

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。(FAPbI₃)_{0.92}(MAPbBr₃)_{0.08} 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 395)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(PCE)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, 感度分析で上位 10%のものを学習モデルの説明変数に含めた. さらに Mordred の Matrix aggregating method を用いて計算した分子全体とフラグメント毎のクーロン行列と NTChem[4]を用いて計算したフラグメント毎の量子記述子(HOMO, LUMO, 全エネルギー,

Dispersion Energy, 全電子エネルギー, 生成熱, 双極子モーメント)を説明変数に含めた. 実験データ, 分子記述子(分子全体とフラグメント), 量子記述子(フラグメント), クーロン行列(全体とフラグメント)を説明変数として, PLSR, SVM, kNN の Stacking ベースレイヤーの学習モデルを構築した. 構築した Stacking ベースレイヤーの予測 PCE を説明変数に加えて, さらに Stacking ベースレイヤーの学習モデルを構築する. これを繰り返し, Stacking ベースレイヤーを 30 個用意した. Stacking ベースレイヤーの予測値を説明変数に加えて, 深層ニューラルネットワークモデルを構築する. 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

20通りの計算を行い, 計 5793 分子を候補として選択した. トリアリールアミンと長いアルキル鎖を有する構造の分子のエネルギー変換効率が高いことが示された(図 1).

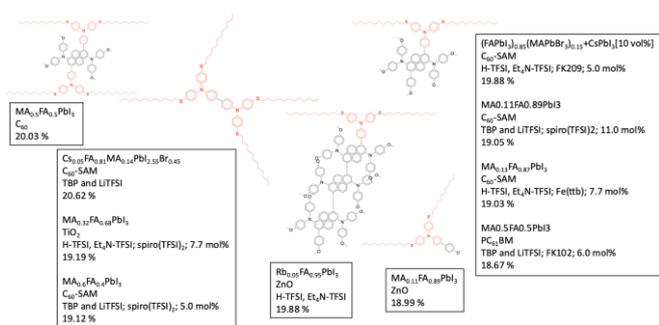


図 1. 候補分子

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した。継続して学習データの更新を行っており、新しい学習データを用いて学習モデルのハイパーチューニングを行い、感度分析の結果含める説明変数を検討した上で、予測精度の向上を計画している。また、候補分子の合成可能性についても検討を行う。

[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).

[4] Nakajima et al., Int. J. Quantum Chem. 115, 349 (2015).