

熱伝導率の異なるアモルファス材料の構造的要因をデータ科学で解明

～準安定相の材料研究に新たな指針～

配布日時：2024年1月19日14時

NIMS（国立研究開発法人物質・材料研究機構）

国立大学法人東北大学

概要

1. NIMS と東北大学からなる研究チームは、異なる熱伝導率を有するアモルファス材料の謎が原子鎖の長さの変化に起因することを、データ科学を活用して解明しました。アモルファスの構造的特徴と物性とを相関付けることができた先駆的な事例です。

2. 同じアモルファスでありながら、熱伝導率の異なる材料を作り分けることが可能になりましたが、その特性の違いを誘起する構造的要因を分析する方法はありませんでした。

3. 今回、研究チームは、高分解能透過型電子顕微鏡像だけでは区別がつかない異なる熱伝導率のアモルファスゲルマニウム材料について、その電子顕微鏡像をトポロジカルデータ解析と主成分分析というデータ科学的手法を用いて解析し、その構造の相違を明らかにしました。その結果、低温で成膜した試料には原子鎖の短いものが多く、高温で作成した試料には原子鎖が長いものが多い事を見出しました。

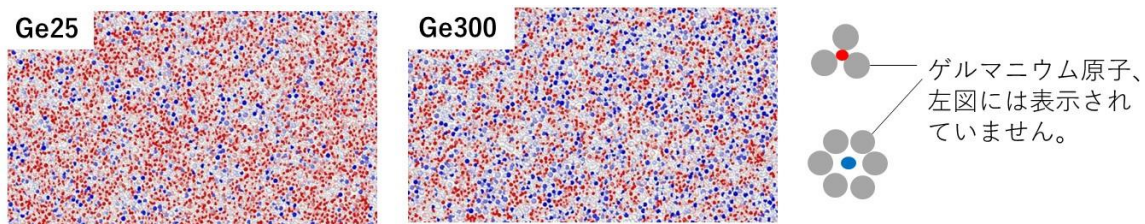


図1. TEM 画像を用いて抽出した構造的特徴。Ge25 にはゲルマニウム原子鎖の短いリング（赤点）が多い、Ge300 には原子鎖の長いリング（青点）が多いことがわかります。

4. 原子鎖の長いリングは熱伝導に有利であることは、理論的に知られているので、Ge25 より Ge300 の熱伝導率が高い現象を説明できます。

5. 当該手法を積極的に活用することで通常の構造解析手法で特定できない準安定相の材料を取り入れた熱制御材料の開発が可能になると期待されます。また、力学・電気など熱以外の物性についても同様に応用が可能になると期待されます。

6. 本研究は、NIMS マテリアル基盤研究センター データ駆動型無機材料グループ 徐一斌グループリーダーと、東北大学材料科学高等研究所 (WPI-AIMR) の赤木和人 准教授からなる研究チームによって、JSTCREST「未踏物質探索：研究総括 北川宏 教授」（課題番号 JPMJCR2102）の一環として、また科研費（学術変革(A) JP22H05109 及び基盤(A) JP 20H00119）の助成の下に行われました。

7. 本研究成果は、国際学術誌「International Journal of Heat and Mass Transfer」の2023年12月6日発行号 (Vol. 221) にて掲載されました。

* 物質・材料研究機構は、その略称を NIMS（National Institute for Materials Science）に統一しております。

研究の背景

アモルファスは、結晶とは異なり不規則な原子構造を有するため、また、特異な物理的・化学的性質を発現するため、エネルギー変換をはじめ、全固体電池、高温超伝導、触媒、電子・光学・磁性材料といった様々な応用が期待されている材料です。当該研究に関連する熱分野を例にとると、原子の並びが不規則なアモルファスは、原子構造に規則性のある結晶と比較すると熱の伝わり方（熱伝導率）が小さくなります。熱の流れを制御する材料は、非常に身近な存在であり、大きなものでは建築、発電プラント、航空機、自動車などから、小さなものでは電子機器やセンサーなどの放熱、あるいは、熱隔離など、非常に幅広く用いられております。2014年には、アモルファスの作製法を変化させると、熱伝導率に違いが出ることを実験的に見出しました（Appl Phys Lett, 104(7) (2014)）。しかしながら、X線回折法などの構造解析や透過型電子顕微鏡画像の従来の解析手法では、その構造的な違いを見出すことができず、物理的な要因は未解明のままでした。

研究内容と成果

今回研究チームは、トポロジカルデータ解析 (TDA)¹ と主成分分析² というデータ科学的手法を駆使し、これまで識別できなかった異なる熱伝導率を有するアモルファス材料の構造的な特徴を初めて抽出しました。これらアモルファス材料の作製は、スパッタ成膜法³ を用い、複数の異なるサンプル基板温度で行いました。熱伝導率の評価には、NIMS が開発した熱伝導評価装置を用いました。Ge25、Ge100、Ge300 は、それぞれ 25、100、300°C の基板温度で作製されたものであり、熱伝導率の値は、それぞれ 1.10、1.28、1.50 Wm⁻¹ K⁻¹ となります。これらの断面 TEM 観察画像 (図 1) には、肉眼では言うまでも無く、通常の高速度フーリエ変換⁴ などの解析法でも明確な違いを見出せませんでした。

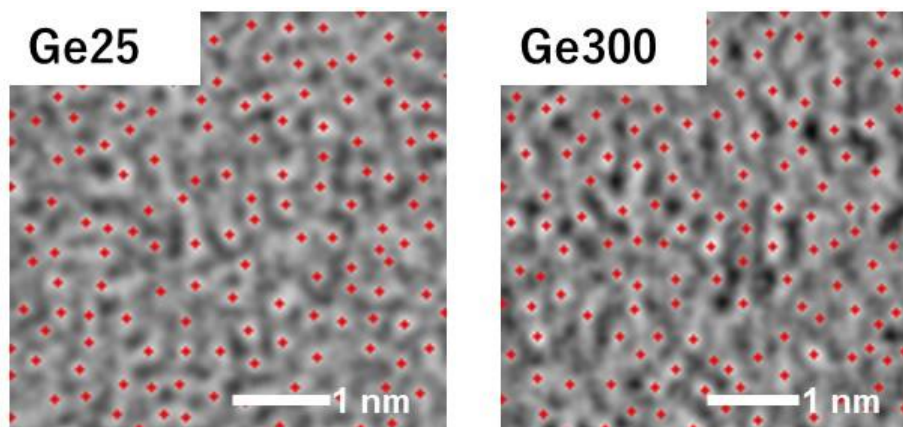


図 1 熱伝導率の 1.10 (Ge25) と 1.50 (Ge300) Wm⁻¹K⁻¹ のアモルファスゲルマニウムの TEM 画像の一部。赤いクロスは TDA 解析のデータ点を示します。

そこで画像中の高輝度領域の幾何学的なつながり方 (ここでは多角形的なつながり方) を TDA を用いてベクトルデータとして定量化し、主成分分析を用いて試料間の違いを調べました。図 2(a) にその結果を示します。x 軸と y 軸は、それぞれ第一主成分と第二主成分⁵ の成分スコアです。図 2(b, c) はそれらのベクトルをパーシステント図⁶ と呼ばれる形式で可視化したものです。「消滅」と「生成」とは、図 2(d) に示したように、データ点を起点として、円を拡大させていく時に、その円同士が繋ぎ合わさって穴が生成した瞬間をリングの「生成」、穴が埋まって無くなった瞬間をリングの「消滅」と定義します。そして、ベクトルの各要素について、正の値が大きいほど濃い赤色で、負の値が大きいほど濃い青色で表します。赤い領域は、リングサイズが小さく、反対に青い領域は、それが大きいことがわかります。第一主成分ベクトルからの寄与率が 97.7% であること、その可視化によりシンプルで明瞭な傾向が捉えられたことから、これら 3 つのアモルファスは第一主成分によって明確に区別されること、高い蒸着温度で作製されたアモルファスには青色の領域に対応する大きなリング構造がより多く存在することがわかりました。

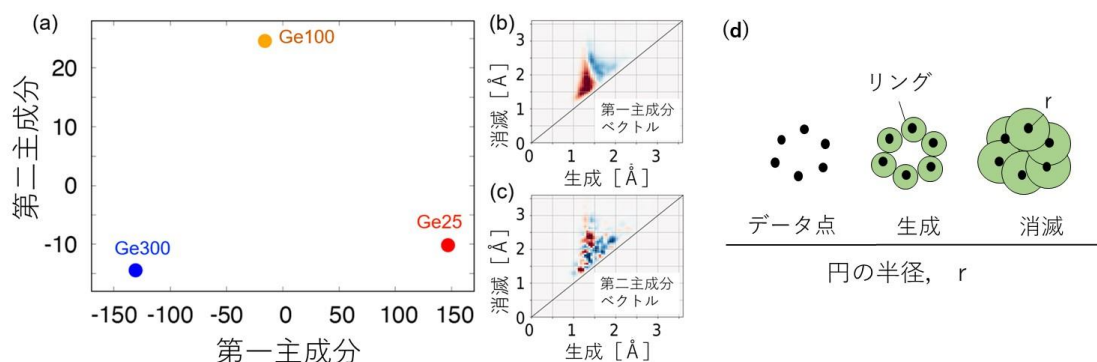


図 2 異なる熱伝導率を有するアモルファスゲルマニウムのトポロジカルデータ解析・主成分分析結果 (a)x 軸と y 軸は、それぞれ第一主成分と第二主成分の成分スコア、(b)、(c) それらベクトルのパーシステント図様の可視化、(d) リングの「生成」と「消滅」についての概念図

図 3 に第一主成分ベクトルに基づく (a)Ge25、(b)Ge100、(c)Ge300 の逆解析結果を示します。これらは、各試料画像において図 2(b)の第一主成分ベクトルの正負の成分に対応する場所を赤青の円板で表したものです。析出温度の上昇に伴って ((a)→(c)) 大きなリング構造を持つ領域が増え、青点のネットワークの発達、すなわち熱を伝えやすいリングの連結の発達として捉えられています。

このように、不規則な原子構造のアモルファス材料であっても、幾何学的な特徴に着目したデータ科学を利用することで、異なる長さの原子鎖の構造を識別することができ、熱伝導率などの物性の変化をもたらす物理的な要因が明らかになりました。

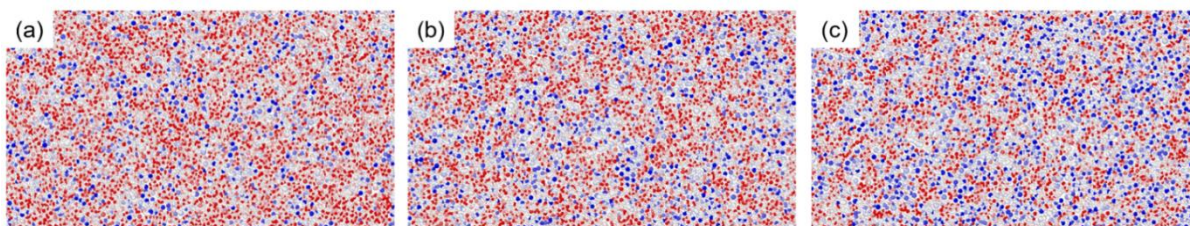


図 3 第一主成分ベクトルに基づく (a)Ge25、(b)Ge100、(c)Ge300 の逆解析結果 (a)から(c)へと変化するに従ってリング構造の大きな領域が増え、青点のネットワークを形成していることがわかります

今後の展開

本研究では、データ科学の活用により、これまで識別が困難であった異なる準安定相⁷ (アモルファス) の特徴を定量的に区別・表現できることを明らかにしました。この手法は、構造的な変化に伴う様々な物性 (今回は熱伝導率) の最適化に指針を与え、断熱・伝熱材料や、熱電材料をはじめとする様々な材料開発に、未踏材料探索領域であった準安定相を導入するアプローチの一つになると期待されます。

掲載論文

題目：Topological data analysis of TEM-based structural features affecting the thermal conductivity of amorphous Ge

著者：Yen-Ju Wu, Kazuto Akagi, Masahiro Goto and Yibin Xu

雑誌：International Journal of Heat and Mass Transfer

掲載日時：2023 年 12 月 6 日

用語解説

- (1) トポロジカルデータ解析：リングや空洞といった「穴」の情報に注目してそのデータの特徴をとらえることで、分類や定量化を行う数学的な解析手法。
- (2) 主成分分析：統計的なデータ解析手法の一つであり、多くの説明変数を、より少ない指標や複数の変数を合成したものに要約する手法。
- (3) スパッタ成膜法：真空中で不活性ガスイオンを成膜材料に衝突させて、原子・分子を弾き出すことにより、薄膜を形成する手法。
- (4) 高速フーリエ変換：複数の小さなサブセットにデータを分割し、それぞれを独立に計算することで、全体の計算量を削減したフーリエ変換解析のこと。材料局所の結晶構造を解析することにも利用されています。
- (5) 第一主成分と第二主成分：主成分分析で最初に生み出しされた合成変数を「第一主成分」、2番目に生み出されたものを「第二主成分」と呼びます。ここで、第一成分の変化は、次に示すパーシステント図の分析の結果、構成する原子鎖の長さに相関するものと判断します。
- (6) パーシステント図：(本研究では) TEM 画像を共通の半径 r を持つ円の集まりで近似し、 r の増減に伴って円の並びが作るリング構造の生成 (Birth) と消滅 (Death) を二次元プロットとして記録したもの。
- (7) 準安定相：熱力学的に不安定であっても、ある条件が満たされる環境は暫定的に存在する相。アモルファスなどがこれに相当します。

本件に関するお問い合わせ先

(研究内容に関すること)

NIMS マテリアル基盤研究センター データ駆動型無機材料グループ
グループリーダー 徐 一斌 (しゅう いびん)

E-mail: xu.yibin@nims.go.jp

TEL: 029-859-2258

URL: <https://www.nims.go.jp/research/group/dara-driven-inorganic-materials/index.html>

東北大学材料科学高等研究所 (WPI-AIMR) 数学連携グループ

准教授 赤木 和人 (あかぎ かずと)

E-mail: kazuto.akagi.b5@tohoku.ac.jp

TEL: 022-217-5940

URL: https://www.wpi-aimr.tohoku.ac.jp/jp/research/researcher/akagi_k.html

(報道・広報に関すること)

NIMS 国際・広報部門 広報室

〒305-0047 茨城県つくば市千現 1-2-1

E-mail: pressrelease@ml.nims.go.jp

TEL: 029-859-2026, FAX: 029-859-2017

東北大学材料科学高等研究所 (WPI-AIMR) 広報戦略室

〒980-8577 仙台市青葉区片平 2-1-1

E-mail: aimr-outreach@grp.tohoku.ac.jp

TEL: 022-217-6146

(補助事業に関する問い合わせ先)

国立研究開発法人科学技術振興機構 総務部広報課

〒102-8666 東京都千代田区四番町 5-3 サイエンスプラザ

E-mail: jstkoho@jst.go.jp

FAX: 03-5214-8432