

jh230065

## 非調和フォノンデータベースの構築とデータ駆動型熱機能材料開発

塩見淳一郎（東京大学）

近年、マテリアルズ・インフォマティクス（MI）技術が急速に発達しており、情報科学と材料科学を融合した様々な材料開発手法により、電池、触媒、磁性材料などに関する物性において成果が挙げられている。また無機材料のデータベースとして Materials Project, AFLOW, AtomWork などが開発され、情報科学的な手法の開発とともにデータ量の増強も進んでいる。しかし、従来のデータベースは主に電子物性（バンドギャップ、電子バンド構造等）をまとめたものであり、熱機能材料に関しては熱伝導率などのフォノン非調和物性のデータが不足している。そこで申請者らは世界中の共同研究者と協力して、非調和フォノン特性の解析プロセスの標準化とそれを組み込んだ自動化計算ソフトウェアの開発、さらにそれを利用した非調和フォノン特性データベース構築を進めている。本年度は 3 フォノン散乱を考慮した自動計算を行いデータ創出を進めたので、その進捗を報告する。

### 1. 共同研究に関する情報

#### (1) 共同利用・共同研究を実施している拠点名

北海道大学 情報基盤センター

東京大学 情報基盤センター

大阪大学 サイバーメディアセンター

#### (2) 課題分野

大規模計算科学課題分野

#### (3) 共同研究分野

該当事項なし

#### (4) 参加研究者の役割分担

塩見淳一郎：研究の総括

大西正人：研究の立案、ソフトウェア開発、熱伝導解析

Pol Torres：熱伝導解析

Zhihao Xu：熱伝導解析

### 2. 研究の目的と意義

本研究では、第一原理熱伝導計算による非

調和フォノン物性（主に熱伝導率）データベースの構築とそれを利用した熱機能材料の開発を目指している。近年、マテリアルズ・インフォマティクス（MI）技術が急速に発展しており、情報科学と材料科学を融合した様々な材料開発手法により、電池、触媒、磁性材料などに関する物性において成果が挙げられている。また無機材料のデータベースとして Materials Project, AFLOW, AtomWork などが開発され、情報科学的な手法の開発とともにデータ量の増強も進んでいる。しかし、これらのデータベースは主に電子物性（バンドギャップ、電子バンド構造等）をまとめたものであり、熱機能材料に関しては熱伝導率などの非調和フォノン物性のデータが不足している。フォノン非調和物性の計算においては、a) 多数の超格子構造の力計算が必要になり計算コストが高い、b) 計算プロセスが複雑で自動化が容易ではない等の課題がある。そこで申請者らは、世界中のフォノン計算の研究者と協力し熱伝導率計算の規格

化を行なったうえで、計算の自動化と非調和フォノンデータベースの構築を目指している。最終的な規模としては 10 万材料程度の規模を目指しているが、本年度は 4-5000 材料の熱伝導率の計算を目指して自動計算を行なった。

なお、本研究はマテリアルズ先端リサーチインフラ (ARIM) の一環としても進めているが、その中で情報科学の研究者とも連携し構築したデータベースと機械学習を利用したデータ駆動型材料開発を進めている。本研究で構築したデータベースはオープンなデータベースとして運用する予定であり、世界的な材料開発に貢献できると期待される。

### 3. 当拠点の公募型共同研究として実施した意義

海外 (特にアメリカと中国) の研究者との共同研究として研究を進めているが、日本ほど組織だって大型計算機が統合されている国はなく、無償かつ大量の計算資源が利用できることはとても貴重な機会である。本年度までの成果で既にかつてない大規模なデータベースが得られているため、このまま自動計算を続けることで本分野において日本発の国際的なデータベースの作成が可能であると期待できる。

### 4. 前年度までに得られた研究成果の概要

該当事項なし

### 5. 今年度の研究成果の詳細

本研究の計算は 2022 年度から本格的に開始し、JHPCN 以外にも東大物性研や東北大金研の大型計算機も利用して計算を進めている。これまでに 4,500 以上の材料の熱伝導率 (非調和フォノン特性) と 10,000 材料以上の調和フォノン特性を計算した。機械学習などを用いた既報の論文では、多くても 100 材料前後のデータを用いた議論であったことから、既に第一原理計算に基づく無機材料非

調和フォノン特性データベースとしては類を見ない大きさとなっている。今後は、金属材料や DeepMind により 2023 年末に発表された約 48,000 の安定材料 [Nature 624, 80-85 (2023)] を対象とした計算などを予定している。

一方で、室温で熱伝導率が  $10,000 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$  を超えるものや、温度の上昇に伴って熱伝導率が急激に増加しているものなどがあった。これらは 4 フォノン散乱を考慮していないことや逆格子空間の  $k$  メッシュの密度が不足していることなどが原因であり、特に高熱伝導率のデータで計算精度が低くなっている。他方では、低熱伝導率のデータは比較的信頼性が高く、今後機械学習を用いた熱伝導率の予測などに利用することが期待される。

### 6. 進捗状況の自己評価と今後の展望

申請時には 7000 材料の熱伝導率計算を完了する目標であったが、2023 年度末までに 4500 材料の熱伝導率計算が完了した。熱伝導率の計算に関しては約 6 割の材料数にとどまったが、大きな超格子を用いた計算や 4 次の非調和効果を考慮した計算などよりアドバンスな内容の計算も進めることができたため、進捗としては概ね順調であると言える。今後はさらなるデータ数の増強やデータの質の強化を進めるとともに、2024 年度上半期中に論文とデータベース公開を目指す。

### 7. 研究業績

#### (1) 学術論文 (査読あり)

- H. Hamasaki, Y. Li, M. Ohnishi, J. Shiomi, K. Yanagi, and K. Hirahara, "Thermoelectric power of a single van der Waals interface between carbon nanotubes," ACS Nano, (2023).
- H. Meng, M. Ohnishi, Meng An, and J. Shiomi, "Thermoelectric figure-of-merit of metastable crystalline ST12 germanium

allotrope,” *Mater. Today Phys.* 38, 101270 (2023).

(2) 国際会議プロシーディングス (査読あり)

該当事項なし

(3) 国際会議発表 (査読なし)

- Masato Ohnishi, S. Terashima, T. Yamamoto, K. Fujimura, H. Shimizu, K. Yamamoto, H. Iwase, and J. Shiomi, “Thermoelectric Clathrate Compound: From First-principles Calculations, Material Synthesis, to Device Application”, The Tenth US–Japan Joint Seminars on Nanoscale Transport Phenomena, San Diego, USA, Jul. 16–19th, 2023.

(4) 国内会議発表 (査読なし)

- 大西正人, L. Yuxuan, 塩見淳一郎, “シリコン・ナノポーラス構造におけるフォノン輸送”, 第 84 回応用物理学会秋季学術講演会, 22-C501-10, 熊本, 2023 年 9 月 19–23 日.
- 大西正人, L. Yuxuan, 塩見淳一郎, “分子動力学法を用いたシリコン・ナノポーラス構造におけるフォノン輸送解析”, 第 7 回フォノンエンジニアリング研究会, 沖縄, 2023 年 8 月 5–6 日.

(5) 公開したライブラリなど

該当事項なし

(6) その他 (特許, プレスリリース, 著書等)

該当事項なし