

課題名(タイトル):

## 新規機能電子デバイスのための電子材料設計

利用者氏名:

○松岡貴英(1)

理研における所属研究室名:

(1) 計算科学研究センター 量子系分子科学研究チーム

1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

ペロブスカイト太陽電池の正孔輸送材料 Spiro-OMeTAD はその高いエネルギー変換効率で知られている。Cs<sub>0.10</sub>FA<sub>0.90</sub>Pb(I<sub>0.83</sub>Br<sub>0.17</sub>)<sub>3</sub> ペロブスカイトに対するエネルギー変換効率は 21.1 % である[1]。Spiro-OMeTAD の合成費用はおよそ \$274/g と推定されている[2]。比較的高いエネルギー変換効率でより安価な正孔輸送材料も見つかっており (X60: \$120/g, Py-C: \$192/g, etc), より高いエネルギー変換効率を保持しつつより安価な合成コストが推定される材料の探索が必要である。

2. 具体的な利用内容、計算方法

機械学習を用いて正孔輸送材料を効率的に探索することを目指す。我々は分子記述子を入力データとした深層ニューラルネットワークを用いて正孔輸送材料のエネルギー変換効率を推測するモデルを構築した。さらにガウス過程回帰モデルを用いて獲得関数を評価しベイズ最適化を行った。膨大なケミカル空間を探索するために離散粒子群最適化を採用した。

## ベイズ最適化による正孔輸送材料設計

正孔輸送材料の分子構造の組み合わせから分子を生成し、そのエネルギー変換効率を推測する学習モデルを構築した。学習モデルの訓練データには、ペロブスカイト太陽電池の正孔輸送材料のエネルギー変換効率の実験値(計 400)を用いた。入力データとして正孔輸送材料(170 分子)、活性層(54 組成, VBM, CBM), 電子輸送材料(6 分子, CBM), ドーパント, 活性面積, エネルギー変換効率を採用した。さらに Mordred を用いて分子記述子を計算し、入力データに加えた。エネルギー変換効率を目的変数、その他を説明変数とした深層ニューラルネットワークを構築した。3,4-エチレンジオキシチオフェンを骨格として 170 種類の置換基を用意した。典型的な実験条件のもと候補分子をガウス過程回帰モデルによって選択した。仮想実験として、深層ニューラルネットワーク推測モデルから候補分子のエネルギー変換効率を推測した。仮想実験を繰り返すことで、

ガウス過程回帰モデルを改善し、最適な候補分子を探索した。

## 離散粒子群最適化による正孔輸送材料設計

骨格を限定しない場合、候補分子の組み合わせはおよそ  $10^6$  通りとなり、このケミカル空間を網羅的に探索することは困難になる。離散粒子群最適化を採用し、膨大なケミカル空間を探索する。170 分子の正孔輸送材料を 3 つのフラグメントに分解し、これらのフラグメントから候補分子を構築する。Mordred を用いてフラグメント毎に分子記述子を計算し、それらの組み合わせを正孔輸送材料の入力データとした。さらに電子輸送材料の CBM と活性層の CBM と VBM と活性面積を加えて説明変数とし、エネルギー変換効率を推測する深層ニューラルネットワークを構築した。この推測モデルが与えるエネルギー変換効率を目的関数として離散粒子群最適化法を適用した。フラグメントの数を  $n$ , フラグメントを配置する箇所を  $N$  としたとき、粒子の座標を  $n \times N$  ビット行列として定義した。座標は確率的に更新され、1カ所あたり 1 つのフラグメントが選ばれるように確立関数はソフトマックス関数で評価した。

3. 結果

## ベイズ最適化による正孔輸送材料設計

3,4-エチレンジオキシチオフェンを骨格に持つ H101 と MAPbI<sub>3</sub> のエネルギー変換効率は 13.8 % である[3]。深層ニューラルネットワーク学習モデルの推測値は 12.9 % であり、予測性能は高いと言える。ベイズ最適化により、高いエネルギー変換効率が期待される候補分子が図1のように見つかった。

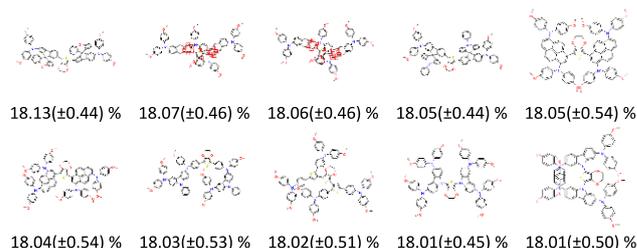
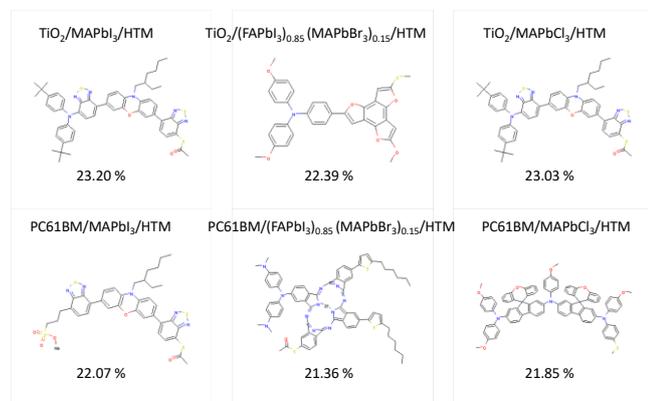


Figure 1 ベイズ最適化による正孔輸送材料の候補分子

### 離散粒子群最適化法による正孔輸送材料設計

異なる実験条件でそれぞれの候補分子の探索を行った。異なる中心骨格を有する候補分子でも、いずれのエネルギー変換効率が高いことが示された(図 2)。さらなる検討には実験あるいは仮想実験が必要である。



**Figure 2** 粒子群最適化法による正孔輸送材料の候補分子

#### 4. まとめと今後の計画・展望

ベイズ最適化と粒子群最適化を採用し、高いエネルギー変換効率が推測される候補分子を探索した。ベイズ最適化によって見つかった候補分子は、18 %を超え十分に高いエネルギー変換効率を示した。今後は中心骨格を限定しない問題にベイズ最適化を適用し、推測値の確実性を考慮した正孔輸送材料の設計を行う。

[1] M. Saliba et al., Energy & Environmental Science 9, 1989 (2016).

[2] C. H. Teh et al., J. Mat. Chem. A 4, 15788 (2016).

[3] H. Li et al., Angew. Chem. Int. Ed. 53, 4085 (2014).

平成 30 年度 利用研究成果リスト

**【ポスター発表】**

T. Matsuoka and T. Nakajima, “Materials Informatics of Hole-Transporting Materials for Perovskite Solar Cells”, International Workshop on Massively Parallel Programming for Quantum Chemistry and Physics 2019 (2019 年 1 月 16 日, 神戸).