

マテリアルズ・インフォマティクスによる 核燃料開発

代表機関 京都大学 ○黒崎 健、熊谷 将也
再委託先機関 大阪大学 大石 佑治

原子カシステム研究開発事業（新発想型）成果報告会
2023年3月16日
オンライン

1. 研究の背景と研究目標 #1

- 研究の背景
 - 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。
 - 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。

1. 研究の背景と研究目標 #2

• 研究目標

- 実験データに基づく各種材料の物性値ビッグデータを機械学習することで、世の中に存在しうるウラン化合物の中から核燃料に適した高熱伝導率物質を見出す。
- 京都大学ではプロジェクトの総合的推進及び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と妥当性評価を、大阪大学ではウラン化合物の合成と特性評価を実施する。

2. 研究の全体計画

• 研究項目と年次スケジュール（線表）

| | 2020 下期 | 2021 上期 | 2022 下期 |
|-----------------------------------|---------|---------|---------|
| (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 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 | ←-----→ | ←-----→ | ←-----→ |

←-----→ 計画
 ←-----→ 実績

3. 研究項目(1)の成果 #1

(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

- ▶ 実験データに基づく各種材料の物性値ビッグデータ（Starrydata）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、電気陰性度に展開した。
- ▶ 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（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。

3. 研究項目(1)の成果 #2



図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

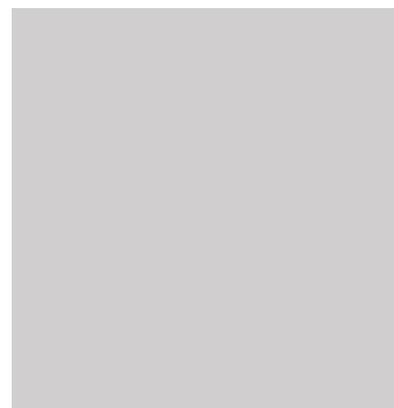


図2 熱伝導率の実測値と予測値

3. 研究項目(1)の成果 #3

- ▶ 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、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。（今回は、Materials Projectに格納されているもの951種類を対象とした。）
- ▶ 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。
- ▶ 一方、この段階までに行った予測では、熱伝導率の定量的評価までには至らなかった。そこで、機械学習モデルの改良や学習用データベースを拡充することで、定量的予測の改善を図った。
- ▶ 人工知能の予測結果をもとにして、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. 研究項目(1)の成果 #4



図3 ウラン化合物の熱伝導率の予測結果
左：R2年度モデル、中：R3年度改良モデル①、右：R3年度改良モデル②

3. 研究項目(1)の目標達成度

- 目標達成度：目標を上回る成果

（理由）

- 当初目標としては、熱伝導率の大小関係のみ評価できればよいとしていたところ、想定以上に研究が進んだことから、さらに一步踏み込んで、機械学習モデルの改良や学習用データベースの拡充まですることができたため。
- これにより、熱伝導率の定性的評価に加えて定量的評価もある程度の精度でできるようになったため。

3. 研究項目(2)の成果 #1

(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

- 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。この研究を通じて、 LaB_6 の熱伝導率が室温において $80 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ を超えるほど高いことを確認した。

3. 研究項目(2)の成果 #2



図4 LaB₆（左）とCeB₆（右）の試料外観



図5 LaB₆とCeB₆の熱伝導率の温度依存性（本研究での実測値）

3. 研究項目(2)の成果 #3

- ▶ 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）：
UFe₃B₂に着目し、その合成と熱伝導率の評価を試みた。その結果、UFe₃B₂単相試料の合成と熱伝導率の評価に成功した。熱伝導率の実測値は、最大で1200 Kにおいて約18 Wm⁻¹K⁻¹（同温度でUO₂の熱伝導率の約7倍）であり、目標値であるUO₂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であった。
- ▶ 最終的に提案された核燃料の候補になりうる高熱伝導率ウラン化合物のうちUSiNiを取り上げ、その合成と熱伝導率の評価を試みた。その結果、USiNi単相試料の合成と熱伝導率の評価に成功した。熱伝導率は室温で約5 Wm⁻¹K⁻¹であり、温度上昇に伴い上昇する金属的な挙動を示すことを見出した。

3. 研究項目(2)の成果 #4



図 6 UFe₃B₂試料のXRDパターン

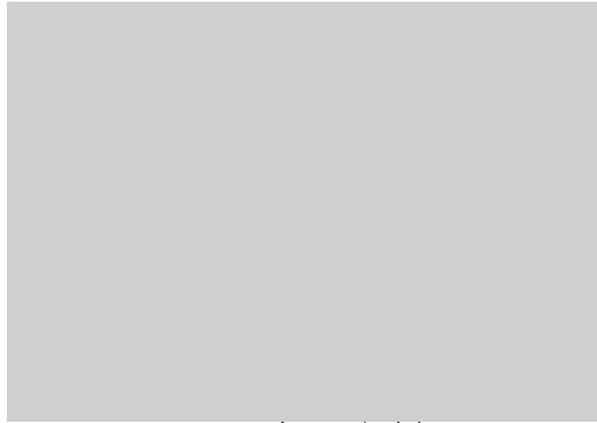


図 7 UFe₃B₂試料の熱伝導率の温度依存性
(本研究での実測値)

3. 研究項目(2)の成果 #5



図 8 USiNi試料の外観写真



図 9 USiNi試料の熱伝導率の温度依存性
(本研究での実測値)

3. 研究項目(2)の目標達成度

- 目標達成度：目標を上回る成果

（理由）

- 当初目標としては、いくつかある候補物質のうち一つでも合成できて熱伝導率が評価できればよいとしていたところ、 UFe_3B_2 と $USiNi$ の二つの物質について、単相試料の合成と熱伝導率の評価まで行うことができたため。
- 熱伝導率の値も、現行燃料である UO_2 より十分に大きく、人工知能の予測を裏付けるものでもあったため。

3. 研究項目(3)の成果 #1

(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

- 様々な機械学習手法で熱伝導率を予測し、その際の予測精度を比較することで、本研究で選択した機械学習手法（Random Forest）が最も予測精度が高くなることを確かめた。
- 熱伝導率の予測に影響した特徴量の重要度を解析することで、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今回の機械学習モデルは妥当であることを確かめた。

3. 研究項目(3)の成果 #2

表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

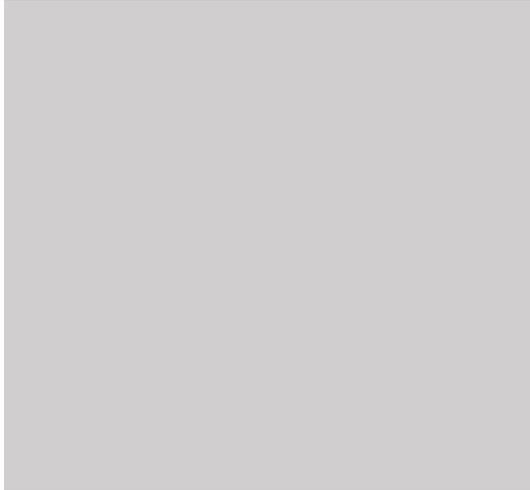


図10 熱伝導率予測に影響した特徴量の重要度 [%]

3. 研究項目(3)の目標達成度

- 目標達成度：目標通りの成果

（理由）

- ここでは、本研究で開発した機械学習モデルの妥当性を、主に、手法と特徴量の観点から評価した。このことは、当初に予定していた通りの内容であり、当初目標通りの成果を得ることができたため。

3. 研究項目(4)の成果 #1

(4)研究推進

- 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。
- 得られた成果を積極的に外部発表した。

3. 研究項目(4)の成果 #2

<論文発表>

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, 日本原子力学会誌, 64巻10号, 569-571 (2022).

<口頭発表>

1. 宮脇佑司、大石佑治、牟田浩明、熊谷将也、黒崎 健、「マテリアルズ・インフォマティクスによる高熱伝導率を持つ新規核燃料材料の開発」、口頭発表、日本原子力学会2022年秋の大会、2022年9月7日～9日、茨城大学日立キャンパス。
2. 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。
3. 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。
4. 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, online.
5. 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, online.
6. 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。

3. 研究項目(4)の目標達成度

- 目標達成度：目標を上回る成果

（理由）

- コロナ禍の中でもオンラインツール等を効果的に活用することで、研究者間で十分な連携を図ることができたため。
- 1.5年間弱という短い研究期間であったが、口頭発表6件、論文（学会誌記事）発表1報の外部発表ができたことは、当初目標を上回るものであったため。

4. 成果の新規性と研究効果 #1

- 成果の新規性

- 従来からある試行錯誤的な手法ではなく、人工知能の機械学習という手法でもって、高い熱伝導率を示しうるウラン化合物を探索・発見することができた。世界で初めての成果であり、新規性は高い。
- 本研究は、伝統的な核燃料研究に最先端のデータ科学研究を組み合わせたものであり、関連分野を見渡しても同様の事例は皆無である。革新的で独創的な試みであったといえる。

4. 成果の新規性と研究効果 #2

- 研究効果

- 熱電材料や磁性材料といった機能性材料開発の分野で進展しているマテリアルズ・インフォマティクスを、核燃料研究に初めて適用した。
- 結果、高熱伝導率ウラン化合物としてUYb₃、USiNi、UNiSn、UCuSnなどを提案し、その中からUSiNiを選定し、その熱伝導率を実験的に評価することで、人工知能の予測の妥当性の裏付けまでを行った。
- この一連の成果は、広くマテリアルズ・インフォマティクス分野を見渡しても見事な成功例であり、最先端の材料開発分野に逆輸入できるものと考えている。

5. 関連研究の国内外の状況と今後の課題・方向性 #1

- 関連研究の国内外の状況

- 本研究の特徴の一つに、機械学習の結果をもとに提案した新物質を実際に合成しその特性を実験的に評価したことがあげられる。
- 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。

5. 関連研究の国内外の状況と今後の課題・方向性 #2

- 今後の課題・方向性
 - 本研究を一つのきっかけとして、広く核燃料研究とデータ科学を融合する研究開発の重要性が明確になった。
 - これを踏まえて、京都大学、東北大学、大阪大学、JAEA、NFDがチームを組み（研究代表：黒崎 健）、2022年度の原子カシステム研究開発事業（基盤チーム型）に「データ科学との融合による核燃料研究の新展開」と題した研究課題を申請した。
 - 2022年10月に採択され、2022年11月22日には第1回チーム会議を開催した。順調に研究開発活動を進めている。

6. まとめ

- 本研究のアピールポイント
 - MIと核燃料研究の融合、初めての試み
 - 高熱伝導率ウラン化合物の網羅的探索（951種類のウラン化合物の熱伝導率予測）に成功
 - 機械学習モデルの改良や学習用データベースの拡充まで実施
 - 機械学習のみならず実験研究による裏付けを実施
 - 積極的な外部成果発表
 - 若手・学生の人材育成に貢献（修論、栄転）
 - 新発想型から基盤チーム型への発展

原子力工学と情報工学・データ科学が融合した新しい学問分野・新産業の創生へ