九州大学情報基盤研究開発センター

民間利用成果報告書

提出日：　2023年　4月　20　日

<table>
<tr><td colspan="2">利用課題名</td><td colspan="5">大規模計算方法の開発と、セラミック材料への応用展開</td></tr>
<tr><td rowspan="3">課題責任者</td><td>企業名</td><td colspan="5">京セラ株式会社</td></tr>
<tr><td>フリガナ
氏名</td><td>ナカタ　ヒロヤ
中田　浩弥</td><td>部署名</td><td>基盤技術研究部</td><td>職位</td><td>研究員</td></tr>
<tr><td>連絡先</td><td colspan="3">住　所：〒619-0237
京都府相楽郡精華町光台3丁目5-3
E-mail：hiroya.nakata.gt@kyocera.jp</td><td colspan="2">TE　L0774-95-2121
FAX　0774-95-2121</td></tr>
<tr><td colspan="2">利用期間</td><td colspan="5">2022年　4月　1日　～　2023年　2月　28日</td></tr>
<tr><td colspan="2">利用成果公開延期希望の有無</td><td colspan="5">■　即時公開　・　□　公開延期（成果公開予定：　　年　　月）</td></tr>
</table>

※利用成果報告書は原則公開ですが、課題終了後最大2年間公開を延期することが可能です。

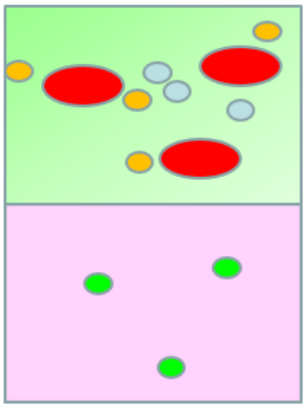
- 本様式の変更はできません。
- 補足資料を付加することは可能です。

受付番号		受付日 年　月　日	受付印	

■利用計画全体の概略（申込書と同じ内容を記述してください）

1)　利用目的（募集要項にある利用条件及び選定基準を満たすことを記述してください。）

ペロブスカイト太陽電池中のイオンおよびホール移動の解析



ペロブスカイト太陽電池は安価で高効率の発電が可能なため、将来的な商用太陽電池として注目を集めている。発電効率は高い一方で、耐久性が課題で、長時間、安定に性能を発揮する材料の探索が重要な研究テーマの一つとなっている。

劣化メカニズムとして、ペロブスカイト層におけるヨウ素のイオン拡散や、ホール輸送層の電子状態変化が様々な実験から示唆されている一方、明確な結論がでていない。そこで我々は、大規模量子化学計算技術と動的モンテカルロ法を組み合わせて、ペロブスカイト太陽電池の安定性を調べる。

1)　利用意義

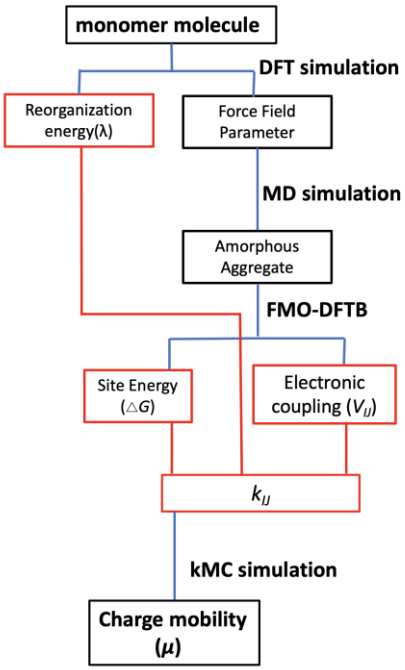
結晶およびアモルファス構造中のイオン電導やホール移動の解析は、半導体や電池の材料開発に重要な指標となる。一方で、既存の量子化学計算ソフトを用いた解析は計算コストおよび精度について課題がある。我々は分子分割軌道(FMO)法と DFTB と動的モンテカルロ法を組み合わせた新しい計算方法を開発し、低コストかつ高精度でイオン電導やホール移動を解析する手法の確立を目指す。本手法は産業界で重要な半導体や電池の材料開発に役立つため、非常に意義が高い研究である。

2)　必要性

イオンやホール移動の解析をするために、我々は第一原理計算ソフトQUANTUM ESPRESSOと GAMESS の利用を検討している。ペロブスカイト層表面や、有機アモルファス構造中の電子状態を解析するため、どちらも大規模モデルの解析が必要でスパコンを用いた並列計算が必須となる。特に有機アモルファス構造の解析に利用する FMO 法は、各分子をフラグメントに分けて独立に解析する。そのため非常に高い並列化効率を示し、100～1000 コア程度の並列化で数万～数十万原子の第一原理計算が可能である。大規模並列化に優れた FMO 計算を実施するためにスパコンが必要である。

■成果の概要

1)　本課題で得られた具体的な成果



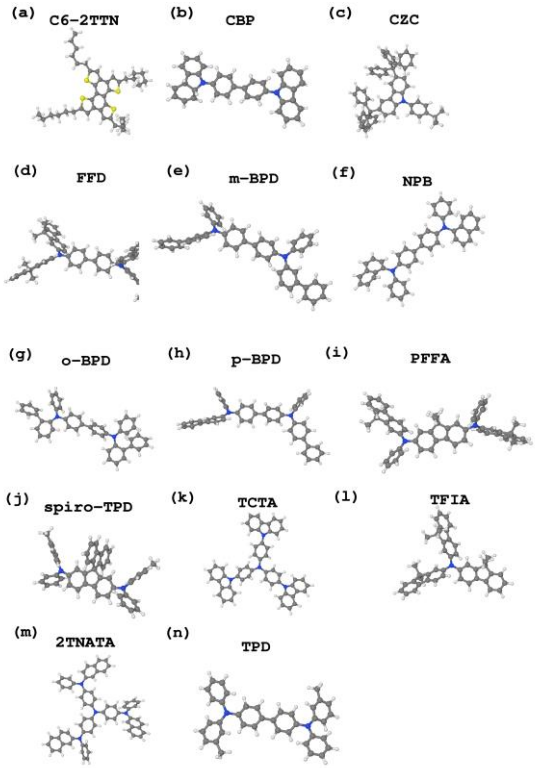


図 1)　左）本研究で用いた計算の流れ

右）ベンチマークに利用した分子構造

本課題では第一原理計算、分子動力学計算、 FMO-DFTB, そして 動的モンテカルロ と異なる 4 つのスケールの計算を複合することでホール輸送層の移動度を解析した（図 1 左)。計算結果の信頼性を確かめるため、14 種類の分子についてホール移動度を計算で見積もり、実験値と比較した（図 1 右）。計算結果と実験結果（文献値）との比較を図 2 に示す。

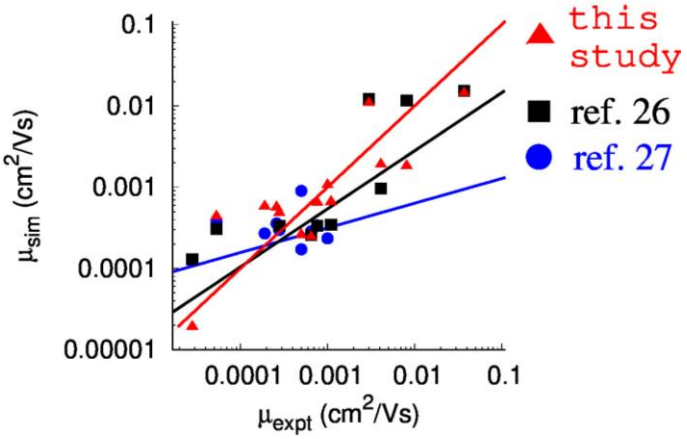


図 2）ホール移動度について、実験値と計算値の比較

図 2 において赤線は本研究で得られた結果で、青線、黒線は先行研究の結果である。青線の先行研究と比較すると、計算精度が改善されたことがわかる。移動度が大きい領域で、黒線の先行研究は同程度の予測精度を示している。一方で移動度が小さい場合、計算値は実験の値より大きい傾向がある。本研究ではこれらの問題点を解決することができ、幅広い範囲で移動度の実測値を予測可能であった。

実験値の正確な再現に加えて、ホール輸送の移動度を決定する要因について本研究では詳細な解析を実施した（詳細は下記の文献を参照）。例えば 分子軌道の重なりは、移動度の大小を左右するキーパラメータの一つとなっており、最も移動度が大きい C6-2TTN と最も移動度が小さい 2TNATA について、それぞれの分子軌道を図 3 に例として示す。

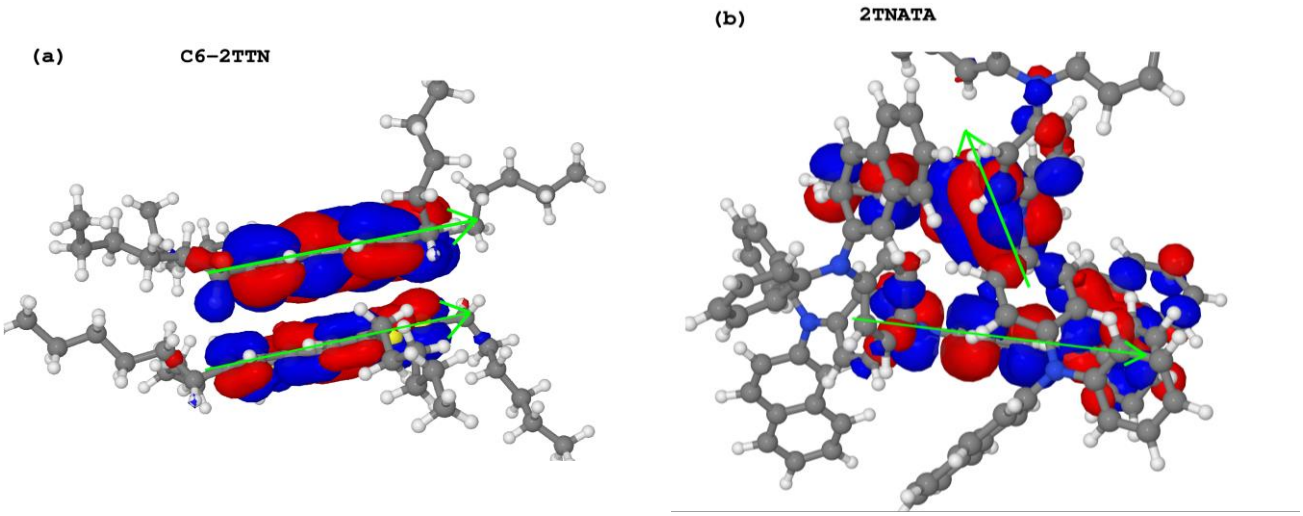


図 3）分子軌道の可視化（ホール移動度のメカニズム理解)

ホール移動度が大きい C6-2TTN では分子軌道が平行に重なり、非常に大きいな相互作用が発生する。一方で 移動度が小さい 2TNATA では互いの分子軌道が垂直方向に避けあい重なりが弱くなる。こうした分子軌道の相互作用が移動度を決める一つの重要因子であることが計算結果より明らかになった。

2) 社会・経済への波及効果の見通し

有機半導体のホールや電子の移動度は実験的な解析も難しく、いまだ多くの課題が残っている。一方でシミュレーションも汎用的なソフトや手順が不明でこれまで解析の敷居が高かった。今回、FMO-DFTB を利用することにより、著しい計算コストの削減が可能となり、統計的な解析によりホール輸送のメカニズムを理解した。得られた情報は新しいホール輸送材料の開発につながる。また材料計算の良い適用事例ともなり、材料計算を利用した材料開発を普及させることにもつながる成果である。

3) その他

本研究の詳細は学術論文として公開されているので、以下の URL を参考にしてください。

(https://pubs.acs.org/doi/abs/10.1021/acs.jctc.2c01221)

J. Chem. Theory Comput. 2023, 19, 5, 1517−1528.

Toward Accurate Prediction of Ion Mobility in Organic Semiconductors by Atomistic Simulation

■利用アンケートにご協力ください

1) 利用に関して有益であった事項

社内の計算機と比較して、著しい計算速度の向上ができるため、課題を効率よく進めることが可能でした。

2) 利用に関して生じた問題点など

3) ユーザーサポートとして必要と考えられることについて

4) 施設利用に係る感想・改善を希望することについて

5) 本事業で得られた成果や公表する予定の成果があれば以降に記述をお願いします

論文： J. Chem. Theory Comput. 2023, 19, 5, 1517−1528.

Toward Accurate Prediction of Ion Mobility in Organic Semiconductors by Atomistic Simulation

学会発表(予定)： 分子科学討論会