

機械学習分子動力学による二酸化トリウムの物性値評価

Analysis of physical properties of thorium dioxide by machine learning molecular dynamics

*小林 恵太¹, 奥村 雅彦², 中村 博樹², 板倉 充洋², 町田 昌彦²

¹高度情報科学技術研究機構, ²日本原子力研究開発機構

二酸化トリウムに対し、機械学習分子動力学を用いた、高温物性の解析を行った。弾性係数、エンタルピー、熱膨張率、比熱、相転移温度等の物性値を計算した。得られた物性値は実験値とよく一致する結果となった。また、二酸化トリウムの準融解相として知られる Bredig 相における酸素拡散に関して解析を行った。

キーワード：機械学習、分子動力学法、二酸化トリウム

1. 緒言

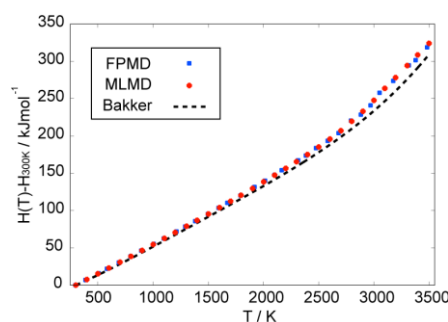
二酸化トリウムは高い融点、化学的安定性、またウランに比べ埋蔵量が豊富であることから、二酸化ウランに代わる核燃料の一つの候補であると考えられている。しかし、高温下でのトリウム熱物性に関するデータは十分に得られているとは言えない。高温下での物性データは簡単には取得できないため、分子動力学による原子レベルでのシミュレーションが有用となるが、通常の古典分子動力学は経験的なパラメーターに強く依存するため、得られた結果の信頼性には十分な検討が必要となる。本発表では、第一原理計算と同等の精度で分子動力学の実行が可能となる、機械学習分子動力学法による二酸化トリウムの高温物性の解析を行った。

2. 手法

まず、二酸化トリウムに対し第一原理分子動力学計算を実施し、各ステップでの結晶構造とポテンシャルエネルギーから成るデータセットを生成した。機械学習手法としては Behler-Parrinello のニューラルネットワーク (BPNN) を使用した。生成したデータセットを用い BPNN を訓練することにより、与えられた結晶構造からポテンシャルエネルギーを出力する機械学習力場を作成した。機械学習力場を用いた分子動力学計算を実行することにより、二酸化トリウムの熱物性を計算した。それぞれ、第一原理計算は vasp を、機械学習は n2p2 を、分子動力学計算は Lammps を使用した。

3. 結論

二酸化トリウムに機械学習分子動力学が第一原理計算と同等の精度を持つことを確認した (右図参照)。また、 $6 \times 6 \times 6$ セル (2592 原子) に対し、機械学習分子動力学を実行し、比熱、熱膨張率、Bredig 相転移温度を評価した。得られた物性値は実験値とよく一致した。得られた比熱は λ ピークを持ち、急激な比熱の増加を示すが、二酸化トリウムにおける酸素拡散の開始と比熱の急激な増加が対応していることを確認した。また、Bredig 相において拡散定数のアレニウス則からの逸脱が確認された。



エンタルピーの温度依存性。それぞれ、第一原理分子動力学(FPMD)、機械学習分子動力学(MLMD)、実験値(Bakker)の結果を表している。

*Keita Kobayashi¹, Masahiko Okumura², Hiroki Nakamura², Mitsuhiro Itakura², Masahiko Machida²

¹RIST, ²JAEA