

令和 6 年 6 月 12 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21K04632

研究課題名（和文）結晶材料のフォノン熱伝導メカニズムに関する第一原理計算研究と低熱伝導率材料の探索

研究課題名（英文）First-principles calculation study on phonon thermal conductivity mechanisms in crystalline materials and the search for low thermal conductivity materials

研究代表者

東後 篤史（TOGO, Atsushi）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・マテリアル基盤研究センター・グループリーダー

研究者番号：10610529

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,100,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、計算機シミュレーションを用いて格子熱伝導率の網羅的な予測を行うための数値計算手法を開発し、その性能を評価した。第一原理計算の結果を学習させた多項式機械学習ポテンシャルを用いることで、格子熱伝導率計算に必要な計算リソースを大幅に削減した。機械学習ポテンシャルの学習データ生成のため、多様な結晶に対して第一原理計算を系統的かつ大量に実行する自動化システムを開発した。また、学習データから格子熱伝導率を計算するためのソフトウェアも開発した。これらの技術を用いて、格子熱伝導率を網羅的に予測するための計算ワークフローの最適化を行い、網羅的な格子熱伝導率の計算が可能となった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

計算機シミュレーションで格子熱伝導率を予測することで、材料探索における事前スクリーニングを行うことができる。これにより、材料探索を加速し、実験などに必要な経費を削減することが可能となる。開発した理論計算手法をソフトウェアとして実装し、オープンソースソフトウェアとして公開しているため、誰でも本研究成果と同様の計算機シミュレーションを行うことができる。このソフトウェアは単に作成しただけでなく、ユーザーの利用しやすい形で開発・保守を続けており、理論的および技術的詳細は論文として発表しているため、多くの研究者が本研究の恩恵を容易に享受できる。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed and evaluated a numerical computation method for systematic prediction of lattice thermal conductivity using computer simulations. By employing polynomial machine learning potentials trained on first-principles calculation results, we significantly reduced the computational resources required for lattice thermal conductivity calculations. To generate training data for the machine learning potentials, we developed an automated system to systematically and extensively perform first-principles calculations on various crystals. Additionally, we developed software to calculate lattice thermal conductivity from the training data. Using these technologies, we optimized a computational workflow for systematic prediction of lattice thermal conductivity, enabling extensive calculations of lattice thermal conductivity.

研究分野：材料計算科学

キーワード：格子熱伝導率 第一原理計算 フォノン フォノン間相互作用

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 計算機パワーは3~4年で約10倍という驚異的なペースで指数関数的に増加しており、これにより材料科学における第一原理ハイスループット計算による物理量データの大量予測が可能となってきた。計算機シミュレーションによるデータの生成は今後多様な物理量に拡大することが期待されている。

(2) 1990年代後半から第一原理フォノン計算は物性物理に利用され始め、2000年代後半から申請者らが開発した phonopy コードを含む様々な科学計算のためのオープンソースソフトウェアが開発され、計算機パワーの向上の後押しもあり、第一原理フォノン計算がより広い研究分野に普及した。このような時代背景のもと、材料研究での第一原理フォノン計算の利用が急速に進み、計算機シミュレーションによるフォノン特性データの大量生成のための基盤が整いつつあった。

(3) 2010年代後半から、第一原理非調和フォノン計算コードが普及し始め、結晶の格子熱伝導率を高精度で計算することが可能となった。しかし、これらの計算は莫大な計算機パワーを必要とし、多種多様な結晶に対して系統的に計算することは難しい状況であった。申請者らは、ガウス過程回帰を用いて結晶構造から直接格子熱伝導率を導く数値モデルを作成したが、微視的情報の欠如が課題となった。

2. 研究の目的

(1) 第一原理非調和フォノン計算と線形化フォノンボルツマン方程式の数値計算を用いて、多様な結晶構造に対する格子熱伝導率を理論的に予測し、これに基づく格子熱伝導率データベースを構築する。

(2) 低熱伝導率材料をデータベースから探索する。

3. 研究の方法

(1) フォノン間相互作用を機械学習ポテンシャルを媒介として記述することで、格子熱伝導率計算に必要な計算リソースを格段に削減するための理論計算手法とソフトウェアの開発を行う。機械学習ポテンシャルの学習データとして第一原理計算から得られるエネルギー及び原子にかかる力を利用する。

(2) 得られたフォノン間相互作用から非調和フォノン計算を実施し、線形化フォノンボルツマン方程式を解き格子熱伝導率を求める。格子熱伝導率計算の自動化を行い、多様な結晶構造に対して網羅的に格子熱伝導率計算を実行する。

(3) 自動計算の結果を集積することで、格子熱伝導率データベースを構築し、低熱伝導率材料を探索する。

4. 研究成果

格子熱伝導率は、力の定数をフォノン間相互作用強度に変換し、その値をフォノンボルツマン方程式に代入することで得ることができる。近年、第一原理計算を利用することで格子熱伝導率の計算予測の精度が格段に向上した。従来の計算手法では、第一原理計算から原子間の相互作用を力の定数として取り出すことが一般的であったが、この方法では格子熱伝導率を求めるために莫大な計算リソースが必要だった。

近年では、第一原理計算の結果を学習データとして使用し、機械学習ポテンシャルに原子間の相互作用を学習させる手法が提案されている。一度機械学習ポテンシャルを構築すれば、第一原理計算に近い精度で原子間の相互作用を記述できる可能性がある。しかし、万能な機械学習ポテンシャルは存在せず、利用目的に応じた特化した学習や計算手法を選択する必要がある。例えば、より広範囲に適用できるポテンシャルは多くの学習データを必要とし、その開発には手法的および技術的な障壁が高い。

本研究では、格子熱伝導率を高精度に予測するための多項式機械学習ポテンシャル (polyMLP) の学習手順の自動化と最適化を行った。格子熱伝導率計算のための polyMLP を開発する上で最も重要な点は、計算リソースの削減である。次に、計算手順の自動化が重要である。自動化に際しては、polyMLP の学習時に多様な結晶で利用できるデフォルトのハイパーパラメータの決定も重要である。また、polyMLP から力の定数を数値的に計算する際には、力の定数の対称性を満たす必要があるため、専用の高速な計算手法の研究とソフトウェアの開発を行なった。

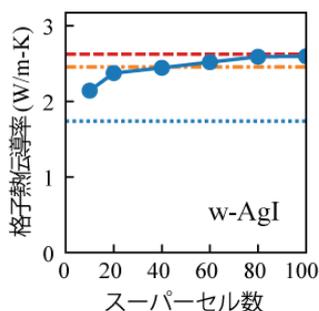


図1 ウルツ鉱型 AgI の格子熱伝導率計算結果 (300K)

一例として図1に、polyMLPを用いた格子熱伝導率計算結果を示す。横軸は学習に用いたスーパーセル数を示している。水平の点線、一点鎖線、鎖線はそれぞれ従来の計算手法で100、400、2000スーパーセル数を用いて計算した格子熱伝導率を示している。両手法において、スーパーセル数を増やすことで格子熱伝導率の計算精度が向上する。従来手法では少なくとも400スーパーセル程度の第一原理計算が必要であるが、同様の予測精度をpolyMLPを介する場合は20スーパーセル程度で達成することができた。これにより、本手法では数十倍の計算リソースの削減が期待できることを示している。

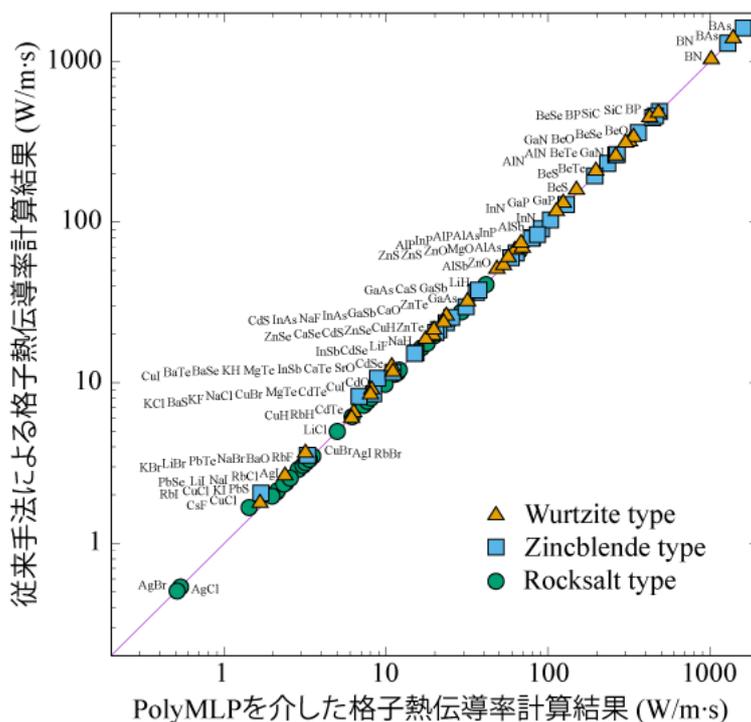


図2 格子熱伝導率計算結果 (300K) の従来手法との比較。

ベンチマークとして、ウルツ鉱型、閃亜鉛鉱型、岩塩型の101種の結晶に対して系統的に格子熱伝導率計算を行なった結果を図2に示す。PolyMLPを介した格子熱伝導率計算では20スーパーセル数を学習に用いた。これにより、広い格子熱伝導率を持った結晶に対して、材料探索には十分な予測精度を持った格子熱伝導率計算が可能であることを確認した。

phonondb*に収録されている結晶構造に対して、格子熱伝導率計算に必要な polyMLP のための学習データを網羅的に計算中であり、計算結果を今後取りまとめてオープンデータプラットフォームに公開する予定である。学習データから格子熱伝導率を計算するためのソフトウェアはオープンソースソフトウェアとして公開している。

*phonondb: <https://mdr.nims.go.jp/collections/8g84ms862>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Togo Atsushi, Chaput Laurent, Tadano Terumasa, Tanaka Isao	4. 巻 35
2. 論文標題 Implementation strategies in phonopy and phono3py	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 353001 ~ 353001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/acd831	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Togo Atsushi, Hayashi Hiroyuki, Tadano Terumasa, Tsutsui Satoshi, Tanaka Isao	4. 巻 34
2. 論文標題 LO-mode phonon of KCl and NaCl at 300K by inelastic x-ray scattering measurements and first principles calculations	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Physics: Condensed Matter	6. 最初と最後の頁 365401 ~ 365401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1361-648X/ac7b01	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Togo Atsushi	4. 巻 92
2. 論文標題 First-principles Phonon Calculations with Phonopy and Phono3py	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 012001 ~ 012021
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.92.012001	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 田中 功、東後 篤史	4. 巻 49
2. 論文標題 第一原理計算による格子振動と熱的性質の評価	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 熱測定	6. 最初と最後の頁 122 ~ 128
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11311/jscta.49.3_122	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Togo Atsushi, Seko Atsuto	4. 巻 160
2. 論文標題 On-the-fly training of polynomial machine learning potentials in computing lattice thermal conductivity	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 The Journal of Chemical Physics	6. 最初と最後の頁 211001~211011
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0211296	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 東後 篤史
2. 発表標題 Sustainable scientific software developments for materials science
3. 学会等名 第32回 日本MRS年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 東後 篤史
2. 発表標題 フォノン計算ソフトウェアphonopyとphono3pyの開発動向
3. 学会等名 日本セラミックス協会 第35回秋季シンポジウム (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 東後 篤史
2. 発表標題 Challenges in automating data generation using computer simulations
3. 学会等名 第33回 日本MRS年次大会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------