挙動を支配する。今回の結果から、Ra の配位した水が脱水しやすいたことが示唆され、このことは、粘土鉱物への吸着において、Ra が内圏錯体を形成しやすいことを示唆している。これは環境中の Ra が粘土鉱物により固定されることを示唆している。

実際、粘土鉱物への Ra の吸着構造についても EXAFS 法による測定を行った。その際、バーミキュライトとモンモリロナイトの二種類の粘土鉱物を用いて Ra の吸着構造を調べた結果、バーミキュライトについては内圏錯体を、モンモリロナイトについては外圏錯体を形成することが分かった。このような明確な違いはアナログ元素である Ba では見られず、Ra 特有

表 1 Ra と Ba の第一水和殻内における水分子の配位数および酸素との距離

手法		配位数	距離(Å)
EXAFS 実験		9.2±1.9	2.87±0.06
AIMD 計算	SCAN	8.4	2.88
	PBE	7.6	2.88
	BLYP	8.1	2.88
	PBE-D3	8.1	2.93
	BLYP-D3	8.4	2.88

の傾向と考えられる。また、粘土鉱物の構造は複雑であるため、実験のみで原因を特定することは難しい。そこで今後は、両者の違いをもたらす原因について、シミュレーションを用いて解明していく予定である。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

#### [論文]

- 1) A. Yamaguchi, K. Kobayashi, Y. Takahashi, M. Machida, M. Okumura, “Hydration structures of barium ions: Ab initio molecular dynamics simulations using the SCAN meta-GGA density functional and EXAFS spectroscopy studies”, Chemical Physics Letters, 780, pp.138945\_1 - 138945\_5, 2021. (出版済).

#### [国内会議]

- 2) A. Yamaguchi, K. Nagata, K. Tanaka, K. Kobayashi, M. Okumura, T. Kobayashi, K. Shimojo, H. Tanida, T. Sekiguchi, Y. Kaneta, S. Matsuda, K. Yokoyama, T. Yaita, T. Yoshimura, Y. Takahashi, “ラジウムの水和構造及び粘土鉱物への吸着構造の解明”, 日本地球化学会第 68 回年会, 2021 年 9 月 1 - 15 日.
- 3) A. Yamaguchi, A. Nakao, M. Okumura, “雲母の構造が剥離強度に及ぼす影響の数値的評価”, 第 64 回粘土科学討論会, 2021 年 9 月 7 - 8 日.
- 4) A. Yamaguchi, K. Nagata, K. Tanaka, K. Kobayashi, M. Okumura, T. Kobayashi, K. Shimojo, H. Tanida, T. Sekiguchi, Y. Kaneta, S. Matsuda, K. Yokoyama, T. Yaita, T. Yoshimura, Y. Takahashi, “EXAFS による Ra の水和状態と粘土鉱物への吸着状態の解明”, 日本放射化学会第 65 回討論会 (2021), 2021 年 9 月 22 - 24 日.

#### [学協会等の受賞]

- 5) A. Yamaguchi, K. Nagata, K. Tanaka, K. Kobayashi, M. Okumura, T. Kobayashi, K. Shimojo, H. Tanida, T. Sekiguchi, Y. Kaneta, S. Matsuda, K. Yokoyama, T. Yaita, T. Yoshimura, Y. Takahashi, “ラジウムの水和構造及び粘土鉱物への吸着構造の解明”, 日本地球化学会第 68 回年会 学生優秀賞.
- 6) A. Yamaguchi, K. Nagata, K. Tanaka, K. Kobayashi, M. Okumura, T. Kobayashi, K. Shimojo, H. Tanida, T. Sekiguchi, Y. Kaneta, S. Matsuda, K. Yokoyama, T. Yaita, T. Yoshimura, Y. Takahashi, “EXAFS による Ra の水和状態と粘土鉱物への吸着状態の解明”, 日本放射化学会第 65 回討論会, 2021 若手優秀賞.

### (4) 今後の利用予定:

Ra の EXAFS 測定の結果から、二種類の粘土鉱物（バーミキュライト及びモンモリロナイト）に対し、Ra が異なる吸着構造を形成することが分かった。今後はこの原因を究明するため、大型計算機を用いた計算を実施していく予定である。

### 5.14.6 第一原理計算による原子力材料劣化機構の研究

#### First-principles Study for the Degradation of Nuclear Materials

山口 正剛

シミュレーション技術開発室

##### (1) 利用目的:

本研究では、原子力用構造材料の劣化メカニズムの問題に対して、第一原理計算から取り組んできた。近年では加速器駆動未臨界炉 (Accelerator Driven Subcritical Reactor = ADSR) のターゲット窓材の液体金属脆化メカニズムの解明を目的とした。液体金属脆化と関連して、水素脆化メカニズム解明に関する計算を行った。

##### (2) 利用内容・結果:

2020 年度までの結果に加え、他の結晶粒界を用いた結果の検証や、Cu, Zn 等に対する計算を追加して様々な検討を行い、最終的に脆化メカニズムに対する知見をまとめた。

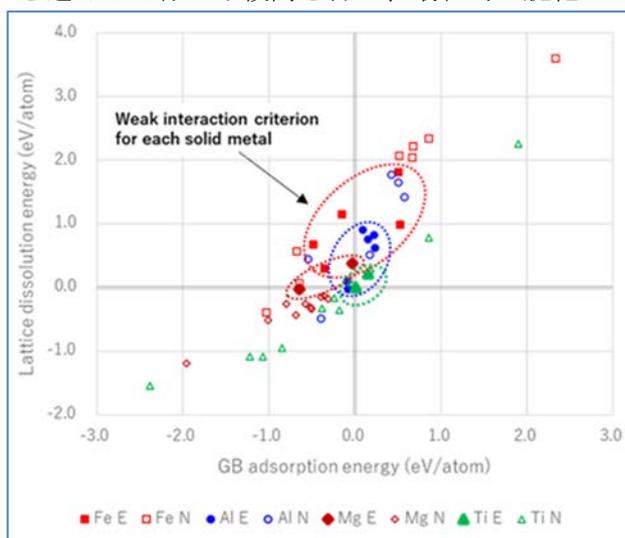


図 1 は、Fe, Al, Ti, Mg における 10 種類程度の液体金属元素の格子溶解エネルギーと粒界吸着エネルギーをプロットし、Rostoker らの脆化サーベイランス試験結果に従って E (脆化するペア) と N (脆化しなかったペア) に分けたものである。固体金属ごとに見て、ほとんど例外なく、脆化したペアはゼロエネルギー付近に現れるという、脆化基準と呼べるものを明らかにした

図 1 脆化する組み合わせ (E) としない組み合わせ (N)

さらに、Ni や Cu, Zn に対する追加計算を行い、Fe や Al で見られた結果を補強する結果を得た。Fe や Al と同じく、格子溶解エネルギーと粒界吸着エネルギーがゼロエネルギー付近のペアが液体金属脆化を示しやすいという傾向が同じように得られ、また、表面吸着エネルギーはすべてのペアで大きな値が得られるが、そのエネルギーは脆化の傾向とは相関が見られない、ことなどが分かった。ただし、液体金属脆化の実験が系統的には行われておらず、Fe や Al ほど実験と計算のよい相関が得られていない。文献調査の結果、これよりほかの金属では系統的な比較できる実験データがないことが分かった。

また、水素脆化メカニズム解明に関連して、アルミニウムの転位芯の水素トラップエネルギーの計算を行った (図 2)。1000 原子近い大規模なセルを用いることで、アルミニウム格子中の刃状転位芯の水素トラップエネルギーを正確に計算した。これにより、転位芯の水素トラップが弱いことが分かり、水素脆化メカニズム解明の手掛かりを与えた。さらに、計算手法について詳しく述べた。

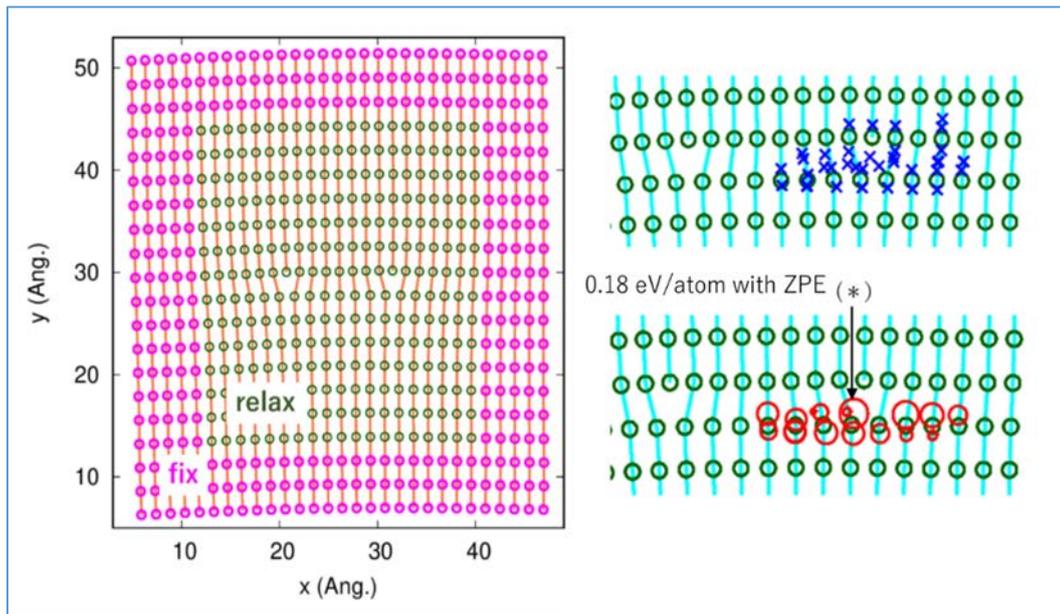


図2 アルミニウム転位芯の水素トラップ。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等) :

○査読有論文

- 1) M. Yamaguchi, T. Tsuru, K. Ebihara, M. Itakura, Hydrogen-Trapping Energy in Screw and Edge Dislocations in Aluminum: First-Principles Calculations, Materials Transactions, 62, 2021, pp.582-589. 出版済
- 2) T. Tsuru, M. Itakura, M. Yamaguchi, C. Watanabe, H. Miura, Dislocation core structure and motion in pure titanium and titanium alloys: a first-principles study, Computational Materials Science, 203, 2022, 111081, 9p. 出版済

○口頭発表

- 3) 濱里恒彦, その他 7 名 (第 8 著者: 山口正剛) 「G 相に関する第一原理計算の技術的限界と制度について」日本金属学会 2021 年度秋期講演大会, 2021/09/15-17, オンライン開催.
- 4) 山口正剛, 都留智仁, 海老原健一, 板倉充洋, 「アルミニウム合金の非整合界面における水素トラップエネルギー: 第一原理計算」, 2021/12/13-16, MRM2021 国際会議, パシフィコ横浜+オンライン開催.
- 5) 山口正剛, 板倉充洋, 「液体金属脆化の元素選択性における脆化基準: 第一原理計算」日本鉄鋼協会 2022 年春季講演大会, 2022/03/15-17, オンライン or 東大駒場.
- 6) 森山潤一郎, 高桑脩, 小川祐平, 山口正剛, 津崎兼彰, 「第一原理計算に基づく Fe-Cr-Ni 合金の水素溶解エネルギーにおける Cr および Ni の寄与に関する検討」, 日本鉄鋼協会 2022 年春季講演大会, 2022/03/15-17, オンライン or 東大駒場.

### (4) 今後の利用予定:

引き続き、材料劣化機構に関する第一原理計算を行う。

### 5.14.7 福島第一原子力発電所港湾内の放射性物質動態解析シミュレーション

#### Simulation for Radioactive Nuclides Transport Inside Harbor of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station

山田 進、町田 昌彦  
シミュレーション技術開発室

##### (1) 利用目的:

福島第一原子力発電所（1F）の事故直後、歴史上かつてない規模の放射性核種の海洋への大規模直接漏洩が起こった。その漏洩により、1F 港湾内外のモニタリング濃度は極めて高い値を示した一方、その影響は外洋にも及び、海洋環境への影響が取り沙汰された。尚、海洋は公海として各国の沿岸に繋がっていることから、国際的関心が極めて高く、その影響を最小限に抑えることは国の使命として認識されている。

上記の背景の下、国・東電は、港湾への漏洩を抑止すべく、様々な対策工事を次々と実施しており、事故後 10 年近くが経った今では、その量は事故当初と比べて大きく減少した。しかし、放射性核種によっては港湾内の濃度が、未だ事故以前のレベルに低下しておらず、港湾への流入経路が未だ存在していると考えられ（湾内から湾外へ濃度差がある状態が続いている）、シミュレーション等により、港湾内への流入箇所および流入量等を割り出すことが求められている。また、港湾の状況を適切に評価できるモニタリング地点を予測することや、突発的高濃度汚染魚の出現の原因と考えられている濃度の高いホットスポットの発生位置やその濃度を予測することも必要と考えられる。そこで申請者らは計算機シミュレーションによりこれらの課題を解決することを目標としている。

さらに、上記のシミュレーション技術を最新の並列計算機を用いて高速に実施するために必要となる大規模並列化や GPU 化の技術開発も同時に実施することも目標としている。

##### (2) 利用内容・結果:

3D-Sea-SPEC は、計算領域を入れ子状にするネスト構造を利用した計算が可能である。この計算法を利用すると、各領域の格子サイズを任意に設定可能なため、地形や流動場が複雑である 1F 港湾内などをメートル単位で考慮し、徐々に外側の領域の格子サイズを大きくするネスト構造を作成することで、数百 km 範囲の福島沿岸域の高精度な流動場シミュレーションが可能になる。実際、上記の方法を適用し、1F 港湾内から流出している放射性物質と河川により海に流入している放射性物質の拡散状況を評価するための試計算を実施した。その結果、対策が進み 1F 港湾から海洋に流出する放射性物質の量が減少すると、河川から流入する放射性物質の影響が相対的に大きくなることが確認できる。つまり、今後、福島沿岸の放射性物質の拡散を考慮する際には、河川の影響も考慮することが重要であることを示している。

また、これまでに開発した流れ場とシルトフェンスの変形を連成計算するコードに懸濁粒子の振る舞いを追加し、水路内にシルトフェンスを設置したことによる懸濁粒子の堆積抑制効果を評価した。その結果、図 1 および図 2 に示すように、粒径が小さく沈降速度の遅い懸濁粒子に対してはシルトフェンスを設置することにより、堆積を促進させる効果があることが確認で

きた。さらに、港湾を模擬したモデルに対して適用したところ、シルトフェンスの設置により、懸濁粒子の堆積位置やその量が大きく変化することが確認できた（図 3 参照）。以上の結果から、計算機シミュレーションはシルトフェンスによる懸濁粒子の振る舞いを予測するための有効な手法の 1 つであると考えられる。

高速計算のための研究開発では、CPU と GPU を同時に利用するシミュレーションの高速化を実施した。CPU と GPU を同時に利用する際には、CPU と GPU 間でデータの転送が必要になるが、この転送コストが大きく高速化の妨げになっている。そこで、アルゴリズムを修正してデータ転送と演算を同時に実行することで、高速化が実現できることを示した。さらに、多少計算量が増えてもデータの転送回数を削減できるアルゴリズムを採用することで更なる高速化が実現できることも確認した。この結果から、CPU と GPU を同時に利用するためには CPU・GPU 間のデータの転送を最適化することが非常に重要であることが確認できた。

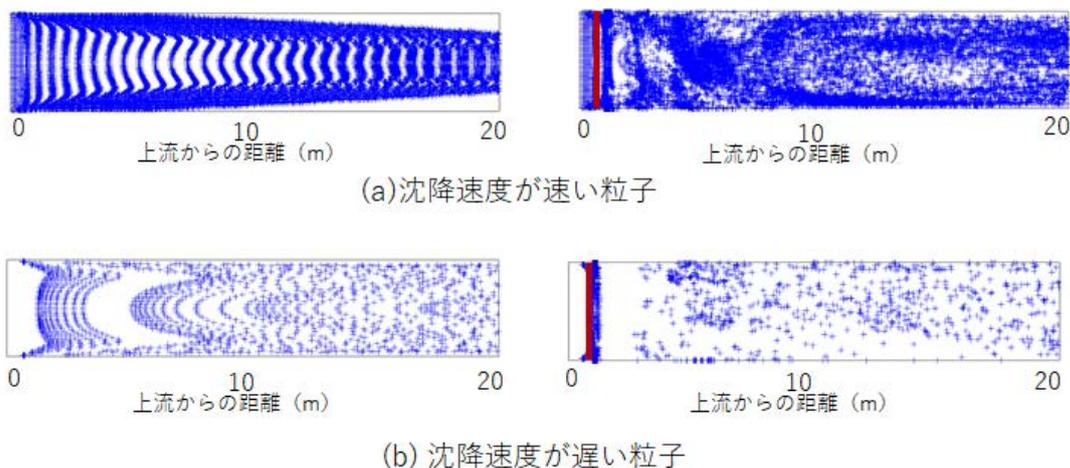


図 1 水路の上流に規則的に 16000 個の懸濁粒子を投入した際の堆積位置。左図はシルトフェンスを設置していない場合、右図は上流から 1m の地点（図中の赤線）にシルトフェンスを設置した場合の堆積位置を示している。

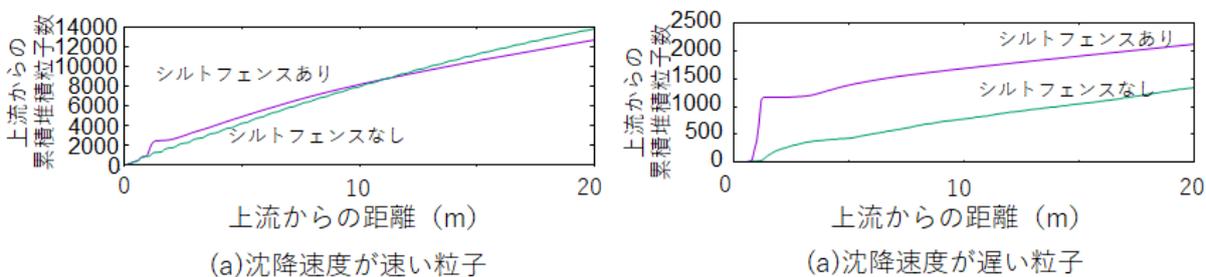


図 2 水路の上流に規則的に 16000 個の懸濁粒子を投入した際の上流からの累積堆積粒子数。

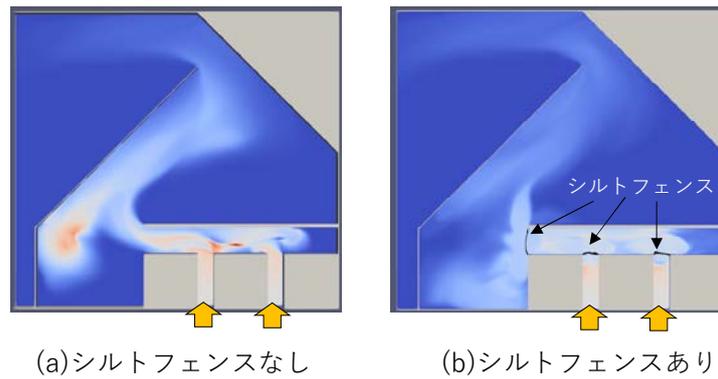


図 3 矢印の位置から港湾内に懸濁粒子が流入した際の堆積位置の一例。シルトフェンスの有無で堆積位置や量が大きく異なることが確認できる。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

査読付き会議及び査読付予稿

- 1) S. Yamada, T. Imamura, M. Machida, High performance parallel LOBPCG method for large Hamiltonian derived from Hubbard model on multi-GPU systems, proc. of SCFA22 (Springer Nature's Lecture Notes in Computer Science). pp.1-19, 2022.

**(4) 今後の利用予定:**

沿岸・海洋シミュレーションコード 3D-Sea-SPEC の機能の拡張を進めるとともに、様々な気象条件でのシミュレーションを実施し、港湾内の核種が外洋にどのように拡散するかの知見を得ることを目指す。また、計算科学分野の最先端の知見を利用し、シミュレーションコードの高速化・高性能化も併せて目指す。

### 5.14.8 水素材料の第一原理分子動力学計算

#### Ab Initio Molecular Dynamics Simulation of Hydrogen in Materials

志賀 基之、Thomsen Bo

シミュレーション技術開発室

##### (1) 利用目的:

本課題では、原子力分野の先端科学において重要な役割を果たす水素材料物性の微視的解明のため、水素材料の第一原理分子動力学計算を行う。

原子力関連の水素科学研究の裾野は非常に幅広い。原発事故に伴うトリチウム水やセシウム水溶液の環境影響、廃炉に伴うマイナーアクチナイドの分離技術、核融合炉開発に不可欠な放射性水素拡散の防止、金属材料の水素脆化や応力腐食割れ、地層処分における地下水腐食リスクの問題など、枚挙に暇がない。水素物性は様々な場面で重要な役割を演じるため、その起源となる水素の微視的振る舞いの解明は大きなインパクトを持つ。一方、環境・エネルギー問題への意識の高まりから、水素を次世代のエネルギー発生媒体として利用するための取り組みが注目されている。一昨年、日本政府は 2050 年までに温室効果ガスの排出を全体としてゼロにする「脱炭素社会」を目指すことを宣言した。これに伴い、次世代燃料電池やバイオマス変換など、水素利用技術に関わる材料設計に向け、固体や液体材料中の水素振る舞いに関する理解を深めるための基礎・基盤研究が重要性を増している。

水素は、水などの液体、金属中などの固体内部、有機物質などの生体分子中など、様々な環境の中であまねく存在している元素である。水素の特徴は、原子価を+1 から-1 まで変幻自在に変化させることや、量子性を帯びていて物質中を動き回りやすいことなどであり、水素材料の物性を豊かにしている。しかし、水素は、X 線で観測できないなど、実験の難しい元素でもある。このため、計算科学への期待が高まっている。本研究では、大型計算機 HPE SGI8600 を利用して、水素系を対象とした計算科学的研究、計算科学技術開発に取り組む。本年度は、(a) トリチウム水系、(b) 固体金属中の水素拡散系、(c) 水溶液中の有機反応系の第一原理分子動力学計算を実施する。

##### (2) 利用内容・結果:

###### (a) トリチウム水系

トリチウム水の第一原理経路積分分子動力学計算を行い、酸解離定数 (pKa) を評価した (論文 7)。常温常圧下において、 $\text{H}_2\text{O}$  では  $\text{pKa}=14.0$ 、 $\text{D}_2\text{O}$  では  $\text{pKa}=14.9$  であるが、 $\text{T}_2\text{O}$  (トリチウム水) の pKa は知られていない。pKa の違いは水素原子核の質量差によって生じる量子効果に由来すると考えられてきたが、これを計算で実際に確認したのは世界初のことである。酸解離定数を得るためには、水の解離自由エネルギーを精密に計算する必要がある。ところが、通常の第一原理分子動力学計算では、水の pKa は過大評価される上、同位体効果が生じない。実際に、 $\text{X}_2\text{O}$  の pKa は、 $\text{X}=\text{H,D,T}$  のいずれの場合も 18.5 程度に評価されてしまう。これは水素同位体の量子効果が反映されていないためである。

本研究では、第一原理経路積分分子動力学法によって原子核の量子効果を取り入れた。この

方法では、有限温度における原子の量子揺らぎをその複製で表現して、原子配置をサンプリングする。これを用いて、 $X_2O \rightarrow X^+ + OX^-$  の解離自由エネルギー曲線を次のようにして求めた。64 個の  $X_2O$  系の熱平衡状態を作っておき、その中の一つの  $X_2O$  分子に対して解離を促すように外部バイアスを加える。そして、 $X_2O$  分子がその外部バイアスに対して抵抗する平均力を求める。その平均力を積分したのが自由エネルギー曲線である。積分を平均力がゼロになるところまで続け、解離自由エネルギーを求める。つまり、外部バイアスの大きさをパラメータとして、その都度、第一原理経路積分分子動力学法を用いて抵抗力を計算する。

上記手法に基づく計算の結果、量子効果によって解離自由エネルギーを 4.5 程度低下することがわかった。その結果、 $H_2O$  の pKa は、およそ 14.0 に補正される。水の pKa を正しく評価することに成功したことは、第一原理計算技術としても新しい結果である。量子効果の存在によって、 $T_2O$  は  $H_2O$  軽水よりも解離自由エネルギーが大きくなることがわかった。解離自由エネルギーを pKa に換算すると、 $T_2O$  の pKa は  $15.4 \pm 0.9$  と算出され、 $H_2O$  の pKa=14.0 よりも高いという結果を得た。

#### (b) 固体材料中の水素拡散系

金属中に存在する水素は他の元素とは異なり、高速で拡散することが知られている。水素拡散現象は、水素吸蔵材料や核融合炉材料等における水素利用技術に関係する因子として古くから興味を持たれている。高温で発現する熱拡散と低温で発現する量子拡散が共存するために、水素拡散は非一様な温度変化をする。ところが、その機構をより詳しく知るために必要な拡散係数の精密決定は、現在もなお容易ではない。実験では測定可能な温度領域が制約され、作成試料によって測定データのばらつきが見られる。一方、第一原理計算では温度領域を自由に変わられるが、拡散経路に関する事前知識なしに行うことは困難である。しかし、量子効果によって拡散経路が変容する可能性のある低温下以外では、古典的最尤経路（最小エネルギー経路）に近いと期待されるため、これに沿った第一原理経路積分分子動力学計算から自由エネルギー曲線を量子論で求め、自由エネルギー障壁の幅と高さから拡散係数を評価できる。

上記手法に基づく計算を面心立方構造の金属 Pd 内部の水素拡散に対して行った。この場合、拡散経路は最安定の O サイトから準安定の T サイトを経由して別の O サイトへと辿る。拡散係数は、広い温度領域に渡って古典計算と量子計算に大きな差がある。興味深いことに、温度 150 K 前後を境として量子効果の大きさが反転する。これを詳しく解析すると、量子効果には反応経路方向のトンネリングと垂直方向の零点振動が含まれており、前者は拡散を加速するのに対して、後者は減速するため、それらが競争している結果であることが明らかとなった。

#### (c) 水溶液中の有機反応系

水溶液中の糖アルコール加水分解は、有機溶媒を使用せずに環境に優しいバイオマス変換を可能にする重要な反応である。その理解への第一歩はセルロースの水和構造を精緻に調べる手段を確立することである。本研究では、二糖類であるセロビオースの水溶液について、X 線吸収分光法 (XAS) スペクトルの測定と理論計算を組み合わせた研究を行った (論文 1)。第一原

理分子動力学計算と励起状態計算を用いて XAS のシミュレーションを実施し、高解像度の炭素 K 端の XAS スペクトル測定と比較した。その結果、セロビオースの XAS には 289.3 eV、290.7 eV、293.6 eV の 3 つのピークがあり、それぞれアルコール基、ヘミアセタール基、アルコール及びヘミアセタール基の両方に対応することがわかった。さらに、25°C から 60°C までの温度変化に対してスペクトルの高さが規則的に変化し、それがセロビオースと水分子の水素結合の数の変化を表していることがわかった。このスペクトルの変化は様々な環境におけるセルロースの水和構造を詳しく知る有用な手がかりである。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

査読付論文

- 1) D. Akazawa, T. Sasaki, M. Nagasaka, M. Shiga, “X-ray Absorption Spectra of Aqueous Cellobiose: Experiment and Theory” *J. Chem. Phys.*, 56, 2022, 044202.
- 2) B. Thomsen, M. Shiga, “Ab Initio Study of Nuclear Quantum Effects on Sub- and Supercritical Water”, *J. Chem. Phys.*, 155, 2021, 194107.
- 3) A. Pal, S. Pal, S. Verma, M. Shiga, N. N. Nair, “Mean Force Based Temperature Accelerated Sliced Sampling: Efficient Reconstruction of High Dimensional Free Energy Landscapes” *J. Comput. Chem.*, 42, 2021, 1996-2003.
- 4) K. Kobayashi, Y. Nagai, M. Itakura, M. Shiga, “Self-learning hybrid Monte Carlo for isothermal-isobaric ensemble: Application to liquid silica”, *J. Chem. Phys.*, 155, 2021, 034106.
- 5) H. Kimizuka, M. Shiga, “Two distinct non-Arrhenius behaviors of hydrogen diffusion in fcc aluminum, silver, and copper determined by ab initio path integral simulations”, *Phys. Rev. Mater.*, 5, 2021, 065406.
- 6) T. Kondo, T. Sasaki, M. Shiga, “The Mechanism of Sorbitol Dehydration in Hot Acidic Solutions”, *J. Comput. Chem.*, 42, 2021, 1783-1791.
- 7) B. Thomsen, M. Shiga, “Nuclear Quantum Effects on Autoionization of Water Isotopologues Studied by Ab Initio Path Integral Molecular Dynamics”, *J. Chem. Phys.* 155, 2021, 194107.
- 8) T. Kondo, T. Sasaki, S. Ruiz Barragan, J. Ribas Arino, M. Shiga, “Refined metadynamics through canonical sampling using time-invariant bias potential: A study of polyalcohol dehydration in hot acidic solutions”, *J. Comput. Chem.* 42, 2021, 156-165.

### (4) 今後の利用予定:

大型計算機 HPE SGI8600 を利用して、水素系を対象とした計算科学的研究、計算科学技術開発に引き続き取り組む。今後もトリチウム水系、固体金属中の水素拡散系、水溶液中の有機反応系の第一原理分子動力学計算を継続するため、大型計算機を利用する予定である。

### 5.14.9 機械学習分子動力学によるコンクリート中の放射性セシウムの吸着挙動の解析 Analysis of Cesium Adsorption in Concrete using Machine Learning Molecular Dynamics

小林 恵太、奥村 雅彦、町田 昌彦  
シミュレーション技術開発室

#### (1) 利用目的:

福島第一原子力発電所では、大量の放射性セシウムで汚染されたコンクリートが存在し、その処理が廃炉作業などにおいて問題になると考えられている。本課題では、放射性セシウムによるコンクリート汚染を原子レベルから解明し、コンクリート中のセシウム吸着に関する知見取得を目的としている。放射性セシウムの吸着形態を原子レベルから解析するには古典分子動力学等の手法が有用であると考えられるが、古典分子動力学は経験的なパラメータに強く依存するため、得られた結果の信頼性には十分な検討が必要となる。一方、経験的なパラメータに依存しない高精度計算として、量子力学計算に基づいた第一原理計算が存在するが、その計算コストの高さから、扱えるシステムサイズとシミュレーション時間が強く制限される。本課題では、第一原理計算と同等の精度で分子動力学の実行が可能となる、機械学習分子動力学法を用いる。具体的には、スパコン上で大量の第一原理データを生成し、第一原理計算を再現するニューラルネットワーク（機械学習力場）を作成する。機械学習力場を用いた高精度大規模分子動力学を実行することにより、コンクリート中のセシウム吸着を原子レベルから明らかにすることを目指す。

#### (2) 利用内容・結果:

セシウムはコンクリート中のセメントペーストに吸着されることが知られている。本課題ではセメントペーストのモデル物質であるトバモライトを解析対象としている。2021年度はセシウムイオンを含んだトバモライトの機械学習力場の開発を行った。また、実際のセメントペーストはトバモライトが非晶質化したものであると考えられている。本課題では、まず非晶質トバモライトを対象とする前に、トバモライトの基本構成要素であるシリカの非晶質状態を記述する機械学習力場の開発を行っている。以下に得られた成果の概要を示す。

##### ・セシウムイオンを含んだトバモライトの機械学習力場の開発

セシウムを含むトバモライトの機械学習分子動力学法を実行するためには、5成分での機械学習力場を構築する必要がある。一般に、機械学習力場は多成分になるほど、記述子次元の増加を引き起こし、学習コストが増加する。例えば、4成分の学習を行った場合、既存手法ではニューラルネットワークの最適化1エポックに対し、1200 cpu コアを使用し4536秒の計算時間を有する（表1）。一般に、ハイパーパラメータの調整、データセットの追加等に伴い、ニューラルネットワークの学習は複数回実行する必要があるため、学習コストの高さが機械学習ポテンシャルを多成分へ適用する際の一つの障壁となっていた。本手法では適切に記述子を組み合わせ、次元削減を行うことにより、精度を落とさずに、計算時間を既存手法から1/3程度に短

縮することに成功した (表 1)。この手法を用いることにより、セシウムを含んだ 5 成分系においても現実的な計算時間で機械学習力場の構築に成功した (表 1)。

表 1 多成分系でのニューラルネットワーク (機械学習力場) の最適化

4 成分系 60000 構造	記述子次元 (H,O,Si,Ca)	並列数 (core 数)	計算時間 time/epoch[s]	誤差 RMSE (energy) [eV/atom]	誤差 RMSE (force) [eV/Å]
既存手法	(190,207,175,153)	1200	4536	3.48E-03	8.21E-02
本手法	(33,207,24,21)	800	1477	3.54E-03	9.56E-02
5 成分系 85985 構造	記述子次元 (H,O,Si,Ca,Cs)	並列数 (core 数)	計算時間 time/epoch[s]	誤差 RMSE (energy) [eV/atom]	誤差 RMSE (force) [eV/Å]
本手法	(34,286,24,20,23)	800	2281	3.02E-03	8.82E-02

・非晶質シリカの機械学習力場の開発

非晶質シリカを作成するためには、高温での液体シリカの機械学習力場の作成が必要となる。課題申請者は、先ず、自己学習ハイブリットモンテカルロを用いて、液体シリカの計算を行い、第一原理計算による液体構造の振る舞いに関して確認した。そこで得られた知見を活かし、非晶質シリカの機械学習力場の作成を行った。機械学習分子動力学を用いて、液体シリカ状態から急冷を行い、非晶質構造を作成した。作成した構造の構造因子を計算し、J-PARC の中性子回析により計測された非晶質シリカの構造因子との比較を行った。機械学習分子動力学により、実験で得られた構造因子を高精度に再現可能であることを確かめた (図 1)。

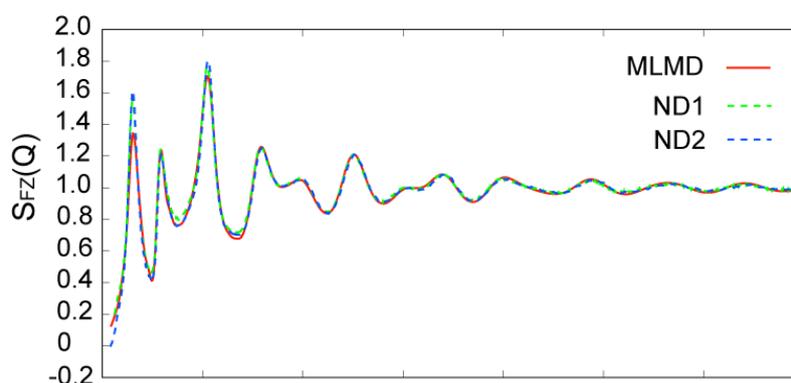


図 1 MLMD: 機械学習分子動力学により計算された非晶質シリカの構造因子. ND1, ND2: 中性子回析により得られた非晶質シリカの構造因子

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

## ・論文

- 1) K. Kobayashi, Y. Nagai, M. Itakura, and M. Shiga, “Self-learning hybrid Monte Carlo method for isothermal–isobaric ensemble: Application to liquid silica”, *The Journal of Chemical Physics* 155, (2021) 034106 (出版済).
- 2) T.Okita, S.Terayama, K.Tsugawa, K.Kobayashi, M.Okumura, M.Itakura, and K.Suzuki, “Construction of machine-learning Zr interatomic potentials for identifying the formation process of c-type dislocation loops”, *Computational Materials Science* 202 (2022) 110865 (出版済).
- 3) K. Kobayashi, A. Yamaguchi, and M. Okumura, “Machine learning potentials of kaolinite based on GGA and meta-GGA density functionals”, *Applied Clay Science*, 228, 2022, 106596 (受理済).
- 4) K. Kobayashi, M. Okumura, H. Nakamura, M. Itakura, M. Machida, and Michael W.D. Cooper, “Machine learning molecular dynamics simulations toward exploration of high-temperature properties of nuclear fuel materials: case study of thorium dioxide”, *Scientific Reports*, 12(1), 2022, 9808 (受理済).

## ・国内会議

- 5) 小林恵太, 中村博樹, 山口瑛子, 板倉充洋, 町田昌彦, 奥村雅彦, 「多成分系における機械学習分子動力学法」, 日本原子力学会 2021 年秋の年会, オンライン, 2021 年 9 月.

**(4) 今後の利用予定:**

セメント水和物のような、複雑な系に対する高精度シミュレーションは、従来の計算手法では困難なものがあったが、機械学習分子動力学法により、セメント水和物の高精度シミュレーションが可能となった。今後はセシウムイオンを含んだセメント水和物の機械学習力場の構築を行い、コンクリートへのセシウムイオン吸着挙動の解明に取り組んでいく予定である。そのための第一原理データ作成のためにスパコン利用が必要である。

## 5.14.10 原子・分子シミュレーションによる核燃料の物性評価

### Atomic Simulations of Physical Properties for Nuclear Fuel

中村 博樹

シミュレーション技術開発室

#### (1) 利用目的:

本テーマの目的は、核燃料の構成物質である酸化アクチニドを始めとするアクチニド化合物や核燃料に関連する材料の物性を、第一原理計算を始めとするシミュレーションにより推算し、核燃料関連物質の物性の計算による評価を可能として、核燃料開発やシビアアクシデント解析に貢献することである。

二酸化プルトニウムを始めとしたアクチニド化合物はその取り扱い上の制限から頻繁に実験を行い、精度の高い物性評価をすることは極めて困難である。さらに、高速炉内やシビアアクシデントで想定されるような極限環境での物性実験はほとんど不可能である。そのため、炉内での燃料挙動を評価するには、そのような環境下で物性を精度良く再現できるシミュレーション手法を確立することが極めて重要である。この目標を達成するために、我々はシミュレーション手法として、経験的パラメータを必要としない第一原理計算を採用してきた。さらに、これまでに開発した手法を基にして、マルチスケール手法を用いて、メソスコピック、マクロスコピックシミュレーションへの応用を行ない、より現実的な物性評価を目指している。特に、第一原理計算を学習することで、第一原理計算と同程度の信頼性で高速なシミュレーションが可能な機械学習分子動力学法を利用した物性予測にも挑戦する。

この研究の最終的なゴールとしては、MA-MOX などの新規燃料の開発に有用な知見を与えることを可能とすることである。特に実験で観測することが困難な物性値を、計算で取得することによって、核燃料開発を効率化させることができる。また、シビアアクシデント解析においては、原子炉の通常運転時にはありえない環境での物性値を評価する必要があり、そのような場合も本研究で開発された技術を応用できる。また、今後、福島第一原発での燃料デブリの取り出しに伴い、その物性が問題となってくるが、その評価にも適用が期待される。

本年度は 2 つのテーマについて研究を行った。1 つ目は二酸化プルトニウムの磁性に関する基底状態評価を可能とする第一原理計算手法の開発である。2 つ目は、燃料デブリの生成時の制御棒と鉄の熔融反応評価のため、熔融鉄の制御棒構成物質への浸透に関するシミュレーションを行なった。以下、2 つのテーマに関する研究成果を報告する。

#### (2) 利用内容・結果:

##### 1. 第一原理計算と機械学習分子動力学を用いた酸化アクチニドの物性評価

本研究では磁性基底状態を正しく評価できる第一原理計算手法の開発を行った。対象とした物質は  $\text{PuO}_2$  である。 $\text{PuO}_2$  は実験では常磁性の絶縁体として知られている。実際に通常の第一原理計算手法でこの常磁性絶縁状態を再現することは可能である。しかしながら、計算では磁性を持った状態の方が安定になってしまい、正しい基底状態を再現できないという問題があった。二酸化アクチニドの第一原理計算では、強相関効果を考慮し、DFT+U や hybrid-DFT など

の方法が用いられるが、いずれを用いても磁性がある方が安定であるという結果は変わらなかった。結晶場理論によっても、常磁性の方が安定であるとの結論が出ていることから、これはDFTにおける交換・相関エネルギーの近似に問題があると考えられる。

この問題を解決するために本課題では多体効果を考慮した adiabatic-connection-fluctuation-dissipation theorem (ACFDT) に対して random-phase approximation (RPA) を適用してエネルギーを評価した。RPA 近似を採用していることで、ある程度の多体効果を表現することが可能であり、基底状態評価の改善が期待できる。これらの計算は VASP コードを用いて行ったが、プログラム高速化作業によって GPU に対応した OpenACC 版を主に用いた。ACFTD-RPA 法を用いて、PuO<sub>2</sub> のエネルギーを格子定数の関数として描いたものが図 1 である。図 1 (a) にはまず、DFT+U の結果を示してある。図からわかるように、非磁性よりも強磁性、反強磁性のエネルギーが低く、安定であることを示している。一方、図 1 (b) に示してある ACFDT-RPA の結果では非磁性が最もエネルギーが低く、反強磁性がわずかながら非磁性より高く、強磁性が最もエネルギーが高くなっている。このように ACFDT-RPA を用いて多体相関を考慮したことによって、非磁性状態を基底状態として再現することができた。この成果は第一原理計算による二酸化アクチノイドの正しい基底状態評価を可能とするものであり、精度の高い物性予測を可能とするものである。

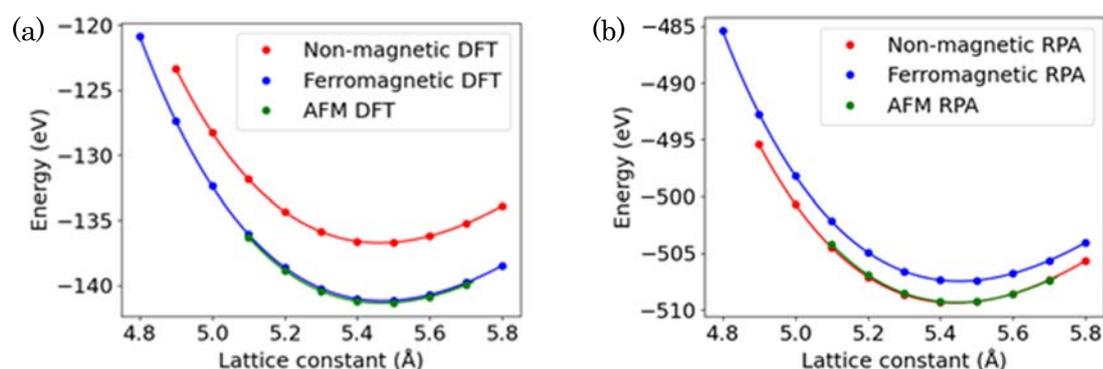


図 1 格子定数に対する PuO<sub>2</sub> のエネルギー。(a) DFT+U を用いた結果。(b) ACFDT-RPA を用いた結果。赤い線は非磁性、青い線は強磁性、緑の線は反強磁性を表している。

## 2. シビアアクシデント関連物質の物性評価

シビアアクシデント時には制御棒で鉄と炭化ホウ素 (B<sub>4</sub>C) との共晶により融解することが予想される。この時の熔融進展の解析のために、B<sub>4</sub>C 中の空隙に熔融した鉄が浸透していく機構を理解する必要がある。そのために微粒子が敷き詰められて作られた空隙中を毛管圧によって、熔融鉄が浸透していくシミュレーションを行なった。

具体的な系としては  $0.1 \times 0.1$  mm の 2 次元系に半径  $1.8 \mu\text{m}$  の  $\text{B}_4\text{C}$  の円柱を  $2 \mu\text{m}$  の間隔で敷き詰めた状態に対して熔融鉄を浸透させた。熔融鉄の密度や粘性。表面張力は  $1500\text{K}$  での熔融鉄のパラメータを用いた。計算はオープンソースの流体コードである OpenFoam を用いた。表面張力の計算を安定させるため、Sharp Surface Force 法を採用した。図 2 に実際のシミュレーション

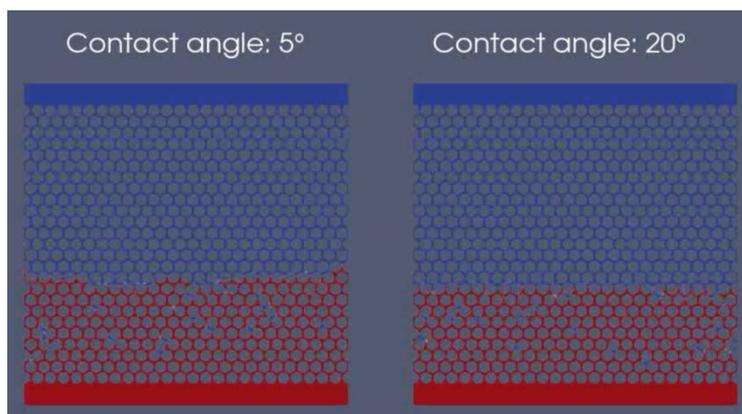


図 2  $\text{B}_4\text{C}$  の空隙に毛管圧により浸透する熔融鉄の様子。赤い部分が熔融鉄、青い部分が空隙である。

の様子を示す。図の左側が  $\text{B}_4\text{C}$  と熔融鉄の接触角を  $5$  度、右側が  $20$  度にしたものである。この図は初期状態として最下層の 1 段目の半分まで熔融鉄に浸かっているものとした、およそ 2 秒後のスナップショットである。図 3 に熔融鉄の浸透長を時間の関数として示した。接触角  $5$  度の方が少し浸透速度が速くなっている。また、どちらの場合も浸透長は時間の  $1/2$  乗に比例している。この成果はシビアアクシデントの進展解析に貢献することのできるものである。

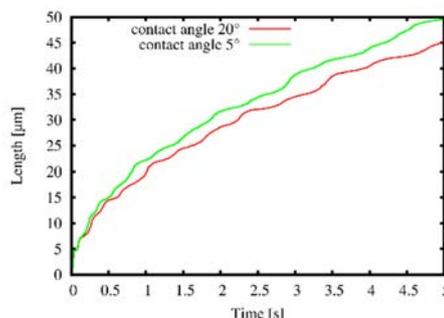


図 3 熔融鉄の浸透長。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

招待講演

- 1) 中村博樹「計算科学を用いた核燃料物性研究」日本原子力学会 2022 年春の年会 (オンライン) .

### (4) 今後の利用予定:

今後はこれまでに開発した第一原理計算手法を基にして、機械学習を用いた分子動力学による熱物性の評価を行う予定である。

### 5.14.11 液体材料の第一原理計算

#### First-principles Calculation of Liquid Materials

板倉 充洋、海老原 健一、山口 正剛、鈴木 知明、小林 恵太、中村 博樹、奥村 雅彦  
シミュレーション技術開発室

#### (1) 利用目的:

新型炉の設計や、既往軽水炉における事故解析等においては固体・液体界面の特性が重要なパラメータとなる場合がある。ADS などの次世代炉では水の代わりに液体金属を冷媒として用いる場合が多く、特に ADS では鉛ビスマス冷媒による構造材の液体金属脆化が設計を決める要因となる。また福島第一原発の廃炉作業を前に、炉内で燃料、被覆管、制御棒、構造材など様々な材料が溶融し化学変化、反応して生成したデブリの組成や分布を予測することが現在求められている。こうしたテーマにおいて特に溶融した金属や酸化物とそれ以外の材料の相互作用が重要なファクターとなるが、それを調べるには大規模な第一原理計算が必要となる。

#### (2) 利用内容・結果:

##### 1) 達成目標

a) ADS 材料と液体金属の相互作用評価に関しては、表面エネルギーへの影響ではどちらも脆化が予測される液体金属であるインジウムとガリウムについて、インジウムにおいてのみ脆化がおこるメカニズムの界面を目標とした。

b) 御棒溶融解析では、 $B_4C$  と鉄の共晶溶融をモデル化するための原子スケールでの B 原子拡散モデルの構築を目標とした。

##### 2) 研究成果とその重要性

##### a) ADS 材料と液体金属の相互作用評価

ADS 炉の冷媒として使用される液体鉛ビスマス、および実験データのある液体インジウムについて、脆化による亀裂進展のパスとなると考えられる粒界面での液体金属原子の挙動を解明する計算を行った。引っ張り応力をかけた状態の粒界面に液体金属原子を吸着させ、吸着エネルギーと引っ張り応力の関係を計算した結果を以下に示す (図 1)。ガリウムとインジウムはどちらも鉄の表面に強く吸着するので表面エネルギーを低下させる効果がある。それだけであればどちらも脆化する効果があるということになるが、山口の計算 (成果リスト 1) によればガリウムは鉄と強く結合するので粒界面に侵入しても脆化がおきないのに対し、インジウムは結合を強くする効果はないので脆化するという機構が予測されていた。本成果から実際にインジウムが粒界面を開きやすくする一方、ガリウムはそうした効果がなく、脆化の効果があることが確認できた。

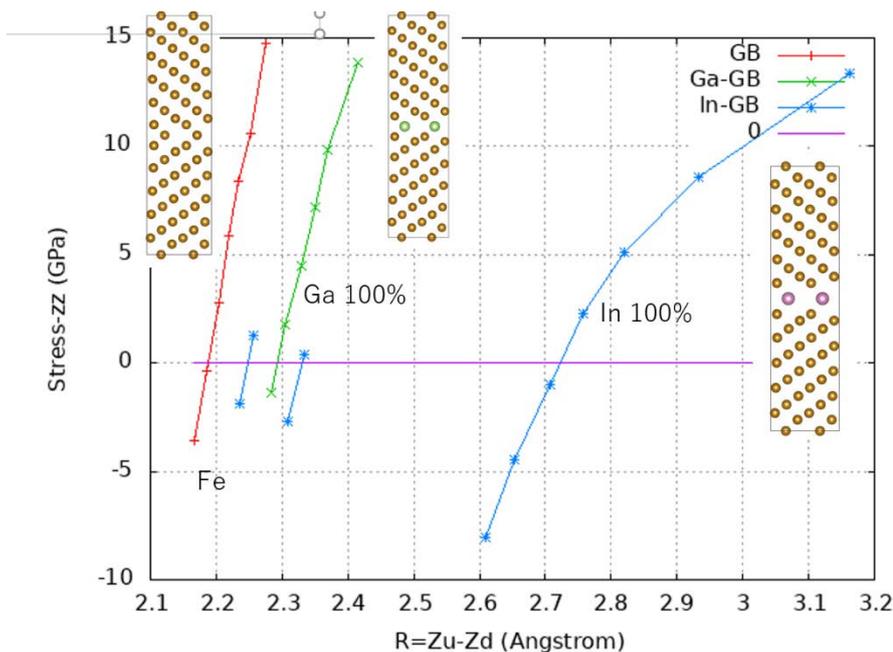


図1 鉄の粒界面に液体金属原子が入った場合の開き具合と応力の関係

b) 制御棒溶融解析

シビアアクシデント解析において最初に溶融が起これると考えられる制御棒溶融について、融点直前でのオーステナイト中のホウ素拡散をモデル化することを目標とし、 $\gamma$  鉄、 $\text{Fe}_2\text{B}$ 、 $\text{FeB}$  それぞれの固体における B 格子間原子、B 空孔の生成エネルギーおよび移動障壁を第一原理計算で評価した。その結果、 $\gamma$  鉄ではホウ素が結晶中に侵入するのは困難である一方、 $\text{Fe}_2\text{B}$ 、 $\text{FeB}$  では結晶の隙間に余分な B 原子が侵入でき、比較的低いエネルギー障壁で移動可能であることが分かった。既往研究では  $\gamma$  鉄においても B 原子の拡散が観察されているが、論文にある写真をみると鉄の結晶粒界にそって B が拡散している様子が確認できる。これらミクロな計算結果から推定される鉄への B 原子の拡散過程を図 2 に示す。

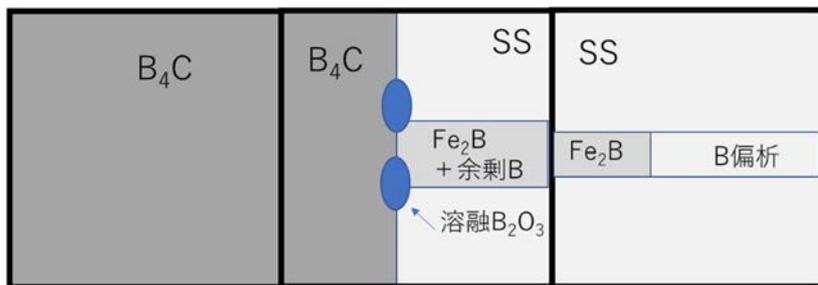


図 2 ステンレス鋼へのホウ素拡散過程

拡散定数の実験では、 $\text{Fe}_2\text{B}$ 、 $\text{FeB}$  と比較して鉄中の B 拡散は非常に遅く、活性化エネルギーが低いのに対し拡散の prefactor が非常に小さいという結果が得られている。これは B 原子が粒界面という限られたパスを移動するためであると考えたと説明がつく。また、既往研究によれば  $\text{B}_4\text{C}$  内部で空孔は特定の位置にトラップされてほとんど動けないことが分かっているが、

それは B<sub>4</sub>C 中では物質の拡散がほとんどおこらず、鉄原子が B<sub>4</sub>C 側に拡散していく効果は無視できることを示している。

これらの知見を元に、原子力基礎工学研究センターが開発している JUPITER を用い、コードを改造して上記のような非対称な物質拡散を扱えるようにするとともに、共晶温度において生じる固体と液体の混合状態での拡散定数や粘性値をマイクロな知見に基づいて計算するモデル (図 3) を導入し、流動解析を行った。その結果、B<sub>4</sub>C はほとんどそのまま残るのに対しわずかな B<sub>4</sub>C の溶出によって被覆管の鉄がすべて溶融する振る舞いを再現することができた。(図 3)。

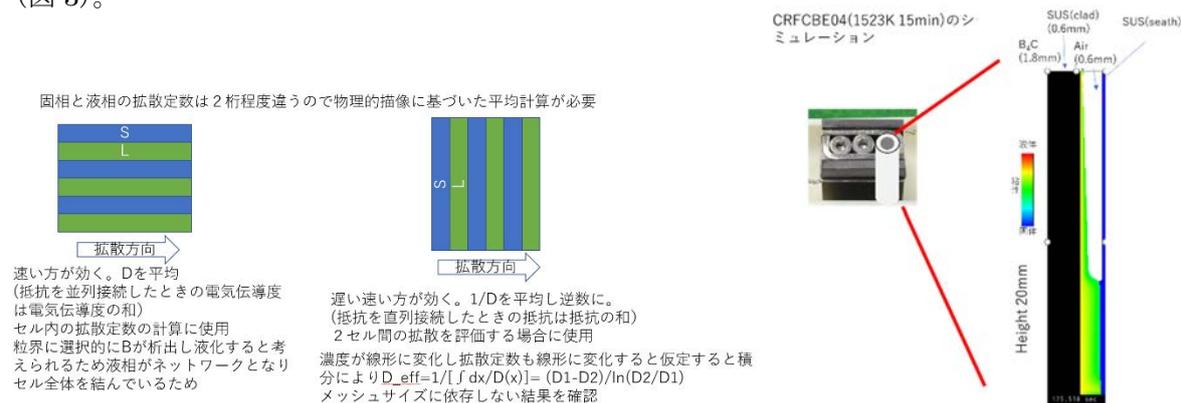


図 3 左：固液混合相における拡散定数の評価。右：JUPITER を用いた制御棒溶融シミュレーションの概要

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等)：

#### ■論文発表

- 1) M. Yamaguchi, T. Tsuru, M. Itakura and E. Abe, “Atomistic weak interaction criterion for the specificity of liquid metal embrittlement” Scientific Reports (Accepted).

#### ■口頭発表

- 2) 板倉充洋, 中村博樹, 奥村雅彦, 「過酷事故における溶融物の多孔質浸透のモデル化」日本原子力学会 2021 年秋の大会, 2021.

#### ■受賞

- 3) 板倉充洋, 第 18 回 日本原子力学会 計算科学技術部会 CG 賞「原子力材料の固液界面の第一原理計算」.

### (4) 今後の利用予定：

液体金属脆化に関しては ADS ビーム窓の候補の一つであるオーステナイト鋼についての基礎的な計算手法の確立を目指す。また共晶溶融解析に関しては Fe-B-C 系の液体状態の自由エネルギーを第一原理計算で評価し、廃炉のための熱力学 DB への貢献を目指す。

### 5.14.12 DFT-MD によるグラファイトの照射中挙動解析

#### DFT-MD Analysis of Irradiation Behavior of Graphite

板倉 充洋(a)、石田 純一(b)、谷村 直樹(b)、山口 優太(b)

(a)シミュレーション技術開発室

(b) みずほリサーチ&テクノロジーズ株式会社

#### (1) 利用目的:

高温ガス炉燃料の被覆材料としては SiC-黒鉛組成傾斜体が候補となっている。一般的にどのような材料でも中性子照射で収縮や膨張（スエリング/swelling）が起こるため、SiC/黒鉛組成傾斜体では各層の界面で応力の発生およびそれに伴うクラックの発生等が予想される。スエリングは照射によって発生した空孔や格子間原子などの照射欠陥が材料中を拡散し、欠陥の集合体を形成したり、材料表面に達することで材料の寸法変化を引き起こす現象である。その定量評価はメゾ・マクロスケールにおいて照射欠陥の拡散およびそれらが反応し消滅あるいは集合体を形成する過程をモデル化することで可能である。本研究では、スエリングのモデルに必要な、照射欠陥の dpa あたりの照射欠陥の生成数などのパラメータなどを第一原理計算分子動力学法（DFT-MD）によって取得し、スエリングを定量評価するシミュレーション技術を開発することを目標とする。令和 3 年度は、SiC/黒鉛組成傾斜体の成分である炭化ケイ素およびグラファイト、それら混合物のうち、グラファイトを対象とした。

#### (2) 利用内容・結果:

グラファイトの照射に関しては、2007 年に 108 原子を用いた第一原理分子動力学によるはじき出しの計算が行われている。この計算においては 1 つの炭素原子に運動エネルギーとして 10 eV から 50 eV までの値を与え、様々な方向への初速度を与えて格子位置からはじき出されるかどうかを調べることで、実験的な測定が難しいはじき出しエネルギーの方位依存性を調べている。ただし問題点として、C 軸方向にグラファイト 2 層分しかない体系を用いた計算であり、周期境界条件によって通常の場合とは異なる状況になっている。またこの当時の第一原理計算に用いられていた汎関数ではグラファイトの層間距離が実験値より大きくなり正しく再現できないという問題があり、実験でわかっている層間距離を用いて計算が行われている。一方で、最近になって meta-GGA と呼ばれる、より優れた汎関数が開発され、グラファイトの層間距離も正しく再現されるようになった。本研究ではこの meta-GGA を使い、グラファイト 4 層、炭素原子 128 個からなる体系を用いてはじき出しの第一原理分子動力学計算を行い、はじき出しエネルギーの計算を行った。

既往研究からの最も重要な改善点は層間の原子同士の相互作用をより現実的なものとして計算した点であるが、その影響が最も現れると考えられる条件は、炭素原子が C 軸方向にはじき出された場合である。既往研究では 25 eV と 30 eV の間にはじき出しエネルギーの閾値があるという結果が得られているが、本研究で行った計算では 30 eV と 40 eV の間に閾値があるという結果が得られた。既往研究で用いられた第一原理計算は層間の原子間力を過小評価する傾向があり、これを再現するより信頼できる第一原理計算で評価して閾値が高くなったという結果

は定性的に矛盾しないものと言える。

本成果は原子力システム研究開発事業「3D 造形革新燃料製造のシミュレーション共通基盤技術」において行った研究の成果である。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

なし

**(4) 今後の利用予定:**

同様の解析を SiC 等についても行っていく予定である。

## 5.14.13 照射材料の微細構造発達シミュレーションのための原子論的シミュレーション

## Atomistic Simulations for Microstructural Evolution of Irradiated Materials

鈴木 知明

シミュレーション技術開発室

## (1) 利用目的:

2021 年度課題の達成目標

## a) き裂進展研究

これまで鉄のへき開シミュレーションについて実験を再現する良好な成果が得られたが、使われた経験ポテンシャルの精度についてまだ議論の余地があった。そのため、2021 年度は機械学習により開発された高精度のポテンシャルで前年度の結果が再現されるかを検証した。また、鉄中に水素が存在することにより空孔生成が促進されることが明らかになっている。2021 年度はこれらの成果に基づいて空孔の破壊靱性への影響を分子動力学シミュレーションで解析することにより、水素助長ひずみ誘起空孔 (HESIV) 理論に基づく水素脆化の研究を行う。

## b) 照射誘起の欠陥の挙動に関する研究

鉄鋼材料における照射起因転位ループによる硬化現象のシミュレーション研究を行った。具体的には、第一原理計算や機械学習ポテンシャルを用いた分子動力学によって高精度な原子シミュレーションを行い、適切な可視化法を使って転位ループの結合やバーガズベクトルの変化などのメカニズム解明を行う。

## c) プラズマ対向材としてのタングステンの照射効果研究

プラズマ対向材としてのタングステン材について、タングステンに特定の元素を加えた合金において照射欠陥の残留量が抑制されるという課題申請者の理論モデルに関して、昨年度それを支持する共同研究者の実験結果が得られている。この実験結果をより定量的に再現することを目的として、タングステン合金の大規模第一原理計算を進める。

## (2) 利用内容・結果:

## a) き裂進展研究

機械学習法により開発された高精度のポテンシャルで破壊の分子動力学シミュレーションを行った。具体的には、図 1 に示した直方体サンプルの z 面に円盤状のき裂 (ペニー型クラックと呼ばれる) を導入し、z 方向に引張負荷をかけ、き裂の進展およびき裂からの転位の射出を観察した。z 面、すなわちき裂の面として、表面エネルギーの低い (すなわち割れやすいと考えられる)  $\{100\}$  面と  $\{110\}$  面の 2 種類を検討した。その結果、 $\{100\}$  面の場合、全く塑性変形せずにき裂が進展したが、 $\{110\}$  面のき裂からは変形の初期段階で転位が射出されき裂の進展は見られなかった。 $\{100\}$  面は実験で得られるへき開面であるので、シミュレーション結果は実験結果と一致している。また、シミュレーション結果は理想的なへき開面において塑性変形が起きないことを意味した。一方、実験で得られる脆性破壊では塑性変形を伴うが、今回の結果はそれら

の塑性変形が熱的効果または格子欠陥によるもので脆性破壊の本質ではないことを示唆している。引き続き粒界破壊などの脆性破壊を検証し、結果がまとまった時点で論文発表を行う予定である。また、水素脆化が空孔の発生によって引き起こされるという仮説（HESIV理論）を検証するために、図1の体系に高濃度の空孔や空孔クラスターを挿入し破壊シミュレーションを行った。しかしながら、今のところ単純に空孔や空孔クラスターを入れたからといって脆性破壊が促進されるという結果は得られていない。

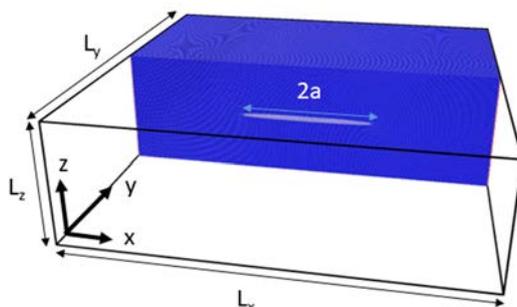


図1 き裂進展研究に用いた分子動力学シミュレーションの体系の断面：z面に半径 $a=20\text{nm}$ の円盤状のき裂を導入し、z方向に引張負荷をかけた。体系のサイズ（ $L_x \times L_y \times L_z$ ）は $100\text{nm} \times 100\text{nm} \times 300\text{nm}$ である。

#### b) 照射誘起の欠陥の挙動に関する研究

外部の共同研究者によってらせん転位の転位芯が第一原理計算結果をほぼ正確に再現する鉄ポテンシャルが機械学習法によって開発された。よって、初めて正確な転位芯を有するらせん転位と転位ループの相互作用のシミュレーションを行うことができた。その結果、転位ループはらせん転位にこれまで考えられていたよりも合体しやすく、強い障害物でないことが示唆された。これ照射による脆化を考えるうえで重要な知見である。

#### c) プラズマ対向材としてのタングステンの照射効果研究

タングステンに様々な溶質元素（Re, Cr, Ta, Mo）を加えた合金効果の実験結果が共同研究者によって多数報告され、課題申請者が第一原理計算とキネティックモンテカルロ計算から予測した結果を支持しICFRMにおいて招待講演を行った。また、これらの実験結果の照射欠陥挙動をより正確にモデル化するため、より高精度での合金の第一原理計算を行った。

タングステンやモリブデン中の格子間原子の移動障壁が高いことの原因とされている格子間原子ダンベルの傾斜について、第一原理計算から得られた格子間原子ダンベル近辺での非対称な電荷密度分布がその傾きを引き起こしていることを見出し、論文発表した。

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) J. Chen, K. Yoshida, T. Suzudo, Y. Shimada, K. Inoue, et al., “In Situ TEM Observation and MD Simulation of Frank Partial Dislocation Climbing in Al–Cu Alloy”, *Materials Transactions*, 63(4), 2022, pp.468-474.
- 2) J. Wang, Y. Hatano, T. Toyama, T. Suzudo, T. Hinoki, V.K. Alimov, “Suppression of

vacancy formation and hydrogen isotope retention in irradiated tungsten by addition of chromium”, *Journal of Nuclear Materials*, 559, 2022, p.153449.

- 3) T. Toyama, C. Zhao, T. Yoshiie, S. Yamasaki, S. Uno, M. Shimodaira, H. Miyata, T. Suzudo, Y. Shimizu, K. Yoshida, K. Inoue, Y. Nagai, “Radiation-enhanced diffusion of copper in iron studied by three-dimensional atom probe”, *Journal of Nuclear Materials*, 556, 2021, p.153176.
- 4) M.R. Gilbert, K Arakawa, Z Bergstrom, MJ Caturla, SL Dudarev, F Gao, ..., T. Suzudo, ..., “Perspectives on multiscale modelling and experiments to accelerate materials development for fusion”, *Journal of Nuclear Materials*, 554, 2021, p.153113.
- 5) C. Zhao, T. Suzudo, T. Toyama, S. Nishitani, K. Inoue, Y. Nagai, “Investigation of Cu Diffusivity in Fe by a Combination of Atom Probe Experiments and Kinetic Monte Carlo Simulation”, *Materials Transactions*, 62 (7), 2021, pp.929-934.
- 6) T. Suzudo, T. Tsuru, “Inclination of self-interstitial dumbbells in molybdenum and tungsten: A first-principles study”, *AIP Advances*, 11 (6), 2021, p.065012.
- 7) T. Suzudo, T. Toyama, J. Wang, Y. Hatano, “Solute elements suppress the radiation damage in Tungsten alloys: Comparison between first-principles-based modeling and experimental evidence”, *ICFRM-20*, On-line, 2021.

#### (4) 今後の利用予定:

##### a) き裂進展研究

2022年度は変形や破壊のケーススタディを増やしつつ、粒界破壊に関しても機械学習ポテンシャルでその破壊のメカニズムを明らかにしていく。また、水素脆化の空孔起源説の実証に関しては、これまでのシミュレーションから単純に空孔や空孔クラスターをき裂周辺に導入しただけでは脆化しない結果が得られたので、共同研究者による鉄水素ポテンシャルの開発後、水素を含めた破壊シミュレーションを考える。

##### b) 照射誘起の欠陥の挙動に関する研究

また圧力容器の脆化の原因となっている照射誘起の転位ループによる硬化現象の研究を引き続き行う予定である。昨年度は外部の研究者と協力を得て転位ループを精度よく再現する機械学習ポテンシャルの開発を行った。これまで 0 K における基本的な挙動を調査したので、2022年度はより実環境に即した有限温度でのシミュレーションを行う。

##### c) プラズマ対向材としてのタングステンの照射効果研究

照射耐性が良好なタングステン合金が実験的に得られている。これらの実験結果をさらに定量的に説明するために、これまでよりも精度を高めた第一原理計算を行っていく。

#### 5.14.14 大規模流体計算に対する混合精度前処理の開発

##### Development of Mixed-precision Preprocessing for Large-scale Fluid Flow Calculations

伊奈 拓也

高度計算機技術開発室

###### (1) 利用目的:

過酷事故時の燃料溶融解析や新型炉設計のための熱流動解析等、原子力分野の流体シミュレーションは取り扱う事象が複雑化、大規模化しており、エクサスケール計算機を駆使した大規模計算が必要不可欠となっている。また、富岳や Summit などの最先端スーパーコンピュータでは倍精度よりも低精度演算性能の方が数倍高く、低精度演算を活用した混合精度処理が重要となっている。上記背景から本課題では HPE SGI8600 GPGPU 演算部の NVIDIA Tesla V100 でサポートされているデータ形式 bfloat16 (BF16) 及び FP16 を利用した混合精度演算アルゴリズムの開発を実施する。

###### (2) 利用内容・結果:

3次元多相多成分熱流動解析コード JUPITER を対象に混合精度演算アルゴリズムを開発した。JUPITER コードは原子炉内の挙動を解析するために非圧縮のナビエ・ストークス方程式と連続の式を連立して解いている。この過程で圧力のポアソン方程式を前処理付き共役勾配法 (PCG 法) で解く。しかし、密度差が顕著になる多相流体計算では問題の条件数が大きい悪条件行列となるため圧力のポアソン方程式を解く計算コストがホットスポットである。そのため、原子炉全体を模擬した大規模解析で必要となる計算資源が膨大となるため高速化が必要不可欠である。この課題を解決するために PCG 法の前処理計算に BF16、FP16 を利用した低精度演算を行うことでメモリアクセスを低減させ、PCG 法を高速化させる混合精度前処理を開発した。

BF16 の指数部のビット数は FP32 と同じであるが、仮数部のビット数が FP32 よりも少ない。そのため、BF16 は FP32 と同等なダイナミックレンジを持つが丸め誤差の影響を受けやすいデータ形式である。前処理に BF16 を適用すると丸め誤差による数値精度の低下により PCG 法の収束性を悪化させることが懸念される。この問題を解決するために BF16 を FP32 に変換し、演算を FP32 で実行することで中間結果を FP32 で保持して最終結果を BF16 に変換する混合精度演算を行うことで丸め誤差を低減させて PCG 法の収束性を維持する BF16 データ/FP32 演算混合精度前処理を開発した。

FP16 は指数部及び仮数部のビット数が FP32 よりも少ない。そのため、ダイナミックレンジが小さくアンダーフロー、オーバーフローが起きやすい。この課題を解決するために前処理で利用する行列データ  $M$  及びベクトルデータ  $r$  のスケーリングを行う。前処理は  $Mz = r$  の  $z$  を求めることに相当するためスケーリングの手順は次のようになる。

1.  $M$  の各行で絶対値最大要素の値を対角に持つ対角行列  $D$  を作成
2.  $Mz = r$  の両辺に  $D^{-1}$  をかけることで  $\tilde{M} = D^{-1}M$  の最大値が 1 にスケーリングされる

3.  $D^{-1}r$ の最大値ノルムの逆数 $\frac{1}{\|D^{-1}r\|}$ を両辺にかけることでベクトル $\tilde{r} = D^{-1}\frac{r}{\|D^{-1}r\|}$ の最大

値を1にスケールリングする

スケールリングした $\tilde{M}\tilde{z} = \tilde{r}$ を解いて $\tilde{z} = \frac{z}{\|D^{-1}r\|}$ から $z$ を求めることでオーバーフロー、アンダーフローを回避して前処理を行う。丸め誤差の問題はBF16と同様に演算をFP32で行い中間結果をFP32で保存して最終結果をFP16データに変換するFP16データ/FP32演算混合精度前処理により丸め誤差を低減させて収束性の悪化を防ぐ。FP16前処理は指数部のビット数が少ないためスケールリングする必要があり、BF16前処理よりも演算コストが増加する。しかし、仮数部のビット数はBF16よりも多いためBF16前処理で収束が悪化するような問題に対しても収束性を維持することが可能である。

図1に開発した混合精度前処理を適用したPCG法の性能を示す。FP32前処理と比較してBF16データ/FP32演算混合精度前処理で1.14倍、FP16データ/FP32演算混合精度前処理で1.11倍の高速化を実現した。

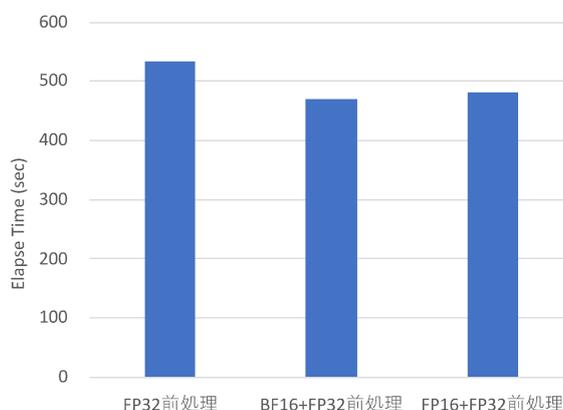


図1 HPE SGI8600 GPGPU 演算部2ノードにおける処理時間の比較  
(燃料集合体4×4バンドル：224×224×6000)

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) T. Ina, Y. Idomura, T. Imamura, S. Yamashita, and N. Onodera, "Iterative methods with mixed-precision preconditioning for ill-conditioned linear systems in multiphase CFD simulations", ScalA21: 12th Workshop on Latest Advances in Scalable Algorithms for Large-Scale Systems, 2021.
- 2) 伊奈拓也, 井戸村泰宏, 今村俊幸, 山下晋, 小野寺直幸, "多相CFDシミュレーションにおける悪条件行列に対するFP16データ/FP32演算混合精度前処理の開発", 第35回数値流体力学シンポジウム

### (4) 今後の利用予定:

開発した(FP16, BF16)データ/FP32演算混合精度前処理を広範なアプリケーションで利用できるようにシステム計算科学センターが公開している数値計算ライブラリPARCELへ整備を行う予定。

### 5.14.15 アンサンブルシミュレーション向け In-Situ 可視化手法の開発

#### Development of In-Situ Visualization Method for Ensemble Simulation

河村 拓馬、矢野 緑里、尾崎 司  
高度計算機技術開発室

##### (1) 利用目的:

システム計算科学センター（CCSE）では原子力災害時の放射性物質の環境放出への対策として、階層型格子を利用した流体シミュレーション（CityLBM）による汚染物質の移行挙動の予測を目指している。シミュレーションの解析誤差を低減するため、初期値にランダム誤差を加えて計算（アンサンブル計算）した複数のアンサンブルデータを分析することで計算誤差の定量評価を行い、その結果を元にしてデータ同化手法を適用している。シミュレーションの予測精度向上のために、アンサンブルデータの物理量の統計値を可視化するアンサンブルデータの可視化（アンサンブル可視化）が重要な課題とされている。

また、昨今の計算機の演算加速によりデータ I/O がボトルネックとなり、結果データの出入力そのものが困難になった。そのため、シミュレーションと同時に可視化処理を行う In-Situ 可視化が重要視されるようになった。CCSE ではこれまでに、粒子ベースの可視化手法により従来手法と比べて高速で対話処理が可能な In-Situ 可視化フレームワーク IS-PBVR を開発してきた。

大規模シミュレーションのアンサンブル計算では、1 ケース数億格子のボリュームデータが、リアルタイムに匹敵する速度で数十～百ケース生成される。本課題ではアンサンブル計算を対話的に In-Situ 可視化するソフトウェアを、CityLBM を対象にして開発することを目的とし、以下の問題を解決する。

問題 1：大規模なアンサンブルデータを統計処理すると、非常に大きな通信・演算コストが必要になる。

問題 2：アンサンブルデータの複数の物理量の統計値から、分析に有用な情報を抽出するための可視化手法が明らかではない。

##### (2) 利用内容・結果:

上記の問題 1 と 2 を解決するために、スーパーコンピュータ上でアンサンブルシミュレーションと同時に可視化用のデータ縮約を行い、アンサンブルデータの統計量情報を定量的に解析・探索することを可能にする対話的な In-Situ アンサンブル可視化技術を開発した。

###### 【効率的な可視化フレームワークの構築】

問題 1 を解決するために、In-Situ PBVR をベースとしてアンサンブル可視化フレームワークを構築した。このフレームワークでは、データの間引きによるデータ縮約を行い、In-Situ PBVR のファイルベース制御を活用する。解析空間を等間隔あるいは物理量の分布に基づいて間引いたデータ縮約を行い、サンプル点上で物理量（CityLBM の場合、風速ベクトル、温度、汚染物質濃度等）を取得する。この各アンサンブルのサンプルデータはシミュレーション実行時にファイルベース制御により収集され、各計算ノードからストレージを介してユーザ PC に

転送される。アンサンブル可視化のための統計処理はユーザ PC 上で実行されるためシミュレーション上の通信は発生しない。フレームワークの概要を図 1 に示す。

【アンサンブル統計量可視化】

縮約したアンサンブルデータを解析するために、任意の 2 つの変量の相関関係を散布図で表示し、扇形グリフで風向とその他物理値の統計量を提示する可視化アプリケーションを開発した。アプリの GUI を図 2 に示す。ユーザは任意の物理値を選択して散布図 (図 2 左) の各軸に割り当て、相関を確認できる。

扇形グリフとは、各サンプル点の流速の統計量 (平均・分散値等) を計算し、ベクトルの集合を扇形に要約して表示するものである。グリフのデザインは扇型の傾き、幅、半径、色 (青いほど値が小さく、赤いほど値が大きい) の 4 種類の描画プロパティ (図 3) から構成され、ユーザは風向と任意の物理値を選択してグリフのデザインに反映することができる。そうしたグリフの分布を建物データの表示とともに解析空間で確認することができる。また、ユーザは散布図上で興味をもったサンプル点を選択すると、選択したサンプル点の統計情報を反映したグリフを解析空間 (図 2 右) で確認することができる。

【CityLBM への適用と結果】

開発した In-Situ アンサンブル可視化アプリを CityLBM に結合した。CityLBM は米国オクラホマシティを対象とし、8 ノード、32GPU を用いて 4km 四方、4m 解像度のリアルタイム汚染物質拡散解析を実現している。可視化用のサンプリング処理では、元のボリュームデータの格子点を等間隔で間引き、約 2,500 点 (数百キロバイト) をサンプリングデータとして生成した。シミュレーションの可視化用出力 (約 100 ステップ毎) に対して 5%以内の負荷 In-Situ 処理を行い、対話的に In-Situ 可視化することができた。

高度別 (138m, 58m, 10m) の風況と汚染物質の拡散について可視化・解析を行った。可視化結果を図 4 に示す。その結果、風況に関して、高度 138m や 58m では建物の影響で風が乱れ、

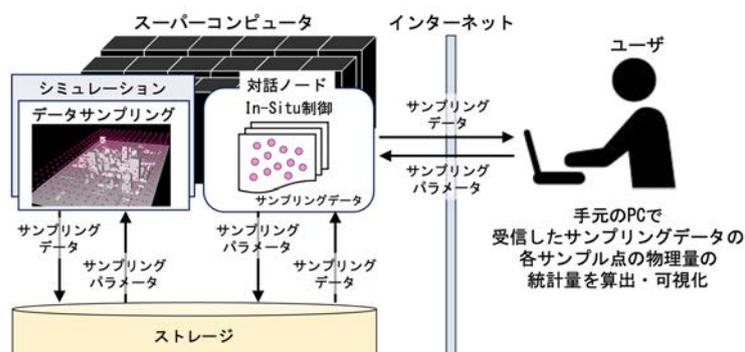


図 1 アンサンブル可視化フレームワークの概要

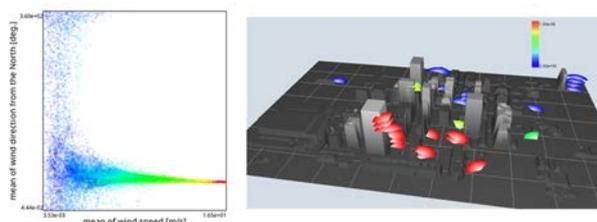


図 2 アンサンブル可視化 GUI

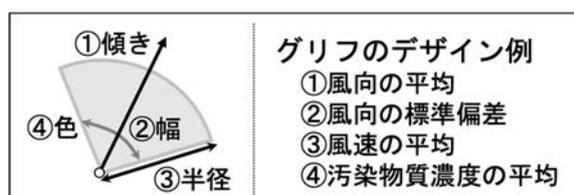


図 3 扇形グリフのプロパティ

一方高度 10m では路地に沿った複雑な流れになることが確認できた。そして汚染物質拡散に関して、高層ビル周りの風の乱れによって複雑な上昇気流、下降気流が形成されて汚染物質が高さ方向に輸送されることがわかった。

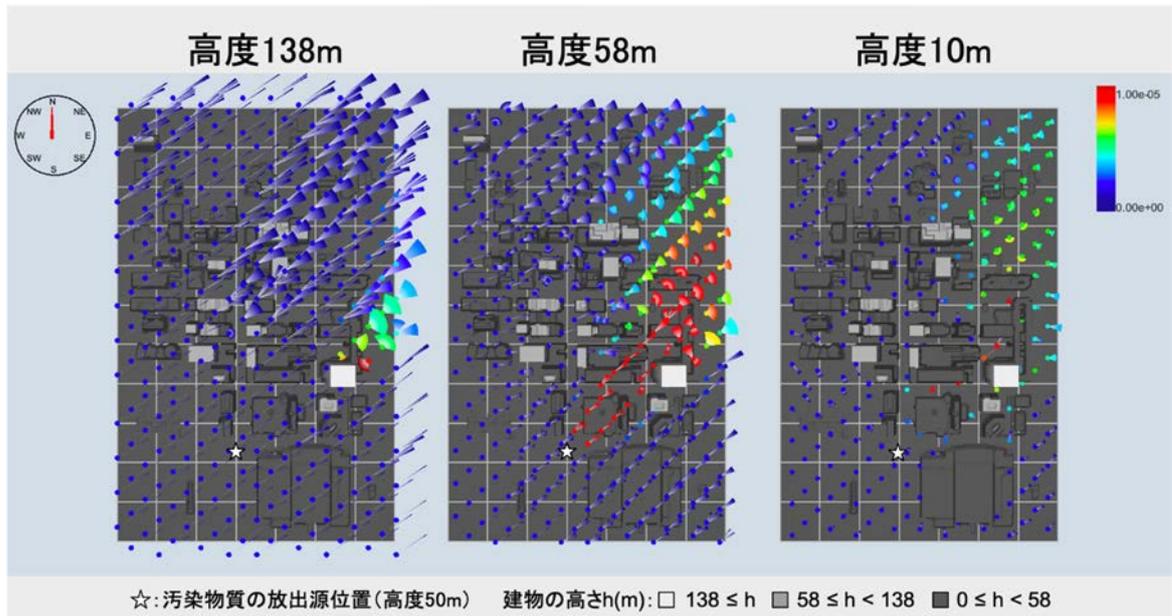


図4 高度別のグリフ可視化結果

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

国内会議

- 1) 矢野緑里, 河村拓馬, 長谷川雄太, 井戸村泰宏, “汚染物質拡散シミュレーションのIn-Situ統計解析”, 第49回可視化情報シンポジウム, 慶應義塾大学(オンライン), 2021, CD-ROM.
- 2) 河村拓馬, 坂本尚久, “粒子ベースレンダリングによる数値シミュレーションデータ向け遠隔VR可視化システム”, 第49回可視化情報シンポジウム, 慶應義塾大学(オンライン), 2021, CD-ROM.

### (4) 今後の利用予定:

今回はアンサンブルシミュレーションを模擬するために乱流の時系列解析に開発したフレームワークを適用した。今後は実際のアンサンブルシミュレーションに適用し、機能・性能評価を実施する予定である。

## 5.14.16 適合細分化格子版 JUPITER の界面追跡モデルの高度化

### Development of Interface Capturing Model for JUPITER-AMR

小野寺 直幸、杉原 健太、下村 和也、井戸村 泰宏、山下 晋、小野 綾子、伊奈 拓也  
高度計算機技術開発室

#### (1) 利用目的:

原子力工学分野の多相流体解析は、構造物に起因して発達する乱流中の気液界面を捉えたマルチスケール解析が必須である。本研究では、直交格子を用いて開発を進められてきた多相流体解析モデル JUPITER に対して、ブロック型適合細分化格子 (AMR) 法の導入、GPU に適した Poisson 解法の高速度化、および、フェーズフィールド法による気液界面捕獲の高度化により、燃料集合体を模擬したバンドル体系の実験を高精度に再現することを目的とする。

#### (2) 利用内容・結果:

##### 1)2021 年度課題の達成目標

多相流体解析コード JUPITER-AMR の開発を推進する事で、高速な大規模計算を実現し、原子力工学問題の解決を目指した。2021 年度は、(a) 混合精度を用いた前処理手法の高速度化、(b) フェーズフィールド法による気液界面捕獲の高精度化、(c) 原子力工学分野の CFD に対する大規模計算、を実施することで JUPITER の更なる高解像度化・高精度化を実現した。以下に具体的な実施内容を示す。

##### 2)2021 年度の研究成果とその重要性

##### (a) 混合精度を用いた前処理手法の高速度化

JUPITER で取り扱う Poisson 方程式は 7 本の帯を持つブロック対角行列となるが、このような疎行列の反復行列解法ではメモリアクセスが計算速度のボトルネックとなる。本課題では、マルチグリッド (MG) 前処理付き共役勾配 (CG) 法を開発し、MG 法に単精度演算、CG 法に倍精度演算を適用する混合精度演算によってメモリアクセスを削減した。バンドル体系に対する検証計算では、倍精度演算と混合精度演算を用いた収束履歴は同様であり、MG 前処理の丸め誤差が Poisson 解法の収束性に大きな影響を与えないことを示した。計算の高速度化として、32 台の GPU を用いた計算では、混合精度演算を適用することで、倍精度演算の約 75%まで計算コストを削減し、従来の赤黒オーダリング付き逐次過緩和法 (RB-SOR) 前処理付き CG 法と比較して約 3.3 倍の高速度化を実現した。更に、32 から 96 台の GPU を用いた強スケーリング性能測定では、53%の計算時間へと高速度化が実現された。また、混合精度演算に関する知見を基に、富岳 (A64FX) 向けの Poisson 解法を新たに開発し、計算科学分野の国際会議 SC21 の併設ワークショップにて成果発表を行なった[研究成果 1]。

##### (b) フェーズフィールド法による気液界面捕獲の高精度化

オリジナルの JUPITER (2020 年度版) の界面捕獲手法として、双曲線正接関数 ( $\tanh$ ) を用いて気液界面の不連続性を評価する THINC-WLIC 法が採用されている。THINC-WLIC 法は、流体率 (VOF:Volume of Fluid) に基づく一般的な界面捕獲手法 (WLIC、PLIC 法等) と

比較して、高精度な計算が可能である。一方で、VOFに基づく解析手法では、ひとたび数値拡散が生じた場合、界面位置(=0.5)から離れたVOFに対して界面モデルが機能せず、より数値拡散が進んでしまう。そのような問題に対して、フェーズフィールド法では、VOFの対流項に加えて、フェーズフィールドモデルに基づく逆拡散項を加えることで、数値拡散を抑制できる。

図1に二つの気泡が干渉し上昇する問題の解析結果を示す。図1-(A)の二つの気泡の衝突直後では、両者で同様の結果が得られている。一方で、図1-(B)に示す上昇過程では、左のTHINC-WLICでは非物理的なVOFの剥がれが見られるが、右のフェーズフィールド法では気液界面が維持されており、気液界面を高精度に捉えられることを確認した。

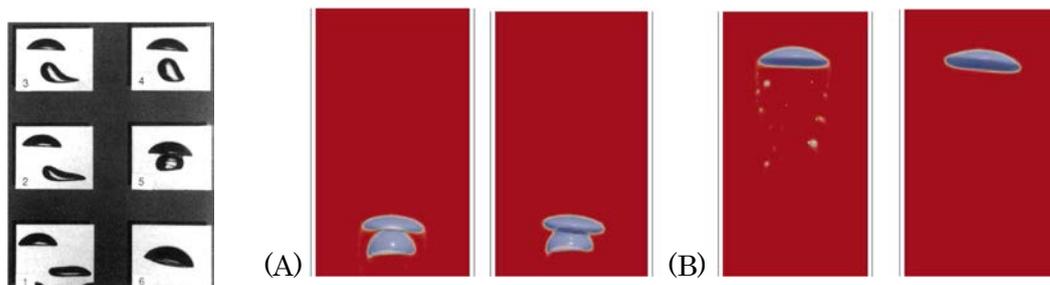


図1 気泡上昇解析の可視化：(右) THINC-WLIC法、(左) フェーズフィールド法。(A) 衝突直後、(B)一定時間経過後。

(c) 原子力工学分野のCFDに対する大規模計算

2020年度のJUPITERによるバンドル体系の解析では、燃料棒間の気泡分布が実験結果[参考文献1]と異なっており、解析手法の高精度化が求められている。先行研究の課題として、計算速度の制約による実験体系の簡略化(実験：5×5バンドル体系、JUPITER：4×4バンドル体系)および計算解像度の不足が挙げられる。そこで、2021年度課題では、GPUに対応したPoisson解法の高速度化およびAMR格子によるメモリ削減により、計算解像度を元の解析の1mmから0.58mm解像度へと高解像度化を実現すると共に、バンドル本数やバンドルを支持しているスペーサー等の実験体系を再現した。

JUPITER-AMRによる計算結果を図2・図3に示す。図2の気泡率(バンドル間で気泡が占める割合)の時刻歴においては、実験結果ではピークの値が0.2以下となるのに対して、解析ではピークが0.9と過大評価された。また、実験の時刻歴では僅かな気泡率が観測され続けているが、解析の時刻歴では高い気泡率の観測直後に気泡率が0の状態が続き、実験と異なる傾向となった。図3に気泡率の頻度分布を示す。横軸の気泡率が0近傍において、実験の頻度分布はほぼ0となるが、JUPITER-AMRでは0.35、JUPITERでは0.5以上となり、気泡が存在しない時間が多く見積もられている。一方、気泡率が0.1以下においては、実験とJUPITER-AMRが良く一致しており、JUPITERの結果を改善していることが確認された。一方で、気泡率が0.1以上においては、実験結果に対して、気泡率を過大評価している。上記の結果が得られた原因として、気泡の非物理的な合体により上昇速度の速い巨大な気泡が形成されボイド率の最大値が過大評価されること(図2)、及び巨大な気泡が上方の小さな気泡を取り込んでしまい気泡率が0の頻度が多くなったことが考えられる(図3)。以上より、2020年度版のJUPITERの計算速度・計算解像度の高度化の目標は達成されたものの、新たな問題点が明らかとなった。

今後、マルチフェーズフィールド法の導入により、上記問題の解決を目指す。

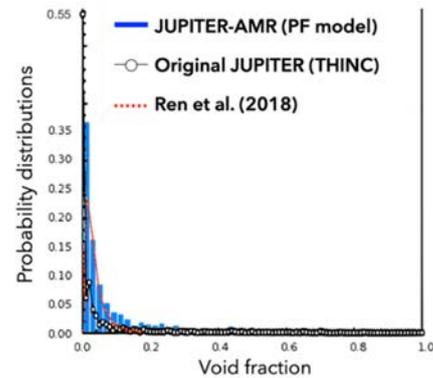
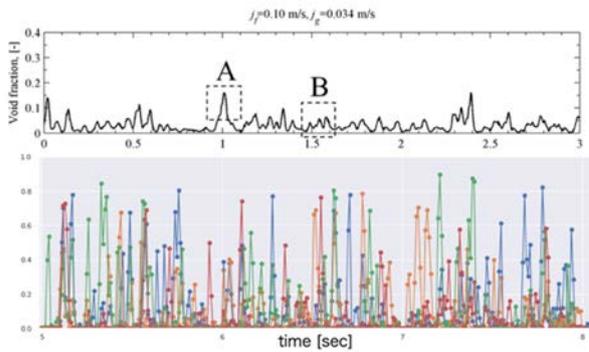


図 2 5×5 バンドル間の 4 つの中央チャンネル断面内の気泡率の時刻歴。上：実験結果、下：解析結果

図 3 5×5 バンドルの中央チャンネル断面での気泡率の頻度分布。

参考文献

[1] Q.Y.Ren, L.M.Pan, W.X.Zhou, H.Liu, T.P.Ye, B.Yu, and Z.C.Li, Measurement of subchannel void fraction in 5×5 rod bundles using an impedance void meter, Meas. Sci. Technol. 2018, 29, 104004. doi:10.1088/1361-6501/aad5c3

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

- 1) T. Ina, Y. Idomura (corresponding author), T. Imamura, S. Yamashita, and N. Onodera, “Iterative methods with mixed-precision preconditioning for ill-conditioned linear systems in multiphase CFD simulations”, ScalA21: 12th Workshop on Latest Advances in Scalable Algorithms for Large-Scale Systems @ SC21 (11/19, Online).
- 2) 杉原健太, 小野寺直幸, 井戸村泰宏, 山下晋, “気液二相流計算における適切な Phase-Field 変数の検討”, 原子力学会 2022 年春の年会, 3/16-18、オンライン, 国内会議口頭発表.
- 3) 小野寺直幸, 井戸村泰宏, 朝比祐一, 長谷川雄太, 下川辺隆史, 青木尊之, “ブロック型適合細分化格子での Poisson 解法の混合精度演算による高速化”, 日本計算工学会第 26 回計算工学講演会, 5/26-28、オンライン, 査読無し国内会議論文 (出版済) .

### (4) 今後の利用予定:

2021 年度の研究課題では、JUPITER-AMR に対して、GPU を用いた高速化およびフェーズフィールド法による気液界面捕獲の高精度化により、高解像度なバンドル体系の解析を実現した。しかし、以上の解析では実験結果[Ren et al., Meas. Sci. Technol., 2018]のボイド率の頻度分布を完全には再現できておらず、更なる計算手法の高度化が必要であることが明らかとなった。上記の問題に対して詳細な調査を実施したところ、接触した気泡同士の非物理的な合体が原因であることが判明した。そこで、2022 年度は、気液界面を単一の流体率 (VOF) で表す従来のモデル (THINC-WLIC 法やフェーズフィールド法) から、気泡それぞれに対して異なる VOF を割り当てるマルチフェーズフィールド法へと発展させることで、気液界面捕獲を高精度化する。

### 5.14.17 機械学習を用いた都市汚染物質拡散の即時予測手法の開発

#### Development of a Deep Learning Model for Predicting Plume Concentrations in the Urban Area

朝比 祐一、長谷川 雄太、小野寺 直幸、井戸村 泰宏  
高度計算機技術開発室

##### (1) 利用目的:

都市街区における化学、生物、放射性汚染物質の拡散予測はテロ対策や核セキュリティの観点から関心が高い。その拡散予測には高精度かつ即時性が要求される。CityLBM[1]コードでは、GPUを複数台利用することで高解像度での都市街区における気流および汚染物質拡散のリアルタイム計算を可能としている(図1)。

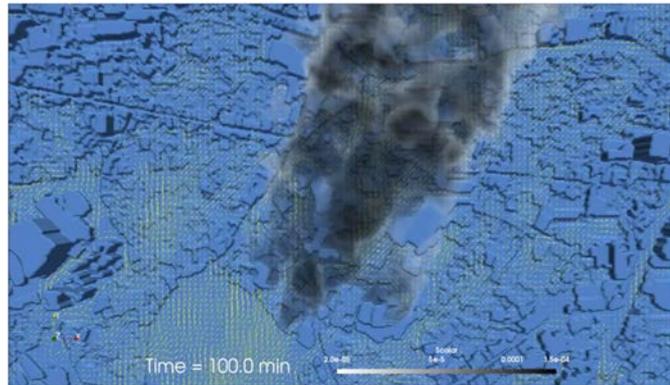


図1 CityLBMによる都市部汚染物質拡散計算

一方、近年の機械学習の進展により、ある入力条件に対する流体シミュレーション結果を深層学習によって予測する代理モデルの構築が可能になりつつある。例えば、二次元定常流については、畳み込みニューラルネットワーク(CNN)を利用することで、符号付き距離関数(SDF)で表された内部の物体形状から定常流れ場を高精度で予測出来る。代理モデルによる予測はシミュレーションに比べ計算コストが大幅に小さいため、低コストの汚染物質拡散予測を実現する上で、大規模シミュレーションの機械学習による代替には高いニーズがある。

しかしながら、実際の都市風況観測では極めて限定的な観測点における時系列データしか利用できない。この課題の解決に向けて、本研究では、時系列解析にて有力なTransformerと画像処理にて有力なCNNを組み合わせたモデルを用いることで、少数の観測点の時系列データと汚染物質の放出点情報から、汚染物質拡散予測を行う機械学習モデルの開発を試みる。

##### (2) 利用内容・結果:

近年の深層学習発展により、物体形状から流れ場を予測する代理モデルが開発されている。代理モデルによる予測はシミュレーションに比べ計算コストが大幅に小さいため、大規模シミュレーションの代替には高いニーズがある。しかし、従来手法は均一格子を前提としており、そのままでは多重解像度データへ適用することはできなかった。これらの多重解像度データは、ブロック型の適合細分化(AMR)法などで利用され、数値シミュレーションとしてはごく一般的に利用される。当該研究では、高解像度の画像生成を可能とするネットワークPix2PixHDを利用することで、AMR状格子の流れ場予測を可能にした。本ネットワークでは、全体の低解像度データと一部分の高解像度データの組み合わせによって分割された多重解像度データから大域的な流れ場の予測ができる(図2)。図3は、シミュレーション結果とCNNモデルによる予

測結果を示し、流れ場が高精度で予測できていることがわかる。入力として部分的な高解像度データを利用するため、従来の Pix2PixHD モデルと比べメモリ消費量も削減できた。本成果は、国際会議の査読付き論文に採択された。

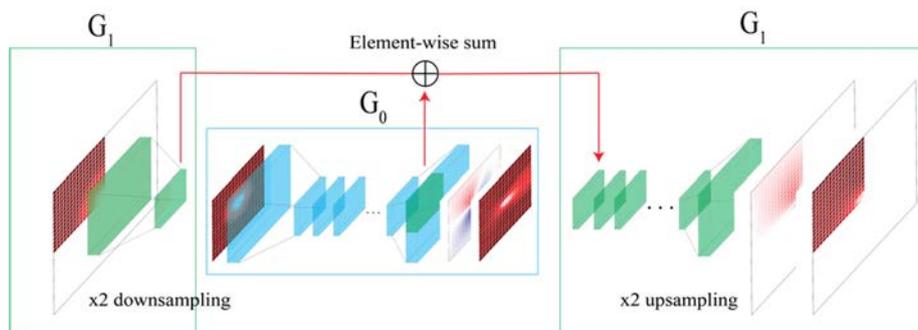


図2 AMR 格子用 CNN モデル AMR-Net の概念図。大域的な低解像度データと局所的な高解像度データを特徴空間で結合して利用する。

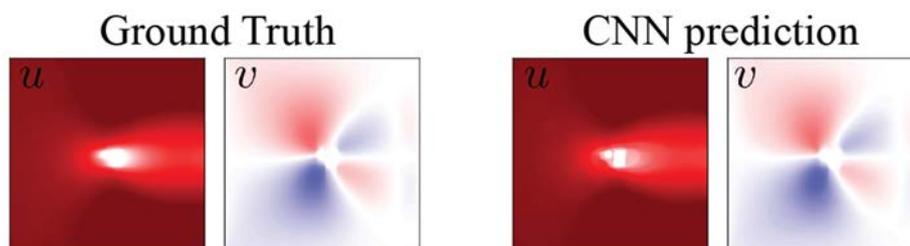


図3 流れ場  $u$ ,  $v$  の CNN による予測結果 (右) とシミュレーションによる正解データ (左) を示す。

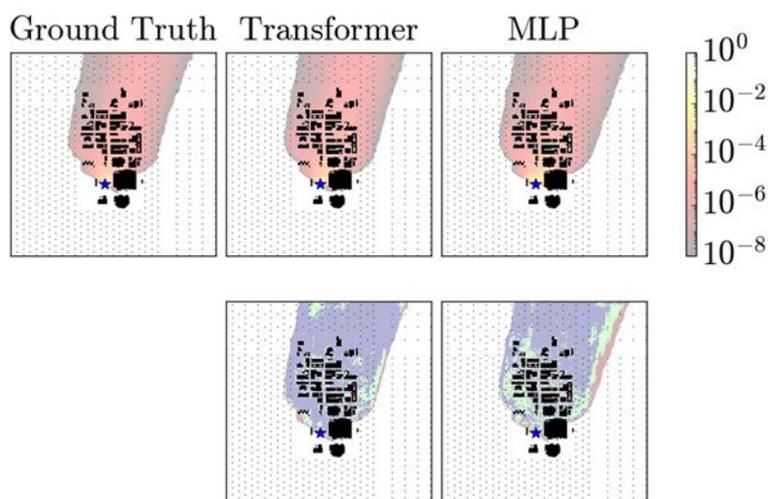


図4 テストデータに対する汚染物質濃度の地表面分布の正解データと予測結果を示す。上行は汚染物質濃度の地表面分布、下行は正解データとの差を示す (青: 差異 2 倍以内、緑: 差異 5 倍以内、赤: 差異 5 倍以上)。

これと並行して本研究では、都市街区における汚染物質拡散予測を行う機械学習モデルの開発を行った。データセット作成のため、CityLBM を利用し一様かつ定常な風況条件のもとオクラホマシティを模擬した都市街区において計算を行った。計算は SGI8600 を利用し、500 の風

況パターンの計算におよそ 40000 GPU 時間を要した。本研究で開発したモデルは、汚染物質放出点座標、建物形状、少数の観測点における時系列データを入力とし、地表面における汚染物質拡散分布の時間平均を出力とする。本研究では、画像生成で広く利用される U-Net をベースとし、時系列データを Transformer によって処理するモデルと、時系列データを時間平均した後で多層パーセプトロン (MLP) によって処理する二つのモデルを開発し、予測性能の比較を行った。図 4 に、開発した機械学習モデルによるテストデータに対する汚染物質濃度の地表面分布の予測結果を示す。この結果からどちらのモデルにおいても CityLBM によって得られた汚染物質拡散分布をファクター2 (差異 2 倍以内) 程度で適切に予測出来ていることがわかる。このモデルの予測速度は 0.1 秒程度であり、例えば、リアルタイムシミュレーションを 15 分程度計算する場合と比べて 10000 倍程度の処理速度であることを考えると十分な予測精度が達成できたと言える。

#### 参考文献

[1] N. Onodera, Y. Idomura, Y. Hasegawa, H. Nakayama, T. Shimokawabe, T. Aoki, “Real-time tracer dispersion simulation in Oklahoma City using locally-mesh refined lattice Boltzmann method,” *Boundary-Layer Meteorology*, 179, 187-208 (2021).

### (3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):

#### 査読付き会議論文

- 1) Y. Asahi, T. Shimokawabe, N. Onodera, Y. Hasegawa, and Y. Idomura, “AMR Net: Convolutional Neural Networks for Multi-resolution steady flow prediction”, 2<sup>nd</sup> Workshop on Artificial Intelligence and Machine learning for Scientific Applications (AI4S), 2021. 出版済.

#### 国内会議

- 2) 朝比祐一, 畑山そら, 下川辺隆史, 小野寺直幸, 長谷川雄太, 井戸村泰宏, “機械学習による細分化格子に基づく 2 次元定常流予測”, 第 26 回計算工学講演会, 2021.
- 3) 長谷川雄太, 小野寺直幸, 朝比祐一, 井戸村泰宏, “格子ボルツマン法に基づく都市風況解析の Tesla A100 GPU における性能測定”, 第 35 回数値流体力学シンポジウム, 2021.
- 4) 小野寺直幸, 井戸村泰宏, 長谷川雄太, 中山浩成, “適合細分化格子ボルツマン法による都市風況解析のための地表面熱流束モデルの開発”, 第 35 回数値流体力学シンポジウム, 2021.
- 5) 朝比祐一, 小野寺直幸, 長谷川雄太, 井戸村泰宏, “機械学習による都市汚染物質拡散の即時予測”, 第 35 回数値流体力学シンポジウム, 2021.

### (4) 今後の利用予定:

令和 3 年度は、適合細分化 (AMR) 的な多重解像度格子上の流れ場を予測する機械学習モデル 1),2) と都市街区における定常風況条件下での汚染物質拡散予測を行う機械学習モデル 5) の開発を行った。今後は、非定常風況条件でシミュレーションを行なってデータセットを再構築し、非定常風況条件下で予測を行うよう機械学習モデルを変更する予定である。データセット構築および、機械学習モデルの開発、学習に大型計算機を利用する予定である。

### 5.14.18 オクラホマシティの野外拡散実験におけるパフ放出実験の CityLBM コードを用いた再現計算

#### Validation of the Puff Release Experiment in the Field Experiment at Oklahoma City using CityLBM

長谷川 雄太、小野寺 直幸、下村 和也、井戸村 泰宏、朝比 祐一、伊奈 拓也  
高度計算機技術開発室

#### (1) 利用目的:

デジタルツインに基づく風況予測は、原子力施設等を対象とした放射性物質のリアルタイム拡散予測に活用できるだけでなく、都市街区内の歩行者に対する熱中症評価や微小粒子状物質の拡散予測などスマートシティ設計・運用等の新たな社会基盤構築に貢献できる技術である。風況デジタルツインの実現には、都市全域を含む広域な気象場から建物や樹木等を捉えたマルチスケール乱流解析のための大規模計算技術に加えて、数値流体力学（CFD）解析だけではモデル化できない境界条件や乱流変動をシミュレーション内に反映するデータ同化技術が必要である。これまで、リアルタイム風況解析コード CityLBM の開発を進めてきており、データ同化手法としては簡易なモデルであるナッジング法を適用してきた。本研究では、CityLBM におけるデータ同化手法の高度化を目的として、パーティクルフィルタによる動的パラメータ推定を実装するとともに、野外拡散実験のパフ放出実験に対して精度検証を実施する。

#### (2) 利用内容・結果:

##### ① パーティクルフィルタによる乱流境界層の再現

オクラホマシティの拡散実験として、午前の連続放出および午後のパフ放出が実施されている。CityLBM では、現実の風況を再現するために、メソスケール気象予測モデルによる風況（RANS: Reynolds-Averaged Navier-Stokes equation）と周期境界条件により発達させた LBM の風況（LES: Large Eddy Simulation）に対して、経験的な係数にて後者を前者に徐々に近づけるナッジング法を適用している。2020 年度の成果として、午前の風況に対してナッジング係数を最適化し、非常に高い精度で汚染物質濃度を予測できることを示した\*1。次の課題として、午後のパフ放出の再現が挙げられる。午前の風況で最適化したパラメータを用いて解析を実施したところ、地表面温度が高い午後の不安定な風況に対しては、大気境界層内の乱流強度を過大評価する問題点が明らかとなった。そこで、本研究では、パーティクルフィルタを用いたナッジング係数の最適化手法を新たに開発した。具体的には、アンサンブル計算毎に異なるナッジング係数を与え、15 分毎にシミュレーションと観測の乱流強度を比較し、統計的に最も尤度の高い係数に補正する最適化を実施した。以上の最適化により、午前の安定な乱流境界層から、パフ放出時刻の午後の不安定な乱流境界層までを高精度に再現することが可能となった。

\*1 N. Onodera et al., *Boundary-Layer Meteorology* (2021). doi:10.1007/s10546-020-00594-x

##### ② アンサンブル・カルマンフィルタの参照実装

実施項目① A ではデータ同化手法としてナッジング法を用いたが、本項目では、これをデータ同化が最も進んでいる分野の一つである気象分野で用いられているアンサンブル・カルマンフィルタ（EnKF）を用いた手法へと発展させる。EnKF の利点として、シミュレーション内の

全ての変数を観測しなくてもデータ同化が可能であり、様々な観測データに対応できる点が挙げられる。CityLBM による事前計算より、アンサンブル計算における都市街区内の風速分布はほぼ正規分布となるため、EnKF が適用できることが確認できている。

EnKF の事前計算として LBM による二次元等方性乱流を対象としたデータ同化実験を実施した (図 1)。同実験では、 $128 \times 128$  格子に対して  $8 \times 8$  と極めて少ない観測点の場合でも、EnKF は、従来のナッジング法に比べて高い精度でデータ同化を行うことが可能であることを確認した<sup>7)</sup>。

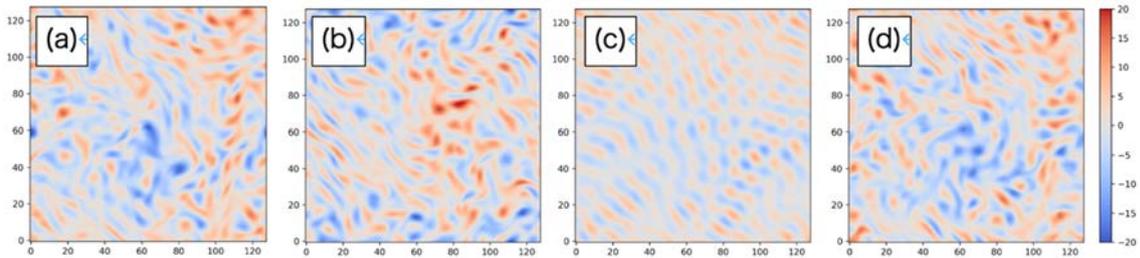


図 1 二次元等方乱流データ同化実験における渦度分布の瞬時値、(a) 正解値 (Nature Run)、(b) データ同化なしの計算、(c) ナッジングによるデータ同化、(d) EnKF によるデータ同化

### ③ 高頻度ファイル出力のための、ファイル出力ルーチンの高速化

パフ放出では比較的短い時間スケールでトレーサ物質の濃度分布が推移するため、その時間変化を捉えるためには高頻度でのファイル出力が必要である。具体的には、連続放出においては物理時間 1 分間隔でファイル出力を行っていたのに対して、パフ放出では実験と同等な頻度である 1 秒間隔でのファイル出力が必要である。物理時間 1 秒は CityLBM の 10～数十ステップに相当し、このような高頻度な出力では、ファイル出力の時間が顕在化し、計算を律速することが確認された。予備計算では、物理時間 1 分間隔の出力ではリアルタイム程度の計算時間であったのに対して、10 秒間隔の出力ではリアルタイムより 3 倍程度遅くなった。

そこで、上記のモニタリング機能を GPU 化することで、数億格子の風況解析において数十～数万程度の観測点に対して 1 秒間隔の高頻度出力を設定しても、全体の計算時間の増加を 2 割以下に抑えることが可能となった。

### ④ パフ放出の再現計算の実施

2021 年度前半に予備計算をおこなったところ、パフ放出の精度が FACTOR2 及び FACTOR5 正答率が 1 割程度と極めて悪かったため、大規模計算を行うより先に物理モデルの高度化を行なった。実施内容として、日中の不安定大気境界層を再現するための地表面熱流束モデルの開発<sup>6)</sup>、および、大気境界層内の乱流を再現するためのパーティクルフィルタを用いたメソスケール気象予測データと LBM のデータ同化におけるハイパーパラメータ最適化<sup>3)</sup>を行なった。物理モデルの修正により地表面熱流束および鉛直温度分布、乱流強度等の精度が改善した。これらの高度化を適用した CityLBM を使い、最大 64 アンサンブルの大規模アンサンブル計算によってパフ放出に対する実証解析を実施した。本解析では、FACTOR5 正答率が 4 割程度と、精度の改善を示すことができた。

**(3) 成果リスト(学会、プレス発表、論文等):**

## 査読付き原著論文

- 1) Y. Hasegawa, T. Aoki, H. Kobayashi, Y. Idomura, N. Onodera, “Tree Cutting Approach for Domain Partitioning on Forest-of-Octrees-based Block-structured Static Adaptive Mesh Refinement with Lattice Boltzmann Method”, Parallel Computing (2021). doi: 10.1016/j.parco.2021.102851. 出版済.

## 国際会議

- 2) N. Onodera, Y. Hasegawa, Y. Asahi, Y. Idomura, T. Shimokawabe, T. Aoki, “GPU acceleration of tracer dispersion simulation using the locally mesh-refined lattice Boltzmann method”, ADAC Applications Monthly Seminars, 2021. 出版済.
- 3) N. Onodera, Y. Idomura, Y. Hasegawa, H. Nakayama, et al., “Particle Filter for Large-Eddy Simulations of Turbulent Boundary-Layer Flow Generation Based on Observations”, WCCM-APCOM 2022 (7/31-8/5, Yokohama) 出版済.

## 国内会議

- 4) 長谷川雄太, 青木尊之, 小林宏充, 小野寺直幸, 井戸村泰宏, “木構造に基づく細分化格子 LBM における領域分割法の改善”, 第 26 回計算工学講演会, 2021. 出版済.
- 5) 長谷川雄太, 小野寺直幸, 朝比祐一, 井戸村泰宏, “格子ボルツマン法に基づく都市風況解析の Tesla A100 GPU における性能測定”, 第 35 回数値流体力学シンポジウム, 2021. 出版済.
- 6) 小野寺直幸, 井戸村泰宏, 長谷川雄太, 中山浩成, “適合細分化格子ボルツマン法による都市風況解析のための地表面熱流束モデルの開発”, 第 35 回数値流体力学シンポジウム, 2021. 出版済.
- 7) 長谷川雄太, 小野寺直幸, 朝比祐一, 井戸村泰宏, “格子ボルツマン法に基づく乱流計算に対するアンサンブルデータ同化の実装”, 原子力学会 2022 年春の年会, 2022. 出版済.

## その他

- 8) 小野寺直幸, 「GPU 加速型マルチスケール原子力流体計算手法の開発」, 令和 3 年度理事長表彰, 研究開発功績賞.
- 9) 長谷川雄太, 「格子ボルツマン法による汚染物質拡散解析の実時間アンサンブル計算の開発」, 第 19 回 (2021 年度) 日本原子力学会計算科学技術部会部会賞 部会奨励賞.
- 10) 長谷川雄太, 「格子ボルツマン法による汚染物質拡散解析の可視化技術の開発」, 第 19 回 (2021 年度) 日本原子力学会計算科学技術部会部会賞 部会 CG 賞.

**(4) 今後の利用予定:**

風況デジタルツインの実現に資するため、引き続き大型計算機システムを利用した研究開発を行う。2022 年度は、(1) アンサンブル計算における動的パラメータ推定手法であるパーティクルフィルタの最適化に関する研究 (課題番号 PG22007)、および、(2) 乱流 LES のアンサンブルデータ同化に関する基礎研究 (課題番号 PG22018) を行う。

## 6. おわりに

本報告集は、原子力機構における多分野にわたる大型計算機システムを利用した優れた研究成果をまとめたものである。これらの研究成果は、研究者の探究心と努力によることは勿論ではあるが、原子力機構の大型計算機システムが研究開発の現場において必要不可欠であることを改めて示している。本報告集が、原子力機構における大型計算機システムを利用した研究成果のさらなる増進に、また分野を越えた情報共有による更なる研究開発の発展に役立つことを期待する。

本報告集をまとめるにあたり、高性能計算技術利用推進室に編集ワーキンググループを設置した。本ワーキンググループでは令和3年度における大型計算機システムの利用状況を調査し、利用ノード時間の多かった利用者に報告書作成を依頼した。利用者から提出された報告書を編集・校正し、本報告集が完成した。多忙にもかかわらず報告書を作成して頂いた利用者の皆様並びに本報告集作成にご協力を頂いた関係者各位にこの場を借りて感謝申し上げます。

令和4年9月

### 編集ワーキンググループ

リーダー：大谷 孝之

スタッフ：坂本 健作、河津 諒平

事務局：桧山 一夫、篠塚 尚也

## 付録

### 付録 A

表 A.1 令和3年度大型計算機システムの利用実績

	SGI8600		
	バッチ処理 件数	会話処理 件数	ノード時間 (h)
4月	28,083	6,757	605,225
5月	47,263	5,585	651,549
6月	31,275	5,764	643,134
7月	49,342	5,579	628,195
8月	68,763	6,071	658,140
9月	36,049	5,981	626,652
10月	51,919	6,341	668,288
11月	40,286	5,725	660,511
12月	53,383	6,393	671,151
1月	36,083	6,131	685,412
2月	37,077	6,275	610,614
3月	30,702	6,273	682,660
合計	510,225	72,875	7,791,531

付録 B

表 B.1 令和 3 年度利用相談件数(可視化を除く)

	SGI8600	Linux	パソコン	network	その他 (利用一般)	合計
4 月	57	1	4	1	5	68
5 月	43	0	0	2	6	51
6 月	51	0	0	5	2	58
7 月	25	0	3	2	0	30
8 月	35	0	0	1	9	45
9 月	26	0	2	0	7	35
10 月	20	0	1	0	2	23
11 月	14	0	3	2	6	25
12 月	18	0	3	7	2	30
1 月	24	0	0	2	2	28
2 月	27	0	1	0	1	29
3 月	35	0	0	4	2	41
合計	375	1	17	26	44	463

表 B.2 令和 3 年度可視化相談件数

<b>1. 可視化相談(技術支援)</b>
① SGI8600 及び遠隔可視化用表示装置の可視化相談・技術支援 (78 件)
② PC 版 MicroAVS インストール支援 (24 件)
③ PC 版 AVS/Express インストール支援 (2 件)
④ ParaView クラサバモードインストール支援 (3 件)
⑤ PDF3D ReportGen インストール支援 (5 件)
<b>2. 可視化ツール提供等</b>
① VR 表示コンテンツの作成
② 没入型 VR システムの整備
③ 可視化変換ツール PDF3D ReportGen の整備

## 著者名別 論文索引

	上羽 智之 .....	133
<b>A-Z</b>		
Hai Quan Ho.....		121
Ivan Lobzenko .....		94, 103
Thomsen Bo.....		183
<b>あ</b>		
赤岡 克昭.....		150, 153
朝倉 和基.....		118
浅野 育美.....		170
朝比 祐一.....		208, 211
安部 諭.....		29
安部 晋一郎.....		48
阿部 陽介.....		94
<b>い</b>		
石田 純一.....		195
李 在洪 .....		160
板倉 充洋.....		170, 192, 195
伊藤 孝 .....		112
伊藤 史哲.....		160
井戸村 泰宏.....		205, 208, 211
伊奈 拓也.....		200, 205, 211
今井 康友.....		130
伊巻 正 .....		130
岩元 大樹.....		67
岩元 洋介.....		49
<b>う</b>		
上澤 伸一郎 .....		61, 79, 85
宇田川 豊.....		34
内堀 昭寛.....		124
宇野 功一郎.....		170
<b>え</b>		
海老原 健一 .....		173, 192
<b>お</b>		
大泉 昭人 .....		70
大西 弘明.....		109
大宮 聡人.....		29
岡垣 百合亜 .....		32
奥村 雅彦.....		170, 175, 186, 192
尾崎 司.....		202
小野 綾子 .....		82, 205
小野寺 直幸 .....		205, 208, 211
<b>か</b>		
鹿島 陽夫 .....		70
片桐 直人 .....		88
方野 量太 .....		74
加藤 正人 .....		141
金子 政志 .....		45
上平 雄基 .....		40
神谷 朋宏 .....		88
河村 拓馬 .....		202
<b>き</b>		
菊地 紀宏 .....		127
北村 竜明 .....		150, 153
城戸 健太朗 .....		21
木野 由也 .....		156

く		た	
久保 光太郎 .....	18	高橋 時音 .....	160
栗原 健輔 .....	97	田口 俊弘 .....	138
こ		田中 正暁 .....	127, 133
小泉 光生 .....	160	谷中 裕 .....	136
小坂 亘 .....	124	谷村 直樹 .....	195
小林 恵太 .....	165, 170, 175, 186, 192	つ	
米田 政夫 .....	76	都留 智仁 .....	94, 97, 103
菰田 宏 .....	136	て	
さ		鄭 嘯宇 .....	26
坂本 健作 .....	150, 153	寺澤 知潮 .....	115
佐久間 一幸 .....	156	と	
佐藤 大樹 .....	58	堂田 哲広 .....	133
し		な	
志賀 基之 .....	165, 183	永井 佑紀 .....	168
柴田 卓弥 .....	150, 153	永武 拓 .....	78, 79
下村 和也 .....	205, 211	中野 敬太 .....	35
す		中村 博樹 .....	141, 165, 170, 189, 192
菅原 隆徳 .....	79	中山 浩成 .....	42
杉原 健太 .....	205	ね	
杉本 貴則 .....	109	根本 俊行 .....	133
鈴木 敏 .....	160	根本 宏美 .....	40
鈴木 貴行 .....	61, 79, 82, 85	は	
鈴木 知史 .....	100	橋本 慎太郎 .....	52
鈴木 知明 .....	192, 197	長谷川 雄太 .....	208, 211
数納 広哉 .....	165	浜瀬 枝里菜 .....	133
せ		ひ	
芹澤 愛 .....	97	弘中 浩太 .....	160

ふ

深谷 裕司.....147  
古田 琢哉.....55  
古野 朗子.....158

ほ

堀口 直樹..... 61, 79, 85, 91

ま

町田 昌彦.. 141, 144, 165, 168, 170, 180, 186  
松下 健太郎.....130  
松田 規宏.....162

み

湊 太志.....64  
宮崎 康典.....144

む

村井 直樹.....37

も

森 道康.....106, 109

や

柳沢 秀樹.....124  
矢野 緑里.....202  
山口 瑛子.....170, 175  
山口 正剛.....178, 192  
山口 優太.....195  
山下 晋..... 79, 82, 150, 153, 205  
山田 進.....168, 180

よ

横山 賢治.....133  
吉川 龍志.....127  
吉田 啓之..... 61, 82, 85, 91

吉田 航..... 156  
吉村 一夫..... 133

わ

渡部 晃..... 124  
渡辺 奈央..... 72  
汪 子迪..... 23

This is a blank page.



