

受付 ID	17a43
分野	物質科学

有機半導体の材料設計理論の構築

Development of Materials Design Theory for Organic Semiconductor

後藤 仁志

豊橋技術科学大学 情報・知能工学系

1. 研究目的

本研究では、新規有機エレクトロニクス材料の研究開発プロセスを加速するために、計算化学と理論物理の分野の研究者が連携して新たな計算科学技術を確立するとともに、実験観測データを活用することによって理論予測精度の向上を図る。さらに、複数の有機材料に対してこれらを適用し、多くの解析データを蓄積することによって、有機半導体の材料設計理論を確立することを目的とする。

2. 研究成果の内容

本研究では、計算機を駆使する計算化学（豊橋技科大）と理論物理（筑波大）、および実験による半導体物性（東大新領域）の各グループが密に連携して研究を推進している。昨年度は、計算化学班の結晶多形探索法と理論物理班の第一原理電子状態計算法を COMA に移植し、高速化を図った。また、既知の有機半導体結晶を対象に、予測結晶構造に対して第一原理計算を適用し、バンド構造解析やキャリア輸送特性解析を行い、理論予測精度を確認した。今年度は、まず、一部のシステムを Oakforest-PACS に移植するとともに、昨年行ったハイブリッド並列化の最適化を踏まえて、結晶構造予測からキャリア輸送特性解析までの一連のスキームを最適化し、ベンチマークを実施した。

我々の結晶構造予測技術におけるハイブリッド並列計算の効率が比較的に優れていることは昨年度報告しているが、今回 Oakforest-PACS を用いた 20,000 コアまでのベンチマークでは、4,800 コア

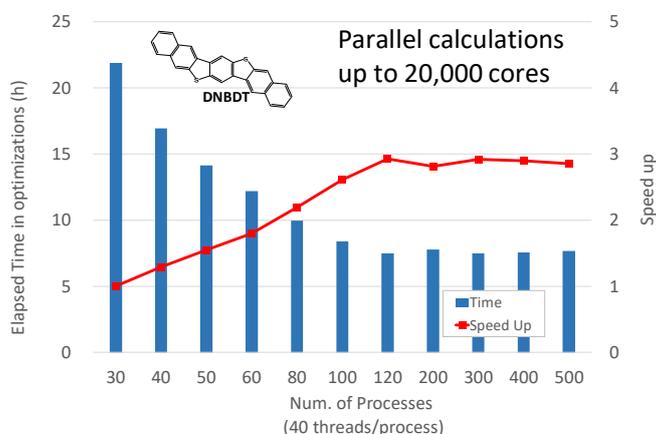


Fig. 1 Parallel Efficiency of Crystal Structure Prediction by OpenMP/MPI Hybrid on Oakforest-PACS

程度までは高速化が期待できることが分かった (Fig. 1)。また、さらに大規模な並列計算においても高速化を期待するためには、計算対象をさらに大きな分子性結晶を標的にする必要があることが分かった。これは、より実践的な研究において Oakforest-PACS を利用に都合がよく、より高度な応用研究への利用を検討している。

今年度は、第一原理計算によるキャリア輸送特性解析の精度を革新するため、結晶振動 (フォノン) モードを取り入れた。その結果、分子構造を固定した従来の計算法と比べて予測精度の向上は目覚ましく、実験値に匹敵する予測値を求めることができた。この計算における並列化効率も高く、少なくとも 4000 コアまでリニアに計算時間を短縮することができた。

有機半導体の材料設計の効率化を図るため、昨年から継続して一連の物性予測システムの高度な連携と高速化に挑戦してきた。その結果、当初、実験研究者が要請していた 1 週間以内 (これは合成、結晶化、移動度測定までにかかる時間に相当する) に、結晶構造予測から高精度なキャリア解析までを終えるには、およそ 1000 コアのハイブリッド並列計算環境があれば、実現可能であることが分かった (Table 1)。

Table 1 Estimation time required for total prediction of an organic semiconductor performance

	Elapsed Time (1 core)	500 cores used (h)	1,000 cores used (h)
Crystal Structure Prediction & MM ranking	410 d	19.7	9.8
DFTD ranking	10 d	0.5	0.25
Crystal Structure Re-Optimization by DFT-d	2,225 d	106.8	53.4
DFT/TD-WPD + Normal modes	4,000 d	192.0	96.0
		319.0 (13 d)	159.4 (6.6 d)
No re-opt by DFT-d:		212.2 (9 d)	106.0 (4.4 d)

以上の成果の一部は、EMN Meeting on Computation and Theory 2017 において発表した。有機半導体の材料設計理論の確立に向けた取り組みについては、現在、共同研究論文を執筆中である。また、本研究の成果と発展研究については、筑波大の小林伸彦氏の重点課題推進プログラム「大規模第一原理電気伝導計算による有機デバイスの理論 (OFP プロジェクトコード名: xg18i069)」に引き継ぐ予定である。

3. 学際共同利用として実施した意義

本研究目標を実現するためには、物性予測 (結晶多形探索, 結晶構造予測, 第一原理電子状態計算, バンド・キャリア解析) にかかる計算時間が, 実験 (合成, 精製, (粉

末) 結晶化, 測定) よりも圧倒的に短時間かつ高精度に完了することが望ましい。今回, 実験にかかる時間よりも短時間で物性予測を完了するために必要な計算規模を実践的な意味で見積もることができた意義は大きい。

4. 今後の展望

我々の物性予測システムは複数の計算プログラムで構成され, 各プログラムの連携を強化することで高効率化を実現した。今後も、様々な要素技術の改善を進め, システム全体の予測精度の向上を図るとともに, 計算結果に基づく新規有機材料の実験をさらに進める。また, これらの解析データを蓄積し, 活用することによって, 有機半導体の材料設計理論の確立と、機械学習による物性予測システムの開発に取り組む。

5. 成果発表

(1) 学術論文

1. N. Kobayashi, H. Ishii, K. Hirose, “Theory of electron transport at the atomistic level”, Jpn. J. Appl. Phys. in press.
2. H. Ishii, S. Obata, N. Niitsu, N. Kobayashi, K. Hirose, T. Okamoto, J. Takeya (投稿準備中)

(2) 学会発表

1. 小林伸彦, 「大規模計算による有機半導体の熱・電荷輸送」, 日本物理学会第73回年次大会シンポジウム「柔らかな界面における熱・電荷輸送」, 2018年3月22-25日、東京理科大野田キャンパス.
2. N. Kobayashi, “Theory of charge and heat transport at the atomistic level”, 25th International Colloquium on Scanning Probe Microscopy”, 7-9 Dec. 2017, Atagawa. (invited)
3. Hitoshi Goto, S. Obata, N. Niitsu, H. Ishii, N. Kobayashi, K. Hirose, T. Okamoto, J. Takeya, “Theoretical design of functional molecular crystals; a case of organic semiconductors”, the EMN Meeting on Computation and Theory, 6-10 Nov. 2017, Dubai UAE. (invited)
4. N. Kobayashi, “Electrical and thermal transport calculations at the atomistic level”, Energy Materials Nanotechnology 2D Materials, 8-12 Aug 2017, Lyon, France. (invited)

(3) その他

使用計算機	使用計算機 に○	配分リソース※	
		当初配分	追加配分
HA-PACS/TCA			
COMA	○	72,000	
Oakforest-PACS	○	499,200	
※配分リソースについてはノード時間積をご記入ください。			