

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。(FAPbI<sub>3</sub>)<sub>0.92</sub>(MAPbBr<sub>3</sub>)<sub>0.08</sub> ペロブスカイトに対するエネルギー変換効率は 23.4 %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.

### ベイズ最適化と離散粒子群最適化法による正孔輸送材料設計

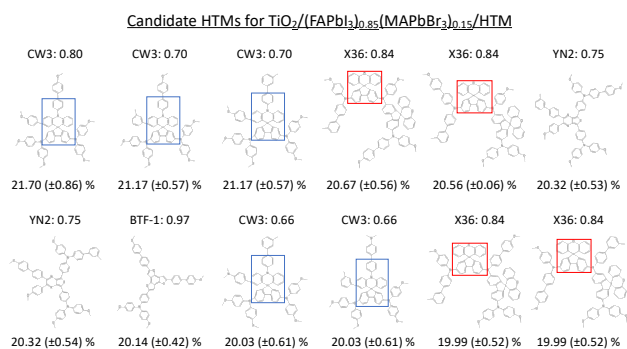
正孔輸送材料の分子構造の組み合わせから分子を生成し, そのエネルギー変換効率を推測する学習モデルを構築した. 学習モデルの訓練データには, ペロブスカイト太陽電池の正孔輸送材料のエネルギー変換効率の実験値(計400)を用いた. 入力データとして正孔輸送材料(170分子), 活性層(54組成, バンドギャップ, VBM, CBM), 電子輸送材料(6分子, CBM), ドーパント, コドーパント, 活性面積, エネルギー変換効率を採用した. 170分子の正孔輸送材料を3つのフラグメントに分解し, これらのフラグメントから候補分子を構築する. Mordred[3]を用いてフラグメント毎に分子記述子を計算し, それらの組み合わせを正孔輸送材料の入力データとし, 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. 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. 候補分子の組み合わせはおよそ32,294,400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. 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. 座標は確率論的に更新され, 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

### ベイズ最適化と離散粒子群最適化法による正孔輸送材料設計

典型的な実験条件として TiO<sub>2</sub> 電子輸送層と (FAPbI<sub>3</sub>)<sub>0.85</sub>(MAPbBr<sub>3</sub>)<sub>0.15</sub> 活性層を採用し候補分子の探索を行った. SAF 骨格および SFX 骨格を有する候補分子のエネルギー変換効率が高いことが示された(図1). SFX 骨格を持つ X55(20.8%)や X26(20.2%)などは高いエネルギー変換効率を示す材料としてすでに報告されており, 図の SFX 骨格分子についても高い変換効率を示すことが期待できる. SAF 骨格をもつ材料として SAF-OMe(16.7%)や CW4(16.6%)などが知られているが, これらから大幅な改善が期待できる20%を超える変換効率の候補分子が選ばれている.



**Figure 1** 正孔輸送材料の候補分子. 青枠は SAF 骨格.  
赤枠は SFX 骨格.

#### 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。量子化学計算を含めた解析を今後展開し、より高精度の推測モデルの構築を進める。また、ベイズ最適化計算を軽量化するなどしてより多くの候補分子を探し出せるようにアルゴリズムの改良を行う。

[1] J. J. Yoo, et al., Energy & Environmental Science 12, 2192 (2019).

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

[3] Moriwaki et al., Cheminformatics, 10:4 (2018).

2019 年度 利用研究成果リスト

**【口頭発表】**

Takahide Matsuoka and Takahito Nakajima, “Material Design of Hole-Transporting Materials for Perovskite Solar Cells”, International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering 2019, Rhodes, Greece (5<sup>th</sup> May 2019).