

令和 6 年 6 月 15 日現在

機関番号：22701

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K05390

研究課題名（和文）計算科学による分子自動探索技術の開発と次世代太陽電池への応用

研究課題名（英文）Computational study on development of automatic molecular search methodology and application to next-generation solar cells

研究代表者

今村 穰（Imamura, Yutaka）

横浜市立大学・生命ナノシステム科学研究科（八景キャンパス）・客員教授

研究者番号：60454063

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、これまで開発してきた自動探索スキームを基盤に、特定の物性を示す分子を自動探索可能なプラットフォームを開発を行った。さらに、次世代太陽電池材料である有機薄膜太陽電池のアクセプター分子に適用し、新材料を提案を行った。具体的には、有機薄膜太陽電池の非フルレレンアクセプターの部分構造の最適化を検討したところ、候補分子として、共役系が伸長した骨格分子などが生成され、妥当な結果を得ることができた。一方、分子の対称性は失われており合成の観点からは考慮の余地を残し、また定性的には問題がないものの、光電変換効率を過少評価する問題も確認できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で特定の物性を示す分子を自動探索可能なプラットフォームを開発を実際に行い、有機薄膜太陽電池のアクセプター分子に適用し、妥当な結果を得られたことは意義深い。今回は、アクセプター分子にだけ適用したがドナーにも展開可能であり、また、その他の孤立有機分子に対しても適用可能で、広い素材開発分野での今後の活用が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this study, we developed a platform capable of automatically searching for molecules exhibiting specific properties, based on our previous research. Furthermore, we applied this platform to acceptor molecules in organic thin-film solar cells, a next-generation solar cell material, and proposed new materials. Specifically, we optimized the substructures of non-fullerene acceptors for organic thin-film solar cells and generated candidate molecules, such as skeleton molecules with extended conjugated systems. However, the symmetry of the molecules was lost, leaving room for consideration from a synthesis perspective. Furthermore, while there were no qualitative issues, we identified a problem of underestimating the photoelectric conversion efficiency.

研究分野：量子化学

キーワード：分子自動生成 逆問題 有機薄膜太陽電池 インフォマティクス

1. 研究開始当初の背景

持続可能な社会の実現には、エネルギー問題を解決する次世代太陽電池の開発が重要である。有機薄膜太陽電池は、ここ数年でフラーレン誘導体の代替材料であるアクセプターの開発で大きな進展があり、光電変換効率が現段階で 20% 程度に大きく向上している。

一方、望みの物性や機能を持つ有機薄膜太陽電池材料を効率的に開発する手法はまだ確立されていない。これまで科学者の勘と経験に基づき、試行錯誤により新材料は開発され発展してきた。しかし、研究資源が限られた中で人間が試行錯誤で材料を探索することに対して限界も指摘されている。

そこで、進展著しい深層学習を用いて有機薄膜太陽電池の材料探索を行う。これまで、カナダトロント大学の Aspuru-Guzik グループにより、インフォマティクスに基づく有機半導体の探索に対するアプローチなどが報告されている。しかし、現在までのところ革新的な新材料の報告はない。

2. 研究の目的

本研究では、材料自動生成スキームの導入および完成した手法を次世代太陽電池である有機薄膜太陽電池に適用し、有力な候補材料を発見する。ライブラリを用いると新奇性が乏しくなるため、深層学習に基づいて分子生成するアプローチを導入する。まず、すでに発表されている深層学習に基づく分子生成プログラムパッケージを用いて予備検討を行ない、その結果に基づき実用性の高い分子の自動探索を開発することにした。

3. 研究の方法

材料自動探索の深層学習のアルゴリズムとして、Recurrent Neural Network (RNN)を用いた強化学習による材料自動探索アルゴリズムを実装した。目的変数である光電変換効率(PCE = $J_{sc} \times V_{op} \times FF$)を、アクセプター・ドナー材料の電子物性から予測する機能を実装する。短絡電流 J_{sc} は、ドナーの最低励起エネルギーより短波長な太陽光はすべて吸収されるとして求める。解放電圧 V_{op} は、ドナーの最高占有軌道(HOMO)とアクセプターの最低非占有軌道(LUMO)の軌道エネルギーの差に、電荷分離にともなう電圧降下を考慮して決定する。FF は、有機薄膜太陽電池の製造プロセスにも依存するものであり、今回は固定とする。光電変換効率の計算に必要なアクセプター・ドナー材料の HOMO、LUMO エネルギー、励起エネルギーの見積りできる機能を実装した。電子物性に関しては、半経験的・非経験的な量子化学計算プログラムと連携する。最終的には、光電変換効率が高い候補分子を求める。

4. 研究成果

RNN を用いた強化学習による分子生成アルゴリズムを用いて、分子量 300 以内で 500 エポック強化学習済みのモデルを構築した。また、生成する分子の分子量が 300 を超えると、評価関数がゼロとなるようにした。また、一部の部分構造にはペナルティが掛かるようにした。

ドナー分子は、PM6 のポリマーとし、PCE の見積りに必要な軌道エネルギーは実験値では

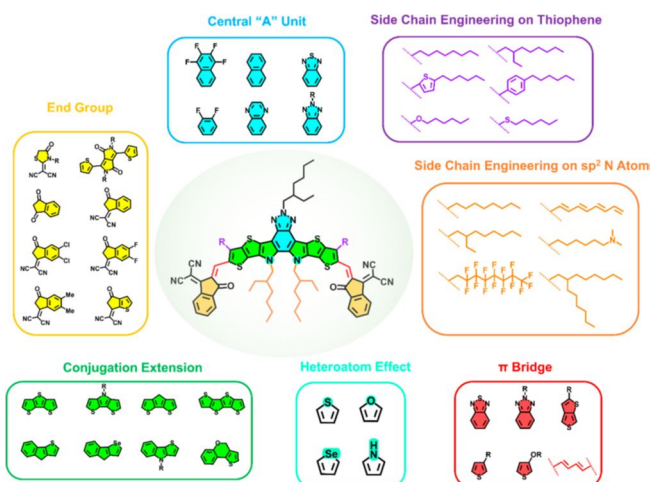


図 Y6 の分子構造 (ACS Nano 2021, 15, 18679 から参照)

なく計算から見積もった。アクセプター分子の基本骨格は、Y6 とし、図の Central A ユニットの部分に対して構造探索を行った。

光電変換効率の見積りにおいて、HOMO、LUMO のエネルギーを正確に見積もる必要がある。一方で、材料スクリーニングの観点からは、高精度高コストの計算手法を用いることは難しい。まずは、半経験的な計算手法である密度汎関数強束縛(DFTB)を用いて軌道エネルギーの見積りを行った。計算コストは低く、スクリーニングとしては問題がなかったが、HOMO、LUMO エネルギーの変動幅が大きく PCE の見積りが厳しいことがわかった。次に、非経験的計算手法である密度汎関数理論(DFT)で B3LYP 汎関数を用いて計算することとし、基底関数として 6-31G を用いた。Y6 の構造に対して中心部分に関して構造探索を行った。得られた構造を確認すると、立体障害が高い側鎖を有する分子が得られているが、妥当な構造なことがわかった。PCE が上位な分子を確認したところ、共役系が伸長した有機薄膜太陽電池のアクセプター分子などが得られた。本分子探索において、分子の対称性や合成可能性などは考慮されておらず、今後検討を進めていきたい。また、DFT で見積もられた HOMO、LUMO エネルギーを用いたため実験値と比較し PCE が大きく過小評価されており、今後機械学習モデルを用いた軌道エネルギーの見積りも考えていきたい。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Motomichi Tashiro Yutaka Imamura Michio Katouda	4. 巻 42
2. 論文標題 De novo generation of optically active small organic molecules using Monte Carlo tree search combined with recurrent neural network	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Computational Chemistry	6. 最初と最後の頁 136 143
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1002/jcc.26441	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kanno Shohei, Imamura Yutaka, Hada Masahiko	4. 巻 3
2. 論文標題 Alternative materials for perovskite solar cells from materials informatics	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Materials	6. 最初と最後の頁 75403
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevMaterials.3.075403	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Imamura Yutaka, Suganuma Marina, Hada Masahiko	4. 巻 123
2. 論文標題 Computational Study on the Search for Non-Fullerene Acceptors, Examination of Interface Geometry, and Investigation of Electron Transfer	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry C	6. 最初と最後の頁 17678 ~ 17685
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpcc.9b02933	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計0件

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------