

文部科学省国家課題対応型研究開発推進事業  
原子力システム研究開発事業（基盤チーム型）

令和7年3月3日（月）

【令和3-5年度】3D造形革新燃料製造の  
シミュレーション共通基盤技術  
成果報告会

研究代表者： 原子力機構 瀬川 智臣

代表機関：  原子力機構

連携機関：  フローサイエンスジャパン

 SAGA UNIVERSITY 国立大学法人 佐賀大学 佐賀大学

 SINTER LAND New material & Sintering 株式会社 シンターランド シンターランド

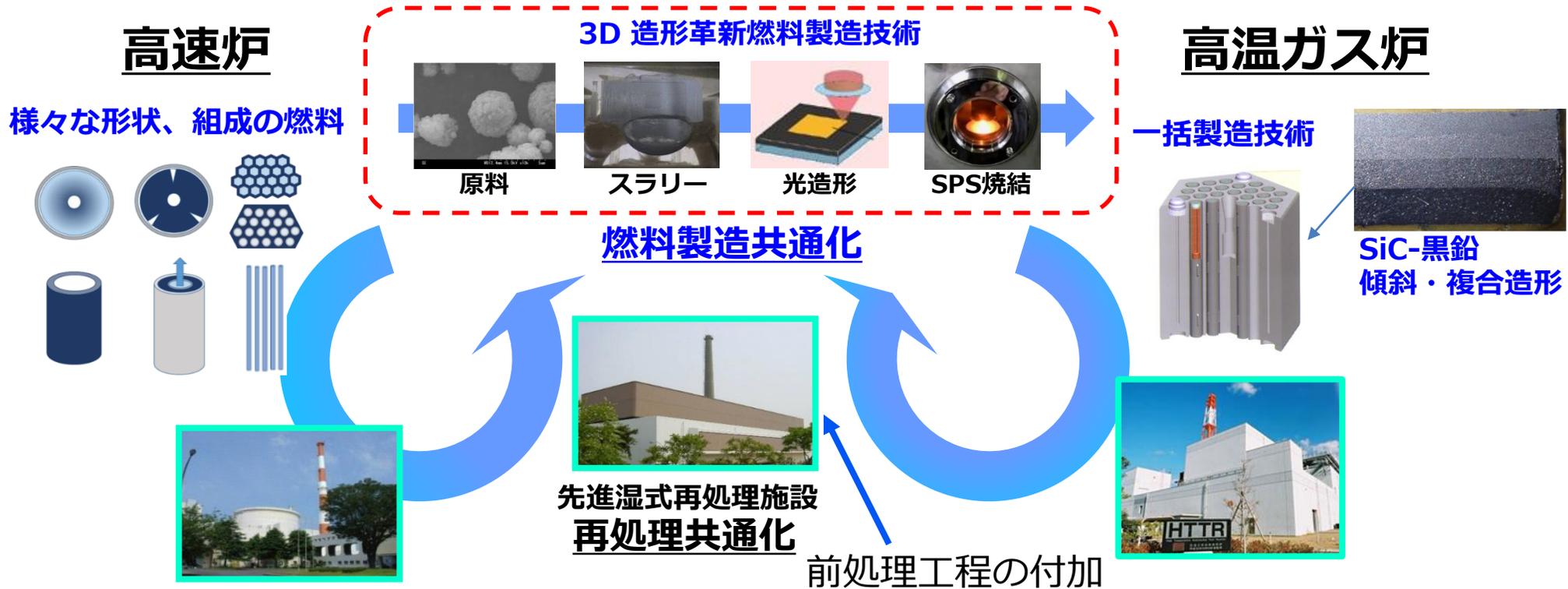
 理化学研究所 理化学研究所

# 1. 事業概要

**本事業の目標** : 高速炉/高温ガス炉サイクルにおける燃料技術の共通化

## ▶ 3D造形革新燃料製造技術の開発

高速炉/高温ガス炉サイクルにおける燃料技術を共通化したダブルサイクルシステムの実現を目的とし、燃料製造設備の小型化および複数ラインにより多様な燃料仕様に柔軟に対応可能とする3D造形革新燃料製造技術を開発する。

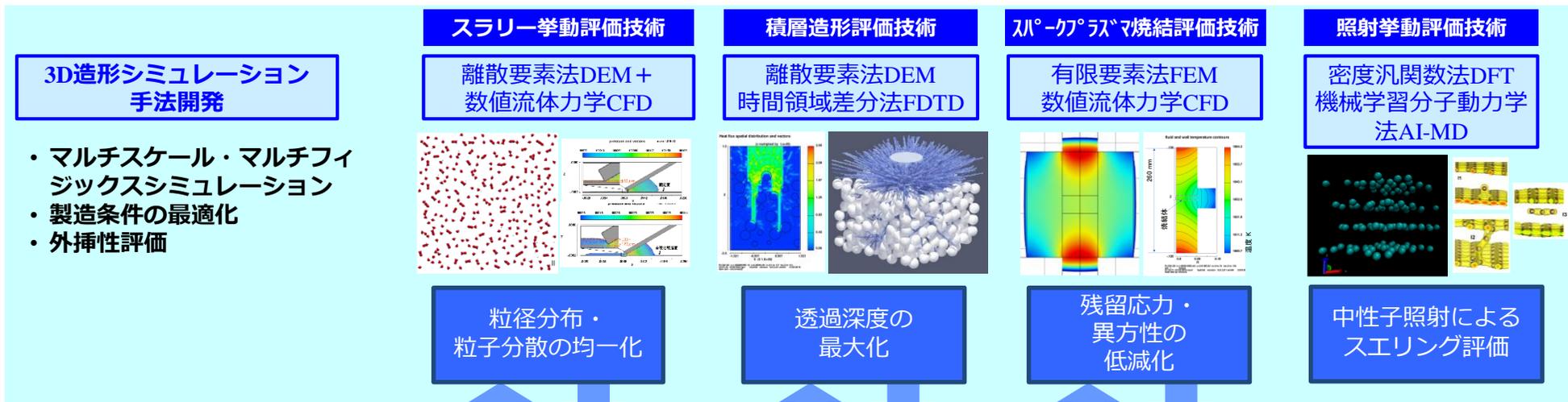


**(高速炉燃料サイクル)** 多様な燃料・炉心構成要素仕様への適応による安全性向上、燃料生産ラインの合理化による発電コストの低減が可能になると期待される。

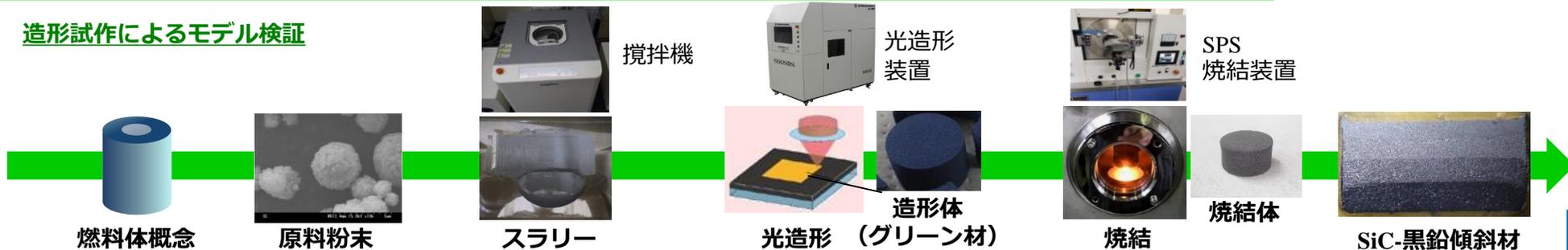
**(高温ガス炉燃料サイクル)** 大型化・ユニット出力の倍増、SiC-黒鉛複合材料燃料体による空気/水浸入事故時の炉心酸化防止・ゼロ汚染の燃料取扱いが可能になると期待される。

# 1. 事業概要

- ▶ 製造条件の最適化、燃料性能評価、燃料体の照射挙動評価を可能とするマルチスケール・マルチフィジックスシミュレーション基盤技術を開発
- ▶ シミュレーションに必要な検証データの取得ならびに検証データによる妥当性確認(V&V)を実施



## 造形試作によるモデル検証



## 2. 研究項目

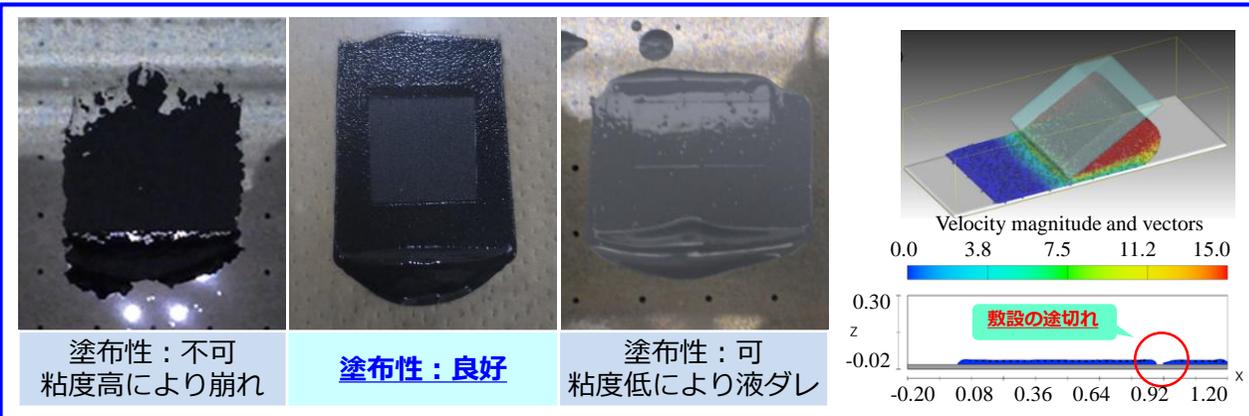
### (1) スラリー挙動評価技術

- ① DEM-CFDによる粘性、形状安定性シミュレーションモデル開発
- ② スラリーシミュレーション検証データの取得
- ③ スラリーシミュレーション技術の評価

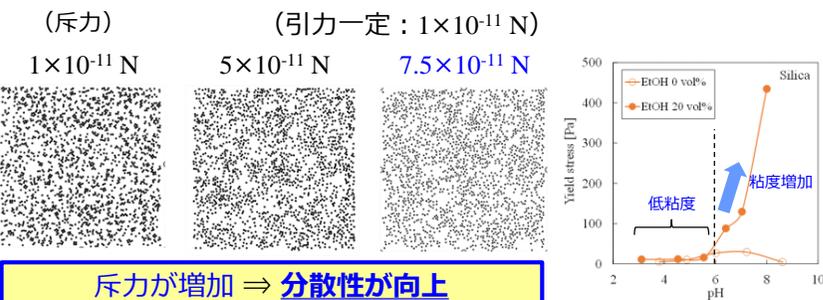
# 2. 研究項目 (1) スラリー挙動評価技術

## ① DEM-CFDによる粘性、形状安定性シミュレーションモデル開発

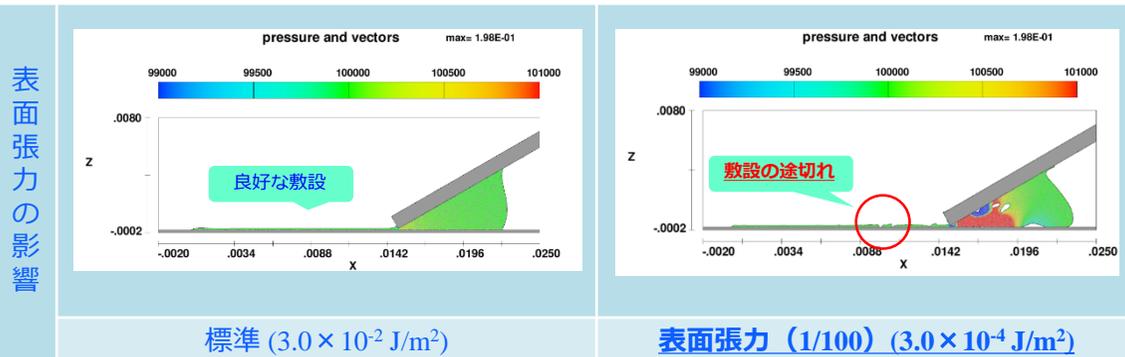
- スラリーのマルチフィジックスシミュレーションとして、静的特性データおよび動的特性データをもとにDEM-CFDモデル化・改良
- 凝集特性の解析により、pHによる粘度変化の実験傾向を再現することに成功
- 粒子間力-粘度の関係の解析により、粘度のせん断速度および粒子体積濃度依存性が発現し、実験結果を定性的に再現できることを確認
- スラリー挙動の予測を可能とする解析技術により、スラリー敷設まで適切な敷設条件を検討可能であることを確認



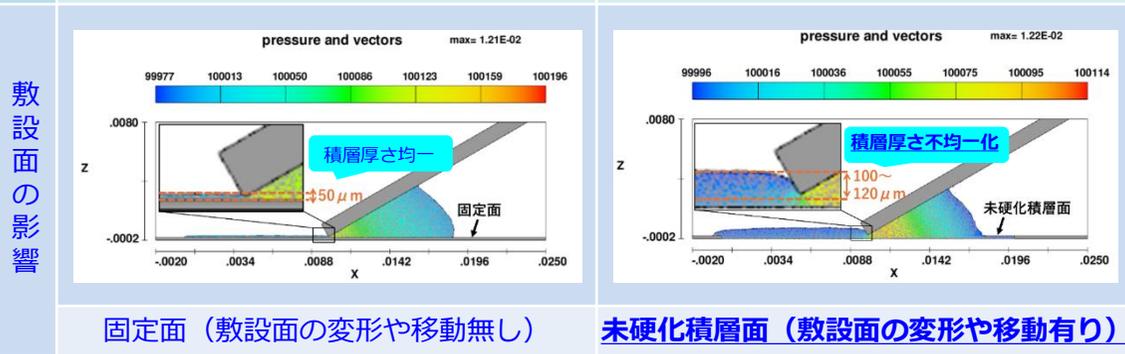
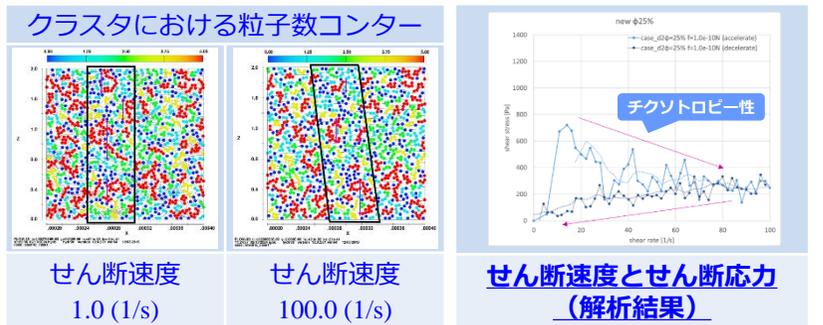
### 凝集特性解析 (pHによるスラリー粘度変化の実験傾向を再現)



### スラリー挙動の予測を可能とするモデルの構築



### 粒子間力-粘度解析 (チクソトロピー性を定性的に再現)



# 2. 研究項目 (1) スラリー挙動評価技術

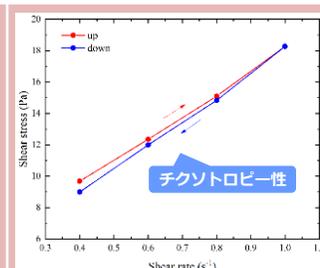
## ② スラリーシミュレーション検証データの取得

非球状および球状SiCを用いてスラリーの静的特性データ・動的特性データを取得

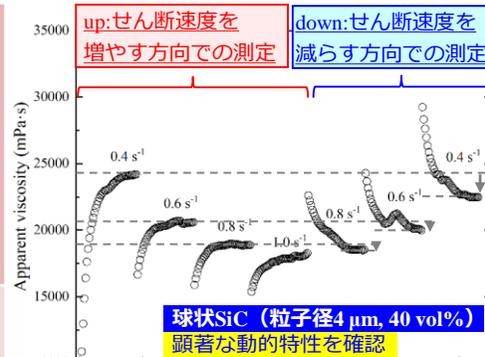
- シミュレーションの検証データとして、スラリーの静的特性および動的特性に関する実験データを取得
- スラリーの静的特性データとして、粒子径分布とゼータ電位を取得
- スラリーの動的特性データとして、非球状および球状SiCの粘度測定データを取得
- また、有段変速式回転粘度計による球状SiC体積割合40 vol%のスラリーの動的特性測定を実施し、ずり速度の階段状の登りおよび降りの見掛け粘度の変化からスラリーのチクソトロピー性を確認



せん断速度とせん断応力 (解析結果)



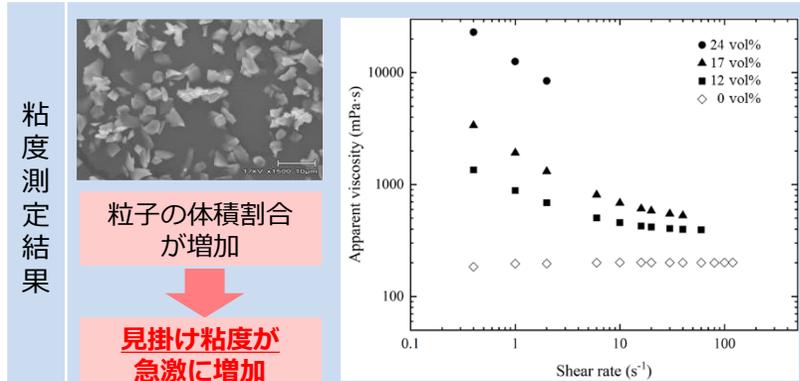
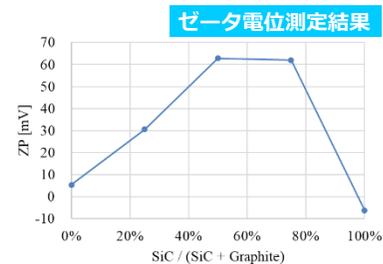
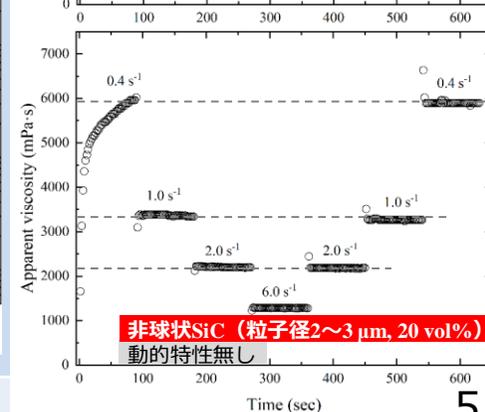
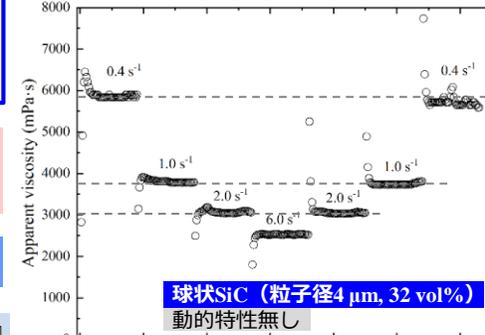
ヒステリシスカーブ (実験結果)



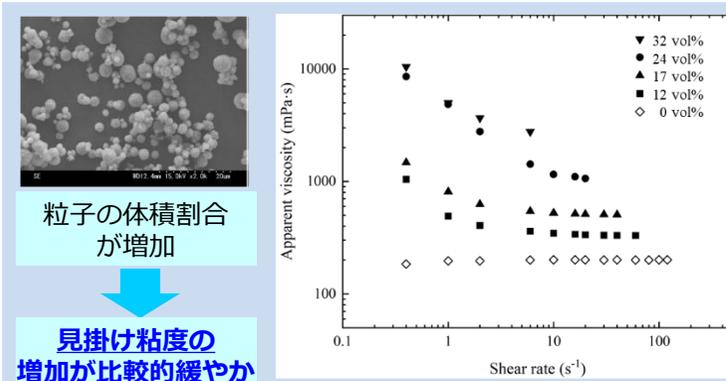
相対的な固形成分が最も大きい球状SiC (粒子径4 μm, 40 vol%) の条件で顕著な動的特性

見掛け粘度  
ずり速度の階段状の登り > ずり速度の階段状の降り

スラリーがチクソトロピー性を示すことを確認



非球状SiC



球状SiC

# 2. 研究項目 (1) スラリー挙動評価技術

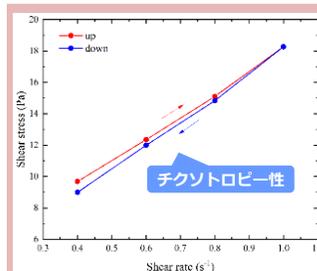
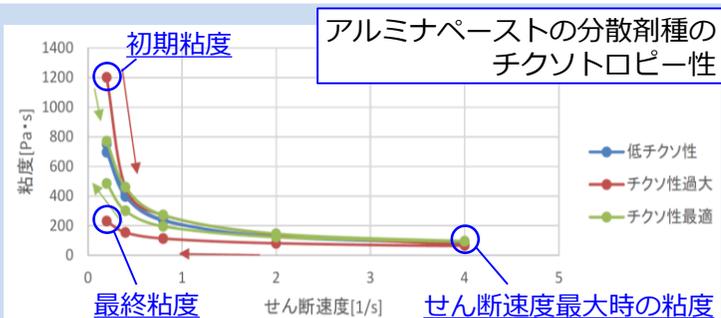
## ③ スラリーシミュレーション技術の評価

スラリー挙動に係るシミュレーション技術のV&Vを実施

- スラリー挙動のシミュレーションモデルを実行可能な環境を整備し、粒子間相互作用のモデルの検証とスラリーの粘度測定データによるV&V（検証と妥当性確認）を実施
- 改良したスラリーの動的特性によるDEM-CFDシミュレーションモデルのV&Vにより、チクソトロピー性を示すヒステリシスカーブの再現が可能であることを確認

開発項目	V&V内容
概念モデルの開発	【所期の利用目的】 ヒステリシスカーブを再現し、相互比較可能な機能を持つこと
数学的モデル化	【コード検証】 品質管理された商用ソフトウェアによるデジタル計算 【解検証】 排除体積カウント方法の改良による理論式との一致
物理的モデル化	概念モデルを実験計画に変換し実験データ（有段変速での応力および見掛け粘度の時間依存性データ）を取得
シミュレーションモデルの予測性能判断	【妥当性確認】 初期クラスタ形成した状態でせん断速度の時間変化を与えた結果、チクソトロピー性を示すヒステリシスカーブの再現を可能とした

粘度変化



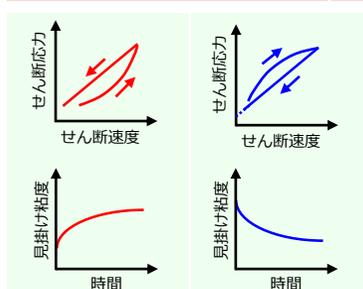
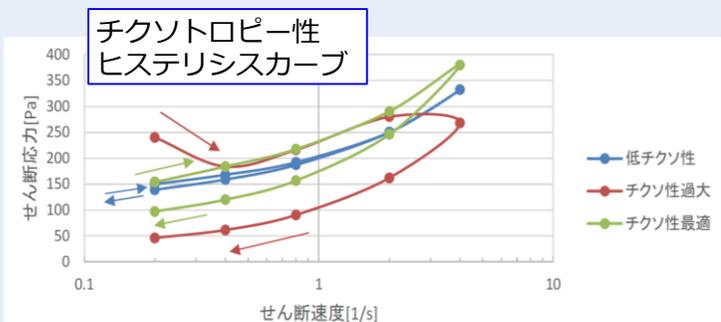
ヒステリシスカーブ (実験結果)



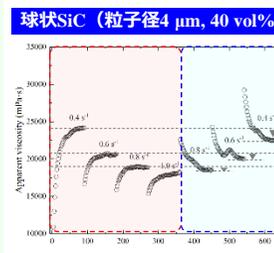
せん断速度とせん断応力 (解析結果)

- 粒子間力を付与したシミュレーションでは、実験で確認されたチクソトロピー性を再現できなかったことから、初期にクラスタを形成した状態から解析を実施
- 序盤はクラスタの影響により全体的にせん断応力が高い一方、後半に多くのクラスタが崩れ、見掛け粘度が低くなるチクソトロピー性が発現

せん断応力変化



レオペキシー性 チクソトロピー性



見掛け粘度  
ずり速度の階段状の登り > ずり速度の階段状の降り  
⇒チクソトロピー性

- クラスタが見掛け粘度に影響を及ぼすことを確認
- ヒステリシスカーブを再現でき、相互比較可能な機能を実現

## 2. 研究項目

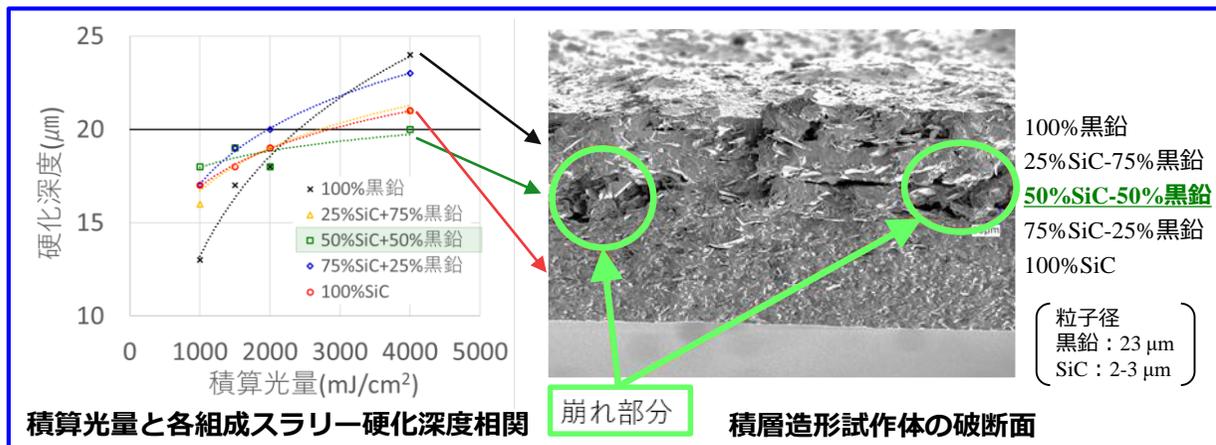
### (2) 積層造形評価技術

- ① DEM-CFDによる硬化挙動のシミュレーションモデル開発
- ② 積層造形シミュレーション検証データの取得
- ③ 積層造形シミュレーション技術の評価

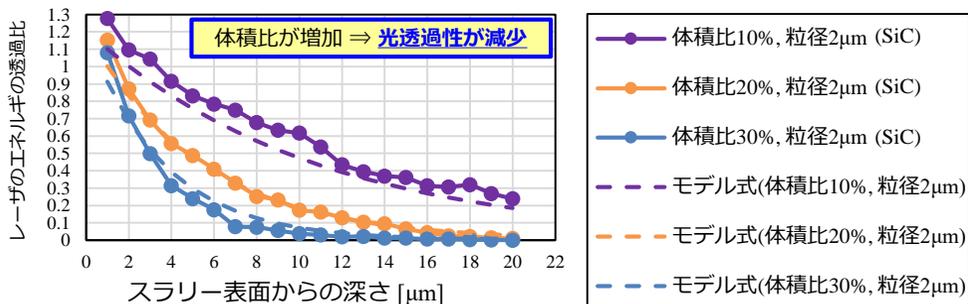
# 2. 研究項目 (2) 積層造形評価技術

## ① DEM-CFDによる硬化挙動のシミュレーションモデル開発

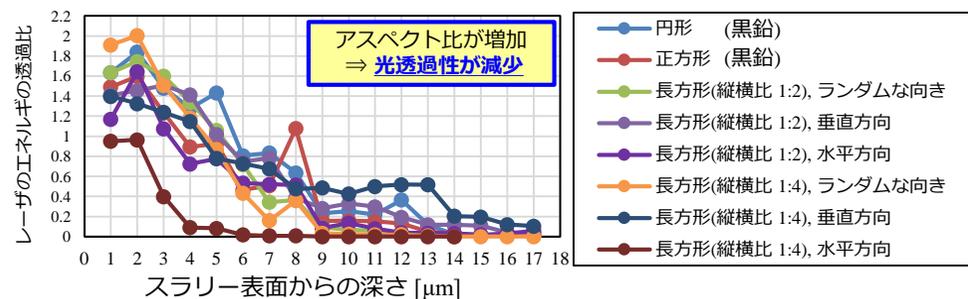
- SiC-黒鉛傾斜材料の積層造形において、50 %SiC-50 %黒鉛の組成の硬化深度が浅く、崩れが発生
- 光透過性に対して粒子分散性の影響を評価可能とするモデル化および改良
- 粒子の充填率ならびに形状の光透過性に与える影響について解析し、解析結果の傾向が実験結果と定性的に整合することを確認
- 硬化深度を評価可能な解析をDEM-CFDコードとして実装し、粒子分布、粒子径、吸収率、樹脂の吸光係数を入力値として改良したモデル式を用いて、硬化深度を予測する技術を確認



### 粒子充填率 (体積比) が光透過性に及ぼす影響評価



### 粒子形状が光透過性に及ぼす影響評価



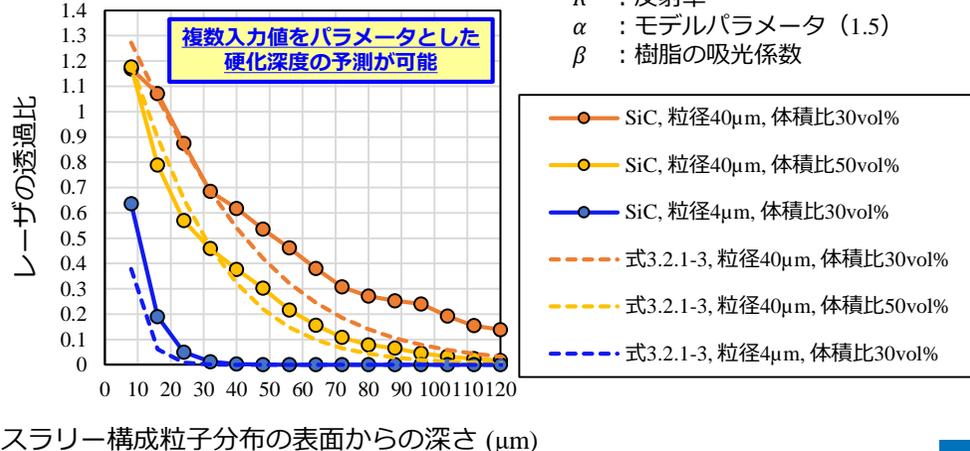
### 改良したモデル式を用いた硬化深度予測技術を確認

$$I_{total} = \sum_{n=0}^{\infty} I_0 B R^{2n} \{1 - B\}^n$$

改良したモデル式

$$B = \exp\left(-\left(\frac{\alpha C_1}{d_1} + \frac{\alpha C_2}{d_2} + \beta\right)l\right)$$

$I$  : エネルギーの強度  
 $I_0$  : スラリー表面におけるエネルギー  
 $C$  : 粒子の体積比  
 $d$  : 粒子の直径  
 $l$  : スラリー表面からの距離  
 $R$  : 反射率  
 $\alpha$  : モデルパラメータ (1.5)  
 $\beta$  : 樹脂の吸光係数



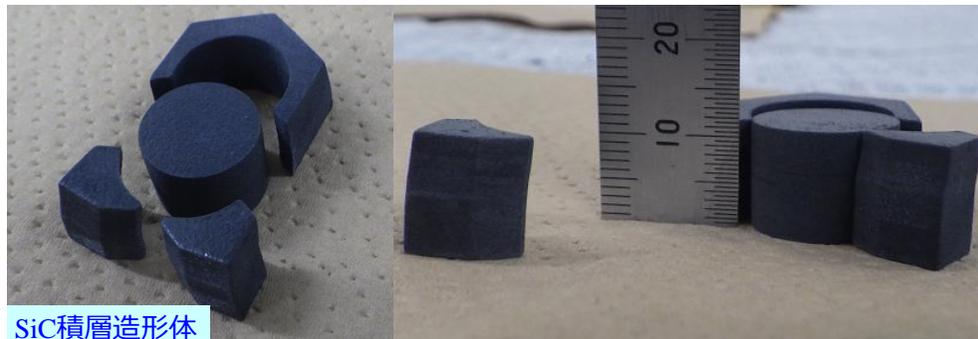
・スラリー敷設から硬化深度推定まで一貫したコードとして実装

# 2. 研究項目 (2) 積層造形評価技術

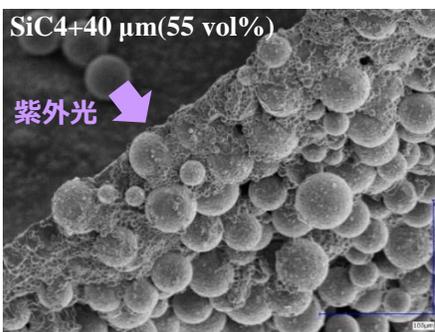
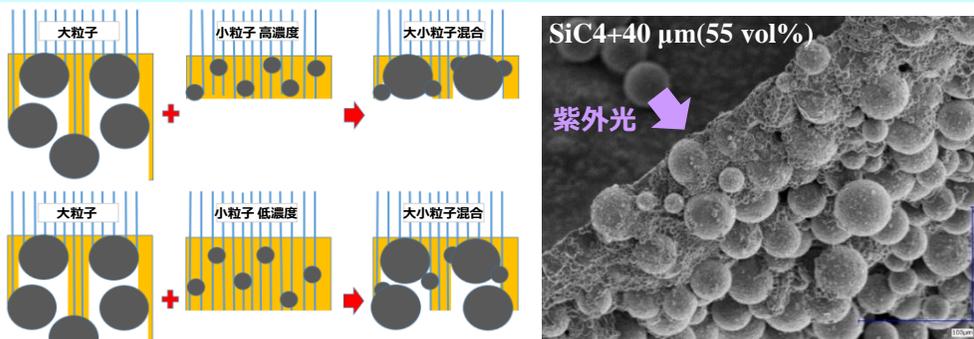
## ② 積層造形シミュレーション検証データの取得

積層造形体の硬化深度測定およびSiC積層造形体の作製を実施

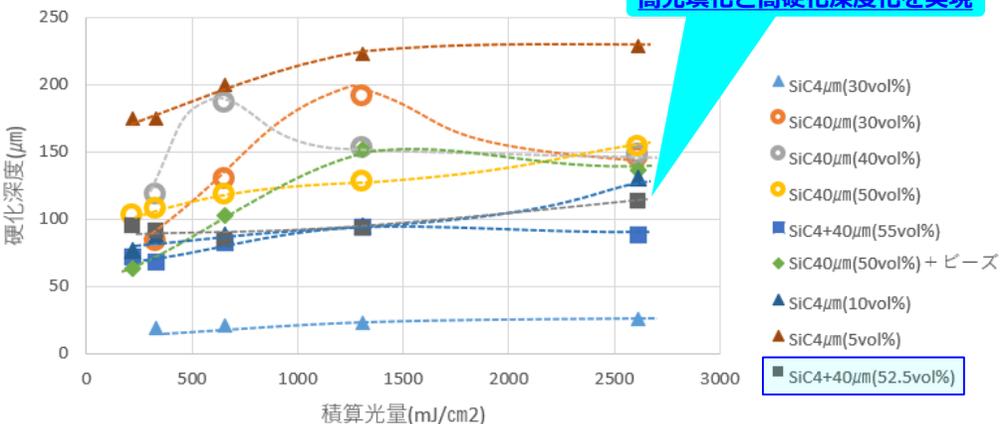
- 積層造形シミュレーション検証用データとして、紫外線積算光量計を用いて3D積層造形における光量および透過性に関するデータを取得
- 積層シミュレーションの解析結果をもとに、大粒径の球状粒子を積層造形原料として採用し、
  - 高充填化：固形分濃度 52.5 vol%、
  - 高硬化深度化：硬化深度 113 μm、を実現
- 直径15 mm、高さ11 mmの円柱状のSiC積層造形体の作製に成功



SiC積層造形体



高充填化と高硬化深度化を実現



高充填化の利点

- 高充填化 ⇒ 高粘度化 ⇒ 比重の重い粉体における固液分離特性を抑制可能
- 固形分が上がり造形体のかさ密度向上 ⇒ SPS焼結時の焼結収縮に対応した割掛率を小さくでき、焼結収縮による影響を低減することが可能
- SPS焼結時の焼結収縮の影響低下 ⇒ 造形体サイズがより小さくて済み、燃料製造の経済性が向上

高硬化深度化の利点

- 高硬化深度化 ⇒ 1層あたりの積層厚が向上 ⇒ 積層回数を減らすことができ、造形速度が飛躍的に向上
- 積層厚の向上 ⇒ 塗布ムラ等で膜厚が不安定化する場合の影響を吸収 ⇒ 積層数の多い大型の造形体の製造時の造形安定性が向上
- 固形分が上がり、相対的に樹脂成分を低減可能 ⇒ 硬化収縮に伴う応力が減少 ⇒ 造形体の反り等の改善効果

SiC粉末の形状および粒径を最適化することにより、これまで同手法を用いる3Dプリンターメーカーでも成し得なかった高さ10 mmを超える積層造形物の作製に初めて成功

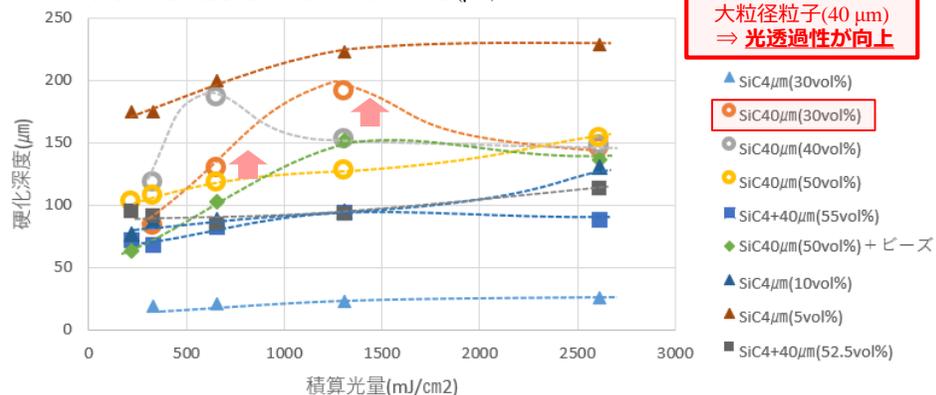
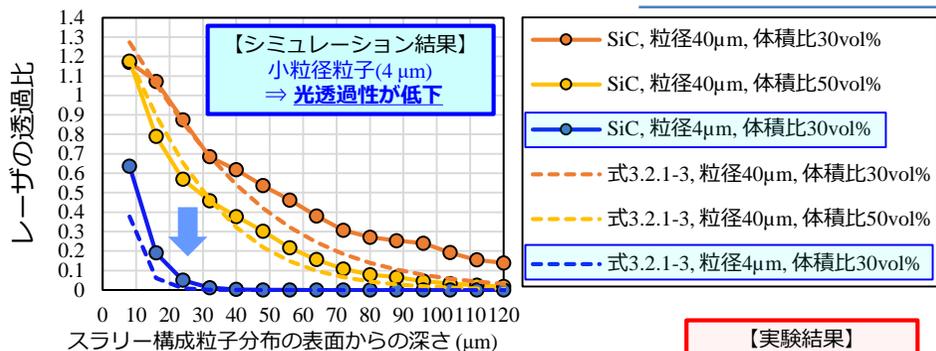
# 2. 研究項目 (2) 積層造形評価技術

## ③ 積層造形シミュレーション技術の評価

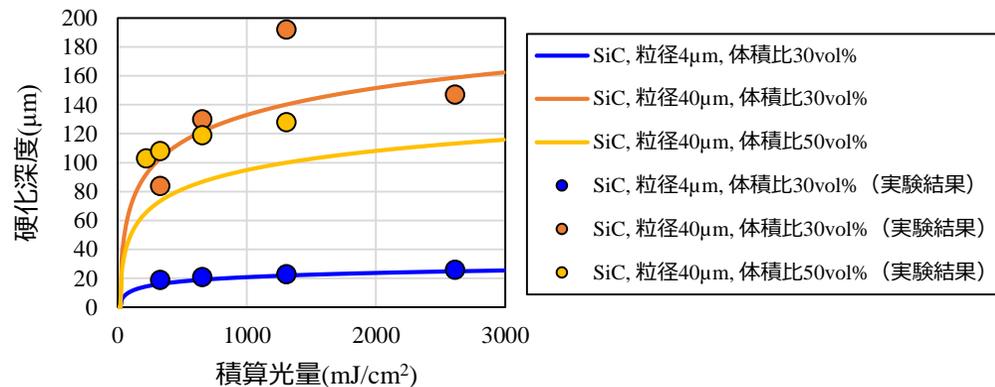
積層造形に係るシミュレーション技術のV&Vを実施

- 硬化挙動のシミュレーション技術評価として、スラリーの硬化挙動のシミュレーションモデルを実行可能な環境を整備し、モデル式の検証と光量および透過性データによるV&Vを実施
- 改良したシミュレーションモデルについて、V&Vを実施し、粒子径分布および粒子充填率に応じて光硬化深度の予測が可能であることを確認

項目	V&V内容
概念モデルの開発	【所期の利用目的】 光硬化深度の推奨値 $\geq 200 \mu\text{m}$ を満たすスラリー調製および光量調整に資するシミュレーションを開発
数学的モデル化	【コード検証】 品質管理された商用ソフトウェアによるデジタル計算 【解検証】 モデル式との比較推定を通じた理論式との一致
物理的モデル化	概念モデルを実験計画に変換して実験データ（光硬化深度）を取得
シミュレーションモデルの予測性能判断	【妥当性確認】 粒子径分布の依存性に応じて光硬化深度の予測を可能にした



光硬化深度は粒径依存性が極めて大きい ⇒ 粒径による光硬化深度評価



- 実験結果により、シミュレーションモデルの妥当性を確認
- 大粒子(40 μm)における外れ値等、予測性には課題があるものの、粒径による光硬化深度の差異を良好に予測
- 本シミュレーションを活用することにより、光硬化深度の推奨値 $\geq 200 \mu\text{m}$ を満たすスラリー調製および光量調整に資する粉末形状の提案が可能

## 2. 研究項目

### (3) スパークプラズマ焼結評価技術

- ① FEMによるSPS温度分布評価
- ② スパークプラズマ拳動シミュレーション
- ③ SPS検証データの取得
- ④ SPSシミュレーション技術の評価

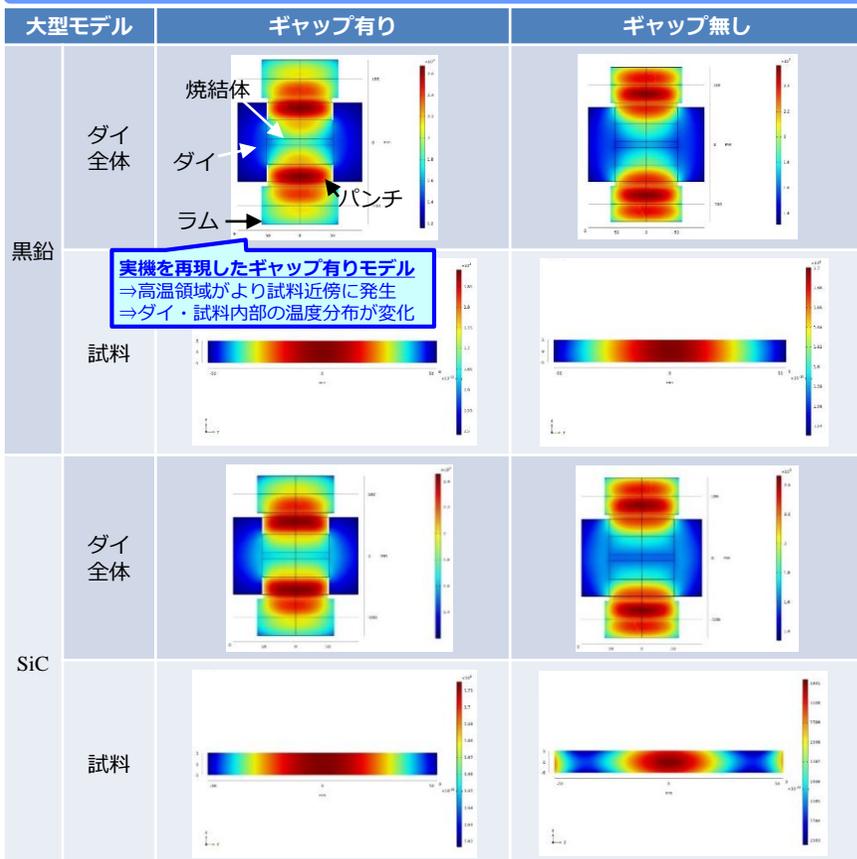
# 2. 研究項目 (3) スパークプラズマ焼結評価技術

## ① FEMによるSPS温度分布評価

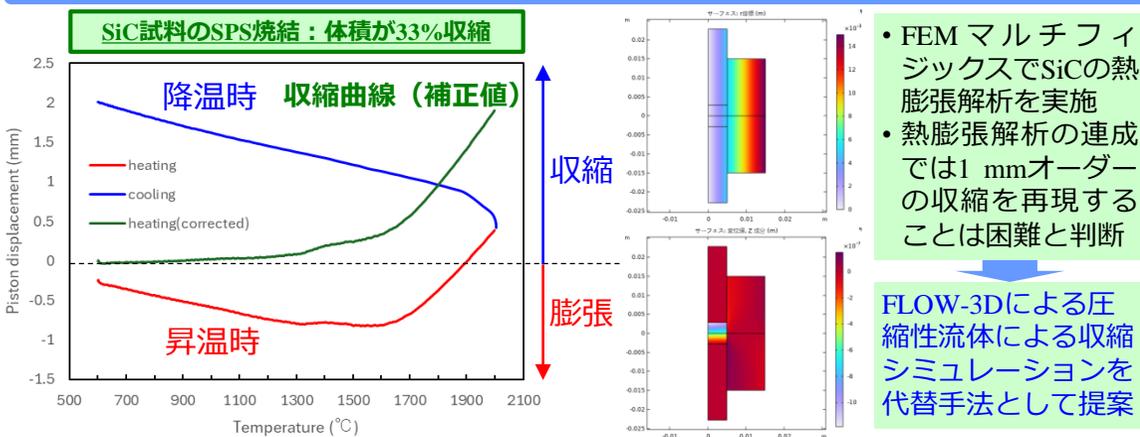
- 通電焼結の有限要素法(FEM)シミュレーションについて、大型標準モデルの構築および改良を実施
- パンチの小径化（ギャップ有りモデル）により、ダイおよび試料内部の温度分布が変化することを確認
- 収縮曲線データによるモデルの改良を実施するとともに、SPS焼結工程における技術課題を検討し、熱膨張解析に起因する収束性の改善が必要であることを確認



### SPS温度分布解析に係るモデル構築および改良



### SPS焼結の収縮曲線データによるモデル改良



### SPS焼結工程における技術課題の検討

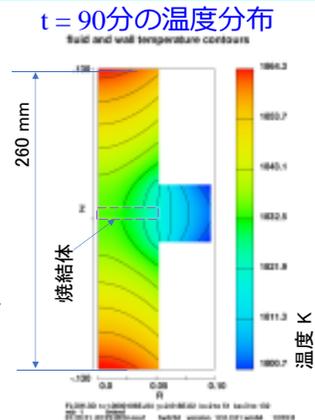
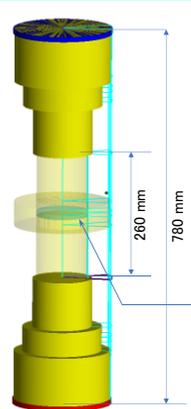
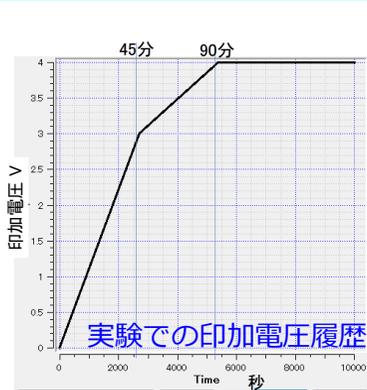
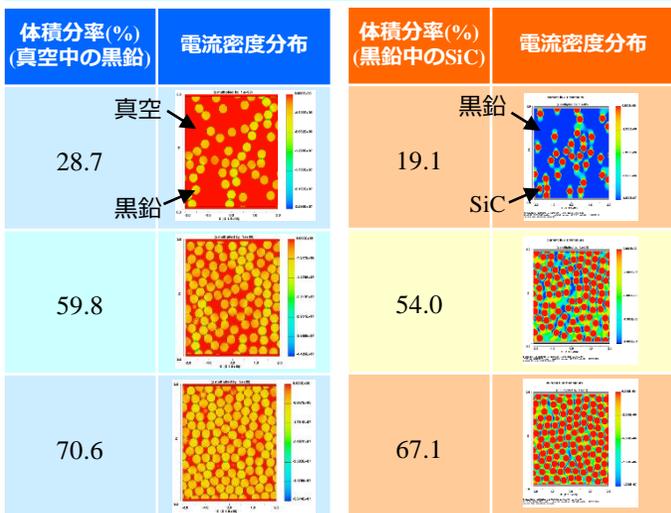
課題	内容
課題	<ul style="list-style-type: none"> <li>• 陶器製品焼成に用いられる常圧焼結法では、収縮変形による焼結前後の製品形状の正確な予測が現状難しいことが報告</li> <li>• SPS焼結は一軸加圧下での極めて短時間の焼結プロセスとなるため、収縮変形も大きく、焼結前後あるいは焼結中の変形予測はより困難化</li> </ul>
対策	<ul style="list-style-type: none"> <li>• SPS焼結においては、試料の収縮率が10%以上となることから、FEMシミュレーション中での大規模な変形解析が求められる。</li> <li>• SiCや黒鉛等の高温焼結材を粘塑性FEMにより取り扱う場合、熱膨張解析に起因する収束性を改善するための取り組みが必要</li> </ul>

# 2. 研究項目 (3) スパークプラズマ焼結評価技術

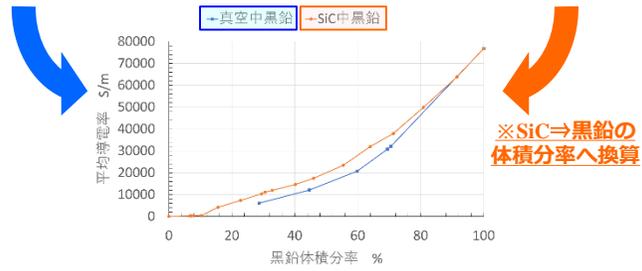
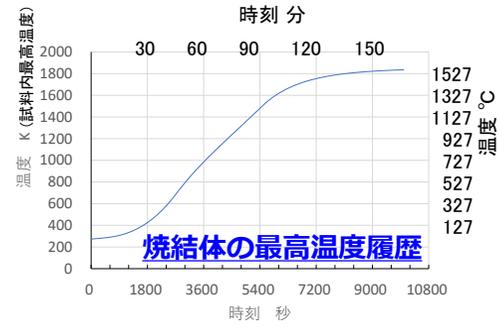
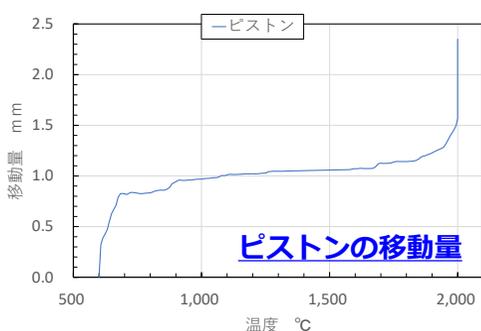
## ② スパークプラズマ挙動シミュレーション

SPS挙動シミュレーションのモデル改良およびSPS焼結の焼結体収縮モデル化の考案

- SPS焼結挙動のマイクロシミュレーションモデルに関して、粒子同士が接触して発生するジュール熱がSPS温度分布に与える影響を考慮したモデルの改良を行い、材料の導電率に分布がある場合に、平均的な導電率を解析から導出できることを確認
- SPS焼結挙動のマイクロシミュレーションモデルに関して、粒子同士が接触して発生するジュール熱がSPS温度分布に与える影響を考慮したモデルを構築し、SiC、黒鉛の混合による導電率の傾向およびマクロな導電率から焼結体周囲の温度計算を実施し、概ね実測値を再現することを確認
- FLOW-3Dを用いて圧縮性流体による焼結体の収縮のモデル化を考案し、おおよその収縮量を再現できることを確認



時刻	温度分布
0秒 (モデル)	
100秒	
400秒	
700秒	



• SiC-黒鉛混合物の導電率は、概ね黒鉛の体積分率に指数関数的に影響を受ける。

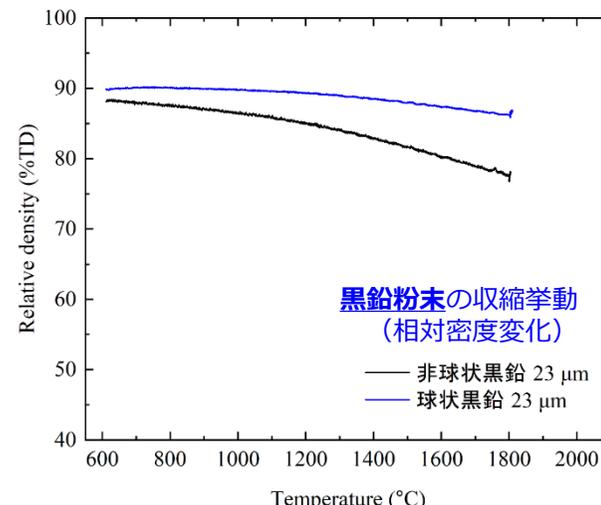
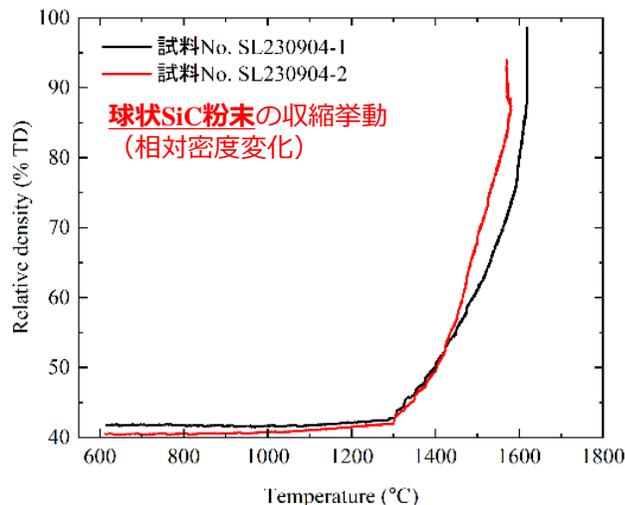
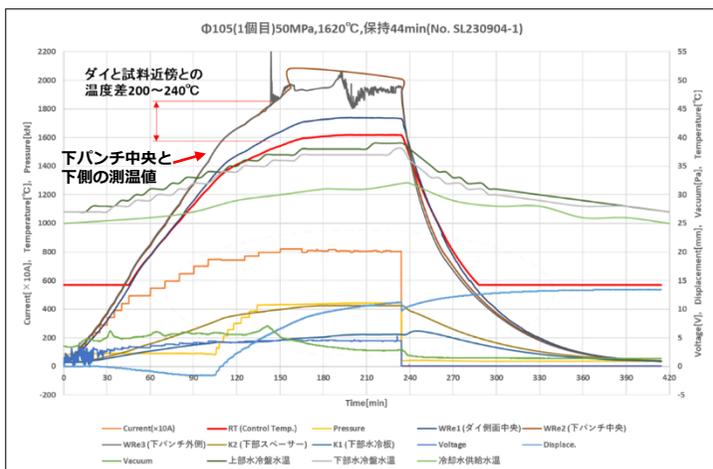
• シミュレーションにおけるピストンの移動量は約2.0 mmであり、実験で測定された移動量、収縮量ならびに温度との対応を再現

# 2. 研究項目 (3) スパークプラズマ焼結評価技術

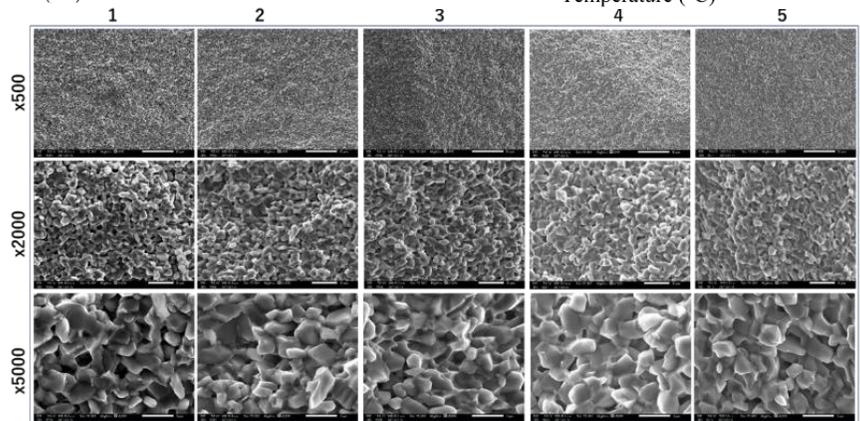
## ③ SPS検証データの取得

SPS焼結中の温度分布測定データの取得およびSiC積層造形体のSPS焼結

- SPS検証データの取得のため、温度校正したダイセットを用いてSPS試験を実施し、SPS焼結中の温度測定データを取得
- SiCおよび黒鉛の焼結中の収縮データを取得し、試料のみの収縮曲線を得るためにデータを校正
- 直径15 mm、高さ11 mmのSiC積層造形体のSPS焼結を実施し、クラック等のマクロな欠陥がない健全な焼結体を得ることに成功
- スラリー調製からSPSまでの一連のプロセスがSiCにおいて成立することを確認



SiC積層造形体	(a) 脱脂前	(b) 脱脂後	(c) SPS焼結後
直径 (mm)	15.17	14.54	14.71
高さ (mm)	11.07	10.27	7.61
相対密度 (%TD)	—	51.9	88.4



大型モデル (直径105 mm) SiCの破面観察結果

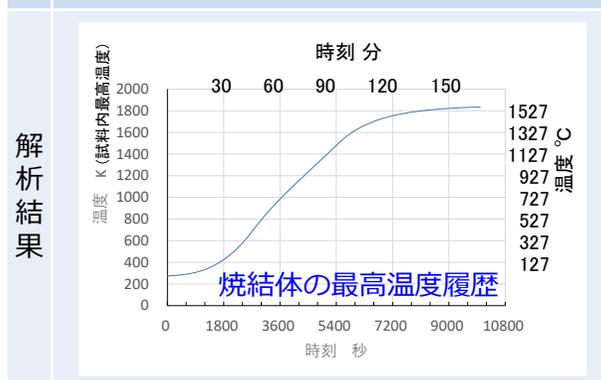
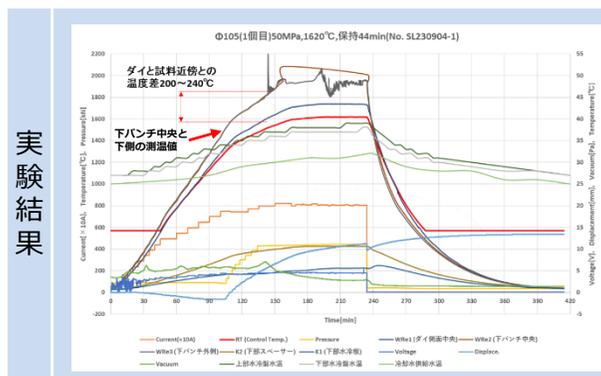
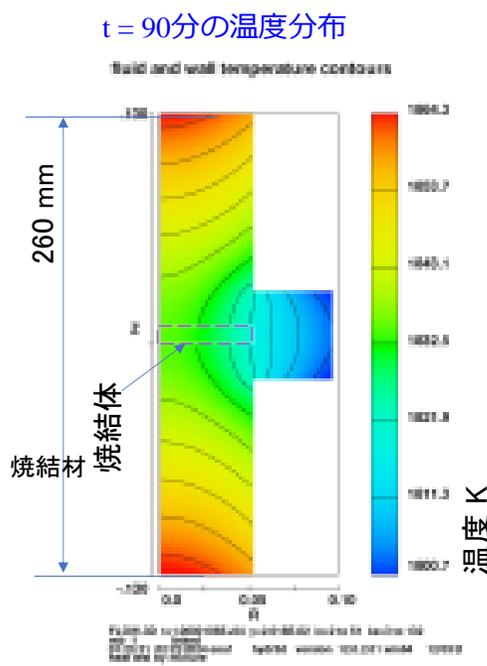
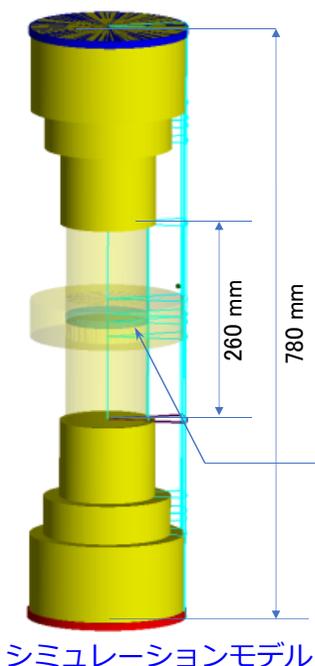
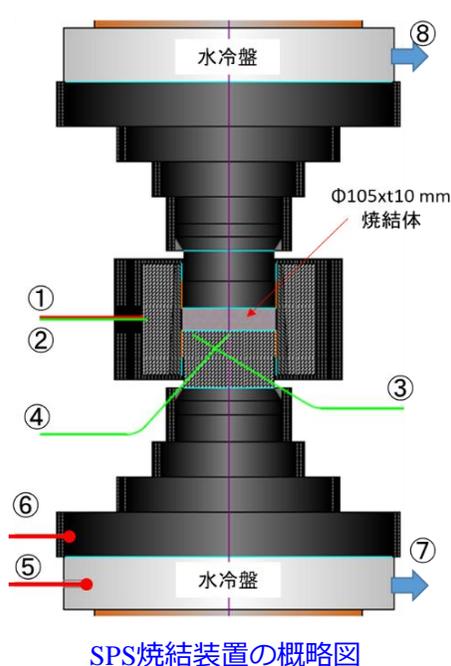
# 2. 研究項目 (3) スパークプラズマ焼結評価技術

## ④ SPSシミュレーション技術の評価

SPS焼結に係るシミュレーション技術のV&Vを実施

- SPS焼結シミュレーション技術評価として、SPS挙動シミュレーションモデルを実行可能な環境を整備し、SPSシミュレーションモデルの検証および温度分布測定データによるV&Vを実施
- 温度分布測定データを用いてSPS温度分布評価シミュレーションのV&Vを実施し、印可電圧に応じた焼結体内部温度予測が可能であることを確認

項目	実施内容
概念モデルの開発	【所期の利用目的】 焼結体内部温度の不均一性を改善し、収縮差による焼結体の破損防止に資する
数学的モデル化	【コード検証】 品質管理された商用ソフトウェアによるデジタル計算 【解検証】 シミュレーション結果のジュール発熱量解析解との一致
物理的モデル化	概念モデルを実験計画に変換して実験データ（温度）を取得
シミュレーションモデルの予測性能判断	【妥当性確認】 印可電圧に応じた焼結体内部温度予測を可能にした



• 焼結体の温度履歴として、十分な精度で予測が可能であることを確認

## 2. 研究項目

### (4) 照射挙動評価技術

- ① MD-DFTによる中性子挙動解析
- ② 機械学習技術の応用

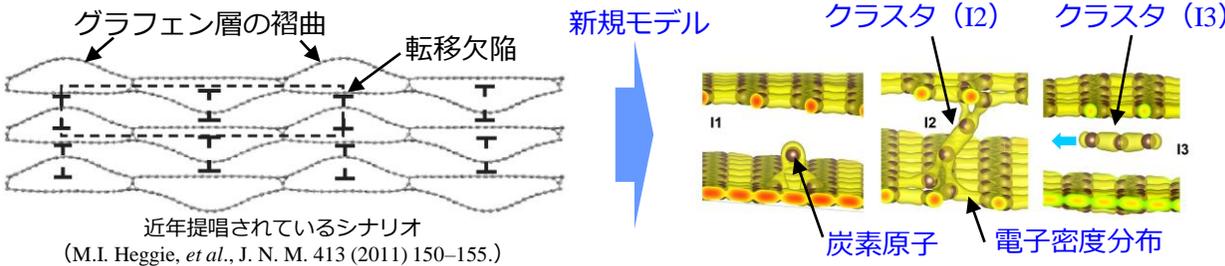
# 2. 研究項目 (4) 照射挙動評価技術

## ① MD-DFTによる中性子挙動解析

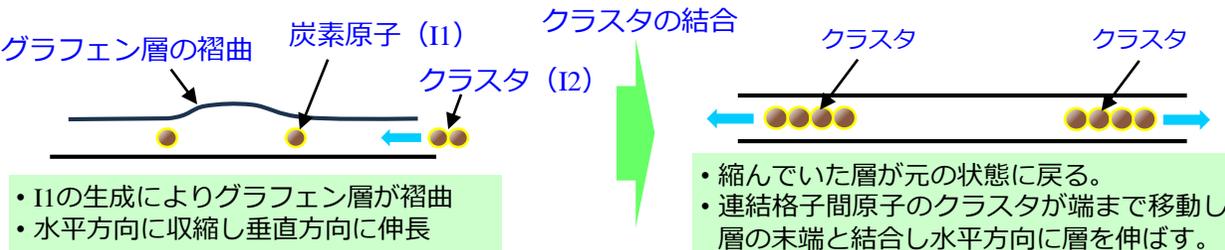
グラファイトおよび炭化ケイ素のMD-DFTによりスエリングへの影響を評価

- グラファイトおよび炭化ケイ素のスエリング評価に係り、グラファイト格子欠陥の拡散定数をMD-DFTにより評価し、スエリングへの影響を見積もった。
- グラファイトと炭化ケイ素のスエリング挙動に関して、グラファイト格子欠陥集合体の拡散定数をMD-DFTにより評価し、既往研究では不足していた原子論的な機構の説明について新たな知見が得られた。
- SiCの中性子衝突過程をMD-DFTで評価し、ML-MD用の基礎データを得た。

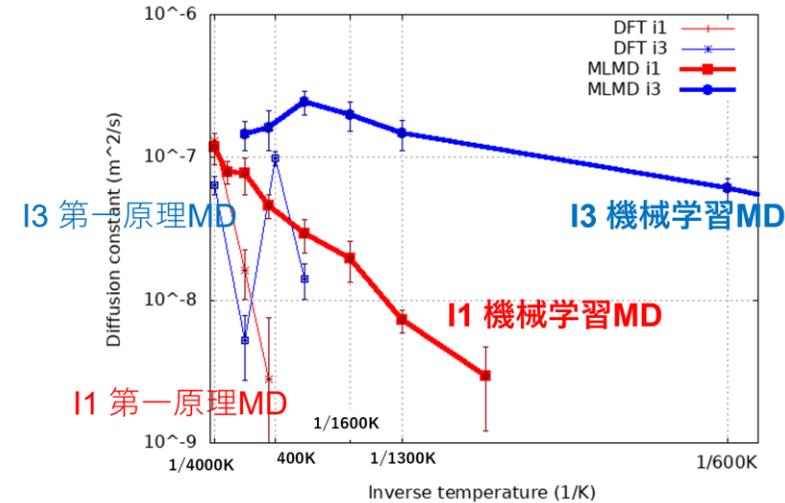
- グラファイトの中性子照射において、面内方向が縮み、垂直方向が伸びる特異な現象
- さらに、中性子照射の進行により全体の体積が縮む一方、照射途中でターンアラウンドという体積が増加に転じる特異な現象（黒鉛炉制御棒の寿命を決定するため重要）が見られる。



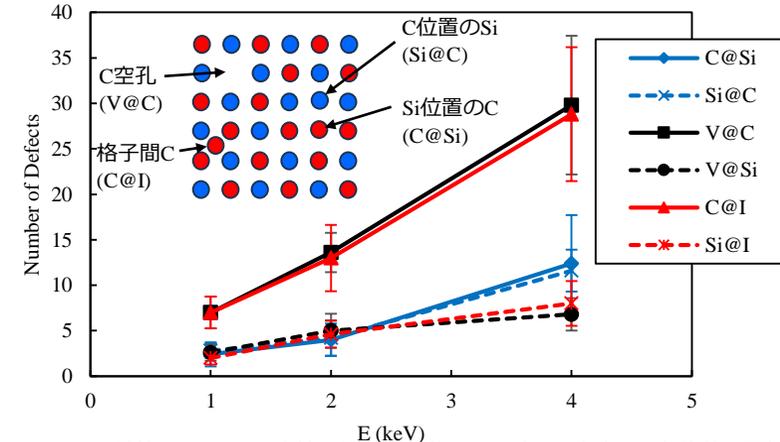
- 最初に格子間炭素原子I1が単独で照射により生じ、横方向の体積の縮みが起こるが、I1が隣接した格子間炭素原子I1と合体し、3個連結したI3になると層内を非常に速く動き始める。



- 分子動力学シミュレーションに必要なポテンシャルエネルギー曲面を機械学習により効率的に生成して解析に適用することにより、グラフェン層間炭素原子のクラスタ化に伴う拡散速度の変化を定量的に見積もり、機構論的な現象解明に貢献



DFT-MDおよびML-MDによるグラファイト格子間原子クラスタI1およびI3の高域における拡散定数



ML-MD計算によるSiCの中性子衝突の運動エネルギーと生成する欠陥数の関係

## 2. 研究項目 (4) 照射挙動評価技術

### ② 機械学習技術の応用

ML-MD計算の開発および照射挙動評価に必要な物性値を評価

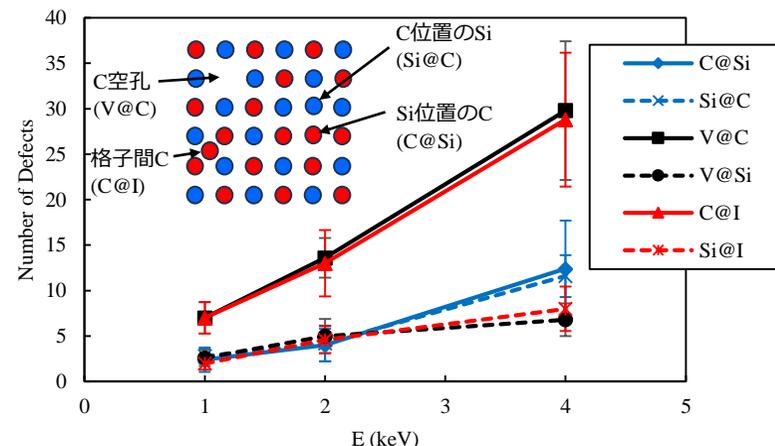
- 機械学習技術の応用として、ML-MD計算による照射挙動評価手法により、グラファイトの欠陥拡散挙動およびSiCの中性子衝突過程について、ML-MD計算を用いた評価を行い、得られた結果を用い照射挙動評価手法を改良
- MD-DFTで得られたグラファイト格子欠陥集合体の挙動を機械学習し、MD-DFTでは困難であった低温、長時間での拡散定数をML-MDにより評価
- SiCの中性子衝突過程MD-DFTの結果を機械学習し、ML-MD計算により大規模かつ長時間のシミュレーションを行い、照射挙動評価に必要な物性を評価

#### グラファイトのML-MD計算

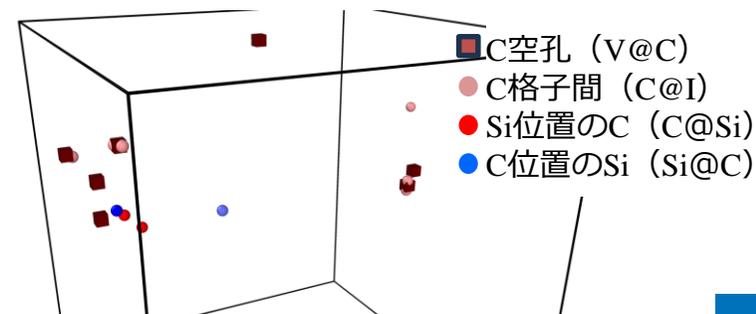
- 第一原理計算において、72原子を用いた計算により、格子間原子およびそのクラスタ (I1, I2, I3) を配置したものを対象に、融点以下で欠陥が動きやすい高温の2000~4000 Kの範囲で10 ps程度の時間のMD計算により運動を追跡し、機械学習を行い拡散挙動を評価
- 多次元のベクトル空間で出来る限り均一に分布するように追加で計算すべき原子配置を選定し第一原理計算により学習データに追加した結果、計算において外挿となり精度が低下するケースを大幅に削減
- 1000程度の原子を追加の学習に用い、1024原子、1 nsに及ぶML-MD計算を行い、格子間原子の拡散定数の評価を可能とした。

#### SiCのML-MD計算

- 最初の中性子衝突過程において、C, SiのI (格子間欠陥) /V (空孔) がどの程度の割合で形成されるかは重要な情報である一方、これまで計算例がなかった。
- 原子がある程度以上接近している場合には、解析的なクーロンの式 (ZBL) 近似を使い、それ以外の部分にニューラルネットを用いることで精度よく教師データを再現することに成功
- 照射挙動評価には10648原子から成る体系を用い、1 nsの時間シミュレーションを行ったところ、すべて安定しており、原子力機構の計算機を用いてすべてのケースについてそれぞれ数時間以内に計算を完了



ML-MD計算によるSiCの中性子衝突の運動エネルギーと生成する欠陥数の関係



# 3. まとめ

## 研究成果のまとめ

- スラリー塗布の上流工程からの一連の解析に関わる要素技術を概ね確立でき、スラリー挙動評価からSPS焼結挙動評価まで一定程度の連続した解析が可能になる見込みを得ることができた。
- スラリー挙動においては、従来再現が難しいとされてきたチクソトロピー性などの動的スラリー特性をDEM-CFD手法を用いることにより予測可能とした。
- 焼結挙動においては、形状変化の大きな領域における有限要素法の適用性の限界を見出し、CFD手法を用いて原料粉末の変形現象を模擬し、焼結に伴う体積変化を予測する技術に道筋をつけた。
- シミュレーション技術を用いてSiC積層造形条件の最適化を行い、センチメートルオーダーの造形体の試作に成功、SPS焼結工程（脱脂工程も含む）の最適化も実施しSiC造形体の焼結に成功
- 本研究で開発したシミュレーション技術を用いることにより、スラリー調製からSPSまでの一連のプロセスがSiCにおいて成立することを実験的に確認
- 中性子挙動評価については、従来定性的な説明に留まってきたグラファイトのターンアラウンド現象に関わる格子間炭素原子の拡散挙動について、機械学習を適用した分子動力学シミュレーションにより定量的に説明することを可能にした。

## 研究効果

- 本研究では、高温での耐熱性に優れたSiC-黒鉛組成傾斜材の作製手法を開発しており、航空宇宙産業におけるロケット等の構成部材（ノズル、熱交換器等）やエネルギー産業における原子炉・核融合炉用材料において、SiC-黒鉛組成傾斜材の利用が期待できる。