

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	第一原理計算による有機 - 無機ハイブリッド材料の探索手法の構築
Title(English)	New Search Scheme for Organic-Inorganic Hybrid Materials by First-Principles Approach
著者(和文)	横山智康
Author(English)	Tomoyasu Yokoyama
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11781号, 授与年月日:2022年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:笹川 崇男,山本 隆文,中村 一隆,東 正樹,川路 均
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11781号, Conferred date:2022/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

論文要約

本論文は、「New Search Scheme for Organic-Inorganic Hybrid Materials by First-Principles Approach (第一原理計算による有機－無機ハイブリッド材料の探索手法の構築)」と題し、Chapter 1 から Chapter 7 の計 7 章からなる。本論文の目的は、有機分子と無機元素の組合せゆえに難しかった有機－無機ハイブリッド材料(OIHMs)の「構造予測」と「物性予測」の理論計算について、少ない計算量によって十分な精度で結果を得るための手法を開発することである。以下に各章毎の要点を記す。

Chapter 1 “General introduction”では、本論文の研究背景、目的、概要、及び章構成を示した。

Chapter 2 “Computational methods”では、OIHMs の構造予測法と物性予測法について提案の詳細を述べた。構造予測では、遺伝的アルゴリズムを用いて密度汎関数理論(DFT)に基づく第一原理計算を行うための有機分子と無機骨格の取り扱いに関する手法を提案した。物性予測では、固体液体界面シミュレーションのために開発されてきた3次元参照作用点モデル(3D-RISM)を適用して有機分子を確率分布として取り扱い、第一原理計算と組み合わせることで、計算量を大幅に削減して熱物性評価が行える手法を提案した。

Chapter 3 “Development of a crystal structure prediction method of OIHM using genetic algorithms”では、本論文で提案した構造予測手法の妥当性について述べた。代表的な OIHMs である $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ (MAPbI_3) を例にとり、予測構造や物性に対する入力パラメータ(入力クラスター、ユニットセル中の原子数)の依存性、および実験報告との比較について検討を行った。また、有機カチオンや無機骨格が異なる様々な系に対しての構造予測について詳細を述べた。本手法を用いることで、実験報告されている結晶構造を正確に再現することができ、OIHMs の組成のみから構造を非経験的に予測することに成功した。

Chapter 4 “Application of the crystal structure prediction method”では、本論文で提案した構造予測手法を、未知の OIHMs 探索へ応用することについて述べた。具体的には、 MAI-PbI_2 擬 2 元系に対し、各組成で構造を予測し、得られた結晶構造や第一原理計算で評価した物性について詳細を述べた。本手法が未知の OIHMs の結晶構造や物性を非経験的に予測できることを示すことに成功した。

Chapter 5 “Development of a material property prediction method of OIHM using DFT/3D-RISM”では、本論文で提案した物性予測手法の妥当性について述べた。具体的には、 MAPbI_3 を対象として、電荷密度分布や電子状態、フォノン状態の観点から、従来法と本手法の比較について詳細を述べた。従来法では困難であった無機骨格の対称性を保存して評価することができ、有限温度における OIHMs の電子状態を有機分子の熱運動を考慮して正確に予測することに成功した。

Chapter 6 “Application of the material property prediction method”では、本論文で提案した物性予測手法を、OIHMs の熱物性予測へ応用することについて述べた。具体的には、 MAPbI_3 を対象として、熱膨張係数、バンドギャップの温度依存性、相転移の予測の詳細について述べた。また異種の有機カチオンを混合した系における熱物性の予測の詳細についても述べた。さらに、従来法と本手法の計算量の比較についても述べている。本手法が OIHMs の物性を少ない計算量で高精度に予測することに成功した。

Chapter 7 “General conclusion”では、本論文を総括し、今後の研究展望について述べた。

以上、本論文では実験データの無い有機－無機ハイブリッド材料の構造や物性を、低計算コストで予測を可能にする手法を開発し、高機能材料を計算科学的に発見できる道をひらいた。