Supplementary Information: Deep Learning Workflow for the Inverse Design of Molecules with Specific Optoelectronic Properties

Pilsun Yoo^{1*}, Debsindhu Bhowmik¹, Kshitij Mehta², Pei Zhang¹, Frank Liu², Massimiliano Lupo Pasini¹, Stephan Irle^{1*}

¹Computational Sciences and Engineering Division, Oak Ridge National Laboratory, 1 Bethel Valley Road, Oak Ridge, 37831, TN, USA.
²Computer Science and Mathematics Division, Oak Ridge National Laboratory, 1 Bethel Valley Road, Oak Ridge, 37831, TN, USA.

*Corresponding author(s). E-mail(s): yoop@ornl.gov; irles@ornl.gov; Contributing authors: bhowmikd@ornl.gov; mehtakv@ornl.gov; zhangp1@ornl.gov; liufy@ornl.gov; lupopasinim@ornl.gov;

1 Supplementary data for small HOMO-LUMO gap

1.1 Generated molecules at each iteration

We provide the number of molecules in Table 2 in the main text which are generated from the iterative process. The following figures demonstrate the molecular structures and their DFTB HL gaps for each dataset (GEN-1~GEN-6) with HL gap less than 0.98 eV. The molecules at each iteration are unique and have different structures without common factor of substructures. We observe that various molecules are uniquely generated by MLM which are listed in Figure S1~S6 with their DFTB HL gap satisfying the chemical validity. The screened data is collected with unique cases with molecules containing 5-membered rings, 6-membered rings or alkane chains.

) 0.74 eV 0.82 eV 0.93 eV 0.93 eV 0.94 eV

Fig. S1 Molecular structure and DFTB HL gap at GEN-1

- 0 -	~~8	Ingo Page	Ŷ	000	ಯಾ	C 5°	ϕ - ∞	ኇዏ	C	00	Ŷ	8-9	~omy	~2
0.70 eV	0.70 eV	0.73 eV	0.74 eV	0.74 eV	0.75 eV	0.75 eV	0.75 eV	0.77 eV	0.78 eV	0.80 eV	0.80 eV	0.82 eV	0.83 eV	0.84 eV
مرجم	00	-	882	S-	eb.	80	5-D	0.0	<u>8</u> -8	αà	đ	0		
0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.89 eV	0.90 eV	0.92 eV	0.93 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.95 eV		

Fig. S2 Molecular structure and DFTB HL gap at GEN-2 $\,$

င္နာ	ಹೆ	-00-	~	-63	000	00	and 5	200	Q	000	Ŷ	∞	50	005
0.67 eV	0.69 eV	0.71 eV	0.73 eV	0.74 eV	0.74 eV	0.74 eV	0.75 eV	0.75 eV	0.75 eV	0.77 eV	0.81 eV	0.81 eV	0.82 eV	0.83 eV
88	مم	8-8	Ŷ	00	0000	$\sim c$	~00	£,	B	محمح	80	287	Bro	र्द्ध
0.83 eV	0.83 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.88 eV
000	ago	qto	<u>&</u> -0	quès	án	S.	Ŷ	000-	∞	S-	ൾ	<u>.</u>	ᢓᠬᡘᠣ	ano
0.88 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.93 eV	0.93 eV
£.	S	\sim	<u>م</u> مر	-00-	05-00	-Q5-	0000	Sing						
0.93 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV						

Fig. S3 Molecular structure and DFTB HL gap at GEN-3 $\,$

ᡩ᠊ᡘᢩᡐ	89	جمح	\bigcirc	8	&	oqa	3	ga~~	දර්	db	℃	0,000	603	00
0.67 eV	0.68 eV	0.69 eV	0.69 eV	0.70 eV	0.71 eV	0.73 eV	0.73 eV	0.74 eV	0.74 eV	0.78 eV	0.80 eV	0.80 eV	0.81 eV	0.81 eV
90	00	<u></u> १२~-२	\mathcal{C}	ð	als	00	ගරි		que	07	యార	ogno	00	రార
0.81 eV	0.81 eV	0.82 eV	0.82 eV	0.82 eV	0.83 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.85 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV
~∞	ano	d'	000	çç	∞	~&	S.O.	00	\bigcirc	00	∞	च्दी	0,00	00
0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV
$\sim c_{r}$	0. <u>6</u> -	$\sim \sim$	8	\$20	প'থ	ත්	00	200	∞	gnip	\bigcirc	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	d:	∽%
0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV
Cs	~00	Ŷ	δ	00~20	9.2	<u>0</u> 0	Ś	-20-	&	0.0	~ co	60	6	50
0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV
a g	000	000	°℃	∞	સ્ટુર									
0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.95 eV									

Fig. S4 $\,$ Molecular structure and DFTB HL gap at GEN-4 $\,$

ార్గం	ഗ~ഗ	08	ංදිය	ዮዏ	00	. (So r	œ	Ŷ	. 46	8	o o	ኇ፞፞ኇ	ಯೂ	∞0-
0.67 eV	0.67 eV	0.68 eV	0.68 eV	0.69 eV	0.69 eV	0.69 eV	0.70 eV	0.70 eV	0.71 eV	0.71 eV	0.72 eV	0.73 eV	0.73 eV	0.73 eV
- 6 8	<u> </u>	ά°α,	Çœ	ഹുന	ಞ	0-05-	<i>ф</i> ~	\bigcirc	8	Ŷ	soft	00	<u>~~</u>	60
0.73 eV	0.74 eV	0.74 eV	0.75 eV	0.75 eV	0.75 eV	0.76 eV	0.76 eV	0.76 eV	0.76 eV	0.76 eV	0.77 eV	0.77 eV	0.78 eV	0.79 eV
₋ ዶ-ጽ	\$	ممكر	لمسلم	ónio	ondo	000-	Sun	S-	0,0	5	stop	<u> የ~</u> ዊ	oco	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~
0.79 eV	0.79 eV	0.80 eV	0.80 eV	0.81 eV	0.81 eV	0.82 eV	0.82 eV	0.83 eV	0.83 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV
$\alpha \gamma \rho$	- 0 0	and	8	8-00	00	ಯ	۵۵۲-	œ	¢¢	4 20,	ಸ್ತು	00~	ගිා	చి~
0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV
000	്റ	ዮጵ	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	<u>,</u>	∞ ∕	ςbo	00	ಯ್	کر	oð~	လုံာ	00~	\bigcirc	දර්ත
0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV
or Qr	0 0	0.0	Sr.	\$~	\$~~	رک ک	రార	୍ଦିତ	Q	000	000	రాళ	400	8
0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV
gon	<u>-</u> 9-05	00	ŝ	ත්ද~	~ ~~	'O 2ª	୍ୟୁ	٩œ	<u>م</u> ۍ	ccor	a ^R a	00	00	ap
0.88 eV	0.88 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.90 eV
αŶ	ୖୣୢ	ു	% ~	యానం	204	6.0	\bigcirc	928	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	Q~~Q	~ço	00	00~	ත්
0.90 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.90 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV
сç,	∞	op ~~	¢Q4-	d'n	&~~	\$ ~ \$	જ્ર	ъÇ	06	୍ୟୁ	50	Q.J	ኇ፞፞፞፞፞፞፞	<u>~</u> c
0.91 eV	0.91 eV	0.91 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.92 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.93 eV	0.93 eV
orno	a.p.	00	\$~p	500	\$~	opin	ዮ	6 4	00 ~~	~~~~ço	ారిం	↔	<u> </u>	\bigcirc
0.93 eV	0.93 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV	0.94 eV
-0-0		8	مر کې	00	محجرر	00-	~~00	\$	amio	<u>∽</u> ≁	- Surge			
0.94 eV	0.94 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV	0.95 eV			

Fig. S5 Molecular structure and DFTB HL gap at GEN-5 $\,$

3	ह्रद्	Çor	05	ф.	ζφ.	æ	RS		<u>्</u> कृ-दि	√ 33	CO.	000	ogra	2 5
0.67 eV	0.68 eV	0.69 eV	0.69 eV	0.69 eV	0.69 eV	0.70 eV	0.70 eV	0.70 eV	0.70 eV	0.70 eV	0.71 eV	0.71 eV	0.71 eV	0.71 eV
<u>৫~</u> .৪	ಯಾ	odio	\$~ \$	ංරි	roint	Cad	ссон.	<u> </u>	ço	ංරිය	80	-හිත	<i>a</i> g	0
0.71 eV	0.71 eV	0.71 eV	0.72 eV	0.72 eV	0.73 eV	0.73 eV	0.73 eV	0.73 eV	0.74 eV	0.74 eV	0.74 eV	0.74 eV	0.75 eV	0.76 eV
<u>6</u>	84	00	యరారి	∞ ∽	ಯ	S.	2 gras	ŝ	S.O	ક્રેઝ	\bigcirc	'00'	°Cs	∞
0.76 eV	0.76 eV	0.76 eV	0.77 eV	0.77 eV	0.77 eV	0.77 eV	0.77 eV	0.77 eV	0.77 eV	0.78 eV	0.78 eV	0.78 eV	0.78 eV	0.78 eV
Cs	_م کې	8 6	ራ	800	<u>~</u> \$	SS-	005	. 0%	ර්	-86	-80	'Q2ª	<u>~0</u> 2°	Ŷ
0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.79 eV	0.80 eV	0.80 eV	0.80 eV	0.80 eV
00-0	~ 6 00	84	000	ፖሌ	00	8-8	3-6	∞	\bigcirc	యరారి	رمم نۍ	Ŷ	000	᠈ᠹ᠂ᡐ
0.80 eV	0.80 eV	0.80 eV	0.81 eV	0.81 eV	0.81 eV	0.81 eV	0.81 eV	0.82 eV	0.82 eV	0.82 eV	0.82 eV	0.82 eV	0.82 eV	0.82 eV
004	ಹೆ	200	50	مشم	Q	℃ ≻	~2	5×.	00	ŝ	œ	\$°~\$	0	80
0.83 eV	0.83 eV	0.83 eV	0.83 eV	0.83 eV	0.83 eV	0.83 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.84 eV	0.85 eV
CC ⁴	0 <u>0</u> 20	~~~~~	م ن	00	9-00	000-	~ ? ?	<u>0</u> 49	ð	\$~~	ත්ර	00-	، ح	oco
0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV
005	₽-	800	<u>-</u>	00~	00~~	oom	ang	00	3	-çç-	9-000	৵৵	600	∞ }`
0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.86 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV	0.87 eV
<u> </u>	00	ر گ	ත්	<u>~</u> Co	<u>م ب</u> ی	$\mathbf{\hat{v}}$	ත්ද~	COSC.	2,00	~~~&~	г.	&	C 25~	ಯಂ
0.87 eV	0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV	• ℃ 0.88 eV	QQQ 0.88 eV	0.85 eV	0.85 eV	0.88 eV	9-700 0.88 eV	0.88 eV	0.88 eV	& 0.89 eV	0.89 eV	0.89 eV
087 eV	-0-0 0.88 eV -0	0.88 eV	දරි. **** ඉදුරු	~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~~	€, ¢¢ 088 eV	`√℃ ***	ත්ද~ **** දැද	کہ ک ی ۵88 ev	₽~~∞ ^{088 eV}	088.6V 088.6V	088 ev 088 ev	යි~~~ *** දේදීර	000 0.89 eV	ංාත ***
0.87 eV 0.87 eV 0.50	0.88 eV 0.88 eV 0.89 eV	0.88 eV 0.88 eV 0.40-	යරි. 0.88 eV ඉදාරි 0.89 eV	0.88 eV	0.88 eV 0.88 eV 0.59 eV	088 eV 089 eV 089 eV	می دون ۵.88 eV می ک	088 eV 088 eV 000000000000000000000000000000000000	9	0.88 eV 0.88 eV 0.89 eV	0.88 eV 0.88 eV 0.00 eV	0.89 eV 0.89 eV 0.90 eV	0.89 eV 0.90 eV	0.89 eV 0.89 eV eCr 0.90 eV
089 eV	රිදාර 0.88 eV - රි 0.89 eV 0.89 eV	میں۔ ۵.85 eV ۵.40 - ۵.89 eV	දරි- 088 eV දිටරි 089 eV දෙදුදු		€_€C) 0.88 eV 	088 eV 686 eV 089 eV	ත්රිදුන 088 eV ලැදි 089 eV	088 eV 088 eV 000000000000000000000000000000000000	<u>д</u> , со 0.88 eV Ост 0.59 eV	0.85 eV 0.85 eV 0.85 eV	0.88 eV 0.88 eV 0.90 eV 0.90 eV	ی ۵89 «۷ م90 «۷ م90 «۷	0.89 eV 0.90 eV 0.90 eV	0.89 eV 0.89 eV 0.90 eV 0.90 eV
087 eV 087 eV 0 20 089 eV 020 eV	- C+C+ 0.88 eV - C+C+ 0.89 eV C+C+C+ 0.90 eV	۲۰۹۵ میں ۵۶۵ میں ۵۶۵ میں ۲۰۹۵ میں	ංකි 0.88 eV දිපති 0.89 eV දෙකි 0.90 eV	0.58 eV 0.58 eV 000 eV 000 eV	0.88 eV 0.88 eV 0.59 eV 0.89 eV 0.99 eV	0.88 eV ∂54 0.89 eV ~~~~~ 0.91 eV	2000 eV 0.88 eV 0.89 eV 0.89 eV 0.89 eV 0.91 eV	0.88 eV 0.88 eV 0.89 eV 0.89 eV	<u>у</u> росо 088 ev Содат 0.59 ev уДр 0.91 ev	0.88 eV 0.88 eV 0.89 eV 0.89 eV 0.91 eV	کی ۵.88 «۷ مریب ۵.90 «۷ میک	ی ۵.89 «۷ م ۵.90 «۷ م ۵.90 «۷ م ۵.91 «۷	0.89 eV 0.90 eV 0.90 eV 0.90 eV 0.91 eV	0.89 eV 0.99 eV 0.90 eV 0.90 eV 0.91 eV
000 eV 000 eV	0.88 eV 	0.55 eV 0.55 eV 0.59 eV 0.59 eV 0.90 eV	လို- 0.88 ev လူသိ 0.89 ev လူသိ 0.90 ev	, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	€, € 0.85 eV € 0.89 eV € 0.91 eV	م دهه وبر م دهه وبر م دهه وبر م دهه وبر م دهم وبر م دهم وبر م دهم وبر م دهم وبر م دهم وبر م دمه وبر م دمه وبر م دمه وبر م م م م م م م م م م م م م م م م م م م	کی۔ ۵۸۶ ev ۵۸۶ ev ۵۸۶ ev ۵۸۶ ev ۵۹۶ ev	0.88 eV 0.88 eV 0.89 eV 0.89 eV 0.91 eV 0.91 eV	буура 088 еv Ост 059 ev уСу 091 ev 001 ev	0.88 eV 0.88 eV 0.99 eV 0.99 eV 0.91 eV 0.91 eV	0.88 eV 0.90 eV 0.90 eV 0.91 eV 0.91 eV	0.89 eV 0.89 eV 0.90 eV 0.90 eV 0.90 eV 0.91 eV 0.91 eV 0.90 eV	0.89 eV 0.90 eV 0.90 eV 0.91 eV	0.89 eV 65 0.99 eV 0.99 eV 0.99 eV 0.91 eV
0.55 eV 0.55 eV 0.55 eV 0.55 eV 0.55 eV 0.55 eV 0.55 eV	 ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓ ↓	C C	ебс 0.88 ег РСО 0.59 ег ОСС 0.50 ег 0.50 ег сор 0.51 ег	 ↓ ↓	€~¢€ 0.88.4V 0.09.4V 0.99.4V 0.91.4V €€ 0.92.4V	0.55 eV 0.55 eV 0.57 eV 0.57 eV 0.57 eV 0.57 eV 0.57 eV 0.57 eV 0.57 eV	کی۔ ۵.88 eV ۵.89 eV ۵.89 eV ۵.91 eV	000 eV 0.88 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV	9 088 еV ОДО 089 eV ОДО 091 eV 091 eV 092 eV	0.88 eV 0.89 eV 0.09 eV 0.91 eV 0.91 eV 0.92 eV	0.88 eV 0.50 eV 0.50 eV 0.50 eV 0.91 eV 0.52 eV	۲۰۰۰ ۲۰۰۰ ۲۰۰۰ ۲۰۰۰ ۲۰۰۰ ۲۰۰۰ ۲۰۰۰ ۲۰۰	089 eV 099 eV 091 eV 091 eV	0.39 eV 20 0.39 eV 0.30 eV 0.31 eV 0.31 eV
000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV	0.00 eV 0.00 eV 0.00 eV 0.00 eV 0.00 eV 0.00 eV 0.01 eV	کی کہ ۵.85 ev ۵.95 ev ۵.95 ev ۵.95 ev ۵.95 ev ۵.95 ev ۵.95 ev	 √23 ∞∞ <li< td=""><td></td><td>€</td><td>000 eV 000 e</td><td>الله الله الله الله الله الله الله الله</td><td>000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV</td><td>0254 02540 02540 02240 02240</td><td></td><td>کی معہد معہد معدد معدد</td><td></td><td>000 eV 000 eV</td><td>0.05 eV 0.09 eV 000 eV 000 eV 001 eV 002 eV 002 eV 002 eV</td></li<>		€	000 eV 000 e	الله الله الله الله الله الله الله الله	000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV	0254 02540 02540 02240 02240		کی معہد معہد معدد معدد		000 eV 000 eV	0.05 eV 0.09 eV 000 eV 000 eV 001 eV 002 eV 002 eV 002 eV
000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV	 ↓ ↓	000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV	ев- 2000 ч Суд 2000 ч Суб 2000 ч Суб 2000 ч 2000 ч 2000 ч 2000 ч 2000 ч 2000 ч 2000 ч		€ , , , , , , , , , ,		کریا ۵88 ۲۷ ۵۶۶ ۲۷ ۵۶۶ ۲۷ ۵۶۲ ۲۷ ۵۶۲ ۲۷		алин алин алин алин алин алин алин алин		۲۹۲۵ ۲۹۳۵ ۲۹۳۵ ۲۹۳۵ ۲۹۳۵ ۲۹۳۵ ۲۹۳۵ ۲۹۳۵	2000 et al a construir a const	0.00 eV 0.00 eV 0.01 eV 0.01 eV 0.01 eV 0.01 eV	0.00 eV 0.00 eV 0.00 eV 0.01 eV 0.02 eV 0.02 eV 0.03 eV
0174 0174 0204 0204 0204 0204 0204 0204 0204 02	ل المعالي المعالي معالي معالي معالي معالي معالي معالي معالي معالي معالي معالي المعالي المعالي المعالي المعالي المعالي المعالي المعالي المعالي المعالي معالي معالي معالي معالي معال معالي معالي المعالي المعالي المعالي المعالي المعالي معالي		с с с с с с с с с с с с с с	Image: Construction Image: Construction	 ∞ ∞		کریا ۵۵۶ ۲۷ ۵۵۶ ۲۷ ۵۵۶ ۲۷ ۵۵۶ ۲۷ ۵۵۶ ۲۷ ۵۵۶ ۲۷		озен озен озен озен озен озен озен озен		۲ ۵۵۵ ۳۸ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲ ۲	2000	000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV 000 eV	0.00 eV 0.00 eV 0.01 eV 0.02 eV 0.02 eV 0.03 eV 0.03 eV 0.05 eV
012 eV 022 eV 020 eV 020 eV 021 eV 021 eV 021 eV 021 eV 021 eV 021 eV			000 ev		000 m 6 6 6 6 6 6 6 6 6 6 7 6 6 7 6 7 6 7 6 7 7 7 7 7 7 7 7 7 7 7 7 7		کریا ۵۵۵ ۲۷ ۵۵۵ ۲۷ ۵۵۷ ۲۷ ۵۵۷ ۲۷ ۵۵۷ ۲۷ ۵۵۷ ۲۷		000 M 000 M 00		۲۵۲۰ ۲ ۵۱۳ ۲ ۵۲ ۲ ۵۲ ۲ ۵۲ ۲ ۵۲ ۲ ۵۲ ۲ ۵۲ ۲ ۵۲ ۲ ۵	2000 eV 2000 eV 2000 eV 000 eV 0000 eV 000 eV 00		0.00 eV 0.00 eV 0.01 eV 0.02 eV 0.02 eV 0.03 eV 0.03 eV 0.03 eV
Q → 100 → 100			руст, б сол ч сол ч со сол ч со сол ч со со со со со со со со со со со со со		、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、					, , , , , , , , , , , , , , , , , , ,	000 m 000 m 0000 m 0000 m 000 m 000 m 000 m 000 m 000 m 000 m			222 233 4V 25 031 4V 25 032 4V 25 033 4V 25 034 4V 25 55 034 4V 25 55
														کی ۵.00 + V کی ۵.00 + V کی ۵.00 + V کی ۵.00 + V ۲ ۲
000 H 000 H 00					 → √ → √									کی ۵.000 + V'

Fig. S6 Molecular structure and DFTB HL gap at GEN-6 $\,$

2 Supplementary data for Large HOMO-LUMO gap

In the main text and result, we conducted the iteration to generate and test small HL gap molecules. The same process can be utilized to generate large HL gap. The following data is consistently the number of data for each iteration, the parity plots for each dataset, the distribution of HL gap from GEN-1 to GEN-6 as well as GDB-9 data collecting the large HL gap molecules. The molecular structures in Figure S9 were collected with molecules for HL gap > 14.58 eV.

2.1 The number of molecules

Iteration	DB name	Train data	Generated data	New Train / Test data
0	GDB-9	95,735	N/A	N/A
1	GEN-1	158,060	99,844	62,324 / 37,520
2	GEN-2	167,020	99,999	8,960 / 91,039
3	GEN-3	$175,\!689$	99,999	8,669 / 91,330
4	GEN-4	183,920	99,999	8,231 / 91,768
5	GEN-5	191,121	99,999	7,201 / 92,798
6	GEN-6	199,284	99,999	8,163 / 91,836

 ${\bf Table \ S1} \ \ {\rm The \ number \ of \ molecules \ at \ each \ iteration \ for \ low \ HLG \ deep \ learning.}$



Fig. S7 Parity plots for GDB-9 (A) and iterations 1 to 6 (C,E,G,I,K,M) of High HL gap design. Error plots between surrogate models and DFTB predictions for each dataset (B,D,F,H,J,L,N) (colored points for the Surrogate5 prediction and gray points for the Surrogate0 prediction). Surrogate5 is trained with GDB-9 and GEN-1 \sim GEN-5 dataset. MAE1 and MAE2 values in each plot are corresponding to the prediction errors of the Surrogate0 and Surrogate5, respectively.



 ${\bf Fig.~S8} \ \ {\rm Distribution~and~density~of~molecules~generated~in~iterations~for~DFTB~HOMO-LUMO~Gap~prediction.}$



 ${\bf Fig. \ S9} \ \ {\rm Molecules \ generated \ for \ large \ HOMO-LUMO \ gap.}$