

機械学習分子動力学による二酸化プルトニウムの物性評価

Evaluation of physical properties of plutonium dioxide using machine-learning molecular dynamics

*中村 博樹¹, 小林恵太¹, 奥村雅彦¹, 板倉充洋¹, 町田昌彦¹, 渡部雅¹, 加藤正人²

¹ 日本原子力研究開発機構, ² 検査開発

MOX 燃料の主成分である二酸化プルトニウムに対して、第一原理計算を学習した機械学習ポテンシャルを構築した。このポテンシャルを用いて分子動力学を実施し、高温での比熱などの熱物性を評価した。

キーワード：第一原理計算, PuO₂, 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、燃料物質の詳細な物性値が必要となるが、取り扱いの制限などにより、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。最近、開発された機械学習分子動力学法では、計算コストが大きい第一原理計算の結果を学習したポテンシャルを作成して、計算コストの低い古典分子動力学を行い、第一原理計算と同等の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。これまで、核燃料の主成分である二酸化ウランに対する応用がいくつか報告されている一方で、MOX 燃料の主成分の 1 つである二酸化プルトニウムに対して機械学習分子動力学法を応用した例はまだない。本発表では、二酸化プルトニウムに対して、この手法を適用して、高温物性を評価し、その有効性を確認した。

2. 計算方法及び結果

二酸化プルトニウムに対して、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、相対論効果としてスピン軌道相互作用を取り入れた上に、強相関効果を考慮して DFT+U 法を採用した。二酸化プルトニウムは非磁性であるので、第一原理計算では非磁性になる拘束を入れて計算した。このように得られた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、熱物性を評価した。第一原理計算には VASP コード、機械学習には n2p2 コード、分子動力学には LAMMPS コード

を用いた。計算結果の一例として、図 1 に比熱を示す。2800K くらいで Bredig 転移と呼ばれる比熱の増大が見られるが、この温度は融点とほぼ同等であり、二酸化ウランなどと違い、明確な Bredig 転移のピークが観測されない可能性を示唆する結果である。

3. 結論

機械学習分子動力学を用いることで、第一原理計算と同等の信頼性で、二酸化プルトニウムの高温物性を評価可能となった。学習データ不足のため、まだ十分な精度とは言えないものの、Bredig 転移や融点など第一原理計算では評価が困難であった熱物性の評価に成功した。今後は、MOX 燃料への応用を目指し、より信頼性の高いポテンシャルを用いた物性評価手法を確立していく。

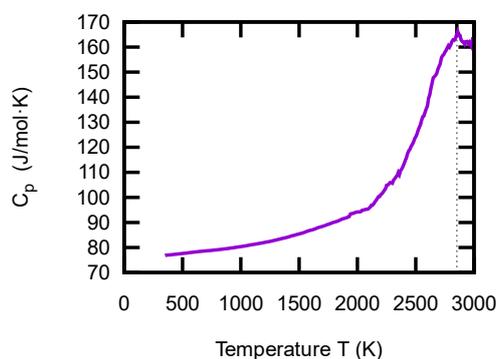


図 1: 機械学習分子動力学による二酸化プルトニウムの比熱。

*Hiroki Nakamura¹, Keita Kobayashi¹, Masahiko Okumura¹, Mitsuhiro Itakura¹, Masahiko Machida¹, Masashi Watanabe¹, and Masato Kato²

¹ Japan Atomic Energy Agency, ² Inspection Development