九州大学情報基盤研究開発センター
民間利用成果報告書

提出日：2020 年　4 月　24 日

利用課題名		有機二光子吸収材料開発に向けたハイスループット計算スキームの構築				
課題責任者	企業名	パナソニック株式会社 印				
	フリガナ 氏名	四橋　聡史 印	部署名	テクノロジー本部	職位	主幹研究員
	連絡先	住　所：〒571 – 8508 大阪府門真市大字門真 1006 番地 E-mail：yotsuhashi.s@jp.panasonic.com		TEL080-2278-4543 FAX		
利用期間		2019 年　10 月　1 日　～　2020 年　3 月　31 日				
利用成果公開延期希望の有無		■ 即時公開　・　□ 公開延期（成果公開予定：　　年　　月）				

※利用成果報告書は原則公開ですが、課題終了後最大 2 年間公開を延期することが可能です。

- 本様式の変更はできません。
- 補足資料を付加することは可能です。

受付番号	10	受付日 20 年 7 月 17 日	受付印

情報基盤研究開発センター長 九州大学 20.7.17 承認

■利用計画全体の概略（申込書と同じ内容を記述してください）

1） 利用目的

次世代光ディスクへのさらなる大容量化、電力消費量低減に向けてディスク内部に３次元に情報を記録する体積記録ディスクが注目されており、その材料候補の一つとして非線形光学応答を示す有機分子が提案されている。非線形光学応答を示すには一光子ではなく二光子で吸収励起される必要がある。本研究では有機分子の二光子吸収において所望の物性を満たす有機材料の提案に向けた、量子化学計算を用いたハイスループット計算を行うための計算スキームを開発し、そのスクリーニングを実証する。軽い計算から精度の高い計算をつなぎ合わせたスクリーニングを行うことにより、精度と計算負荷のトレードオフを克服した高精度スクリーニング技術を確立する。

2） 利用意義

様々な近似レベルを用いた量子化学計算を巧みに組み合わせたハイスループットスクリーニングの手法を確立することにより大量の（具体的には数十万個の）候補物質から所望の特性を持つ物質の探索を加速する。

デバイスから要求される特性として「非線形光学応答」であることが必要であるが、これを実現するには励起光の波長で一光子の吸収は起こらず、二光子励起で吸収される必要がある。この二光子吸収波長と二光子吸収断面積という物理量の計算は多くの励起状態を正確に計算する必要があり、多大な計算コストを要する。具体的にはTD-DFTやRI-CC2といった高い計算コストが必要となるため、これを候補物質すべてにおいて行うことは、現実的ではない。そこで本研究では候補材料を絞り込む観点から、

１．まず合成可能性や溶解度の条件を満足するか
２．特定の励起波長での二光子吸収は存在するか（定性的評価）
３．特定の励起波長での一光子吸収は存在しないか

といった、比較的負荷の軽い計算から確認できる条件から絞り込み、すべての条件を満たす候補物質を選定し、実験の候補材料とする。

目的とする分子の設計においては、分子を構成するフラグメントの組み合わせから膨大な数の候補物質が存在するため、複数の計算レベルの量子化学計算からの絞り込みはその材料探索に極めて有効である。

本スクリーニングに大規模計算機を活用することにより、探索空間を犠牲にすることなく、その開発時間の圧縮を可能にする

3） 必要性

計算スキームの確立に向けた準備計算にも高い計算負荷が必要となるうえに、その実証において数十万の候補物質からのスクリーニングを予定しているため、常時使用可能な大規模な計算リソースが必要となる。逆にその計算リソースを確保することにより大幅な開発時間の短縮を見込める。

■成果の概要

1） 本課題で得られた具体的な成果

二光子吸収候補材料として、分子構造をドナー（D）、リンカー（L）、アクセプター（A）の３つのグループのフラグメントのＳＭＩＬＥＳの組み合わせから約７０万通りの分子構造を発生させ、分子の対称性、合成難易性（ＳＡ因子）から１万９千個の分子構造を一次スクリーニングを行った。この１万９千分子に対してTD-DFTB、sTD-DFT、RI-TDDFT、TDDFTの４種類の計算レベルの励起状態計算を行い、非線形応答関数法とSum over state（SOS）法による二光子吸収断面積の計算結果の比較、並びに、考慮すべき励起状態数の比較検討を行った。

その結果、RI-TDDFTによるS99まで考慮した励起状態計算とSOS法の組み合わせが最も計算コストと二光子吸収断面積の計算値精度とのバランスが良いことが判明し、従来の二光子吸収材料を上回る吸収断面積を示す候補分子を７０個程度選定し合成候補材料として提案することが出来た。

2） 社会・経済への波及効果の見通し

現在、ICTやIoTの普及による急激な通信データー量の増加に伴い、データーセンターにおけるストレージ容量の急増とその長期的に安全な保管方法に対する技術課題の解決が急務であり、高記録密度容量の光ディスク・アーカイバーに対する需要の増加が見込まれている。

本研究で選定した候補分子は、実際に合成検証を行い次世代光ディスク用記録材料としての評価検討を行う予定であり、実用化商品化された暁にはデーターセンターにおける長期保存アーカイバーとして益々増加する通信インフラを支える光記録材料の材料設計技術になると考えられる。

3） その他

特になし。

■利用アンケートにご協力ください

1) 利用に関して有益であった事項

まずハードウェアの面において一定数の計算機を占有利用させて頂けた点は、限られた期間内において膨大な分子数のデータベース作成を行う上で非常に大きなメリットであった。特にRI-TDDFTやTDDFT等比較的計算コストが高い手法を用いた量子力学計算において、高エネルギーな励起状態を介した二光子吸収特性を理論計算・実用予測しようとすると使用メモリ量などの大きな計算機性能が要求される。このため高性能な計算機を常に複数利用できた状況は、並列で進む各分子の計算の実行状況の管理が大変ながら非常に有益であった。 またソフトウェアの面において量子力学ソフトウェアのインストールに必要な環境構築を行う上で、モジュール環境やコンパイラも充実していた点は、複数の量子力学計算ソフトウェアを使い分けて計算精度と計算コストの最適なバランスの調査を成し遂げる上でも非常にメリットが大きかった。ストレージ容量についても膨大な数の分子についての計算結果を一時的に保存しておく上で充分なサイズが用意されており、今回の膨大な数の分子の中で高い二光子吸収特性を示す候補分子の選定と実験側への提案を行う上で、滞りなく業務を進める事ができ非常に有益であった。

2) 利用に関して生じた問題点など

量子力学計算ソフトウェアによっては通常の基底状態計算とは異なり、高エネルギーの励起状態を介した二光子吸収特性の計算を行う上で1ノード内での並列数をあまり多く用いる事が出来ず、コア数に関して計算機性能を充分に使い切る事は難しかった。 また少数ではあるが、計算精度の比較のために敢えて高エネルギー励起状態を介した計算コストの非常に大きな計算を流すケースでは、計算時間の上限が1週間では計算の収束に間に合わないという問題が生じた。

3) ユーザーサポートとして必要と考えられることについて

メンテナンス期間の定期連絡や、ディスク障害に関する緊急連絡などの現状のユーザーサポート体制について特に問題は有りませんでした。サポートに分類されるか分かりませんが、OPENMPIなどインストールされていないversionのソフトウェアを個人的にインストールしたい状況に直面した際に、/home/app下のソフトウェアをインストールした際のlogファイルの様な何か履歴を参照できるものを、ユーザーがアクセス可能な場所に置いて頂く事は出来ないでしょうか?

もし可能な場合は、公式ページなどで置き場所を周知して頂ければ、ユーザーが個人的にソフトウェアをインストールする際に大変有用な情報として参考利用できると思います。

4) 施設利用に係る感想・改善を希望することについて

満足のいく環境でしたので特に要望はありません。 強いて挙げるならば、2)に述べたように占有利用において計算時間の上限についてメンテナンス間の時間長まで引き上げる事は難しいのでしょうか? という点と、占有利用の際に（メモリ数大、コア数小）の計算と（メモリ数小、コア数大）の計算をバッチ処理で投入する際のバッチ処理用スクリプト記入例などをもう少し詳しく「利用形態と制限値」のページなどに載せて頂ければ、利用の際に計算機性能を上限まで使い切り易くなるのでないかと期待します。

5) 本事業で得られた成果や公表する予定の成果があれば以降に記述をお願いします

現状、特になし。