

# 铀、锆以及铀锆合金精确原子间势的深度学习

尹晚秋<sup>1, 2</sup>, 薄 涛<sup>2</sup>, 赵玉宝<sup>1, \*</sup>, 张 蕾<sup>2</sup>, 柴之芳<sup>2</sup>, 石伟群<sup>3</sup>

1. 南华大学 化学化工学院, 湖南 衡阳 421001; 2. 中国科学院 宁波材料技术与工程研究所 先进能源材料工程实验室, 浙江 宁波 315201; 3. 中国科学院 高能物理研究所 核能放射化学实验室, 北京 100049

**摘要:** 铀锆合金作为一体化快堆的重要核燃料, 使用先进的计算方法研究其高温下的基础物理性质意义重大。使用深度势能分子动力学方法分别计算了体心立方铀、锆和铀锆合金材料的基础物理性质, 该方法兼具第一性原理的高精度和经典分子动力学的高效率。首先, 通过使用深度神经网络机器学习训练了体心立方锆(Zr-BCC)、体心立方铀(U-BCC)和体心立方铀锆合金(U-Zr(BCC))的深度势能(DP)模型, 其预测的平衡状态方程、晶格常数、弹性性质和声子谱能够达到第一性原理的精度。接着, 使用 DP 模型预测了 Zr-BCC、U-BCC 和 U-Zr(BCC) 的恒压热容和密度随温度的变化, 并且结果能够很好地与实验值吻合。该研究结果表明机器学习方法为成功探索更复杂的核燃料性质提供了重要的路径。

**关键词:** 铀锆合金; 机器学习; 第一性原理; 分子动力学; 热力学性质

中图分类号: TL214.5; O469 文献标志码: A 文章编号: 0253-9950(2024)05-0450-12

doi: 10.7538/hhx.2024.YX.2023014

## Deep Learning of Accurate Interatomic Potentials for Uranium, Zirconium and Uranium-Zirconium Alloy

YIN Wan-qiu<sup>1, 2</sup>, BO Tao<sup>2</sup>, ZHAO Yu-bao<sup>1, \*</sup>, ZHANG Lei<sup>2</sup>, CHAI Zhi-fang<sup>2</sup>, SHI Wei-qun<sup>3</sup>

1. School of Chemistry and Chemical Engineering, University of South China, Hengyang 421001, China; 2. Engineering Laboratory of Advanced Energy Materials, Ningbo Institute of Materials Technology and Engineering, Chinese Academy of Sciences, Ningbo 315201, China; 3. Laboratory of Nuclear Energy Chemistry, Institute of High Energy Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

**Abstract:** Uranium-zirconium alloy is an important nuclear fuel in Integral Fast Reactor, which is of great significance to study its basic physical properties at high temperature by using advanced calculation methods. This work used deep potential molecular dynamics method, which combines the high accuracy of the first principles with the high efficiency of the classical molecular dynamics, to perform an evaluation of the static and thermophysical properties of body-centered cubic phase zirconium, uranium, and uranium-zirconium alloy. Firstly, the deep potential(DP) models of body-centered cubic zirconium(Zr-BCC), body-centered cubic uranium(U-BCC), and body-centered cubic uranium-zirconium alloy(U-Zr(BCC)) were trained by using deep neural network machine learning. Secondly, the DP models were used to predict equilibrium state equation, lattice constant, elastic properties, and phonon spectrum of the three systems,

收稿日期: 2023-02-13; 修订日期: 2023-05-03

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(12105196)

\* 通信联系人: 赵玉宝

and the predicted results can reach the accuracy of the first principles. Then, the variation of heat capacity and density at constant pressure of Zr-BCC, U-BCC, and U-Zr(BCC) with temperature were predicted by using DP models, and the results are in good agreement with the experimental values. The research results show that the machine learning method provides an important path for successfully exploring more complex nuclear fuel properties.

**Key words:** uranium-zirconium alloy; machine learning; first principles; molecular dynamics; thermodynamic properties

目前核能已发展到了第四代反应堆,其中属于钠冷快堆的一体化快堆因其一体化和增殖的特性而备受关注。一体化快堆使用U-Zr合金和U-Pu-Zr合金作为核燃料,因为这类金属燃料的制造、后处理工艺简单,相较于使用广泛的 $\text{UO}_2$ 来说更易于实现一体化,并且金属燃料是快堆的理想燃料,因为它们比任何其它燃料形式具有更高的裂变和增殖材料密度。而在金属U中掺入Zr可以改善U熔点低的问题,并且Zr属于重元素,保证了反应堆的有效增殖<sup>[1]</sup>。

U-Zr合金的结构较复杂,其固态结构在高温时( $> 1\ 000\ \text{K}$ )主要以 $\gamma$ 相的结构存在<sup>[2]</sup>,但实验上对高温结构的测试存在困难,所以目前U-Zr合金高温相的物理数据存在大量空缺。如今随着密度泛函理论和分子动力学(MD)等计算方法的发展,许多研究者已经开发出利用计算丰富U-Zr合金高温相数据的道路。Aly等<sup>[3]</sup>使用从头算分子动力学(AIMD)研究了 $\gamma$ -(U, Zr)在 $1\ 000\ \text{K}$ 和 $1\ 400\ \text{K}$ 之间的力学和热物理性质,包括平衡体积、体积模量、摩尔热容、生成热和表面能。Moore等<sup>[4]</sup>发展了一种适用于高温 $\gamma$ -(U, Zr)合金相的半经验修正嵌入原子方法势,并用MD模拟研究了U-Zr合金的高温热力学性质,包括定容热容、温压缩系数、绝热指数和Grüneisen参数。Beeler等<sup>[5]</sup>通过基于有限元的燃料性能模拟,研究高温 $\gamma$ -(U, Zr)合金相的表面能对作为燃料函数的孔隙累积的影响,研究表明表面能的增加降低了金属燃料中裂变气体膨胀的速率,了解了其膨胀的实际过程和机理。但是目前的计算方法还存在很多不足,比如第一性原理的计算很昂贵,并且模拟的空间和时间尺寸都小;经典力场分子动力学模拟的结果精度不够高,特别是当用于描述多组分合金系统或复杂缺陷时。

最近机器学习深度势能(DP)<sup>[6-8]</sup>的发展有效地解决了以上问题,能够兼具计算精度高、模拟

的空间和时间尺度大、耗时短的优点。基于深度神经网络的DP模型可以通过对丰富的原子构型的密度泛函理论(DFT)能量和力的数据集进行训练,提供DFT水平的精确原子间势。训练有素的深度神经网络势能可用于进行MD模拟,且能保持DFT的精度。机器学习DP模型的实用性已被广泛证明<sup>[6]</sup>。Zhang等<sup>[9]</sup>使用深度势生成器(DP-GEN)主动学习,构建了对Al-Mg合金精确的和可转移的势能面(PES)模型。Wang等<sup>[10]</sup>提出了三体嵌入描述符与二体嵌入描述符杂化训练的DP模型,能够很好地应用于钨性能退化的原子模拟,特别是那些涉及在苛刻的聚变服役环境下机械性能退化的原子模拟。

本工作拟应用机器学习软件DP-GEN<sup>[9, 11]</sup>训练体心立方铀(U-BCC)、体心立方锆(Zr-BCC)和体心立方铀锆合金(U-Zr(BCC))的DP模型。通过与DFT的晶格常数、平衡状态方程、弹性常数、弹性模量和声子谱的结果比较,初步验证DP模型的准确性。然后进一步预测U-BCC和Zr-BCC的恒压热容及密度,与实验值进行比对,以证明DP模型对热力学性质描述的准确性。最后预测U-Zr(BCC)在不同计量比下的热力学性质,以补充实验上U-Zr合金高温相热力学性质的数据。

## 1 计算方法

使用深度势能分子动力学方法训练铀、锆以及铀锆合金的力场,并进行MD模拟<sup>[9, 11]</sup>。深度势能分子动力学方法因“结合分子建模、机器学习和高性能计算相关方法,将具有从头算精度的MD模拟的极限提升至1亿个原子规模”斩获国际高性能计算应用领域的最高奖项戈登·贝尔奖。首先,使用DP-GEN软件<sup>[11]</sup>探索宽泛的结构空间,并经过第一性原理计算来构造丰富的训练数据集。DP-GEN的结构空间探索是一个循环迭代的过程,每一次迭代的工作流程主要由以下三

个步骤组成: 训练、探索和标记。(1) 训练 DP 模型前需要准备初始数据集, 初始数据集由对材料结构进行简单的缩放、变形及微扰, 并经过能量、力和维里张力的密度泛函理论(DFT)计算得到。(2) 通过深度神经网络训练初始数据集得到多个 DP 模型, 将其中一个模型用于探索不同温度和压力下的结构空间, 探索的方法主要包括 MD、蒙特卡罗(MC)、结构优化或增强采样这类模拟技术。(3) 根据这些 DP 模型预测的原子力的最大标准偏差, 选取具有较大误差的构型做标记, 将这部分构型用于能量、力和维里张力的 DFT 计算, 作为新的数据集加入到下一轮迭代中训练。当所有探索的结构都符合最大力标准偏差的判据时, 迭代达到收敛, 说明当前的数据集足够丰富和有效, 用这些数据集训练得到的力场对于较大的温度范围和较长的时间尺度具有普适性。最后, 对所有的数据集进行一次更长步数的训练, 得到高精度力场, 进而使用训练得到的力场对材料进行 MD 模拟。以下将简洁介绍计算中机器学习、第一性原理和 MD 的具体细节和关键参数。

### 1.1 初始数据集

分别构造了 Zr-BCC、U-BCC 以及 U-Zr(BCC) 的初始数据集。初始数据集的构造通过以下三个步骤: (1) 对于 Zr-BCC 和 U-BCC, 将 DFT 优化好的体心立方(BCC)原胞结构, 扩胞成  $2 \times 2 \times 2$  的超胞(16 个原子); 对于 U-Zr(BCC) 是通过将 U-BCC 的  $2 \times 2 \times 2$  (16 个原子)、 $3 \times 2 \times 2$  (24 个原子) 的超胞随机掺杂 Zr 原子构成, 其中包含  $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 、 $U_{0.5}Zr_{0.5}$  和  $U_{0.25}Zr_{0.75}$  三种浓度; (2) 对以上超胞结构进行缩放、变形和微扰, 以 2% 的步长在 96%~104% 范围内改变晶格参数, 超胞矢量在原矩阵的  $\pm 3\%$  范围内随机扰动, 原子位置则在  $\pm 0.01 \text{ \AA}$  ( $1 \text{ \AA} = 0.1 \text{ nm}$ ) 的范围内被随机扰动; (3) 用上一步得到的微扰结构做 AIMD 模拟, 在使用 Nose-Hoover 恒温器<sup>[12]</sup>控制下的 NVT 系综中运行, 步长设置为 1 fs; 三个体系温度和模拟时间如下: Zr-BCC 温度取 50 K, 运行 5 步; U-BCC 温度取 400、800、1200、1600 K, 运行 3 步; U-Zr(BCC) 温度取 1800 K, 运行 3 步。最后收集的所有能量、力和维里张量作为初始数据集。

### 1.2 结构空间探索

用 DeePMD-kit<sup>[13]</sup> 支持编译的 LAMMPS 软件包<sup>[14]</sup> 来执行基于 DP 模型的 MD 模拟, 以探索结

构空间。Zr-BCC、U-BCC 和 U-Zr(BCC) 每一次迭代的结构空间探索策略见增强材料的表 S1、S2 和 S3 (详见中国知网该文的附加材料)。在探索过程中, 相同的超参数但不同的随机种子训练的四个 DP 模型预测的力偏差被用来估计原子力预测中的误差。如果原子力的最大标准偏差在  $[0.05, 0.15] \text{ eV/\AA}$  (对于 Zr-BCC) 或  $[0.15, 0.25] \text{ eV/\AA}$  (对于 U-BCC 和 U-Zr(BCC)) 范围内, 则对相应的结构进行标记。

### 1.3 标记

被标记的候选结构将通过 DFT 计算其能量、力和维里张量。在本工作中, DFT 模拟使用维也纳从头模拟软件包 (Vienna *ab initio* simulation package, VASP)<sup>[15-16]</sup> 和投影增强波 (projector-augmented wave, PAW)<sup>[17]</sup> 方法完成, 化合物的总能量通过考虑在 Perdew-Bruke-Ernzerhof 广义梯度近似 (PBE-GGA)<sup>[18]</sup> 内 Kohn-Sham 方程中的交换相关势部分来计算。对于 Zr-BCC 体系, 平面波的截断能设置为 450 eV, 布里渊区采用 Monkhorst-Pack 方法采样, 网格密度为  $0.4 \text{ \AA}^{-1}$ ; U-BCC 和 U-Zr(BCC) 体系的截断能和网格密度分别设置为 600 eV 和  $0.18 \text{ \AA}^{-1}$ 。所有体系自洽场迭代的收敛标准均设置为  $10^{-6} \text{ eV}$ 。

### 1.4 训练 DP 模型

在每一次迭代中, 均会同时训练四种模型, 采用相同的训练数据集以及超参数, 唯一不同的是每个模型的种子数是随机且不一致的。截断半径设置为  $7 \text{ \AA}$ , 网络结构中的  $1/r$  项由从  $0.1 \text{ \AA}$  到  $7 \text{ \AA}$  的余弦函数平滑地转换, 从而消除了由于截断而引起的不连续性<sup>[9]</sup>。使用的描述符是 Deep Potential Smooth Edition (DeepPot-SE)<sup>[8]</sup>, 由原子构型的角度和径向信息构建而成。神经网络的嵌入网格和拟合网格的隐藏层大小分别为 (25, 50, 100) 和 (240, 240, 240)。训练深度神经网络使用的激活函数是 tanh。学习率以指数形式衰减, 从开始的  $1 \times 10^{-3}$  减小到最终的  $1 \times 10^{-8}$ 。损失函数 ( $L$ ) 定义如下<sup>[19]</sup>:

$$L(p_\epsilon, p_F, p_\xi) = p_\epsilon \Delta\epsilon^2 + \frac{p_F}{3N} \sum_i |\Delta F_i|^2 + \frac{p_\xi}{9} \|\Delta\xi\|^2 \quad (1)$$

式中:  $\Delta\epsilon$ 、 $\Delta F_i$ 、 $\Delta\xi$  表示 DP 模型预测和训练数据集 (来自 DFT 计算) 之间的能量、力和维里张量之差;  $p_\epsilon$ 、 $p_F$ 、 $p_\xi$  分别是能量、力和维里张量的权重因子; 在训练过程中,  $p_\epsilon$  从 0.02 增加到 1,  $p_F$  从 1000 减小到 1,  $p_\xi$  从 0.01 增加到 0.1。

在 DP-GEN 迭代过程中, DP 模型的训练步数

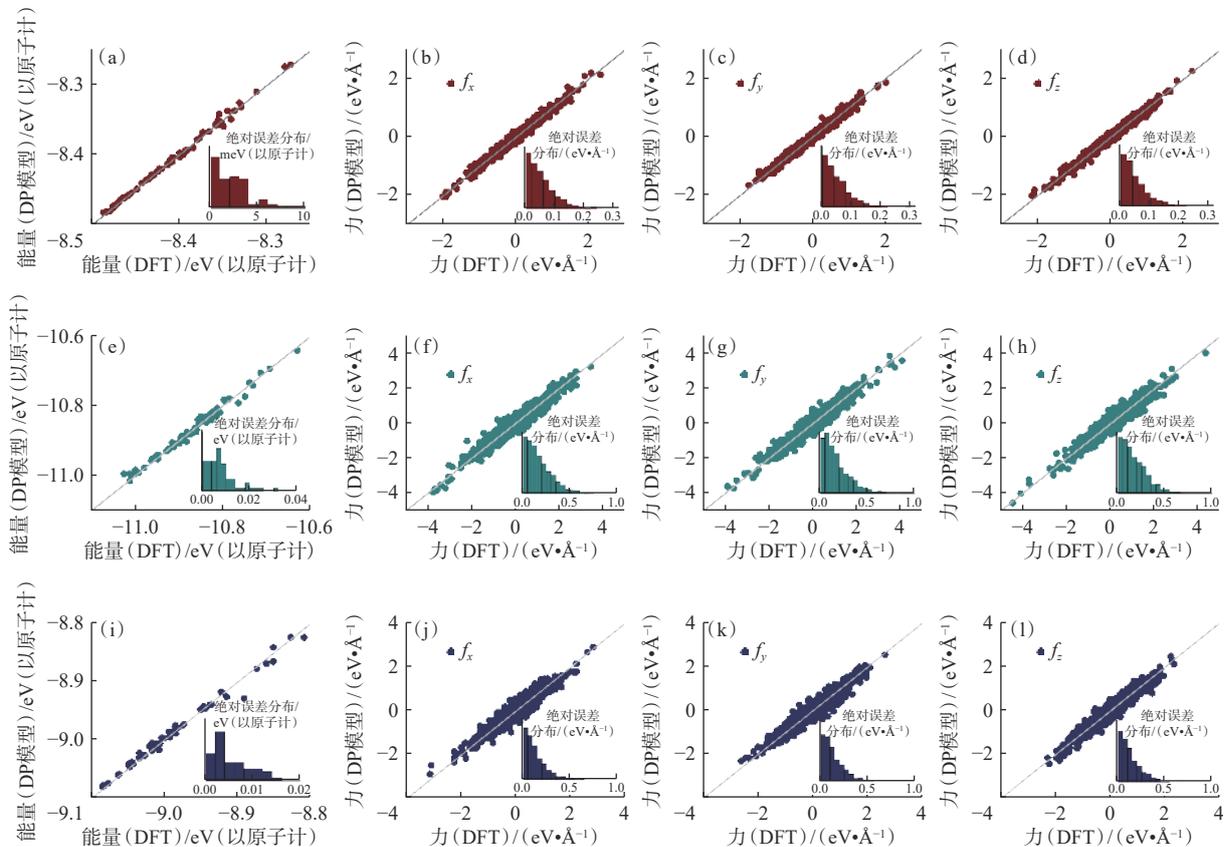
随着数据集增多由第一轮 $1 \times 10^5$ 步,增加到最后一轮的 $3 \times 10^5$ 步。当迭代达到收敛后,三个体系最终的DP模型训练步数分别为 $1 \times 10^6$ 步、 $2 \times 10^6$ 步和 $2 \times 10^6$ 步。三个DP模型在训练过程中能量和力的均方根误差随训练步数的变化见增强材料的图S1(详见中国知网该文的附加材料)。

## 2 结果与讨论

### 2.1 DP模型精度

为了验证训练的DP模型的准确性,使用最终的DP模型和DFT计算测试数据集,比较两者之

间的能量和原子力的误差(图1),其中图1的插图显示了绝对误差的分布。如图1所示,DP模型与DFT结果吻合的很好,Zr-BCC的能量误差在 $10^{-4} \sim 10^{-3}$  eV(以原子计)量级之间,而力的误差在 $10^{-2} \sim 10^{-1}$  eV/Å量级之间(图1(a—d))。U-BCC的能量和力的误差分别在 $10^{-2} \sim 10^{-3}$  eV(以原子计)和 $10^{-1} \sim 10^{-2}$  eV/Å量级之间(图1(e—h))。U-Zr(BCC)的误差分布与U-BCC相近(图1(i—l))。这表明,基于深度神经网络的DP模型表现出色,能够在很少人为干预的情况下学习复杂且高度非线性的能量泛函。



插图表示绝对误差的分布(横坐标代表绝对误差的绝对值,纵坐标代表绝对误差分布百分比;下同)

(a—d)——Zr-BCC; (e—h)——U-BCC; (i—l)——U-Zr(BCC)

$f_x, f_y, f_z$  分别为  $x, y, z$  轴向的原子力

图1 使用DP模型预测材料的能量及原子力结果与DFT计算结果的比较

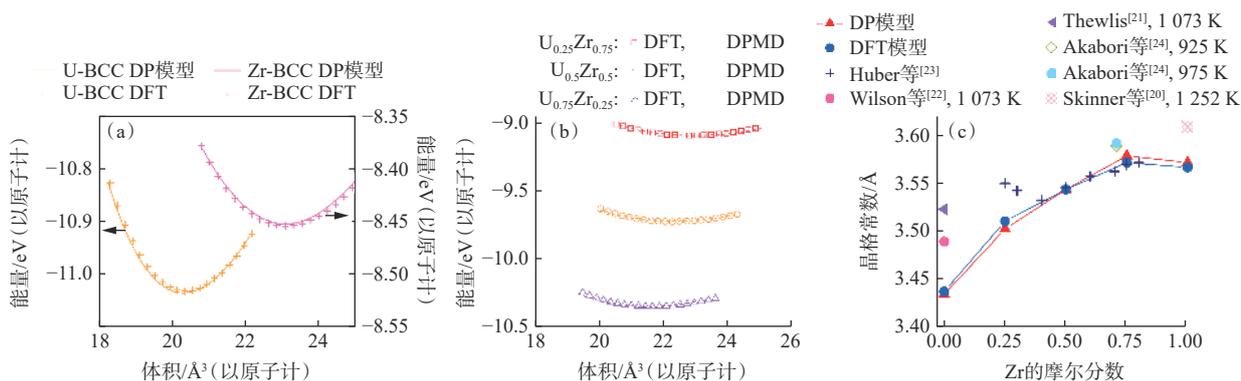
Fig. 1 Comparison of DP and DFT predicted energies and atomic forces of materials

### 2.2 DP模型预测晶体的力学性质和声子色散

为了进一步证明DP模型的可靠性,对比了DP模型对平衡状态方程、弹性常数、弹性模量以及声子谱的预测结果与DFT的模拟值之间的误差。分别使用DP模型和DFT计算了Zr-BCC、U-BCC

和U-Zr(BCC)三个体系在0 K下的物理性质,包括平衡状态方程、弹性常数和弹性模量,另外还计算了Zr-BCC和U-BCC的声子谱(图2)。

如图2(a)所示,Zr-BCC和U-BCC的平衡状态方程图中曲线代表了DP模型的预测结果,点代



(a)——Zr-BCC 和 U-BCC 的平衡状态方程; (b)—— $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 、 $U_{0.5}Zr_{0.5}$ 、 $U_{0.25}Zr_{0.75}$  的平衡状态方程;

(c)——0 K 下晶格常数与 Zr 浓度的关系以及对应的实验值<sup>[20-24]</sup>

图 2 DP 模型预测的平衡状态方程和晶格常数与 DFT 结果的比较

Fig. 2 Comparison of DP and DFT predicted equilibrium state equations and lattice constants

表的是 DFT 模型的计算结果, 曲线和点基本重合表明 DP 模型预测的体积和能量关系能达到 DFT 的精度。图 2(b) 中列出了 U-Zr 合金三种配比 ( $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 、 $U_{0.5}Zr_{0.5}$ 、 $U_{0.25}Zr_{0.75}$ ) 的平衡状态方程, 从图中可以看出 DP 模型预测的结果与 DFT 模型计算的结果十分相近, 说明训练好的 DP 模型可以准确地进行结构优化和能量预测。图 2(c) 为 DP 模型预测的三种体系在 0 K 下的晶格常数, 与 DFT 的计算结果十分一致, 证明了该模型对晶格常数预测的精度很高。图 2(c) 中同样标出了实验值的晶格常数。Skinner 等<sup>[20]</sup> 在 1 252 K 下测得了 Zr-BCC 的晶格常数为 (3.608 9±0.002 0) Å, 由于是高温测得值所以比计算值略高。Thewlis<sup>[21]</sup> 使用 X 射线测试出 U-BCC 在 1 073 K 下的晶格常数为 3.524 Å。Wilson 等<sup>[22]</sup> 同样使用 X 射线测试出晶格常数在 1 073 K 下为 3.49 Å, 这个值是从 Debye Scherrer 图中得到的, 该图没有延伸到背反射区域, 故缺乏精度。以上两个 U-BCC 的实验值均比计算值高, 考虑到实验值是在高温条件下测得的, 由于热膨胀故高于计算值。Huber 等<sup>[23]</sup> 使用快速淬火技术从熔融态生产单相 BCC 固溶体 U-Zr 合金, 他们测试样品晶格常数时也确认了 U-Zr 合金依然保持着体心立方相存在。当 Zr 的摩尔分数  $M_{Zr}$  在 [0.4, 0.8] 区间时, DP 计算结果与 Huber 等<sup>[23]</sup> 的实验值几乎一致, 并且两者在该范围内均趋近于线性增加; 而在  $M_{Zr}=[0.2, 0.4]$  区间内则略低于实验值, 由于这些合金显示了宽的 X 射线, 该结果的作者认为从富铀合金的原子体积明显增加中不能得出相关的结

论。Akabori 等<sup>[24]</sup> 在高温下采用粉末中子衍射分析得到了 BCC 相 U-70.7%(原子百分数) Zr 合金的晶格常数, 由于测试时的温度分别为 925 K 和 975 K, 故实验结果略高于计算值。DP 模型得到的晶格常数整体上符合维加德定律, 在  $M_{Zr}=[0.75, 1]$  区间发生减小的变化有可能是无掺杂的 Zr-BCC 结构更紧密导致的。

弹性常数和弹性模量是基本的材料性质, 因为它们反映了与势能的二阶导数密切相关的化学键的强度。表 1 列出了 DP 模型和 DFT 计算的 Zr-BCC、U-BCC、 $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 、 $U_{0.5}Zr_{0.5}$  和  $U_{0.25}Zr_{0.75}$  关键的弹性常数和弹性模量。图 3 直观地描绘出了 DP 模型与 DFT 之间的误差大小, 可以看出两者计算的弹性常数十分接近, 其中图 3(a) 的插图表示 DP 和 DFT 计算的 Zr-BCC 和 U-BCC 的弹性常数和弹性模量的绝对误差小于 20 GPa, 图 3(b) 表示 U-Zr 合金弹性常数的绝对误差小于 40 GPa。此外, DP 模型预测的弹性模量与 DFT 结果一致性很高, 能够很好地再现 DFT 精度的力学性质。并且在本工作中  $U_{0.5}Zr_{0.5}$  和  $U_{0.25}Zr_{0.75}$  的弹性性质计算样本的结构信息并没有加入到训练数据集中, 以上结果说明了 DP 模型的准确性以及可转移性。同时, 发现随着 Zr 浓度的增加, 弹性模量并不是线性变化的, 说明材料的抗变形能力与材料中 U、Zr 的配比有着复杂的关系。一般泊松比 ( $\nu$ ) 的变化范围在 0~0.5 之间, 本工作计算的结果表示在 0 K 下材料的  $\nu$  均大于 0.35, 故认为这些材料质地均比较软。

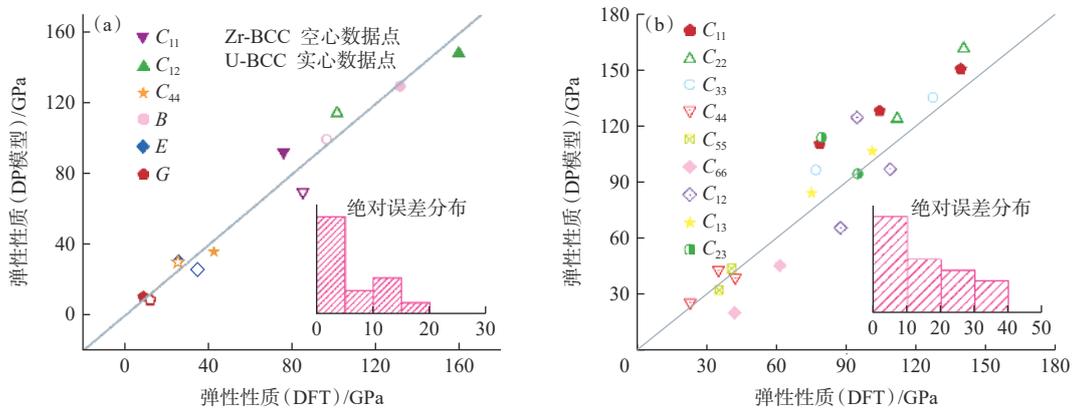
为了验证 DP 模型对材料声子色散计算的准

表1 DP模型和DFT计算的Zr-BCC、U-BCC、 $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 、 $U_{0.5}Zr_{0.5}$ 和 $U_{0.25}Zr_{0.75}$ 的弹性常数和弹性模量

Table 1 Elastic constants and modulus of Zr-BCC, U-BCC,  $U_{0.75}Zr_{0.25}$ ,  $U_{0.5}Zr_{0.5}$  and  $U_{0.25}Zr_{0.75}$  calculated by DP model and DFT

物理量		U-BCC	Zr-BCC	$U_{0.75}Zr_{0.25}$	$U_{0.5}Zr_{0.5}$	$U_{0.25}Zr_{0.75}$	
弹性常数 $C_{ij}$ /GPa	$C_{11}$	<b>92.05</b> 75.48	<b>69.83</b> 84.67	<b>150.81</b> 139.25	<b>110.81</b> 78.60	<b>128.49</b> 104.32	
	$C_{22}$			<b>161.64</b> 140.52		<b>124.25</b> 111.98	
	$C_{33}$			<b>135.61</b> 127.31		<b>96.88</b> 76.93	
	$C_{44}$	<b>36.17</b> 42.4	<b>29.35</b> 25.64	<b>26.44</b> 22.95	<b>39.77</b> 42.34	<b>43.86</b> 35.10	
	$C_{55}$			<b>33.17</b> 35.40		<b>44.64</b> 40.76	
	$C_{66}$			<b>46.37</b> 61.52		<b>20.95</b> 42.05	
	$C_{12}$	<b>148</b> 158.83	<b>114.13</b> 101	<b>124.97</b> 94.68	<b>97.42</b> 108.91	<b>66.40</b> 87.50	
	$C_{13}$			<b>107.07</b> 101.14		<b>84.89</b> 75.15	
	$C_{23}$			<b>114.27</b> 79.39		<b>94.88</b> 95.00	
	体弹模量 $B$ /GPa		<b>129.35</b> 130.95	<b>99.36</b> 95.96	<b>127.52</b> 120.34	<b>101.91</b> 92.47	<b>93.15</b> 95.87
		剪切模量 $G$ /GPa	<b>10.52</b> 8.79	<b>8.75</b> 12.12	<b>27.98</b> 30.89	<b>26.49</b> 23.48	<b>28.81</b> 28.02
	杨氏模量 $E$ /GPa		<b>30.71</b> 25.79	<b>25.51</b> 34.88	<b>78.22</b> 85.36	<b>73.12</b> 64.94	<b>78.34</b> 76.61
		泊松比 $\nu$	<b>0.46</b> 0.47	<b>0.46</b> 0.44	<b>0.40</b> 0.38	<b>0.38</b> 0.38	<b>0.36</b> 0.37

注: 黑体数据为DP模型的结果, 其他数据为DFT结果



插图表示绝对误差的分布: (a)——Zr-BCC和U-BCC; (b)—— $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 、 $U_{0.5}Zr_{0.5}$ 、 $U_{0.25}Zr_{0.75}$

图3 DP模型预测的弹性性质与DFT结果的比较

Fig. 3 Comparison of DP and DFT predicted elastic properties

准确性, 计算了Zr-BCC和U-BCC在0 K下的声子散射谱(图4)。声子色散曲线是根据密度泛函微扰

理论(DFPT)方法[25]计算得到的。先使用VASP或LAMMPS软件获得力, 再通过PHONOPY[26]计

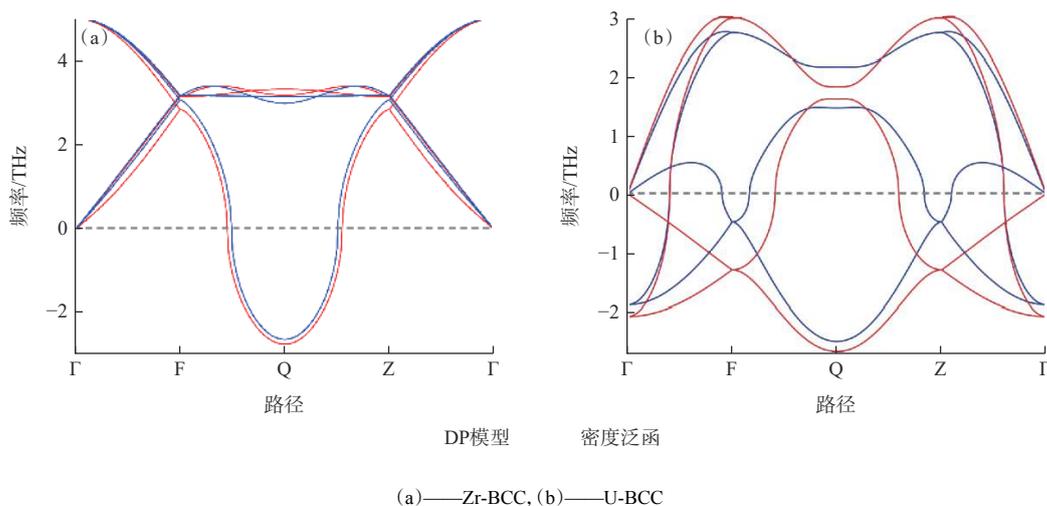


图4 DP模型预测的声子散射谱与DFT结果的比较  
Fig. 4 Comparison of DP and DFT predicted phonon spectra

算获得二阶力常数。在这里,由于U-Zr合金结构的高度不对称性及其复杂性,所以不做U-Zr合金的声子谱对比。声子谱的精确预测需要对不同相的局部最小值周围的二阶导数信息具有良好的描述,这部分信息没有加入到DP-GEN的训练过程中。从图4可以看出,DP模型预测的Zr-BCC和U-BCC的声子谱与DFT结果基本一致,说明本工作训练的DP模型能够很好地预测声子谱的信息。此外,如果在训练数据集中添加用于计算声子谱的微扰结构,将进一步提高DP模型对这一性质的预测精度。

### 2.3 恒压热容

通过上一节DP模型对材料静态性质准确预测后,可以进一步对材料的热力学性质进行探究。第一性原理对计算复杂结构的热力学性质需要耗费昂贵的机时。所以对于复杂的材料来说运用MD来预测材料的热力学性质更经济。

热容( $C_p$ )是用于衡量物质所包含的热量的物理量,在核燃料的实际应用中是很重要的一个标量。对于固态金属来说,其热容来自于晶格热容和电子热容两方面的贡献<sup>[3]</sup>。晶格热容可以通过在LAMMPS<sup>[14]</sup>中执行MD模拟研究恒压热容与温度的关系得到。模拟的对象是一个具有周期性边界条件的 $15 \times 15 \times 15$ 体心立方超胞(6750个原子),在Nose-Hoover恒温器<sup>[12]</sup>控制的NPT系综中进行。时间步长为1 fs,在多个特定温度下运行100 ps以使体系达到平衡,然后继续运行300 ps,用来进行数据的统计,最终得到各个特定温度下

体系的热值,通过以下方程计算得到晶格热容<sup>[3]</sup>:

$$C_p = \frac{H_2 - H_1}{T_2 - T_1} \quad (2)$$

式中: $H$ 和 $T$ 分别是状态1和状态2下系统的焓和温度。电子热容源自基态电子激发到传导态的过程,因此电子热容与费米能级下的态密度(DOS)成比例。电子热容( $C_{el}$ )可用式(3)计算<sup>[3]</sup>:

$$C_{el} = \frac{\pi^2}{3} k_B^2 D(\epsilon_f) = \gamma_e T \quad (3)$$

式中: $\epsilon_f$ 是费米能级, $D(\epsilon_f)$ 是费米能级下的DOS, $k_B$ 是玻尔兹曼常数, $\gamma_e$ 是电子热容系数。Xie等<sup>[27]</sup>已研究了U-Zr合金的DOS,并拟合出了与U-Zr合金浓度相关的电子热容系数 $\gamma_e$ <sup>[3]</sup>:

$$\gamma_e = 7.304 \times c^3(\text{Zr}) - 11.853 \times c^2(\text{Zr}) - 0.231 \times c(\text{Zr}) + 7.634 \quad (4)$$

根据式(3)可以得到相应浓度及温度下的U-Zr合金的电子热容。

图5为DP模型预测的Zr-BCC、U-BCC和U-Zr(BCC)三个体系的恒压热容以及实验值和经验势能的计算值<sup>[28-44]</sup>。Zr-BCC的 $C_p$ 如图5(a)所示,在1100 K下 $C_p$ 为27.82 J/(mol·K),随着温度逐渐升高到2000 K热容也增加到了37.69 J/(mol·K),整个变化过程中 $C_p$ 在1800~2000 K时升高的很明显,在这200 K内 $C_p$ 增加了大约5 J/(mol·K)。从图中红线代表的DP模型预测值与实验值比较可以看出它们一致性很高,在<1800 K时计算值与多个实验结果<sup>[28-31]</sup>几乎重合。Petrova等<sup>[32]</sup>使用的亚秒脉冲加热试样,确保了实验接近绝热的

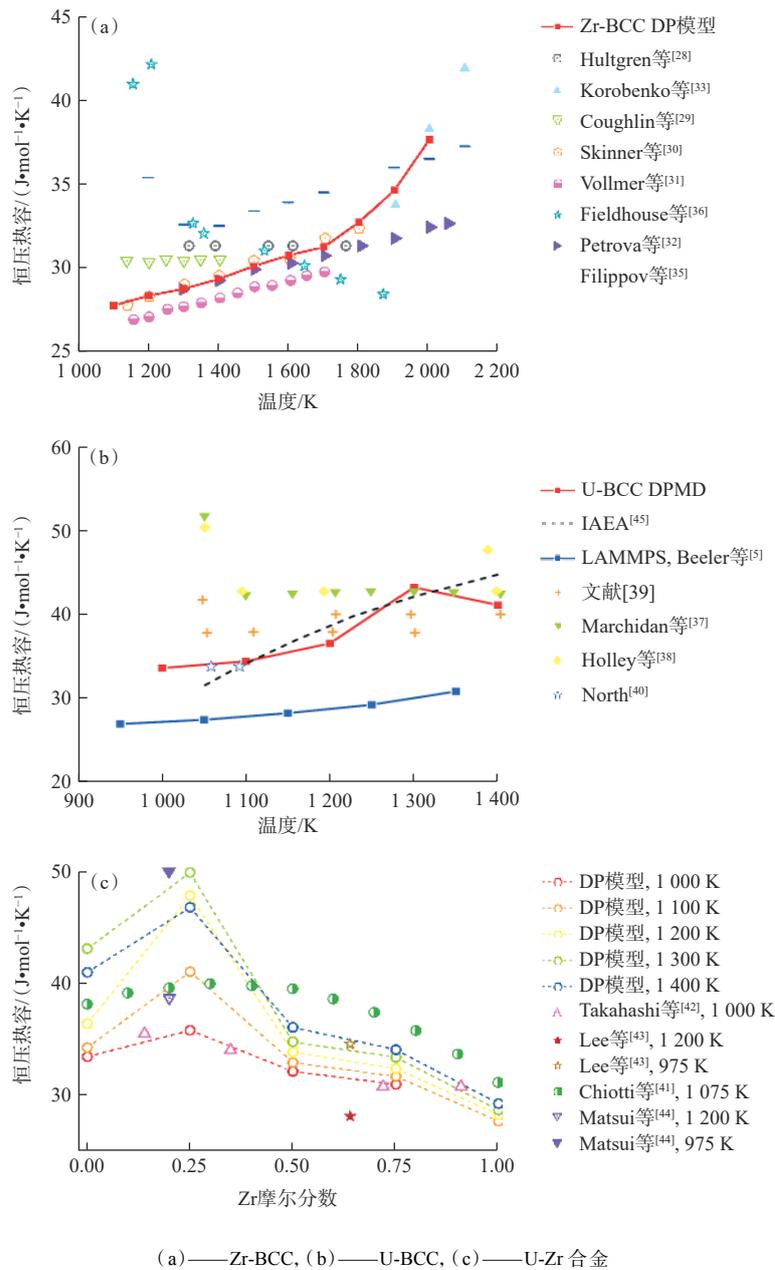


图5 DP模型预测的恒压热容与温度的关系图(其中列举了诸多实验值和计算值<sup>[28-44]</sup>)  
 Fig. 5 Effect of temperature on heat capacity at constant pressure predicted by DP model,  
 which lists many experimental and calculated values<sup>[28-44]</sup>

条件,在最高温度为2 100 K时辐射热损失的修正不超过输入能量的10%。计算结果与Petrova等<sup>[32]</sup>的实验结果在<1 800 K时基本一致,但随着温度增高,计算结果逐渐高于实验值。Korobenko等<sup>[33]</sup>使用了加热速率非常快(约 $10^8$  K/s)的脉冲加热技术得到了>1 800 K时Zr-BCC的 $C_p$ ,实验结果出现了与计算值十分相像的趋势,随着温度的增高热容显著增大。但是Milošević等<sup>[34]</sup>指出Korobenko等<sup>[33]</sup>得到该实验结果可能归因于点缺陷的存在。Filippov等<sup>[35]</sup>记录的使用感应加热方法得到

的 $C_p$ 整体略高于计算值。Fieldhouse等<sup>[36]</sup>的 $C_p$ 结果在相变温度附近出现了一个很高的值,在之后的升温过程中逐渐变小的趋势很明显,这一结果与其他实验值很不一样。

在图5(b)中,红线描绘了U-BCC的热容随温度变化关系。 $C_p$ 从1 000 K时的33.58 J/(mol·K)增加到1 300 K下的43.23 J/(mol·K),但在1 400 K处 $C_p$ 出现稍微下降的情况(41.11 J/(mol·K)),可能是U达到熔点(约1 407 K)时发生相变产生的一点误差。对比多个实验值可以发现,U-BCC的

DP模型预测值在实验值的范围之内,说明 $C_p$ 计算结果准确性很高。Beeler等<sup>[5]</sup>使用经验势能计算的数值相对偏低,是因为他们未考虑电子热容。Marchidan等<sup>[37]</sup>通过使用与等温夹套块型量热计相结合的滴液技术测量U-BCC温度变化,该温度变化之后被转换成焓变化,从而得到U-BCC的热容。Marchidan等<sup>[37]</sup>的 $C_p$ 结果与Holley等<sup>[38]</sup>的结果十分相近,但略高于文献<sup>[39]</sup>的实验结果。Marchidan等<sup>[37]</sup>提到这种差别可能是由实验技术精确度、铀样品的相对纯度和样品在实验过程中的加热系统等原因引起的。上面提到的三个实验值的共同点是在大约1050 K附近的 $C_p$ 相对其他温度时明显更高,这是因为在1050 K温度附近存在着四方晶系到体心立方的相变,而四方晶系铀的 $C_p$ 比体心立方铀的高,所以在该温度下存在明显高的 $C_p$ 值。North<sup>[40]</sup>在保证真空绝热的条件下用电将试样加热得到U在低于1100 K时的比热容, $C_p$ 与计算值几乎重叠,但该实验值明显小于其他实验值。

以上结果说明了DP模型对两个纯金属的热容预测准确性很好,接下来可以进一步计算U-Zr合金的热容。如图5(c)所示,列出了U-Zr合金( $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 、 $U_{0.5}Zr_{0.5}$ 和 $U_{0.25}Zr_{0.75}$ )以及U和Zr在1000~1400 K之间的热容变化关系,并且还有一部分实验值做了对比。从整体的趋势看,随着Zr浓度的增加,热容逐渐减小,从开始纯U时的33.58~43.23 J/(mol·K)减小到了纯Zr时的27.82~29.4 J/(mol·K)。另外,热容基本上是随温度的增大而增大,且随着Zr浓度的增大,热容对温度的敏感度降低,可以看出纯U时1000 K和1400 K之间的 $C_p$ 差了7.53 J/(mol·K),而到纯Zr时1100 K和1400 K之间的 $C_p$ 差减小到了1.58 J/(mol·K)。但从图中可以明显地看到 $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 的热容变化比较特殊, $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 的 $C_p$ 达到了最大值。这种现象也可以从实验之中看出,Chiotti等<sup>[41]</sup>在1075 K下得到的 $C_p$ 是先在 $M_{Zr}<0.3$ 的区间增大,然后在 $M_{Zr}>0.3$ 的区间减小。总体来说,DP模型预测的热容值以及变化趋势与实验值的吻合度很高。Takahashi等<sup>[42]</sup>使用激光闪光量热法测定了Zr摩尔分数为14%、35%、72%和91%的四种U-Zr合金在1000 K下的热容,在 $M_{Zr}=72\%\sim 91\%$ 之间出现的小峰对应的是U-Zr相图中对应的相变,计算值与该实验值基本重合。而Chiotti等<sup>[41]</sup>得到的1075 K下的热容值比本工作

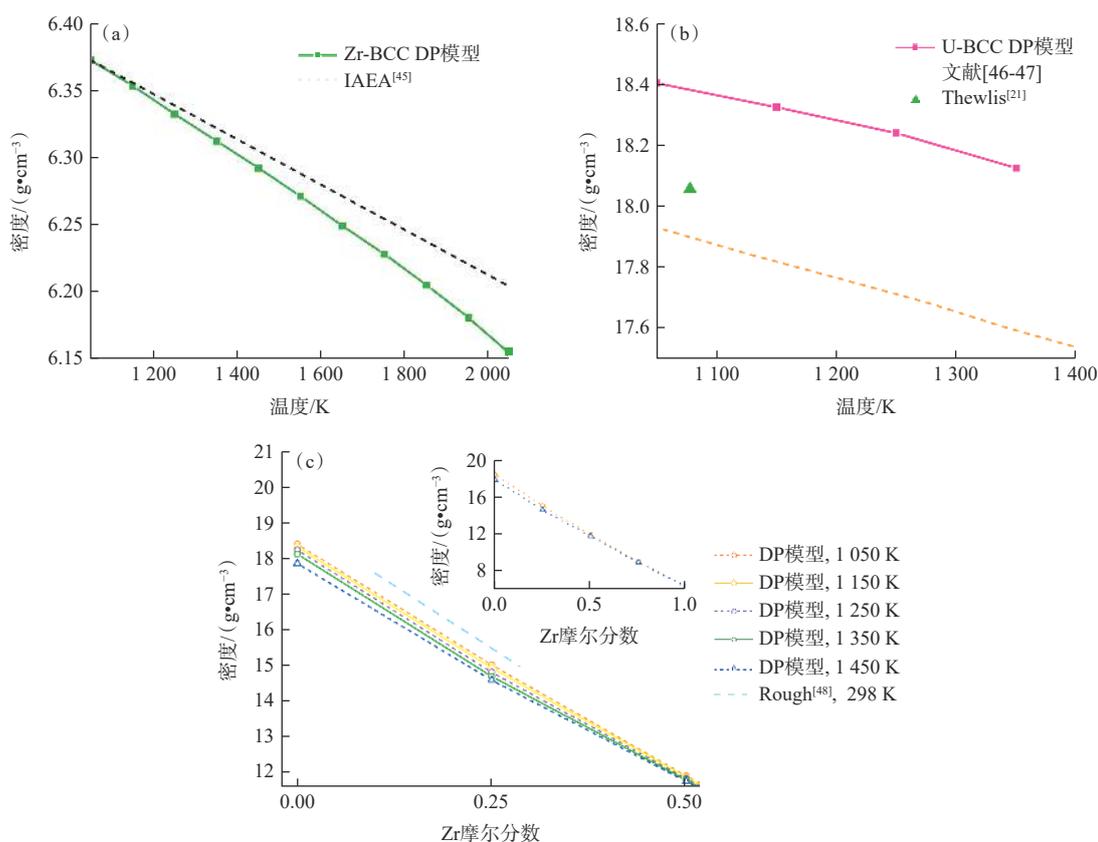
的计算值略高,但是整体趋势一致。Lee等<sup>[43]</sup>用差示扫描量热法测定了未辐照和辐照金属Zr-w=40%U燃料在50~1000 °C之间的比热容,其中U-Zr合金的体心立方相随着温度的增加逐渐减小,图中描绘出了 $C_p$ 从975 K的34.7 J/(mol·K)减小到1200 K的28.27 J/(mol·K)。计算值在1200 K时比该实验值略高。Matsui等<sup>[44]</sup>在975 K和1200 K下分别研究了 $U_{0.8}Zr_{0.2}$ 的热容,发现其热容在975 K时比在1200 K时更高。前面两种实验现象都是由于U-Zr合金发生相变导致的。总的来说现有的实验数据与计算值吻合的很好,说明本工作训练的力场可以很好地描述U-Zr合金在高温下的热容。但由于缺乏实验数据,所以 $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 的热容数据还有待探究,本工作数据可作为一个参考。

#### 2.4 密度

同样,通过各个温度下用NPT系综进行MD模拟,得到了各个温度下材料的体积,进而得到了密度值。图6描绘了Zr-BCC、U-BCC和U-Zr合金的密度随温度的变化,并与实验值做了对比。图6(a)中Zr-BCC的密度在计算温度范围内(1050~2050 K)从6.373 g/cm<sup>3</sup>均匀地减小到了6.155 g/cm<sup>3</sup>。根据国际原子能机构(IAEA)的报告<sup>[45]</sup>可得到298~2128 K之间Zr的密度-温度拟合关系,本工作计算值在1200 K附近与实验值基本一致,但随着温度的增加预测值逐渐低于实验值,在2050 K时比实验值低约0.05 g/cm<sup>3</sup>,即便如此,DP预测的密度值与实验相差不足1%,也具有非常高的准确性。

图6(b)中预测的U-BCC密度随温度增加从18.407 g/cm<sup>3</sup>下降到18.128 g/cm<sup>3</sup>,呈现线性减小的趋势。密度实验值是通过热膨胀系数值转换而来的,相比较计算值略比实验值高约0.5 g/cm<sup>3</sup>,但整体的变化趋势与实验值一致。Thewlis<sup>[21]</sup>的实验值是从2.2节中的晶格常数得到的,同一温度下密度值略高于文献<sup>[46-47]</sup>的结果。以上数据说明DP模型对材料密度的预测值准确度很高。

图6(c)是不同配比的U-Zr合金的密度与温度的关系变化图,其中大图是Zr摩尔分数在0~0.5范围内的密度变化,插图是Zr摩尔分数在0~1范围内的密度变化。从插图中可以看出,密度的大小与Zr摩尔分数几乎呈线性关系。此外,在Zr摩尔分数大于0.5时,温度对密度的影响十分



(a)——Zr-BCC; (b)——U-BCC; (c)——U-Zr 合金, 其中插图为 1 050 K 和 1 450 K 下 U-Zr 合金在  $M_{Zr}=[0,1]$  区间内的密度变化

图 6 DP 模型预测的材料密度与温度的关系图

Fig. 6 Effect of temperature on material density predicted by DP model

的小, 而从大图中可以看到, 在 Zr 摩尔分数小于 0.5 时, 随着温度的增加, 密度逐渐降低。图中与 Rough<sup>[48]</sup> 的实验结果做了对比, 由于 Rough<sup>[48]</sup> 的密度值是室温下测的, 故比计算值略高, 但两者的趋势一致, 说明 DP 模型预测 U-Zr 合金的可信度较高。

### 3 结 论

使用机器学习开发了 DP 模型来描述 Zr-BCC、U-BCC 和 U-Zr (BCC) 的能量、弹性、声子和热力学性质, 并且能够达到 DFT 的精度。

(1) 首先使用 DP-GEN 训练得到的 DP 模型计算样本结构的能量和力并与 DFT 的计算结果作比较, 结果表示能量误差均小于  $10^{-2}$  eV (以原子计) 量级, 而力的误差均小于  $10^{-1}$  eV/Å 量级, 表明基于深度神经网络的 DP 模型表现出色, 能够在很少人为干预的情况下学习复杂且高度非线性的能量泛函。为了进一步证明 DP 模型的可靠性, 对比了 DP 模型对平衡状态方程、弹性常数、弹性

模量以及声子谱的预测结果与 DFT 的模拟值之间的误差。模拟的三种体系 (Zr-BCC, U-BCC,  $U_{0.75}Zr_{0.25}$ 、 $U_{0.5}Zr_{0.5}$  和  $U_{0.25}Zr_{0.75}$  合金体系) 的平衡状态方程与 DFT 结果高度重合, 同时晶格常数的计算结果也几乎一致。Zr-BCC 和 U-BCC 的弹性常数和弹性模量误差集中在小于 5 GPa 的范围内, 而 U-Zr 合金的弹性性质误差集中于小于 30 GPa 的范围内。此外, DP 模型预测的 Zr-BCC 和 U-BCC 的声子谱与 DFT 结果基本一致, 说明该 DP 模型能够很好地预测声子谱的信息。

(2) 接着使用 DP 模型对材料的恒压热容和密度进行了模拟。DP 模型预测的 Zr-BCC 和 U-BCC 的热容与实验值基本重合, 说明 DP 模型的准确性很高。对于 U-Zr (BCC), U-Zr 合金随着 Zr 浓度的增加, 热容逐渐减小。此外, 热容基本上随温度的增大而增大, 且随着 Zr 浓度的增大, 热容对温度的敏感度降低。Zr-BCC 的密度随温度增加逐渐减小, 与 IAEA<sup>[45]</sup> 的拟合值相比, 其标准误差不足 1%。U-BCC 的密度也随温度线性减

小, 计算值略高于实验值大约  $0.5 \text{ g/cm}^3$ , 但整体的变化趋势与实验值一致。U-Zr 合金密度的大小与 Zr 浓度几乎呈线性关系。此外, 在 Zr 摩尔分数大于 0.5 时, 温度对密度的影响十分小, 而在 Zr 摩尔分数小于 0.5 时, 随着温度的增加密度降低更明显。

总之, 使用深度学习训练的 DP 模型计算核燃料的性质, 可以保持高精度, 并且极大提高了计算效率, 这对于核燃料的理论计算具有十分重要的借鉴意义, 同时可以获得很多实验上难以得到的重要数据。

#### 参考文献:

- [1] (美)C. E. 蒂尔, (美)张润一. 无尽的能源: 一体化快堆[M]. 霍兴凯, 林如山, 刘利生, 等译. 北京: 中国原子能出版社, 2020: 83-109.
- [2] Ogata T. Metal fuel[M]//Comprehensive nuclear materials. Amsterdam: Elsevier, 2020: 1-42.
- [3] Aly A, Beeler B, Avramova M. *Ab initio* molecular dynamics investigation of  $\gamma$ -(U, Zr) structural and thermal properties as a function of temperature and composition[J]. *J Nucl Mater*, 2022, 561: 153523.
- [4] Moore A P, Beeler B, Deo C, et al. Atomistic modeling of high temperature uranium-zirconium alloy structure and thermodynamics[J]. *J Nucl Mater*, 2015, 467: 802-819.
- [5] Beeler B, Casagrande A, Aagesen L, et al. Atomistic calculations of the surface energy as a function of composition and temperature in  $\gamma$  U-Zr to inform fuel performance modeling[J]. *J Nucl Mater*, 2020, 540: 152271.
- [6] Zhang L, Han J, Wang H, et al. Deep potential molecular dynamics: a scalable model with the accuracy of quantum mechanics[J]. *Phys Rev Lett*, 2018, 120(14): 143001.
- [7] Han J, Zhang L, Car R, et al. Deep potential: a general representation of a many-body potential energy surface[J]. *Commun Comput Phys*, 2018, 23(3): 629-639.
- [8] Zhang L F, Han J Q, Wang H, et al. End-to-end symmetry preserving inter-atomic potential energy model for finite and extended systems[C]//Conference on Neural Information Processing Systems(NeurIPS), Montréal Canada, December 3-8, 2018, United States: Curran Associates Inc, 2018.
- [9] Zhang L, Lin D Y, Wang H, et al. Active learning of uniformly accurate interatomic potentials for materials simulation[J]. *Phys Rev Materials*, 2019, 3(2): 023804.
- [10] Wang X, Wang Y, Zhang L, et al. A tungsten deep neural network potential for simulating mechanical property degradation under fusion service environment[J]. *Nucl Fusion*, 2022, 62(12): 126013.
- [11] Zhang Y, Wang H, Chen W, et al. DP-GEN: a concurrent learning platform for the generation of reliable deep learning based potential energy models[J]. *Comput Phys Commun*, 2020, 253: 107206.
- [12] Nosé S. A unified formulation of the constant temperature molecular dynamics methods[J]. *J Chem Phys*, 1984, 81(1): 511-519.
- [13] Wang H, Zhang L, Han J, et al. DeePMD-kit: a deep learning package for many-body potential energy representation and molecular dynamics[J]. *Comput Phys Commun*, 2018, 228: 178-184.
- [14] Thompson A P, Aktulga H M, Berger R, et al. LAMMPS: a flexible simulation tool for particle-based materials modeling at the atomic, meso, and continuum scales[J]. *Comput Phys Commun*, 2022, 271: 108171.
- [15] Kresse G, Furthmüller J. Efficient iterative schemes for *ab initio* total-energy calculations using a plane-wave basis set[J]. *Phys Rev B Condens Matter*, 1996, 54(16): 11169-11186.
- [16] Kresse G, Furthmüller J. Efficiency of *ab-initio* total energy calculations for metals and semiconductors using a plane-wave basis set[J]. *Comput Mater Sci*, 1996, 6(1): 15-50.
- [17] Blöchl P E. Projector augmented-wave method[J]. *Phys Rev B Condens Matter*, 1994, 50(24): 17953-17979.
- [18] Perdew J P, Burke K, Ernzerhof M. Generalized gradient approximation made simple[J]. *Phys Rev Lett*, 1996, 77(18): 3865-3868.
- [19] Wu J, Zhang Y, Zhang L, et al. Deep learning of accurate force field of ferroelectric  $\text{HfO}_2$ [J]. *Phys Rev B*, 2021, 103(2): 024108.
- [20] Skinner G B, Johnston H L. Thermal expansion of zirconium between 298 °K and 1600 °K[J]. *J Chem Phys*, 1953, 21(8): 1383-1384
- [21] Thewlis J. Structures of uranium[J]. *Nature*, 1951, 168: 198-199.
- [22] Wilson A S, Rundle R E. The structures of uranium metal[J]. *Acta Cryst*, 1949, 2(2): 126-127.
- [23] Huber J G, Ansari P H. The superconductivity of BCC U-Zr alloys[J]. *Phys B+C*, 1985, 135(1-3): 441-444.
- [24] Akabori M, Ogawa T, Itoh A, et al. The lattice stability and structure of delta-UZr<sub>2</sub> at elevated temperatures[J]. *J Phys: Condens Matter*, 1995, 7(43): 8249-8257.
- [25] Gonze X, Lee C. Dynamical matrices, born effective charges, dielectric permittivity tensors, and interatomic

- force constants from density-functional perturbation theory[J]. *Phys Rev B*, 1997, 55(16): 10355-10368.
- [26] Togo A, Tanaka I. First principles phonon calculations in materials science[J]. *Scr Mater*, 2015, 108: 1-5.
- [27] Xie W, Xiong W, Marianetti C A, et al. Correlation and relativistic effects in U metal and U-Zr alloy: validation of *ab initio* approaches[J]. *Phys Rev B*, 2013, 88(23): 235128.
- [28] Hultgren R, Desai P D, Hawkins D T, et al. Selected values of the thermodynamic properties of the elements[M]. US: University Microfilms International eBooks, 1973.
- [29] Coughlin J P, King E G. High-temperature heat contents of some zirconium-containing substances[J]. *J Am Chem Soc*, 1950, 72(5): 2262-2265.
- [30] Skinner G B, Johnston H L. Low temperature heat capacities of inorganic solids VIII: heat capacity of zirconium from 14 to 300 °K[J]. *J Am Chem Soc*, 1951, 73(10): 4549-4550.
- [31] Vollmer O, Braun M, Kohlhaas R. Notizen: die atomwärme des zirkons zwischen 300 und 1700 °K[J]. *Z Für Naturforschung A*, 1967, 22(5): 833-834.
- [32] Petrova I I, Peletskii V E, Samsonov B N. Investigation of the thermophysical properties of zirconium by subsecond pulsed heating technique[J]. *High Temp*, 2000, 38(4): 560-565.
- [33] Korobenko V, Savvatimski A, Sevostyanov K. Experimental investigation of solid and liquid zirconium[J]. *High Temp-High Press*, 2001, 33(6): 647-658.
- [34] Milošević N D, Maglić K D. Thermophysical properties of solid phase zirconium at high temperatures[J]. *Int J Thermophys*, 2006, 27(4): 1140-1159.
- [35] Filippov L P, Yurchak R P. High-temperature investigations of the thermal properties of solids[J]. *J Eng Phys*, 1971, 21(3): 1209-1220.
- [36] Fieldhouse I B, Lang J I. Measurements of thermal properties[R]. Chicago: Illinois Inst of Tech, 1961.
- [37] Marchidan D I, Ciopec M. Enthalpy of uranium to 1500 K by drop calorimetry[J]. *J Chem Thermodyn*, 1976, 8(7): 691-701.
- [38] Holley C, Storms E. Thermodynamics of nuclear materials[M]. 50rd ed. Vienna: International Atomic Energy Agency, 1968: 397.
- [39] Wittig F E. M. H. Rand, O. Kubaschewski, the thermochemical properties of uranium compounds. Oliver & Boyd, Edinburgh and London 1963. 96 seiten. preis: 30 S[J]. *Ber Bunsenges Phys Chem*, 1964, 68(4): 418.
- [40] North J. A high temperature adiabatic calorimeter the specific heat of uranium between 100 and 800 C[R]. Harwell, Berks, England: Atomic Energy Research Establishment, 1952.
- [41] Chiotti P, Akhachinskij V, Ansara I, et al. The chemical thermodynamics of actinide elements and compounds, part 5, the actinide binary alloys[M]. Vienna: International Atomic Energy Agency, 1981.
- [42] Takahashi Y, Yamamoto K, Ohsato T, et al. Heat capacities of uranium-zirconium alloys from 300 to 1100 K[J]. *J Nucl Mater*, 1989, 167: 147-151.
- [43] Lee B H, Cheon J S, Koo Y H, et al. Measurement of the specific heat of Zr-40wt%U metallic fuel[J]. *J Nucl Mater*, 2007, 360(3): 315-320.
- [44] Matsui T, Natsume T, Naito K. Heat capacity measurements of  $U_{0.80}Zr_{0.20}$  and  $U_{0.80}Mo_{0.20}$  alloys from room temperature to 1300 K[J]. *J Nucl Mater*, 1989, 167: 152-159.
- [45] IAEA. Thermophysical properties of materials for nuclear engineering: a tutorial and collection of data[M]. Vienna: IAEA.
- [46] Touloukian Y S. Thermal expansion: metallic elements and alloys[M]. New York: IFI/Plenum, 1975.
- [47] Janney D E. Metallic fuels handbook, part 1: alloys based on U-Zr, Pu-Zr, U-Pu, or U-Pu-Zr, including those with minor actinides(Np, Am, Cm), rare-earth elements(La, Ce, Pr, Nd, Gd), and Y[R]. Idaho Falls: Idaho National Lab, 2017.
- [48] Rough F A. An evaluation of data on zirconium-uranium alloys: BMI-1030[R]. Columbus, OH (United States): Battelle Memorial Inst, 1955.