

# 機械学習分子動力学による 原子力材料科学

小林恵太 日本原子力研究開発機構 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





Center for Computational Science & e-Systems



## 機械学習分子動力学を用いた原子力材料研究の紹介

- ・粘土鉱物、セメント
  - ・カオリナイト、トバモライトに対する機械学習分子動力学
- •核燃料物質
  - ・酸化トリウムの高温物性
- •機能性材料
  - ・機械学習分子動力学によるシリカガラスの中距離構造解析



### 機械学習分子動力学法(MLMD)とは

分子動力学 
$$m\frac{d^2 x}{dt^2} = -\nabla V(x_1, \cdots, x_N)$$
 ~原子間ポテンシャルにより精度は決定される

分子動力学法	原子間ポテンシャルの特徴	速度	システムサイズ
古典分子動力学	・少数の経験的パラメーターを持つ簡単な関数形を用いる ~全ての物理量を再現できるわけではない	高速	大規模
第一原理分子動力学	・量子力学計算 ~ 高精度な結果を提供する	低速	小規模
機械学習分子動力学法	・ニューラルネットワークによる正確なフィティング ~第一原理計算とほぼ同等の精度が可能	高速	大規模



今までのシミュレーションの精度と規模を超えた計算により信頼性の高い物性情報が取得可能に

第35回CCSEワークショップ:機械学習分子動力学による原子力材料科学

粘土鉱物・セメント



### 粘土・セメント中への放射性核種吸着の詳細解明 ・高精度力場によるシミュレーション

・水(層間水)の移動、イオンの移動、化学反応

## 機械学習分子動力学法による粘土・セメントのシミュレーション

Machine learning potentials for tobermorite minerals, Keita Kobayashi, et.al Computational Materials Science 188 (2021) 110173.

Machine learning potentials of kaolinite based on GGA and meta-GGA density functionals", Keita Kobayashi, et.al Applied Clay Science 228 (2022) 106596.

## 粘土鉱物(カオリナイト)



## 粘土鉱物(カオリナイト)

Intensity (arbitrary unit)



構造相転移によるXRDの変化

## セメント物質(トバモライト)



- セメント水和物~セシウムを吸着
  トバモライト:セメント水和物の代表的なモデル物質
  トバモライト表面モデル
  - カルシウムイオン、水の分布、シラノール基の分布





カルシウムイオンとシラノール基(SiOH)の分布

## セメント物質(トバモライト)



#### カルシウムイオン吸着



#### セシウムイオン吸着



#### イオン種による吸着挙動の違い

- ・カルシウムイオン 水和したまま吸着〜外圏的吸着
- ・セシウムイオン
  - 脱水和し吸着、表面酸素と直接結合~内圏的吸着

第35回CCSEワークショップ:機械学習分子動力学による原子力材料科学

核燃料物質





Machine learning molecular dynamics simulations toward exploration of high - temperature properties of nuclear fuel materials : case study of thorium dioxide, Keita Kobayashi, et.al, Sci. Rep, 12, (2022),9808.

## 核燃料物質(酸化トリウム)

・比熱異常(超高温における秩序無秩序転移)





・比熱異常を再現可能

## 核燃料物質(酸化トリウム)



#### 固液界面

酸化トリウムの固液界面でのシミュレーション



MLMD-SCAN	EXP
3610–3620	3651

第35回CCSEワークショップ:機械学習分子動力学による原子力材料科学

# 機能性材料

研究対象:シリカガラス ~ 最も代表的なガラス材料

□ 高い透明度
 □ 耐熱性、化学的安定性
 □ 原料が豊富

# ガラス窓、光ファイバー、レンズ 実験器具、半導体ウェハ



🛯 (シリカ)ガラス

o 液体の状態が凍結した不規則な固体

□ X線、中性子回析

結晶と違い立体的な構造情報の取得が出来ない



各ピークの解釈

Q<sub>3</sub>:短距離秩序→最近接の原子間距離を反映したピーク

PP: 主に分子構造を反映したピーク(SiO₄ 四面体構造)

**FSDP:** first sharp diffraction peak (SiO<sub>2</sub>, GeO<sub>2</sub>, GeSe<sub>2</sub>, ZnCl<sub>2</sub>, etc)

不規則なガラス構造の中に分子構造(SiO₄)を超えた中距離の秩序構造が存在することを示唆 ~ガラスの秩序構造(FSDP)の構造的起源に関しては様々なモデルが提唱されている

圧縮による FSDPの 変化



・低温・高温圧縮によりガラスの秩序状態 (FSDP)の制御が可能

高温圧縮シリカガラスの新機能性材料への応用: ・高屈折率ガラス ・光損失の少ない光ファイバー(情報の大規模・長距離伝送)



1200°C 1000°C

> 800°C 600°C

400°C RT

pristine

https://www.kyoto-u.ac.jp/ja/researchnews/2020-12-25-0

RSC Adv., 2016,6, 19144-19149

#### X線、中性子回析:ガラスの3次元情報の取得が困難→機械学習分子動力学による構造解析

Keita Kobayashi, Masahiko Okumura, Hiroki Nakamura, Mitsuhiro Itakura, Masahiko Machida, Shingo Urata, and Kentaro Suzuya, Sci. Rep, 13 (2023) 18721.



**FSDP** 2.0 FSDP 2.0 減少 発達 1.5 1.5 ິ 0 0 1.0 0 0 0 1.0 通常ガラス (Exp1) 通常ガラス (Exp1) 0.5 0.5 低温圧縮 (Exp1) 高温圧縮 (Exp2) 通常ガラス (MLMD) 通常ガラス(MLMD) XRD XRD 低温圧縮 (MLMD) 高温圧縮 (MLMD) 0 0 Q [Å⁻¹] 12 2 6 10 12 14 0 4 0 2 6 8 10 14 4 Q [Å<sup>-1</sup>]

機械学習分子動力学により低温・高温圧縮によるFSDPの減少・増加を再現

Exp1 [Kono, Y. et al. Nat. Commun. 13, (2022).], Exp2 [Onodera, Y. et al.. NPG Asia Mater. 12, 85, (2020).]





・MLMDを使用した解析はFSDPの起源として「Si-O 共有ネットワークが作る準周期性」を支持

FSDPの様々なモデル

Periodicity of the quasi-crystalline [CaskellmP.H,et al (1996), Christie,J.K. et al (2004)] Layered structures [Phillips, J. et al (1981), Busse, L. E. et al (1981)] Cluster-like regions [Wright, A. C. (1985), Červinka, L. (1988)] Tetrahedral order of cations [Rui Shi. et al a (2019)] Chemical ordering [Blétry, J. (1990), Elliott, S. R. (1991)] Quasi-periodicity in network structure [Greaves, G (1985), Mei, Q. et al(2008), Kohara, S. et al (2014)]

・高温圧縮では何故FSDP(中距離秩序構造)は発達するのか?



## 機械学習分子動力学を用いた原子力材料研究の紹介

- ・粘土鉱物、セメント
  - ・カオリナイト、トバモライトに対する機械学習分子動力学
- •核燃料物質
  - ・酸化トリウムの高温物性
- 機能性材料
  - ・機械学習分子動力学によるシリカガラスの中距離構造解析

目標	□ 粘土鉱物・セメントへの放射性核種吸着・移動過程の詳細解明 □ ウラン、プルトニウムの高精度シミュレーション □ 規機能性材料の機能発現機構の解明
----	----------------------------------------------------------------------------------

ご清聴ありがとうございました