

令和3年度

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

マテリアルズ・インフォマティクスによる

核燃料開発

成果報告書

令和4年3月

国立大学法人 京都大学

本報告書は、文部科学省の原子力システム
研究開発事業による委託業務として、国立大
学法人 京都大学が実施した令和 2 年度-令
和 3 年度「マテリアルズ・インフォマティク
スによる核燃料開発」の成果を取りまとめた
ものです。

目次

概略	iv
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	
2.1 全体計画	2.1-1
2.2 各年度計画	2.2-1
3. 業務の実施内容及び成果	
3.1 ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの構築【R2-R3】	3.1-1
3.1.1 新しい機械学習モデルの構築と機械学習【R2】	3.1-1
3.1.2 学習済みの人工知能によるウラン化合物の熱伝導率予測【R3】	3.1-7
3.2 ウラン化合物の合成と特性評価（再委託先：大阪大学）【R2-R3】	3.2-1
3.2.1 希土類ボライドとウランボライドの合成と特性評価【R2-R3】	3.2-1
3.2.2 人工知能が予測した高熱伝導率ウラン化合物の合成と特性評価【R3】	3.2-10
3.3 ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの妥当性検証【R3】	3.3-1
3.4 研究推進【R2-R3】	3.4-1
4. 結言	4.1

表一覧

表 3.1-1	熱伝導率予測に影響した特徴量の重要度 [%]	3.1-3
表 3.1-2	各種データベースに収録されているウラン化合物一覧	3.1-4
表 3.1-3	高い熱伝導率を示すことが予想された化合物 (Materials Project)	3.1-5
表 3.1-4	300 K におけるウラン化合物の熱伝導率 Top20 と Bottom20 (改良モデル①)	3.1-9
表 3.1-5	300 K におけるウラン化合物の熱伝導率 Top20 と Bottom20 (改良モデル②)	3.1-12
表 3.2-1	LaB ₆ と CeB ₆ の格子定数と密度	3.2-3
表 3.2-2	UF ₃ B ₂ の格子定数と密度	3.2-9
表 3.2-3	USiNi の格子定数と密度	3.2-11
表 3.3-1	様々な機械学習手法を用いた熱伝導率予測の精度比較	3.3-1

図一覧

図 1-1	従来型の材料開発と MI による材料開発	1-1
図 2.1-1	Starrydata に収録されているデータ数の推移	2.1-1
図 2.1-2	既存の機械学習モデル (上) と本研究で構築する新しい機械学習モデル (下)	2.1-2
図 2.1-3	本業務の全体計画図	2.1-2
図 2.2-1	令和 2 年度の研究計画線表	2.2-1
図 2.2-2	令和 3 年度の研究計画線表	2.2-2
図 3.1-1	化学組成から周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度への展開例	3.1-1
図 3.1-2	決定木の例	3.1-2
図 3.1-3	Random Forest の例	3.1-2
図 3.1-4	熱伝導率の実測値と予測値	3.1-3
図 3.1-5	Materials Project に収録されているウラン化合物の熱伝導率の予測結果	3.1-5
図 3.1-6	U、UO ₂ 、UN、UC の熱伝導率の温度依存性 [3.1-9]	3.1-6
図 3.1-7	熱伝導率予測に利用する機械学習モデルの選定方法の変更点	3.1-8
図 3.1-8	熱伝導率の実測値と予測値 (改良モデル①)	3.1-8
図 3.1-9	Materials Project に収録されているウラン化合物の熱伝導率の予測結果 (改良モデル①)	3.1-9
図 3.1-10	学習に利用したデータの熱伝導率の温度依存性	3.1-10
図 3.1-11	熱伝導率の実測値と予測値 (改良モデル②)	3.1-11
図 3.1-12	Materials Project に収録されているウラン化合物の熱伝導率の予測結果 (改良モデル②)	3.1-11
図 3.2-1	LaB ₆ (左) と CeB ₆ (右) の試料外観	3.2-1
図 3.2-2	LaB ₆ 焼結試料の SEM 画像及び EDS マッピング像	3.2-2
図 3.2-3	CeB ₆ 焼結試料の SEM 画像及び EDS マッピング像	3.2-2

図 3.2-4	LaB ₆ と CeB ₆ の XRD パターン	3.2-3
図 3.2-5	LaB ₆ と CeB ₆ の熱伝導率の温度依存性	3.2-4
図 3.2-6	CeB _{4-l} (左) と CeB _{4-s} (右) の断面の写真	3.2-5
図 3.2-7	CeB _{4-l} の断面の SEM 観察画像と EDS マッピング像	3.2-5
図 3.2-8	CeB _{4-s} の断面の SEM 観察画像と EDS マッピング像	3.2-6
図 3.2-9	熱処理前後の CeB _{4-s} の XRD パターン	3.2-7
図 3.2-10	UF ₃ B ₂ 焼結試料の外観、1073 K 焼結 (左) と 1173 K 焼結 (右)	3.2-8
図 3.2-11	UF ₃ B ₂ 試料の XRD パターン	3.2-8
図 3.2-12	UF ₃ B ₂ 1073 K 焼結試料の SEM 観察画像と EDS マッピング	3.2-9
図 3.2-13	UF ₃ B ₂ 1173 K 焼結試料の SEM 観察画像と EDS マッピング	3.2-9
図 3.2-14	UF ₃ B ₂ の熱伝導率の温度依存性	3.2-10
図 3.2-15	USiNi 試料外観	3.2-11
図 3.2-16	USiNi 試料の XRD パターン	3.2-11
図 3.2-17	熱処理後の USiNi 試料の SEM 観察画像と EDS マッピング	3.2-12
図 3.2-18	USiNi 試料の熱伝導率	3.2-12
図 3.2-19	熱処理前 (左) と熱処理後 (右) の UNiSn 試料外観	3.2-13
図 3.2-20	UNiSn 試料の XRD パターン	3.2-14
図 3.2-21	熱処理後の UNiSn 試料の SEM 観察画像と EDS マッピング	3.2-14
図 3.2-22	UF ₃ B ₂ 及び USiNi と代表的なウラン化合物の熱伝導率	3.2-15
図 3.3-1	熱伝導率予測 (改良モデル②) に影響した特徴量の重要度 [%]	3.3-2
図 3.3-2	ケテラーの三角形 [3.3-2]	3.3-2
図 3.3-3	本研究で構築した機械学習モデルを用いた代表的なウラン化合物の熱伝導率予測	3.3-4

略語一覧

- EDS : Energy Dispersive X-ray Spectroscopy (エネルギー分散型 X 線分析装置)
- ICSD : Inorganic Crystal Structure Database (無機結晶構造データベース)
- MI : Materials Informatics (マテリアルズ・インフォマティクス)
- SEM : Scanning Electron Microscope (走査型電子顕微鏡)
- SPS : Spark Plasma Sintering (放電プラズマ焼結法)
- XRD : X-ray Diffraction (X 線回折)

概略

研究の背景

近年、材料科学と情報科学あるいはデータ科学が融合したマテリアルズ・インフォマティクス (MI) が注目されている。MI では、大規模な材料データを生成・収集し、機械学習をはじめとした情報科学技術を適用することで、材料探索や設計を効率化する。MI の発現により、材料開発にかかる時間の大幅な短縮や、これまで予想すらされていなかった新材料の発見などが実現している。しかしながら、原子力分野の材料研究、すなわち、核燃料や原子炉材料の開発研究においては、国内外を問わず、MI の流れは届いていない。

本研究は、実験研究への依存度が高い核燃料研究に、他分野で実績が積み重ねられつつある最先端の MI を適用するものである。従来からある「実験研究と計算科学の単なる併用」から一歩踏み出し、全く別の地点から、情報科学やデータ科学の力を借りて、新しい核燃料を開発しようとするものである。このような試みは、国内外を通じて、過去に一切前例はない。

解決すべき課題

核燃料にとって熱伝導率は最重要物性値である。原子炉をできるだけ高温かつ効率よく運転するためには、燃料自体に高い熱伝導率が要求される。熱伝導率が高ければ、燃料内部で発生した熱を効率よく外に取り出すことができるからである。現在の軽水炉に用いられている二酸化ウラン燃料の最大の弱点は、その低い熱伝導率にあるといっても過言ではない。そのため、高い熱伝導率を有するウラン化合物を発見することは、新しい核燃料開発に直結する。

本研究の目的

このような背景のもと、本研究では、ビッグデータの機械学習により、核燃料に適した高熱伝導率ウラン化合物を発見することを目的とする。目標とする熱伝導率の目安としては、室温から 1000 °C 程度までの温度域において、 $50\sim 100 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (二酸化ウランの約 10 倍) とする。

本研究の実施内容

本研究を実施するに際して、大規模ビッグデータが必要となる。これに関しては、本研究の分担実施者である熊谷が独自に作り上げた実験データに基づく各種材料の物性値ビッグデータ (Starrydata と称する) を用いる。これまでに、Starrydata の物性値ビッグデータをもとに、入力を化学組成と温度、出力を熱伝導率として人工知能に学習させることで、各種熱電材料の熱伝導率を高い精度で予測できる機械学習モデルの構築に成功している。本研究は、この手法を一般化して再構築することで、ウラン化合物を含むあらゆる物質に対して、その熱伝導率を高い精度で予測することを試みる。

現有の機械学習モデルでは、化学組成を入力し熱伝導率を出力する。ただし、現状は、化学組成に基づいた学習であるため、あくまでも、物性値ビッグデータに収録されている元素で構成された物質に対してのみ、高精度な予測ができるものとなっている。そこで、本研究では、化学組成を構成元素の「周期」、「族」、「大きさ」、「重さ」、「電気陰性度」というような、一般的かつ熱伝導率に関係する基礎情報に展開し、これらを入力情報として人工知能に学習させる。これにより、人工知能が学習に用いていない系、すなわち、ウラン化合物を含むあらゆる物質に

ついて、その熱伝導率を高い精度で予測できるようになる。これを我々は新しい機械学習モデルと呼んでいる。

以上を踏まえて、本研究では、以下の四つの項目の研究を実施する。

- (1) ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの構築
- (2) ウラン化合物の合成と特性評価
- (3) ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの妥当性検証
- (4) 研究推進

本研究の成果（特に世界初、国内初等アピールすべき成果）

本研究を通じて、人工知能の機械学習による高熱伝導率ウラン化合物の網羅的探索に、世界で初めて成功した。これにより、高い熱伝導率を示しうるウラン化合物として、 UYb_3 、 USiNi 、 UNiSn 、 UCuSn などを提案した。さらに、提案だけに留まることなく、提案されたウラン化合物のいくつかを実際に合成し、その熱伝導率を実験的に評価した。熱伝導率の実測値は、最大で1200 Kにおいて約 $18 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ （同温度で UO_2 の熱伝導率の約7倍）であり、目標値である二酸化ウランの約10倍には届かなかったものの、人工知能の機械学習の高い妥当性を裏付けるものとなった。このような一連の研究、すなわち、機械学習と実験を高度に組み合わせた研究は、広く材料科学・情報科学の分野を見渡してもほとんど前例はなく、特に、原子力分野に限れば、国内外問わず唯一無二のものである。

今後の展望、将来の見通し

今回、核燃料に適したウラン化合物の条件として、高い熱伝導率に着目して研究を実施した。一方で、実際に核燃料として使っていくことを考えると、熱伝導率以外にも、融点、化学的安定性、ウラン密度、中性子吸収断面積、被覆管材料との両立性などの諸特性も重要なパラメータとなる。また、良質な燃料体（ペレットやスラグ等）を精度よく大量に合成できるか否か、といった点も実用上重要となる。従って、本研究の今後の展望としては、今回提案したウラン化合物について、熱伝導率以外の諸特性を取得し、総合的な視点から核燃料としての適用性を検討する、といったことがあげられる。

核燃料は、一般的な物質と比べると、取り扱いに制限がかかる特殊な物質である。とりわけ、照射された後の照射済燃料に至っては、ホットセルの中でマニピュレータを使って遠隔で操作する、というような厳重で困難な取り扱いが要求される。そのため、できるだけ少ない実験データをもとに、できるだけ多くの情報（物性値等）を引き出すことが、核燃料研究における永遠の目標でもある。MIはこの目標を達成できる可能性のある手法であり、本研究によって、MIと核燃料研究とを、部分的ではあるが連結することに成功した。今後は、ウラン化合物や熱伝導率といった個別の要素に留まることなく、広く核燃料研究全般を対象として、MIを適用・活用していくことが重要となる。

1. はじめに

近年、材料科学と情報科学あるいはデータ科学が融合したマテリアルズ・インフォマティクス (MI) が注目されている。MI では、大規模な材料データを生成・収集し、機械学習をはじめとした情報科学技術を適用することで、材料探索や設計を効率化する。一例を挙げると、新材料開発の現場において、一つ一つ実験を積み重ねることで所望の性能を持つ材料を見出すというのが、従来型の研究の進め方である。一方、ビッグデータを機械学習することで所望の性能を持つ材料を見出すというのが、代表的な MI の手法である (図 1-1)。MI の発現により、材料開発にかかる時間の大幅な短縮や、これまで予想すらされていなかった新材料の発見などが実現している。こういった MI の潮流は、磁性材料、熱電材料、ワイドバンドギャップ半導体、有機半導体などを対象とした最先端の材料研究分野で主流となりつつある。しかしながら、原子力分野の材料研究、すなわち、核燃料や原子炉材料の開発研究においては、国内外を問わず、MI の流れは届いていない。

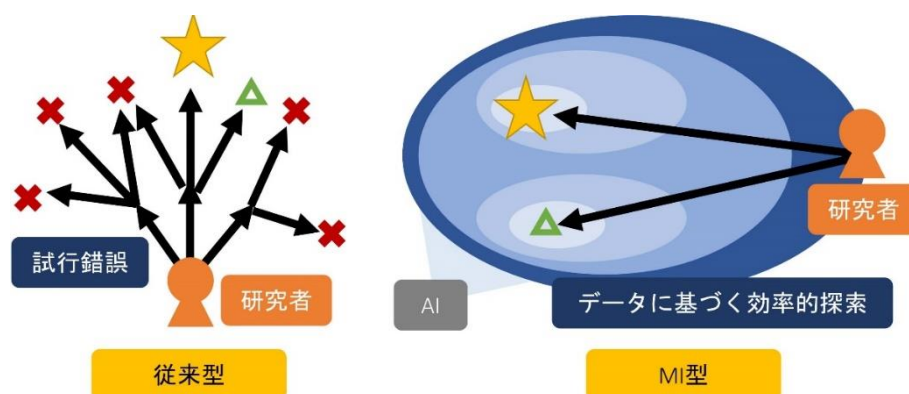


図 1-1 従来型の材料開発と MI による材料開発

最近の原子力分野に目を向けると、近年、小型モジュール炉に代表される新しいタイプの原子炉が続々と提案されている一方で、そういった新しい原子炉で使用される核燃料についての提案は殆どなされていない。軽水炉で十分な実績がある二酸化ウランや高速炉燃料として開発されてきた混合酸化物燃料をそのまま利用すれば安心感が高いが、大きなブレークスルーは望めない。今後開発されようとしている革新的な新型炉に対して、既存の酸化物よりも核燃料として最適なウラン化合物はきっと存在するだろう。例えば、核燃料にとって熱伝導率は最重要物性値であるものの [1-1]、現在の軽水炉に用いられている二酸化ウラン燃料の熱伝導率は、決して高いとは言えない。そのため、高い熱伝導率を有するウラン化合物を発見することは、新しい核燃料開発に直結する。

ところが、核燃料で新材料を開発しようとなったとき、核燃料物質を取り扱うことができる施設の制約や規制対応、それらに起因する予算やマンパワーの不足等が障壁になるという事実がある。2000 年前後から、化学平衡計算 [1-2] や分子動力学計算 [1-3]、最近では第一原理計算といったいわゆる計算科学的な要素を組み込んだ核燃料研究もなされてきてはいるが、残念ながらゲームチェンジと呼べるだけの変革には至っていない。核燃料研究において真のゲームチェンジを果たすためには、実験研究と計算科学の単なる併用ではなく、これまでにない思い切った改革が必要である。

このような背景のもと、本研究では、実験研究への依存度が高い核燃料研究に、他分野で実績が積み重ねられつつある最先端の MI を適用することを試みる。具体的には、ビッグデータの機械学習により、核燃料に適した高熱伝導率ウラン化合物を発見することを目的とする。目標とする熱伝導率の目安としては、室温から 1000 °C 程度までの温度域において、50~100 Wm⁻¹K⁻¹ (二酸化ウランの約 10 倍) とする。

本研究は、従来からある「実験研究と計算科学の単なる併用」から一步踏み出し、全く別の地点から、情報科学やデータ科学の力を借りて、新しい核燃料を開発するものである。このような試みは、国内外を通じて、過去に一切前例はない。本研究は、停滞していた核燃料の開発研究を前進させるだけでなく、原子力分野の材料研究の在り方そのものを根底から変えうる可能性を有している。

参考文献

- [1-1] K. Kurosaki, State-of-the-Art Report on Multi-Scale Modelling of Nuclear Fuels, Chapter 23, OECD/NEA, Published in 2014.
- [1-2] K. Kurosaki *et al.*, *Prog. Nucl. Sci. Technol.* **2**, 5 (2011).
- [1-3] K. Kurosaki *et al.*, *J. Nucl. Mater.* **294**, 160 (2001).

2. 業務計画

2.1 全体計画

本研究では、ビッグデータの機械学習により、核燃料に適した高熱伝導率ウラン化合物を発見することを目的としている。この研究を実施するためには、大規模ビッグデータが必要となる。これに関しては、本研究の分担実施者である熊谷が独自に作り上げた実験データに基づく各種材料の物性値ビッグデータ（Starrydataと称する）を用いる [2.1-1]。Starrydataには、おもに、熱電材料をはじめとする半導体材料の物性データ（電気伝導率、熱伝導率等）が収録されている。現在も、データ収集を進めており、これらの数値は日々増加している。Starrydataは、システム及び収録された全データを無料公開している。令和2年6月時点で、5,688論文、30,390試料、93,265物性値データの収集に成功している（図2.1-1）。

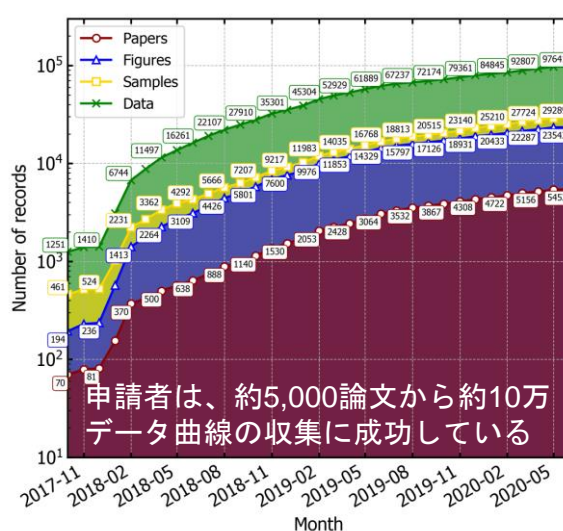


図 2.1-1 Starrydata に収録されているデータ数の推移

これまでに、Starrydata の物性値ビッグデータをもとに、入力を化学組成と温度、出力を熱伝導率として人工知能に学習させることで、各種熱電材料の熱伝導率を高い精度で予測できる機械学習モデルの構築に成功している [2.1-2]。本研究は、この手法を一般化して再構築することで、ウラン化合物を含むあらゆる物質に対して、その熱伝導率を高い精度で予測することを試みる。

現有の機械学習モデルでは、化学組成を入力し熱伝導率を出力する。ただし、現状は、化学組成に基づいた学習であるため、あくまでも、物性値ビッグデータに収録されている元素で構成された物質に対してのみ、高精度な予測ができるものとなっている。そこで、本研究では、化学

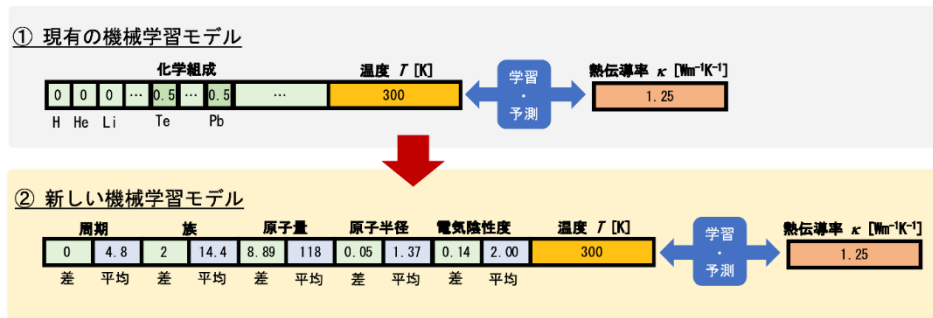


図 2.1-2 現有の機械学習モデル（上）と本研究で構築する新しい機械学習モデル（下）

以上を踏まえて計画した本研究の内容（実施項目）、計画、体制を、図 2.1-3 に示す。研究は、京都大学と大阪大学で実施する。京都大学は研究全体のマネジメントとMIを担う。大阪大学はウラン化合物の合成と特性評価を担う。

項目	年度	
	令和2年度	令和3年度
(1) ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの構築		
①新しい機械学習モデルの構築と機械学習	Starrydata格納物質の化学組成の展開、機械学習	
②学習済みの人工知能によるウラン化合物の熱伝導率予測		ウラン化合物のリスト化、化学組成の展開、機械学習
(2) ウラン化合物の合成と特性評価（再委託先：大阪大学）		
①希土類ボライドとウランボライドの合成と特性評価	希土類ボライドの合成と特性評価	ウランボライドの合成と特性評価
②人工知能が予測した高熱伝導率ウラン化合物の合成と特性評価	人工知能が見出した高熱伝導率ウラン化合物の合成と特性評価	
(3) ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの妥当性検証		機械学習モデルの妥当性検証
(4) 研究推進	推進会議	推進会議

図 2.1-3 本業務の全体計画図

項目(1)では、ウラン化合物を含むあらゆる物質に対して、その熱伝導率を高い精度で予測する新しい機械学習モデルを構築する。この機械学習モデルを用いて世の中に存在しうる全てのウラン化合物の熱伝導率を予測し、その結果をもって、核燃料に適した新しい高熱伝導率ウラン化合物を発見・提案する。

項目(2)では、提案されたウラン化合物を、大阪大学において実際に合成し、その熱伝導率を評価する。人工知能が新しいウラン化合物を探索している間は、事前検討により高熱伝導率ウラン化合物になりうるものが予測されたウランボライドの熱伝導率評価を試みる。ウランボライドに対して実験的に得られた熱伝導率のデータは、人工知能による熱伝導率予測の参照解の一つとする。

項目(3)では、人工知能が導いた結果と実験結果と比較・検討することで、本研究で構築した新しい機械学習モデルの妥当性を検証する。

項目(4)では、研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

参考文献

[2.1-1] Y. Katsura, M. Kumagai et al., *Sci. Technol. Adv. Mater.* 20, 511 (2019).

[2.1-2] M. Kumagai et al., *The 38th International Conference on Thermoelectrics (ICT2019)*, Korea, 2019.

2.2 各年度計画

各年度の計画の概要は、以下の通りである。

令和2年度の研究計画

令和2年度の研究計画線表を、図2.2-1に示す。

区 分	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
(1)ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの構築												
①新しい機械学習モデルの構築と機械学習									←	→		
(2)ウラン化合物の合成と特性評価（再委託先：大阪大学）												
①希土類ボライドとウランボライドの合成と特性評価									←	→		
(3)研究推進									←	→		

図2.2-1 令和2年度の研究計画線表

項目(1)ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの構築においては、①新しい機械学習モデルの構築と機械学習を実施する。具体的には、Starrydataの物性値ビッグデータに収録されている物質について、その化学組成を、それを構成する元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度に展開する。その後、Starrydataの物性値ビッグデータをもとに、入力を構成元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度、出力を熱伝導率として人工知能に学習させる。

項目(2)ウラン化合物の合成と特性評価においては、①希土類ボライドとウランボライドの合成と特性評価を実施する。本項目は、大阪大学で実施する。ここでは、事前検討の結果、高熱伝導率ウラン化合物の候補として、ウランボライド（ウラン-ホウ素化合物）を選定している。令和2年度は、希土類元素のボライドを対象とした実験を通じて、ウランボライドの合成と特性評価の準備を整える。

項目(3)研究推進においては、研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

令和3年度の研究計画

令和3年度の研究計画線表を、図2.2-2に示す。

項目(1)ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの構築においては、①学習済みの人工知能によるウラン化合物の熱伝導率予測を実施する。具体的には、世の中に存在する全てのウラン化合物を、既存のデータベースから収集する。収集したウラン化合物について、その化学組成を構成元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度に展開してリスト化する。令和2年度に学習済みの人工知能とリスト化したウラン化合物の情報を使って、世の中に存在する全てのウラン化合物の熱伝導率を網羅的に予測する。この結果

をもって、核燃料に適した新しい高熱伝導率ウラン化合物を発見・提案する。

項目(2)ウラン化合物の合成と特性評価においては、①希土類ボライドとウランボライドの合成と特性評価と②人工知能が予測した高熱伝導率ウラン化合物の合成と特性評価を実施する。前者では、令和2年度から引き続き、希土類ボライドの熱伝導率を実験的に評価する。高熱伝導率ウラン化合物の一つの候補であるウランボライド(ウラン-ホウ素化合物)を合成し、その熱伝導率を実験的に評価する。後者では、人工知能が予測した高熱伝導率ウラン化合物を合成し、その熱伝導率を実験的に評価する。本項目は、大阪大学で実施する。

項目(3)ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの妥当性検証においては、機械学習側の情報(入力と出力の関係等)と実験側の情報(結晶構造、熱伝導率等)を総合的に比較・検討することで、本研究で構築した機械学習モデルの妥当性を検証する。

項目(4)研究推進においては、研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合わせや会議等を開催する。

区 分	4	5	6	7	8	9	10	11	12	1	2	3
(1)ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの構築												
①学習済みの人工知能によるウラン化合物の熱伝導率予測	←											→
(2)ウラン化合物の合成と特性評価(再委託先:大阪大学)												
①希土類ボライドとウランボライドの合成と特性評価	←					→						
②人工知能が予測した高熱伝導率ウラン化合物の合成と特性評価	←											→
(3)ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの妥当性検証							←					→
(4)研究推進	←											→

図 2.2-2 令和3年度の研究計画線表

3. 業務の実施内容及び成果

3.1 ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの構築【R2-R3】

3.1.1 新しい機械学習モデルの構築と機械学習【R2】

ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルを構築するために、(1)入力ベクトルの設計、(2)機械学習手法の選定、(3)学習・予測精度検証を行った。

(1)入力ベクトルの設計

本研究では、人工知能の学習データとして Starrydata [3.1-1]の物性値ビッグデータを利用した。このビッグデータは、主に熱電材料をはじめとした無機材料の物性値を対象としたものであり、令和2年6月時点で5,688論文、30,390試料、93,265物性値データが収録されている。ところが、これらの中にウラン化合物の物性値は含まれていない。そのため、学習データに含まれていない物質の物性値を外挿的に予測できるような入力ベクトルの設計が必要となる。

本研究では、学習データに収録されている物質の化学組成を「元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度の平均と差」という一般化した特徴ベクトルとして展開するプログラムを実装した。ここで、構成元素の周期と族は周期表からそのまま取得した。一方、構成元素の大きさ、重さ、電気陰性度は、物質解析のためのpythonライブラリである pymatgen [3.1-2]から取得した。化学組成から周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度への展開の様子を、鉛テルル (PbTe) を例にとって、図 3.1-1 に示す。平均値は、各元素の原子比率をもとに計算し、差は含有元素の中での最大値から最小値を引く形で計算した。それにより、化学組成を長さ 10 の特徴ベクトルに変換することができた。また、特定の温度での熱伝導率を予測する形にするため、得られた特徴ベクトルに温度を付与した長さ 11 のベクトルを入力ベクトルとした。

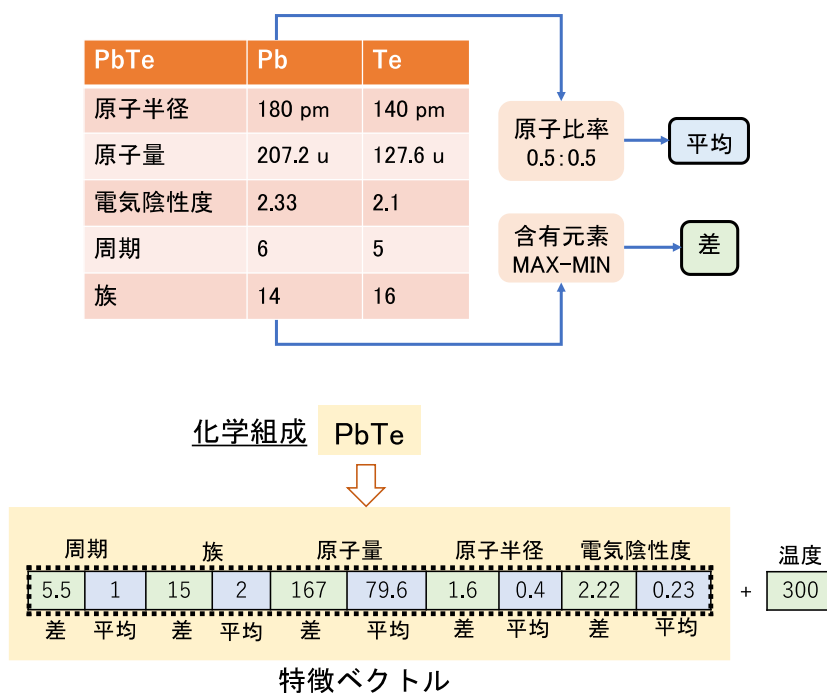


図 3.1-1 化学組成から周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度への展開例

(2) 機械学習手法の選定

本研究では、機械学習として Scikit-Learn ライブラリに実装されている Random Forest [3.1-3] を使用した。Random Forest は、アンサンブル学習アルゴリズムの一つであり、学習データからツリー状の条件式を作る手法である決定木 (図 3.1-2) を複数組み合わせ、汎化性能を向上させた手法である (図 3.1-3)。全学習データの三分の二から、Bootstrap 法 [3.1-4] を用いて複数のサブデータを抽出する。一つのサブデータの大きさは、原則として学習データの大きさ (全体の三分の二) と同じになるように設定する。また、各サブデータにおける全特徴変数の一部をランダムに選択して決定木を成長させ、得られた複数の決定木の予測値を平均することで最終的な予測結果とする。本研究で採用した理由は、この手法がノイズやオーバーフィッティングに対して頑健であるだけでなく、学習モデルにおける各特徴変数の重要度が算出できるためである。すなわち、入力ベクトルとして選定した特長が、それぞれの程度熱伝導率に影響を及ぼしているかを評価できる。

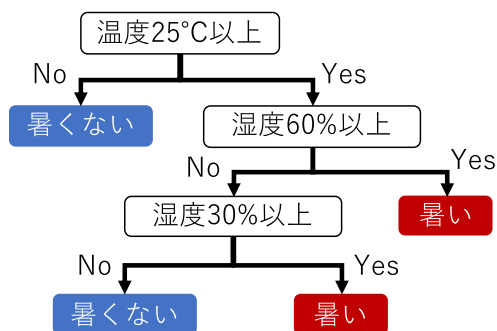


図 3.1-2 決定木の例

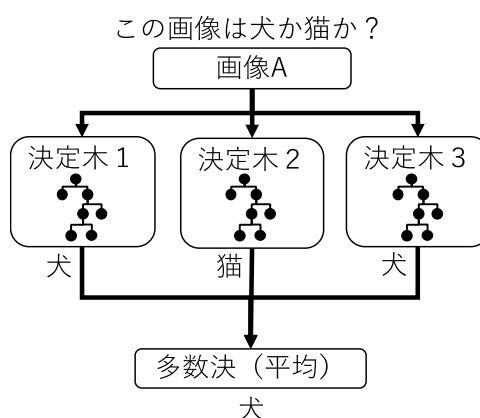


図 3.1-3 Random Forest の例

(3) 学習と予測精度検証

本研究で設計・選定した入力ベクトルと機械学習手法を利用して、学習ならびに予測精度の検証を行った。予測精度は、回帰モデルの評価に一般に利用される決定係数 (R^2) を

利用し、五分割交差検証法 [3. 1-5]によって評価した。

図 3. 1-4 は、五分割交差検証のうち最も R^2 値が高かった予測結果を示している。x 軸が熱伝導率の実測値、y 軸が予測値であり、赤色で示した予測値のプロット点が $x = y$ の線に重なっているほど予測精度が高いことを表している。五分割交差検証法の結果、 R^2 値は五回の試行において 0.93 と高い値を示した。この結果は、Starrydata の物性値に対して高い精度 ($R^2=0.93$) で熱伝導率が予測できたことを意味している。

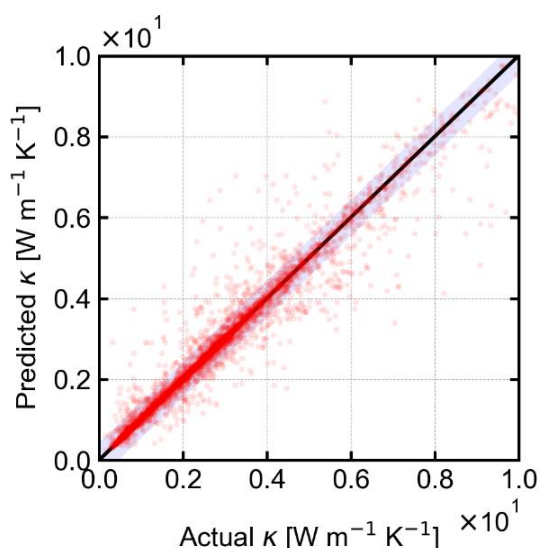


図 3. 1-4 熱伝導率の実測値と予測値

Random forest は、学習モデルにおける各特徴変数の重要度が算出できる。そこで、構成元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度の平均及び差の重要度を表 3. 1-1 に示す。周期、電気陰性度、原子半径の平均の重要度が大きく、熱伝導率の予測に大きく影響していることが学習によって明らかになった。周期は、元素の大きさや重さの情報等を含んだ情報であるため、重要な特徴変数として判断されたと考えられる。また、電気陰性度の平均は、ケテラーの三角形 [3. 1-6]の x 軸にも利用されているように、共有結合性と金属結合性のいずれが優位であるかのおおよその推測の指標となる。そのため電気陰性度の平均は、原子間の結合力の観点から、熱伝導率の予測に寄与したのではないかと考えている。

表 3. 1-1 熱伝導率予測に影響した特徴量の重要度 [%]

	原子半径	原子量	電気陰性度	族	周期	温度
平均	11.8	10.8	12.6	9.1	17.9	5.7
差	9.5	6.5	6.0	2.1	8.0	

以上、本項目において、Starrydata の物性値ビッグデータに収録されている物質について

て、その化学組成を、それを構成する元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度に展開した。その後、Starrydataの物性値ビッグデータをもとに、入力を構成元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度、出力を熱伝導率として人工知能に学習させた。その結果、Starrydataの物性値ビッグデータに対して高い精度 ($R^2=0.93$) で熱伝導率を予測できる機械学習モデルの構築に成功した。また、構成元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度のうち、周期、電気陰性度、原子半径が、熱伝導率予測に大きく影響していることが学習によって確認できた。

次に、令和3年度実施研究に備え、新しく構築した機械学習モデルを用いて、ウラン化合物の熱伝導率予測を試行した。以下、得られた結果の詳細を報告する。

ここでは、前節で構築した機械学習モデルを利用してウラン化合物の熱伝導率を予測するために、(1)様々なデータベースからのウラン化合物の取得と、(2)取得したウラン化合物の熱伝導率予測を実施した。

(1) 様々なデータベースからのウラン化合物の取得

本研究では、世の中に存在する全てのウラン化合物のリストを作成するために、第一原理計算データベースである Materials Project [3.1-7]ならびに無機結晶構造データベース ICSD [3.1-8]の二つの大規模データベースから、ウラン化合物のみを抽出するプログラムを実装した。その結果、Materials Project から 951 種類、ICSD から 1520 種類のウラン化合物を取得した。表 3.1-2 に、各データベースに収録されているウラン化合物の一部を示す。

表 3.1-2 各種データベースに収録されているウラン化合物一覧

データベース	ウラン化合物一覧
Materials Project	Ba ₂ U Zn O ₆
	U (Si Ir) ₂
	U Si ₃
	Ce ₂ U Te ₄
	CS ₄ U ₅ O ₁₇
	… (全 951 種類)
ICSD	((C ₂ H ₅) ₄ N) ₄ (U O ₂ Cl ₄) (Cu Cl ₄)
	CS ₁₁ Eu ₄ (U O ₂) ₂ (P ₂ O ₇) ₆ (P O ₄)
	C _{32.01} H ₂₉ N S _{1.39} U
	C ₂₆ H ₃₂ N ₄ O ₁₀ U ₂
	Ni U O ₂ F ₄ (H ₂ O) ₇
	… (全 1520 種類)

(2) 熱伝導率の予測

(1)で取得したウラン化合物のリストを利用し、前節で構築した機械学習モデルを用い

て熱伝導率を予測した。結果の一例として、Materials Project から取得したウラン化合物の熱伝導率の予測結果を、図 3.1-5 に示す。また、そのウラン化合物リストの中で高い熱伝導率を示した物質を、表 3.1-3 に示す。

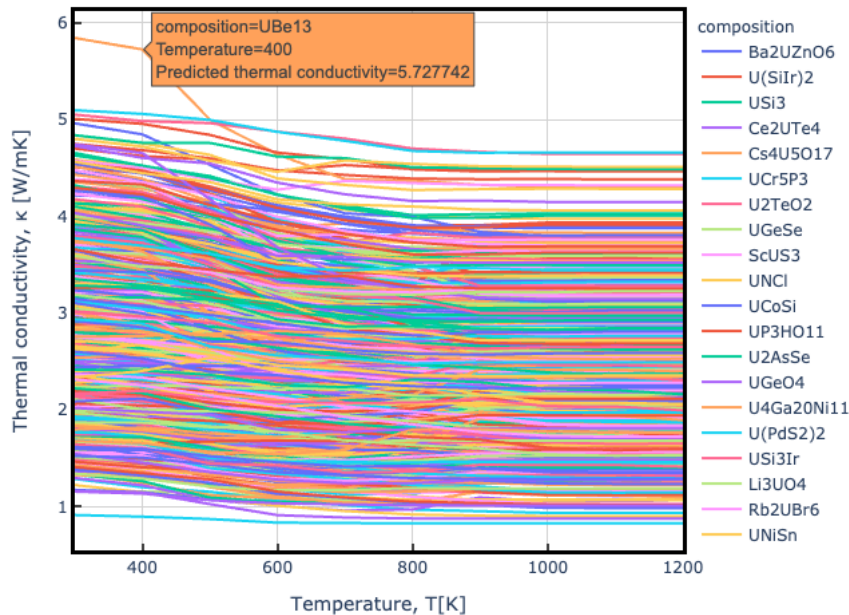


図 3.1-5 Materials Project に収録されているウラン化合物の熱伝導率の予測結果

表 3.1-3 高い熱伝導率を示すことが予想された化合物 (Materials Project)

データベース	ウラン化合物	熱伝導率 (@300 K) [W/mK]
Materials Project	UBe ₁₃	5.8
	UCo ₅ Si ₃	5.1
	U ₆ Co ₃₀ Si ₁₉	5.1
	UFe ₃ B ₂	5.0

予測された熱伝導率は、最大 $5.8 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 、最小 $0.88 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ であった。図 3.1-6 に示すように、金属ウラン (U) や炭化ウラン (UC) は、300 K において $20 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 以上の値を示すことが報告されているにもかかわらず、予測ではそれぞれ $4.3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (U)、 $3.1 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (UC) であった。また、予測された熱伝導率の温度依存性も、室温から 1200 K の温度範囲で一律減少する結果となった。これは、学習データに利用した Starrydata の熱伝導率のほとんどが $10 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 以下であり、かつ、その温度依存性も温度上昇に伴って減少するものが多かったためであると考えている。すなわち、現在の機械学習モデルでは、学習データの範囲を超える外挿的な熱伝導率の絶対値の予測ができなかったと考えられる。

一方で、U、UO₂、UN、UC の予測された熱伝導率は、300 K において、 $4.3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (U) > $3.1 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (UC) > $2.9 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (UN) > $2.1 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (UO₂) であり、熱伝導率の値の相対

的な順序は正しい、すなわち、熱伝導率の定性的な予測はできていそうであることが確認できた。

今回の結果は、学習データの範囲内で、構成元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度と熱伝導率との関係性を学習し、そこで得た知見をもとに、人工知能が、様々なウラン化合物の熱伝導率の大小の相対的な順序を提示したものである。本研究の第一の目的は、高い熱伝導率を有するウラン化合物を探索することにある。ゆえに、今回の結果は、その目的に対しては、一定の成果を与えたものであると言える。しかしながら、今回の予測結果の妥当性を検証するうえでも、今後、熱伝導率の絶対値の予測まで踏み込むべきであると考えている。令和2年度に試行した熱伝導率予測の結果をもとに、令和3年度は、定量性も加味したより精度の高い熱伝導率予測に取り組みたい。具体的には、令和2年度に実施するに至らなかった ICSD に収録されているウラン化合物に対する熱伝導率予測を進めるとともに、機械学習モデルの高度化を試みる。機械学習の高度化の具体策としては、①学習に用いる物性データベースの拡充と②機械学習の手法の変更、の二つを試みる。前者に関しては、熱伝導率の低い熱電材料の情報が主に格納されている既存データベースに対して、各種高熱伝導率材料を含む様々な材料の物性を収集し追加することを考えている。後者に関しては、現在採用している Random Forest に代わる新たな機械学習手法の取入れを考えている。令和3年度、これらを実施することで、より精度の高い機械学習モデルの構築とそれを用いた核種ウラン化合物の定量的熱伝導率予測を実施することを考えている。

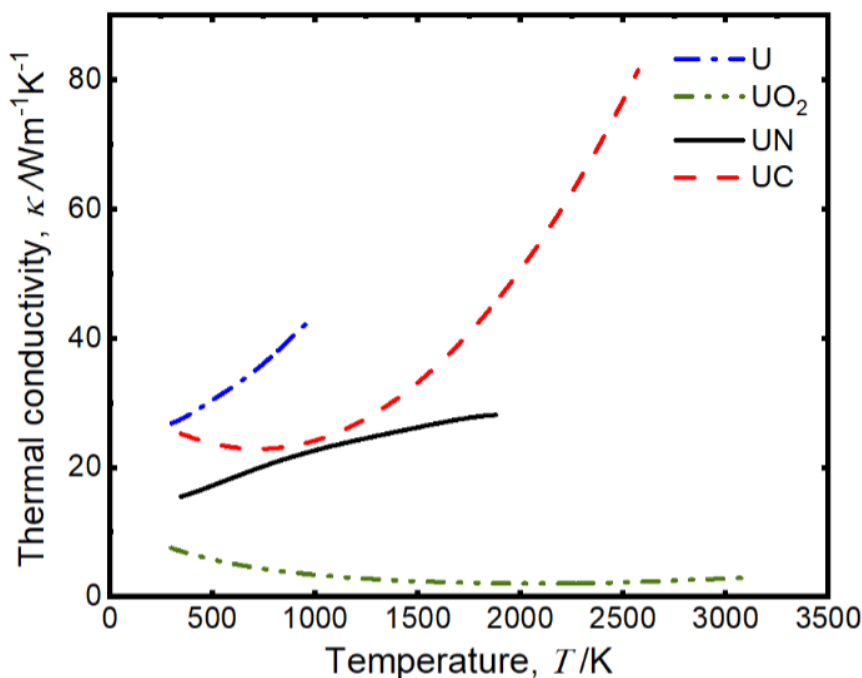


図 3.1-6 U、UO₂、UN、UC の熱伝導率の温度依存性 [3.1-9]

以上、本項目において、世の中に存在する全てのウラン化合物を、既存のデータベースから収集し、その化学組成を構成元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度に展開し

てリスト化した。次いで、学習済みの人工知能とリスト化したウラン化合物の情報を使って、世の中に存在しうる全てのウラン化合物の熱伝導率を網羅的に予測した。予測結果は定量的な点で課題はあるものの、本研究により、高熱伝導率ウラン化合物になりうる一連の物質群を提示することができた。今後、機械学習に供する物性値データベースを拡充したり、機械学習の手法を現在採用している Random Forest から別の手法に変更したりすることで、定性的にも定量的にもより正確に、ウラン化合物の熱伝導率予測を試みる。

参考文献

- [3.1-1] Y. Katsura, M. Kumagai *et al.*, *Sci. Technol. Adv. Mater.* **20**, 511 (2019).
- [3.1-2] S. P. Ong *et al.*, *Comput. Mater. Sci.* **68**, 314 (2013).
- [3.1-3] L. Breiman, *Mach. Learn.* **45**, 5 (2001).
- [3.1-4] B. Efron, *Ann. Stat.* **7**, 1 (1979).
- [3.1-5] S. Arlot, A. Celisse, *Stat. Surv.* **4**, 40 (2010).
- [3.1-6] T. L. Meek and L. D. Garner, *J. Chem. Educ.* **82** 325 (2005).
- [3.1-7] A. Jain, S.P. Ong *et al.*, *APL Mater.* **1**, 011002 (2013).
- [3.1-8] NIST Inorganic Crystal Structure Database, NIST Standard Reference Database Number 3, National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg MD, 20899, DOI: <https://doi.org/10.18434/M32147>, (retrieved 2021.3.29).
- [3.1-9] 黒崎 健、日本原子力学会誌、63, 669 (2021).

3.1.2 学習済みの人工知能によるウラン化合物の熱伝導率予測【R3】

世の中に存在しうる全てのウラン化合物を、既存のデータベースから収集した。収集したウラン化合物について、その化学組成を構成元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度に展開してリスト化した。

令和 2 年度に学習済みの人工知能とリスト化したウラン化合物の情報を使って、世の中に存在しうる全てのウラン化合物の熱伝導率を網羅的に予測した。この結果をもって、核燃料に適した新しい高熱伝導率ウラン化合物を発見・提案した。

令和 3 年度に実施した研究により得られた成果を以下に示す。

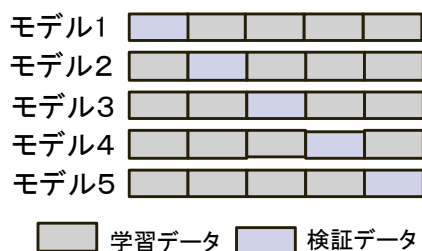
令和 2 年度の機械学習モデルにより、高い熱伝導率を有するウラン化合物の網羅的な探索に関する一定の成果を得た。しかしながら、熱伝導率の定量的な値を予測するまでには至らなかった。そのため令和 3 年度は、以下の 2 つの改良を行った：(1)機械学習モデルの改良、(2)高熱伝導率材料に関する学習データの拡充。各改良を行うごとに性能評価およびウラン化合物の網羅的な熱伝導率の予測を行った。

(1) 機械学習モデルの改良：改良モデル①

令和 2 年度の特長ベクトルも化学組成と構成元素の特徴に基づいたベクトルを構築したが、単体元素の場合が考慮できていなかった。そこで単体元素については、その元素の周期、族、大きさ、重さ、電気陰性度のそのままの値が平均となり、差が 0 となる特徴ベクトルとして生成されるように改良した。

また令和2年度は、図 3.1-7 示すように 5 分割交差検証で生成される 5 種類のモデルのうち最も高い精度を示した機械学習モデルを熱伝導率予測に使用した。しかしその場合、全データの 5 分の 1 のデータが評価のためのデータとして利用されるため、学習に利用されない。そこで、熱伝導率の網羅的な予測に利用する最終的な機械学習モデルは、学習に利用できる全てのデータで学習したモデルを採用した。

令和2年度のモデル選択



熱伝導率の
網羅的予測に使用

令和3年度のモデル選択



熱伝導率の
網羅的予測に使用

図 3.1-7 熱伝導率予測に利用する機械学習モデルの選定方法の変更点

図 3.1-8 は、五分割交差検証のうち最も R^2 値が高かった予測結果を示している。x 軸が熱伝導率の実測値、y 軸が予測値であり、赤色で示した予測値のプロット点が $x = y$ の線に重なっているほど予測精度が高いことを表している。その結果、検証データのほとんどが対角線に分布していることが確認でき、予測精度が高いことが分かる。決定係数 R^2 の平均値は 0.95 と高精度であった。

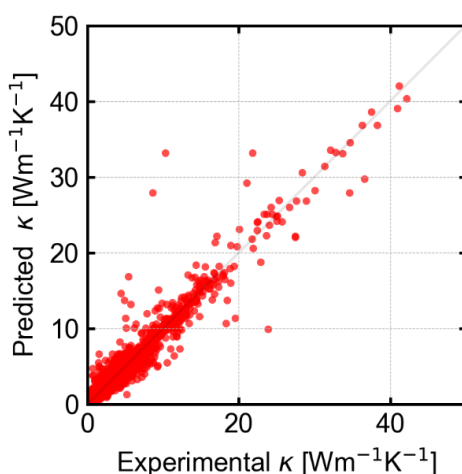


図 3.1-8 熱伝導率の実測値と予測値 (改良モデル①)

学習に利用できる全てのデータで学習した最終的な機械学習モデルを使用し、Materials Project に含まれる 951 種類のウラン化合物 (不安定なものも含む) の熱伝導

率を予測した結果を図 3.1-9 に示す。予測されたウラン化合物の熱伝導率は、ほとんどが $20 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 以下であり、最大が約 $50 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ であった。この結果は、令和 2 年度の図 3.1-5 と比較して、予測可能な熱伝導率の範囲を広げることができ、熱伝導率の定量的な予測が改善されていることを示している。

表 3.1-4 は、熱伝導率を予測した全ウラン化合物のうち、300 K での熱伝導率が高い材料 20 種類と熱伝導率が低い材料 20 種類を示している。熱伝導率が高いと予測された材料は、ほとんどが軽い元素との組み合わせであることが確認できる。一方熱伝導率が低いと予測された材料は、Te や Ta、Hg 等の重い元素を含んでいることが確認できる。

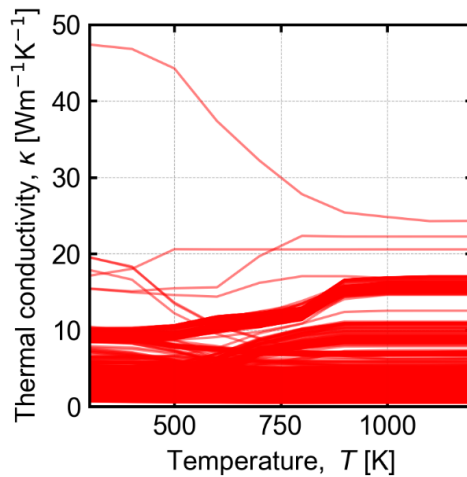


図 3.1-9 Materials Project に収録されているウラン化合物の熱伝導率の予測結果 (改良モデル①)

表 3.1-4 300 K におけるウラン化合物の熱伝導率 Top20 と Bottom20 (改良モデル①)

Top20	Bottom20
U	U(PS ₃) ₂
U ₄ BiO ₁₀	UCu ₂ (PO ₅) ₂
K ₂ UCr(IO ₆) ₂	UHg ₃ (TeCl ₃) ₂
Na ₄ U(MoO ₄) ₄	UTa ₂ S ₆ Cl ₆ O
Yb ₃ U	UBr ₄
U(GaFe) ₆	UBr ₅
UBe ₁₃	UHg ₄ (AsCl ₃) ₂
ZrU ₉ O ₂₀	UBr ₃
USiNi	UP ₂ O ₇
UCu ₅	Yb ₁₁ (U ₂ S ₁₁) ₂
U(FeGe) ₂	BaUI ₆

$U(\text{CoGe})_2$	$U\text{Cl}_6$
$U_3\text{Co}_4\text{Ge}_7$	$U\text{Cl}_5$
$U_3\text{Ni}_3\text{Sn}_4$	$U\text{Cl}_4$
$UNi\text{Sn}$	K_2UI_5
$UCu\text{Sn}$	$U\text{Cl}_3$
$UCu_2\text{Sn}$	RbUTe_3Au
$UNi_2\text{Sn}$	$U(\text{BO}_3)_2$
$U(\text{NiGe})_2$	LuUO_3
$U(\text{FeSi})_2$	BaUTe_4

(2) 高熱伝導率材料に関する学習データの拡充：改良モデル②

前節の機械学習モデルの改良は、熱伝導率の定量的な予測を改善することが確認された。ただし、学習に利用した Starrydata のデータは、図 3.1-10(a)に示すように熱伝導率が約 $50 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 以下の低い熱伝導率を示す材料のみである。これは、Starrydata が低い熱伝導率が求められる熱電材料分野のデータに偏っていることが理由である。またこのことは、図 3.1-9 において予測された熱伝導率の最大が約 $50 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ であったことと一致する。そこで、熱伝導率の定量的な予測をさらに改善する手段ため、高い熱伝導率を有する材料に関する学習データの拡充を行った。図 3.1-10(b)に示すように、 $50 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ 以上の熱伝導率を有する材料のデータを追加することに成功した。

図 3.1-11 は、拡充した学習データを用いた 5 分割交差検証のうち最も R^2 値が高かった予測結果を示している。その結果、データ拡充前の図 3.1-8 と比べてばらつきは大きいものの、検証データの多くが対角線に分布していることが確認でき、予測精度が高いことが分かる。データ拡充前よりもばらつきが大きくなった理由は、予測する熱伝導率の値の範囲が広がり、予測の難易度が高くなったことであると考えられる。ただし決定係数 R^2 の平均値は、0.90 と高い精度の予測を維持できていることが確認できた。

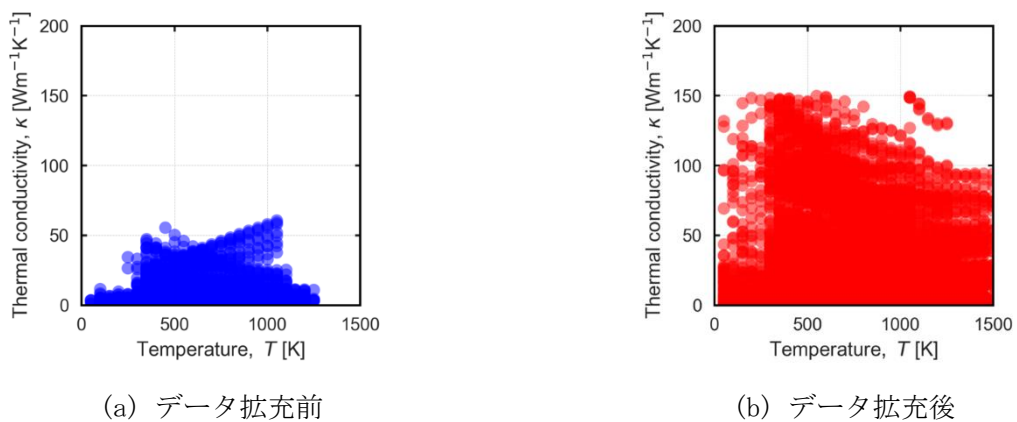


図 3.1-10 学習に利用したデータの熱伝導率の温度依存性

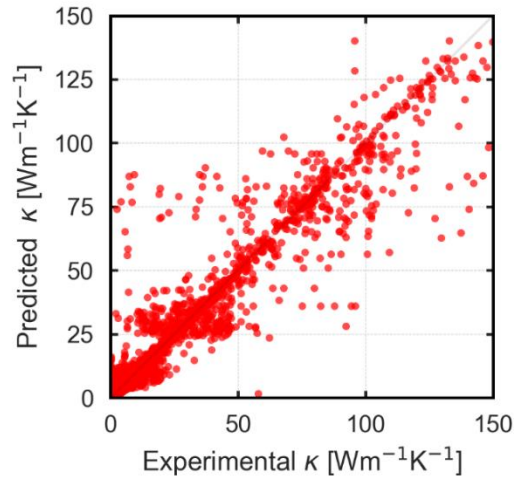


図 3.1-11 熱伝導率の実測値と予測値 (改良モデル②)

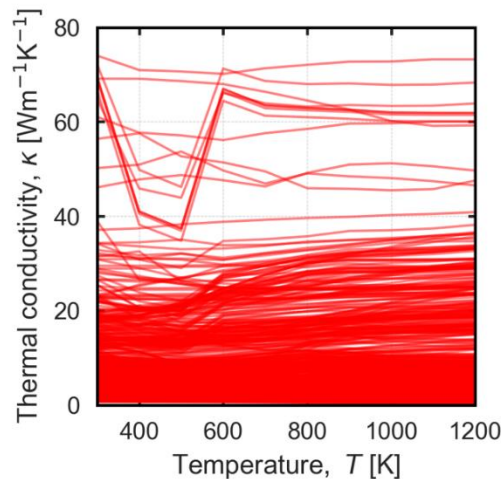


図 3.1-12 Materials Project に収録されているウラン化合物の熱伝導率の予測結果 (改良モデル②)

学習に利用できる全てのデータで学習した最終的な機械学習モデルを使用し、Materials Project に含まれる 951 種類のウラン化合物 (不安定なものも含む) の熱伝導率を予測した結果を図 3.1-12 に示す。予測されたウラン化合物の熱伝導率は、 $20 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ を超える材料も増え、最大が約 $80 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ となった。この結果は、予測可能な熱伝導率の範囲をさらに広げることができ、熱伝導率の定量的な予測が改善されていることを示している。

表 3.1-5 は、熱伝導率を予測した全ウラン化合物のうち、300 K での熱伝導率が高い材料 20 種類と熱伝導率が低い材料 20 種類を示している。熱伝導率が高いと予測された材料は、比較的構成元素の数が少なく、金属元素との組み合わせが多いことが確認できる。一方熱伝導率が低いと予測された材料は、比較的構成元素が多く、非金属あるいは半金属の元素との組み合わせが多いことが確認できる。

表 3.1-5 300 K におけるウラン化合物の熱伝導率 Top20 と Bottom20 (改良モデル②)

Top20	Bottom20
U(Al₁₀V)₂	USn ₃
UIr ₃	USbTe
UPt ₅	Y ₅ U ₂ O ₁₂
UIrPt ₄	Y ₆ UO ₁₂
URh ₃	U ₂ In ₈ Rh
UPt ₃	U ₃ Sb ₄
UPt ₄ Au	U ₃ NbSb ₅
UOs ₂	ScU ₃ Sb ₅
U ₂ Al ₂₀ Fe	USb ₂
UBe ₁₃	UNiSb ₂
U(BH ₄) ₄	U ₃ Ni ₃ Sb ₄
UH ₃	U ₃ TiSb ₅
UB ₁₂	U ₃ MnSb ₅
K ₂ UCu ₃ S ₅	U ₃ Te ₄
U ₂ Al ₃ C ₄	U ₃ Cu ₂ Sb ₃
U(AlC) ₃	ZrU ₃ Sb ₅
UPt ₂	UAs
U(WC) ₄	HfU ₃ Sb ₅
UWC ₂	BaUTe ₄
U ₂ N ₃	K₂U(PSe₃)₃

(3) まとめ

令和 3 年度実施研究では、令和 2 年度に学習済みの人工知能とリスト化したウラン化合物の情報を使って、世の中に存在しうる全てのウラン化合物の熱伝導率を網羅的に予測した。この結果をもって、核燃料に適した新しい高熱伝導率ウラン化合物を発見・提案した。化学組成におけるウランの割合、合成のしやすさ、化学的安定性、毒性、中性子吸収断面積等を総合的に勘案したうえで、核燃料の候補になりうる高熱伝導率ウラン化合物として、UYb₃、USiNi、UNiSn、UCuSnなどを提案した。

3.2 ウラン化合物の合成と特性評価（再委託先：大阪大学）【R2-R3】

3.2.1 希土類ボライドとウランボライドの合成と特性評価【R2-R3】

希土類ボライドの合成と特性評価【R2】

令和2年度は、ウランボライドの合成や焼結、物性に関する知見を得るために、希土類ボライドの焼結と物性評価、及び希土類ボライドの合成試験を行った。

(1) 希土類ボライドである LaB₆ 及び CeB₆ の焼結と物性評価

ウランボライドの物性評価のためには、緻密な焼結体を得る必要がある。そこで、ウランボライドの焼結と物性評価についての知見を得るために、希土類ボライドの焼結と物性評価を行った。LaB₆ 及び CeB₆ は粉末が市販されているために、希土類ボライドとして LaB₆ 及び CeB₆ を選定し、焼結と物性評価を試みた。

LaB₆ 及び CeB₆ 粉末（純度 99 %、高純度科学研究所）を、放電プラズマ焼結法（SPS: Spark Plasma Sintering）により焼結した。焼結温度は 1973 K、昇温速度は 100 K/min、圧力は 100 MPa、保持時間は 10 min、雰囲気は Ar flow とした。図 3.2-1 に示す焼結後の試料の外観から分かる通り、黒色のバルク体が作製できた。得られた試料に対し、走査型電子顕微鏡（SEM: Scanning Electron Microscope）とエネルギー分散型 X 線分析装置（EDS: Energy Dispersive X-ray Spectroscopy）により元素分布を評価した。また、X 線回折（XRD: X-ray Diffraction）測定により結晶構造を評価した。物性については、レーザーフラッシュ法を用いて熱拡散率 α の温度依存性を 1273 K まで測定し、以下の式を用いて熱伝導率 κ を計算した。

$$\kappa = \alpha C_p D \quad (3.2-1)$$

ここで、 D は密度、 C_p は比熱である。密度は実測値を用いた。比熱については文献値（LaB₆ [3.2-1]、CeB₆ [3.2-2]）を用いた。なお、LaB₆ の C_p の値に関しては 1000 K までしか報告されていなかったため、1000 K 以上の C_p は 1000 K の値を用いて計算した。

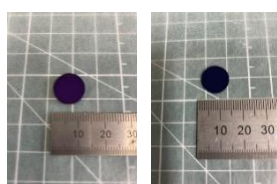


図 3.2-1 LaB₆（左）と CeB₆（右）の試料外観

図 3.2-2 と図 3.2-3 に、焼結試料の SEM による観察画像と EDS による元素マッピング像を示す。希土類元素と B は均一に分布しており、析出や偏析は見られない。図 3.2-4 に、焼結前後の XRD パターンを示す。いずれの試料においても焼結前後で相状態に変化は見られず、ともに Cubic（空間群 Pm-3m）の単相であった。XRD パターンのピーク位置から計算した格子定数を表 3.2-1 に示す。LaB₆ 及び CeB₆ の格子定数は文献値と良く一致している。また、格子定数から算出した理論密度と試料の体積と質量から計算した実測密度、及び相対密度も表 3.2-1 に示す。相対密度はともに 94 % 以上であった。

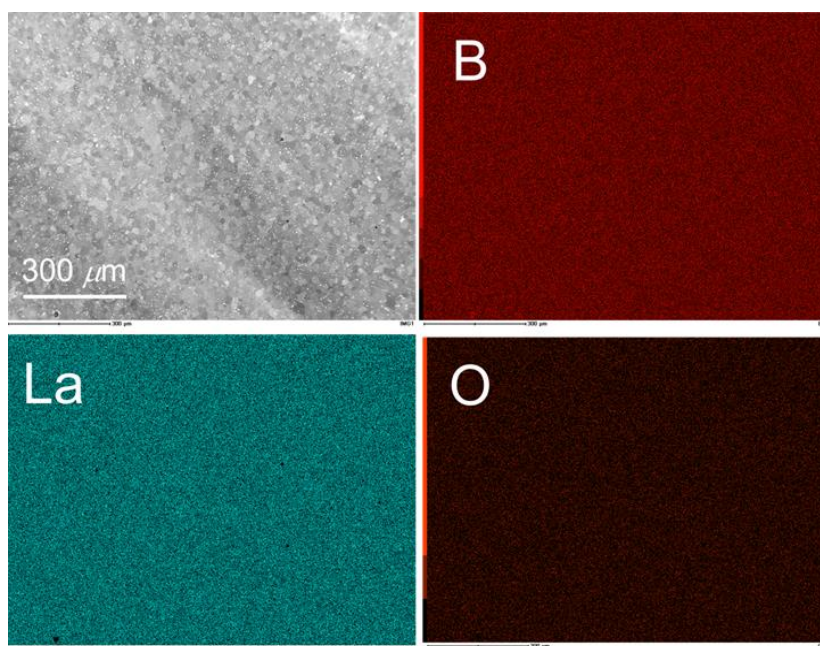


図 3.2-2 LaB₆ 焼結試料の SEM 画像及び EDS マッピング像

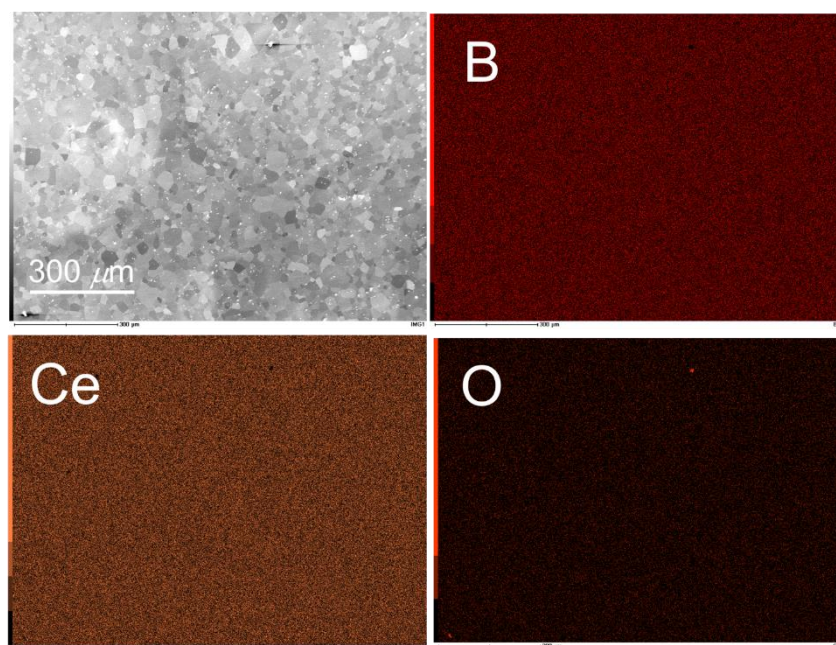


図 3.2-3 CeB₆ 焼結試料の SEM 画像及び EDS マッピング像

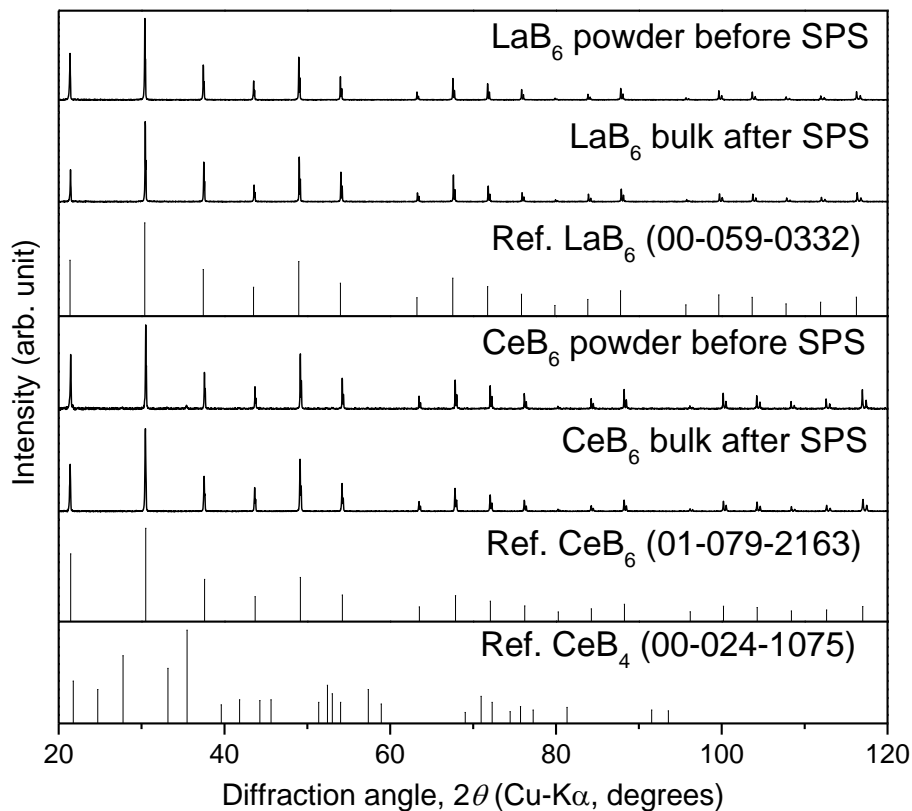


図 3.2-4 LaB₆ と CeB₆ の XRD パターン

表 3.2-1 LaB₆ と CeB₆ の格子定数と密度

	Lattice parameter $a = b = c$ (Å)	理論密度 (gcm ⁻³)	実測密度 (gcm ⁻³)	相対密度 (%T. D.)
LaB ₆ , powder	4.156	-	-	-
LaB ₆ , bulk	4.153	4.724	4.461	94.43
CeB ₆ , powder	4.140	-	-	-
CeB ₆ , bulk	4.139	4.800	4.680	97.49
Ref. 1 LaB ₆ (00-059-0332)	4.157	-	-	-
Ref. 2 CeB ₆ (01-079-2163)	4.140	-	-	-

図 3.2-5 に、LaB₆ と CeB₆ の熱伝導率の温度依存性を示す。室温における熱伝導率は LaB₆ が 83 Wm⁻¹K⁻¹、CeB₆ が 45 Wm⁻¹K⁻¹ であり、UO₂ の室温における熱伝導率 (8~9 Wm⁻¹K⁻¹ 程度 [3.2-3]) と比較すると、LaB₆ と CeB₆ は極めて高い熱伝導率を有していると言える。

以上により、SPS によって希土類ボライドの緻密な単相のバルク試料が作製できたことから、ウランボライドも同様に SPS で緻密化可能であると考えられる。また、緻密な希土類ボライド焼結体からレーザーフラッシュ法で熱伝導率を評価できたことから、緻密なウ

ランボライド焼結体からも熱伝導率の評価が可能であると考えられる。

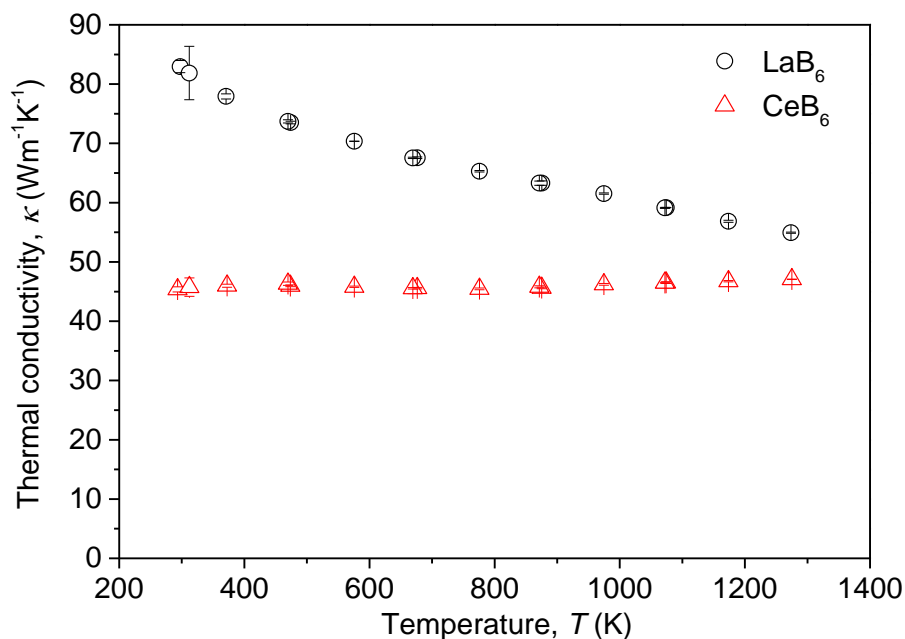


図 3.2-5 LaB₆と CeB₆の熱伝導率の温度依存性

(2) 希土類ボライドである CeB₄の Ce と B からの合成

本研究ではウランボライドは金属 U と B から合成する予定である。そこで、金属 U と B からウランボライドを合成するための知見を得ることを目的とし、希土類金属と B から希土類ボライドの合成を試みた。ウランボライドとしては、UB₄を想定している。そこで、UB₄と同じ結晶構造 (tetragonal、空間群 P4/mbm) を有している希土類ボライドである CeB₄を合成の対象物質として選定した。

Ce (純度 99.9 %、フルウチ化学株式会社) と B (純度 99.9 %、フルウチ化学株式会社) を CeB₄の組成となるように秤量し、アーク溶解法によって熔融混合してインゴットを作製した。合成のための条件を調べるために、大きい試料 (CeB₄-1) と小さい試料 (CeB₄-s) の 2種類のサイズのインゴットを作製した。得られたインゴットを切断して断面を SEM と EDX によって観察した。また、インゴットを石英管に真空封入し、1273 K で 10 時間と 10 日間の 2つの条件で熱処理を行い、XRD 測定により結晶構造を評価した。

図 3.2-6 に、作製した 2種類の試料の断面の写真を示す。CeB₄-s では均質な組織となっているように見えるのに対し、CeB₄-1 では試料中心付近に溶け残りのような領域があることが分かる。

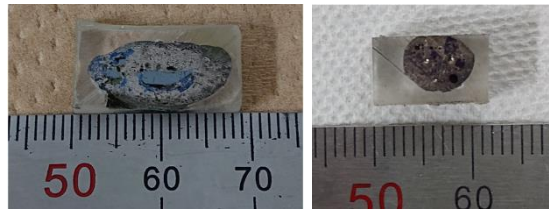


図 3.2-6 CeB₄-1 (左) と CeB₄-s (右) の断面の写真

図 3.2-7 と図 3.2-8 に、断面の SEM 観察画像と EDS による元素マッピングの結果を示す。CeB₄-1 では、B が偏析している領域があることが分かる。これが図 3.2-6 で見られた溶け残りのような領域に相当する。すなわち、CeB₄-1 では中心付近に B の溶け残りが存在している。これは、Ce の融点は 1100 K 程度であるのに対して B の融点は 2200 K 以上であるために、試料中心付近で B が溶け残ったのであろうと考えられる。それに対し、CeB₄-s では試料全体にわたって Ce と B の偏析は見られない。これは、試料サイズが小さくなったことで試料中心部まで Ce と B が混合したためであると考えられる。

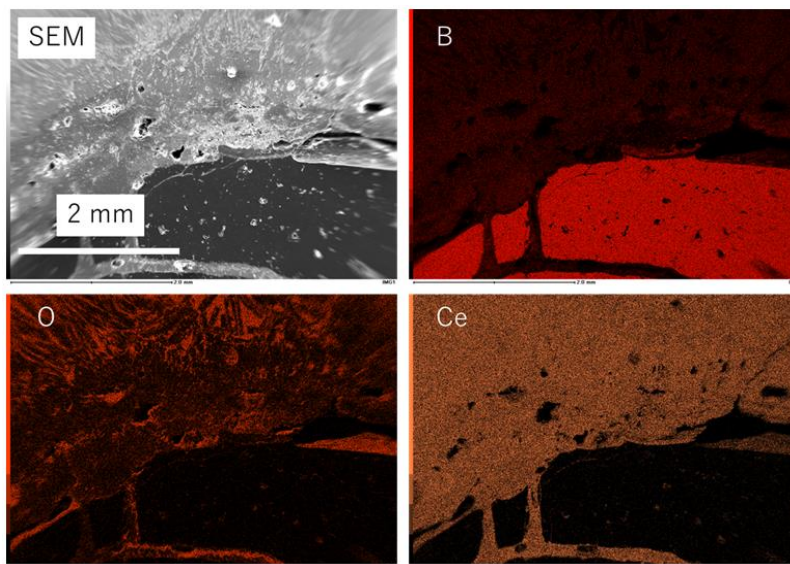


図 3.2-7 CeB₄-1 の断面の SEM 観察画像と EDS マッピング像

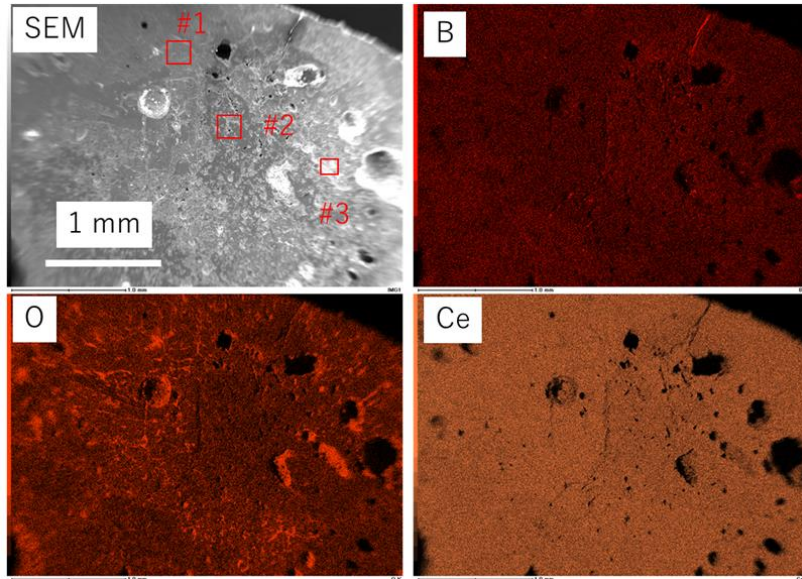


図 3.2-8 CeB₄-s の断面の SEM 観察画像と EDS マッピング像

図 3.2-9 に、熱処理前と熱処理後の CeB₄-s の XRD パターンを示す。熱処理前は CeB₄ と CeB₆ のピークが見られるが、ピークは明瞭ではない。10 時間熱処理した試料では CeB₄ と CeB₆ のピークが明確に確認され、熱処理によって結晶性が向上したと考えられる。CeB₄ の組成となるように秤量したのに対し CeB₆ も生成した理由としては、アーク溶解中に Ce の一部が蒸発し、B リッチな組成となっていたためであると考えられる。一方、10 日間熱処理した試料では Ce₂O₃ のピークが確認できた。これは、石英管を透過した酸素によって試料が酸化したと考えられる。

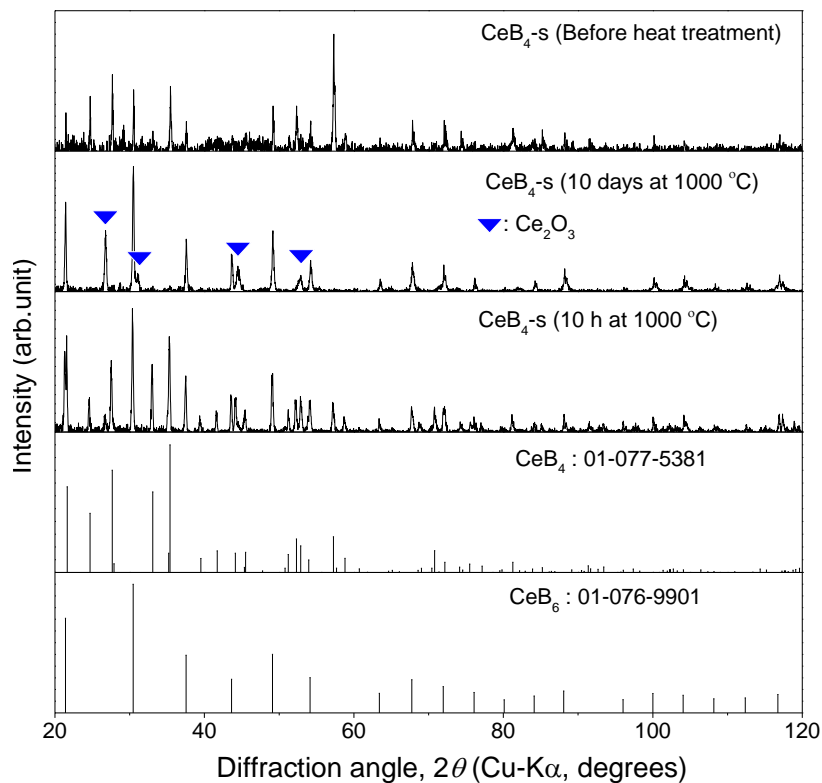


図 3.2-9 熱処理前後の CeB₄-s の XRD パターン

以上より、以下の 3 つの点に注意すればアーク溶解によってウランボライドを合成することが可能であると考えられる。①適切な試料サイズを選択して B の溶け残りを防ぐ、②アーク溶解中の金属の選択的蒸発を考慮して組成を変化させた試料を作製する③10 時間程度の熱処理を行う。これにより、希土類元素のボライドを対象とした実験を通じて、ウランボライドの合成と特性評価の準備を整えた。

ウランボライドの合成と特性評価【R3】

令和 3 年度は、令和 2 年度から引き続き、希土類ボライドの熱伝導率を実験的に評価した。具体的には、実験的に得られている熱伝導率データの再現性の検証等を実施した。また、高熱伝導率ウラン化合物の一つの候補であるウランボライド（ウラン-ホウ素化合物）を合成し、その熱伝導率を実験的に評価した。

(3) ウランボライドである UFe₃B₂ の合成と特性評価

ウラン化合物として UFe₃B₂ (hexagonal、空間群 P6/mmm) を合成した。U と Fe(純度 99.99%、株式会社高純度化学研究所)、B (純度 99.9%、フルウチ化学株式会社) を UFe₃B₂ の組成となるように秤量し、アーク溶解法により熔融混合してインゴットを作製した。インゴットを粉砕して粉末状にし、SPS により焼結した。焼結温度は 1073 K と 1173 K とし二種類の試料を作製した。その他の焼結条件は昇温速度 50 K/min、圧力 100 MPa、保持時間 20 min、Ar フローとした。得られた試料に対し、XRD 測定により結晶構造、SEM と EDS により元素分布を評価した。レーザーフラッシュ法を用いて熱拡散率の温度依存性を室温から 1173 K までの範囲で測定し、式(3.2-1)を用いて熱伝導率を計算した。比熱は文

献値がないため、デュロンプティの法則により評価した。

焼結した試料の外観を図 3.2-10 に示す。1173 K で焼結した試料は 1073 K で焼結した試料に比べて表面が滑らかであり、より緻密であるように見える。

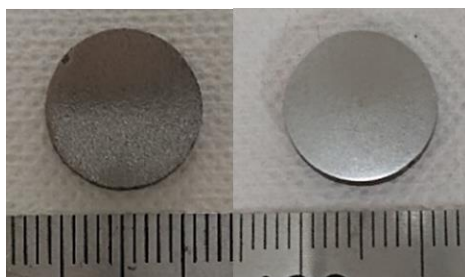


図 3.2-10 UFe_3B_2 焼結試料の外観、1073 K 焼結 (左) と 1173 K 焼結 (右)

図 3.2-11 に 1073 K と 1173 K で焼結した試料の XRD パターンを示す。両試料とも UFe_3B_2 相が確認され、不純物相に起因するピークは見られなかった。

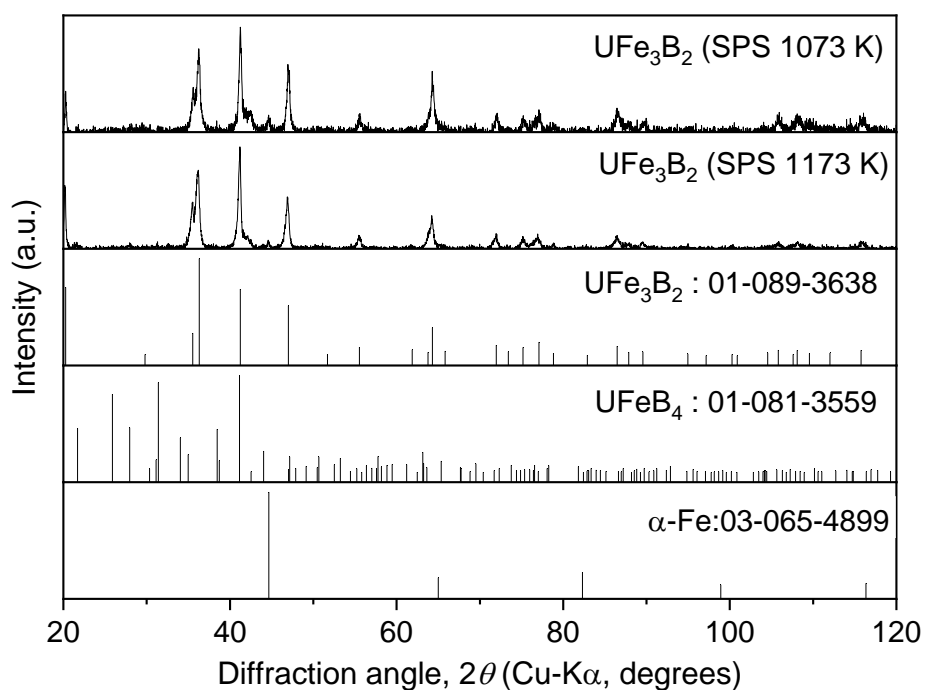


図 3.2-11 UFe_3B_2 試料の XRD パターン

表 3.2-2 に XRD パターンから計算した格子定数及び密度を示す。1173 K で焼結した試料は相対密度が 96.7 % と極めて高密度になっていることがわかる。一方 1073 K 焼結の試料は 85.8 % と相対密度が低くなった。

表 3.2-2 UFe₃B₂ の格子定数と密度

	焼結温度 (K)	Lattice parameter		理論密度 (gcm ⁻³)	実測密度 (gcm ⁻³)	相対密度 (%T. D.)
		$a = b$ (Å)	c (Å)			
UFe ₃ B ₂	1073	5.00 (4)	3.05 (9)	10.7	9.21	85.8
	1173	5.046 (4)	3.007 (6)	10.70	10.35	96.7
Ref. UFe ₃ B ₂ (01-089-3638)		5.051	2.997	10.713	-	-

図 3.2-12 と図 3.2-13 に 1073 K と 1173 K で焼結した試料の SEM 観察結果と EDS による元素マッピングの結果を示す。両試料とも U や Fe、B は均一に分布している。また、1073 K 焼結試料は 1173 K 焼結試料と比べると表面が粗くなっていることがわかる。

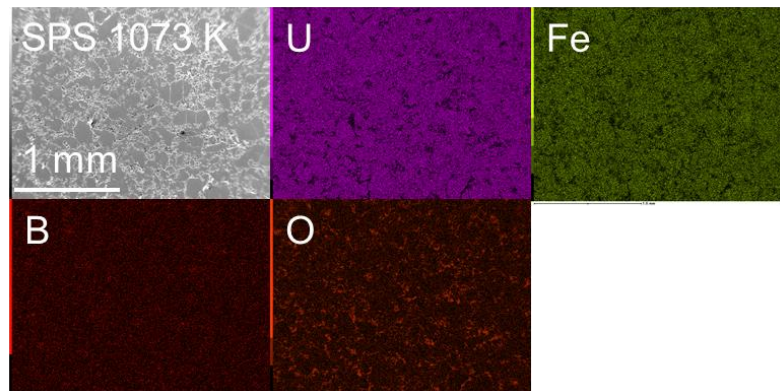


図 3.2-12 UFe₃B₂ 1073 K 焼結試料の SEM 観察画像と EDS マッピング

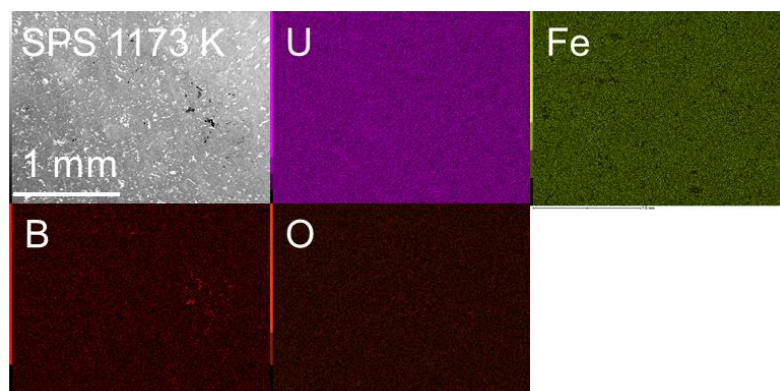


図 3.2-13 UFe₃B₂ 1173 K 焼結試料の SEM 観察画像と EDS マッピング

1173 K 焼結試料について、昇温時と降温時に熱伝導率を評価した。その結果を図 3.2-14 に示す。熱伝導率は室温で $9.6 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ であった。また降温時の熱伝導率は昇温時の熱伝導率よりも大きい値を示した。このような熱伝導率のヒステリシス挙動は UFe_3B_2 と同じ結晶構造を持つ UB_2 (hexagonal、空間群 P6/mmm) にも見られ、熱膨張の異方性によるマイクロクラックの発生と高温での修復による可能性が示唆されている [3.2-4]。

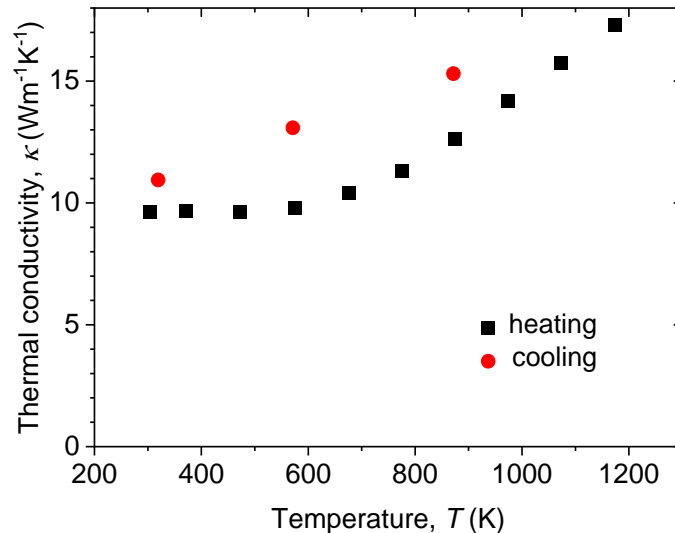


図 3.2-14 UFe_3B_2 の熱伝導率の温度依存性

3.2.2 人工知能が予測した高熱伝導率ウラン化合物の合成と特性評価【R3】

人工知能が予測した高熱伝導率ウラン化合物を合成し、その熱伝導率を実験的に評価した。

(1) UNiSi の合成と特性評価

ウラン化合物として USiNi (hexagonal、空間群 P6/mmm) を合成した。なお、 USiNi には他の結晶構造 (orthorhombic、空間群 Pnma) も報告されている [3.2-5]。U と Si (semiconductor grade)、Ni (純度 99.9 %、フルウチ化学株式会社) を USiNi の組成となるように秤量し、アーク溶解法により熔融混合してインゴットを作製した。インゴットを粉砕して粉末状にし、SPS により焼結した。焼結条件は温度 1073 K、昇温速度 50 K/min、圧力 100 MPa、保持時間 15 min、Ar フローとした。その後、試料をカーボンシートに包み真空に引いた石英管に入れ 1073 K で 7 日間熱処理し、XRD 測定により結晶構造、SEM と EDS により元素分布を評価した。また XRD パターンから格子定数を算出した。レーザーフラッシュ法を用いて熱拡散率の温度依存性を室温から 1073 K までの範囲で測定し、式 (3.2-1) を用いて熱伝導率を計算した。比熱は文献値がないため、デュロンプティの法則により評価した。

SPS により作製した試料の外観と XRD 測定の結果を図 3.2-15 と図 3.2-16 に示す。SPS 後の試料を熱処理することで、 USiNi (空間群 P6/mmm) を主相とする試料が得られた。熱処理は 2 日とさらに 5 日行い、計 7 日行ったが、大きな違いは見られなかった。7 日間の熱

処理後の試料について XRD パターンから求めた格子定数と USiNi 単相と仮定した場合の相対密度を表 3.2-3 に示す。

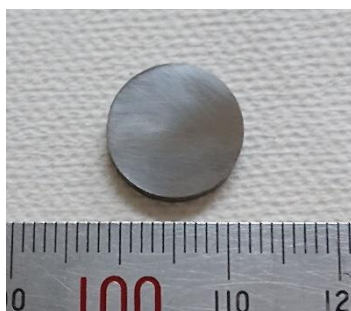


図 3.2-15 USiNi 試料外観

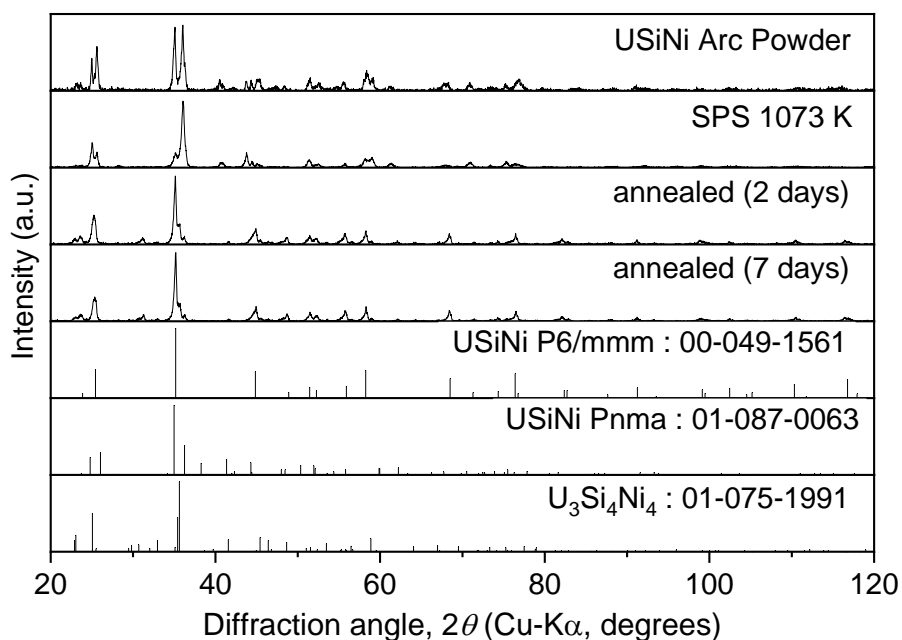


図 3.2-16 USiNi 試料の XRD パターン

表 3.2-3 USiNi の格子定数と密度

	Lattice parameter		理論密度 (gcm ⁻³)	実測密度 (gcm ⁻³)	相対密度 (%T. D.)
	<i>a</i> = <i>b</i> (Å)	<i>c</i> (Å)			
USiNi	4.0308(9)	3.7353(11)	10.261	9.833	95.8
Ref. USiNi (00-049-1561)	4.0378	3.7218	10.264	-	-

熱処理後の試料のSEM観察結果とEDSによる元素マッピングの結果を図3.2-17に示す。UやSi、Niは均一に分布している。

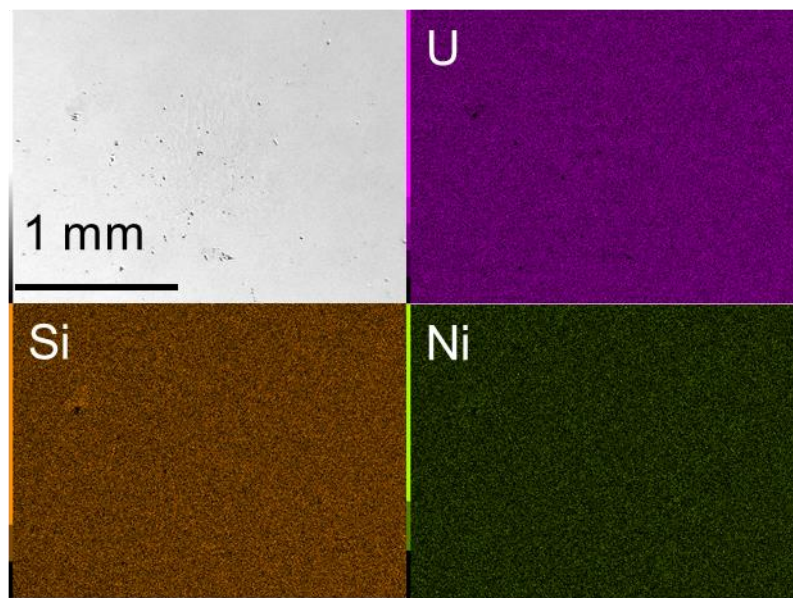


図 3.2-17 熱処理後のUSiNi 試料のSEM観察画像とEDSマッピング

USiNi 試料の熱伝導率評価結果を図 3.2-18 に示す。熱伝導率は温度の上昇に従って単調に増加した。UFe₃B₂とは異なり、USiNi は昇温時と降温時で熱伝導率は同程度であった。

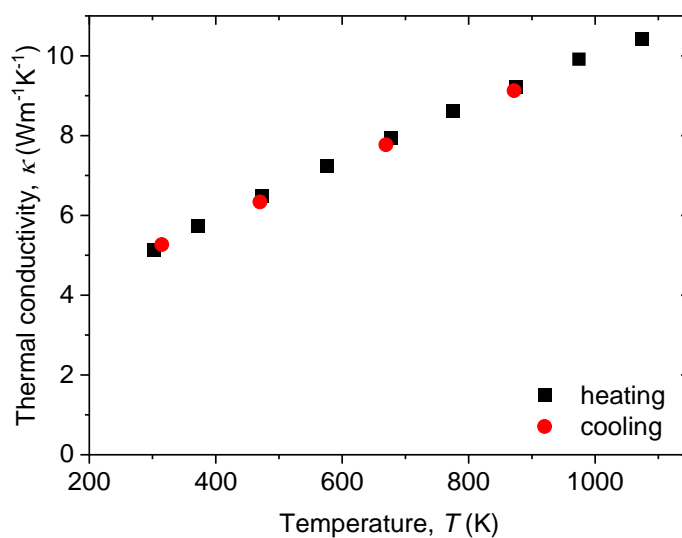


図 3.2-18 USiNi 試料の熱伝導率

(2) UNiSn の合成の試み

ウラン化合物として UNiSn の合成を試みた。UNiSn には高温相 (orthorhombic、空間群 Imma) と低温相 (cubic、空間群 F-43m) が存在すると報告されている[6]。U と Ni (純度 99.9 %、フルウチ化学株式会社)、Sn (純度 99.99 %、フルウチ化学株式会社) を UNiSn の組成となるように秤量し、アーク溶解法により熔融混合してインゴットを作製した。インゴットを粉砕して粉末状にし、SPS により焼結した。焼結条件は温度 1073 K、昇温速度 50 K/min、圧力 100 MPa、保持時間 15 min、Ar フローとした。その後、試料をカーボンシートにくるみ真空に引いた石英管に入れ 1073 K で 7 日間熱処理し、XRD 測定により結晶構造、SEM と EDS により元素分布を評価した。

SPS により焼結した試料の外観と熱処理後 (7 日間) の試料外観を図 3.2-19 に示す。熱処理後の試料の端にはひび割れが発生している。

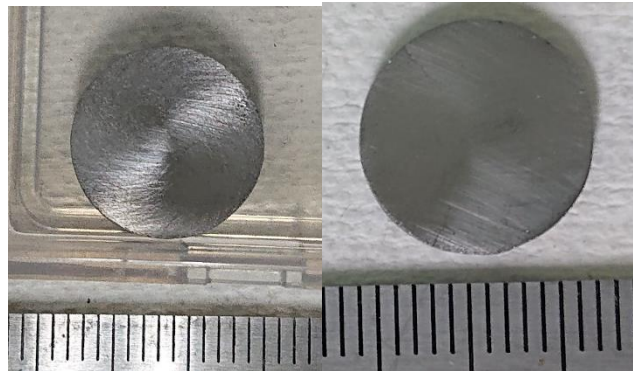


図 3.2-19 熱処理前 (左) と熱処理後 (右) の UNiSn 試料外観

図 3.2-20 に XRD 測定の結果を示す。SPS 後の試料を熱処理することで UNiSn (cubic) を主相とする試料が作製できた。熱処理は 2 日とさらに 5 日行い、計 7 日行ったが、熱処理の長さを変えても XRD パターンに大きな変化は見られなかった。また、熱処理後の XRD パターンには 31° 付近に UC や U_3SnC に見られるピークが観察され、熱処理時に用いたカーボンシートが UNiSn と反応している可能性がある。

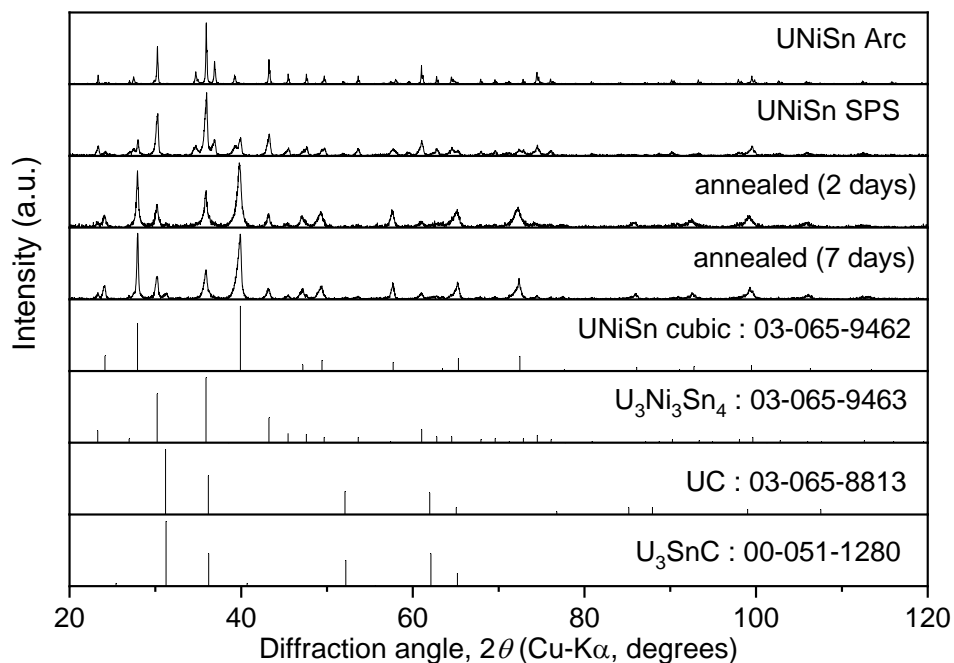


図 3.2-20 UNiSn 試料の XRD パターン

熱処理後の試料の SEM 観察結果と EDS による元素マッピングの結果を図 3.2-29 に示す。U や Ni、Sn は均一に分布していることが分かる。このため、単相が得られなかったのは元素が空間的に不均一に分布していたことに起因するのではないと考えられる。今後単相を得るためには、熱処理時の不純物の生成の抑制方法、および熱処理後の冷却条件の検討が必要であると考えられる。

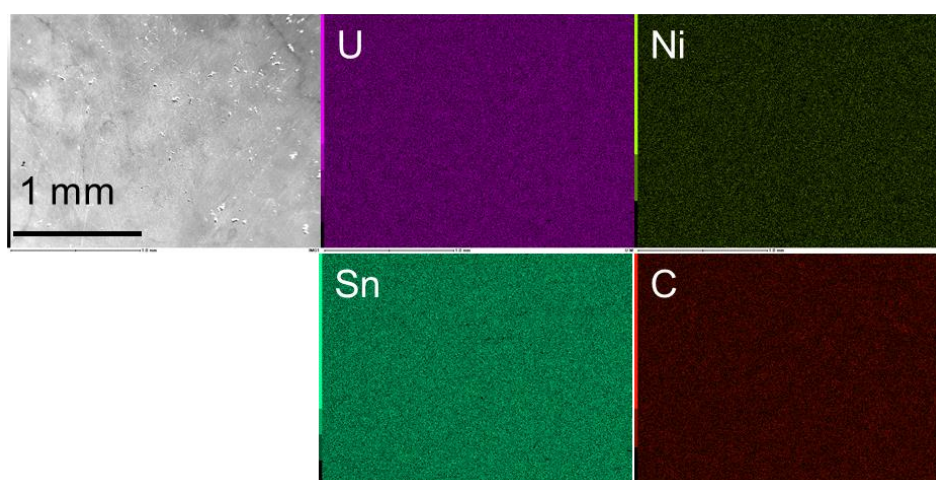


図 3.2-21 熱処理後の UNiSn 試料の SEM 観察画像と EDS マッピング

最後に、 UFe_3B_2 と USiNi の熱伝導率を代表的なウラン化合物の熱伝導率 [3. 2-7] と比較した結果を図 3. 2-22 に示す。本研究で評価した UFe_3B_2 と USiNi の熱伝導率は温度上昇とともに上昇する金属的な挙動を示している。一方で UO_2 の熱伝導率は温度上昇とともに熱伝導率が低下するというセラミックスに特徴的な挙動を示している。このような熱伝導率の温度依存性の違いにより、中・高温域において UFe_3B_2 と USiNi の方が高い熱伝導率を示すことが明らかとなった。

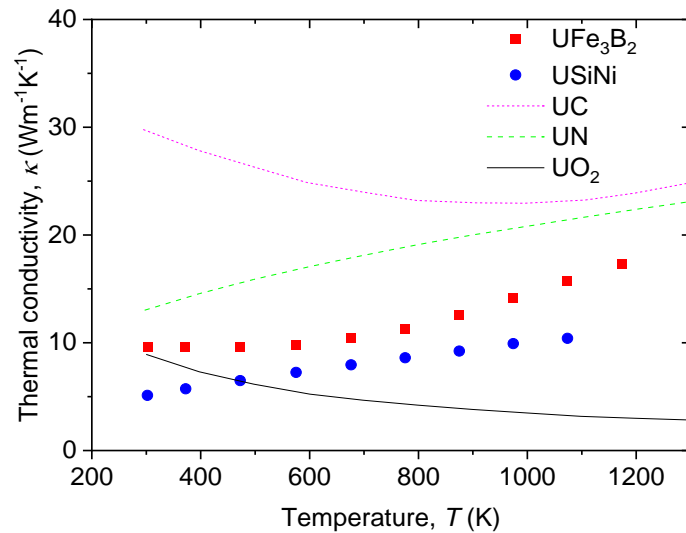


図 3. 2-22 UFe_3B_2 及び USiNi と代表的なウラン化合物の熱伝導率

参考文献

- [3. 2-1] V. I. Ivashchenko *et al.*, *Physica B: Condensed Matter* **531**, 216 (2018).
- [3. 2-2] V. B. Muratov *et al.*, *Institute of Problems of Materials Science*, No. 12(312), 70 (1988).
- [3. 2-3] Juan. J. Carbajo, Gradyon L. Yoder, Sergey G. Popov, Victor K. Ivanov, *J. Nucl. Mater.* **299**, 181 (2001).
- [3. 2-4] E. Kardoulaki *et al.*, *Journal of Alloys and Compounds*, 818 (2020) 153216.
- [3. 2-5] K. Prokes *et al.*, *Physica B*, 230 (1997) 39-42.
- [3. 2-6] V.H. Tran and R. Troć, *Journal of Magnetism Materials*, 102 (1991) 74-86.
- [3. 2-7] Khurram Saleem Chaudri *et al.*, *Progress in Nuclear Energy*, 63 (2013) 57-65.

3.3 ウラン化合物の熱伝導率を予測する機械学習モデルの妥当性検証【R3】

本研究では、熱伝導率を予測する機械学習モデルを構築し、高い熱伝導率を有するウラン化合物を提案した。ここでは、本研究で構築した機械学習モデルの妥当性を検証するため、(1)選択した機械学習手法の妥当性、(2)熱伝導率の予測に影響した特徴量の妥当性、(3)予測値の妥当性の3つの観点から検証した。

(1) 選択した機械学習手法の妥当性

本研究では、機械学習手法として Random Forest を使用した。表 3.1-6 は、Random Forest 以外の 17 種類の機械学習手法に対して、本研究と同様の学習や評価を行い、予測精度を比較した結果である。その結果、他の手法と比べて Random Forest の誤差が最も小さく、 R^2 の値も最も大きな値となった。このことから、機械学習手法として Random Forest を選択することは妥当であったことがわかる。

表 3.3-1 様々な機械学習手法を用いた熱伝導率予測の精度比較

Model	MAE	MSE	RMSE	R^2	RMSLE
Random Forest Regressor	1.25	30.34	5.48	0.90	0.21
Light Gradient Boosting Machine	1.88	31.11	5.55	0.90	0.32
Extra Trees Regressor	1.21	31.44	5.57	0.90	0.22
Decision Tree Regressor	1.31	34.13	5.81	0.89	0.23
Gradient Boosting Regressor	2.94	56.69	7.52	0.82	0.46
K Neighbors Regressor	3.89	130.88	11.43	0.59	0.51
AdaBoost Regressor	5.63	134.48	11.58	0.57	0.78
Ridge Regression	6.89	190.91	13.81	0.40	0.84
Bayesian Ridge	6.89	190.90	13.81	0.40	0.84
Linear Regression	6.89	190.90	13.81	0.40	0.84
Least Angle Regression	7.53	198.41	14.08	0.37	0.92
Lasso Regression	7.72	255.66	15.98	0.19	0.98
Elastic Net	7.78	258.27	16.06	0.18	0.99
Orthogonal Matching Pursuit	8.00	264.27	16.25	0.17	1.03
Huber Regressor	5.97	304.68	17.44	0.04	0.80
Lasso Least Angle Regression	9.06	316.76	17.79	0.00	1.18
Dummy Regressor	9.06	316.76	17.79	0.00	1.18
Passive Aggressive Regressor	18.85	878.07	27.16	-1.82	1.46

(2) 熱伝導率の予測に影響した特徴量の妥当性

図 3.3-1 は、改良モデル②における各特徴変数の重要度の結果である。縦軸の重要度の値は足すと 100 %になる値である。電気陰性度の平均と原子半径の平均が 50 %以上の重要度を占めており、改良モデル②を用いた熱伝導率予測がおおよそこの二つの特徴量で予測されていることが確認できる。電気陰性度の平均は、図 3.3-2 に示すようにケテラーの三角形 [3.1-6] の x 軸にも利用されており、共有結合性と金属結合性のいずれが優位であるかのおおよその推測の指標となる。また図 3.3-2 には、TEDesignLab [3.3-1] が提供する第一原理計算によって算出された格子熱伝導率の大きさをプロット半径に反映させた。共有結合性が優位な材料は、格子熱伝導率が大きな値になっていることが確認できる。反対に、金属結合性が優位な場合は、電子熱伝導率が高くなる傾向がある。熱伝導率は、電子熱伝導率と格子熱伝導率の和で表される。そのため、高い熱伝導率を予測するための特徴として電気陰性度の平均値に注目した機械学習モデルは、妥当な学習ができていると考えられる。また、原子半径も熱伝導率に影響する結合に関連した特徴量であるため、この特徴量に注目することも妥当である。このように、結晶構造を決定する諸因子のなかでも特に結合様式に着目することで、本モデルの妥当性を検証することができた。

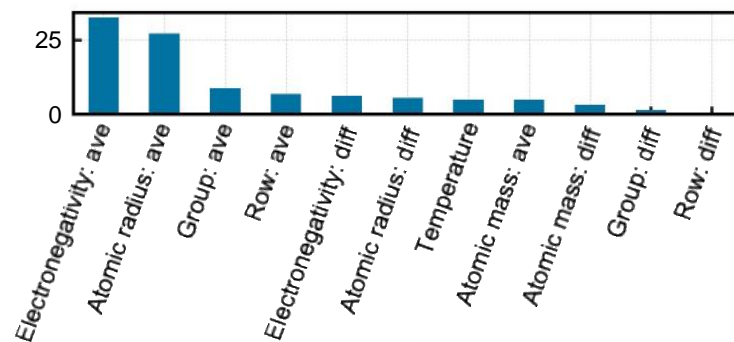


図 3.3-1 熱伝導率予測（改良モデル②）に影響した特徴量の重要度 [%]

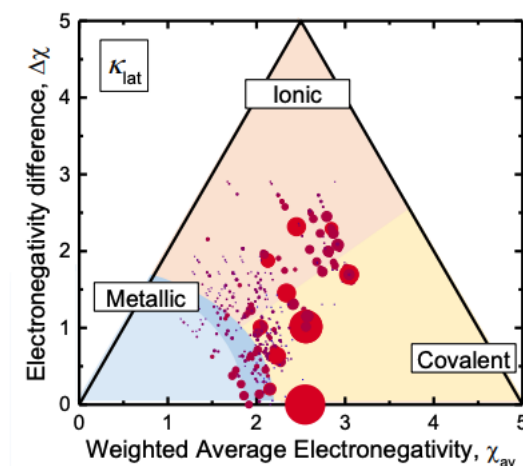
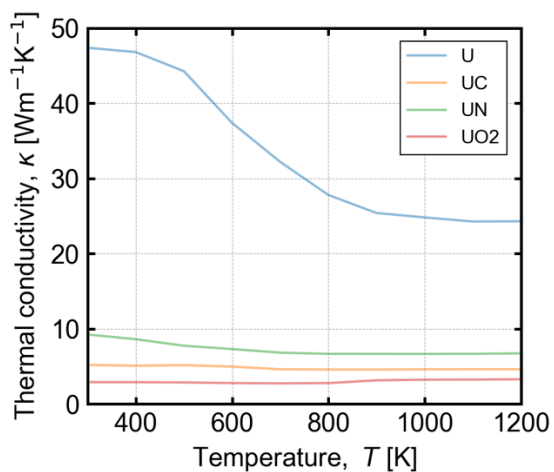


図 3.3-2 ケテラーの三角形 [3.3-2]. プロットサイズは格子熱伝導率 κ_{lat} の値を表す.

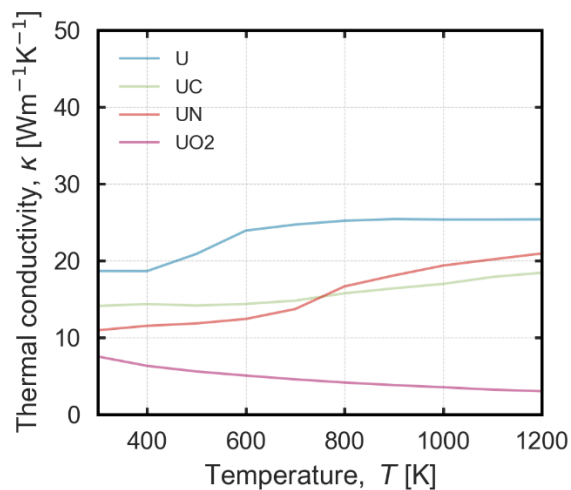
(3) 予測値の妥当性

本研究では、高い熱伝導率を有するウラン化合物を探索・提案することが目的である。そのため、ウラン化合物の熱伝導率を本研究で構築した機械学習がどれだけ正しく予測できているかを検証することが必要である。そこで、U 単体や代表的なウラン化合物 UC、UN、UO₂ に対する熱伝導率の予測を行い、実験的に測定された結果との比較を行った。特に、学習データから U、UC、UN、UO₂ のデータが含まれないように除外し、全く未知の状態ですべて正確に予測ができるかを検証した (図 3.3-3)。改良モデル①は、熱伝導率の大きさが U、UC、UN、UO₂ の順に並ぶという定性的な関係性は予測できた。そのため、表 3.1-4 で示した高い熱伝導率を有するウラン化合物の順位に関しては、意味のある並びになっていると考えられる。ただし、定量的な値や温度依存性の挙動は、図 3.3-3(c) に示す実験値と一致しない。一方、改良モデル②の予測結果は、U、UC、UN、UO₂ の順番という定性的な予測ができているだけでなく、定量的な値や温度依存性が改良モデル①よりも改善し、実験結果とよく一致していることが確認できた。

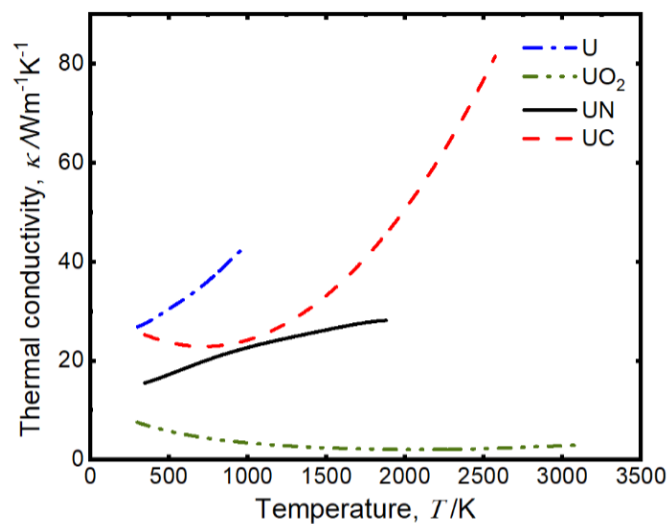
以上、機械学習側の情報 (入力と出力の関係等) と実験側の情報 (結晶構造、熱伝導率等) を総合的に比較・検討することで、本研究で構築した機械学習モデルの妥当性を検証した。



(a) 改良モデル①の予測結果



(b) 改良モデル②の予測結果



(c) U、UO₂、UN、UC の熱伝導率の温度依存性 [3.1-9] (図 3.1-6 の再掲)

図 3.3-3 本研究で構築した機械学習モデルを用いた代表的なウラン化合物の熱伝導率予測

参考文献

- [3.3-1] P. Gorai, D. Gao *et al.*, *Comp. Mat. Sci.* **112**, 368 (2015)
- [3.3-2] 熊谷 将也, 擬ギャップ・狭ギャップを有する Al 系材料の電子構造および熱電特性, 博士学位論文(2017).

3.4 研究推進【R2～R3】

研究代表者の下で各研究項目間の連携を密にして研究を進めた。研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催した。得られた成果の一部をとりまとめ、合計5件の外部発表（国内学会2件、国際会議2件、核燃料部会夏期セミナー講演1件）を行った。

会議開催実績【R2】

令和2年度は、研究実施計画を推進するために、下記の通りの打合せや会議等を開催した。

開催日	時間	方式	参加者
2020年12月1日	16:00-14:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2020年12月25日	14:00-15:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2021年1月5日	14:00-15:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2021年1月29日	10:00-11:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2021年1月29日	16:00-17:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2021年3月23日	14:00-15:00	オンライン	黒崎、大石
2021年3月25日	15:00-17:00	オンライン	黒崎、大石

会議開催実績【R3】

令和3年度は、研究実施計画を推進するために、下記の通りの打合せや会議等を開催した。

開催日	時間	方式	参加者
2021年5月14日	10:00-12:00	オンライン	黒崎、大石、熊谷
2021年5月21日	13:00-15:00	オンライン	黒崎、大石、熊谷
2021年9月30日	11:00-12:00	オンライン	黒崎、大石、熊谷
2021年10月21日	13:00-15:30	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2021年11月5日	10:00-12:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石、熊谷
2021年12月21日	12:00-13:30	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2021年12月24日	11:00-12:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2022年1月31日	14:30-15:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石
2022年2月8日	15:00-16:00	対面（大阪大学）	黒崎、大石

学会発表実績【R3】

令和3年度は、得られた成果の一部をとりまとめ、下記の通りの外部発表（国内学会2件、国際会議2件、核燃料部会夏期セミナー講演1件）を行った。

- 1 黒崎 健、「原子力材料におけるDX利用と課題（1）新材料開発とマテリアルズ・インフォマティクス」、口頭発表、日本原子力学会2022年春の年会、2022年3月16日～18日、オンライン開催。
- 2 金 明玉、熊谷 将也、黒崎 健、「機械学習を用いた高熱伝導率ウラン化合物

の網羅的探索」、口頭発表、日本原子力学会 2021 年秋の大会、2021 年 9 月 8 日～9 月 10 日、オンライン開催。

- 3 Meigyoku Kin, Masaya Kumagai, Yuji Ohishi, Ken Kurosaki, “Uranium Compounds with High Thermal Conductivity Proposed by Machine Learning”, Oral, the 2021 MRS Fall Meeting & Exhibit, December 6-8, 2021.
- 4 Meigyoku Kin, Masaya Kumagai, Yuji Ohishi, Eriko Sato, Masako Aoki, Ken Kurosaki, “Propose Advanced Nuclear Fuels with High Thermal Conductivity Using Machine Learning”, Poster, TMS 2022 Annual Meeting & Exhibition, February 27-March 3, 2022.
- 5 黒崎 健、「核燃料（研究開発）の今後の展望」、口頭発表、第 5 回核燃料・材料・水化学夏期セミナー、2021 年 8 月 10 日～11 日、オンライン開催。

4. 結言

本研究では、材料科学と情報科学の融合領域であるマテリアルズ・インフォマティクス (MI) を、核燃料研究開発に初めて適用した。MI では、機械学習技術を適用して材料開発を高効率化することを目的の一つに掲げている。実際、原子力以外の最先端の材料科学の分野では、MI を組み込んだ材料開発が活気を帯びている。しかしながら、核燃料や原子力材料の分野においては、MI を活用した材料開発はいまだなされていない。このような状況のもと、ここでは、機械学習技術を適用して、高熱伝導率ウラン化合物の網羅的な探索に成功した。すなわち、世の中に存在するウラン化合物 951 種類について、それらの熱伝導率を、化学組成に紐づいた物質を構成する元素固有の基礎的な情報をもとに完全に予測した。その結果、高い熱伝導率を示すウラン化合物として、 UYb_3 、 USiNi 、 UNiSn 、 UCuSn などを提案した。さらに、提案だけに留まらず、ここで提案されたウラン化合物のいくつかを実際に合成し、その熱伝導率を実験的に評価した。熱伝導率の実測値は、最大で 1200 K において約 $18 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ (同温度で UO_2 の熱伝導率の約 7 倍) であり、目標値である二酸化ウランの約 10 倍には届かなかったものの、本研究で構築した機械学習モデルが高い妥当性を有していることを確認した。ここで得られた一連の成果は、核燃料開発における MI 適用の、わかりやすく代表的な成功例になるだろう。

最後に、本研究や関係する研究の今後の展望を述べる。核燃料や原子力材料の研究は、様々な分野の中でも、MI やデジタルトランスフォーメーション (DX) に適性があるほうなのではないかと感じている。なぜなら、これらは本質的に実験が困難な分野であり、かつ、これまでの豊富な実績を背景として、膨大な情報が蓄積されているからである。一方で、MI や DX を進めるに際していくつか課題もあり、とりわけ、蓄積された膨大なデータをどう生かすか? という点が重要になってくると考えている。すなわち、アナログ情報をどうやってデジタル化するか? 情報をどうやって集めるか? どうやってまとめるか? どうやって使うか? といったところを解決しなければならない。さらに、MI や DX を活用したとして、その目的・目標を何とするか? という点も重要であろう。本研究のような新材料・新燃料開発であれば、新しいウラン化合物の発見やジルコニウム合金への最適な添加元素の提案などが出口として見えてくる。現象の理解や把握、予測に MI や DX を活用するのであれば、通常運転時や事故時の燃料・材料の挙動評価といったところが出口になるだろう。あるいは、実験を補完するツールとしての MI や DX であれば、照射試験補完や燃料デブリの性状評価といったところに活用できそうである。いずれにせよ、核燃料や原子力材料の分野における MI や DX の活用は、本研究をきっかけに始まったばかりであり、今後の発展が大いに期待できる。