

第一原理計算と機械学習による高性能 Al-O 系高温熱電材料の探索

Exploring high-performance Al-O-based high-temperature thermoelectric materials using first-principles calculations in combination with machine learning

名大院工¹, 電源開発(株)², 九工大院情報工³
 ○Bi Rongrong¹, 西井 俊明^{1,2}, 野田 祐輔^{1,3}, 尾上 順¹

Nagoya Univ.¹, J-POWER², Kyushu Inst. Technol.³
 ○Rongrong Bi¹, Toshiaki Nishii^{1,2}, Yusuke Noda^{1,3}, Jun Onoe¹

E-mail: bi.rongrong@f.mbox.nagoya-u.ac.jp

1. はじめに: 廃熱利用技術の一つに熱電変換があり, 近年, プラント監視デバイスやウェアラブルデバイス向けの室温付近で動作する熱電素子が脚光を浴びている一方で, CO₂ 排出削減や省エネルギー化に有効な高温用熱電素子の研究・開発は停滞気味である。

本研究では, 900 K 付近で動作する耐熱性に優れ, 安定な置換型ドーピングを行いやすいアルミ酸化物 (Al-O) 系に着目した。しかしながら, 結晶構造データベース Materials Project (MP) [1] に収録されている Al-O 系の結晶構造データは実に 3,447 件あり, 第一原理計算で全てを計算するのは現実的ではない。そこで, 機械学習を組み合わせて, 高温環境下で利用できる高性能アルミ酸化物系熱電材料を効率よく探索することを目的とする。

2. 計算方法: 機械学習モデルの訓練データ作成のために, MP に収録されている 3,447 件のうち体積弾性率の値も掲載されている 109 件を計算対象とした。第一原理計算ソフトウェア VASP[2]を用いて, PAW 擬ポテンシャル, PBEsol 交換相関汎関数, カットオフエネルギー 500 eV の平面波基底関数の計算条件に基づいて, 各 Al-O 系のバンド構造を計算した。得られた電子状態を基に, ボルツマン方程式に基づく輸送係数計算ソフトウェア BoltzTraP [3]を用いて, 電気伝導率と緩和時間の比 σ/τ , ゼーベック係数 S , 電子熱伝導率と緩和時間の比 κ_e/τ , をそれぞれ算出した。緩和時間 τ は 300 K における Si 単結晶の値 (10^{-14} s) と仮定し, Yan ら[4]が提案した格子熱伝導率 κ_l の予測式を用いて, p 型に対する性能指数 (p-type ZT) を算出した。つぎに, シャッフル・スプリット交差検証と正則化を導入し, ニューロン数, 層数と正則化係数を調整してニューラルネットワークモデル (NNM) を最適化した。検証セットに対する決定係数 R^2 の平均値を評価指標として, 最適モデルを選定した。

3. 結果と考察: 訓練データに対する R^2 は 0.897 と良好であったが, 検証データに対しては 0.494 と低く, モデルの汎化性能は十分高いとは言えない。本モデルを用いて, 残り 3,338 種類を含む計 3,447 種類の Al-O 系化合物に対して ZT_{cal} (900 K) を計算した結果, 高い ZT を示す Al-O 系候補材料を効率よく探索できた (Table 1, η : 熱電変換効率) [5]。興味深いことに, これらの候補材料は, どれも 2 次元的な層状構造であった。代表例として AlClO 結晶構造の側面 (左) と上面 (右) を Fig. 1 に示した。詳細については当日報告する。

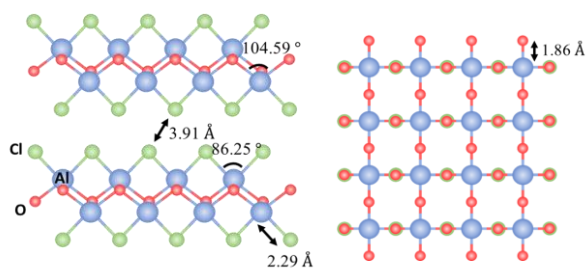


Fig. 1. Side (left) and top (right) views of AlClO layered structure.

Table 1. Seven candidates of high-ZT Al-O-based materials explored using the optimized NNM.

Material ID	Formula	ZT_{cal}	η
mp-1214833	AlBrO (Pca2 ₁)	2.512	48.01%
mp-1214837	AlIO (Pca2 ₁)	1.886	47.42%
mp-556418	AlSCl ₃ O ₂ (P1)	1.878	47.41%
mp-1223704	KAlCl ₂ O (P2 ₁)	1.215	46.49%
mp-27863	AlClO (Pmmn)	0.960	45.99%
mp-4051	AlPO ₄ (C222 ₁)	0.766	45.54%
mp-7848	AlPO ₄ (I4)	0.742	45.47%

参考文献

- [1] A. Jain et al., *APL Mater.* **1**, 011002 (2013).
- [2] G. Kresse et al., *Comput. Mater. Sci.* **6**, 15 (1996).
- [3] G. K. H. Madsen et al., *Comput. Phys. Commun.* **175**, 67 (2006).
- [4] J. Yan et al., *Energy Environ. Sci.* **8**, 983 (2015).
- [5] R. Bi et al., to be submitted.