

令和元年6月6日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (特設分野研究)

研究期間：2016～2018

課題番号：16KT0016

研究課題名(和文) 数理構造の抽出と保存を中心とした次世代エレクトロニクス材料設計基盤の創出

研究課題名(英文) Innovative design of electronics material based on identifying and preserving mathematical structures

研究代表者

松尾 宇泰 (Matsuo, Takayasu)

東京大学・大学院情報理工学系研究科・教授

研究者番号：90293670

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,700,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では複雑化・巨大化し従来の設計プロセスでは限界に達しつつある次世代エレクトロニクス材料の新設計基盤の創出を目指して、数理構造の一貫性に基づく物理・数理モデル・数値計算の一体化した計算体系を探究した。その結果、構造保存的モデル縮減法の新規開発・検証、量子ダイナミクス計算のための高速な反復法の開発など、重要な要素技術開発を行ったあと、総合応用技術としてエネルギー保存型並列解法による量子ダイナミクス計算を行い本研究理念の実現性と有用性を確かめた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

計算科学を援用するあらゆる現代科学・工学の場面で、問題の複雑化・巨大化に起因する計算複雑性・困難性の障害が顕在化している。従前は、高性能計算機の単調な性能向上によりその困難は先送りされたが、ムーアの法則の終焉が現実的問題となりつつある現在、数値シミュレーションには根本的な変化をもたらす必要がある。本研究は、数理科学的アプローチからこの困難を打開する一つの試みであり、エレクトロニクス材料設計のための量子ダイナミクス計算を例題にとり、従前よりも積極的に数理構造の一貫性を求めることで新しい数値計算体系を構築できることを示した。この理念は広く計算科学全体で有用である可能性があり波及効果が期待される。

研究成果の概要(英文)：In this research, we aimed at developing a new designing framework of innovative electronics material for which conventional designing approach has become too expensive due to the rapid increase of the complexity and size of target designs. The main idea there was to establish a unified approach where the physics, the mathematical model, and its numerical computation were demanded to be consistent in terms of a certain mathematical structure. As outcomes of this research, we have developed several important supporting new techniques, such that new structure-preserving model reduction techniques, new fast iterative solvers for electronics dynamics computations. Then we considered some electronics dynamics computations by efficient, energy-conserving parallel numerical methods, which confirmed the validity of the concept of the unified approach in that it actually enables efficient, stable computation.

研究分野：数値解析

キーワード：数値解析 計算科学 量子ダイナミクス

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

有機系エレクトロニクス材料は、白川英樹(ノーベル化学賞)などの先駆的研究により飛躍的に研究・開発が進む、柔らかい構造を持つ次世代材料で、IoT(Internet of Things)の中心となるウェアラブル・フレキシブルデバイスなどへの期待が大きい。その設計には電子状態計算による大規模計算が基本的であり、その発展は一般の材料設計と同じくスパコンの進化に支えられてきたと言ってよい。しかしながら、スパコンの成長速度は鈍化している。また電子状態計算は原理的には非線形シュレディンガー方程式の計算に尽きるが、直接計算が可能なのは数原子程度までで、現実の系では低次元近似による縮約が必須である。そのため現在は、個々の研究者が低次元近似・計算法の組み合わせを職人芸的に試行錯誤し、物理的にそれらしい結果が出たものを選択している。しかし有機系材料は、グラフェン、カーボンナノチューブなどより複雑な方向に進化しており、いずれこの職人芸は破綻するように思われる。この視点から、材料設計およびそのための数値シミュレーションには、根本的な改革が必要に思われる。

### 2. 研究の目的

以上の背景の下に、本研究で目指すのは根本的に数値シミュレーションによる材料設計にパラダイムシフトを興すことである。本研究は、これを数理科学的なアプローチで達成することを目指す。本研究では、現象と計算を繋ぐのは「数理構造」であるという基本に立ち返り、電子状態計算を司る物理・化学者と、数値解析技法を研究する数理科学者が連携し、数理構造の一貫性に基づく次世代有機系材料設計基盤を創出することを目的とする。

この着想の背景にあるのは数値解析学における構造保存型数値解法の考え方である。例えば上述のシュレディンガー方程式は、数理科学ではシンプレクティック構造、勾配流(変分)構造など豊かな幾何学的構造を備えることが知られている。偏微分方程式の数値解法では、通常はこれらの数理構造は破壊されるが、それを保存する特殊な離散化が存在し、より定量的・定性的に適切な近似解を与えることが知られている。本研究はこれをさらに一段進め、そもそも有機系材料の低次元近似においてもこの数理構造が有用であり、現象の記述から計算まで一貫した体系こそが次世代の材料設計基盤であると考え、その可能性を探究する。

### 3. 研究の方法

本研究は、目標ごとに数理ユニット(M1)(M2)(M3)応用ユニット(A1)(A2)を立て、上述の一貫したシミュレーション体系を組み立てて遂行する。以下、具体的目標と計画を示す。

(M1) 有機系材料に適した数理構造の基礎研究：本研究の核となる目標・ユニットであり、現実応用から計算アルゴリズムに至るまで一貫しうる、有機系材料のための数理構造を抽出する。

(M2) 抽出した数理構造に基づく離散化手法の開発：(M1) ユニットが抽出する数理構造を構造保存型数値解法の考えにより差分法、有限要素法等で離散近似する。また目標(M1)で述べた「理想状態からのずれ」を離散化においても適切に扱う手法を研究し、適切な離散近似を行うために望ましい数理構造について(M1)ユニットに提言する。

(M3) 数理構造を保存する線形計算手法の開発：(M2)による離散化は最終的には線形計算(連立一次方程式や固有値問題の解法)に帰着する。(M2)で保存した構造、およびそこからずれを活用した安定・高精度・高速な線形計算手法を開発し、計算の最後に至るまで数理構造の一貫性を担保する。

(A1) 超並列電子状態シミュレータの開発：目標(M2)(M3)で考案した手法を、分担者・星らがこれまで開発してきた超並列電子状態シミュレータに組み込み、有機系材料に適したシミュレータを開発する。なおその観点から(M1)ユニットの数理構造抽出に協力する。

(A2) 現実の有機系材料への応用：上記で開発したシミュレータを現実の有機系エレクトロニクス材料へと適用する。特にその結果を実験家と議論し、実データと比較して本研究全体の有効性を評価する。また(A1)同様、その最終応用の観点から数理班の(M1)ユニットに協力して数理構造を抽出する。

### 4. 研究成果

主要な成果について説明する。

#### [構造保存的モデル縮減]

大規模問題を数理科学的なアプローチで高速に解くために、近年、「モデル縮減」の概念が重要になってきている。そのためにPOD(Proper Orthogonal Decomposition)などのアプローチがすでに開発され、種々の系で試されているが、縮減により元の問題の性質が破壊されてしまうために高速にはなっても適切な数値計算ができないことも多い。そのために、構造保存解法の考え方と組み合わせた「構造保存的モデル縮減」の可能性が、現在世界的にも探究が始まっている。本研究においても、以下の二点において世界に先駆けた新しい構造保存的モデル縮減法を開発した。

#### 1. 散逸系に対する構造保存的モデル縮減(学会発表：柳澤・松尾2018, 稲場・松尾2019)

従前、構造保存的モデル縮減はHamilton系に対するシンプレクティックモデル縮減等、保存系に対するものが主体的で、散逸系に対する研究例は、拡散方程式など簡易な場合を除いて確立されたものはほとんどなかった。これに対し本研究では、Cahn-Hilliard方程式など本格的な散逸系に対しても適用可能な新しい構造保存モデル縮減手法を開発し、実際に適用して、POD等

による既存手法では全く計算困難な Cahn--Hilliard 系に対して、極めて安定に低次元数値計算が可能であることを示した。

## 2. Poisson 系に対する構造保存モデル縮減 (宮武)

上述の通り、従前、構造保存的モデル縮減は Hamilton 系に対するものが主体的であったが、同じく保存系ではあるが、Hamilton 系よりもより広い問題クラスである Poisson 系に対しても適用可能な新しい構造保存モデル縮減手法を開発した。開発した手法は線形問題、非線形問題を問わず適用可能であり、実際に代表的な非線形偏微分方程式である KdV 方程式に適用して、高速かつ安定に低次元数値計算が可能であることを示した。

### [量子ダイナミクス計算のための反復法]

シュレディンガー方程式に従って波動関数の時間発展を追跡する量子ダイナミクス計算は、次世代有機電子デバイスの開発のための量子電気伝導計算等で重要である。量子ダイナミクス計算では、粒子の全存在確率を保存するクランク・ニコルソン法が広く用いられるが、その場合、各時間ステップにおいて実対称行列(またはエルミート行列)+ 虚数シフトという構造を持つ連立1次方程式を解く必要がある。これらの構造を活用できる反復法として、実対称行列の場合は COCG (Conjugate Orthogonal Conjugate Gradient) 法、エルミート行列の場合は Bi-CG (Bi-Conjugate Gradient) 法が使われてきた。しかしこれらの解法には、求解の過程でゼロ割りによる破綻が生じること、残差が単調減少しないこと、Bi-CG 法の場合は1反復に2回の行列ベクトル積が必要となること、という問題があった。本研究では、実対称/エルミート行列向けの反復法である MINRES (MINimum RESidual) 法をシフト付きの場合に拡張した shifted MINRES 法を用いることで、これらの問題を解決し、安定かつ効率的な求解が実現できることを示した。また、電子状態計算に関するテスト行列コレクションである ELSIES Matrix Library の行列を用いて、数値的な検証を行った。

### [エネルギー保存型並列解法による量子ダイナミクス計算]

本研究では、有機トランジスタ(図1)におけるペンタセン( $C_{22}H_{14}$ )薄膜などを想定し、乱れた2次元有機材料から得られる格子モデルを考えた。ここでは、格子1点が1分子に対応する。電子波(波束)は、量子ダイナミクスに基づき、ペンタセン薄膜内を2次的に伝搬する(図1)。量子ダイナミクス計算の精密化として、粒子の存在確率が高い領域にさらに粒子が集まりやすくなる波束の

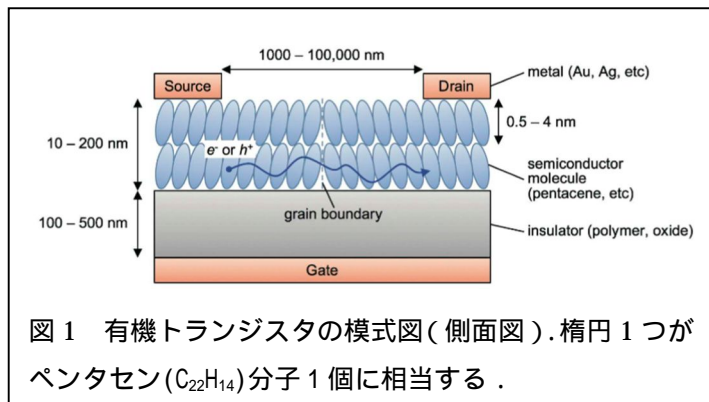


図1 有機トランジスタの模式図(側面図)。楕円1つがペンタセン( $C_{22}H_{14}$ )分子1個に相当する。

自己局在化効果を取り入れることが提案されている。この場合、支配方程式は格子上の非線形シュレディンガー型方程式となる。しかしこの方程式は、非線形性、および格子欠陥や不純物原子に由来するデルタ関数的なポテンシャルの存在により、ルンゲ・クッタ法などの汎用的な解法では安定に解を求めることが難しい。一方、この方程式はハミルトン系という構造を持ち、さらに、全エネルギーと全存在確率という保存量を持つ。得られた格子モデル上の2次元非線形シュレディンガー方程式に対して、エネルギー保存型解法の MB4 (4次精度、研究分担者の宮武らが開発)、AVF2 (2次精度)、AVF4 (4次精度)、およびハミルトン系の構造を保存するシンプレクティック型解法の GAUSS2 (2次精度)、GAUSS4 (4次精度) を適用し、これらの構造保存型解法が安定性の面で優位性を持つことを確認した。MB4 法で計算を行った場合の、エネルギーの時間変化とある時点での存在確率をそれぞれ図2、3に示す。運動エネルギー(緑)、相互作用エネルギー(青)、ポテンシャルエネルギー(橙)は時間とともに大きく変化するが、全エネルギー(紫)は14桁の精度で保存する。さらに、MB4 法の持つ大粒度並列性を活かして108スレッドでの並列化を行い、640×640格子(約40万分子に相当)上での大規模非線形量子ダイナミクス計算が実用的な時間で実行できることを示した。本研究で開発したプログラムは GitHub で公開の予定である。

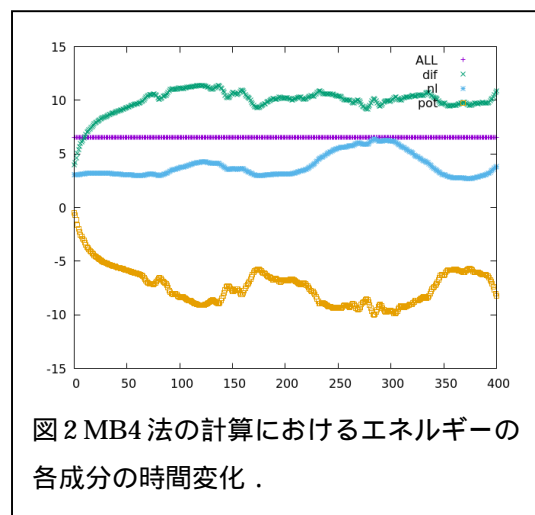
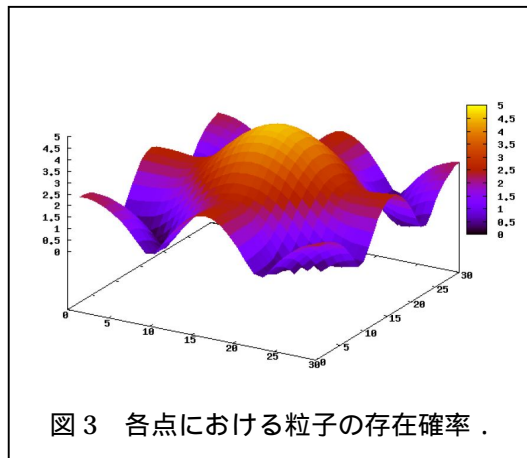


図2 MB4 法の計算におけるエネルギーの各成分の時間変化。



## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 16 件)

D. Furihata, S. Sato, T. Matsuo, A novel discrete variational derivative method using ``average-difference methods'', *JSIAM Letters*, 8 (2016), 81–84.

Kojima Hiroki, Matsuo Takayasu, Furihata Daisuke, Some discrete inequalities for central-difference type operators, *Math. Comp.*, 86 (2017), 1719–1739.

Yusaku Yamamoto, On the optimality and sharpness of Laguerre's lower bound on the smallest eigenvalue of a symmetric positive definite matrix, *Appl. Math.*, 62 (2017), 319–331.

Shioya Akemi, Yamamoto Yusaku, The danger of combining block red/black ordering with modified incomplete factorizations and its remedy by perturbation or relaxation, *Japan J. Indust. Appl. Math.*, 35 (2017), 195–216.

Miyatake Yuto, Cohen David, Furihata Daisuke, Matsuo Takayasu, Geometric numerical integrators for Hunter-Saxton-like equations, *Japan Journal of Industrial and Applied Mathematics*, 34 (2017), 441–472.

Yushi Morijiri · Kensuke Aishima · Takayasu Matsuo, Extension of an error analysis of the randomized Kaczmarz method for inconsistent linear systems, *JSIAM Letters*, 10 (2018), 17–20.

Gabriel Oksa · Yusaku Yamamoto · Martin Becka · Marian Vajtersic, Asymptotic Quadratic Convergence of the Parallel Block-Jacobi EVD Algorithm with Dynamic Ordering for Hermitian Matrices, *BIT Numerical mathematics*, 58 (2018), 1099–1123.

Hiroaki Seito · Takeo Hoshi · Yusaku Yamamoto, On Using the Shifted Minimal Residual Method for Quantum-mechanical Wave Packet Simulation, *JSIAM Letters*, 11 (2019), 13–16.

Takatoshi Fujita, MD Khorshed Alam, and Takeo Hoshi, Thousand-atom ab initio calculations of excited states at organic/organic interfaces: toward first-principles investigations of charge photogeneration, *Physical Chemistry Chemical Physics*, 20 (2019), 26443–26452.

Takeo Hoshi, Hiroto Imachi, Akiyoshi Kuwata, Kohsuke Kakuda, Takatoshi Fujita, Hiroyuki Matsui, Numerical aspect of large-scale electronic state calculation for flexible device material, *Japan J. Indust. Appl. Math* (2019) <https://doi.org/10.1007/s13160-019-00358-2>

Tomofumi Tada, Wave-packet multi-scale simulations based on a non-linear tight-binding Hamiltonian for carrier transport in  $\pi$ -conjugated polymers, *Materials Chemistry Frontier*, 2 (2018), 1351–1359.

〔学会発表〕(計 60 件)

田中智規, 松尾宇泰, 伊藤伸一, 長尾大道, 偏微分方程式のアジョイント法における離散化, 日本応用数理学会第 13 回研究部会連合発表会, 2017.

工藤周平, 井町宏人, 宮武勇登, 山本有作, 星健夫, 数値構造保存型解法の計算物質科学への展開, 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 ~, 2016.

Y. Miyatake, Structure-preserving Galerkin methods based on variational structure, *Geometric Numerical Integration and Its Applications*, 2016.

柳澤 広大, 松尾宇泰, 散逸型微分方程式に対する各種モデル縮減手法の検討, 日本応用数理学会 2018 年研究部会連合発表会, 2018.

D. I. McLaren, Y. Miyatake, G. R. W. Quispel, Finite difference schemes preserving

multiple invariants for evolutionary partial differential equations, SciCADE2017, 2017.  
Yusaku Yamamoto, Roundoff error analysis of the CholeskyQR2 and related algorithms, PARNUM2017, 2017.

Takeo Hoshi, 100-nano-meter-scale electronic structure calculation for organic device materials, SIAM-PP18, 2018.

稲場俊弥・松尾宇泰, 散逸型微分方程式の構造保存モデル縮減, 日本応用数理学会 2019 年研究部会連合発表会, 2019.

酒井翼・藤周平・井町宏人・宮武勇登・星健夫・山本有作, エネルギー保存型並列解法 MB4 に基づく 2次元量子ダイナミクス計算, 第 47 回数値解析シンポジウム, 2018.

Yusaku Yamamoto・Tsubasa Sakai・Shuhei Kudo・Hiroto Imachi・Yuto Miyatake・Takeo Hoshi, Application of an Energy-preserving Integrator to Quantum-mechanical Wavepacket Dynamics, 13th SIAM East Asian Section Conference 2018, 2018.

Yuto Miyatake, Energy-preserving model reduction for Poisson systems, 13th SIAM East Asian Section Conference 2018, 2018.

Takeo Hoshi, HPC challenge in material science, International HPC Summer School 2018, 2018.

Tomofumi Tada, Theoretical study on electron transport through organometallic molecular wires, International Conference on Coordination Chemistry 2018, 2018.

Tomofumi Tada, Theoretical studies on a single molecular spin contact for quantum information processing, Nature conference, 2019.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

特になし

## 6 . 研究組織

### (1)研究分担者

研究分担者氏名：宮武勇登

ローマ字氏名：Yuto Miyatake

所属研究機関名：大阪大学

部局名：サイバーメディアセンター

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：60757384

研究分担者氏名：山本有作

ローマ字氏名：Yusaku Yamamoto

所属研究機関名：電気通信大学

部局名：情報理工学研究科

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：20362288

研究分担者氏名：星健夫

ローマ字氏名：Takeo Hoshi

所属研究機関名：鳥取大学

部局名：工学研究科

職名：准教授

研究者番号 (8 桁)：80272384

研究分担者氏名：多田 朋史

ローマ字氏名：Tomofumi Tada

所属研究機関名：東京工業大学

部局名：元祖戦略研究センター

職名：准教授

研究者番号（8桁）：40376512

(2)研究協力者

なし

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。