

平成 29 年 6 月 14 日現在

機関番号：15101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26400318

研究課題名(和文) 超大規模超並列電子状態理論による100ナノスケール系デバイス研究

研究課題名(英文) One-hundred-nanometer scale device research based on massively parallel electronic state theory

研究代表者

星 健夫 (HOSHI, TAKEO)

鳥取大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：80272384

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：Internet of Things (IoT)の主役となるウルトラフレキシブル(ウェアラブル)デバイスを出口として、有機デバイス材料系の100ナノメートルスケール(世界最大)量子計算を実現した。主な成果として、有機高分子集合体の電気伝導メカニズムが解明された。独自の超並列数値手法を用いて、「京」コンピュータ全体を使った計算を行なった。数理学分野・スーパーコンピュータ分野での受賞、開発されたソフトウェアELSESES(<http://www.elses.jp/>)の産業利用、など、多方面に波及した。

研究成果の概要(英文)：One-hundred-nanometer scale (largest) quantum simulations were realized for organic device materials so as to design ultra-flexible (wearable) devices that plays an essential role in Internet of Things (IoT). As a main result, the transport mechanism of condensed organic polymer was revealed. The simulations were carried out on the full system of the K computer with original massively parallel numerical algorithms. Our activity spread to many fields, such as awards in applied mathematics and supercomputing, industrial use of the developed simulation software ELSESES(<http://www.elses.jp/>).

研究分野：計算物性物理学

キーワード：大規模電子状態計算 フレキシブルデバイス 有機高分子集合体 超並列計算 京コンピュータ オーダーN法 波束ダイナミクス データ科学

1. 研究開始当初の背景

Internet of Things (IoT)の主演となるフレキシブル (ウェアラブル) デバイス材料設計を出口として、有機デバイス材料系の大規模計算をめざした。

フレキシブルデバイスの例としては、「巻き取れるディスプレイ」(ソニー)や「貼るディスプレイ・センサー」(東大)があげられる。シリコンなどの無機材料と異なり、原子構造がフレキシブルな(柔らかい)物質である。構造の乱雑さ(disorder)が、デバイス特性に大きな影響をもつ。電子状態計算(電子を波として扱う量子力学的理論)に基づく原子レベルからの物質設計が必須だが、従来法では扱えない、100nm スケールの大規模系が必要となる。

2. 研究の目的

これまで開発してきた電子状態計算コード ELSESES (その他[8]) (=Extra Large Scale Electronic Structure calculation)を理論拡張し、100 ナノメートルスケール系でのデバイス研究に発展させる。Internet of Things(IoT)の中核を担う有機フレキシブルデバイス材料設計を主目的とする。第一原理から実デバイスへの架け橋となる理論手法の構築を目的とした。さらに、産業展開として、「京」コンピュータ産業利用プロジェクトへのコード提供も目指した。

3. 研究の方法

「京」コンピュータなどのスーパーコンピュータむけの超並列数値アルゴリズムを基盤として、(1)大規模電子状態計算(量子分子動力学計算)、および、(2)波束ダイナミクスを用いた量子電気伝導計算、を実現した。研究の進展にともない、(3)データ科学との融合研究も行なった。(4)波及効果もあった。基盤的数値アルゴリズムからコード作成までが完全にオリジナルな、オンリーワン技術である。

4. 研究成果

(1) 超並列数値アルゴリズム構築と「京」全体までの高並列効率達成

「京」コンピュータなどのスーパーコンピュータむけに、2種の超並列数値アルゴリズムの構築を行い、「京」コンピュータ全体までの高い並列効率を得た(雑誌論文[1-3])。アルゴリズムは、疎行列むけ解法(シフト型クリロフ部分空間解法)(雑誌論文[1])、および、最適複合型密行列型解法(雑誌論文[1])、の2種に取り組んだ。両者は補完的に用いることを想定している。

図1の通り、「京」コンピュータ全体までに対する、非常に高い並列効率(強スケーリング特性)を示した(雑誌論文[1])。

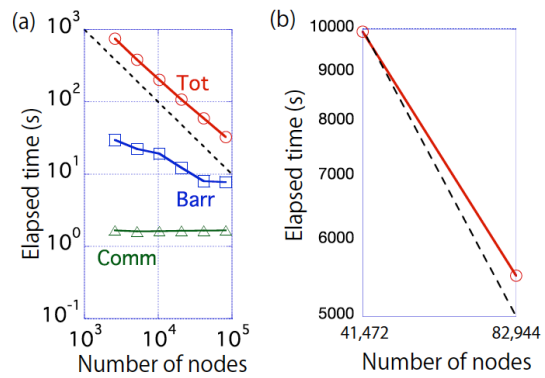


図1 「京」コンピュータ全体までの高並列効率(強スケーリング特性)ベンチマーク(雑誌論文[1])。理想的な並列効率を点線で示した。(a) シフト型クリロフ部分空間理論による、1億原子系(100 ナノメートルスケール)の有機高分子 (poly-(phenylene-ethynylene), PPE) 集合体計算。計算時間全体(Tot), バリア時間(Barr),通信時間(Comm)、を、経過時間として描画した。(b) 最適複合型密行列型解法における実対称一般化固有値問題。世界最大となる100万次元行列計算。

(2) 有機高分子集合体での大規模電子状態計算と波束ダイナミクス計算

(1)の大規模計算手法を基盤として、有機高分子集合体での大規模電子状態計算、および、波束ダイナミクス計算に取り組んだ(雑誌論文[1,2])。

波束ダイナミクス法は、原子運動(量子分子動力学法)と電子波ダイナミクス運動を連立させた、独自の時間発展計算手法である。電子はダイナミクスでは、(主にホール)波束 $\psi(\mathbf{r}, t)$ に対して有効的時間依存型シュレディンガー方程式( $\partial_t \psi = -i\hbar H\psi$ )を解く。

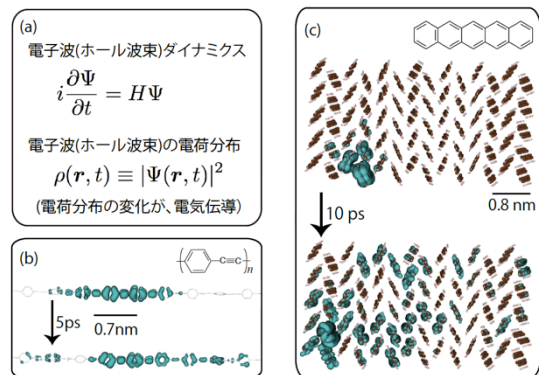


図2 (a) 電子波(波束)ダイナミクスにおける数式の概要。(b) 有機高分子鎖である直線型 PPE における、電子波ダイナミクスの例(雑誌論文[2])。電荷分布を描画。図は系の一部。(c) 有機低分子ペンタセン薄膜(1原子層)における、電子波ダイナミクスの例(雑誌論文[2])。

図 2 に波束ダイナミクス法の概要と結果例を示した(雑誌論文[2])。特に高分子系においては、構造の違う 2 種の有機高分子(直線型・ジグザグ型)PPE について、デバイス性能値(モビリティ値)の違いを、定量的に再現した。波束ダイナミクス法は、バリスティック型・拡散型の 2 種量子伝導機構を再現できるため、有機材料研究では必須である。従来は、分子を格子点と扱う、低分子結晶系の格子モデル研究があったが、分子内自由度が大きい高分子系への適用で困難であった。原子運動と組み合わせた非理想構造高分子系計算は、本研究が初めてであり、我々の大規模計算の大きな成果といえる。

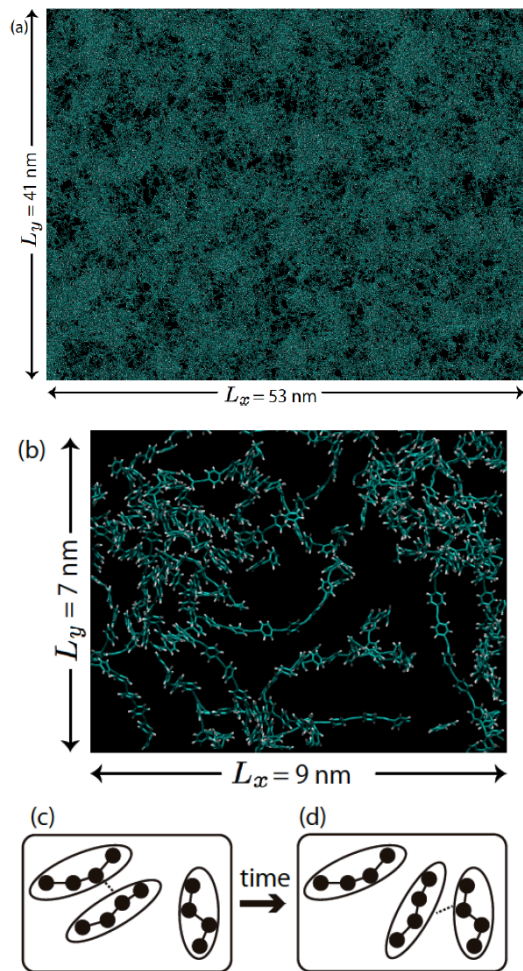


図 3 (a) (b) 1 億原子からなる有機高分子(PPE)集合体計算の一部領域を可視化(雑誌論文[1])。計算系全体は、 $265\text{nm} \times 206\text{nm} \times 239\text{nm}$  の周期セル系。(c)(d) 伝導機構の概念図：動的に変わる、小規模なポリマーネットワーク。

研究のハイライトとして、実行可能最大サイズ(世界最大サイズ)である 1 億原子系を用いて、有機高分子集合体の量子電気伝導メカ

ニズムを解明した(雑誌論文[1])。図 3(a)(b)に、計算系の一部を示す。局所グリーン関数を用いて分子間伝導を抽出し、解析した。得られた結果をもとに提示した伝導メカニズムは、「小規模な動的な高分子ネットワークを介して伝導する」というものであり、図 3(c)(d)に概念図を示した。得られた小規模高分子ネットワークに対して、電子波ダイナミクス計算を行い、高分子間を電子波が伝搬することが確認された。図 4 に典型的なネットワーク系として、3 本の高分子鎖からなる系の電子波ダイナミクス計算を示す。

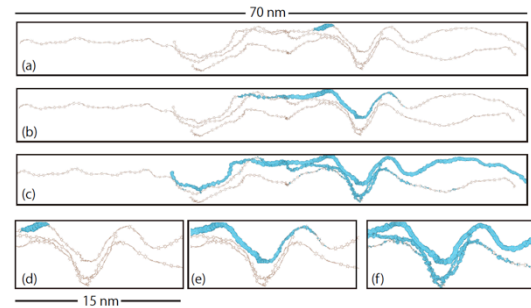


図 4 有機高分子(PPE)集合体における電子波ダイナミクス(雑誌論文[1])。電子波(ホール型波束)の電荷分布を時刻(a)  $t=0$ 、(b)  $t=50\text{fs}$ 、(c)  $t=948\text{fs}$  でそれぞれ可視化。図(d)(e)(f)は、それぞれ、図(a)(b)(c)の拡大図。

### (3) データ科学との融合研究

研究の進展にともない、データ科学との融合研究も行なった(学会発表[1,6])。直接の目的は、波束ダイナミクス計算にたいするプレスクリーニングである。波束ダイナミクス計算は実時間発展(1-10ps スケール)のために数万回程度の反復計算が必要で、「京」を用いたとしても、多数サンプル系のすべてに対して波束ダイナミクスを実行するのは計算量の点から現実的でない。そこで、サンプル構造に対して静的計算を行い、「有望」な系のみをダイナミクス計算にかけることが戦略である。

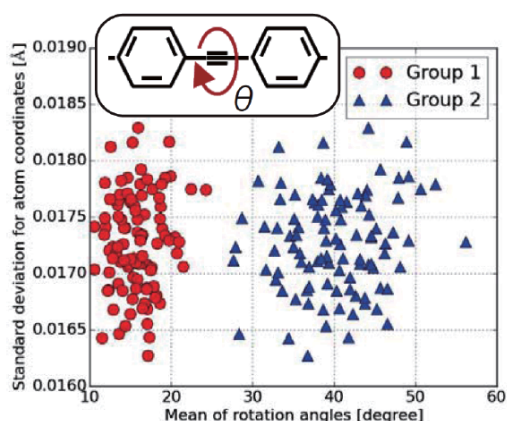


図5 大規模電子状態計算とデータ科学の融合研究：Participation Ratio を用いた非理想構造有機高分子系の分類問題(学会発表[1,6])。

図5に予備的結果を示す(学会発表[1,6])(井町宏、博士論文、鳥取大学、2017年3月)。電子状態計算から抽出したParticipation Ratio (電子波の空間的広がり(の尺度))を用いて、分類問題に取り組んだ。一般にParticipation Ratio 値が低いと、波動関数が局在しており、電導性が悪くなる。標準的な分類手法である、k-means クラスタリングアルゴリズムを用いている。対象となった有機高分子 PPE 系(直線型)においては、ベンゼン環同士の回転角(2面体角)(図5内図の $\theta$ )が、伝導を支配する $\pi$ 型電子波動関数の局在性に重要な影響をあたえ、これに着目してプレスクリーニングが可能であることが示された。

#### (4) 波及効果

本研究は、スーパーコンピュータ分野最大の国際会議 SC16 における超並列計算ワークショップ(ScalA16)の口頭発表に選出された他、多方面に波及した。疎行列むけ数値アルゴリズム研究は日本応用数学会での受賞(その他[5])につながった。研究は物質科学と数理科学の融合研究であり、発展内容についての研究会も企画した(その他[6])。「京」コンピュータ全体を使った研究は、計算科学分野の受賞(その他[2])・記者発表(その他[3])・研究紹介記事掲載(その他[1])につながった。高分子研究としても注目され、高分子学会主催の記者発表(その他[4])も行なわれた。産業展開としては、住友化学による京コンピュータ産業利用課題(hp160087,星は参加者)に用いられている。

開発したプログラムのうち、汎用性が高い2種ルーチンは、独立したプログラムとして公開した(その他[9,10])。1つめ(その他[9])は、Fortran を用いた一般化固有値問題の最適複合型超配列解法で、EigenKernel と名付けた。2つめ(その他[10])は、Python を用いた並列処理型波束可視化ツールであり、

VisBAR と名付けた。さらに、数理系研究者への研究題材提供を目的として、本研究にあらわれる疎行列データをオープンデータライブラリとして公開した(その他[11])。

人材育成としては、研究代表者(星)が指導教員となっていた博士後期課程学生井町宏人氏(H29年4月より Preferred Networks Inc.)が本研究全体の主要な研究協力者であり、2017年3月学位論文を出版した(H. Imachi, D. Thesis, Numerical Methods for Large-scale Quantum Material Simulations, Tottori University, Mar. 2017)。

#### 5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計3件)

[1] T. Hoshi, H. Imachi, K. Kumahata, M. Terai, K. Miyamoto, K. Minami and F. Shoji, 'Extremely scalable algorithm for  $10^8$ -atom quantum material simulation on the full system of the K computer', Proc. ScalA16 in SC16, pp. 33-40, (2016)、査読有。[DOI:10.1109/ScalA.2016.9]

[2] H. Imachi, S. Yokoyama, T. Kaji, Y. Abe, T. Tada, T. Hoshi, 'One-hundred-nm-scale electronic structure and transport calculations of organic polymers on the K computer', AIP Conf. Proc. 1790, 020010, 4pp. (2016)、査読有。[DOI:10.1063/1.4968636]

[3] H. Imachi and T. Hoshi, 'Hybrid numerical solvers for massively parallel eigenvalue computation and their benchmark with electronic structure calculations', J. Inf. Process. 24, pp. 164 - 172 (2016)、査読有。[DOI:10.2197/ipsjjip.24.164]

[学会発表] (計18件)

[1] 星健夫、井町宏、大平健太郎、福島孝治、Y. M. Tsai, W. Wang, '有機高分子デバイス材料に対する機械学習型探索'、2017年3月17-20日、日本物理学会年会、大阪大学豊中キャンパス、大阪府豊中市。

[2] 星健夫、安部友樹也、大平健太郎、藤田貴敏、川田修太郎、望月祐志、'フラグメント分子軌道法を用いたペプチド系の励起子ダイナミクス計算'、2017年3月14-17日、日本応用物理学会学術講演会、パシフィコ横浜、神奈川県横浜市。

[3] 星健夫、井町宏、藤田貴敏、川田修太郎、望月祐志、'フラグメント分子軌道法を基盤とする励起子ダイナミクス計算'、2016年12月6-7日、第2回 CDMSI (ポスト「京」重点課題(7))シンポジウム~次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成~、東京大学物性研究所、千葉県柏市。

[4] 星健夫、'100nm スケール有機デバイス材料研究と数理'、2016年11月28-29日、研究会「計算物質科学における時空間アップ

スケーリングと数値手法」、電気通信大学、東京都調布市。

[5] T. Hoshi、H. Imachi、'One-hundred-nanometer-scale electronic state and transport calculations of organic device material on the K computer', The 19th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations、31. Oct.-2. Nov.、2016、Hsinchu、Taiwan。

[6] H. Imachi、Y. M. Tsai、T. Hoshi、W. Wang、'A data scientific research on organic polymer device materials', 31. Oct.-2. Nov.、2016、The 19th Asian Workshop on First-Principles Electronic Structure Calculations、Hsinchu、Taiwan。

[7] 星健夫、井町宏人、'高分子有機半導体の100ナノスケール電子状態計算'、領域7シンポジウム、2016年9月13-16日、日本物理学会、「有機半導体の柔らかい固体物理に対する計算科学と実験の最前線」、金沢大学、石川県金沢市。

[8] 井町宏人、星健夫、'京コンピュータを用いた有機高分子凝集体の100ナノスケール量子伝導シミュレーション'、2016年9月13-16日、日本応用物理学会学術講演会、朱鷺メッセ、新潟県新潟市。

[9] 星健夫、井町宏人、'基盤的超並列計算アルゴリズムの開発'、第1回ポスト「京」重点課題(7)研究会「次世代の産業を支える新機能デバイス・高性能材料の創成」、2016年7月21-22日、東京大学、東京都文京区。

[10] T. Hoshi、'100M atom electronic structure calculation of organic device materials on full system of K Computer', ISC2016 High Performance、2016年6月19-23日、Frankfurt、Germany。

[11] T. Hoshi、'Massively parallel electronic structure calculations and transport property of organic materials', Computational Chemistry Symposium of 12th International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering (ICCMSE 2016)、17-20、Mar.、2016、Athens、Greece。

[12] H. Imachi and T. Hoshi、'Quantum wave-packet dynamics simulation solvers and their performance on Oakleaf-FX10', 21th Advanced Supercomputing Environment (ASE) Seminar、2.、Dec.、2015、University of Tokyo、Tokyo。

[13] T. Hoshi and H. Imachi、'Novel Krylov-subspace solver of generalized shifted linear equations for massively parallel quantum material simulations', The International Congress on Industrial and Applied Mathematics (ICIAM2015)、Aug 10-14、2015、Beijing、China。

[14] H. Imachi and T. Hoshi、'Parallel

generalized eigenvalue computation with hybrid solvers and their benchmark on supercomputers', The International Congress on Industrial and Applied Mathematics (ICIAM2015)、Aug 10-14、2015、Beijing、China。

[15] 星健夫、井町宏人、'「京」での1億原子電子状態計算～物質科学と数理科学の接点として～'、第3回CMSI人材育成シンポジウム「応用数理と計算科学の連携II」、2015年1月15日、大阪大学、大阪府豊中市。

[16] T. Hoshi and H. Imachi、'Krylov subspace theories and one-hundred-million-atom electronic structure calculations on the K computer', International Symposium on Computing Quantum Simulation and Design (ISC-QSD-2014)、1-3、Dec.、2014、University of Tokyo、Tokyo。

[17] 星健夫、横山誠也、'超大規模電子状態理論による有機材料シミュレーション'、2014年9月17-20日、日本応用物理学会、北海道大学、北海道札幌市。

[18] 横山誠也、山崎溪太、星健夫、'Pythonによる電子状態計算むけ統合型可視化ソフトの開発'、2014年7月26日、応用物理学会中国四国支部合同学術講演会、香川大学、香川県高松市。

〔図書〕(計0件)

〔産業財産権〕(計0件)

〔その他〕

[1] (出版物への掲載) 星健夫、「物質中を走る電子の波を『京』で探る」、高度情報科学技術研究機構(RIST)、「『京』を中核とするHPCI利用研究課題成果事例集IV」、2017年1月。

[2] (受賞) 星健夫、HPCI利用研究平成27年度優秀成果賞「有機デバイス材料系の100ナノスケール電子状態計算」、2016年10月21日。

[3] (記者発表) 星健夫、「物質中を走る電子の波～「京」でのものづくり～」、「京」を中核とするHPCIシステム利用研究課題成果に関する記者勉強会、2016年10月14日、文部科学省、東京。

[4] (記者発表) 星健夫、「高分子上を走る電子の波～京スーパーコンピュータで目指す、21世紀のものづくり～」、2015年11月16日、高分子学会、東京都中央区。

[5] (受賞) 星健夫、「厳密な物理的保存則を持つクリロフ部分空間解法の構築」、日本応用数理学会2015年研究部会連合発表会優秀講演賞、2015年6月19日。

[6] (研究会企画) 研究会「計算物質科学における時空間アップスケーリングと数値手法」、2016年11月28-29日、電気通信大学、東京都調布市、企画: 山本有作、星健夫、松尾宇

泰。

URL:

<http://coop-math.ism.ac.jp/report/show/2016W11>

[7] (研究代表者ホームページ)

<http://www.damp.tottori-u.ac.jp/~hoshi/>

[8] (成果物ソフトウェア URL) ELSESES:

<http://www.elses.jp/>

[9] (成果物ソフトウェア URL) EigenKernel:

<https://github.com/eigenkernel/>

[10] (成果物ソフトウェア URL) VisBAR:

<https://github.com/visbar/>

[11] (成果物オープンデータライブラリ URL) ELSESES matrix library:

<http://www.elses.jp/matrix/>

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

星 健夫 (HOSHI, Takeo)

鳥取大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：80272384

### (2) 研究分担者

該当なし

### (3) 連携研究者

該当なし

### (4) 研究協力者

井町 宏人 (IMACHI, Hiroto)

鳥取大学・大学院工学研究科・博士後期課程