

國立臺灣大學工學院高分子科學與工程學研究所

碩士論文

Institute of Polymer Science and Engineering

College of Engineering

National Taiwan University

Master's Thesis



運用機器學習輔助熱激活延遲螢光材料開發

Assisting the Development of Thermally Activated
Delayed Fluorescence Materials via Machine Learning

李浩廷

Hao-Ting Lee

指導教授：黃慶怡 博士

Advisor: Ching-I Huang, Ph.D.

中華民國 113 年 12 月

December, 2024

國立臺灣大學工學院高分子科學與工程學研究所

碩士論文

Institute of Polymer Science and Engineering

College of Engineering

National Taiwan University

Master's Thesis



運用機器學習輔助熱激活延遲螢光材料開發

Assisting the Development of Thermally Activated
Delayed Fluorescence Materials via Machine Learning

李浩廷

Hao-Ting Lee

指導教授：黃慶怡 博士

Advisor: Ching-I Huang, Ph.D.

中華民國 113 年 12 月

December, 2024

謝辭

時光飛逝，想當初大學畢業不知道要幹嘛，毅然決然考了個碩班，不知不覺就經歷了兩年多的碩班生活，從剛進來完全不懂實驗在幹嘛，途中嘗試撰寫計畫，到最後成功完成學業，至今仍不敢相信自己做了那麼多的事情。回顧碩班的生活我想先感謝黃慶怡老師的指導，老師從碩一看我頑皮的模樣，耐著性子慢慢教導我一個碩班學生應該有的樣子，並願意一步一步帶著我進入軌道，在這兩年的學習過程中始終不遺餘力地提供建議，無論是在實驗設計、數據分析，還是論文寫作上，老師的悉心指導都令我獲益匪淺，同時老師對學術誠信與嚴謹態度的要求，也讓我學到了如何成為一名合格的研究者；除了研究以外，我也相當感謝老師作為我人生導師的角色，交會我待人處事的道理，並且不斷叮嚀我粗心的缺點，儘管碩班這兩年來發生了很多事情，但老師依舊陪在我身旁，帶給我一種溫暖且強大的力量，讓我有勇氣面對未來的各種挑戰，再次感謝老師對我的無私付出，這段碩士生涯因您的教導而變得更加充實和有意義，未來的日子裡我將不忘您的教誨，將這份學術精神融入我的工作與生活中。感謝元方在我最一開始不懂技術的時候給予我指導，也感謝與你討論問題時的各個時刻，希望你能在你喜愛的領域上取得成就，然後我還欠你一個鮓魚罐頭。感謝宇鴻無條件地聆聽我的困難與壓力，你是一個很好的聆聽者，同時也有自己的想法，祝福你未來可以更有自信的表達自己，讓大家看到嶄新的你。感謝軒維在我最迷茫的時候拉了我一把，很感謝有你的陪伴讓我往前走，希望你可以遵守你的制約與誓約，不要再遇到我這種卑劣的除念師，祝福你完成學業，以後在台中開派對。最後我要感謝一路以來幫助我的家人與朋友們，沒有大家的支持我應該完成不了這個學位，碩士的這兩年是我目前生涯中最重要的兩年，這兩年的成長超乎我自己的想像，很感謝當初選擇就讀研究所，也很感謝一直以來沒有放棄的我，希望別忘記碩班所學到的知識與教訓，並在未來的工作能夠成就自我。

摘要

本研究針對有機發光二極體 (OLED) 中的熱激活延遲螢光 (TADF) 材料進行深入探討以提升元件的外部量子效率 (EQE)，傳統的 TADF 材料開發方法主要依賴於合成實驗，耗時且成本高，因此本研究引入機器學習技術輔助材料開發，提供更高效且系統化的策略。本研究建構了涵蓋 2000 年至 2023 年期間 TADF 材料數據的資料庫，包括材料結構、光電性質（如激發態能階、速率常數等）及元件表現等數據，並基於此資料庫採用梯度提升回歸演算法分別建立三種模型，首先是性質特徵與元件表現的預測模型，基於光電性質數據建立了 EQE 的預測模型，並通過特徵重要性分析找出影響 EQE 的關鍵性質，研究結果顯示光致發光量子產率(η_{PL})是影響 EQE 最顯著的性質，顯示出提升 η_{PL} 對於優化 OLED 效率的重大意義。接著是分子結構與性質特徵的預測模型，由於前述模型篩選出 η_{PL} 做為關鍵特徵，因此透過結構描述符將材料導入模型進行訓練，並進行關鍵片段的篩選，篩選出影響輻射衰變與非輻射衰變的關鍵結構片段，例如 B_Aromatic、Spiro 與 Triazine 等正向片段，為設計高效能的放光材料提供了指導。最後是分子結構與元件表現的關係模型，為了建立更加直觀的模型，我們進一步將結構導入模型並建立 EQE 預測模型，最終不僅重點分析了正向片段如 B_Aromatic、Spiro 與 Triazine 等對於分子間的正向影響，也探討如 Methyl_Group 與 t-Butyl_Group 對分子間激子猝滅現象的抑制作用，並且分析負向片段的劣勢及其修飾策略，為提升整體元件效率提供了解決方案。本研究系統性分析了 TADF 材料結構、光電性質與元件表現之間的關聯，並提供了準確的預測工具和高表現的材料設計策略，為實驗端提供快速且可靠的材料篩選和優化指南。

關鍵字：機器學習、有機發光二極體、熱激活延遲螢光。

Abstract

This study investigates thermally activated delayed fluorescence (TADF) materials in organic light-emitting diodes (OLEDs) to enhance external quantum efficiency (EQE). Traditional development methods often rely on costly and time-consuming synthesis experiments, limiting efficiency and scalability. To address this, the research integrates machine learning techniques to create a more systematic and effective approach to material development. Database was established, covering TADF material data from 2000 to 2023. This database includes structures, optoelectronic properties and device performance metrics like EQE. Using gradient boosting regression algorithms, predictive models were developed to analyze and optimize the relationship between these variables. The results highlight photoluminescence quantum yield (η_{PL}) as the most critical factor influencing EQE, underscoring its significance in improving OLED efficiency. Further analysis using structure descriptors identified key structural fragments, such as B_Aromatic, Spiro, and Triazine, that enhance radiative efficiency and suppress non-radiative decay, providing actionable guidance for designing high-performance emissive materials. By directly linking molecular structures to EQE performance, the study also revealed the positive impact of structural fragments like B_Aromatic and Triazine on device performance. In addition, it examined the inhibitory effects of fragments such as Methyl_Group and t-Butyl_Group on exciton quenching, proposing modification strategies to mitigate the influence of negative fragments. This study systematically analyzes the relationships between TADF material structure, optoelectronic properties, and device performance. It offers predictive tools and actionable insights, providing a rapid and reliable guide for material screening and optimization in experimental research.

Key words : Machine learning, OLED, TADF

目次



| | |
|---------------------------|-----|
| 謝辭..... | I |
| 摘要..... | II |
| Abstract..... | III |
| 目次..... | IV |
| 圖次..... | V |
| 表次..... | VI |
| 第一章 前言 | 1 |
| 第二章 研究方法..... | 9 |
| 2.1 機器學習模型..... | 9 |
| 2.1.1 梯度提升回歸演算法 [41]..... | 10 |
| 2.2 損失函數與加權損失函數..... | 10 |
| 2.3 相關係數與均方根誤差..... | 11 |
| 2.4 特徵重要性..... | 12 |
| 2.5 結構描述符..... | 13 |
| 2.6 SHAP 解釋性分析 | 14 |
| 第三章 結果與討論..... | 15 |
| 3.1 資料庫蒐集與相關係數矩陣..... | 15 |
| 3.2 性質特徵與元件表現之預測結果..... | 17 |
| 3.3 分子結構與性質特徵之預測結果..... | 22 |
| 3.4 分子結構與元件表現之預測結果..... | 38 |
| 第四章 結論..... | 55 |
| 第五章 參考文獻..... | 57 |
| 附錄..... | 68 |

圖次

| | |
|--|----|
| 圖 1 電子電洞結合成激子後的放光途徑。 | 2 |
| 圖 2 Morgan Fingerprint 結構特徵轉換流程示意圖。 | 14 |
| 圖 3 16 種性質特徵與 EQE 的相關係數矩陣。 | 17 |
| 圖 4 導入 16 種性質特徵並使用梯度提升演算法預測 EQE 之結果。 | 21 |
| 圖 5 導入 16 種性質特徵並使用梯度提升演算法預測 EQE 之特徵重要性。 | 22 |
| 圖 6 導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 η_{PL} 之結果。 | 25 |
| 圖 7 模型使用 SHAP 所分析出影響 η_{PL} 的關鍵結構片段。 | 28 |
| 圖 8 (a)具有 B_Aromatic 、(b)具有 Spiro 結構片段之 η_{PL} 散佈圖。 | 35 |
| 圖 9 (a)具有 Fused_N_Ring 、(b)具有 Triazine 結構片段之 η_{PL} 散佈圖。 | 36 |
| 圖 10 具有負向結構片段(包含 DMAC 、 π -spacer 、 N_Donor 、 OXD 、 Phenazine)之 η_{PL} 散佈圖。 | 37 |
| 圖 11 導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 EQE 之結果。 | 40 |
| 圖 12 模型使用 SHAP 所分析出影響 EQE 的關鍵結構片段。 | 41 |
| 圖 13 (a)具有 B_Aromatic 、(b)具有 Triazine 以及(c)具有 Spiro 結構片段之 EQE 散佈圖。 | 49 |
| 圖 14 (a)具有 N_Donor 以及(b)具有 Fused_N_Ring 結構片段之 EQE 散佈圖。 | 50 |
| 圖 15 (a)具有 t-Butyl_Group 、(b)具有 Methyl_Group 結構片段之 EQE 散佈圖。 | 51 |
| 圖 16 具有負向結構片段(包含 Benzene_Core 、 Carbazole 、 Carbon_chain 、 π -spacer)之 EQE 散佈圖。 | 52 |

表次

| | |
|--|----|
| 表 1 本實驗所使用 TADF 放光材料資料庫中影響 EQE 性質特徵之縮寫與全 名。 | 8 |
| 表 2 導入 16 種性質特徵預測 EQE 評估指標與其他相關文獻之結果比較。 | 21 |
| 表 3 導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 η_{PL} 之評估指標。 | 25 |
| 表 4 本研究使用之結構名稱、片段結構、片段特徵以及結構範例。 | 26 |
| 表 5 導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 EQE 之評估指標。 | 40 |

第一章 前言



隨著科技不斷進步，顯示與照明裝置的需求持續攀升，其中有機發光二極體(Organic Light Emitting Diodes, OLED)因其可撓曲、自發光等特性成為了近年的熱門選擇，相較於傳統的液晶顯示螢幕(Liquid-Crystal Display, LCD)展現出更大的應用優勢。在顯示與照明領域中，「能源效率」是各式電子元件首要關注的效率指標，其意義為投入能源與實際使用能源的比值，在 OLED 中外部量子效率(External Quantum Efficiency, EQE)是被重點關注的指標，是元件外所測量到放出光子數量與注入設備電子數量的比值。為了提升 EQE 需要考量多種因素，常見的優化策略包括放光層的優化 [1]、各層之間的折射率調整 [2] 以及多層結構的引入 [3] 等，這之中又以放光層的優化對 EQE 的影響最為顯著，因此有多篇 Review 文獻以開發高表現的放光層做為主題，期望得到高 EQE 表現的 OLED [4-6]。

放光層為 OLED 元件的核心組件，電子電洞會在該層發生結合，產生高能量的激子後進行放光，該層的材料需要具備良好的光電性質，其中包含電荷傳輸與光電效應，而有機共軛分子的半導體特性提供了理想的解決方案，原因有兩點：其一是有機共軛分子的連續 π 軌域系統使電子能夠自由的在分子內移動，以提升電荷傳輸的效果；其二是透過片段的選擇以修飾結構，以決定最高佔據分子軌道(HOMO)與最低未佔據分子軌道(LUMO)，兩者之間的能階差(Energy Gap)通常位於 1-4 eV 的範圍 [4]，施予 OLED 的電子電洞會透過材料的 HOMO 及 LUMO 進行結合並產生高能量的激子，使材料擁有近紅外線到紫外線範圍內的放光能力。電子電洞結合形成激子後根據自旋量子數的差異可以區分為單重態激發態(Singlet state)和三重態激發態(Triplet state)，兩者激子數量的比例為 1:3 [7]。為了追求更高效率的放光表現，研究人員不斷嘗試各種激子放光方式，OLED 放光層經歷了三個發展階段，分別為第一代螢光(Fluorescent) OLED、二代磷光(Phosphorescent) OLED 及三代熱激活延遲螢光(Thermally Activated Delayed Fluorescence, TADF)OLED。

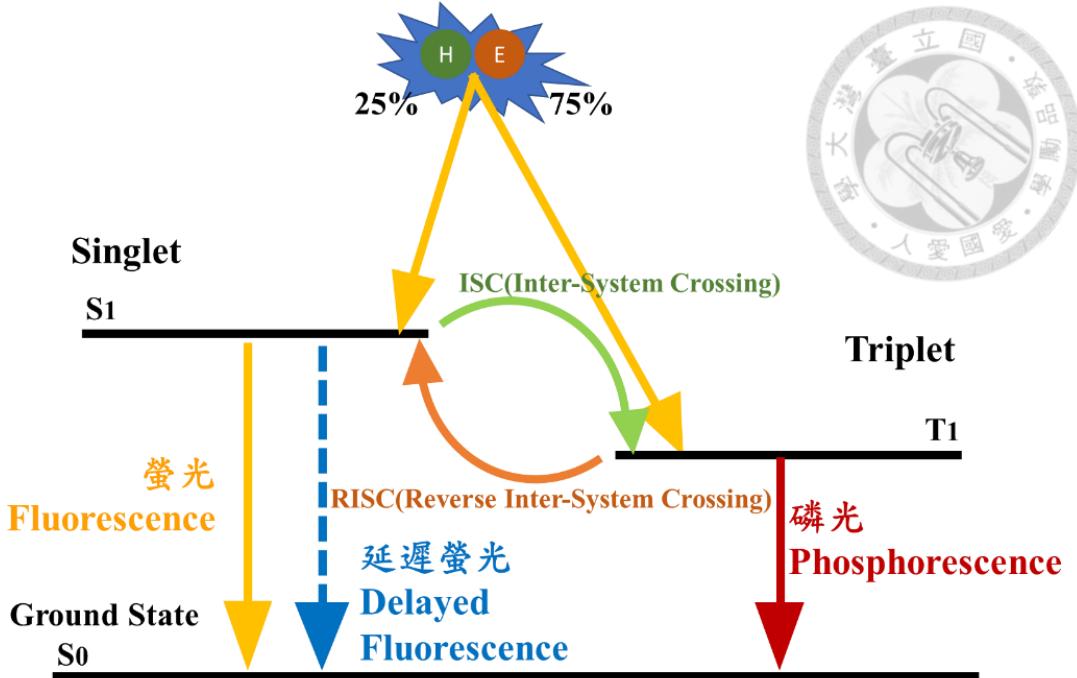


圖 1 電子電洞結合成激子後的放光途徑。

圖 1 為電子電洞結合成激子後的放光途徑，其中分為 25% 的螢光與 75% 的磷光，第一代螢光 OLED 透過螢光材料吸收激子，並透過單重態進行螢光放光，占所有激子的 25%，這意味著元件將損失大量激子，限制元件的放光效率 [8]。為了提高放光效率，第二代 OLED 採用磷光材料並透過三重態進行磷光放光，能運用 75% 的激子，此外透過金屬的配位能力能使材料使用系統內轉換(Inter-System Crossing, ISC)讓激子從單重態轉換成三重態，使激子使用效率達到 100% [9]，可惜的是摻雜鉻(Ir)和鉑(Pt)等金屬的放光層具有稀有性與環境污染等問題，使磷光元件發展受到限制。至於第三代 OLED 的 TADF 材料結合了上述兩代的優點，透過降低單重態與三重態的能階差，三重態激子能透過環境熱激發回單重態進行放光，此過程被稱為反向系統內轉換(Reverse Intersystem Crossing, RISC) [10]，使激子使用效率達 100%。TADF 材料可以不藉由稀有或昂貴的金屬元素來達到高效率的放光表現，透過有機分子的結構設計不僅成本更低，還能調整分子結構來改變放光顏色，適應更廣泛的應用需求。

TADF 現象最早在 1961 被發現，Parker 等人 [11] 在研究酸性染料 Eosin 時首次觀測到除了螢光以外，還存在一種延遲放光的行為。到了 1966 年 Berberan-Santos 等人 [12] 在研究富勒烯材料時，通過理論計算發現在特定的條件下，螢光材料可以表現出延遲螢光的現象，該團隊進一步計算該系統中的單重態與三重態能階差以及相關速率常數，從而提供 TADF 現象的實驗證據，證實了 TADF 現象的可能性。2009 年，由 Adachi 等人 [13] 的團隊利用 Sn^{4+} 的錯合物作為 OLED 放光材料，成功觀察到 TADF 現象的存在，並得到 5% 的 EQE 元件表現，不僅證明了 TADF 材料所提供的延遲螢光行為，還驗證了 TADF 材料在 OLED 應用端的可行性。2012 年 Uoyama 等人 [6] 合成出 4CzIPN，利用該材料製備出綠色 OLED，並且其 EQE 高達 19%。2014 年 Hirai, H 等人 [14] 利用供體受體的結構設計策略合成出 DMAC-DPS，所製備出的藍色 OLED 的 EQE 超過 19%，解決藍光材料能階差較大、材料在元件中降解等問題 [15]，在開發高效率且穩定的藍光材料上提供了嶄新的策略。2016 年引入多共振系統 [16] 設計 TADF 放光材料，出現 EQE 大於 30% 的 OLED [17]。以上研究充分證實 TADF 材料在提升光電轉換效率方面具有顯著的潛力，不僅展示高表現的特性，更揭示了結構與性能之間的關係，例如結構中的電荷轉移和能階調整對於材料放光表現的影響，但有鑑於材料設計的複雜性與多樣性，需要採取一種更加迅速且高效的方式來預測材料性能。

儘管理論上 TADF 材料應用於 OLED 的發光層能夠使內部量子效率接近 100%，這一特性賦予了元件更高的理論效率上限，但在我們收集的文獻中發現大多數 TADF-OLED 的 EQE 值集中在 20% 左右 [18-22]，最高記錄僅達到 38% [23]，值得注意的是目前實際運用在市場上的商用元件的 EQE 普遍高於 20% [24]，因此 20% 的 EQE 通常被用作衡量元件效率優劣的基準，由此可知該參數尚有很大的提升空間，使我們好奇甚麼因素控制著 EQE 的表現。EQE 常作為本研究重點參考指標，該參數衡量了放光元件在特定波長下將電能轉化為光能的效率，使開發者能夠更

直觀地評估元件與放光材料的優劣，其中 EQE 的關鍵影響因素主要由以下式 1.1 所示：

$$EQE = \gamma \times \eta_r \times \eta_{PL} \times \eta_{out} \quad 1.1$$

該式為 EQE 的關鍵因素表示式，其中包括 γ 代表著電效率(electrical efficiency)、 η_r 為激子使用效率、 η_{PL} 代表光致發光量子產率(photoluminescence quantum yield)以及 η_{out} (outcoupling efficiency)為外部耦合效率，以下將根據各參數進行解釋，並列舉出本實驗所蒐集影響各因素的實驗數據。電效率(γ)代表材料成功形成激子數量與注入元件電荷數之比值，描述電子與電洞透過外部電壓注入放光層後結合成激子的效率，電子與電洞在經過元件到達放光層的過程中，可能會出現損耗或是在其他層結合的情況，為了避免這些問題降低效率目前主要有兩種解決方式：其一是藉由主客體材料系統的概念，將放光材料作為客體，雙極性的材料作為主體設計放光層，利用主體材料能同時傳遞電子與電洞的優勢提供優異的電荷傳輸能力，並確保電荷分布能更為均勻 [1]；其二是透過調整主體材料與放光材料之間的能階來優化元件，以利於電子電洞更好進入放光層並結合成激子 [25]，因此在電效率的部分我們將蒐集放光材料的能階(em_HOMO、em_LUMO)、主體材料能階(ht_HOMO、ht_LUMO)、放光層料能隙(em_Eg)、主體材料能隙(ht_Eg)、主客體材料 HOMO 能階差(HOMO_{off}，主體 HOMO 與客體 HOMO 的差距)與主客體材料 LUMO 能階差(LUMO_{off}，主體 LUMO 與客體 LUMO 的差距)。激子使用效率(η_r)代表材料中放出光子數量與激子數量的比值，描述材料是否能夠有效轉換激子與光子，正如前面章節所述 TADF 材料展現出高效的激子使用效率，因此收集相關光電性質數據對於分析至關重要，我們主要從能階與放光途徑兩種角度進行蒐集。首先在能階部分，由於 TADF 的特性能將三重態激子轉換為單重態激子進行放光，因此我們將蒐集單重態能階(em_S₁)、三重態能階(em_T₁)以及兩者的能階差(em_EST)三種數據；接著在放光途徑的部分，系統間與反向系統間轉換是 TADF 的關鍵因素，透過得到以上過程的速率常數有助於我們對激子使用效率的解釋 [26]；激子壽命在放光途

徑中也佔有一定的地位，過長的激子壽命容易出現激子猝滅的問題 [27]，反之太短則會有激子無法及時放光的現象 [28]，最後我們選擇蒐集了系統間與反向系統間轉換速率常數(k_{ISC} 與 k_{RISC})、瞬發螢光激子壽命(τ_p)以及延遲螢光激子壽命(τ_d)四種數據。光致發光量子產率(η_{PL})代表材料的產生的光子最後有多少數量能離開材料本身，高 η_{PL} 意味著能有更多光子離開材料，是評估材料是否高效的重要參數之一。外部耦合效率(η_{out})描述元件外部與離開材料光子之間的比值，光子離開放光層後在其他層發生干涉、繞射等現象導致光無法有效離開元件 [29]，很大程度受到元件結構影響，儘管我們得知該參數的重要性，實驗卻無法給出量化的數據，並且過於複雜的因素會影響放光材料與元件表現之間的分析，因此我們將在後續制定蒐集數據的原則，透過討論特定元件設計的實驗數據來提升放光材料與元件表現之間的解釋性。儘管我們了解以上因素對 EQE 影響的重要性，卻難以量化這些因素對 EQE 的影響，舉例來說為了討論高 η_{PL} 的材料與 EQE 的關係時，常見的方法為放光材料改質、改變製備參數與元件設計，這些方式可能會改變其他的因素，比如元件設計的不良導致光無法有效離開元件 [30]、材料的改質使電荷傳輸效率下降 [31] 等，由上述例子可知實驗難以獨立出一個因素進行討論，因此基於大量數據進行分析的方式探索各因素之間的相互關係相當重要，如何調控各因素成為驅動該材料發展的關鍵。在此背景下機器學習技術提供了強力的支持，機器學習作為一種能夠處理大量數據的數據驅動方法，幫助我們建立預測模型並深入了解材料結構、性質與性能之間的關係，不僅加速了材料研發的過程，也促進這些因果關係的理解，從而快速制定出有效的研發策略，提供高效的篩選與預測工具以輔助 TADF 材料的開發。

由於硬體設備與科技不斷進步，機器學習的技術日漸成熟，其強大的數據處理和模式識別能力，使其已廣泛應用於醫療、金融、化學等眾多領域 [32-34]，其中在材料科學領域，機器學習為材料設計帶來了嶄新的策略，通過快速分析大量實驗與模擬數據有效地加速了材料開發的過程，同時幫助我們理解分子結構與物理性

質之間的關聯性 [35]。機器學習在材料科學中的應用主要體現在預測模型的建立，運用 PSPP(processing-structure-properties-performance)材料開發流程建立預測模型 [36]，透過這些模型快速預測材料性質或元件表現以篩選出潛在的高效能材料，不僅顯著降低了開發成本，還能避免實驗中多次嘗試所帶來的資源浪費，此外上述提及的預測模型應用在 OLED 領域同樣展現了其強大的潛力與優勢，其原因為元件設計涉及材料結構、光電性能和元件效率等，透過預測模型的建立可以幫助分析這些因素之間的複雜關係，尤其是在 TADF 材料當中，已有研究利用監督式學習演算法成功建立材料性能預測模型，證實機器學習在 TADF 材料領域上的價值與發展空間，因此也吸引實驗學者將此技術運用在 OLED 上以輔助 TADF 材料的研發，以下將根據帶來重要進展的文獻進行介紹。最初由 Aspuru-Guzik 等人 [37] 在 2016 年結合機器學習、量子模擬、合成實驗等方式與產業界進行合作，針對 TADF 材料在 OLED 上的開發提供嶄新的可能性，該團隊首先將化學結構轉換為 SMILES 描述符並利用神經網路(neural network)作為機器學習的演算法建立密度泛函理論(Density Functional Theory, DFT)的模擬經驗模型，接著在未知的材料中篩選出後選材料，並在最後透過實驗將候選材料合成出來並製備成放光元件，其 EQE 得到 22% 的表現，不僅證明了機器學習能夠加速材料的開發，在結果上也能得到高表現的新型後選材料，雖然該研究成功利用模擬數據建立結構與性質的關係模型，但是當中仍舊存在著幾個問題：其一是該團隊只建立速率常數的預測模型，從先前的表示式中能得知影響 EQE 表現的還有其他因素；其二是該模型只討論供體-受體(Donor-Acceptor, D-A)做為策略的線性材料，應該擴充資料庫已蒐集更多策略的 TADF 材料，以探究更多結構因素對於結果的預測表現。2020 年 Lee [38] 就利用機器學習以探究各因素與元件表現之間的關係，該篇研究所蒐集的性質因素包括客體材料(放光材料)的 HOMO、LUMO、 η_{PL} 、em_EST 以及主體材料的 HOMO、LUMO，並將上述因素做為特徵建立 EQE 的預測模型，最後透過等值線圖進行能階匹配以提供合適的放光層設計指南，該模型不僅討論分子性質對於元件表現的影響，更開

啟機器學習在元件設計上提供設計指南的可能性，以提供研究人員更有價值的理論根據。考慮到影響元件放光表現的因素繁多，一直以來對於眾因素缺乏量化的分析，使得學者只能用試錯法的方式進行研究，因此在 2022 年 Song 等人 [39] 蒐集了 TADF 材料性質、元件參數共 17 種因素做為特徵，利用機器學習對 EQE 進行預測模型建立，當中使用了多個演算法進行回歸計算，並且為了提高模型準確度進行資料庫與特徵的最佳化，在最後篩選出控制元件 EQE 表現的關鍵因素，不僅顯示出機器學習在預測 OLED 放光表現的優勢，更給予學界更明確的研究方向。同年 Chen 等人 [40] 透過機器學習輔助篩選出高系統間轉換效率的 TADF 材料，不同於前幾篇文獻，該團隊建立結構與 ISC/RISC 速率常數的預測模型，結合機器學習、實驗製備、模擬計算在約 900 種候選材料中篩選出具有潛力的四種材料進行實驗合成，後續所設計的元件 EQE 表現最高得到 22% 表現，該團隊為我們揭示結構與性質之間的分析，並透過特定性質的預測得到高表現的元件。

藉由上述文獻我們能得知機器學習在 TADF 的 OLED 的領域上具有一定的潛力，透過建立預測模型的方式可以探討化學結構、光電性質以及元件表現之間的關係，值得注意的是我們發現近年來相關的研究資料越來越多，利用大量的實驗結果來訓練關係模型將有助於輔助新型材料的開發，因此我們建立 2000 年至 2023 年間 TADF 放光材料資料庫，該資料庫是我們已知目前學術界中最大資料庫，其中涵蓋材料結構、光電性質以及元件表現(EQE)，表 1 為本實驗所使用的 TADF 放光材料資料庫中影響 EQE 的性質特徵之縮寫與全名，本研究的主要目標是利用該資料庫進行預測模型的訓練，並透過 PSPP 材料開發流程分別建立性質與表現、結構與性質以及結構與表現預測模型，首先利用機器學習的方式導入光電性質做為模型特徵，建立性質與表現預測模型並在眾多光電性質中篩選出對 EQE 表現影響最大的關鍵性質；接著我們好奇材料結構是如何影響光電性質，因此透過結構與性質的關係模型來分析材料性能的結構片段，從結構的角度進行物理意義的探討；最後運用同樣的方法建立結構到表現的關係模型，並將其與結構與性質的模型進行比

較，以評估之間的差異後給予更具體的材料設計策略，為 TADF 材料在 OLED 領域上提供全新的思路與策略，並加速新型高效材料的開發。



表 1 本實驗所使用 TADF 放光材料資料庫中影響 EQE 性質特徵之縮寫與全名。

| 縮寫 | 全名 | 縮寫 | 全名 |
|---------------------|-------------------------|-------------------|--------------------|
| em_HOMO | 放光材料 HOMO | em_S ₁ | 放光材料單重態能階 |
| em_LUMO | 放光材料 LUMO | em_T ₁ | 放光材料三重態能階 |
| em_Eg | 放光材料能隙 | em_EST | 放光材料單重態與三重態能階 差 |
| ht_HOMO | 主體材料 HOMO | η_{PL} | 光致發光量子產率 |
| ht_LUMO | 主體材料 LUMO | k_{ISC} | 系統內轉換速率常數 |
| ht_Eg | 主體材料能隙 | k_{RISC} | 反向系統內轉換速率常數 |
| LUMO _{off} | 主體和放光材料之 間 LUMO 的能量差 | τ_p | 瞬發螢光激子壽命 |
| HOMO _{off} | 主體和放光材料之 間 HOMO 的能量差 | τ_d | 延遲螢光激子壽命 |

第二章 研究方法

本研究建立 TADF 放光材料資料庫做為機器學習模型訓練來源，使用梯度提升回歸演算法 [41] 進行預測，並根據 PSPP(processing-structure-property-performance)材料開發流程建立以下三種預測模型：3.2 節的性質特徵與元件表現之預測模型；3.3 節的分子結構與性質特徵之預測模型；3.4 節的分子結構與元件表現之預測模型，後兩個模型中需要將分子結構導入模型進行訓練，因此為了將分子結構轉換為電腦讀得懂的訊息，本研究使用 Morgan Fingerprint [42] 作為結構描述符將結構轉換成 0、1 的陣列，將其導入模型進行訓練。為了提升模型的準確性在訓練過程中我們依序調控訓練集與測試集比例(6:4、7:3、8:2、9:1)、Morgan Fingerprint 中半徑大小(1、2、3、4、5)、字典集大小(512、1024、2048、4096)接著進行超參數(Hyperparameter)的訓練 [43]，並利用 k-fold 交叉驗證法 [44] 避免模型出現過擬合的情況。最後為了分析分子結構片段如何影響預測結果，本研究使用了 SHAP(Shapley Additive Explanations)值進行分析 [45]，以找尋提升放光表現的正向與負向片段，為後續 TADF 材料開發提供設計指南。

2.1 機器學習模型

本研究利用 Python 3 作為環境進行模型建立，並利用當中的軟體包(skllearn、numpy、pandas 和 Jupyter-lab 等)進行程式碼撰寫，透過程式碼進行資料預處理、特徵轉換等工作，接著根據梯度提升回歸演算法(Gradient Boosting Regressor, GBR)演算法建立關係模型，並進行模型訓練。本研究將資料庫的數據隨機拆分為 80% 的訓練集與 20% 的測試集，利用 k-fold 交叉驗證法($k=5$)進行訓練 [44]，該方式是先將訓練集切成 k 等分後，取其中一等分作為驗證集，剩下的部分進行訓練，重複以上過程直至 k 等分都訓練完以後把以上結果進行平均，此舉可以有效降低過擬合可能性，以確保模型的可信程度。在訓練模型的過程中，為了使模型達到最佳優



化的結果，我們利用 RandomSearch 的方式進行模型超參數的訓練，並利用網格搜尋的優化策略逐步獲取最佳結果，並在最後計算訓練集與測試集數據之間的相關係數與均方根誤差做為模型的評估。

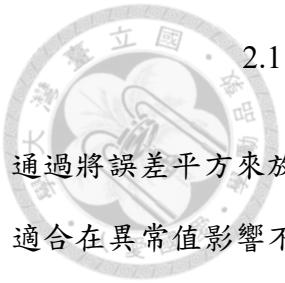
2.1.1 梯度提升回歸演算法 [41]

梯度提升回歸演算法結合回歸樹模型與梯度提升技術，是透過各棵決策樹逐步建立模型，每一個優化過程都會參考前一個優化結果，並對誤差進行改進，這樣一來能訓練出更加精確的模型。該演算法的訓練流程如下：首先利用初始的模型開始訓練；接著迭帶出新的決策樹來擬合前者的誤差值；最後將新決策樹的結果加到初始的模型來更新模型，重複上述步驟直到設定的迭帶次數或是滿足特定條件時模型訓練結束，透過逐步減少誤差使得該方法具備準確度與靈活性。有趣的是該方法也是建立在決策樹的原理之上所建立，因此與隨機森林同樣可以提供各特徵的重要性計算以篩選出重要特徵。

在模型訓練中，除了上述在隨機森林提過的超參數以外，也提供學習率(learning rate)以進行模型調整，該參數控制著各棵樹對於最終貢獻的程度，高學習率能夠使模型更快擬合，並取得數據中更多的資訊，但容易出現過擬合的問題；低學習率降低各棵樹的貢獻程度，降低過擬合的風險使模型能夠穩健地訓練，但可能會出現訓練時間過長或耗費計算資源等問題，因此選擇合適的學習率能夠大程度的幫助梯度提升回歸模型的建立，以實現最優的模型預測結果。

2.2 損失函數與加權損失函數

損失函數(Loss Function)是機器學習模型用來衡量預測值與實際值之間誤差的一種函數，損失值越小表示模型的預測結果越接近實際值，因此機器學習的模型會透過最小化損失函數的質來逐步更新參數，以提高預測的準確性，本研究所使用的損失函數為均方誤差(Mean Squared Error, MSE)，如式 2.1 所示：



$$MSE = \frac{1}{m} \sum_{i=1}^m (y_i - f(x_i))^2 \quad 2.1$$

其中， y_i 是真實值， $f(x_i)$ 是預測值， m 是數據點的數量，MSE 通過將誤差平方來放大較大的誤差，因此它對於大誤差(outliers, 極端值)更敏感，適合在異常值影響不大的數據集。另一方面加權損失函數(Weighted Loss Function)是指在損失函數的計算過程中，對每個樣本賦予不同的權重，以使模型更關注某些樣本或者更少關注其他樣本，這通常在數據分佈不平衡的情況下使用，如式 2.2 所示：

$$L = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n w_i loss(y_i, f(x_i)) \quad 2.2$$

其中 L 是總損失函數、 n 是樣本數量 w_i 是第 i 個樣本的權重、 y_i 是實際值、 $f(x_i)$ 是模型預測、 $loss(y_i, f(x_i))$ 是第 i 個樣本的損失，其中權重(w_i)的分配方式主要透過樣本的類別數量進行分配，具體的計算方法如式 2.3 所示：

$$w_i = \frac{n_{total\ samples}}{n_{class\ i} n_{class}} \quad 2.3$$

$n_{total\ samples}$ 是總樣本數量、 $n_{class\ i}$ 是第 i 類別或區間中的樣本數、 n_{class} 是類別或區間的總數，在分佈不均衡的數據中，少數類別(或區間)的樣本數容易被忽略，因此透過加權函數的權重分配後可以避免模型過度關注數量較多的區間，同時提升數量較少的預測能力，使模型整體得到更好的預測效果。

2.3 相關係數與均方根誤差

為了能夠量化地評估，我們經常討論模型的誤差來決定一個模型的優劣，其中又能分為偏差(Bias)及方差(Variance)來進行討論：前者為期望值與真實值之間的差，代表著模型輸出的預測結果與真實結果的差距，也就是模型的準確性，越高代表預測值跟實際值差很多；後者為期望值與預測值之間差的平方和，代表著以訓練集訓練出的模型在以測試集輸入後所表現的誤差，越低的話代表模型產生結果一致，這



兩項分析結果能分別藉由計算皮爾森相關係數(R)與均方根誤差(RMSE)來得到[46]，其公式分別為 2.4 與 2.5：

$$R = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{(n-1)s_x s_y} = \frac{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})(y_i - \bar{y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2 \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}} \quad 2.4$$

$$RMSE = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2} \quad 2.5$$

其中 x_i 與 y_i 為第 i 項的實驗與預測數據， \bar{x} 與 \bar{y} 為實驗值與預測值的平均值， s_x 與 s_y 為實驗值與預測值的標準差。相關係數用來衡量實際值與預測值之間的線性關係強度，如果相關係數接近於 0 表示模型無法捕捉到數據的趨勢，這可能是欠擬合的跡象；接著均方根誤差是藉由實際值與預測值的差值平方進行平均後開根號所得到的誤差值，高 RMSE 表示預測誤差大，可能是因為模型過於簡單且未能捕捉到數據的複雜性或者模型過於複雜且無法預測到新數據，而低 RMSE 則表示預測誤差小，模型的預測較為準確。

2.4 特徵重要性

為了更詳細了解影響材料表現的關鍵因素，我們利用 Gini Importance 來決定各因素在模型中的貢獻程度，如此一來可以辨識出高重要性的性質以利於後續的材料分析，其公式可以透過式 2.6 的推導表示：

$$Gini(p) = \sum p_i(1 - p_i) = 1 - \sum p_i^2 \quad 2.6$$

其中 $Gini(p)$ 代表 p 特徵的 Gini Impurity， p_i 為節點內各個可能 i 所佔的機率，因此 Gini Impurity 代表著各節點上各個可能的純淨度，其值越低代表純淨度越高。

$$Importance(Fi) = \frac{1}{N} \sum_{t=1}^N \sum_{n \in nodes} \Delta IG(n) \times \delta(Fi, n) \quad 2.7$$

接著式 2.7 中利用計算出的 Gini Impurity 進行 Gini Importance 的運算，其中 F_i 代表要解釋的第 i 個特徵， N 代表隨機森林中樹的數量， n 代表隨機森林中樹的節

點， $\Delta IG(n)$ 代表節點 n 分裂後 Gini Impurity 減少量， $\delta(F_i, n)$ 代表指示函數，當節點 n 使用特徵 F_i 進行分割時等於 1，否則等於 0。由於該式計算隨機森林中各自樹的 Gini impurity 減少量占所有樹的比例，因此各參數的 Gini Importance 總合為 1，藉此評估個特徵的重要性。



2.5 結構描述符

為了導入材料結構讓電腦進行關鍵結構片段的預測，首先需要讓電腦讀取結構資訊，在這個情況下我們通常會用描述符將化學結構轉換為二進位資訊，以便將資料庫後續的訓練。在本次實驗中我們利用 Rdkit 軟體套件進行計算，該套件是一個開源的化學信息學和機器學習工具包，它專為處理和分析化學數據而設計。本研究使用的描述符為該套件中的 Morgan Fingerprint [42]，這種描述符基於化學結構中原子的鄰居信息，並透過以下步驟進行迭代：首先將每個原子作為起始點並考慮鄰近原子（與其相連的原子）；接著將當前的原子組合產生一個新的標籤作為片段資訊；重複上述過程直到達到所需的半徑（指從原子出發可達的鍵數量）；最終每個原子會有最終的標籤，代表該原子與局部原子的組合，所有最終組合代表了該化合物的指紋，圖 2 為 Morgan Fingerprint 結構特徵轉換流程示意圖，最後可以藉由每個原子及其局部環境來生成一個二進制或計數向量，這些資訊可以用於導入機器學習模型，以預測化合物性質或元件表現。在 Morgan Fingerprint 中主要由兩個參數所調控整體資訊：其一為半徑，其二為字典集，當半徑越大時，可以捕捉到更大範圍的片段，使指紋能夠更全面地表示分子結構特徵；字典集定義了指紋的長度，意味著有多少 0、1 用來表示結構訊息，越大的字典集表示有更多結構特徵，在調整半徑與字典集時，可能會產生組合不佳導致指紋出現太多 0 導向的數據，可能會影響模型的訓練，因此我們將找尋最佳的半徑與字典集大小。

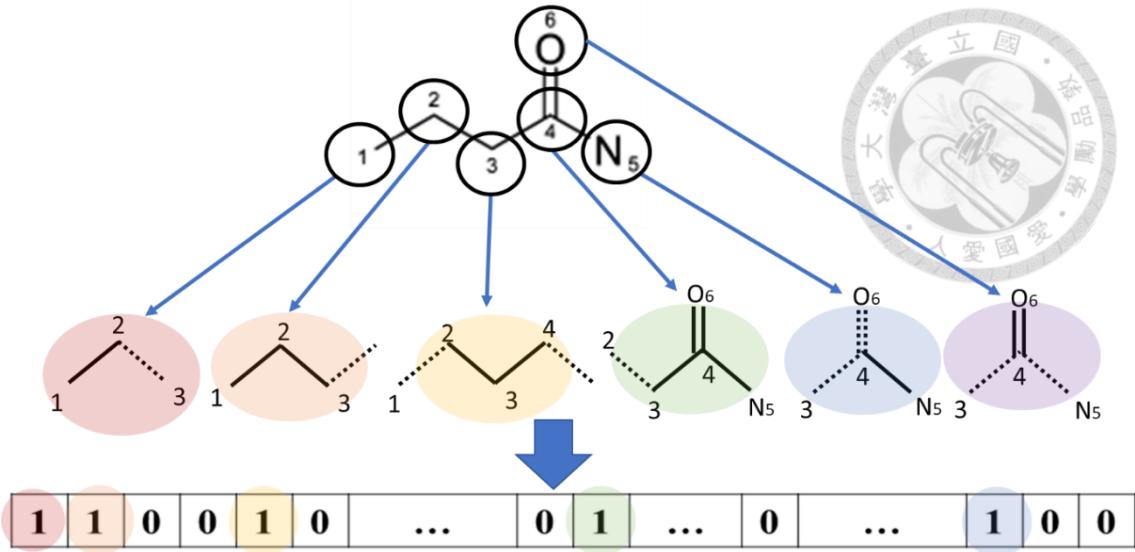


圖 2 Morgan Fingerprint 結構特徵轉換流程示意圖。

2.6 SHAP 解釋性分析

為了進一步分析機器學習的結構片段，以評估各片段對於模型的影響程度，我們計算 SHAP(SHapley Additive exPlanations)值進行分析 [47]，SHAP 值是一種常見的機器學習解釋方法，該方法將每個特徵視為玩家，模型的預測結果被視為獲益，利用 SHAP 值量化每個特徵對於模型預測的貢獻程度，即如果沒有該特徵，模型預測將如何改變，公式如式 2.8 所示：

$$\phi_p = \sum_{S \subseteq \{x_{i \rightarrow p}\} \setminus \{x_p\}} \frac{|S|!(|N| - |S| - 1)!}{|N|!} [f(S \cup \{i\}) - f(S)] \quad 2.8$$

其中 ϕ_p 為特徵 p 的 SHAP 值，表示特徵 p 對模型輸出的貢獻； S 為不包含特徵 p 特徵集合； x_p 為特徵 p ； N 為所有特徵的集合； $f(S)$ 為只考慮特徵集合 S 的模型預測值； $|S|$ 為集合 S 的特徵數量； $|N|$ 為所有特徵數量，當 SHAP 值越大，表示該特徵對模型預測的影響越大，若 SHAP 值為正向，表示該特徵會對模型造成正向影響；若 SHAP 值為負向，該特徵則會對模型造成負向的影響，因此 SHAP 值可以提供對模型決策過程的深入洞察，並幫助我們理解模型的預測結果。

第三章 結果與討論



本研究使用梯度提升回歸演算法，來分析影響 OLED 中 TADF 材料 EQE 表現的關鍵因素與結構片段。首先在 3.1 節中進行資料庫的蒐集，總共有 16 種性質的實驗數據與 EQE，如第一章的表 1 所示。我們根據 PSPP(processing-structure-property-performance)材料開發流程建立預測模型，在 3.2 節將 16 種性質參數作為輸入特徵(以下稱之為性質特徵)，建立 EQE 的預測模型，並通過特徵重要性分析找出影響 EQE 的關鍵因素，結果顯示光致發光量子產率(η_{PL})對 EQE 的影響最為明顯，有趣的是我們發現 η_{PL} 與 EQE 之間的高關聯性，因此先將研究重點放在影響 η_{PL} 的因素上，並探索如何從分子結構的層面來提升其表現。接著為了讓模型更具有物理意義的分析，在 3.3 節中透過結構描述符轉換分子結構並預測 η_{PL} ，把材料結構作為特徵以建立模型預測 η_{PL} ，進一步分析影響 η_{PL} 的結構片段，目的在找出提升材料發光性能的潛在分子片段，同時 η_{PL} 作為 EQE 的關鍵性質特徵直接影響到元件的表現，為提升 EQE 的分析奠定了基礎。基於 η_{PL} 模型的研究成果，我們進一步嘗試通過結構描述符直接預測 EQE 表現以建立更加直觀的模型，因此最後在 3.4 節中我們將材料結構作為特徵以建立模型預測 EQE，進一步分析了影響 EQE 表現的關鍵結構片段，從結構層面探索如何優化 OLED 元件的效率。通過優化數據和分析模型，本研究為研究學者提供了一個清晰的 TADF 材料開發指南，並提供關鍵片段以推動新材料的快速篩選與應用。

3.1 資料庫蒐集與相關係數矩陣

為了建立機器學習的預測模型，首先需要蒐集大量文獻資料建立 TADF 放光材料資料庫(以下均稱本資料庫)，我們選用 Scifinder 做為資料蒐集的論文網站，以”TADF (Thermally Activated Delayed Fluorescence)”作為關鍵字，蒐集 2000 年至 2023 年間 IF (Impact Factors)值大於 3.0 的期刊文獻，得到了 3143 篇實驗文獻。本

研究的目的在於開發高放光表現的放光材料，因此我們僅蒐集各放光材料中 EQE 表現最大值的實驗數據進入本資料庫，另外我們秉持著將目光聚焦在放光材料的原則，不希望過於複雜的元件組成對預測結果造成過大的影響，因此我們僅蒐集元件組成中出現陰極、電子傳輸層、放光層、電洞傳輸層、陽極及玻璃基板的元件數據，若元件出現其他功能層不被考慮進本資料庫。最後在這些數據中獲得放光材料的能階、激發態能階、速率常數、激子壽命以及光致放光量子產率等 16 種性質與 EQE 的實驗數據，總共得到 1588 筆不同種類的放光材料實驗數據。

為了初步了解 16 種性質特徵與 EQE 之間的相關性以確認有無多餘的性質特徵，本研究透過計算各特徵之間的皮爾森相關係數(R ，第二章會提到)來評估彼此的相關性，相關係數的取值範圍在 -1 到 1 之間，值越接近 1 或 -1 表示特徵之間的正相關或負相關越強，值接近 0 則表示特徵之間無明顯相關性。在圖 3 中展示了 16 種性質特徵與 EQE 的相關係數矩陣圖，圖中可見除了 em_S_1 與 em_T_1 ($R=0.94$) 以外大部分的特徵之間相關係數的絕對值都小於 0.9，這兩個特徵的高度相關性源自於 TADF 材料中的 em_S_1 大約比 em_T_1 大 0.5 eV 左右 [48]，這小於兩特徵的平均數(em_S_1 平均數為 2.67eV； em_T_1 的平均數為 2.55eV)，因此每筆材料的 em_S_1 與 em_T_1 數據相當接近，展示出高度線性的關係。總結來說大部分的性質特徵並沒有展示出高度相關的結果，代表著各特徵之間不存在絕對高的相關性，這對於機器學習來說可以確保模型的訓練過程不會傾向於特定特徵，有助於模型的預測結果 [44]。除了各特徵彼此的相關係數以外，在圖 3 中也能看見各特徵與 EQE 之間的相關性，我們能初步發現除了 η_{PL} (光致發光量子產率)與 EQE 相關係數達 0.72 以外，其他性質特徵與 EQE 的相關係數都偏低，這表明 η_{PL} 與 EQE 有較高的線性關係，同時也暗示了 η_{PL} 可能是提升 EQE 的主要因素。在初步的數據探索階段，導入所有特徵可以幫助我們全面性的理解數據，因此就算其他性質特徵與 EQE 的 R 值儘管表現較低，也不能斷定這些特徵不重要，不同特徵之間可能存在交互關係影響預測結果，並在一定程度上限制了高 EQE 的元件開發。為了對 EQE 進行全面性

的分析，接下來將會導入 16 種性質特徵去建立 EQE 預測模型，並在後續分析各特徵對於模型的貢獻程度

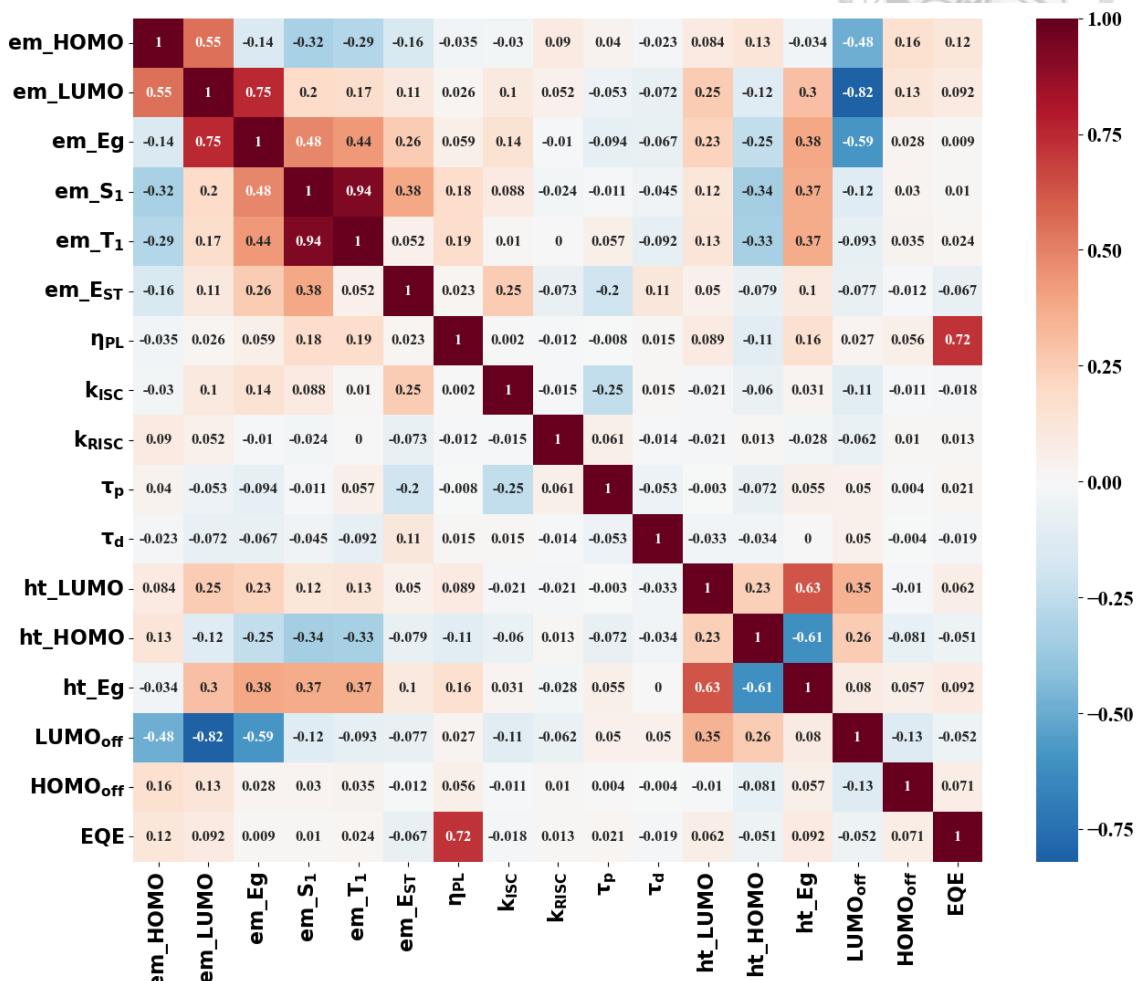


圖 3 16 種性質特徵與 EQE 的相關係數矩陣。

3.2 性質特徵與元件表現之預測結果

圖 4 為導入 16 種性質特徵並使用梯度提升回歸演算法預測 EQE 之結果散佈圖，橫軸是實際實驗 EQE 數據，縱軸則是模型預測的 EQE 數據，其中藍色與綠色的數據點分別為訓練集與測試集數據，紅色虛線為理想預測線，若數據能夠越靠近此線代表模型預測的結果越準確，從圖中可以看到我們將含有完整 16 種性質特徵共 663 組的數據以 8:2 的比例進行訓練集與測試集的拆分，並且數據點集中在紅色虛線附近，這表明實際值與模型預測值結果一致，模型能夠有效抓取性質特徵並準

確預測 EQE，預測結果與實際數據之間有較好的匹配。除此之外我們也近一步計算模型中的數據展示預測結果，表 2 為導入 16 種性質特徵預測 EQE 評估指標與其他相關文獻之結果比較，該表列出本模型在訓練集、測試集以及整體數據集上的相關係數(R 值)和均方根誤差(RMSE)，分別如第二章所介紹，其中 R 值表示實驗值與模型預測值之間的相關性，RMSE 則衡量了模型預測的準確性，即預測值與實驗值之間的平均誤差大小，一般而言 R 值越接近 1 表示相關性越強，模型擬合效果越好；而 RMSE 越接近 0 則代表預測誤差越小，預測結果越精確，因此當 R 值接近 1 且 RMSE 接近 0 時，便可以認為模型達到了理想的預測效果，從上述結果來看該模型無論是在訓練集、測試集抑或是總數據都有良好的表現，並且訓練集與測試集的 R 值差異僅 0.122，並沒有出現嚴重的過擬合現象，證明該模型在預測 EQE 時具備優異的準確性。最後為了提升本模型的可解釋性，我們將利用 Gini Importance 做為評估重要性的指標，圖 5 為導入 16 種性質特徵並使用梯度提升回歸演算法預測 EQE 之特徵重要性，從圖中可以看見位居第一的特徵為 η_{PL} ，並且重要性遠高於位居第二的 em_EST ，這表明 η_{PL} 對於 EQE 的預測性能有一定程度的影響，作為預測 EQE 的關鍵特徵， η_{PL} 描述放光材料所放出光子的效率，因此 η_{PL} 越高越能幫助材料將電轉成光 [49]，並對最終元件的 EQE 表現起到至關重要的作用。

值得注意的是在我們已知的文獻中本模型並非第一篇透過機器學習的方式導入性質特徵來預測 EQE 的相關研究，就我們所知的研究有兩篇 [38,39]，因此接著將本模型結果與相關文獻進行比較。表 2 為導入 16 種性質特徵預測 EQE 評估指標與其他相關文獻之結果比較，其中包括資料筆數(Data set)、資料來源(Source)、導入數據的性質(Input)、模型所使用的演算法(Model)、訓練集相關係數(Train R)、測試集相關係數(Test R)與文獻來源(Ref)等資訊，這些文獻與本模型的共同點在於它們一樣透過性質特徵來建立 EQE 的預測模型，以下深入探討各文獻在資料庫建立、特徵設計上的差異，並進一步評估本模型的優劣程度。Lee [38] 在 2020 年的研究

究中，蒐集了 108 筆 TADF 的綠光 OLED 數據，其中包含了 66 種放光材料與 40 種主體材料，同時蒐集了放光材料與主體材料的分子能階(HOMO、LUMO)以及兩筆材料光電性質(em_EST 、 η_{PL})共六筆數據做為性質特徵，並在隨機森林演算法中建立出最佳 EQE 的預測模型，得到訓練集 R 值 0.92、測試集 R 值 0.86 的表現，最終研究透過 Gini 重要性分析計算出 η_{PL} 為重要性最高的性質特徵，確認 η_{PL} 為影響 OLED 放光表現(EQE)的關鍵因素，這與本模型所得到的結果相同。儘管該模型表現優異，但我們發現其中還有幾個地方可以進行優化：其一為數據庫過小，該文獻僅運用綠光的 OLED 作為資料庫的來源，放光材料的種類僅 66 種，模型可能無法更全面的學習材料特性，在預測其他放光顏色的新材料時也會發生不準確的問題；其二是特徵設計過少，該模型僅使用 6 種性質特徵導入模型進行訓練，數據中的複雜關係通常需要多個特徵進行訓練，以捕捉輸入特徵與預測結果之間的非線性或多維度關係，因此為了訓練出更優異的模型，需要更大的資料庫與更多的特徵來因應 TADF 多變的材料結構，以提升模型在新材料的預測表現。Shi 等人 [39] 在 2022 年的研究中，蒐集了 273 筆 TADF 的 OLED 數據，其中包含各色光的 144 種放光材料與 28 種主體材料，並蒐集了分子能階、材料光電性質與元件參數共 17 種特徵，透過不同的特徵組合與機器學習演算法，該文獻在 15 個特徵數量下運用線性回歸演算法建立出最佳 EQE 的預測模型，得到訓練集 R 值 0.86、測試集 R 值 0.71 表現，最終透過計算特徵重要性來尋找重要的性質特徵，同樣發現 η_{PL} 為重要性最高的性質特徵，與本實驗結果一致，有趣的是重要性排序第二的性質特徵為發光波長的最高峰值，然而我們認為發光波長的最高峰值可能並非影響 EQE 的真正關鍵因素，這是因為在當時高表現的藍光放光材料稀缺使 TADF 的發展受到限制 [50]，模型可能過於關注其他顏色的高表現材料，從而得出該性質特徵為重要特徵的結果，此外該性質特徵更像是材料的放光表現而非材料性質，應該將其視為表現參數。該研究在特徵豐富性方面表現出色，數據庫數量上還是存在著一些挑戰，儘管這篇文獻於 2022 年發表，但所蒐集的放光材料僅有 273 筆，這也間接導致該篇

文獻所提供的模型中有幾個出現過擬合的現象，比如表 2 中使用 k-鄰近回歸(KNR)訓練的模型顯示出訓練集與測試集 R 值相差 0.37 的情況，明顯存在過擬合問題，為了提升模型的穩定性和準確性，未來的研究應著重擴充數據庫，以更好地支持模型的預測性能和預測能力。

綜上所述，本研究將目光聚焦在放光材料本身，蒐集各篇文獻中的最大值，其中包含完整 16 種性質特徵的數據共有 663 筆，相較於另外兩篇研究本研究的優勢主要體現在三個方面：其一為材料廣泛的放光波長，本實驗庫收納近年來各種放光顏色的高表現 TADF 材料，使模型能更全面地理解不同顏色材料的發光特性；其二為本研究使用了更大規模的資料庫，大量的數據不僅能提供更豐富的訊息，也有助於模型更全面的學習材料特性；其三為本模型得到相對高表現的 R 值，其中比起 Shi 等人的結果本模型展現出更好的預測能力，而儘管本模型的表現略低於 Lee 的結果，但本模型的數據量是 Lee 的六倍以上，為後續的分析提供更好的幫助。值得注意的是，由於 η_{PL} 在本研究與其他研究皆展現出顯著的重要性，讓人好奇是否可以透過導入分子結構進行 η_{PL} 的預測，並透過模型觀察到更直觀的結構片段，以提供實驗學者更明確的材料設計指南，因此下一步我們將專注於建立分子結構與 η_{PL} 的預測模型，幫助揭示材料結構如何影響其 η_{PL} ，並為材料的優化和設計提供更加有效的指導。

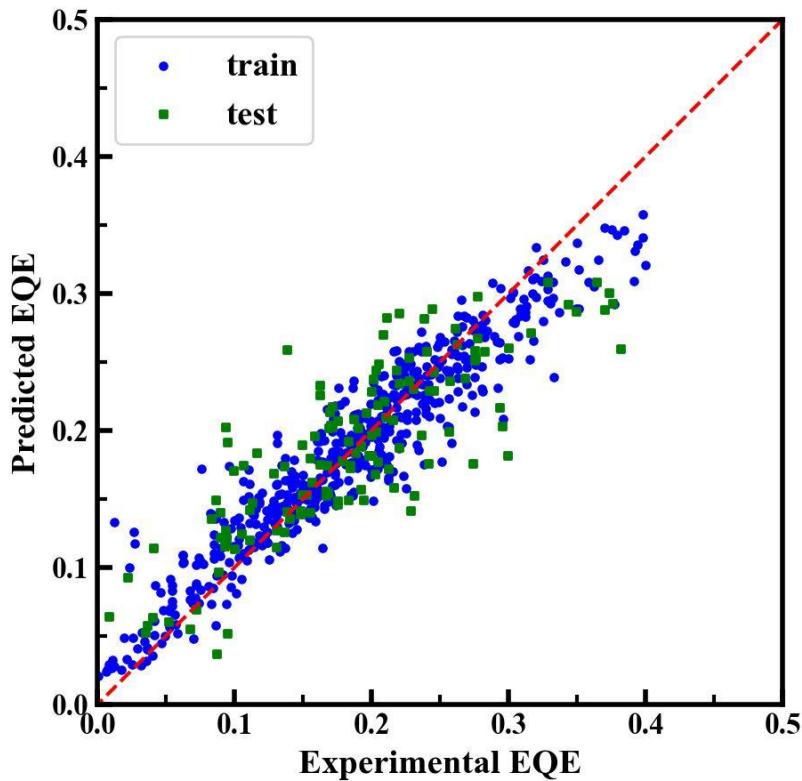


圖 4 導入 16 種性質特徵並使用梯度提升演算法預測 EQE 之結果，橫軸實驗值，縱軸為預測值，其中綠點為測試集數據，藍點為訓練集數據。

表 2 導入 16 種性質特徵預測 EQE 評估指標與其他相關文獻之結果比較。

| Data set | Source | Input | Model ^(a) | R | | | RMSE | | | Ref |
|----------|------------|-------------|----------------------|--------------------|--------------------|--------------------|--------|-------|-------|--------------|
| | | | | (Train/Test/Total) | (Train/Test/Total) | (Train/Test/Total) | | | | |
| 663 | Literature | 16 Features | GBR | 0.949 | 0.827 | 0.928 | 0.028 | 0.045 | 0.032 | Our Research |
| Data set | Source | Input | Model ^(a) | Train R | | | Test R | | | Ref |
| 108 | Literature | 6 Features | RF | 0.92 | | | 0.86 | | | [38] |
| 108 | Literature | 6 Features | SVR | 0.85 | | | 0.78 | | | |
| 273 | Literature | 15 Features | LR | 0.86 | | | 0.71 | | | |
| 273 | Literature | 15 Features | RF | 0.97 | | | 0.6 | | | [39] |
| 273 | Literature | 15 Features | KNR | 0.92 | | | 0.55 | | | |
| 273 | Literature | 15 Features | XGBT | 0.95 | | | 0.62 | | | |

(a)RF: Random Forest Regression, 隨機森林演算法; GBR: Gradient Boosting Regression Tree, 梯度提升樹演算法; KNR: k-Neighbors Regression, 最近 k 鄰居演算法; KRR: Kernel Ridge Regression, 核嶺回歸演算法; LR: Linear Regression, 線性回歸演算法; XGBT: Extreme Gradient Boosting Tree, 極致梯度提升樹演算法； SVR: Support Vector Machine, 支援向量機; Lasso: least absolute shrinkage and selection operator。

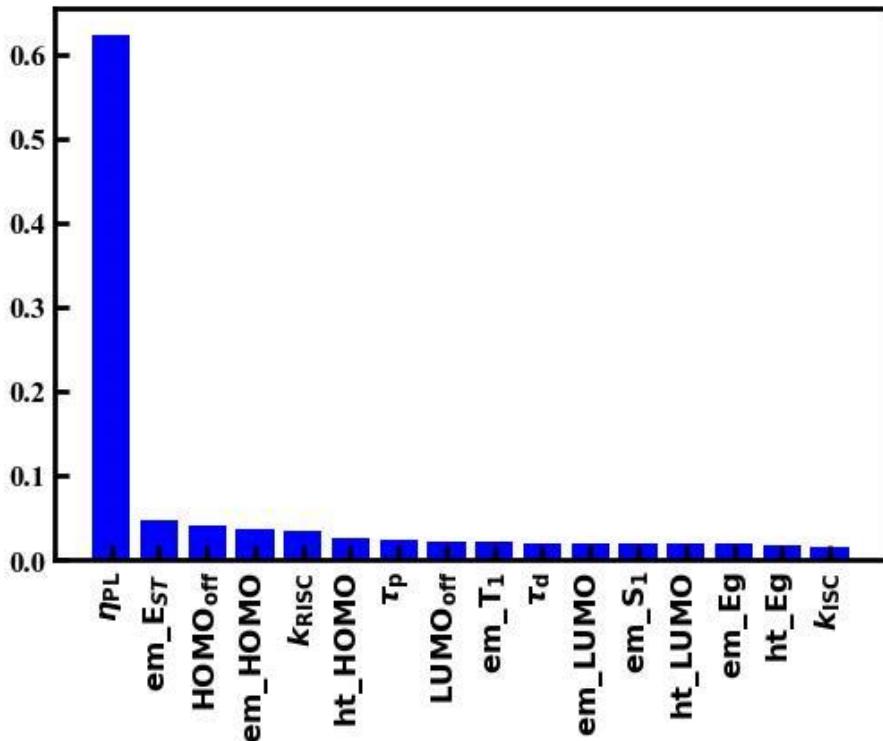


圖 5 導入 16 種性質特徵並使用梯度提升演算法預測 EQE 之特徵重要性。

3.3 分子結構與性質特徵之預測結果

在 3.2 章節中能發現對於 EQE 來說 η_{PL} 是重要性最大的性質特徵，這使我們好奇什麼樣的結構片段與設計能夠有效提升 η_{PL} 的表現，因此嘗試建立分子結構與 η_{PL} 的預測模型，這在 TADF 領域中的現有文獻裡屬於首例，該模型透過 Morganfingerprint(以下將以 MF 表示)將材料結構轉換為電腦理解的訊息，以量化的方式描述分子結構特徵，不僅幫助模型進行訓練，還能在後續篩選出關鍵片段進

行分析，這種嶄新的材料設計方式彌補了傳統材料設計過於依賴經驗的缺陷，為材料科學提供了一種數據驅動的解決方式，最終我們利用梯度提升回歸演算法，在描述符半徑為 3、字典集為 2048、訓練集與測試集數據拆分比例為 8:2 中找到最佳的 η_{PL} 預測模型。圖 6 為導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 η_{PL} 之結果，其中橫軸為 η_{PL} 實驗值；縱軸為 η_{PL} 預測值；綠點為測試集數據；藍點為訓練集數據，首先藍點分布緊密且分佈在理想預測線附近，表明模型在 η_{PL} 訓練集數據上受到良好的訓練，接著觀察到綠點分佈稍微分散，但大多測試集數據仍集中於理想預測線附近，顯示出模型對未見數據具有一定的預測能力，最後可以發現在低 η_{PL} 範圍相較於高 η_{PL} 範圍有較少的數據量，這也導致預測模型在低 η_{PL} 範圍的區域捕捉到的訊息比高 η_{PL} 表現的區域來的少，因此低 η_{PL} 範圍的數據表現略遜於高 η_{PL} 範圍的數據；表 3 為導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 η_{PL} 之評估指標，其中訓練集、測試集與總數據的 R 值分別為 0.888、0.621 與 0.831。整體來看此模型實驗值和預測值的總數據 R 值達 0.831 表示存在高度的相關性，其中在高 η_{PL} 範圍的預測性能良好，而低 η_{PL} 範圍仍然存在預測不穩定的問題，儘管出現此現象我們仍認為該模型以在現有的情況下得到最佳表現，其原因如下：其一是本資料庫是目前已知規模最大的資料庫，而其中低 η_{PL} 範圍的數據稀少無法捕捉足夠資訊，此情況並非模型訓練所能完全克服；其二是採用了結構描述符進行光電性質的預測，這在 OLED 相關研究目前尚未有人執行，在該領域屬於開創先驅；其三是導入了加權損失函數，藉由賦予每個樣本不同的權重，使模型更關注低 η_{PL} 範圍的樣本，避免模型過度關注樣本數量較多的高 η_{PL} 範圍的數據，提高模型預測 η_{PL} 的能力，其結果顯示總數據 R 值為 0.831，RMSE 僅為 0.137，展現了出色的預測表現，特別是在高 η_{PL} 範圍，模型表現極為穩定，這對實際應用中的高效材料篩選具有重要意義。綜上所述，我們認為目前的模型已經在現有條件下得到的最佳優化結果，因此將使用該模型進行結構片段的分析。

為了分析出影響 η_{PL} 的結構片段，本研究利用 SHAP 技術得到影響 η_{PL} 的前 20

名片段特徵，當中我們發現有很多片段特徵代表著相同的結構，如附件一所示，例如片段特徵 106、191、538、1159 與 1714 皆代表含硼片段(B_Aromatic)，因此為了簡化分析流程使結果更加直觀且高效，我們將類似的片段特徵合併成其代表的結構片段，表 4 為本研究使用之結構名稱、片段結構、片段特徵以及結構範例。接著利用 SHAP 技術再次分析出影響 η_{PL} 的重要結構片段，其結果如圖 7 所示，圖 7 為使用 SHAP 所分析出影響 η_{PL} 的關鍵結構片段，縱軸為各結構片段的名稱，並根據重要性由上到下進行排序，橫軸將所有預測值的平均值設為 0，若該材料的預測值大於平均值該數據會顯示在虛線的右手邊，反之則在左手邊；散佈圖中數據點的顏色代表是否有該片段，紅點代表具有該片段，藍點則沒有該片段，當紅點分佈在右而藍點分佈在左時，表示該片段存在時對 η_{PL} 的影響為正向，因此將其定義為正向結構片段；反之當藍點分佈在右而紅點分佈在左時，則定義為負向結構片段。觀察圖 7 後可以發現大部分結構片段的紅點和藍點分佈在虛線兩端，說明模型可以清晰區分不同結構片段對 η_{PL} 的正向或負向影響，其中正向結構片段包含 B_Aromatic、Spiro、Fused_N_Ring、Triazine、Carbonyl_Group 和 N-Ring；負向結構片段包含 DMAC、 π -spacer、Tri_Ring、N_Donor、OXD、N_Aromatic 和 Phenazine，其中 Tri_Ring 與 N_Aromatic 分別指三環共振結構和含氮芳香環結構，我們發現這兩個結構具有高度多樣性且缺乏特徵一致性的問題：高度多樣性使這兩種片段的化學結構非常多樣，導致無法清楚地統一這些片段的影響特性；缺乏特徵一致性使這兩類片段在篩選的過程中出現部分結構結構對 η_{PL} 為正向影響，其他則為負向，進而難以準確描述片段對 η_{PL} 的貢獻使結果更加模糊，因此我們不分析這兩類片段並將研究重點放在影響明確的結構片段上，以提高預測結果的價值和實用性。為了找尋潛在的優化方向，首先我們將目光聚焦在正向結構片段中，並根據重要性排序由上至下進行分析，接著討論負向片段對於 η_{PL} 的劣勢，最後考慮在各結構片段在材料設計中對 η_{PL} 有何影響，並嘗試了解是否可以通過結構修飾提升正向影響或減弱負面影響，尋求提升 η_{PL} 整體表現的材料設計指南。

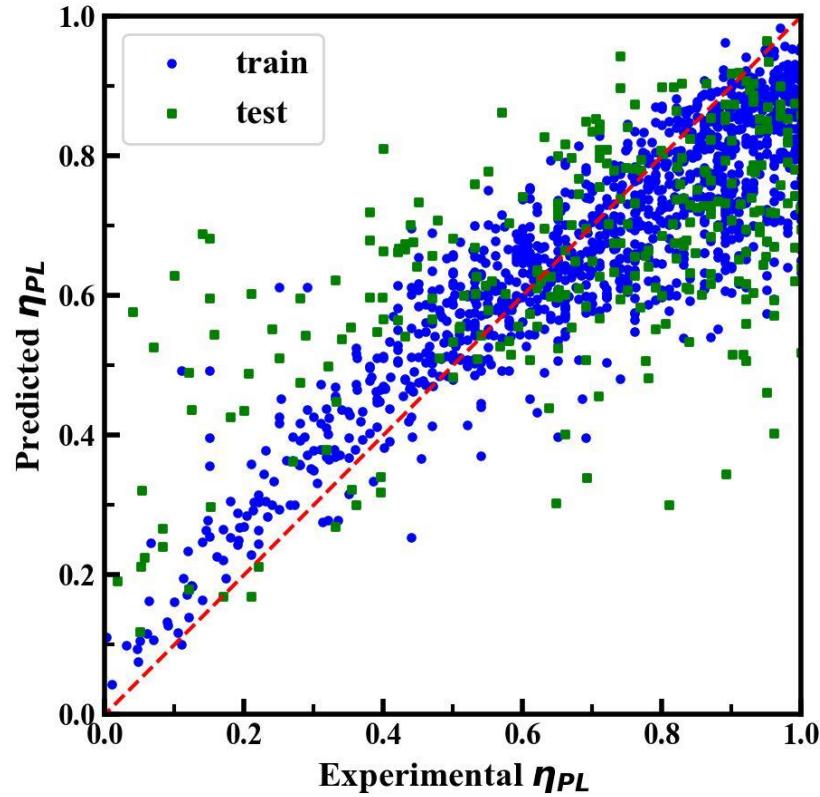
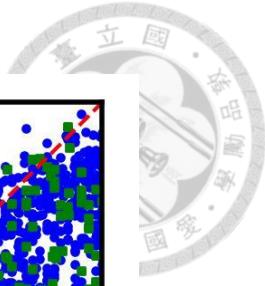


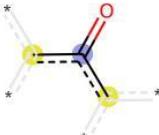
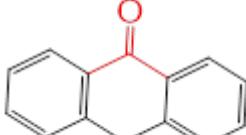
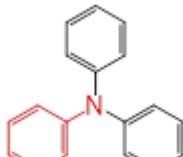
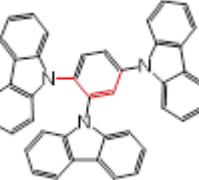
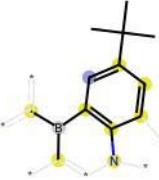
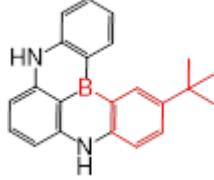
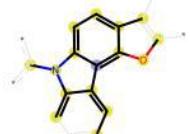
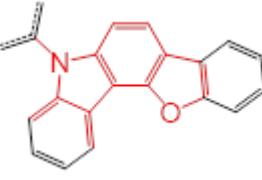
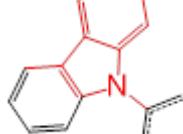
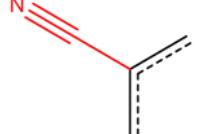
圖 6 導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 η_{PL} 之結果，其中橫軸 η_{PL} 實驗值；縱軸為 η_{PL} 預測值；綠點為測試集數據；藍點為訓練集數據。

表 3 導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 η_{PL} 之評估指標。

| 預測結果 | 訓練集 | 測試集 | 總數據 |
|------|-------|-------|-------|
| 資料數量 | 1168 | 292 | 1460 |
| RMSE | 0.116 | 0.201 | 0.137 |
| R | 0.888 | 0.621 | 0.831 |

表 4 本研究使用之結構名稱、片段結構、片段特徵以及結構範例。

| | | | |
|-----------------------|-------------------------------|-------------------|------------------------|
| 結構名稱 B_Aromatic | 片段結構 106、191、538、1159、1714 | 結構名稱 Spiro | 片段結構 1298、1554、1449 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |
| 結構名稱 Fused_N_Ring | 片段結構 342、1724 | 結構名稱 DMAC | 片段結構 1652 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |
| 結構名稱 Triazine | 片段結構 378、1855 | 結構名稱 N_Donor | 片段結構 199、289 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |
| 結構名稱 π -spacer | 片段結構 543、1717、1382 | 結構名稱 OXD | 片段結構 192 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |
| 結構名稱 Carbon_chain | 片段結構 1221 | 結構名稱 Phenazine | 片段結構 443 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |

| | | | |
|---|---|--|---|
| 結構名稱 Carbonyl_Group | 片段結構 525 | 結構名稱 N_Ring | 片段結構 1025 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |
|  |  |  |  |
| 結構名稱 N-Phenyl | 片段結構 843、1049 | 結構名稱 Benzene_Core | 片段結構 680 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |
|  |  |  |  |
| 結構名稱 t-Butyl_Group | 片段結構 1326、1457 | 結構名稱 BFCz | 片段結構 1751 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |
|  |  |  |  |
| 結構名稱 Carbazole | 片段結構 439 | 結構名稱 Cyano_Group | 片段結構 1384 |
| 片段特徵 | 結構範例 | 片段特徵 | 結構範例 |
|  |  |  |  |

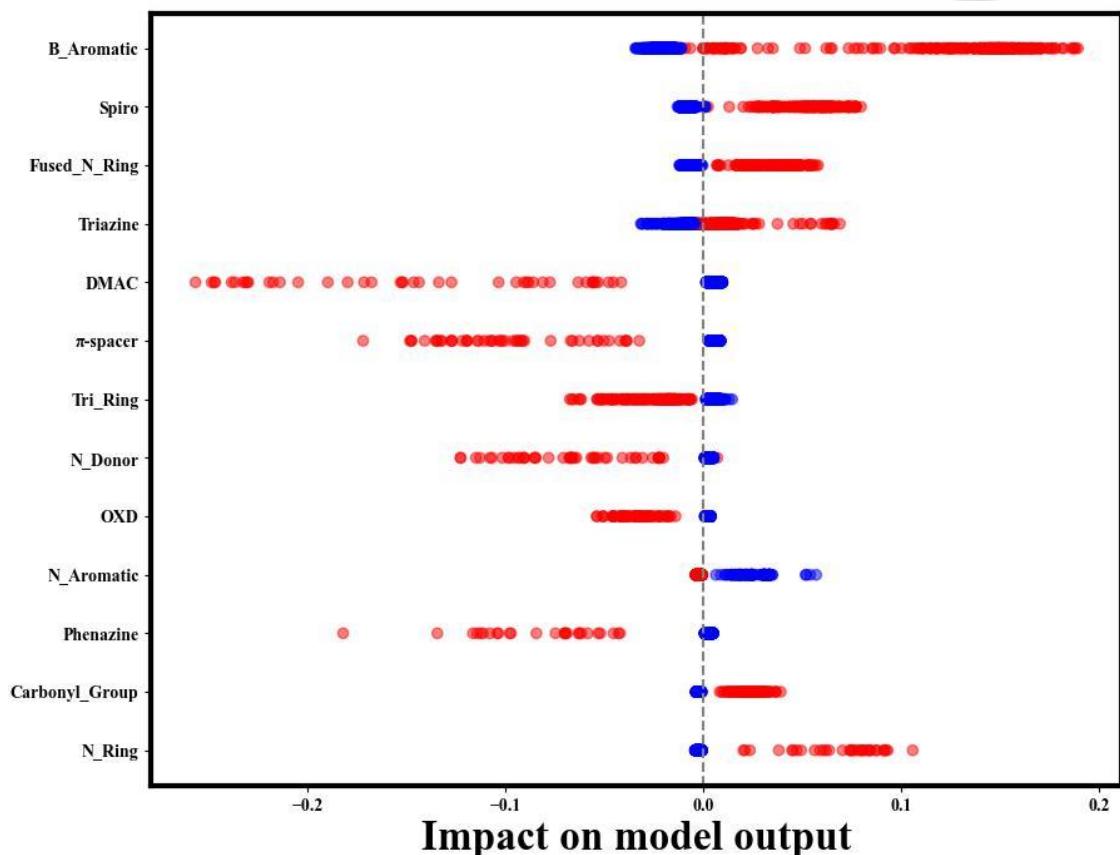


圖 7 模型使用 SHAP 所分析出影響 η_{PL} 的關鍵結構片段，並根據重要性由上到下進行排序，其中紅點代表具有該片段；藍點則沒有該片段。

光致放光量子產率(Photoluminescence Quantum Yield, η_{PL})是描述材料將高能量的激子轉化為輻射光能的重要效率參數，其數值範圍在 0 到 1 之間，1 代表注入材料的激子能以輻射的方式完全轉換為光子，0 則完全以熱或其他非輻射的形式散出，因此該參數很好的反應放光材料的優劣， η_{PL} 可以藉由輻射衰變率和非輻射衰變率共同表示 [49]，其表示式如下所示：

$$\eta_{PL} = \frac{k_r}{k_r + k_{nr}} \quad \text{式 3.1}$$

其中 k_r 為輻射衰變率，表示材料將激子轉化為光子的速率； k_{nr} 為非輻射衰變率，代表激子透過熱或其他非輻射過程損耗的速率，從式 3.1 可得知提升輻射衰變率和抑制非輻射衰變率為提升 η_{PL} 的主要策略，因此我們希望透過分析結構片段如何影響影響輻射衰變率和非輻射衰變率來分析其在 η_{PL} 的具體機制，從而深入理解如何

調控 η_{PL} 以設計出更高效的放光材料。在圖 7 中觀察到影響 η_{PL} 最高的前四名皆為正向片段，分別為 B_Aromatic、Spiro、Fused_N_Ring 以及 Triazine，接下來則是一系列的負向片段，其中包括 DMAC、 π -space、N_Donor、OXD 和 Phenazine，我們發現這些負向片段所篩選的材料比起前四名正向片段來說相對較少，並且各片段的分佈圖不明顯，其結果如附件二所示，為此我們將以上片段合併成一張圖進行分析以綜合評估這些負向片段對 η_{PL} 的影響，以下將依序對這些片段進行詳細的討論。

排名第一的片段為 B_Aromatic，在圖 8(a)展示了具有 B_Aromatic 結構片段之 η_{PL} 實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為預測值平均值(0.67)，並同時顯示了篩選出的材料，各材料在資料庫中皆有材料編號，以 DPACpBA 為例，該材料在資料庫中的編號為 1374，因此將其標示為 Material_1374，材料的名稱為該篇實驗文獻對該材料的簡稱，其中有些材料在文獻中並沒有明確的命名(如 Material_682 在該篇文獻被稱為 1 號材料)，為了避免混淆或重複命名的情況，這類材料將使用材料編號進行分析。從圖 8 (a)中可以觀察到多數紅點分佈在高於平均線的範圍，這表示具有 B_Aromatic 結構片段的材料的預測值大多高於總平均，並傾向擁有較高的 η_{PL} ，該片段篩選出大量多共振系統的放光材料(Multiresonance)，如圖中 r-Cb-B (Material_120/實驗值:0.89/預測值:0.87)、dmAcAZB (Material_1007/實驗值:0.95/預測值:0.84) 以及 BN-TP-N3 (Material_1628/ 實驗值:0.99/預測值:0.88) 所示，這類材料透過多環芳香骨架引入電負度不同的原子作為電子供體受體 [51]，其中硼因電負度較低被當作電子受體，這種設計方式能在稠環的芳香骨架中有效調控軌域的重疊性，同時抑制分子內的自旋轉行為，此特性不僅有助於 TADF 效應，還能顯著抑制非輻射的過程並促使 η_{PL} 提高 [52-55]，因此該分子設計策略對於提升 η_{PL} 具有重要意義。在該圖中同時也觀察到低於平均值的材料，包括 Material_682(實驗值:0.28/預測值:0.42)、Material_684(實驗值:0.53/預測值:0.6) 以及 DPACpBA (Material_1374/實驗值:0.54/預測值:0.65)，篩選出以硼

設計且多共振系統的受體片段，例如 Material_682 與 Material_684 的硼酸酯的衍伸物(boronate-ester)以及 DPACpBA 的 5,10-dihydrodibenzo[b,e]borinine，這類結構多以供體受體的方式進行連接，因此容易產生分子內自旋，導致分子的非輻射的過程增加，這對於 η_{PL} 來說是負面的影響，此外硼酸酯的衍伸物的電子受體能力因鄰近氧原子的電子供應而受到影響 [56]，使該片段成為較弱的受體片段，導致輻射衰變率降低，因此這些材料顯示出較低的 η_{PL} 。排名第二的片段為 Spiro，在圖 8(b)展示了具有 Spiro 結構片段之 η_{PL} 實驗與預測之散佈圖，Spiro 同樣展示了高範圍的分佈，表示該片段對於提升 η_{PL} 有顯著的影響，該片段篩選出大量以螺基連接的放光材料，如圖中 TTSA (Material_964/實驗值: 0.99/預測值:0.86)、BP-TXDMAC (Material_1054/實驗值:0.76 /預測值:0.77) 以及 BSS-SpAc (Material_1454/實驗值: 0.89/預測值:0.85) 所示，該類材料透過含 sp^3 碳原子的螺基片段連接供體與受體片段 [57]，使其在空間中有效分離 HOMO 與 LUMO 軌域已達到 TADF 效應，此外 sp^3 混成的碳原子增加了分子剛性，使結構不容易發生扭曲和變形，抑制分子內部的旋轉以減少非輻射損耗，使材料獲得更高的 η_{PL} 表現 [58]。在該圖中出現低於平均值的材料，包括 DPAC-BP-CN (Material_198/實驗值:0.28/預測值:0.36)、BP-DPAC (Material_633/實驗值: 0.47/預測值:0.61) 以及 CBZANQ (Material_1366/實驗值: 0.18/預測值:0.31)，其中可以看見 BP-CN 與 BP-DPAC 篩選出 9,9-diphenyl-9,10-dihydroacridine 的結構片段，該片段雖然與 Spiro 結構一樣擁有 sp^3 碳原子，但卻連接了兩個苯基(兩個苯基可自由旋轉)，因此不像 Spiro 結構具有分子剛性，這也導致非輻射過程的產生並降低 η_{PL} 表現 [59,60]；另外 CBZANQ 所篩選出的 8H-indolo[3,2,1-de]acridine 片段給電子的能力很弱，這間接導致該材料的輻射衰變率降低，因此儘管使用了 Sipro 結構降低非輻射損耗依舊無法獲得高 η_{PL} 的表現 [61]。

排名第三的結構片段為 Fused_N_Ring，在圖 9(a)中展示了具有 Fused_N_Ring 結構片段之 η_{PL} 實驗與預測之散佈圖，從分佈上可以看見具有該片段的材料分佈在高 η_{PL} 範圍中，表示該片段對於提升 η_{PL} 有顯著的影響，該片段為含氮的六元雜環

之稠環，並在高 η_{PL} 範圍中篩選出大量的二苯並吩嗪(dibenzo[a,c]phenazine)，如 TPA-PZCN (Material_40/實驗值:0.97 /預測值:0.8)、DPPM-DMAC (Material_464/實驗值:0.86 /預測值:0.84) 以及 B-DI-DBP (Material_1427/實驗值:0.96 /預測值:0.92)，該片段同樣具有剛性的結構片段以抑制非輻射的過程並促使 η_{PL} 提高 [62]，因此二苯並吩嗪常作為高 η_{PL} 材料中的受體 [63-65]。另一方面在低於平均值的材料中，例如 C-DA-2 (Material_54/實驗值:0.14/預測值:0.16)、pDPAPQ-PXZ (Material_1364/實驗值: 0.6/預測值:0.53) 以及 DCz-DPPZ (Material_1371/實驗值: 0.42/預測值:0.58)，篩選出其他含氮稠環的受體片段，比如 C-DA-2 中的 3,6-dihydrophenanthro[4,5-abc]phenazine、pDPAPQ-PXZ 中的 acenaphtho[1,2-b]quinoxaline 以及 DCz-DPPZ 中的 dipyrido[3,2-a:2',3'-c]phenazine，儘管這些受體從二苯並吩嗪所衍伸而得，但雜原子、結構剛性和共軛長度等改變導致這些受體片段的強度受到影響 [66]，其中雜原子和共軌長度容易影響輻射衰變率，而結構剛性則影響非輻射衰變率，這些因素綜合作用，使得這些材料的 η_{PL} 相較於二苯並吩嗪顯得較為不足。排名第四的結構片段為 Triazine，在圖 9(b)中展示了具有 Triazine 結構片段之 η_{PL} 實驗與預測之散佈圖，圖中可以觀察到該片段分佈中相當廣，但從紅色數據點的分佈可以得知具有該片段的結構還是偏向高 η_{PL} 範圍中，該片段為具有含氮雜環的結構片段，並且在當中篩選出大量含三苯基三嗪(2,4,6-triphenyl-1,3,5-triazine)的材料，包含 BFAcTrz (Material_707/實驗值:0.92/預測值:0.86)、dBFCzCNTrz (Material_1409/實驗值:0.8/預測值:0.8) 以及 TrSAC (Material_1513/實驗值:0.8/預測值:0.8)，三苯基三嗪中心的三嗪為 sp^2 混成，不僅具有優異的電荷傳遞性質，三個氮原子的高負電性導致整個環具有電子缺乏的性質 [67]，使該片段成為常見的強電子受體 [68]，並有效地提升輻射衰變率的表現；此外儘管外圍的苯環是透過單鍵進行連接(具有一定的旋轉自由度)，但分子內部具有位阻效應和 π -堆積效應使該旋轉受到一定的限制 [69]，因此該受體片段仍然具有一定的平面性與剛性，以抑制非輻射過程並促使 η_{PL} 提高 [70,71]。在該圖中出現低於平均值的材料，包括 Ac-CNImPyr (Material_204/實驗

值:0.4/預測值:0.47)、BImPyPXZ (Material_224/實驗值:0.59 /預測值:0.56) 以及 DPQM (Material_949/實驗值:0.44 /預測值:0.46)，其中可以看見 Ac-CNImPyr 篩選出 imidazo[1,2-a]pyrazine、BImPyPXZ 篩選出 2,7a-dihydro-1H-benzo[d]imidazole 與 DPQM 篩選出 quinoline 的結構片段，這些在低 η_{PL} 範圍中篩選出的結構片段不同於三苯基三嗪，分別具有以下缺陷：其一為電子性質的差異，2,7a-dihydro-1H-benzo[d]imidazole 和 quinoline 上的氮數量較少，不足以達到同樣的電荷轉移效率 [72]，將降低輻射衰變率；其二為 imidazo[1,2-a]pyrazine 和 2,7a-dihydro-1H-benzo[d]imidazole 中的五元環使該片段 π -共軛系統範圍較小且不均勻，具有較多的單鍵旋轉自由度 [73]，將提升非輻射衰變率。根據以上的分析可以觀察到這些結構片段對於 η_{PL} 皆呈現負面影響，相較於三苯基三嗪來說是相對較弱的電子受體，限制了其作為高效 η_{PL} 材料的可能性。

圖 10 為具有負向結構片段(包含 DMAC、 π -spacer、N_Donor、OXD、Phenazine)之 η_{PL} 實驗與預測之散佈圖，在圖中可以觀察到具有這些負向結構片段的材料大多分佈在平均線以下的範圍，證實這些片段對於 η_{PL} 的負面影響，主要的原因來自於結構旋轉自由度高、剛性不足及過弱受體等問題，以下將依序分析各片段如何拉低 η_{PL} 的表現，並提供後續材料設計時須避免的問題。排名第五的片段為 DMAC，該片段為 9,9-dimethyl-9,10-dihydroacridine 的一部份，如 DDA-DP (Material_1332/實驗值:0.12 /預測值:0.18)，該片段上的雙甲基與其他片段之間產生 π -共軛分離，並且該結構 C-N 鍵能夠自由旋轉，因此增加非輻射衰變率以降低 η_{PL} 的表現 [74]。排名第六的片段為 π -spacer，將苯作為間隔基為該片段的特徵，此外該片段也篩選出很多出具有苯甲酮(benzophenone)的材料，其中 TATC-BP (Material_680/實驗值:0.22/預測值:0.21) 以及 CBM-PXZ (Material_1046/實驗值: 0.33/預測值:0.45)，該片段為負向的主要原因可能有以下兩點：其一為苯環作為間隔基在供體受體片段之間存在旋轉自由度，這導致電荷傳遞不佳，並且抑制激子有效地生成，降低輻射衰變率與 η_{PL} 表現 [75]；其二為苯甲酮中的兩個苯環容易旋轉扭曲，這導致該片段

降低材料的整體平面性，提升非輻射衰變率，進一步降低 η_{PL} 的表現 [76]，由此可見苯間隔基和二苯甲酮片段對 η_{PL} 的負向影響。排名第八的結構片段為 **N_Donor**，該片段為含氮供體的結構，篩選出大量含有吩噁嗪(Phenoxazine)的供體片段，比如 CBM-PXZ 和 BIm(Me)PyPXZ (Material_225 / 實驗值:0.58/預測值:0.56)，吩噁嗪為常見的供體片段，為含有氧和氮的六元雜環供體片段，作為供體的角色其中心的氧原子電負度較大，因此 HOMO 軌愈容易往氧原子上靠造成軌域分離，這會導致 HOMO 與 LUMO 的軌域重疊性降低，造成輻射衰變率降低，進而降低 η_{PL} 的表現 [77]；此外中心的六元環比起常見的五元環供體來說更容易產生空間立障，所產生的扭轉角不僅降低軌域重疊性，使電子電洞結合的機會降低導致增加非輻射衰變率，造成低 η_{PL} 的情況發生 [78]。排名第九的結構片段是 **OXD**，該片段為含有 Oxadiazole 的衍伸物，如 5CzOXD (Material_585/ 實驗值:0.25/預測值:0.45)所示，該片段一個氧與兩個氮所組成的五元雜環，並由碳的位置往外連接芳香環，儘管一個氧原子與兩個氮原子賦予該片段強烈的電子受體性質，但五元環的結構較小使得外圍供體容易出現大的二面角使軌域重疊性降低 [79]，此外過小的片段也使周圍的片段旋轉自由度增加，進一步增加非輻射損失的可能性 [80]，因此該片段的材料多分佈在低 η_{PL} 的範圍。排名第十一的結構片段為 **Phenazine**，其中篩選出含有 5,10-dihydrophenazine 的材料，例如 QxP(Material_1415/ 實驗值:0.62/預測值:0.55)，由於該片段具有兩個氮進行片段的連接，這使得缺乏額外的電子推拉基團導致該片段為較弱的電子供體 [81]，並且兩個氮皆具有旋轉自由度，這使這類分子整體剛性降低，導致分子的非輻射衰變速率增加從而抑制 η_{PL} [28]。儘管在圖 10 中可以看見大量低於平均線的材料，還是有不少高表現的材料存在，我們觀察到在高 η_{PL} 的範圍中出現很多含有排名靠前的正向片段，例如 PFDMAC-TRZ (Material_252/ 實驗值:0.93 /預測值:0.91) 中的 Triazine、PzTDBA (Material_361/ 實驗值:0.99/預測值:0.88) 中的 B_Aromatic、2DMAC-BP-F(Material_766/ 實驗值:0.78/預測值:0.7) 中的 Fused_N_Ring、FAC-XT(Material_384/ 實驗值:0.81/預測值:0.7) 中的

Spiro 等，這些材料受到正向片段的影響而獲得高 η_{PL} 的表現 [82,83]，儘管這些材料中也出現負向的片段，但其獨立提升 η_{PL} 的能力有限，更多依賴於排名較高的正向片段。此外高 η_{PL} 範圍中也出現不含正向片段的材料，如 TRZ-3MCz(Material_1604/實驗值:0.89/預測值:0.75) 以及 dCF35tCzOXD(Material_590/實驗值:0.88/預測值:0.8)，其中 TRZ-3MCz 使用了柔性的苯間隔基與苯甲酮作為核心，但是使用具有剛性的供體片段(1,3,6,8-tetramethyl-9H-carbazole) 增強分子內電荷轉移的效應，證實了引入剛性供體與立體阻礙以限制構型分佈可以製備出高 η_{PL} 的放光材料 [84]；另外 dCF35tCzOXD 在外部引用具有立體障礙性的三級丁基(tert-Butyl)可以將分子間的距離擴大 [22]，以減少分子距離過近所引起的激子猝滅的現象 [85]，並且利用外圍供體的設計以調控軌域重疊程度以解決了 OXD 本身過強受體與結構扭曲等問題，為未來的高表現的 TADF 材料設計提供了新啟發與指導。

透過以上分析可以得知提升輻射衰變率和抑制非輻射衰變率對於提升 η_{PL} 的重要性，首先在提升輻射衰變率的部分，該策略可以透過供體、受體的選擇或結構設計策略來調控軌域的重疊性，其中由於 η_{PL} 的大小與振子強度(oscillator strength, f)呈現正相關 [86]，因此當 HOMO 與 LUMO 的軌域重疊性提升時，振子強度也會相應上升，因此透過合理的分子設計以優化軌域重疊性可以有效促進 η_{PL} 的表現 [77]，透過該策略我們篩選出較強的受體與供體，例如在 Fused_N_Ring 中篩選出的電子受體二苯並吩嗪以及 Triazine 中篩選出的三苯基三嗪，此外結構設計策略同樣也影響著輻射衰變率，如 dCF35tCzOXD 使用多供體的策略以擴大軌域的重疊程度，同時減少分子間的激子猝滅問題已提升輻射衰變率；另一方面抑制非輻射衰變率同樣是提升 η_{PL} 的關鍵，此舉可以透過結構設計減少分子內的自旋相關過程來達到，其中包括引入剛性骨架(B_Aromatic)、引入剛性分子片段(Triazine、N_Fused_Ring)與引入橋基結構(Spiro)等，上述片段能有效地減少分子內旋轉自由度，從而抑制非輻射衰變，使之成為正向片段。藉由上述的分析我們證實了正向片段在提升 η_{PL} 方面的核心作用，而負向片段的影響可透過合理的分子設計進行修

正，此外結構片段之間的交互作用也對 η_{PL} 起到關鍵的作用，這啟發我們接下來在元件表現中的分析，由於材料到元件表現之間存在更多因素，我們將沿用 η_{PL} 的經建訓練分子結構與元件表現之間的預測模型，全面提升材料的 EQE 表現。

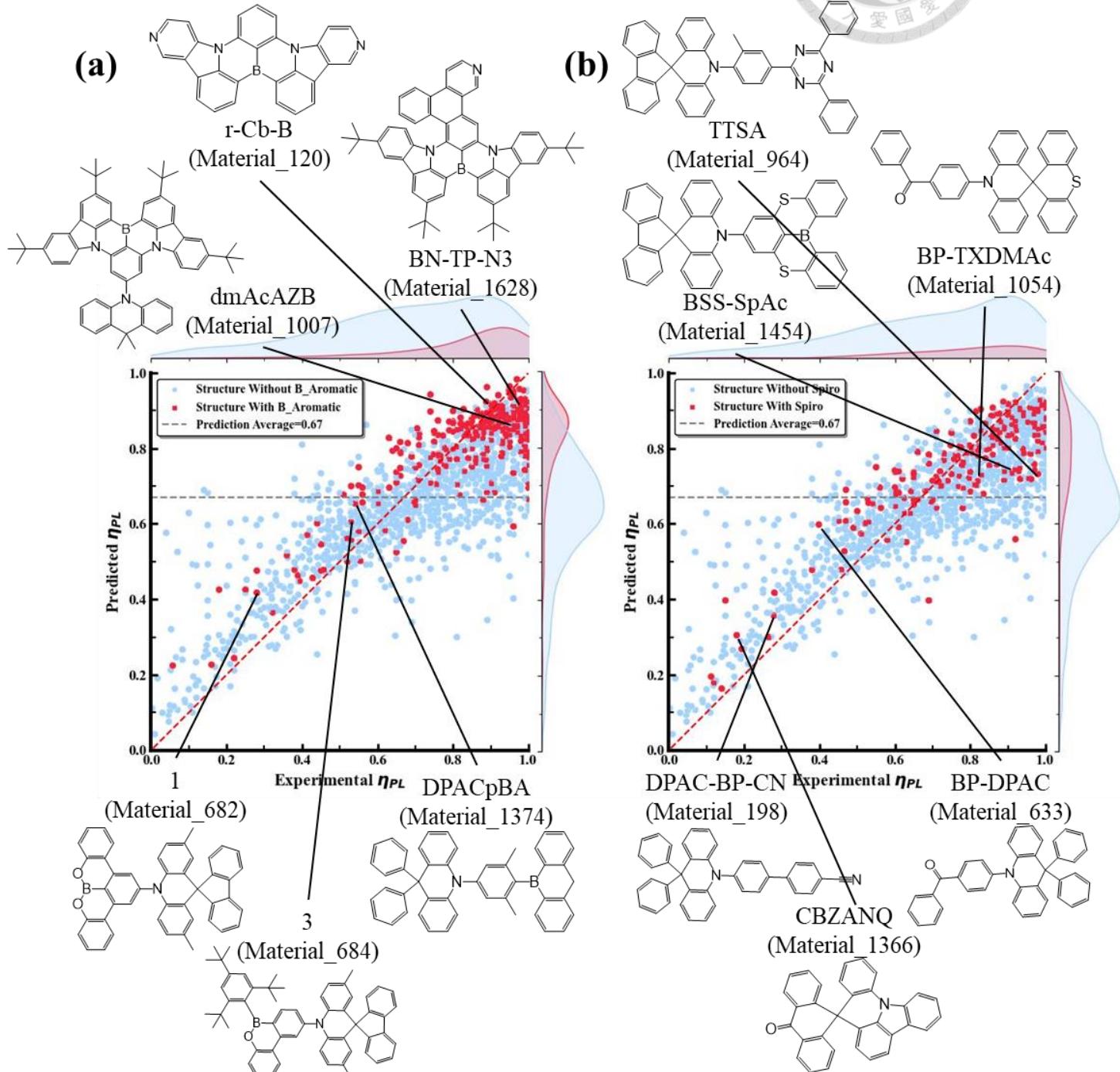


圖 8 (a)具有 B_Aromatic、(b)具有 Spiro 結構片段之 η_{PL} 實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為預測值平均值。

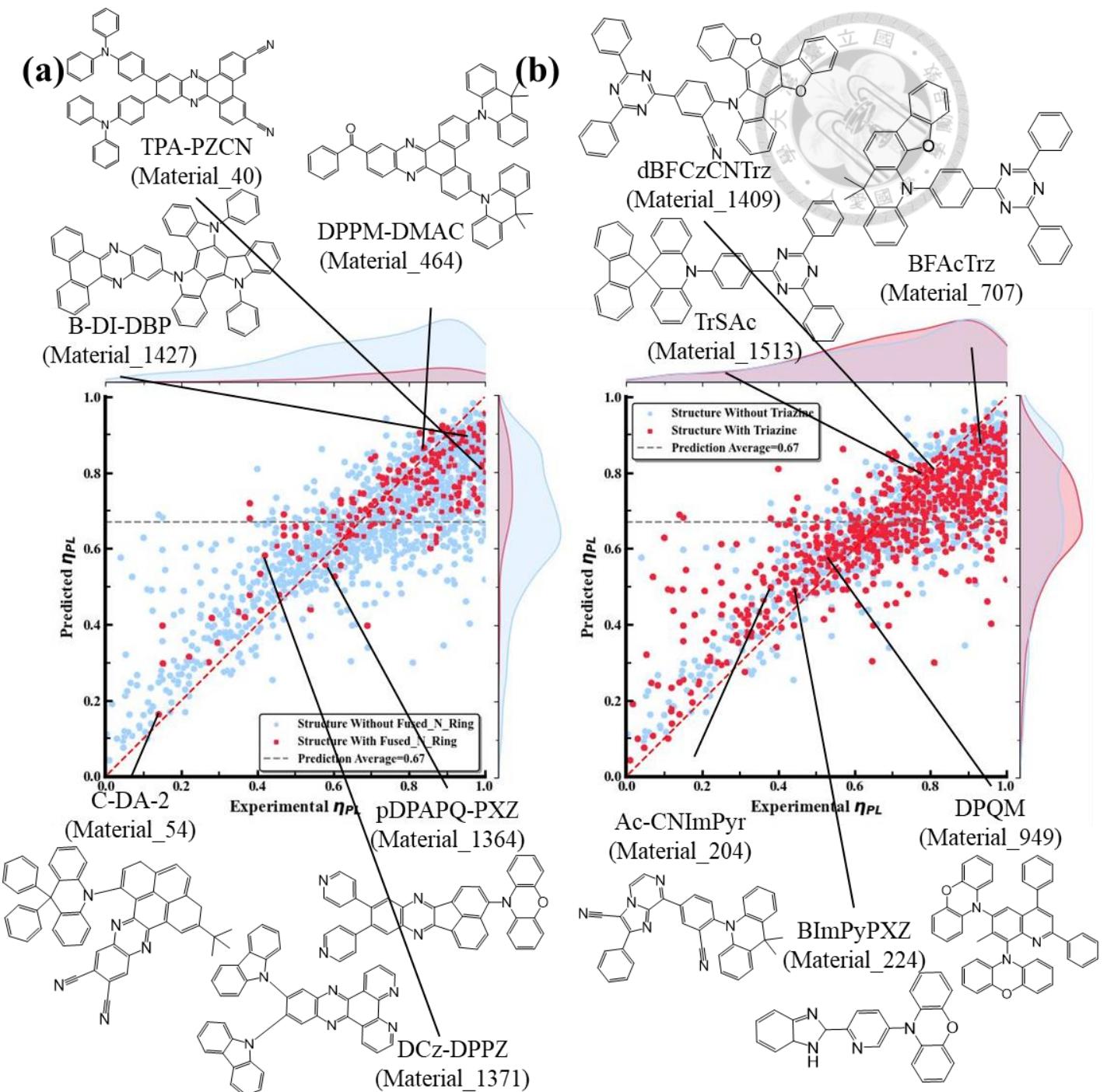


圖 9 (a)具有 Fused_N_Ring、(b)具有 Triazine 結構片段之 η_{PL} 實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為預測值平均值。

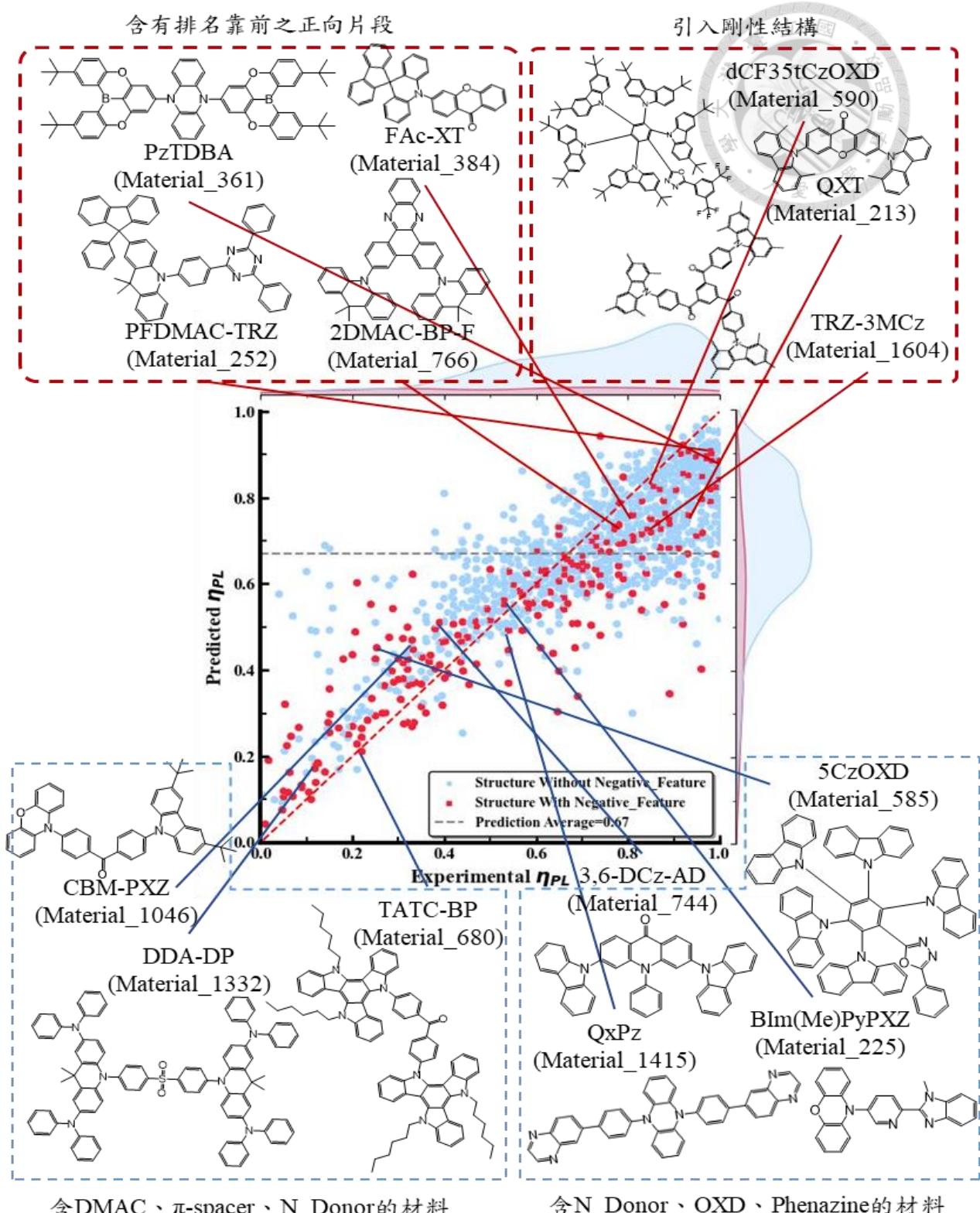


圖 10 具有負向結構片段(包含 DMAC、 π -spacer、N_Donor、OXD、Phenazine)之 η_{PL} 實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為預測值平均值。



3.4 分子結構與元件表現之預測結果

在 3.3 節中透過結果散佈圖和 SHAP 技術分析 η_{PL} 的關鍵結構片段，發現正負向結構片段與實驗相符，說明該模型能夠準確捕捉材料結構與 η_{PL} 之間的關係，為模型的可解釋性訂下了基礎，有鑑於 η_{PL} 是 EQE 重要的性質特徵，對 EQE 的表現起到關鍵的作用，因此我們根據 η_{PL} 的經驗將結構描述符進一步應用在預測 EQE 上，並建立了分子結構與 EQE 的預測模型，這在 TADF 領域中的現有文獻裡同樣屬於首例，為研究者提供深入理解材料結構對元件性能影響的工具，同時透過關鍵片段的篩選與分析進一步推動材料的快速開發，最終我們利用梯度提升回歸演算法，在描述符半徑為 4、字典集為 2048、訓練集與測試集數據拆分比例為 8:2 中找到最佳的 EQE 預測模型。圖 11 為導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 EQE 之結果，可以觀察到整體分佈比起 η_{PL} 更接近理想預測線，綠點與藍點均呈現出預測值與實驗值相符的趨勢，此外在高 EQE 的範圍中的分佈較為稀疏，該現象與 η_{PL} 在低表現的分佈是相同的狀況，這應該是源自於高 EQE 範圍數據樣本數量不足，因此模型在該範圍無法充分地學習到重要特徵，導致模型對高 EQE 範圍的預測精度降低；表 5 為導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 EQE 之評估指標，其中整體 R 值為 0.84、RMSE 為 0.048，這些指標均表明模型在整體數據上的性能表現優異，適合用於 EQE 的預測，此外在訓練集和測試集的 R 值分別為 0.886 與 0.644，表示模型能在訓練數據中學習到規律，並在未見數據上具有一定的預測水準。儘管該模型在高 EQE 的範圍中表現較不穩定，但是並不影響本研究的核心目標(開發具有高 EQE 表現的放光材料)，從數據分布與實驗趨勢來看，高 EQE 範圍的材料是未來研究與實際應用的重點方向 [26]，儘管模型的結果雖存在缺陷，但已在目前條件下提供了關鍵的預測信息，並且該模型對材料的 EQE 預測具有一定的穩健性，因此我們選擇使用該模型篩選和設計高 EQE 的材料。

接著透過 SHAP 技術篩選出 EQE 的關鍵片段並得到前 20 名的結構片段，如附件三所示，同樣發現其中具有相似的片段，因此將重複的片段進行合併後分析。

圖 12 為使用 SHAP 所分析出影響 EQE 的關鍵結構片段，觀察該圖可以發現紅點和藍點同樣分佈在虛線兩端，說明模型可以清晰區分不同結構片段對 EQE 的正向或負向影響，其中正向結構片段包含 B_Aromatic、Triazine、Spiro、t-Butyl_Group、N_Donor、Methyl_Group、BFCz、N-Phenyl 和 Cyano_Group；負向結構片段包含 Fused_N_Ring、Benzene_Core、Carbazole、Carbon_chain 和 π -spacer，其中我們發現 N-Phenyl 指在氮位置上取代的苯基，這個結構篩選出各式的結構片段，例如有些片段顯示含氮稠環上的苯基、有些片段則顯示三苯胺或雙苯胺片段，部分結構結構可能對 η_{PL} 具有正向影響，而其他則為負向，為了避免結論受到這些不確定性因素的干擾我們將不分析此片段。為了找尋潛在的優化方向，我們首先將目光聚焦在正向結構片段中，並根據重要性排序由上至下進行分析，考慮在材料設計中對 EQE 有正向影響的片段以提升材料的放光表現，接著分析負向結構片段，試圖了解其在 EQE 表現中產生不利影響的具體原因，並探討是否可以通過結構修飾或分子設計來減弱其負面效應，尋求提升 EQE 整體表現的解決方案，為 TADF 材料在 OLED 優化上提供設計指導。

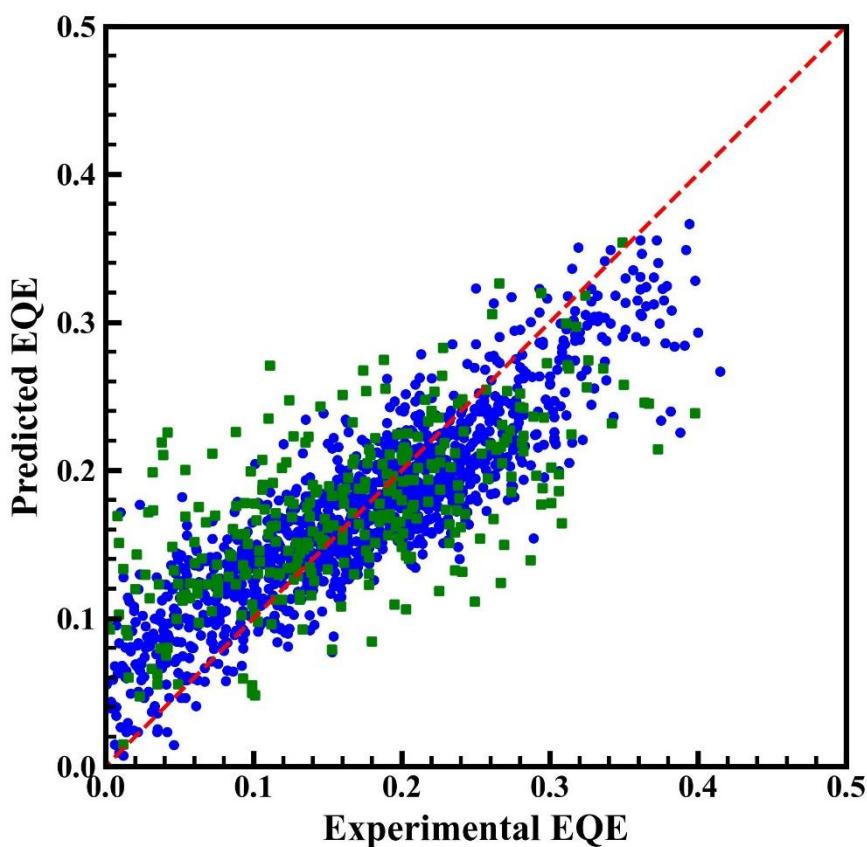


圖 11 導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 EQE 之結果，橫軸為 EQE 實驗值，縱軸為 EQE 預測值，其中綠點為測試集數據，藍點為訓練集數據。

表 5 導入結構描述符並使用梯度提升回歸演算法預測 EQE 之評估指標。

| 預測結果 | 訓練集 | 測試集 | 總數據 |
|------|-------|-------|-------|
| 資料數量 | 1270 | 318 | 1588 |
| RMSE | 0.042 | 0.066 | 0.048 |
| R | 0.886 | 0.644 | 0.84 |

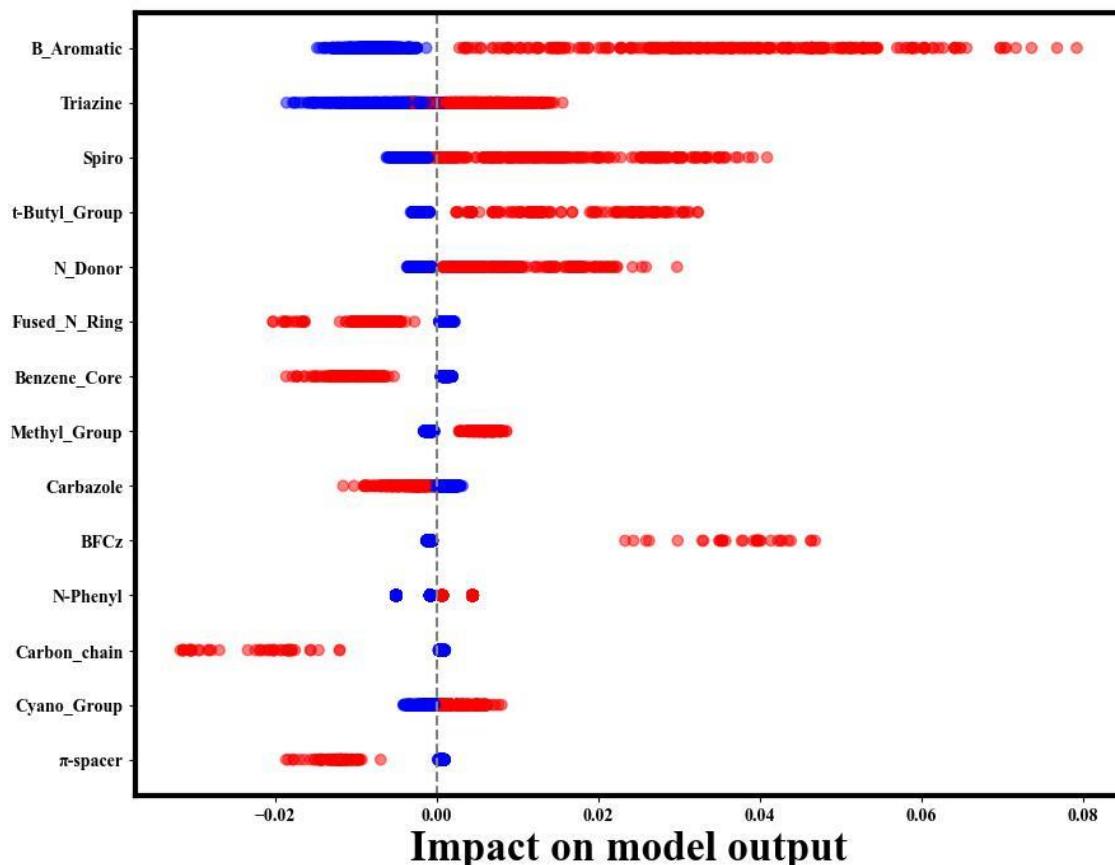


圖 12 模型使用 SHAP 所分析出影響 EQE 的關鍵結構片段，並根據重要性由上到下進行排序，其中紅點代表具有該片段；藍點則沒有該片段。

儘管從 3.3 節中我們能得知 η_{PL} 對於 EQE 的重要性，但式 1.1 表明到影響 EQE 的因素並非只有 η_{PL} ，其中還包括激子使用效率(η_r)、電效率(γ)以及外部耦合效率(η_{out})，雖然這些參數目前難以通過實驗直接測量，但在分析過程中仍需留意與這些因素相關的效應所帶來的影響，比如激子使用效率很大程度受到分子間激子猝滅效應的影響，其中包括 Aggregation-Induced Quenching(AIQ) [87]、Aggregation-Caused Quenching(ACQ) [88] 和 Triplet-Triplet Annihilation (TTA) [89]等現象，這些效應會削弱材料的激子使用效率，進而降低元件的 EQE 表現，因此透過結構與 EQE 之間的分析以深入了解如何設計結構以達到高 EQE 表現得放光材料。在分析結構片段前，我們首先觀察到圖 12 中影響 EQE 的前五名片段均為正向片段，其中三個片段 B_Aromatic、Spiro 和 Triazine 與 η_{PL} 中排名靠前的片段一致；接著

發現 Fused_N_Ring 和 N_Donor 對 EQE 的影響與其對 η_{PL} 的影響正好相反；此外還發現一些取代基對 EQE 的影響為正向，我們將根據以上觀察對這些片段進行詳細分析，並在最後討論剩餘的負向片段對 EQE 的影響。

在圖 13 中展示了(a)具有 B_Aromatic、(b)具有 Triazine 以及(c)具有 Spiro 結構片段之 EQE 實驗與預測之散佈圖，這些片段與 η_{PL} 相同，都是排名靠前且為正向的片段。首先在圖 13(a)中具有 B_Aromatic 結構片段的材料的預測值高於總平均，並且分佈均在高 EQE 範圍中傾向擁有較高的 EQE，趨勢與 η_{PL} 相當類似，篩選出大量多共振系統的放光材料(Multiresonance)，其中包括 r-Cb-B (Material_120/實驗值:0.19/預測值:0.17)、dmAcAZB (Material_1007/實驗值:0.21/預測值:0.2) 以及 BN-TP-N3 (Material_1628/實驗值:0.37/預測值:0.34)，該片段不僅透過分子剛性提升電子使用效率，更藉由高的發射偶極矩讓元件的外部耦合效率提升 [90]，由此可見 B_Aromatic 不僅提升 η_{PL} 的表現，同時在整體元件層面也能有效提升 EQE。在低於平均線的範圍中同樣出現含硼的硼酸酯衍伸物，包括 Material_682(實驗值:0.05/預測值:0.11)、Material_684(實驗值:0.13/預測值:0.13) 以及 DPACpBA (Material_1374/實驗值:0.08/預測值:0.13)，這些片段容易讓材料產生分子內自旋，導致分子的非輻射的過程增加，對於 η_{PL} 與 EQE 來說都是負面影響 [91]。圖 13(b)可以觀察到具有 Triazine 片段的材料分佈較廣，但是大部分的紅點仍分佈在高於平均線的區域，與 η_{PL} 類似高 EQE 範圍中篩選出含有三苯基三嗪的材料，包括 BFACTrz (Material_707/實驗值:0.2/預測值:0.16)、dBFCzCNTrz (Material_1409/實驗值:0.28/預測值:0.23) 以及 TrSAC (Material_1513/實驗值:0.24/預測值:0.24)，該片段具有高電子受體性，促進分子內電荷轉移效應以提升輻射衰變速率，此外其剛性結構有助於抑制非輻射衰變過程，這些特性造就了高 EQE 的表現 [92]，另外在低 EQE 範圍中也觀察到含氮的負向片段，包括 Ac-CNImPyr (Material_204/實驗值:0.06/預測值:0.09) 篩選出 imidazo[1,2-a]pyrazine、BImPyPXZ (Material_224/實驗值:0.19/預測值:0.2) 篩選出 2,7a-dihydro-1H-benzo[d]imidazole 與 DPQM

(Material_949/實驗值:0.11/預測值:0.12)篩選出 quinoline 的結構片段，這些結構比起三苯基三嗪來說剛性更為不足，抑制非輻射衰變率造成激子使用效率降低，進一步對 EQE 造成影響 [93]。圖 13(c)顯示了具有 Spiro 的材料分佈在高於平均值的區域，說明該片段能有效提升 EQE，趨勢與 η_{PL} 相當類似，篩選出的材料包括 TTSA (Material_964/實驗值:0.28/預測值:0.24)、BP-TXDMAC (Material_1054/實驗值:0.21/預測值:0.25) 以及 BSS-SpAc (Material_1454/實驗值:0.25/預測值:0.22)，該片段除了能透過剛性的 sp^3 碳原子降低非輻射過程以提升 η_{PL} 以外，較大的空間位阻使得分子間具有適當的距離，以降低分子間過於靠近而導致的激子猝滅(Aggregation-Caused Quenching) [94]，這使具有該片段的材料元件中能夠更有效地使用激子，這對提升 EQE 表現尤其重要。另外在低 EQE 的範圍中也篩選出 9,9-diphenyl-9,10-dihydroacridine 的結構片段，其中包括 DPAC-BP-CN (Material_198/實驗值:0.01/預測值:0.08) 以及 BP-DPAC (Material_633/實驗值:0.2/預測值:0.17)，其苯環的旋轉自由度使非輻射衰變率提升，對於 EQE 來說呈現負向影響 [59]。透過以上分析，B_Aromatic、Triazine、和 Spiro 這三種正向結構片段在 η_{PL} 和 EQE 的分析中均展現出高度一致的正向貢獻，進一步證實了 η_{PL} 和 EQE 之間的相關性，而這些結構片段各自具有分子剛性、強電子受體、空間位阻以及調控分子間相互作用等特性使其成為排名前幾名的重要結構片段，接下來將深入探討其與其他結構特徵的相互作用，以實現更高效的元件表現和更優異的材料設計策略。

在圖 14 中展示了(a)具有 N_Donor、(b)具有 Fused_N_Ring 結構片段之 EQE 實驗與預測之散佈圖，這些片段與 η_{PL} 相同，排名分別為第五名與第六名，有趣的是可以發現這兩個片段在 η_{PL} 中也有出現，但影響與 EQE 正好相反，這一現象表明 N_Donor 與 Fused_N_Ring 兩結構片段分別在 η_{PL} 與 EQE 上可能扮演著不同的角色，以下將討論這些片段潛在的優勢與劣勢，並嘗試提出結構修飾或優化策略以優化這些片段對 EQE 的影響。在圖 14(a)中可以觀察到 N_Donor 分布多集中在高 EQE 區域，其中含有多種含氮供體，其中包括 DBA-BFICz (Material_112/實驗值:0.33/預

測值:0.3)的 10-phenyl-10,15-dihydrobenzofuro[3,2-a]indolo[3,2-c]carbazole、CzBNCz (Material_170/ 實驗值:0.21/ 預測值:0.2) 的 carbazole 以及 BO-tCzPhICz (Material_1028/ 實驗值:0.18/ 預測值:0.21) 的 5-phenyl-5,12-dihydroindolo[3,2-a]carbazole，透過比較篩選出的材料可以發現在高 EQE 範圍中篩選出較多的含氮稠環供體，也就代表這類的供體片段擁有更大的分子剛性，減少非輻射衰變的過程，在激發態時也能避免結構變形導致激子損失，有助於提高元件的 EQE 表現 [95,96]。相比之下低於平均線的材料的供體片段大多是使用數個含氮的小供體，如 M-BPCZ4 (Material_240/ 實驗值: 0.17/ 預測值:0.17)、4TCzBN-o-mCP (Material_516/ 實驗值: 0.08/ 預測值:0.08) 就使用五元環的 Carbazole 作為電子供體，此舉可能會增加分子的旋轉自由度使非輻射衰變率提升，伴隨著非輻射損失的增加與設計難度的提升，有較高的機會對 EQE 表現造成負面影響 [97]。在圖 14(b) 中可以觀察到有 Fused_N_Ring 的材料分布略為靠近平均線以下的區域，並在低 EQE 範圍中篩選出具有含氮稠環的材料，包括 pDBBPZ-DPXZ (Material_105/ 實驗值:0.1/ 預測值:0.12)、o-PXZP (Material_307/ 實驗值:0.13/ 預測值:0.16) 以及 APPT-BPXZ (Material_1493/ 實驗值: 0.03/ 預測值:0.11)，我們發現在設計放光材料時，供體片段與受體片段之間連接產生的二面角若接近 90 度時，容易使電子與電洞結合變得相當困難，使元件表現下降 [6]；另外在二面角接近 0 度時，儘管增加分子的平面性使電子電洞更好的結合，但是過高的軌域重疊性會增加 em_{EST} 使得 TADF 的效應降低 [26]，因此為了獲得最佳放光效率需要平衡這些因素，透過分析這些低於平均線的材料後發現這些結構容易出現 $\pi-\pi$ 堆疊或偶極相互作用，比如 o-PXZP，該材料的二面角僅為 7.77 度 [98]，這使得分子之間距離過近出現激子猝滅的現象，進一步使 EQE 表現下降。為解決此狀況可以透過合理的分子構型設計來達到，其中可以導入特定的分子片段調控分子之間的距離，此舉不僅能有效調控軌域重疊性，同時也能解決激子猝滅的問題，如 TPA-APQDCN-C (Material_280/ 實驗值: 0.34/ 預測值:0.24)、DPPM-SFAC (Material_466/ 實驗值: 0.31/ 預測值:0.27) 所示，這些結構

引入了立體障礙性較大的片段，如 Spiro 與三苯胺片段，使得分子間有適當的距離已解決激子猝滅所帶來的負面影響，最終得到高於平均值的 EQE 表現。透過以上分析我們可以總結出以下觀點：其一為 N_Donor 與 Fused_N_Ring 分別在 η_{PL} 與 EQE 中出現完全相反的結果揭示了分子設計中多變的挑戰，例如在 N_Donor 在 EQE 中篩選出含氮稠環供體具有分子剛性的優勢，與其在 η_{PL} 中篩選出的吩噁嗪不同，剛性結構在激發態時避免非輻射過程增加，對元件 EQE 表現有顯著貢獻；其二為本分析進一步證實了 η_{PL} 與 EQE 之間的相關性具有一定的局限性，並非高 EQE 的材料就能獲得高 EQE 的表現，這之中還存在相當多因素影響最終元件表現，比如 Fused_N_Ring 片段因分子剛性在 η_{PL} 被篩選為正向片段，但與其他片段結合時須考慮片段間二面角的影響，過大或過小都可能不利於 EQE 的表現，其中過小的二面角容易出現 π - π 堆疊引起激子猝滅現象，使 EQE 表現降低；其三是引入立體障礙性高的片段有助於提升 EQE 的表現，如 Spiro 或三苯胺適度調控分子間的距離，既能降低激子猝滅風險，也能藉由剛性的片段降低非輻射衰變速率改善 EQE 的表現。

在圖 15 中展示了(a)具有 t-Butyl_Group、(b)具有 Methyl_Group 結構片段之 EQE 實驗與預測之散佈圖，這兩個取代基分別為三級丁基與甲基取代基的片段，並在 SHAP 分析出影響 EQE 的關鍵結構片段排名中分別排名第四名與第八名，並且皆為正向片段，這些取代基可以解決分子間激子猝滅的問題，以提升材料在元件中的 EQE 表現。圖 15(a)中含有 t-Butyl_Group 的材料大多都在平均線以上，其中包括 Cz2DABNA-NP-MTB (Material_45/ 實驗值:0.22/ 預測值:0.23) 、BN-CP1 (Material_127/ 實驗值:0.4 /預測值:0.3) 以及 BN-TP-N1 (Material_1626/ 實驗值:0.35 /預測值:0.35) ，這些材料也都存在著高 SHAP 值的 B_Aromatic 片段，很大程度受到這些片段的正向影響，此外作為非共軛的取代基團，三級丁基可以調控分子之間的距離，避免材料過於接近所導致的激子猝滅，是常見的分子修飾方式 [99]。圖 15(b)中具有 Methyl_Group 的材料分布在平均線以上，其中包括 DPA-MeTRZ

(Material_276/實驗值: 0.19/預測值 0.2)、8MeDM-B (Material_297/實驗值:0.29/預測值:0.26) 以及 Me-PABS (Material_1792/實驗值: 0.23/預測值:0.23)，該片段篩選出的材料可以看見甲基修飾在供體、受體或是苯環上，此舉可以適度調整軌域的分佈，在高 EQE 的範圍中材料同樣出現許多排名靠前的正向片段，例如 B_Aromatic、Triazine 與 Spiro 結構片段，其中甲基的體積雖小，但作為取代基可對分子引入適當的立體位阻，防止分子間過於緊密的 π - π 堆疊，進一步降低激子猝滅的風險 [100,101]。在平均線以下部分紅點仍存在，表明並非所有具有甲基的材料都能有效提升 EQE，例如 pDTBPZ-DPXZ (Material_106/實驗值:0.14/預測值:0.16)、B-oCz (Material_393/實驗值 0.08/預測值:0.15) 以及 24CT (Material_958/實驗值: 0.22/預測值:0.16)，其中也觀察到這些材料篩選出不具剛性的三芳基硼以及吩噁嗪作為受體基團，這使材料容易發生分子內振動與扭曲的現象，以限制該材料在 EQE 的表現，可以發現甲基作用仍依賴與其他正向片段以及修飾位點的合理設計 [102,103]。從上述分析可以觀察到 t-Butyl_Group 和 Methyl_Group 作為常見的取代基，在提升 EQE 方面表現出正向影響，但其效果仍然依賴與其他片段的配合，因此在設計材料時應該考慮這些片段之間的合理搭配，發揮優勢的同時避免負面影響出現。

剩下的結構片段分佈圖中，如附件四所示，其中兩個正向片段雖具有提升材料效率的潛力(Cyano_Group、BFCz)，但其影響程度較排名靠前的片段低，且更多時候依賴其他正向片段的輔助才能顯現出正向效果。具有 Cyano_Group 片段的材料主要分布在平均線以上，包括 SpiroAC-PyoCN (Material_289/實驗值:0.34/預測值:0.3)、TrzCNTrx1 (Material_359/實驗值:0.19/預測值:0.2) 以及 BzITz (Material_840/實驗值:0.24/預測值:0.21)，是一個常見的電子吸引基團，時常作為電子受體，該片段引入材料後能夠有效調整軌域能階並增加分子剛性，從而抑制非輻射衰變率 [104]，此外這些材料中篩選出大量排名靠前的正向片段，如 Spiro、Triazine 等結構，證實該類材料的 EQE 表現很大程度受到這些正向片段所影響。另外在 BFCz 的散佈圖中，該片段主要由 5H-benzofuro[3,2-c]carbazole 所組成，其中篩選出的材

料包括 oBFCzTrz (Material_221/ 實驗值:0.23/ 預測值:0.2) 以及 BTPBFCz-D1 (Material_1381/ 實驗值:0.21/ 預測值:0.2), 在多篇文獻中被證實 BFCz 比起 Carbazole 來說有更多優勢 [105], 並且 BFCz 上的氧原子引入了額外的電子拉力, 使 BFCz 在材料中展現出更強的推電子與拉電子特性, 促進輻射衰變率的提升 [106]。除了上述提及的兩個正向片段以外, 還有四個負向片段尚未分析, 我們觀察到這些片段所篩選的材料比排名靠前的片段來說相對較少, 並且各片段的分佈圖不明顯, 因此我們將以上負向片段合併成一張圖進行分析以綜合評估這些片段對 EQE 的影響。在圖 16 中展示了具有負向結構片段(包含 Benzene_Core、Carbazole、Carbon_chain、 π -spacer)之 EQE 實驗與預測之散佈圖, 接下來將根據排名進行分析, 首先排名第 7 的片段為 Benzene_Core, 該片段以苯作為材料的中心片段, 如 BTPBFCz (Material_1380/ 實驗值:0.16/ 預測值:0.18)、BTPBFCz-D2 (Material_1382/ 實驗值:0.2/ 預測值:0.18), 儘管利用苯作為核心有助於提升分子剛性, 但外圍數個電子供體與受體可能導致材料的電荷轉移能力下降, 進而使元件的 EQE 降低。排名第 9 的片段為 Carbazole, 該片段的含氮五元環平面性不足, 如 M-BPCZ4 (Material_240/ 實驗值:0.16/ 預測值:0.17), 容易與其他片段產生扭轉角, 這可能導致激子猝滅 [107] 或電荷傳遞效果降低 [97], 進而使該種類的材料容易低於 EQE 平均。排名第 12 的片段為 Carbon_chain, 長碳鏈被引入到材料中主要是為了改善材料的溶解性、加工性等, 如 PCzAQC0.5 (Material_131/ 實驗值:0.12/ 預測值:0.13), 其原因是長碳鏈具有優異的疏水性質, 能顯著增加分子的溶解性以擴展應用領域 [108], 然而長碳鏈的引入會中斷分子內的 π 共軛體系, 削弱分子的電子傳遞性質, 這會大大降低輻射衰變率抑制材料在元件的 EQE 表現 [109]。排名第 14 的片段為 π -spacer, 通常通過單鍵連接供體與受體, 如 M-BPCZ4 (Material_240/ 實驗值:0.16/ 預測值:0.17), 這使材料中具有較高的旋轉自由度, 抑制分子內電荷轉移的效率並降低輻射衰變速率, 使材料具有較低的 EQE 表現 [110]。儘管在圖 16 中可以看見大量低於平均線的材料, 還是有不少高表現的材料存在, 我們觀察到在高 EQE 的範圍

中出現很多含有排名靠前的正向片段，例如 TRZCzPh-BNCz (Material_270/實驗值:0.32/預測值:0.26)、BTPBFCz-D1 (Material_1381/實驗值:0.21/預測值:0.2)、SF12oTz (Material_1472/實驗值:0.22/預測值:0.2) 中出現了 B_Aromatic、Spiro 及 Triazine 等，這些材料受到正向片段的影響而獲得高 EQE 的表現，儘管材料中也出現負向片段，但其獨立提升 EQE 的能力有限，更多依賴於排名較高的正向片段 [111,112]。儘管這些負向片段在 EQE 表現中顯示出的負面貢獻，但在高 EQE 的材料中我們仍然觀察到這些材料常包含排名靠前的正向片段（如 B_Aromatic、Spiro 及 Triazine），這表明排名靠前的正向片段在提升材料表現中具有顯著的作用，即便存在排名靠後的負向片段，其負面影響仍能被正向片段的效應所抵消，進一步突顯了正向片段的重要性。

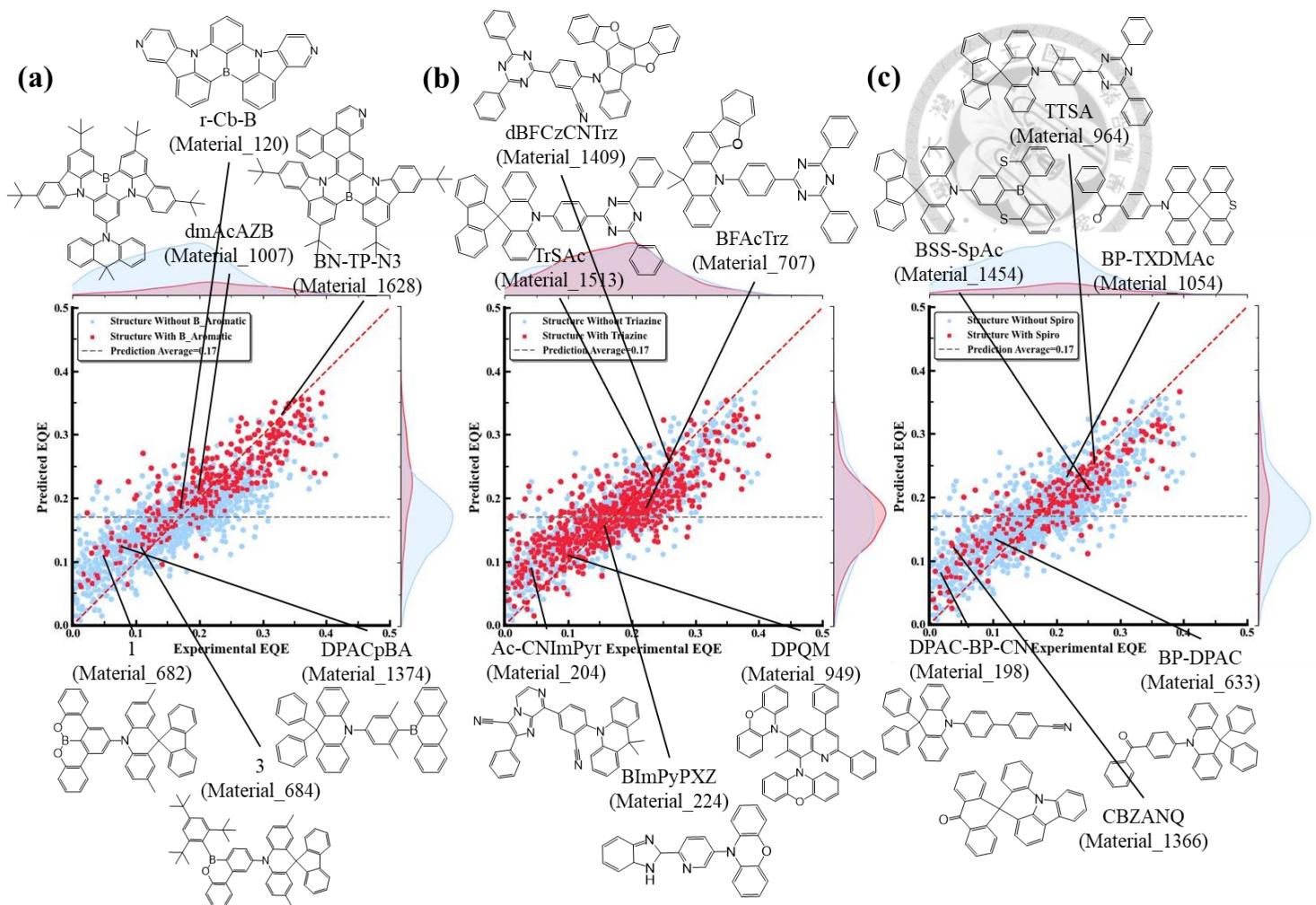


圖 13 (a)具有 B_Aromatic、(b)具有 Triazine 以及(c)具有 Spiro 結構片段之 EQE 實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為預測值平均值。

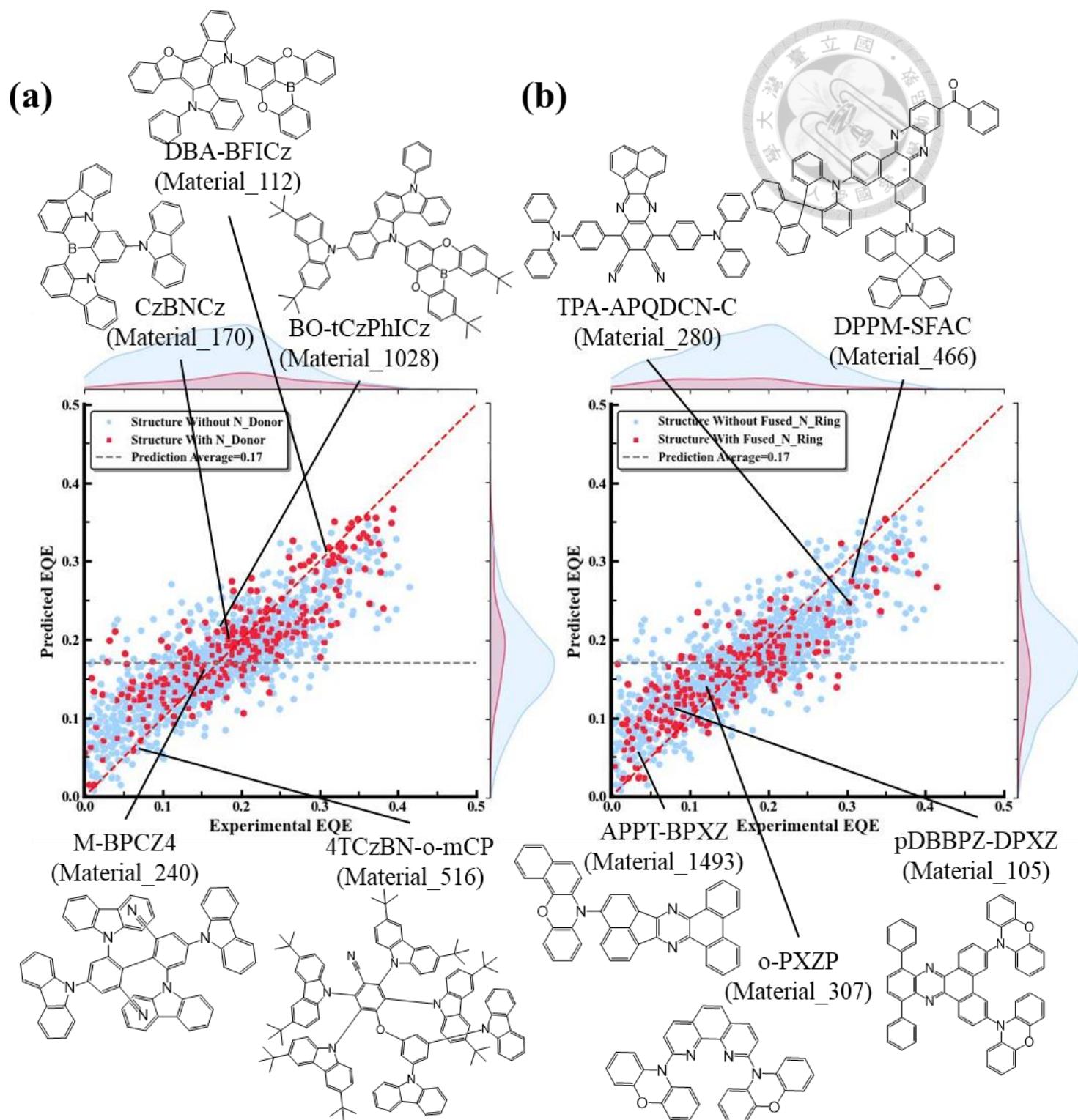


圖 14 (a)具有 N_Donor 以及(b)具有 Fused_N_Ring 結構片段之 EQE 實驗與預測之散佈圖，
紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為預測值平均值。

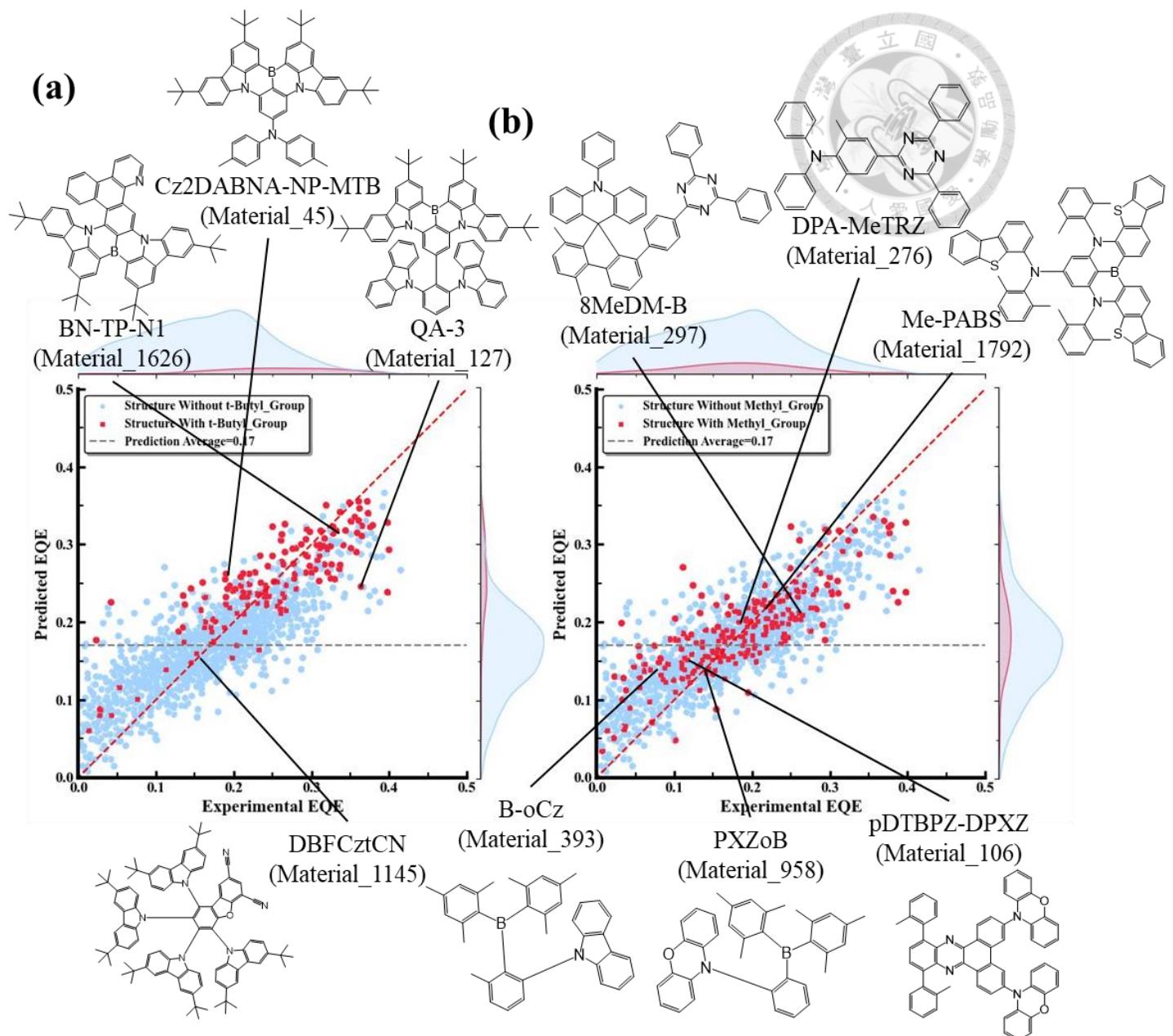


圖 15 (a)具有 t-Butyl_Group、(b)具有 Methyl_Group 結構片段之 EQE 實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為預測值平均值。

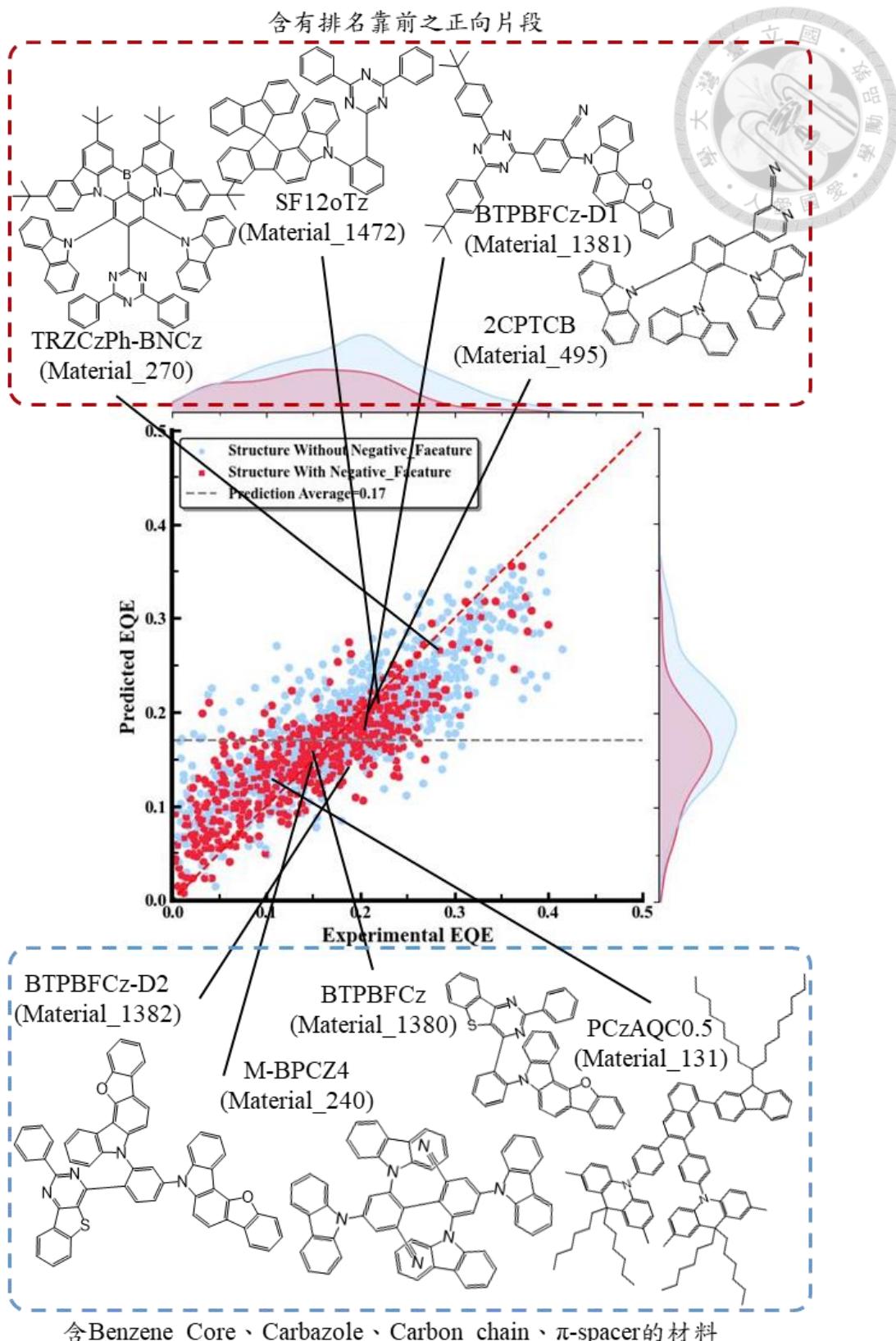


圖 16 具有負向結構片段(包含 Benzene_Core、Carbazole、Carbon_chain、 π -spacer)之 EQE 實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為預測值平均值。

透過以上對 EQE 的分析我們可以總結以下幾個觀點：其一是影響 EQE 的高重要性片段，排名前三名的正向片段如 B_Aromatic、Triazine 和 Spiro 對 EQE 有顯著的提升，這些片段分別具有平面性、強電子推拉特性以及高分子剛性，不僅能顯著提升輻射衰變速率，還能有效抑制非輻射衰變過程，該現象在低排名的結構中也出現，使低排名的片段難以單獨影響 EQE 的表現，進一步證明 η_{PL} 與 EQE 之間的具有一定的相關性；其二是負向片段的貢獻與應對策略，如 Benzene_Core、Carbazole、Carbon_chain、 π -spacer 等負向片段所造成的降低電荷傳輸效率、增加非輻射衰變率等現象拉低 EQE 表現，此外 Fused_N_Ring 的分析對於二面角與分子堆疊的平衡提供了良好的應對策略，透過結構設計來調控分子間距離，減少激子猝滅的現象，結合其他正向片段來減弱其負面影響，從而實現材料的整體優化；其三是取代基在 EQE 中的重要性，如 Methyl_Group、t-Butyl_Group，這些取代基的立體位阻效應能調節分子間距離，有效解決 Aggregation-Induced Quenching(AIQ) 和 Aggregation-Caused Quenching(ACQ) 等現象，減少激子猝滅的發生，從而提升 EQE 表現。綜上所述，雖然 EQE 的表現與 η_{PL} 存在一定的相關性，但 EQE 的提升需要考慮更多因素，例如激子猝滅與外部耦合效率(η_{out})，舉例來說 Fused_N_Ring 雖然能在 η_{PL} 分析中作為正向片段，但在 EQE 分析中卻因激子猝滅或偶極相互作用的影響而表現為負向，因此元件的 EQE 提升不僅需要結構設計層面的改進，還需要考慮分子間相互作用與材料加工條件的優化。

從以上的分析可以得知儘管材料達到高 η_{PL} 的表現，但材料的所生成的光子在元件內部可能會受到多種影響因素的損耗，例如激子猝滅、元件內部的光子反射與折射等現象，這些損耗問題導致元件最終 EQE 表現未能完全展現 η_{PL} 的潛力。我們在整理文獻時發現近年來高 EQE 的放光材料普遍採用了水平取向的策略來改善放光層中的分子排列 [2]，此舉有效提升了元件的外部耦合效率(η_{out})以提升元件的 EQE 表現，同時也蒐集到多篇文獻證實更加線性與平面的結構能夠有效提升 EQE 的表現 [77,113,114]，這與本研究的中的高表現片段分析如出一轍，例如

B_Aromatic、Triazine 等正向結構片段均展現出分子剛性與平面性，這些特性不僅抑制激子猝滅，還能在光子從材料到外部的過程中有效降低損耗，因此透過與相關文獻對照後我們認為設計新一代高效放光材料時，除了聚焦在提升 η_{PL} 以外，還需要特別重視分子的結構設計與排列方式。最後從本研究的成果可以看出利用機器學習篩選出影響 EQE 和 η_{PL} 的結構片段不僅展示該技術在材料設計中的優秀能力，更為 TADF 相關的研究提供一種全新的方法，特別是其中使用 SHAP 進行重要性評估定量比較各片段對於材料性能的貢獻，位材料設計提供強而有力的數據支持，為來隨著更多數據的累積與模型進一步的優化，我們相信機器學習將為 TADF 材料在 OLED 領域中創造更大的價值，貢獻於新型高效材料的發現及應用。

第四章 結論



本研究使用機器學習的技術，導入目前學術界已知最大的 TADF 放光材料資料庫進行訓練，分別建立性質與表現、結構與性質以及結構與表現的預測模型，並分析 TADF 分子結構分別對於性質與表現的影響。首先我們蒐集 2000 年至 2023 年間 IF (Impact Factors) 值大於 3.0 的期刊文獻，得到了 3143 篇實驗文獻，其中包括放光材料的能階、激發態能階、速率常數、激子壽命以及光致放光量子產率等 16 種性質與 EQE 的實驗數據，總共得到 1588 組不同種類的放光材料實驗數據，並將各性質參數進行相關係數的分析後，發現 η_{PL} 與 EQE 有較高的線性關係，暗示了 η_{PL} 可能是提升 EQE 的主要因素。接著我們導入 16 種性質參數作為特徵並使用梯度提升回歸演算法建立模型以預測 EQE，該模型得到相關係數(R)0.928 與均方根誤差(RMSE)0.032，透過與他篇相關文獻比較後證實了本模型的優異表現，隨後透過 Gini Importance 做為評估重要性的指標看見位居第一的特徵為 η_{PL} ，這表明 η_{PL} 對於 EQE 的預測性能有相當的影響，因此嘗試利用分子結構進行 η_{PL} 的預測，幫助揭示材料結構如何影響材料的 η_{PL} 表現。在分子結構與 η_{PL} 的預測模型中我們利用結構描述符將材料轉換為電腦可讀取的形式，並同樣使用梯度提升回歸演算法進行訓練，這在 TADF 領域中的現有文獻裡屬於首例，為了篩選出影響 η_{PL} 的結構片段，本研究利用 SHAP 技術進行分析，並根據排名依序討論各片段如何影響材料 η_{PL} 的表現，透過一系列的分析可以得知提升輻射衰變率和抑制非輻射衰變率對於提升 η_{PL} 至關重要，從提升輻射衰變率的角度我們可以篩選出較強的電子的受體與供體，如 Fused_N_Ring 和 Triazine；另外從抑制非輻射衰變率的角度可以看見引入剛性骨架(B_Aromatic)、引入剛性分子片段(Triazine、N_Fused_Ring)與引入橋基結構(Spiro)等策略都能減少分子的自旋過程來達到，SHAP 技術不僅幫助我們篩選出正負向片段，還提供物理意義的解釋幫助我們了解結構片段之間的交互作用。最後我們根據 η_{PL} 的經驗將結構描述符進一步應用在預測 EQE 上，並建立了分子結

構與 EQE 的預測模型，這在 TADF 領域中的現有文獻裡同樣屬於首例，該模型使用梯度提升回歸演算法建立，在 SHAP 分析中我們逐步分析各結構片段並歸納出以下三個觀點：首先高重要性片段如 B_Aromatic、Triazine 和 Spiro 能顯著提升 EQE，這些片段通過平面性、高分子剛性及強電子推拉特性，有效提升輻射衰變速率並抑制非輻射衰變過程；其次負向片段如 Benzene_Core、Carbazole 和 π -spacer 等會降低電荷傳輸效率或增加非輻射衰變率，但可通過結構設計與正向片段結合來減弱其影響，例如調控分子間距離以減少激子猝滅現象；最後取代基如 Methyl_Group 和 t-Butyl_Group 在減少激子猝滅效應方面發揮關鍵作用，進一步提升 EQE 表現。綜合而言，本研究展示了機器學習技術在材料設計中的強大應用潛力，不僅提升了 TADF 材料的開發效率，還為未來高效 OLED 材料的篩選與優化奠定了理論與實踐基礎。

第五章 參考文獻



- [1] Tonnelé, C.;Stroet, M.;Caron, B.;Clulow, A. J.;Nagiri, R. C. R.;Malde, A. K.;Burn, P. L.;Gentle, I. R.;Mark, A. E.Powell, B. J. Elucidating the Spatial Arrangement of Emitter Molecules in Organic Light-Emitting Diode Films. *Angewandte Chemie International Edition* **56**, 8402-8406 (2017).
- [2] Tenopala-Carmona, F.;Lee, O. S.;Crovini, E.;Neferu, A. M.;Murawski, C.;Olivier, Y.;Zysman-Colman, E.Gather, M. C. Identification of the Key Parameters for Horizontal Transition Dipole Orientation in Fluorescent and TADF Organic Light-Emitting Diodes. *Advanced Materials* **33**, 2100677 (2021).
- [3] Han, J.-H.;Kim, T.-Y.;Kim, D.-Y.;Yang, H. L.Park, J.-S. Water vapor and hydrogen gas diffusion barrier characteristics of Al₂O₃–alucone multi-layer structures for flexible OLED display applications. *Dalton Transactions* **50**, 15841-15848 (2021).
- [4] Giovanella, U.;Pasini, M.Botta, C. in *Applied Photochemistry: When Light Meets Molecules* (eds Giacomo BergaminiSerena Silvi) 145-196 (Springer International Publishing, 2016).
- [5] Yang, Z.;Mao, Z.;Xie, Z.;Zhang, Y.;Liu, S.;Zhao, J.;Xu, J.;Chi, Z.Aldred, M. P. Recent advances in organic thermally activated delayed fluorescence materials. *Chemical Society Reviews* **46**, 915-1016 (2017).
- [6] Uoyama, H.;Goushi, K.;Shizu, K.;Nomura, H.Adachi, C. Highly efficient organic light-emitting diodes from delayed fluorescence. *Nature* **492**, 234-238 (2012).
- [7] Evans, E. W.;Olivier, Y.;Puttisong, Y.;Myers, W. K.;Hele, T. J. H.;Menke, S. M.;Thomas, T. H.;Credgington, D.;Beljonne, D.;Friend, R. H.Greenham, N. C. vibrationally Assisted Intersystem Crossing in Benchmark Thermally Activated Delayed Fluorescence Molecules. *The Journal of Physical Chemistry Letters* **9**, 4053-4058 (2018).
- [8] Pope, M.;Kallmann, H. P.Magnante, P. Electroluminescence in Organic Crystals. *The Journal of Chemical Physics* **38**, 2042-2043 (1963).
- [9] Kim, K.-H.;Moon, C.-K.;Lee, J.-H.;Kim, S.-Y.Kim, J.-J. Highly Efficient Organic Light-Emitting Diodes with Phosphorescent Emitters Having High Quantum Yield and Horizontal Orientation of Transition Dipole Moments. *Advanced Materials* **26**, 3844-3847 (2014).
- [10] Gibson, J.;Monkman, A. P.Penfold, T. J. The Importance of Vibronic Coupling for Efficient Reverse Intersystem Crossing in Thermally Activated Delayed Fluorescence Molecules. *ChemPhysChem* **17**, 2956-2961 (2016).
- [11] Parker, C. A.Hatchard, C. G. Triplet-singlet emission in fluid solutions.

- Phosphorescence of eosin. *Transactions of the Faraday Society* **57**, 1894-1904 (1961).
- [12] Berberan-Santos, M. N.;Garcia, J. M. M. Unusually Strong Delayed Fluorescence of C70. *Journal of the American Chemical Society* **118**, 9391-9394 (1996).
- [13] Endo, A.;Ogasawara, M.;Takahashi, A.;Yokoyama, D.;Kato, Y.;Adachi, C. Thermally activated delayed fluorescence from Sn(4+)-porphyrin complexes and their application to organic light emitting diodes--a novel mechanism for electroluminescence. *Adv Mater* **21**, 4802-4806 (2009).
- [14] Hirai, H.;Nakajima, K.;Nakatsuka, S.;Shiren, K.;Ni, J.;Nomura, S.;Ikuta, T.;Hatakeyama, T. One-Step Borylation of 1,3-Diaryloxybenzenes Towards Efficient Materials for Organic Light-Emitting Diodes. *Angewandte Chemie International Edition* **54**, 13581-13585 (2015).
- [15] Chen, W.-C.;Lee, C.-S.;Tong, Q.-X. Blue-emitting organic electrofluorescence materials: progress and prospective. *Journal of Materials Chemistry C* **3**, 10957-10963 (2015).
- [16] Zhang, Q.;Li, B.;Huang, S.;Nomura, H.;Tanaka, H.;Adachi, C. Efficient blue organic light-emitting diodes employing thermally activated delayed fluorescence. *Nature Photonics* **8**, 326-332 (2014).
- [17] Kondo, Y.;Yoshiura, K.;Kitera, S.;Nishi, H.;Oda, S.;Gotoh, H.;Sasada, Y.;Yanai, M.;Hatakeyama, T. Narrowband deep-blue organic light-emitting diode featuring an organoboron-based emitter. *Nature Photonics* **13**, 678-682 (2019).
- [18] Kumar, A.;Shin, H. Y.;Lee, T.;Jung, J.;Jung, B. J.;Lee, M. H. Doubly Boron-Doped TADF Emitters Decorated with ortho-Donor Groups for Highly Efficient Green to Red OLEDs. *Chemistry – A European Journal* **26**, 16793-16801 (2020).
- [19] Chen, Z.-P.;Wang, D.-Q.;Zhang, M.;Wang, K.;Shi, Y.-Z.;Chen, J.-X.;Tao, W.-W.;Zheng, C.-J.;Tao, S.-L.;Zhang, X.-H. Optimization on Molecular Restriction for Highly Efficient Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitters. *Advanced Optical Materials* **6**, 1800935 (2018).
- [20] Zhou, D.;Ryoo, C. H.;Liu, D.;Wang, S.;Qian, G.;Zheng, Y.;Park, S. Y.;Zhu, W.;Wang, Y. Cruciform Molecules Bearing Bis(phenylsulfonyl)benzene Moieties for High-Efficiency Solution Processable OLEDs: When Thermally Activated Delayed Fluorescence Meets Mechanochromic Luminescence. *Advanced Optical Materials* **8**, 1901021 (2020).
- [21] Wu, K.;Zhang, T.;Zhan, L.;Zhong, C.;Gong, S.;Jiang, N.;Lu, Z.-H.;Yang, C. Optimizing Optoelectronic Properties of Pyrimidine-Based TADF Emitters by Changing the Substituent for Organic Light-Emitting Diodes with External Quantum Efficiency Close to 25 % and Slow Efficiency Roll-Off. *Chemistry – A European Journal* **22**, 10860-10866 (2016).

- [22] Hu, D.;Zhu, M.;Shi, C.;Yuan, W.;Sun, N.;Huang, B.Tao, Y. Manipulating peripheral non-conjugated substituents in carbazole/oxadiazole hybrid TADF emitters towards high-efficiency OLEDs. *Journal of Materials Chemistry C* **9**, 13384-13391 (2021).
- [23] Ahn, D. H.;Kim, S. W.;Lee, H.;Ko, I. J.;Karthik, D.;Lee, J. Y.Kwon, J. H. Highly efficient blue thermally activated delayed fluorescence emitters based on symmetrical and rigid oxygen-bridged boron acceptors. *Nature Photonics* **13**, 540-546 (2019).
- [24] Liang, J.;Li, C.;Zhuang, X.;Ye, K.;Liu, Y.Wang, Y. Novel Blue Bipolar Thermally Activated Delayed Fluorescence Material as Host Emitter for High-Efficiency Hybrid Warm-White OLEDs with Stable High Color-Rendering Index. *Advanced Functional Materials* **28**, 1707002 (2018).
- [25] Kim, J. H.;Lee, D. R.;Han, S. H.Lee, J. Y. Over 20% external quantum efficiency in red thermally activated delayed fluorescence organic light-emitting diodes using a reverse intersystem crossing activating host. *Journal of Materials Chemistry C* **6**, 5363-5368 (2018).
- [26] Tao, Y.;Yuan, K.;Chen, T.;Xu, P.;Li, H.;Chen, R.;Zheng, C.;Zhang, L.Huang, W. Thermally Activated Delayed Fluorescence Materials Towards the Breakthrough of Organoelectronics. *Advanced Materials* **26**, 7931-7958 (2014).
- [27] Masui, K.;Nakanotani, H.Adachi, C. Analysis of exciton annihilation in high-efficiency sky-blue organic light-emitting diodes with thermally activated delayed fluorescence. *Organic Electronics* **14**, 2721-2726 (2013).
- [28] Karthik, D.;Jung, Y. H.;Lee, H.;Hwang, S.;Seo, B.-M.;Kim, J.-Y.;Han, C. W.Kwon, J. H. Acceptor–Donor–Acceptor-Type Orange–Red Thermally Activated Delayed Fluorescence Materials Realizing External Quantum Efficiency Over 30% with Low Efficiency Roll-Off. *Advanced Materials* **33**, 2007724 (2021).
- [29] Naqvi, B. A.;Schmid, M.;Crovini, E.;Sahay, P.;Naujoks, T.;Rodella, F.;Zhang, Z.;Strohriegl, P.;Bräse, S.;Zysman-Colman, E.Brütting, W. What Controls the Orientation of TADF Emitters? *Frontiers in Chemistry* **8** (2020).
- [30] Song, J.;Kim, K.-H.;Kim, E.;Moon, C.-K.;Kim, Y.-H.;Kim, J.-J.Yoo, S. Lensfree OLEDs with over 50% external quantum efficiency via external scattering and horizontally oriented emitters. *Nature Communications* **9**, 3207 (2018).
- [31] Komino, T.;Nomura, H.;Koyanagi, T.Adachi, C. Suppression of Efficiency Roll-Off Characteristics in Thermally Activated Delayed Fluorescence Based Organic Light-Emitting Diodes Using Randomly Oriented Host Molecules. *Chemistry of Materials* **25**, 3038-3047 (2013).
- [32] Nayak, A.;Panda, A. R.;Pal, D.;Jana, S.Mishra, M. K. in *2023 OITS International*

- Conference on Information Technology (OCIT).* 732-737.
- [33] Varoquaux, G.;Cheplygina, V. Machine learning for medical imaging: methodological failures and recommendations for the future. *npj Digital Medicine* **5**, 48 (2022).
- [34] Ghoddusi, H.;Creamer, G. G.;Rafizadeh, N. Machine learning in energy economics and finance: A review. *Energy Economics* **81**, 709-727 (2019).
- [35] Kim, J.-M.;Lee, K. H.;Lee, J. Y. Extracting Polaron Recombination from Electroluminescence in Organic Light-Emitting Diodes by Artificial Intelligence. *Advanced Materials* **35**, 2209953 (2023).
- [36] Yan, W.;Lin, S.;Kafka, O. L.;Yu, C.;Liu, Z.;Lian, Y.;Wolff, S.;Cao, J.;Wagner, G. J.;Liu, W. K. Modeling process-structure-property relationships for additive manufacturing. *Frontiers of Mechanical Engineering* **13**, 482-492 (2018).
- [37] Gomez-Bombarelli, R.;Aguilera-Iparraguirre, J.;Hirzel, T. D.;Duvenaud, D.;Maclaurin, D.;Blood-Forsythe, M. A.;Chae, H. S.;Einzinger, M.;Ha, D. G.;Wu, T.;Markopoulos, G.;Jeon, S.;Kang, H.;Miyazaki, H.;Numata, M.;Kim, S.;Huang, W.;Hong, S. I.;Baldo, M.;Adams, R. P.;Aspuru-Guzik, A. Design of efficient molecular organic light-emitting diodes by a high-throughput virtual screening and experimental approach. *Nat Mater* **15**, 1120-1127 (2016).
- [38] Lee, M.-H. Identification of host–guest systems in green TADF-based OLEDs with energy level matching based on a machine-learning study. *Physical Chemistry Chemical Physics* **22**, 16378-16386 (2020).
- [39] Shi, H.;Jing, W.;Liu, W.;Li, Y.;Li, Z.;Qiao, B.;Zhao, S.;Xu, Z.;Song, D. Key Factors Governing the External Quantum Efficiency of Thermally Activated Delayed Fluorescence Organic Light-Emitting Devices: Evidence from Machine Learning. *ACS Omega* **7**, 7893-7900 (2022).
- [40] Li, P.;Wang, Z.;Li, W.;Yuan, J.;Chen, R. Design of Thermally Activated Delayed Fluorescence Materials with High Intersystem Crossing Efficiencies by Machine Learning-Assisted Virtual Screening. *J Phys Chem Lett* **13**, 9910-9918 (2022).
- [41] Friedman, J. H. Greedy function approximation: A gradient boosting machine. *Annals of Statistics* **29**, 1189-1232 (2001).
- [42] Rogers, D.;Hahn, M. Extended-Connectivity Fingerprints. *Journal of Chemical Information and Modeling* **50**, 742-754 (2010).
- [43] Yang, L.;Shami, A. On hyperparameter optimization of machine learning algorithms: Theory and practice. *Neurocomputing* **415**, 295-316 (2020).
- [44] Yu, Y.;Tan, X.;Ning, S.;Wu, Y. Machine Learning for Understanding Compatibility of Organic–Inorganic Hybrid Perovskites with Post-Treatment Amines. *ACS Energy Letters* **4**, 397-404 (2019).
- [45] Hu, J.;Zhu, K.;Cheng, S.;Kovalchuk, N. M.;Soulsby, A.;Simmons, M. J. H.;Matar,

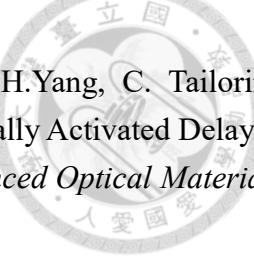
- O. K.Arcucci, R. Explainable AI models for predicting drop coalescence in microfluidics device. *Chemical Engineering Journal* **481**, 148465 (2024).
- [46] Im, J.;Lee, S.;Ko, T.-W.;Kim, H. W.;Hyon, Y.Chang, H. Identifying Pb-free perovskites for solar cells by machine learning. *npj Computational Materials* **5**, 37 (2019).
- [47] Lundberg, S. M.Lee, S.-I. in Proceedings of the 31st International Conference on Neural Information Processing Systems 4768–4777 (Curran Associates Inc., Long Beach, California, USA, 2017).
- [48] Adachi, C. Third-generation organic electroluminescence materials. *Japanese Journal of Applied Physics* **53**, 060101 (2014).
- [49] Yang, T.;Liang, J.;Cui, Y.;Li, Z.;Peng, X.;Su, S.-J.;Wang, Y.Li, C. Achieving 34.3% External Quantum Efficiency for Red Thermally Activated Delayed Fluorescence Organic Light-Emitting Diode by Molecular Isomer Engineering. *Advanced Optical Materials* **11**, 2201191 (2023).
- [50] Bui, T.-T.;Goubard, F.;Ibrahim-Ouali, M.;Gigmes, D.Dumur, F. Recent advances on organic blue thermally activated delayed fluorescence (TADF) emitters for organic light-emitting diodes (OLEDs). *Beilstein Journal of Organic Chemistry* **14**, 282-308 (2018).
- [51] Madayanad Suresh, S.;Hall, D.;Beljonne, D.;Olivier, Y.Zysman-Colman, E. Multiresonant Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitters Based on Heteroatom-Doped Nanographenes: Recent Advances and Prospects for Organic Light-Emitting Diodes. *Advanced Functional Materials* **30**, 1908677 (2020).
- [52] Yang, M.;Shikita, S.;Min, H.;Park, I. S.;Shibata, H.;Amanokura, N.Yasuda, T. Wide-Range Color Tuning of Narrowband Emission in Multi-resonance Organoboron Delayed Fluorescence Materials through Rational Imine/Amine Functionalization. *Angewandte Chemie International Edition* **60**, 23142-23147 (2021).
- [53] Liu, F.;Cheng, Z.;Jiang, Y.;Gao, L.;Liu, H.;Liu, H.;Feng, Z.;Lu, P.Yang, W. Highly Efficient Asymmetric Multiple Resonance Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitter with EQE of 32.8 % and Extremely Low Efficiency Roll-Off. *Angewandte Chemie International Edition* **61**, e202116927 (2022).
- [54] Oda, S.;Kawakami, B.;Kawasumi, R.;Okita, R.Hatakeyama, T. Multiple Resonance Effect-Induced Sky-Blue Thermally Activated Delayed Fluorescence with a Narrow Emission Band. *Organic Letters* **21**, 9311-9314 (2019).
- [55] Xu, S.;Yang, Q.;Zhang, Y.;Li, H.;Xue, Q.;Xie, G.;Gu, M.;Jin, J.;Huang, L.Chen, R. Solution-processed multi-resonance organic light-emitting diodes with high efficiency and narrowband emission. *Chinese Chemical Letters* **32**, 1372-1376 (2021).

- [56] Matsuo, K.;Yasuda, T. Boronate- and borinate-based π -systems for blue thermally activated delayed fluorescence materials. *Chemical Communications* **55**, 2501-2504 (2019).
- [57] Nasu, K.;Nakagawa, T.;Nomura, H.;Lin, C.-J.;Cheng, C.-H.;Tseng, M.-R.;Yasuda, T.;Adachi, C. A highly luminescent spiro-anthracenone-based organic light-emitting diode exhibiting thermally activated delayed fluorescence. *Chemical Communications* **49**, 10385-10387 (2013).
- [58] Gan, L.;Xu, Z.;Wang, Z.;Li, B.;Li, W.;Cai, X.;Liu, K.;Liang, Q.;Su, S.-J. Utilizing a Spiro TADF Moiety as a Functional Electron Donor in TADF Molecular Design toward Efficient “Multichannel” Reverse Intersystem Crossing. *Advanced Functional Materials* **29**, 1808088 (2019).
- [59] Huang, Z.;Lei, B.;Yang, D.;Ma, D.;Bin, Z.;You, J. Modified Intramolecular-Lock Strategy Enables Efficient Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitters for Non-Doped OLEDs. *Angewandte Chemie International Edition* **61**, e202213157 (2022).
- [60] Wu, L.;Wang, K.;Wang, C.;Fan, X.-C.;Shi, Y.-Z.;Zhang, X.;Zhang, S.-L.;Ye, J.;Zheng, C.-J.;Li, Y.-Q.;Yu, J.;Ou, X.-M.;Zhang, X.-H. Using fluorene to lock electronically active moieties in thermally activated delayed fluorescence emitters for high-performance non-doped organic light-emitting diodes with suppressed roll-off. *Chemical Science* **12**, 1495-1502 (2021).
- [61] Yang, D.;Huh, J.-S.;Hong, J.-I. Spiro-type TADF emitters based on acridine donors and anthracenone acceptor. *Dyes and Pigments* **197**, 109873 (2022).
- [62] Wang, Y.-Y.;Tong, K.-N.;Zhang, K.;Lu, C.-H.;Chen, X.;Liang, J.-X.;Wang, C.-K.;Wu, C.-C.;Fung, M.-K.;Fan, J. Positive impact of chromophore flexibility on the efficiency of red thermally activated delayed fluorescence materials. *Materials Horizons* **8**, 1297-1303 (2021).
- [63] Zhang, Y.-L.;Ran, Q.;Wang, Q.;Liu, Y.;Hänisch, C.;Reineke, S.;Fan, J.;Liao, L.-S. High-Efficiency Red Organic Light-Emitting Diodes with External Quantum Efficiency Close to 30% Based on a Novel Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitter. *Advanced Materials* **31**, 1902368 (2019).
- [64] Jiang, R.;Wu, X.;Liu, H.;Guo, J.;Zou, D.;Zhao, Z.;Tang, B. Z. High-Performance Orange-Red Organic Light-Emitting Diodes with External Quantum Efficiencies Reaching 33.5% based on Carbonyl-Containing Delayed Fluorescence Molecules. *Advanced Science* **9**, 2104435 (2022).
- [65] Maeng, J. H.;Braveenth, R.;Jung, Y. H.;Hwang, S. J.;Lee, H.;Min, H. L.;Kim, J. Y.;Han, C. W.;Kwon, J. H. Efficiency enhancement in orange red thermally activated delayed fluorescence OLEDs by using a rigid di-indolocarbazole donor moiety. *Dyes and Pigments* **194**, 109580 (2021).

- [66] Ji, S.-C.;Zhao, T.;Wei, Z.;Meng, L.;Tao, X.-D.;Yang, M.;Chen, X.-L.Lu, C.-Z. Manipulating excited states via Lock/Unlock strategy for realizing efficient thermally activated delayed fluorescence emitters. *Chemical Engineering Journal* **435**, 134868 (2022).
- [67] Data, P.;Zassowski, P.;Lapkowski, M.;Grazulevicius, J. V.;Kukhta, N. A.Reghu, R. R. Electrochromic behaviour of triazine based ambipolar compounds. *Electrochimica Acta* **192**, 283-295 (2016).
- [68] Zhang, W.;Zhu, C.;Huang, Z.;Gong, C.;Tang, Q.Fu, X. Electrochromic 2,4,6-triphenyl-1,3,5-triazine based esters with electron donor-acceptor structure. *Organic Electronics* **67**, 302-310 (2019).
- [69] Varga, Z.;Müller, C.Nyulászi, L. Significant π -stacking effect between 2,4,6-triphenyl-1-phosphabzenes. *Structural Chemistry* **28**, 1243-1253 (2017).
- [70] Kang, Y. J.;Yun, J. H.;Han, S. H.Lee, J. Y. Benzofuroacridine and benzothienoacridine as new donor moieties for emission color management of thermally activated delayed fluorescent emitters. *Journal of Materials Chemistry C* **7**, 4573-4580 (2019).
- [71] Lee, Y.;Woo, S.-J.;Kim, J.-J.Hong, J.-I. Blue thermally activated delayed fluorescence emitter using modulated triazines as electron acceptors. *Dyes and Pigments* **172**, 107864 (2020).
- [72] Lim, J.;Choi, D.-Y.;Jang, W.;Choi, H.-H.;Kim, Y.-H.Wang, D. H. Tris(4-(1-phenyl-1H-benzo[d]imidazole)phenyl)phosphine oxide for enhanced mobility and restricted traps in photovoltaic interlayers. *Journal of Materials Chemistry C* **9**, 3642-3651 (2021).
- [73] Kuroiwa, T.;Asai, D.;Hashimoto, S.Tahara, K. Linear π -conjugated polycyclic compounds consisting of four-, five-, and six-membered rings: benzo[1",2":3,4;4",5":3',4']bis(cyclobuta[1,2-c]thiophene). *RSC Advances* **13**, 4578-4583 (2023).
- [74] Kim, J. U.;Reddy, S. S.;Cui, L.-S.;Nomura, H.;Hwang, S.;Kim, D. H.;Nakanotani, H.;Jin, S. H.Adachi, C. Thermally activated delayed fluorescence of Bis(9,9-dimethyl-9,10-dihydroacridine) dibenzo[b,d]thiophene 5,5-dioxide derivatives for organic light-emitting diodes. *Journal of Luminescence* **190**, 485-491 (2017).
- [75] Kong, J.;Zhang, W.;Zhang, X.;Liu, B.;Li, Y.Xia, A. Conformation-related excited-state charge transfer/separation of donor- π -acceptor chromophores. *The Journal of Chemical Physics* **156**, 174902 (2022).
- [76] Bibi, S.Zhang, J. The ratio and topology effects of benzodithiophene donor-benzoxadiazole acceptor fragments on the optoelectronic properties of donor molecules toward solar cell materials. *Phys Chem Chem Phys* **17**, 7986-7999 (2015).

- [77] Wei, X.;Li, Z.;Hu, T.;Duan, R.;Liu, J.;Wang, R.;Liu, Y.;Hu, X.;Yi, Y.;Wang, P.Wang, Y. Substitution Conformation Balances the Oscillator Strength and Singlet–Triplet Energy Gap for Highly Efficient D–A–D Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitters. *Advanced Optical Materials* **7**, 1801767 (2019).
- [78] Tanaka, H.;Shizu, K.;Miyazaki, H.Adachi, C. Efficient green thermally activated delayed fluorescence (TADF) from a phenoxazine–triphenyltriazine (PXZ–TRZ) derivative. *Chemical Communications* **48**, 11392-11394 (2012).
- [79] Lee, Y.-T.;Tseng, P.-C.;Komino, T.;Mamada, M.;Ortiz, R. J.;Leung, M.-k.;Chiu, T.-L.;Lin, C.-F.;Lee, J.-H.;Adachi, C.;Chen, C.-T.Chen, C.-T. Simple Molecular-Engineering Approach for Enhancing Orientation and Outcoupling Efficiency of Thermally Activated Delayed Fluorescent Emitters without Red-Shifting Emission. *ACS Applied Materials & Interfaces* **10**, 43842-43849 (2018).
- [80] Yuan, W.;Yang, H.;Zhang, M.;Hu, D.;Wan, S.;Li, Z.;Shi, C.;Sun, N.;Tao, Y.Huang, W. Molecular engineering on all ortho-linked carbazole/oxadiazole hybrids toward highly-efficient thermally activated delayed fluorescence materials in OLEDs. *Chinese Chemical Letters* **30**, 1955-1958 (2019).
- [81] Zhao, T.;Jiang, S.;Tao, X.-D.;Yang, M.;Meng, L.;Chen, X.-L.Lu, C.-Z. Dihydrophenazine-derived thermally activated delayed fluorescence emitters for highly efficient orange and red organic light-emitting diodes. *Dyes and Pigments* **211**, 111065 (2023).
- [82] Feng, Q.;Qian, Y.;Wang, H.;Hou, W.;Peng, X.;Xie, S.;Wang, S.Xie, L. Donor Arylmethylation toward Horizontally Oriented TADF Emitters for Efficient Electroluminescence with 37% External Quantum Efficiency. *Advanced Optical Materials* **10**, 2102441 (2022).
- [83] Nakao, K.;Sasabe, H.;Komatsu, R.;Hayasaka, Y.;Ohsawa, T.Kido, J. Significant Enhancement of Blue OLED Performances through Molecular Engineering of Pyrimidine-Based Emitter. *Advanced Optical Materials* **5**, 1600843 (2017).
- [84] Qiu, W.;Liu, D.;Li, M.;Cai, X.;Chen, Z.;He, Y.;Liang, B.;Peng, X.;Qiao, Z.;Chen, J.;Li, W.;Pu, J.;Xie, W.;Wang, Z.;Li, D.;Gan, Y.;Jiao, Y.;Gu, Q.Su, S.-J. Confining donor conformation distributions for efficient thermally activated delayed fluorescence with fast spin-flipping. *Nature Communications* **14**, 2564 (2023).
- [85] Cho, Y. J.;Yook, K. S.Lee, J. Y. High Efficiency in a Solution-Processed Thermally Activated Delayed-Fluorescence Device Using a Delayed-Fluorescence Emitting Material with Improved Solubility. *Advanced Materials* **26**, 6642-6646 (2014).
- [86] Turro, N. J. *Modern Molecular Photochemistry*. (University Science Books, 1991).
- [87] Hao, X.-L.;Ren, A.-M.;Zhou, L.Zhang, H. Theoretical Research and

- Photodynamic Simulation of Aggregation-Induced Thermally Activated Delayed Fluorescence Materials for Organic Light-Emitting Diodes. *The Journal of Physical Chemistry A* **127**, 9771-9780 (2023).
- [88] Wu, Y.;Ni, F.;Chen, Z.;Yang, W.;Xiang, Y.;Gong, S.;Cao, X.Yang, C. Aggregation-Dependent Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitters: AIE or ACQ? *Advanced Optical Materials* **11**, 2300186 (2023).
- [89] Li, L.;Kamal, S.;Polgar, A. M.Hudson, Z. M. Triplet–Triplet Annihilation Upconversion from Red to Blue Light Using a TADF Sensitizer Based Polymer. *The Journal of Physical Chemistry B* **128**, 8997-9004 (2024).
- [90] Lee, H. L.;Jeon, S. O.;Kim, I.;Kim, S. C.;Lim, J.;Kim, J.;Park, S.;Chwae, J.;Son, W.-J.;Choi, H.Lee, J. Y. Multiple-Resonance Extension and Spin-Vibronic-Coupling-Based Narrowband Blue Organic Fluorescence Emitters with Over 30% Quantum Efficiency. *Advanced Materials* **34**, 2202464 (2022).
- [91] Lee, Y. H.;Lee, D.;Lee, T.;Lee, J.;Jung, J.;Yoo, S.Lee, M. H. Impact of boryl acceptors in para-acridine-appended triarylboron emitters on blue thermally activated delayed fluorescence OLEDs. *Dyes and Pigments* **188**, 109224 (2021).
- [92] Yun, J. H.;Lee, K. H.Lee, J. Y. Propeller type dibenzofurocarbazole as a new rigid donor moiety for highly efficient and long living thermally activated delayed fluorescence emitters. *Chemical Engineering Journal* **400**, 125940 (2020).
- [93] Dey, S.;Hasan, M.;Shukla, A.;Acharya, N.;Upadhyay, M.;Lo, S.-C.;Namdas, E. B.Ray, D. Thermally Activated Delayed Fluorescence and Room-Temperature Phosphorescence in Asymmetric Phenoxazine-Quinoline (D2–A) Conjugates and Dual Electroluminescence. *The Journal of Physical Chemistry C* **126**, 5649-5657 (2022).
- [94] Zhao, L.;Duan, C.;Ding, D.;Liu, S.;Xia, D.;Guo, Y.;Xu, H.Baumgarten, M. Super rigid tris-spirobifluorenes: Syntheses and properties. *Chinese Chemical Letters* **32**, 397-400 (2021).
- [95] Braveenth, R.;Lee, H.;Park, J. D.;Yang, K. J.;Hwang, S. J.;Naveen, K. R.;Lampande, R.Kwon, J. H. Achieving Narrow FWHM and High EQE Over 38% in Blue OLEDs Using Rigid Heteroatom-Based Deep Blue TADF Sensitized Host. *Advanced Functional Materials* **31**, 2105805 (2021).
- [96] Hwang, J.;Koh, C. W.;Ha, J. M.;Woo, H. Y.;Park, S.;Cho, M. J.Chi, D. H. Aryl-Annulated [3,2-a] Carbazole-Based Deep-Blue Soluble Emitters for High-Efficiency Solution-Processed Thermally Activated Delayed Fluorescence Organic Light-Emitting Diodes with CIEy <0.1. *ACS Applied Materials & Interfaces* **13**, 61454-61462 (2021).
- [97] Tu, Z.-L.;Lu, J.-J.;Luo, X.-F.;Hu, J.-J.;Li, S.;Wang, Y.;Zheng, Y.-X.;Zuo, J.-L.Pan, Y. Blue Axially Chiral Biphenyl Based Thermally Activated Delayed



- Fluorescence Materials for Efficient Circularly Polarized OLEDs. *Advanced Optical Materials* **9**, 2100596 (2021).
- [98] Wu, K.;Zhang, T.;Zhan, L.;Zhong, C.;Gong, S.;Lu, Z.-H.Yang, C. Tailoring Optoelectronic Properties of Phenanthroline-Based Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitters through Isomer Engineering. *Advanced Optical Materials* **4**, 1558-1566 (2016).
- [99] Xie, F.-M.;Li, H.-Z.;Zhang, K.;Wang, H.-Y.;Li, Y.-Q.Tang, J.-X. Rational Multidimensional Shielded Multiple Resonance Emitter Suppresses Concentration Quenching and Spectral Broadening for Solution-Processed Organic Light-Emitting Diodes. *ACS Applied Materials & Interfaces* **15**, 39669-39676 (2023).
- [100] Di, K.;Guo, R.;Wang, Y.;Lv, Y.;Su, H.;Zhang, Q.;Yang, B.Wang, L. Achieving high-performance narrowband blue MR-TADF emitters by suppressing isomer formation and extending π -conjugate skeletons. *Journal of Materials Chemistry C* **11**, 6429-6437 (2023).
- [101] Feng, Z.-Q.;Yang, S.-Y.;Kong, F.-C.;Qu, Y.-K.;Meng, X.-Y.;Yu, Y.-J.;Zhou, D.-Y.;Jiang, Z.-Q.Liao, L.-S. Indirect Control of Donor/Acceptor Interactions for Highly Efficient Space-Confining Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitters. *Advanced Functional Materials* **33**, 2209708 (2023).
- [102] Chen, J.-X.;Xiao, Y.-F.;Wang, K.;Sun, D.;Fan, X.-C.;Zhang, X.;Zhang, M.;Shi, Y.-Z.;Yu, J.;Geng, F.-X.;Lee, C.-S.Zhang, X.-H. Managing Locally Excited and Charge-Transfer Triplet States to Facilitate Up-Conversion in Red TADF Emitters That Are Available for Both Vacuum- and Solution-Processes. *Angewandte Chemie International Edition* **60**, 2478-2484 (2021).
- [103] Lee, Y. H.;Park, S.;Oh, J.;Shin, J. W.;Jung, J.;Yoo, S.Lee, M. H. Rigidity-Induced Delayed Fluorescence by Ortho Donor-Appended Triarylboron Compounds: Record-High Efficiency in Pure Blue Fluorescent Organic Light-Emitting Diodes. *ACS Applied Materials & Interfaces* **9**, 24035-24042 (2017).
- [104] Yi, C.-L.;Lin, C.-Y.;Tang, Y.;Wang, C.-Y.;Huang, C.-W.;Gong, X.;Gong, S.;Wu, C.-C.Wong, K.-T. A Rational Molecular Design Strategy of TADF Emitter for Achieving Device Efficiency Exceeding 36%. *Advanced Optical Materials* **10**, 2101791 (2022).
- [105] Jung, M.;Lee, K. H.Lee, J. Y. Molecular Engineering of Isomeric Benzofurocarbazole Donors for Photophysical Management of Thermally Activated Delayed Fluorescence Emitters. *Chemistry – A European Journal* **26**, 4816-4821 (2020).
- [106] Bian, C.;Wang, Q.;Ran, Q.;Liu, X.-Y.;Fan, J.Liao, L.-S. New carbazole-based bipolar hosts for efficient blue phosphorescent organic light-emitting diodes.

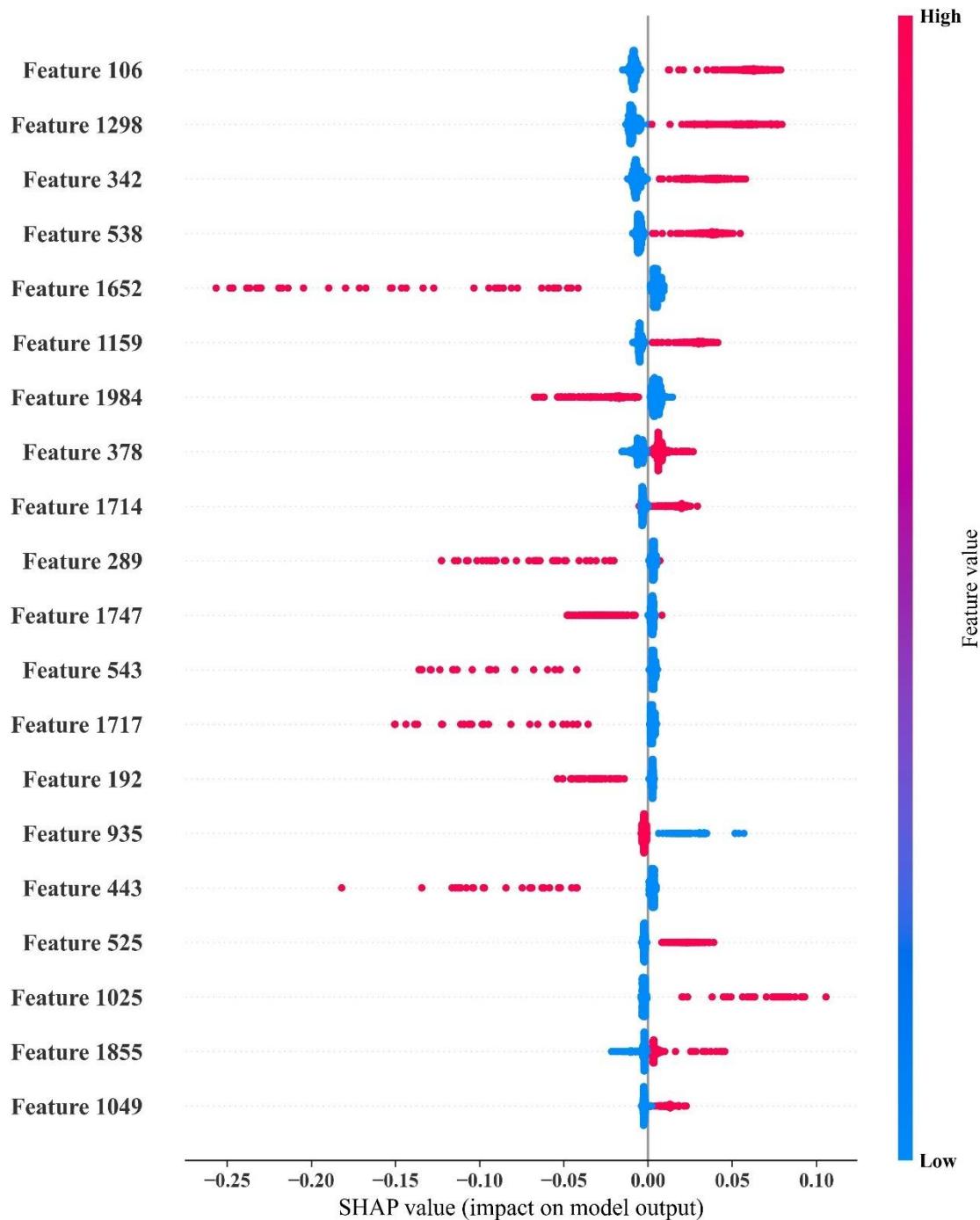
Organic Electronics **52**, 138-145 (2018).

- [107] Liang, Q.;Han, C.;Duan, C.Xu, H. Blue Thermally Activated Delayed Fluorescence-Emitting Phosphine Oxide Hosts for Ultrasimple and Highly Efficient White Organic Light-Emitting Diodes. *Advanced Optical Materials* **6**, 1800020 (2018).
- [108] Yang, Y.;Li, K.;Wang, C.;Zhan, H.Cheng, Y. Effect of a Pendant Acceptor on Thermally Activated Delayed Fluorescence Properties of Conjugated Polymers with Backbone-Donor/Pendant-Acceptor Architecture. *Chemistry – An Asian Journal* **14**, 574-581 (2019).
- [109] Wang, Y.;Zhu, Y.;Xie, G.;Zhan, H.;Yang, C.Cheng, Y. Bright white electroluminescence from a single polymer containing a thermally activated delayed fluorescence unit and a solution-processed orange OLED approaching 20% external quantum efficiency. *Journal of Materials Chemistry C* **5**, 10715-10720 (2017).
- [110] Kothavale, S.;Lee, K. H.Lee, J. Y. CN-Modified Imidazopyridine as a New Electron Accepting Unit of Thermally Activated Delayed Fluorescent Emitters. *Chemistry – A European Journal* **26**, 845-852 (2020).
- [111] Liu, Y.;Xiao, X.;Huang, Z.;Yang, D.;Ma, D.;Liu, J.;Lei, B.;Bin, Z.You, J. Space-Confining Donor-Acceptor Strategy Enables Fast Spin-Flip of Multiple Resonance Emitters for Suppressing Efficiency Roll-Off. *Angewandte Chemie International Edition* **61**, e202210210 (2022).
- [112] Lee, H. L.;Chung, W. J.Lee, J. Y. Selective efficiency boosting in thermally activated delayed fluorescence emitters by a secondary donor. *Chemical Engineering Journal* **408**, 127293 (2021).
- [113] Salehi, A.;Fu, X.;Shin, D.-H.So, F. Recent Advances in OLED Optical Design. *Advanced Functional Materials* **29**, 1808803 (2019).
- [114] Liu, M.;Komatsu, R.;Cai, X.;Hotta, K.;Sato, S.;Liu, K.;Chen, D.;Kato, Y.;Sasabe, H.;Ohisa, S.;Suzuri, Y.;Yokoyama, D.;Su, S.-J.Kido, J. Horizontally Orientated Sticklike Emitters: Enhancement of Intrinsic Out-Coupling Factor and Electroluminescence Performance. *Chemistry of Materials* **29**, 8630-8636 (2017).

附錄



(a)

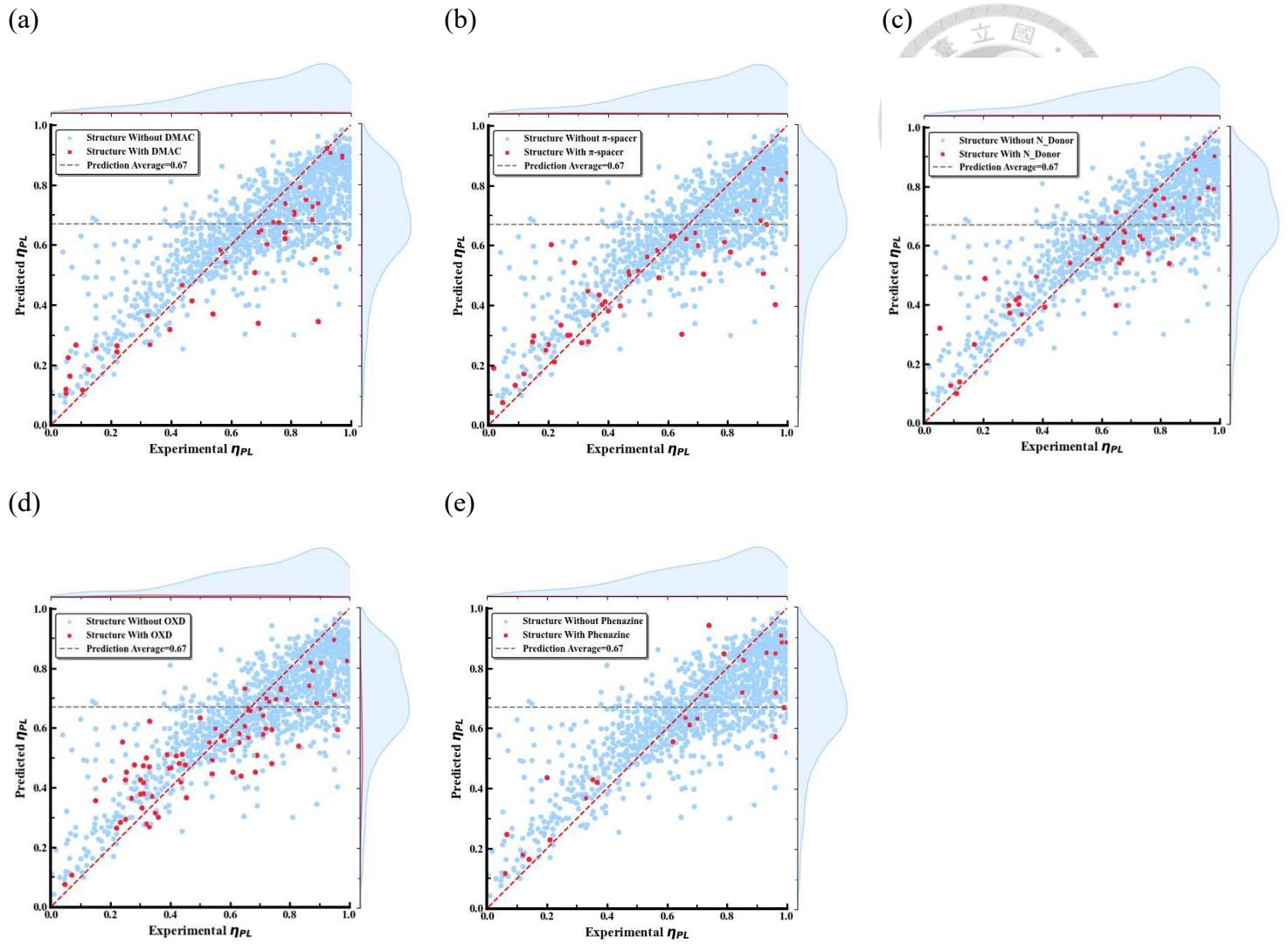


附件一 (a)模型使用 SHAP 所分析出前 20 名影響 η_{PL} 的關鍵結構片段，並根據重要性由上到下進行排序，其中紅點代表具有該片段；藍點則沒有該片段。

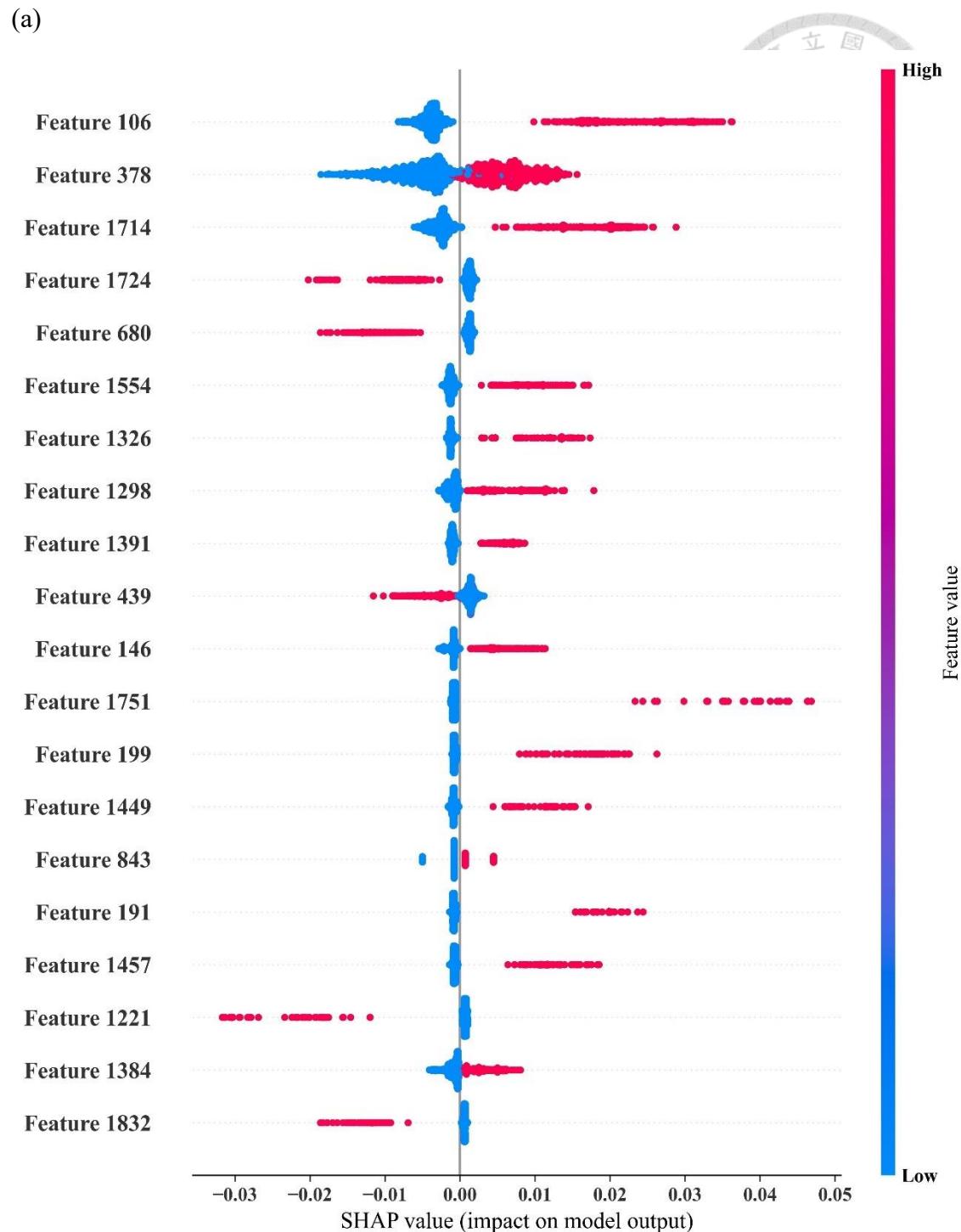
(b)

| | | | | |
|------|------|------|------|------|
| | | | | |
| 106 | 1298 | 342 | 538 | 1652 |
| | | | | |
| 1159 | 1984 | 378 | 1714 | 289 |
| | | | | |
| 1747 | 543 | 1717 | 192 | 935 |
| | | | | |
| 443 | 525 | 1025 | 1855 | 1049 |

附件一 (b) 模型使用 SHAP 所分析出前 20 名影響 η_{PL} 的關鍵結構片段之編號與示意圖。



附錄二 (a) 具有 DMAC、(b) π -spacer、(c)N_Donor、(d)OXD、(e)Phenazine 之 η_{PL}
實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛線為
預測值平均值。



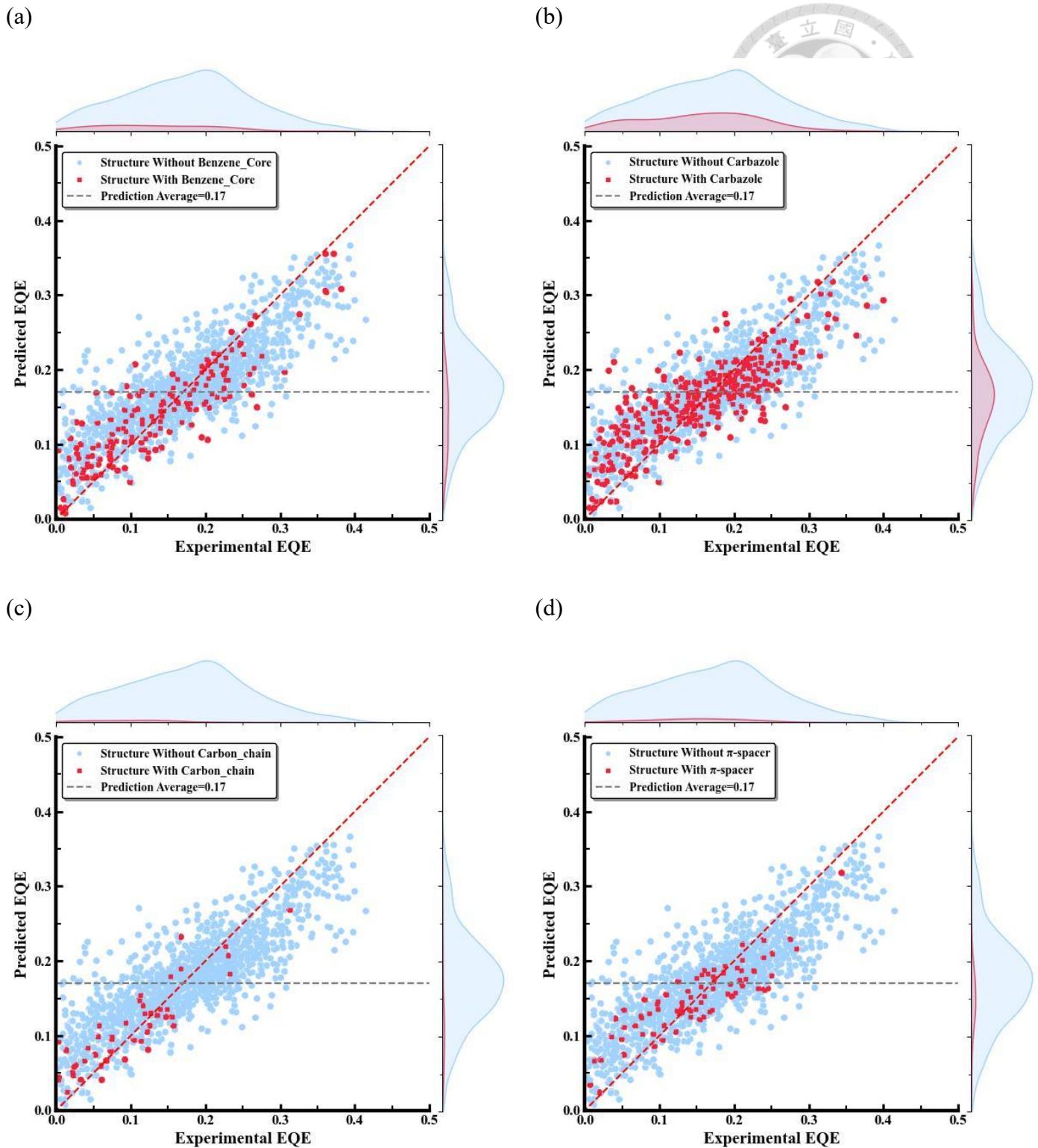
附件三 (a)模型使用 SHAP 所分析出前 20 名影響 EQE 的關鍵結構片段，並根據重要性由上到下進行排序，其中紅點代表具有該片段；藍點則沒有該片段。

(b)

| | | | | |
|------|------|------|------|------|
| | | | | |
| 106 | 378 | 1714 | 1724 | 680 |
| | | | | |
| 1554 | 1326 | 1298 | 1391 | 439 |
| | | | | |
| 146 | 1751 | 199 | 1449 | 843 |
| | | | | |
| 191 | 1457 | 1221 | 1384 | 1832 |

附件三 (b) 模型使用 SHAP 所分析出前 20 名影響 EQE 的關鍵結構片段之編號與

示意圖。



附錄四 (a) 具有 Benzene_Core、(b)Carbazole、(c) Carbon_chain 、(d) π -spacer 之
EQE 實驗與預測之散佈圖，紅點代表擁有該片段，藍點代表沒有該片段，灰色虛
線為預測值平均值。