

## 機械学習分子動力学による(Ca,Sr)F<sub>2</sub>の高温物性の評価

Evaluation of high-temperature properties of (Ca,Sr)F<sub>2</sub> with machine-learning molecular dynamics

\*中村 博樹<sup>1</sup>, 町田 昌彦<sup>1</sup>, 加藤 正人<sup>1</sup>

<sup>1</sup>JAEA

MOX 燃料の代替物質で、融点が低く、結晶構造が同じであるフッ化カルシウムとフッ化ストロンチウムの固溶体(Ca,Sr)F<sub>2</sub> に対して、機械学習分子動力学を用いて、高温物性を評価した。特に、融点直下で起こる比熱の増大 (Bredig 転移) を詳細に調べ、MOX 燃料への応用について考察した。

**キーワード** : CaF<sub>2</sub>, SrF<sub>2</sub>, 機械学習分子動力学, Bredig 転移

### 1. 緒言

核燃料の開発においては、二酸化アクチニドの詳細な物性値が必要となるが、様々な制限により、高温での詳細な物性値を測定することが難しい。このような場合、数値計算を用いて測定値を補間していくことで、精度の高い物性値を得られることが期待できる。通常、原子レベルでの数値計算としては古典分子動力学と第一原理計算がよく用いられる。古典分子動力学は大規模シミュレーションが可能だが、経験的なパラメータによってしまうため、信頼性はあまり高くない。一方、経験的なパラメータを必要としない第一原理計算は信頼性が高いが、計算時間がかかる。この両者の利点を活かす手法が機械学習分子動力学法である。この手法では、第一原理計算結果を学習したポテンシャルを作成して、古典分子動力学を行い、高い信頼度で大規模シミュレーションによる物性評価が可能となる。本発表では、MOX 燃料の代替物質として、同じ結晶構造で融点の低い CaF<sub>2</sub> と SrF<sub>2</sub> の固溶体に対して、機械学習分子動力学による高温物性評価を行う。特に Bredig 転移と呼ばれる高温での急激な比熱の変化に注目し、その現象を解析する。これらの計算結果を実験データと比較することによって、本手法の有効性を確認し、MOX 燃料物質への応用の可能性を議論する。

### 2. 計算方法及び結果

(Ca,Sr)F<sub>2</sub> に対して、第一原理計算を行うことで学習データを構築した。この際、精度がよいとされる SCAN 汎関数を採用した。この学習データから機械学習ポテンシャルを作成して、分子動力学を行い、比熱等を評価した。第一原理計算には VASP コード、機械学習には n2p2 コード、古典分子動力学には LAMMPS コードを用いた。図 1 に比熱の計算結果を示した。CaF<sub>2</sub> や SrF<sub>2</sub> では 1400K 近辺に Bredig 転移のピークが見られるが、Ca<sub>0.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>F<sub>2</sub> では 1200K 付近にピークが下がっている。この現象は実験でも観測されている。

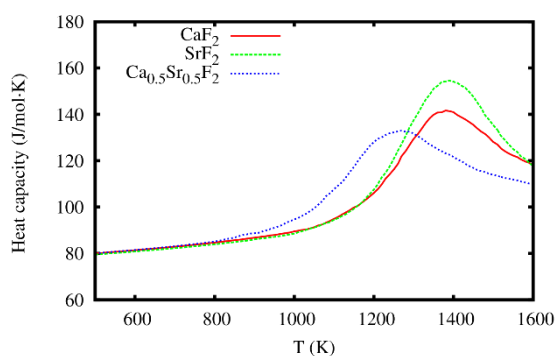


図 1 : 機械学習分子動力学による(Ca,Sr)F<sub>2</sub> の比熱。

### 3. 結論

機械学習分子動力学を用いることで、通常的第一原理計算では評価が困難な固溶体の高温物性を評価することに成功した。本手法では、第一原理計算と同程度の精度で、より大規模なシミュレーションが可能であることが分かり、MOX の燃料物性評価の数値計算手法として有効であると期待される。

\*Hiroki Nakamura<sup>1</sup>, Masahiko Machida<sup>1</sup> and Masato Kato<sup>1</sup>

<sup>1</sup>JAEA