

令和 5 年 6 月 14 日現在

機関番号：15101

研究種目：挑戦的研究(萌芽)

研究期間：2021～2022

課題番号：21K19773

研究課題名(和文) 超大規模電子状態計算とフレキシブルデバイスを繋ぐ次世代インフォマティクス

研究課題名(英文) Next-generation informatics connecting ultra-large-scale electronic structure calculations and flexible devices

研究代表者

星 健夫 (Hoshi, Takeo)

鳥取大学・工学研究科・准教授

研究者番号：80272384

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,900,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、有機太陽電池・有機ELディスプレイ・医療センサーなど、フレキシブル(薄くて柔らかく曲げたり巻いたりできる)デバイス材料設計に向け、次世代インフォマティクスの萌芽を築いた。その基礎は、非理想構造分子集合体での物性値計算と記述子設計である。具体的には、2種の独自大規模電子状態計算手法をシースとして、1体(キャリア)波動関数手法開発、2体(エキシトン)波動関数手法開発、高速数値計算手法開発に基づき、物性値計算・記述子設計を行い、主成分分析などのインフォマティクスでその有用性を実証した。今後は3種手法を融合することで、新しいインフォマティクス分野に昇華させる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

有機材料に基づくフレキシブル(薄くて柔らかく曲げたり巻いたりできる)デバイスとして、有機太陽電池・有機ディスプレイ・医療センサーなどが、次世代社会を支える基盤として注目されている。一方、材料インフォマティクスは米国の「マテリアルゲノム計画」などを契機に大いに発展したが、限界も明らかになり、これまでフレキシブルデバイスには適用できていなかった。本研究は、我が国における産業革新を目指し、フレキシブルデバイスに向けた次世代インフォマティクスの萌芽を築いた研究であり、学術的・社会的意義は非常に大きい。

研究成果の概要(英文)：The present research gave the seeds of next-generation informatics for the design of flexible (thin, soft, bendable and rollable) device materials, such as organic solar cells and OLED displays, medical sensor. Its foundation is the calculation of physical properties and descriptor design in non-ideal molecular assemblies. In particular, we developed the one-body (carrier) wavefunction method, the two-body (exciton) wavefunction method and the high-performance numerical method based on two types of original large-scale electronic structure calculation methods. The above methods enabled us to develop new methods for the calculation of physical properties and descriptor design. The proof of concept was shown in informatics such as principal component analysis. In the future, the three methods will be fused together into a new informatics field.

研究分野：計算物質科学

キーワード：フレキシブルデバイス インフォマティクス 主成分分析 大規模電子状態計算 有機太陽電池 有機ELディスプレイ エキシトン 高速数値計算

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、研究者個人に帰属します。

1. 研究開始当初の背景

有機材料に基づくフレキシブル（薄くて柔軟、曲げたり巻いたりできる）デバイスとして、トランジスタ・太陽電池・ディスプレイ・生体センサーなどが、次世代産業の中核として注目されている。白川英樹(2000年ノーベル化学賞)らの導電性高分子の発見などを始祖とし、伝統的に日本が強い分野である。インクジェットプリンタと同じ原理で、安く、大量に生産できる可能性も魅力の1つと言える。例えば、カーテンのような柔らかいディスプレイ、体に貼れる医療センサーなど、実用化も進んでいる。

一方、材料インフォマティクスは米国の「マテリアルゲノム計画」などを契機に大いに発展したが、限界も明らかになり、産業界では次世代インフォマティクスが望まれている。適用限界の根源は、対象が理想結晶や理想構造単分子を対象としていることである。産業界で利用される現実材料は、構造に非理想性があり、機能は理想結晶・単分子の性質では決まらない場合が多い。従来型インフォマティクスが適用できない分野の1つが、フレキシブルデバイスである。フレキシブルデバイスは有機（高）分子の集合体であり、構造が自在に変わる非理想構造こそが、フレキシブル（柔らかい）に直結する。現状では熟練実験研究者が、思索と試行錯誤で材料開発を行っている。

2. 研究の目的

上記背景を受けた本研究の目的は、フレキシブルデバイスに向けた次世代インフォマティクスの萌芽を築くことである。従来研究は、理想構造に対して分子を格子点に近似したサイトモデルがほとんどであった。それに対して、実用的有機材料は構造乱れを持つ非結晶体が本質的である。そのため本研究では、独自の大規模電子状態計算を基盤として、構造乱れを直接取り込んだ全原子計算から、デバイス性能（電気伝導性・光電子プロセスなど）を議論することができる特徴量を構築することを戦略とした（図1）。

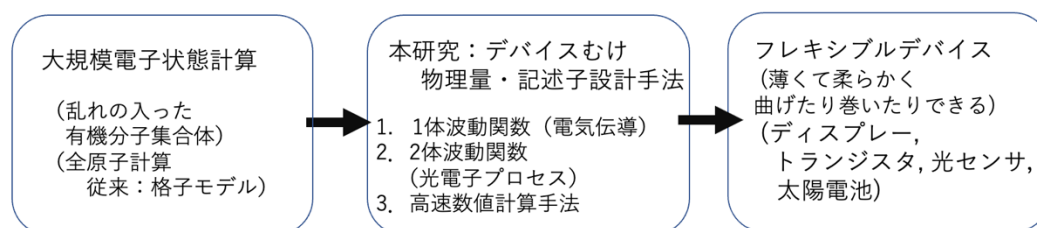


図1 大局論：超大規模電子状態計算とフレキシブルデバイスを繋ぐ次世代インフォマティクス

3. 研究の方法

構造乱れの入った大規模（数千原子～1億原子）フレキシブル（有機）材料を対象として、次の3手法を用いた。

第1の手法は、星（研究代表者）が独自に開発した大規模電子状態計算[1, 2]であり、これを用いて電気伝導性を議論する。量子MDとキャリア（ホール・励起電子の1体）波束 $\psi(\mathbf{r}, t)$ に対する有効シュレーディンガー方程式($i\hbar\partial_t\psi = H_{\text{eff}}\psi$)に基づく、非定常非平衡ダイナミクス計算が、電気伝導性の直接計算となる[2]。ただし、実時間発展計算となるため反復計算となり、計算機資源の限界がある。一方、対象とする時間スケールはピコ秒程度であり、構造は初期構造から大きな変化はない。そこで、初期構造に対する静的計算から特徴量を抽出することで、ダイナミクスを置き換えることも戦略とする[3]。

第2の手法は、藤田（研究分担者）らが独自に開発した大規模第一原理励起電子状態計算であり、光電子デバイス（ディスプレイ、太陽電池、センサー）の素過程議論を可能にする。フラグメント分子軌道法コードに準粒子描像に基づく第一励起状態理論を融合することで大規模（数千原子系）計算法を構築し、有機分子集合体計算が可能となった[4-7]。特に、ホール・励起電子からなる複合粒子（エキシトン；2体波動関数； $\Psi(\mathbf{r}_h, \mathbf{r}_e; t)$ ）ダイナミクスが扱えるようになり、電荷分離プロセスなど、光・電子デバイスの中核が扱えるようになった。特に、有機太陽電池に注力している。本研究ではその理論的發展に取り組み、光電子デバイスインフォマティクスの基礎構築を目指した。

第3の手法は、行列計算を中心とした、高速数値計算技術の開発である。本研究の計算（電子状態計算・波束ダイナミクス計算）の主要部分、行列計算（固有値問題・行列関数計算など）に帰着されるため、その高速数値計算技術は研究全体を加速する。特に、インフォマティクス計算においては、構造乱れの入った多数系に対するシミュレーションが必須である。上記目的に立った高速計算としては、計算条件自動最適化(auto-tuning)[8, 9]、及び、精度制御型高速計算（必要最低限の精度を確保した範囲での高速計算技術）[10]は、現・次世代計算機（超並列型スーパーコンピュータ、メニーコアCPU搭載機、GPU搭載計算機）での高速計算技術の基礎を与える。

4. 研究成果

3つの手法に対する成果を順に説明する。

第1の手法についての主な成果としては、静的計算から計算できる電気伝導に対する記述子の発展と有機高分子機械学習への応用がある。電子状態計算から計算できる特徴量として、以前から、各波動関数(固有状態) $\phi_i(\mathbf{r})$ の空間的広がり(有効体積)に対する Participation Ratio (PR) ($PR[\phi_i] = (\int |\phi_i(\mathbf{r})|^4 d\mathbf{r})^{-1}$) を提案していた[3]。原子基底(LCAO)表示を用いたモデル化(強束縛)電子状態計算に適用した。本研究でのPRは、原子マリックン電荷に対する表現を用いた。応用として、典型的有機EL型高分子である poly-(phenylene-ethynylene) (PPE) の2種構造(meta/para型)に構造乱れを導入し、PRを特徴量とした主成分分析を行い、2次元データ空間(図2)において4つのクラスター(a, b, c, d)に正しく分類できることを得た。またPRの逆数である inverse PR (IPR) を特徴量とした解析も行い、PRを用いた解析と比較した結果、PRがより適切な量であるとの知見を得た。PRとIPRは逆数の関係であるので情報は同じであるが、主成分分析は線形解析法であり、PRとIPRとで解析結果に非自明な差異があった。PRはどのような電子状態計算に対しても一意に計算できる量であり、電気伝導計算の基盤となりうる特徴量であることがわかった。結果は、大規模電子状態計算の応用として国際会議招待講演[11]や一般講演[12]などで発表した。計算手法は汎用であり、今後、有機分子集合体への拡張が期待できる。

第2の手法についての主な成果としては、有機太陽電池を例とした理論手法発展と応用がある。これまでの手法の発展として、第一原理励起状態計算法(GW-BSE法)を確立した[13]。特に、有機太陽電池の中核である、電荷分離プロセスを扱うには遮蔽効果が本質であり、その定量的取り扱いが確立した事で、有機太陽電池研究の実用化にブレークスルーを与えた。さらに、分子集合体における励起状態ダイナミクスと時間分解スペクトル信号計算手法を開発し、応用例として、アモルファス P3HT/PCBM ブレンド(図3)における電荷分離ダイナミクスとポンプ・プローブ分光の相関関係を明らかにした[14]。本研究により光電子デバイスの物性が、大規模(分子集合体)で直接計算可能になったため、今後は、構造乱れと物性との相関を明らかにするインフォマティクスの構築が期待できる。

第3の手法についての主な成果としては、波束ダイナミクスに関連した高速数値計算である[15]。従来は行列指数関数(e^A ; A は行列)を基礎とすることが多かった。行列指数計算は行列 A の全固有値・固有ベクトルを計算することで計算可能であるが、計算時間がかかってしまい、ボトルネックとなっていた。本研究では、行列指数関数計算に帰着させない数理方法を用いることで、全固有値・固有ベクトル計算を避けることができた。さらに、行列積演算に帰着させるアルゴリズムであるため、BLASなどの高速ライブラリを利用が可能であり、CPU・GPUなど、様々なアーキテクチャの計算機で高速性が担保される。本研究は数理手法研究であり、今後、有機材料計算へと応用していく。

以上のように、本研究では、1体波動関数(キャリア)描像による電気伝導性研究、2体波動関数(エキシトン)描像による光電子プロセス研究、高速数値計算研究、という、3つの異分野手法を基盤として、次世代インフォマティクスの萌芽を築いた。本研究の研究機関は1.5年と短期間ながら、ゲームチェンジャーとなりうる質的に新しいアイデアが創出された。今後はこれらアイデアを融合していくことで、フレキシブルデバイス開発に向けたインフォマティクスへと昇華させていく。また、上記成果の波及として、「富岳」スーパーコンピュータにおける産業利用課題(富岳産業課題 hp220084「大規模量子化学計算と機械学習を用いた有機半導体材料分子の逆設計」; 代表: 西野信也(住友化学))へと発展した。

<参考文献>

- [1] T. Hoshi, *et al.*, J. Phys. Condensed Matter 24, 165502 (2012).
- [2] T. Hoshi *et al.*, Proc. ScalA16 in SC16, 33 (2016).
- [3] T. Hoshi *et al.*, Jpn. J. Ind. Appl. Math. 36, 685, (2019).
- [4] T. Fujita, MD K. Alam, T. Hoshi, Phys. Chem. Chem. Phys. 20, 26443 (2018)

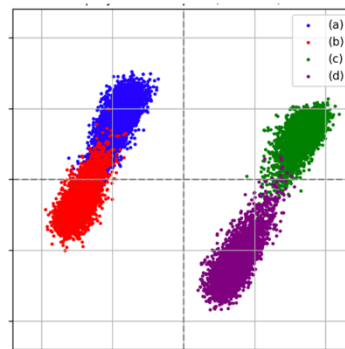


図2 構造乱れのある有機高分子に対する主成分分析; 第1, 2主成分空間でのクラスタリング。

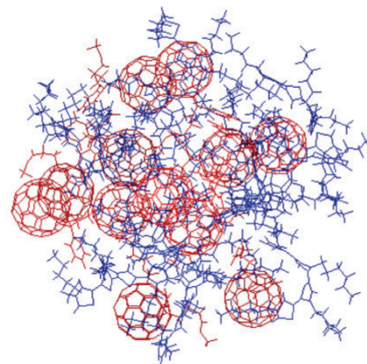


図3 電荷分離ダイナミクス計算で用いたP3HT(赤)/PCBM(青)ブレンド構造。

- [5] T. Fujita, Y. Noguchi, T. Hoshi, J. Chem. Phys. 151, 114109 (2019).
- [6] T. Fujita, Y. Noguchi, T. Hoshi, Materials 13, 2728 (2020).
- [7] T. Fujita, T. Hoshi, Chap. 15 in *Recent advances of the fragment molecular orbital method Subtitle: Enhanced performance and applicability*, ed. Yuji Mochizuki, Shigenori Tanaka, and Kaori Fukuzawa, Springer, 2021.
- [8] K. Tanaka, *et al.* (T. Hoshi), Jpn. J. Ind. Appl. Math. 36, 719 (2019).
- [9] H. Kohashi, *et al.* (T. Hoshi), JSIAM Letters 14, 13 (2022).
- [10] Y. Yamamoto, *et al.* (T. Hoshi), JSIAM Letters 14, 147 (2022).
- [11] T. Hoshi, Bridging between algorithms and applications: novel numerical libraries and the performance prediction by Bayesian inference, Challenges and Advances in Solving Eigenproblems for Electronic-Structure Theory, 15.-18., Nov. (2022) (国際会議招待講演).
- [12] 寺地, 他 (藤田, 星), 電子波動関数に基づく記述子を用いた乱れた有機高分子系の主成分分析, 日本応用物理学会, 上智大学, 2023年3月15-18日.
- [13] T. Fujita, Y. Noguchi, J. Phys. Chem. A 125, 10580 (2021).
- [14] T. Fujita, T. Hoshi, 投稿中, Preprint: <https://doi.org/10.26434/chemrxiv-2023-773xs>
- [15] S. Kudo, Y. Yamamoto, T. Hoshi, 投稿中, Preprint: <https://arxiv.org/abs/2306.00271>

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Takatoshi Fujita, Yoshifumi Noguchi	4. 巻 125
2. 論文標題 Fragment-Based Excited-State Calculations Using the GW Approximation and the Bethe-Salpeter Equation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 The Journal of Physical Chemistry A	6. 最初と最後の頁 10580-10592
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1021/acs.jpca.1c07337	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計14件（うち招待講演 5件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 藤田貴敏
2. 発表標題 光電変換過程の量子ダイナミクスと時間分解分光
3. 学会等名 計算物質科学人材育成コンソーシアム（PCoMS）シンポジウム & 計算物質科学スーパーコンピュータ共用事業報告会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤田貴敏
2. 発表標題 大規模電子状態計算を用いた有機半導体材料の光電子物性
3. 学会等名 スーパーコンピュータワークショップ2022「複雑電子状態の理論・計算科学」（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 寺地雄真, 藤田貴敏, 福島孝治, 星健夫
2. 発表標題 電子波動関数に基づく記述子を用いた乱れた有機高分子系の主成分分析
3. 学会等名 日本応用物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 藤田貴敏
2. 発表標題 P3HT/PCBMにおける電荷分離ダイナミクスと分光シグナルの理論解析
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤田貴敏
2. 発表標題 電子状態計算と時間分解分光によるP3HT/PCBMの電荷分離の解析
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 入澤はな, 沢頭孟, 星健夫
2. 発表標題 ホスト・ゲスト型有機EL分子集合体の量子波束シミュレーション
3. 学会等名 応用物理・物理系学会中国四国支部支部合同学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 沢頭孟, 入澤はな, 星健夫
2. 発表標題 波束シミュレーションに向けたホスト・ゲスト型有機分子集合体構造データの自動生成
3. 学会等名 応用物理・物理系学会中国四国支部支部合同学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 寺地雄真, 藤田貴敏, 福島孝治, 星健夫
2. 発表標題 電子波動関数に基づく記述子を用いた乱れた有機高分子系の主成分分析
3. 学会等名 日本応用物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Takeo Hoshi
2. 発表標題 Bridging between algorithms and applications: novel numerical libraries and the performance prediction by Bayesian inference
3. 学会等名 Challenges and Advances in Solving Eigenproblems for Electronic-Structure Theory, CECAM Flagship Workshop, Lausanne, Switzerland (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤田貴敏
2. 発表標題 P3HT/PCBMにおける電荷分離ダイナミクスと分光シグナルの理論解析
3. 学会等名 第70回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤田貴敏
2. 発表標題 光電変換過程の量子ダイナミクスと時間分解分光
3. 学会等名 計算物質科学人材育成コンソーシアム (PCoMS) シンポジウム & 計算物質科学スーパーコンピュータ共用事業報告会 (招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤田貴敏
2. 発表標題 大規模電子状態計算を用いた有機半導体材料の光電子物性
3. 学会等名 スーパーコンピュータワークショップ2022「複雑電子状態の理論・計算科学」(招待講演)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 藤田貴敏
2. 発表標題 電子状態計算と時間分解分光によるP3HT/PCBMの電荷分離の解析
3. 学会等名 第83回応用物理学会秋季学術講演会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 農本峻介, 星健夫
2. 発表標題 部分固有対計算法による有機分子集合体系大規模電子状態計算
3. 学会等名 応用物理会中四国支部学術講演会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

<p>星健夫ホームページ(ResearchMap) https://researchmap.jp/takeo_hoshi/ 藤田貴敏ホームページ(ResearchMap) https://researchmap.jp/takatoshi.fujitashi</p>
--

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	藤田 貴敏 (Fujita Takatoshi) (70767970)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・量子生命科学 研究所・主幹研究員 (82502)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関