

プロジェクト名(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. 本プロジェクトの研究の背景、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 % であり[1], その誘導体である Spiro-mF の FAPbI₃ ペロブスカイトに対するエネルギー変換効率は 24.8 % とペロブスカイト太陽電池の最高値である[2]. Spiro-OMeTAD の合成費用はおよそ \$274/g と推定されている[3]. 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. そこで我々は機械学習を用いて正孔輸送材料を効率的に探索する方法を開発した. 本方法で, 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, 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バ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.

2. 具体的な利用内容、計算方法

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 712)を用いた. 入力データとして正孔輸送材料(326 分子), 活性層(88 組成, バンドギャップ, VBM, CBM), 電子輸送材料(10 分子, CBM), ドープant, コドープant, 活性面積, エネルギー変換効率(PCE)を採用した. 326 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[4]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 NTCChem[5]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 10 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 90,000,000 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

20 通りの計算を行い, 計 1545 分子を候補として選択した. Spiro-OMeTAD の PCE よりも高いと予測される HTM 候補が 4 つ見つかった. 選択された HTM はすべてフッ素付加されており, spiro-mF と同じ特徴を有し, 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. また, スピロ環がなくても高エネルギー変換効率が期待できる構造があることが示された.

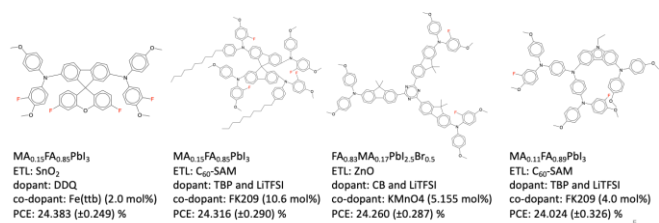


Figure 1. 高いエネルギー変換効率が期待される正孔輸送材料.

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

[2] M. Jeong et al., Science 369, 1615 (2020).

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

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

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