

〈一般研究課題〉 データ駆動科学を活用した軽量・高性能な
熱電変換材料の予測と実現への挑戦
助成研究者 名古屋工業大学 宮崎 秀俊



データ駆動科学を活用した軽量・高性能な 熱電変換材料の予測と実現への挑戦

宮崎 秀俊
(名古屋工業大学)

Challenges in predicting and realizing lightweight, high-
performance thermoelectric materials using data-driven science

Hidetoshi Miyazaki
(Nagoya Institute of Technology)

Abstract :

In this study, lattice constants and lattice thermal conductivities were calculated and predicted by machine learning for full-Heusler alloys with many high-performance materials. By machine learning for the lattice parameter, we showed that the lattice parameter of full-Heusler alloys can be predicted with high accuracy, and we also succeeded in identifying physical quantities that have a large influence on the lattice parameter. The lattice thermal conductivity of full-Heusler alloys can be predicted with high accuracy by machine learning, and the physical quantities that significantly affect the lattice thermal conductivity are successfully identified.

1. はじめに

材料の熱伝導特性とそのメカニズムを包括的かつ正確に理解することは高出力密度の電子デバイス、熱電素子、航空宇宙、フォノンエンジニアリングに至るまで、幅広い用途に対応するために不可欠である。例えば、熱伝導率の低い材料は、遮熱コーティングや熱電発電に利用でき、熱伝導率の高い材料は、熱拡散に利用できる。そのため、材料の熱伝導率を正確に評価することは非常に重要である。材料固有の熱伝導率を測定するために、いくつかの高度な実験技術が開発されているが、複雑な構造物を改善するための実験には課題が残っている。一方、第一原理計算、ボルツマン輸送方程式(BTE)、分子動力学(MD)シミュレーション、格子動力学(LD)シミュレーション、非

平衡グリーン関数(NEGF)理論などの理論・シミュレーションツールは、信頼性の高い熱伝導率の予測を可能にするが、計算コストが高いことが課題として残っている。新しい材料合成技術の開発や、物性の迅速かつ正確な予測に対する需要が急速に高まっていることから、新たな計算手法が求められている。そんな中、機械学習(ML)法による有望な解決例がある。例えば、Liuら[6]は、サポートベクター回帰(SVR)に基づくMLモデルを用いて、純粋な流体とその混合物の熱力学的特性を研究し、基礎となる物理的メカニズムを事前に知らなくても、流体の熱力学的特性を正確に予測できることを明らかにした。Wuら[1]は、異なるMLモデルを用いて界面熱抵抗を予測し、Bi/Si材料系の界面熱抵抗が $51.8 \pm 4.5 \times 10^{-9}$ m²/KWと高いことを明らかにし、これは実験的な測定結果とよく一致している。一般的に、上述のML法は、基礎的な熱輸送メカニズムを知らなくても、データ解析に基づいて物質の巨視的な熱特性を予測することができる。さらに、これまでの研究では、MLポテンシャルと従来の輸送計算法を組み合わせることで、材料の熱伝導率を予測し、さらには根本的な熱輸送メカニズムを探るための新たな手段となることが示されている。例えば、Guら[2]は、スペクトル近傍解析ポテンシャルを用いて、単層MoS_{2(1-x)Se_{2x}}合金の熱輸送を研究し、さらに、質量の乱れと力場の乱れが熱伝導率に及ぼす影響を明らかにした。最近、物質の熱的特性の研究にML法を適用した論文が相次いで発表されていることから、関連する技術が様々な物理的特性を予測するための強力なツールとなっていることが示唆されている。実際、ML法は、構造予測、材料設計、半導体製造、医薬品開発など、多くの分野で広く応用されている。しかし、これらの多くが複雑な特徴量を学習データに使用しているため、材料設計の初期段階では活用することが難しいという問題点がある。そこで、本論文では多数の有望な特性を有する材料を含むフルホイスラー構造に着目し、それらの熱伝導率を第一原理計算によって算出するとともに、基本的な物理量のみを特徴量として用いることでMLによる予測が可能かどうかの検証を行った。

本論文では多数の有望な特性を有する材料を含むフルホイスラー構造に着目し、それらの熱伝導率を第一原理計算によって算出するとともに、基本的な物理量のみを特徴量として用いることでMLによる予測が可能かどうかの検証を行った。

2. 計算方法

Materials Projectデータベース中のフルホイスラー構造を有する物質の中から熱力学的に安定な金属間化合物である物質をスクリーニングした結果得られた957種類の化合物のcifファイルを取得した。コードはpythonを用いて記述し、pymatgenライブラリを利用することでデータの収集を行った。図1に使用した元素を赤枠で示す。図2にスクリーニングの概要を示す。構造最適化とは、エネルギーを変えて繰り返し計算を行い、エネルギーの依存性を見ることで、最もエネルギーの低い格子定数を見つけることである。得られた957種類の物質に対してVASPによる構造最適化を行い、格子定数を算出した。ポテンシャルはGGAを採用した。

構造最適化によって得られた格子定数を教師データとして、回帰による予測を行った。特徴量として原子半径および原子質量を用い、①線形回帰②ランダムフォレスト③XGBoostの3種類の回帰により予測モデルの構築を行った。それぞれの回帰において特徴量は4サイトの原子半径(r1~r4)のみの場合と原子半径に加え原子質量(m1~m4)を加えた場合の2パターンを採用した。また、すべての学習過程においてテストデータを20%とした5-fold Cross Validationを行い、さらに10回の繰

繰り返し計算を行うことで結果の検証を行った。また、RF及びXGBoostではハイパーパラメータの調整を100回行い、モデルの最適化を行った。

構造最適化によって得られた格子定数を用いて、phonopy及びphono3pyによって0Kから1000Kまでの格子熱伝導率の温度依存性を算出した。計算対象はcifを取得したホイスラー合金957種類の中からランダムに抽出した274種類とした。算出した格子熱伝導率を目的変数として、XGBoostによる回帰を行い、格子熱伝導率の予測を行った。様々な特徴量を初期パラメータとし、特徴量重要度に応じて次元削減を行うことで予測精度の向上を試みた。また、学習過程においてテストデータを20%とした5-fold Cross Validationを行い、さらに10回の繰り返し計算を行うことで結果の検証を行った。さらに、ハイパーパラメータの調整を100回行い、モデルの最適化を行った。

図1 機械学習に用いた元素の一覧。赤で囲んだ元素を本研究に用いた。

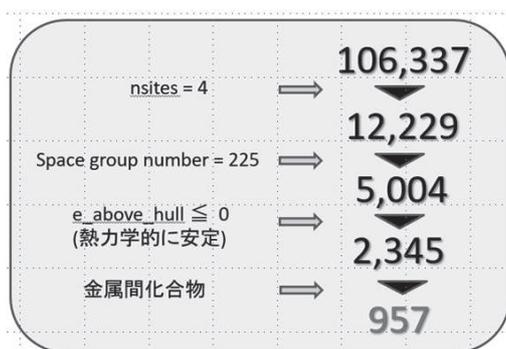


図2 Materials Projectに登録されているホイスラー化合物のスクリーニング方法。

3. 計算結果

3.1 ホイスラー化合物における格子定数の機械学習結果

図4.1に構造最適化によって得られた格子定数(DFT Lattice Parameter)とcifの格子定数との比較を示す。Materials Projectに登録されたcifファイルに記載された格子定数の値はDFT計算としてVASP-codeを用いてDFT計算された値とほぼ一致しており、大規模計算により求められた本計算の妥当性を示す結果となった。図4に各回帰による予測値と構造最適化の値との相関を示す。単純

な線形回帰においても決定係数が0.888及び0.923と高く、格子定数をよく説明できるモデルとなっている。さらに、より複雑なモデルの構築が可能なxgboostでは決定係数が0.904及び0.984と非常に高く、おおむね完璧なモデルの構築ができています。また、特徴量数で見た場合、いずれの回帰においても原子半径4つに加え原子質量4つも特徴量に加えた8個のパラメータの方が4個のパラメータに比べ高い決定係数を示しており、格子定数は原子半径だけでなく原子質量も関係するという複雑な関係から成り立っていることを示唆する結果となった。図4.9から図4.11より、誤差の値を見てもxgboost_8paraにおける誤差が最も小さく、最適なモデルであることがわかる。一般的に格子定数は原子半径に基づいて議論されるが、本研究では原子半径よりも原子質量のほうが格子定数の値に大きな影響を及ぼしているという結果となった。原因は現在定かではないが、格子定数は原子質量の観点からも議論されるべきであることを示唆する結果となった。

3.2 ホイスラー化合物における格子熱伝導率の機械学習結果

図5に特徴量を15個使用して構築したモデル(15para)における格子熱伝導率の予測値とDFT計算の結果の散布図を示す。このモデルにおける決定係数は0.66であった。特徴量重要度の寄与を調査した結果、原子半径に関する特徴量は原子質量に関する特徴量と比較して格子熱伝導率に与える影響が小さいことが分かった。この順位に応じて特徴量を削減したモデルにおける決定係数を図6に示す。8個のパラメータ、5個のパラメータまでは向上し、2個のパラメータでは減少する結果となった。特徴量の数が増加するにつれて過学習の防止につながり、決定係数が向上したと考えられる。誤差の観点からも5個のパラメータが最も小さく、優れたモデルであると言える。5個のパラメータにおける予測値と計算値の散布図を図4.16に示す。このモデルにおけるは0.78と高く、高精度なモデル構築に成功した。最後に5個のパラメータにおける格子熱伝導率の予測値と実験的に測定された熱伝導率との関係性を示す。実験値は結晶性、密度、組成比、結晶子サイズ、粒界などの影響が存在するためずれが生じていると考えられる。本研究の学習モデルは実験値における系統性もとらえており、精度の高いモデルであるといえる。格子熱伝導率の特徴量重要度を解析した結

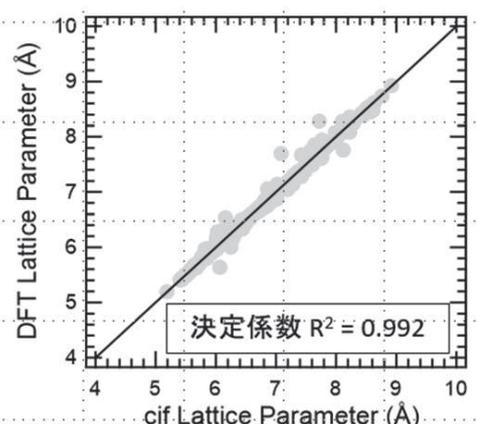


図3. Materials projectに登録されている各ホイスラー化合物の格子定数とDFT計算により求められた格子定数の比較。

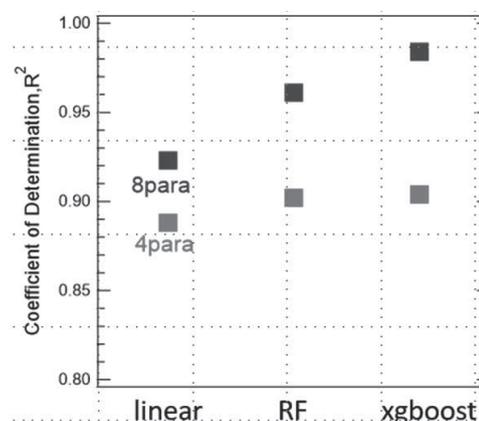


図4. 各種回帰手法および各種パラメータ数を用いて機械学習した格子定数の決定方法の比較。

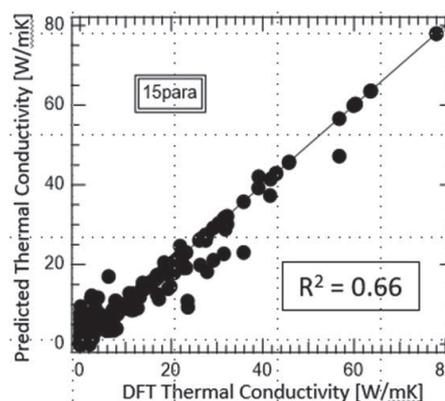


図5. ホイスラー化合物における熱伝導率の機械学習により求められた予測値との比較。

果、格子熱伝導率の機械学習には、格子定数、質量の和、最近接原子間の質量差が上位に位置した。この理由について考察を行う。格子熱伝導率はcallaway理論より、比熱、音速、平均自由行程の積に比例する。さらに、音速は密度の逆数に比例するとされている。つまり、格子定数及び質量の和は音速を介して格子熱伝導率と直接相関のある物理量であるため上位に位置していると考えられる。最近接原子間の質量差においては、質量差によるフォノン散乱の効果を反映していると考えられる。フォノンをばねモデルで考えた場合、近接原子間の質量差は振動に非調和性をもたらし、エネルギーを失うため、格子熱伝導率の減少につながる。これはKlemensの理論[3]と一致しており、リーズナブルな結果であると考えられる。さらに、 $|m_1-m_2|$ 及び $|m_1-m_3|$ はホイスラー構造において最も数の多い近接原子間の質量差であるため、格子熱伝導率に大きな影響を与えるのではないかと考えられる。

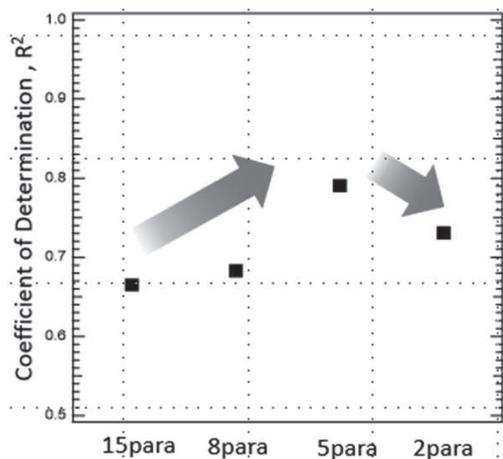


図6. ホイスラー化合物における熱伝導率の機械学習に用いたパラメータ数の比較。

まとめ

本研究では、多くの高機能な物質を有するフルホイスラー合金に対して、格子定数及び格子熱伝導率の算出と機械学習による予測を行った。以下に本研究にて得られた結果をまとめて示す。

- (1) 格子定数に対する機械学習により、フルホイスラー合金の格子定数は高精度に予測できることを示し、加えて格子定数に大きな影響を与える物理量の特定に成功した。
- (2) 格子熱伝導率に対する機械学習により、フルホイスラー合金の格子熱伝導率は高精度に予測できることを示し、加えて格子熱伝導率に大きな影響を与える物理量の特定に成功した。

参考文献

- [1] Y. J. Wu, L. Fang, and Y. Xu, Predicting interfacial thermal resistance by machine learning, *npj Comput. Mater.* 5, 56 (2019).
- [2] X. Gu and C. Y. Zhao, Thermal conductivity of singlelayer $\text{MoS}_2(1-x)\text{Se}_{2x}$ alloys from molecular dynamics simulations with a machine-learning-based interatomic potential, *Comput. Mater. Sci.* 165, 74 (2019).
- [3] P. G. Klemens : *Proc. Phys. Soc., London, Sect. A* 68, 1113 (1955).