

# データ駆動型アプローチによる熱電物質の伝導度スペクトルの推定

## [1] 要旨

本論文では、データ駆動型アプローチに基づき伝導度スペクトル（伝導度のエネルギー依存性）を推定する手法が提案されている。実験的に得られた電気伝導度とゼーベック係数の温度依存性から機械学習によって伝導度スペクトルと化学ポテンシャルの温度依存性が求められることや、得られた伝導度スペクトルから電子の寄与による熱伝導率や無次元性能指数  $ZT$  の上限を予測できることが示されている。本論文の成果により、大きな熱電輸送特性を示す物質における伝導度スペクトルを明らかにすることで、従来型の熱電理論との橋渡しになると期待される。

## [2] 本文

高効率で熱を電気エネルギーへと変換する熱電物質の探索は、持続可能な社会の実現に向けて重要である。熱電性能を特徴づける量として無次元指数  $ZT$  が知られており、これまで  $ZT$  が1を超える熱電物質の創成が世界的に研究されている。一方、この値は同時に最適化することができない複数の輸送特性によって決まるため、大きな  $ZT$  をもつ物質を見つけることは依然として難しい問題である。

熱電効果（ゼーベック効果）は熱流の種類に依存し多様な起源があるが、電子の寄与による熱電効果に関して電流と熱流に関する Sommerfeld-Bethe 関係式と呼ばれる関係式が成立する。この関係式を用いると、伝導度スペクトルのみによりゼーベック係数を求めることができるため、第一原理計算による大規模な物質探索において新たな熱電物質を見つける上で重要な手法となりつつある。しかし、伝導度スペクトルは状態密度や群速度に加えて電子の輸送緩和時間に依存するため、理論的に求めることは難しいという問題がある。さらに、熱電輸送特性は詳細な実験条件(サンプルの形状、化学的組成、キャリア数、不純物など)にも影響を受けるため、伝導度やゼーベック係数の温度依存性を正確に予測することは困難である。

近年、マテリアルインフォマティクスと呼ばれる分野ではデータ駆動型のアプローチが注目を集めている。実験や数値計算により得られた膨大なデータを統計的に処理することで、様々な物性の相関関係を明らかにすることが可能となる。対象のデータは属性・記述子によって記述されるため、記述子の選択が重要となる。しかし、実験サンプルや実験条件による熱電輸送特性の違いは無視されることが多く、実験的に得られる電気伝導度やゼーベック係数の温度依存性を統計的モデルにより正確に予測することは難しい。従って、実験サンプルごとの違いを理論的なモデルや統計的モデルに取り入れることが重要になる。

最近、東京大学大学院理学系研究科物理学専攻のメンバーを中心とするグループは、機械学習の手法により Sommerfeld-Bethe 関係式の逆問題を解くことで、電気伝導度とゼーベック係数の実験データから伝導度スペクトルや化学ポテンシャルを推定する手法を開発した。この手法を  $\text{Ta}_4\text{SiTe}_4$  の実験データ [Inohara, et al., Appl. Phys. Lett. **110**, 183901 (2017)] に適用することで伝導度スペクトルや化学ポテンシャルに加えて電子の寄与による熱伝導率や性能指数  $ZT$  の上限を予測できることを明らかにした。さらに、伝導度スペクトルや化学ポテンシャルのドーピング依存性も明らかにした(図1)。この成果は、JPSJ の 2022 年 11 月号に掲載された。

Sommerfeld-Bethe 関係式はフレドホルム積分方程式の一種であり、逆問題の数値解には不安定性があることが知られている。しかし、逆問題を解くことは困難である一方で順問題の計算は高速で行うことができる。本研究では、ニューラルネットワークを用いて順問題の解が入力データと一致するように伝導度スペクトルと化学ポテンシャルを最適化することで、高速かつ数値的不安定性を回避しながら逆問題の数値解を推定している。本研究の利点として、Sommerfeld-Bethe 関係式が成り立つすべての物質に適用できるという点が挙げられる。対象となる物質の電子状態についての情報は必要なく、電気伝導度とゼーベック係数の実験データさえあれば良い。今後は、実験データから推定される電子状態と理論的なモデルを比較することで、熱電物質のより深い理解が得られると期待される。また、ハバードモデルのような短距離相互作用であれば Sommerfeld-Bethe 関係式は成立するため、第一原理計算が難しい強相関係系への応用も期待できる。

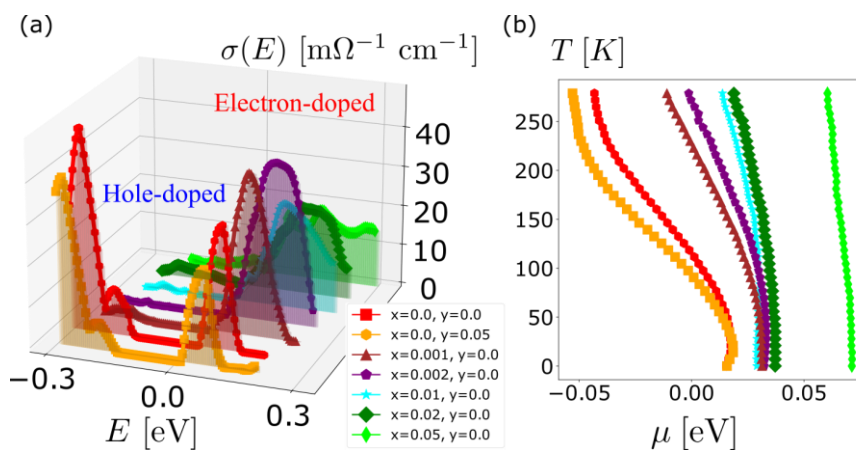


図 1.  $(\text{Ta}_{1-x}\text{Mo}_x)_4\text{Si}(\text{Te}_{1-y}\text{Sb}_y)$ において  $x$  や  $y$  の値を変えた際の(a)伝導度スペクトルや(b)化学ポテンシャルの変化をプロットしたもの。  $x$  と  $y$  はそれぞれ電子ドーピングとホールドーピングに対応する。

原論文 (2022 年 10 月 31 日公開済)

[Data-Driven Reconstruction of Spectral Conductivity and Chemical Potential Using Thermoelectric Transport Properties](#)

Tomoki Hirose, Frank Schäfer, Hideaki Maebashi, Hiroyasu Matsuura, and Masao Ogata, *J. Phys. Soc. Jpn.* **91**, 114603 (2022).

<情報提供：廣澤 智紀（青山学院大学理工学部）、  
小形 正男（東京大学理学部）>