

大阪科学・大学記者クラブ 御中  
 (同時提供先：文部科学記者会、科学記者会)

2024年9月30日  
 大阪公立大学

## 効率化されたフローとAIで 新たな有機半導体の合成に成功

### <ポイント>

- ◇AIを用いた新しい有機半導体分子の設計、分岐的合成<sup>\*1</sup>、評価を実施。
- ◇有機半導体分子に水素結合アクセプター原子<sup>\*2</sup>を導入した場合、より強固な分子間相互作用がはたらき、有機半導体特性が向上することを機械学習により発見。実際に合成した半導体分子においても、その傾向があることが判明。

### <概要>

有機半導体<sup>\*3</sup>は有機ELディスプレイや有機太陽電池など、さまざまなデバイスに応用されています。有機半導体の性能向上を目指し、これまでは候補となる材料一つ一つを実際に合成してデバイスを作成し、評価していました。そのため、有機半導体分子の設計段階で特性を見極めることができれば、より効率的な開発方法が生まれると考えられます。

大阪公立大学大学院工学研究科の大垣 拓也特任助教、松井 康哲准教授、内藤 裕義特任教授、池田 浩教授、理学研究科の麻田 俊雄教授らの共同研究グループは、機械学習モデルを用いて、窒素や硫黄を導入した7種類の新たな有機半導体分子を設計し、合成、評価を行いました。その結果、機械学習で予測していた通り、分子間相互作用が強い分子は比較的高い正孔移動度<sup>\*4</sup>を示し、有機半導体としての性能が高いことが明らかになりました。本研究結果は、機械学習を利用した有機エレクトロニクスの発展に貢献することが期待されます。

本研究結果は、2024年7月22日に国際学術誌「Chemistry – A European Journal」にオンライン掲載されました。

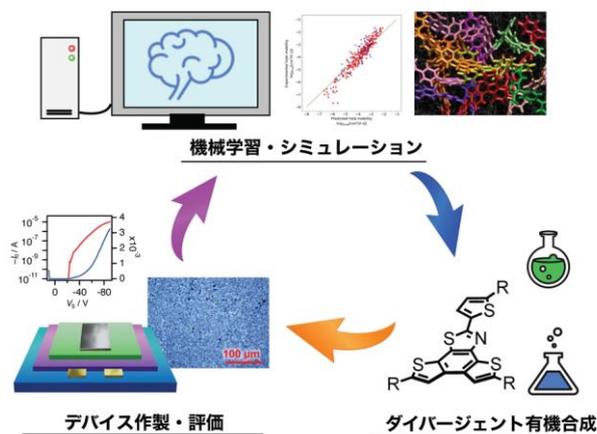


図1 シミュレーション、合成、評価のフロー

AIを使った物質開発の研究はますます本格化していきませんが、AIの学習と研究者の経験を組み合わせた新材料開発が今後は重要となっていくと考えます。



池田教授 松井准教授 大垣特任助教

## <研究の背景>

有機半導体は、1980年代からコピー機の感光体として使用されるなどの応用実績があり、さまざまな用途に向けた研究が行われてきました。有機半導体材料において、優れた特性を得るためには、優れた結晶構造やアモルファス構造が重要です。しかし、どのような有機分子が良い構造を形成するかについて統一的な理解が確立されていないため、材料の候補を全て実際に合成し特性を評価するという研究が主流でした。そのため、優れた材料をより効率的に作成する方法が求められています。

## <研究の内容>

研究グループは以前の研究において、コンピュータ上でアモルファス固体をモデリングして有機半導体の特性を予測し、実際の化合物と比較する方法を報告しています(参考論文1、[参考動画](#))。本研究では、機械学習を用いて有機半導体の特性予測と分子デザインを行い、実際に数種類の半導体の分岐的合成と物性評価をしました。まず、文献調査により321種類の有機半導体分子の構造情報と正孔移動度( $\mu$ )のデータを収集し、80%を学習データ、20%をテストデータに分割した上で、機械学習により相関データを作成しました(図2)。その結果、分子に水素結合アクセプター原子である窒素(N)や硫黄(S)の個数( $N_{\text{HBA}}$ )が有機半導体特性に対して重要な指標であり、 $N_{\text{HBA}}=4\sim6$ が最適範囲であることを見出しました(参考論文2)。研究グループは、多くの有機半導体分子が水素原子を持つことから、特性向上の理由を水素結合アクセプター原子による、薄膜における強固な分子間相互作用によるものと考えました。そこで、実際に $N_{\text{HBA}}$ が5となる新規半導体としてジチエノベンゾチアゾール(DBT)という新規半導体分子を設計し、臭化物**5**から誘導体化を行う分岐的合成戦略により、7種の有機半導体**1a-1g**を得ました(図3)。

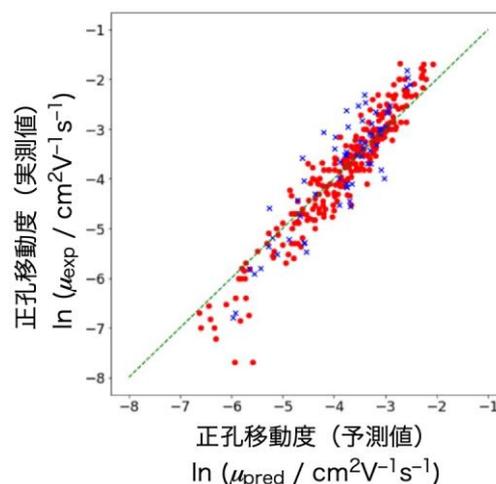


図2 321種の有機半導体分子の正孔移動度の予測値 $\mu_{\text{pred}}$ と実際値 $\mu_{\text{exp}}$ の相関(赤:学習データ、青:テストデータ)

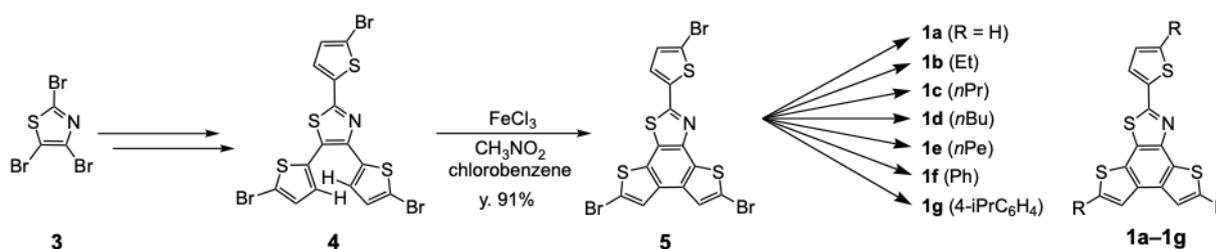


図3 有機半導体**1a-1g**の合成ルート

分岐的合成により、複数種類の化合物を効率的に得ることができる。

合成した有機半導体**1a-1g**は、最終的には固体デバイスに適用されるため、それぞれの化合物のX線結晶構造解析<sup>※5</sup>を行いました(図4)。結晶中において**1a-1g**はさまざまな積層構造を有しており、隣接する分子間の電荷移動積分を計算したところ、一次的に高い値をもつ結晶と、二次元的に多方向に高い値をもつ結晶が確認できました。特に**1b**と**1c**においては、導入したS原子やN原子が隣接分子と水素結合を示したほか、S原子同士の相互作用(S $\cdots$ S接触)も確認されました。このように、水素結合アクセプター原子が示す分子間相互作用が固体構造を制御するという機械学習の結果を支持しました。

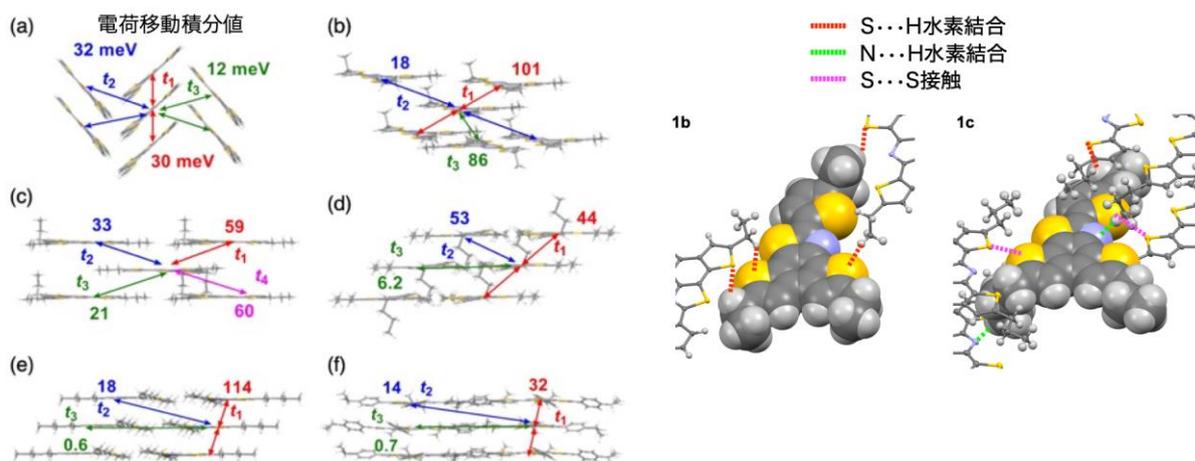


図4 (左) 化合物 **1b-1g** の結晶構造とシミュレーションによって得た電荷移動積分 (meV)  
 (右) **1b** と **1c** の結晶中においてはたらく主要な分子間相互作用  
 (赤: S...H 水素結合、緑: N...H 水素結合、桃: S...S 接触)

これらの材料を用いて実際に有機トランジスタを作製し、特性評価を行いました。その結果、結晶相において強い分子間相互作用が働く **1b** では、約  $0.1 \text{ cm}^2 \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-1}$  程度の比較的高い正孔移動度を示し、有機半導体としての性能が高いことが明らかになりました。

#### <期待される効果・今後の展開>

本研究は、機械学習を駆使した新材料開発において重要な論文になると考えています。このような分子デザイン法は有機半導体のみならず種々の有機材料の開発に利用できる可能性があり、新たな材料開拓への応用が期待できます。本研究で得られた特性も機械学習へフィードバックし、新たな材料開発を継続していきます。

#### <資金情報>

本研究の一部は、科学研究費助成事業(科研費)(JP22K05069、22K14667、JP21H04564、JP21H05494、P20H02716、20K15264、JP19H00888、JP17H01265)、特に学術変革領域研究(A) デジタル有機合成(JP21A204、JP24H01092、JP22H05377)、大阪公立大学戦略的研究支援事業、コニカミノルタ科学技術振興財団からの支援を受けて行われました。

#### <用語解説>

- ※1 分岐的合成: 最終段階で多種類の化合物に誘導する合成ルート。直線的合成や収束的合成といった手法と比べ、多種類の化合物を効率的に得ることができる。
- ※2 水素結合アクセプター原子: 水素結合を形成する水素以外の原子。酸素、窒素、フッ素など。
- ※3 有機半導体: 有機物からなる半導体。正孔を流す p 型と電子を流す n 型に大別される。シリコンなどの無機半導体と異なり、溶媒を用いた溶液プロセスにより素子作製が可能。
- ※4 正孔移動度: 半導体膜中を正孔が単位電界強度の下で単位時間あたりに移動する平均距離。
- ※5 X 線結晶構造解析: X 線を単結晶に照射し、その回折パターンを解析することで結晶における分子配列を明らかにする手法。

<掲載誌情報>

【発表雑誌】 Chemistry – A European Journal

【論文名】 Machine Learning-Inspired Molecular Design, Divergent Syntheses, and X-Ray Analyses of Dithienobenzothiazole-Based Semiconductors Controlled by S···N and S···S Interactions

【著者】 Takuya Ogaki, Yasunori Matsui\*, Haruki Okamoto, Naoyuki Nishida, Hiroyasu Sato, Toshio Asada, Hiroyoshi Naito, Hiroshi Ikeda\* (\*責任著者)

【掲載 URL】 <https://doi.org/10.1002/chem.202401080>

<参考論文 1>

【発表雑誌】 Bulletin of the Chemical Society of Japan

【論文名】 Computational Approach for Molecular Design of Small Organic Molecules with High Hole Mobilities in Amorphous Phase Using Random Forest Technique and Computer Simulation Method

【著者】 Keijin Nakaguro, Yuki Mitsuta, Shiro Koseki, Tomohiro Oshiyama, Toshio Asada\* (\*責任著者)

【掲載 URL】 <https://doi.org/10.1246/bcsj.20230130>

【動画 URL】 <https://youtu.be/phbXhgnVU2Q>

<参考論文 2>

【発表雑誌】 The Journal of Organic Chemistry

【論文名】 Amorphous Solid Simulation and Trial Fabrication of the Organic Field-Effect Transistor of Tetrathienonaphthalenes Prepared by Using Microflow Photochemical Reactions: A Theoretical Calculation-Inspired Investigation

【著者】 Atsushi Yamamoto, Yasunori Matsui, Toshio Asada, Motoki Kumeda, Kenichiro Takagi, Yu Suenaga, Kunihiko Nagae, Eisuke Ohta, Hiroyasu Sato, Shiro Koseki, Hiroyoshi Naito, Hiroshi Ikeda\* (\*責任著者)

【掲載 URL】 <https://doi.org/10.1021/acs.joc.6b00117>

【研究内容に関する問い合わせ先】

大阪公立大学大学院工学研究科

教授 池田 浩 (いけだ ひろし)

TEL : 072-254-9289

E-mail : [hiroshi\\_ikeda@omu.ac.jp](mailto:hiroshi_ikeda@omu.ac.jp)

准教授 松井 康哲 (まつい やすのり)

TEL : 072-254-9294

E-mail : [matsui\\_yasunori@omu.ac.jp](mailto:matsui_yasunori@omu.ac.jp)

【報道に関する問い合わせ先】

大阪公立大学 広報課

担当 : 谷

TEL : 06-6605-3411

E-mail : [koho-list@ml.omu.ac.jp](mailto:koho-list@ml.omu.ac.jp)