

実験と理論・計算・データ科学を融合した材料開発の革新  
2019 年度採択研究代表者

2021 年度  
年次報告書

桂 ゆかり

物質・材料研究機構 統合型材料開発・情報基盤部門  
主任研究員

新規結晶の大規模探索に基づく革新的機能材料の開発

## § 1. 研究成果の概要

本研究では、材料科学コミュニティが効率的に新規材料開発研究に挑めるようにするため、Materials Informatics ツール群の開発に取り組んでいる。今年度は論文からの実験データ収集・共有システムである Starrydata web システムに搭載する自動グラフトレース機能を開発した。また電子ラボノート web システム Labmine の運用を開始し、企業での事業化に向けた本格開発も開始された。清水チーム・日沼氏と共同研究を行い、ドロネー四面体分割に基づく結晶構造分類結果を論文発表した。結晶構造の直観的な組み上げ・設計を支援するため、結晶構造シミュレータの開発を進め、四面体データに基づく原子座標予測機能を追加した。組成空間における3元系化合物の報告の分布と合成可能性の予測を示す「化合物探索マップ」に機械学習による熱電特性予測結果を加え、これに基づく合成実験を行った。

大規模合成実験では大場チーム・田村氏と共同で組成選定を自動化し、遷移金属を含む3元系において今年度も約 2000 試料を合成した。前駆体法の導入により Cr-Ni-Ge 相などの新規固溶体相を発見した。

独自開発の高圧固体電気化学法では、遷移金属カルコゲナイド ( $\text{Nb}_2\text{GeTe}_4$ ,  $\text{ZrTe}_3$ ,  $\text{MoTe}_2$ ) への 1 価遷移金属イオン (Ag, Cu) のインターカレーションにより新規化合物群を合成した。擬アモルファス構造を経た構造ゆらぎを TEM にて観察し、その形成機構を第一原理計算で解明した。Si クラスレート ( $\text{Na}_{24}\text{Si}_{136}$ ) 単結晶からの Na イオン除去により半導体し、点欠陥を介した Na イオン拡散機構を第一原理計算から解明した。NaAlB<sub>14</sub> からの Na イオン除去により部分的なキャリアドープに成功した。これらの新規化合物群は熱電材料として有望であり、熱電特性の最適化と測定用の大型試料の作製に取り組んでいる。

デバイス化時に必要となるバリア金属膜の最適化を高速化するため、接触抵抗の TLM 測定の高速化のための自動化を行った。COVID-19 に関わる追加研究テーマとして、有機金属 MOD 法による  $\text{TiO}_2$  光触媒薄膜の作製と評価を行った。

## § 2. 研究実施体制

### (1) 桂グループ

- ① 研究代表者: 桂 ゆかり (物質・材料研究機構 統合型材料開発・情報基盤部門 主任研究員)
- ② 研究項目
  - ・化合物探索マップの改良
  - ・機械学習の予測精度の向上
  - ・Starrydata web システムの改良
  - ・LabMine による実験データ共有の実現
  - ・熱電材料以外の物質の実験データの収集
  - ・結晶構造シミュレーター用 API の開発

### (2) 秋山グループ

- ① 主たる共同研究者: 秋山 正和 (富山大学 学術研究部理学系 准教授)
- ② 研究項目
  - ・結晶構造シミュレーターの剛体球モードの実現
  - ・結晶構造シミュレーターの四面体確率分布モードの実現
  - ・周期性の判定アルゴリズムの開発

### (3) 森戸グループ

- ① 主たる共同研究者: 森戸 春彦 (東北大学 金属材料研究所 准教授)
- ② 研究項目
  - ・固相反応法や Na フラックス法などによる大規模試料合成実験
  - ・新規相の結晶構造と電子構造の評価
  - ・新規熱電変換材料の探索

### (4) 藤岡グループ

- ① 主たる共同研究者: 藤岡 正弥 (北海道大学 電子材料研究所 助教)
- ② 研究項目
  - ・固体電気化学・高圧合成・アンモニア窒化法を利用した新規物質の探索
  - ・機械学習から予測された熱電変換材料の開発

### (5) 菅原グループ

- ① 主たる共同研究者: 菅原 徹 (大阪大学 産業科学研究所 准教授)
- ② 研究項目
  - ・森戸・藤岡グループで合成された試料の熱伝導率の測定
  - ・化合物探索マップに基づいたメタライズ構造の提案と接触抵抗値の精密測定

【代表的な原著論文情報】

- 1) Yoyo Hinuma, Yukari Katsura, “Categorization of inorganic crystal structures by Delaunay tetrahedralization”, *Science and Technology of Advanced Materials: Methods*, vol.2, No.1, pp.75–83. 2022
- 2) Suguru Iwasaki, Mihiro Hoshino, Haruhiko Morito, Masaya Kumagai, Yukari Katsura, Melbert Jeem, Madoka Ono, Junji Nishii, Masaya Fujioka, “Electric Transport Properties of  $\text{NaAlB}_{14}$  with Covalent Frameworks”, *Inorg. Chem.*, vol. 61, pp.4378-4383, 2022
- 3) Suguru Iwasaki, Haruhiko Morito, Takashi Komine, Kazuki Morita, Taizo Shibuya, Junji Nishii, Masaya Fujioka, “A Novel Technique for Controlling Anisotropic Ion Diffusion: Bulk Single-Crystalline Metallic Silicon Clathrate”, *Advanced Materials*, vol.34, pp.2106754, 2022
- 4) Haruhiko Morito, Takuji Ikeda, Yukari Katsura, Hisanori Yamane, “ $\text{Na}_3\text{MgB}_{37}\text{Si}_9$ : an icosahedral  $\text{B}_{12}$  cluster framework containing  $\{\text{Si}_8\}$  units”, *Acta Crystal. E*, vol.78, pp.203-206, 2022
- 5) Haruhiko Morito, Hisanori Yamane, Rie Y. Umetsu, Kozo Fujiwara, “Seeded growth of type-II  $\text{Na}_{24}\text{Si}_{136}$  clathrate single crystals”, *Crystals*, vol.11, pp.808, 2021