

東京工業大学 TSUBAME 共同利用  
令和2年度利用終了課題 利用成果報告書集

東京工業大学 学術国際情報センター  
共同利用推進室

<https://www.gsic.titech.ac.jp/tsubame>



本報告書集および個別の報告書の PDF ファイルは、以下の URL にあります。

令和 2 年度採択実績および利用終了課題報告書

[https://www.gsic.titech.ac.jp/kyodou/kadai\\_r2](https://www.gsic.titech.ac.jp/kyodou/kadai_r2)

## ■ 令和 2 年度産業利用 利用成果報告書 一覧

申請課題名 所属機関／利用課題責任者	頁
大規模記事コーパスを用いたニューラルネットワークの応用に関する研究 株式会社朝日新聞社／田森秀明	1
HPC と OpenFOAM を利用した音響機器の熱流体シミュレーション フォスター電機株式会社／笹島学	7
ファイバー分散ポリマー複合材料の相分離構造シミュレーション 先端素材高速開発技術研究組合／本田隆	9
金属錯体を触媒とする CO <sub>2</sub> 還元反応の反応機構に関する理論的研究 株式会社豊田中央研究所／白井聡一	13
車載レーダにおけるターゲット反射現象と受信特性の FDTD 法による数値解析 マツダ株式会社技術研究所／山本雅史	19

■令和2年度学術利用 利用成果報告書別紙の提出免除課題 一覧  
 (利用成果を論文/学会等にて発表した要旨等の提出により提出免除)

申請課題名  論文/学会等における発表済利用成果の情報	所属機関/利用課題責任者
声のアイデンティティに関する機械学習  [1] Xin Wang, <i>et al.</i> “ASVspoof 2019: a large-scale public database of synthesized, converted and replayed speech”, <i>Computer Speech &amp; Language</i> Vol. 64, Nov. 2020, 101114 <a href="https://doi.org/10.1016/j.csl.2020.101114">DOI: 10.1016/j.csl.2020.101114</a>	国立情報学研究所コンテンツ科学研究系/山岸順一
メタ分子の光学応答解析  [1] Kentaro Iwami, Chikara Ogawa, Tomoyasu Nagase, and Satoshi Ikezawa “Demonstration of focal length tuning by rotational varifocal moiré metalens in an ir-A wavelength” <i>Optics Express</i> , Vol. 28 (24) pp. 35602–35614 (2020) <a href="https://doi.org/10.1364/OE.411054">DOI: 10.1364/OE.411054</a> [2] Ryota Izumi, Satoshi Ikezawa, and Kentaro Iwami*, “Metasurface holographic movie: a cinematographic approach”, <i>Optics Express</i> , Vol. 28 (16) pp. 23761–23770 (2020) <a href="https://doi.org/10.1364/OE.399369">DOI: 10.1364/OE.399369</a>	東京農工大学/岩見健太郎
TSUBAME3.0 における機械学習の I/O と電力評価  [1] 松下哲也, 三輪忍, 八巻隼人, 本多弘樹, TensorFlow アプリケーション用 GPU サーバにおける NVDIMM の利用可能性の検討, <i>情報処理学会研究報告</i> Vol. 2021-ARC-244, No. 16, pp. 1–6 (2021). Permalink : <a href="http://id.nii.ac.jp/1001/00210412/">http://id.nii.ac.jp/1001/00210412/</a> [2] 横手宥則, 三輪忍, 八巻隼人, 本多弘樹, Mesh TensorFlow を用いたモデル並列学習における CPU-GPU 間のデータ転送最適化, <i>情報処理学会研究報告</i> Vol. 2021-ARC-244, No. 17, pp. 1–6 (2021). Permalink : <a href="http://id.nii.ac.jp/1001/00210315/">http://id.nii.ac.jp/1001/00210315/</a>	電気通信大学/三輪忍
大規模ソフトウェア分散共有メモリスステムにおける高性能計算の研究  [1] 緑川 博子, 阪口 裕梧: “分散共有メモリスシステム mSMS におけるマルチノード・マルチ CPU・マルチ GPU プログラミング”, <i>情報処理学会, ハイパフォーマンスコンピューティング研究会報告(HPC)</i> , Vol. 2021-HPC-178, No.24, pp.1–10 (2021). Permalink : <a href="http://id.nii.ac.jp/1001/00209920/">http://id.nii.ac.jp/1001/00209920/</a>	成蹊大学/緑川博子
プロファイルおよびトレースのスケラビリティ予測に関する研究  [1] 有馬海人, 長谷川健人, 三輪忍, 八巻隼人, 本多弘樹, MPI アプリケーションの関数コール回数予測, <i>情報処理学会研究報告</i> Vol. 2021-HPC-178, No. 19, pp. 1–7 (2021). Permalink : <a href="http://id.nii.ac.jp/1001/00209915/">http://id.nii.ac.jp/1001/00209915/</a> [2] 長谷川健人, 有馬海人, 三輪忍, 八巻隼人, 本多弘樹, MPI アプリケーションのキャッシュプロファイル予測, <i>情報処理学会研究報告</i> Vol. 2021-HPC-178, No. 20, pp. 1–8 (2021). Permalink : <a href="http://id.nii.ac.jp/1001/00209916/">http://id.nii.ac.jp/1001/00209916/</a>	電気通信大学/三輪忍

申請課題名

所属機関／利用課題責任者

論文/学会等における発表済利用成果の情報

ヒト血清アルブミン-薬剤複合体構造の網羅的解析

長岡工業高等専門学校／和久井直樹

- [1] Ito, Sho, *et al.* "Structural Basis for the Binding Mechanism of Human Serum Albumin Complexed with Cyclic Peptide Dalbavancin." J. Med. Chem. Vol. 63, No. 22, pp. 14045–14053 (2020). DOI: [10.1021/acs.jmedchem.0c01578](https://doi.org/10.1021/acs.jmedchem.0c01578)

分子動力学シミュレーションによる新興再興感染症の研究

国立感染症研究所病原体ゲノム解析研究センター／横山勝

- [1] Sano K, *et al.* "An influenza HA stalk reactive polymeric IgA antibody exhibits anti-viral function regulated by binary interaction between HA and the antibody." PLoS ONE 16(1): e0245244. (2021) DOI: [10.1371/journal.pone.0245244](https://doi.org/10.1371/journal.pone.0245244)

階層性構造を有する生体有機材料の熱輸送メカニズムの解明

東京大学工学系研究科／志賀拓磨

- [1] K. Adachi, K. Daicho, M. Furuta, T. Shiga, T. Saito, T. Kodama, "Thermal conduction through individual cellulose nanofibers", Appl. Phys. Lett., Vol.118, No.5, pp.053701 (2021). DOI: [10.1063/5.0042463](https://doi.org/10.1063/5.0042463)

■令和2年度学術利用 利用成果報告書 一覧

申請課題名	所属機関／利用課題責任者	頁
アミロイド形成ペプチドの安定構造に関する自由エネルギー解析	京都工芸繊維大学／水口朋子	25
第一原理計算による電池・触媒メカニズム解明と新物質探索	物質・材料研究機構／館山佳尚	27
計算化学による固体分散体中の薬物とキャリアの相互作用の評価	千葉大学大学院薬学研究院製剤工学研究室／東頭二郎	29
廃棄物最終処分場における間隙内流体挙動の数値解析	埼玉県環境科学国際センター／鈴木和将	33
凝集誘起発光についての理論的研究	千葉工業大学工学部応用化学科／山本典史	37
分子動力学シミュレーションを用いた膜輸送タンパク質の分子機構の解明	東北大学大学院情報科学研究科／木下賢吾	41
損傷船体の縦曲げ最終強度と波浪中安全性評価に関する研究	大阪府立大学大学院工学研究科／橋本博公	43
LRnLA アルゴリズムを用いた物理シミュレーション	法政大学情報科学部／善甫康成	47
HPC を利用した自然言語処理技術の研究	情報通信研究機構 ユニバーサルコミュニケーション研究所／鳥澤健太郎	51
二次制約無し二値最適化の古典計算機による高速解法	広島大学大学院先進理工系科学研究科／中野浩嗣	53
液体金属流れ CFD 手法の開発及び核融合研究への応用	九州大学応用力学研究所／胡長洪	55
GPU クラスタを用いたミリ波帯大規模広帯域電波伝搬シミュレーション	国立研究開発法人情報通信研究機構／チャカロタイ ジェドヴィスノフ	57
ヒト抗体における構造多様性の網羅的解析	東京大学大学院医学系研究科／石川俊平	61

申請課題名 所属機関／利用課題責任者	頁
多様なデータを活用する深層学習モデルの検証 豊橋技術科学大学／後藤仁志	63
高解像度画像を使った広域の家屋及び道路の深層学習による自動判別システムの開発(4) 東京大学空間情報科学研究センター／柴崎亮介	65
革新的 4 次元イメージング法: 生体分子構造変化の高解像度解析への挑戦 東北大学大学院工学研究科応用物理学専攻／吉留崇	69
フラクタル構造を有する粗さ面の乱流熱流動の大規模直接数値解析 大阪府立大学工学研究科／桑田祐丞	71
電気コイル隙間内に流れ込む冷却液挙動に関する大規模数値解析 大阪府立大学工学研究科／金田昌之	75
揺動電磁気シミュレーションを用いた光放射現象に関する研究 新潟大学工学部工学科／櫻井篤	77
不動態皮膜の物性に関する量子化学計算 東京理科大学大学院理工学研究科／橋本永手	79



# 指定語句を確実に含む見出し生成

山田 康輔<sup>1,2</sup> 人見 雄太<sup>2</sup> 田森 秀明<sup>2</sup> 岡崎 直観<sup>3</sup> 乾 健太郎<sup>4,5</sup>

<sup>1</sup> 名古屋大学 <sup>2</sup> 株式会社朝日新聞社 <sup>3</sup> 東京工業大学 <sup>4</sup> 東北大学 <sup>5</sup> 理化学研究所  
yamada.kosuke@c.mbox.nagoya-u.ac.jp, processor.su2300@gmail.com,  
tamori-h@asahi.com, okazaki@c.titech.ac.jp, inui@ecei.tohoku.ac.jp

## 1 はじめに

Rush ら [1] の研究以降、生成型要約モデルによる新聞記事の見出し生成が広く行われている。近年では、指定語句の挿入など、生成される見出しの制御に関する研究も盛んである。たとえば、Fan ら [2] は Convolutional Seq2Seq [3] を利用し、エンコーダに入力する記事の直前に指定語句を示す 1 トークンを挿入することで、指定語句を含んだ見出しを生成するよう制御した。また、He ら [4] は BART [5] を利用し、Fan らの手法の拡張として記事の直前に指定語句と “!” を挿入することで、複数トークンの語句指定を可能にした。加えて、生成結果への指定語句の出現率を高めるために学習時に指定語句を一定の確率でドロップアウトさせている。

しかし、これらの手法は生成された見出しが指定語句を含む確率を高めることは可能だが、指定語句を含む見出しが必ず生成されるとは限らない。記事を広告として用いるネイティブ広告向けの見出し生成では、見出しに指定語句を必ず含めなければならないケースがあり、実用では指定語句が確実に含まれるような見出し制御が必要となる。

そこで本研究では、指定語句を確実に含む見出しを生成する手法として、Dual Outward Generation mechanism (DOG) を提案する。DOG は見出しを生成する際に、文頭から文末へ生成するのではなく、指定語句から文頭および文末に向かって双方向に見出しを生成することで、指定語句を必ず含む見出し生成を実現する。表 1 に Fan ら [2] と He ら [4] の従来モデル<sup>1</sup>および DOG を用い、語句を指定したときの見出し生成例を示す。また、図 1 に記事中の単語 1,2,3-gram を指定したとき、指定された語句が生成結果に含まれた割合 (指定語句出現率) を示す。

実験には日本語の新聞記事-見出しペアのコーパ

表 1: 従来モデルと DOG で語句を指定した見出し生成例

• <b>新聞記事:</b> 刈谷市の伊勢湾岸自動車道のパーキングエリア「刈谷ハイウェイオアシス」の観覧車に、シースルーゴンドラが登場した。天井を除くイスや壁、床面が透明で、足元に広がる景色を 360 度楽しめる。観覧車は高さ 60 メートルで、1 周約 12 分。
• <b>人手で作成された見出し:</b> 透明ゴンドラ登場 刈谷ハイウェイオアシスの観覧車
• <b>指定語句が「360 度楽しめる」の生成結果:</b> <b>DOG:</b> 360 度楽しめる観覧車 刈谷ハイウェイオアシス <b>He:</b> 風に誘われ、360 度楽しむ 刈谷ハイウェイオアシス <b>Fan:</b> 360 度の観覧車、シースルーゴンドラ登場 刈谷ハイウェイオアシス
• <b>指定語句が「透明ゴンドラ登場」の生成結果:</b> <b>DOG:</b> 観覧車、透明ゴンドラ登場 刈谷ハイウェイオアシス <b>He:</b> 観覧車にシースルーゴンドラ 刈谷 <b>Fan:</b> 透明な景色、360 度 刈谷ハイウェイオアシス

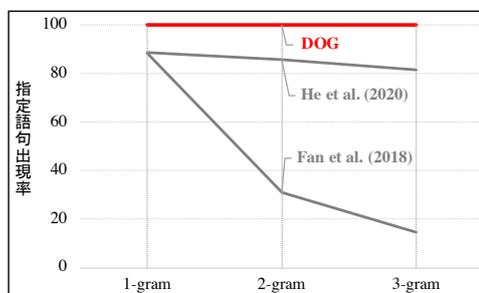


図 1: 記事中の単語の 1,2,3-gram を指定語句としたときの各モデルの生成結果の指定語句出現率

ス Japanese News Corpus (JNC) [7] の 2019 年版を利用し、指定語句出現率と自動要約の評価指標として代表的な ROUGE [8] にて提案手法を評価した。提案手法は指定語句出現率 100% を達成し、ROUGE の F 値も従来手法と同等なスコアを達成した。

## 2 提案手法

本研究では、指定語句を確実に含む見出し生成手法を提案する。具体的には、指定語句を  $W (= y_{h:t})$ <sup>2</sup>

<sup>2</sup>  $y_h$  と  $y_t$  はそれぞれ指定語句の先頭トークンと末尾トークンを示し、 $y_{h:t}$  はトークン列  $y_h \dots y_t$  を意味する。

<sup>1</sup> Seq2Seq モデルは Transformer [6] ベースに統一している。

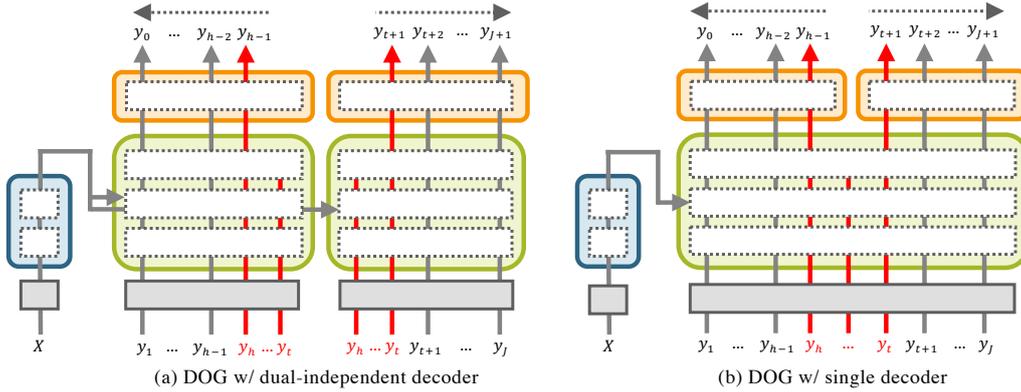


図 2: Dual Outward Generation mechanism (DOG) の概要図. 青枠が Transformer のエンコーダ, 緑枠がデコーダ, 橙枠が生成機構を示す. エンコーダからデコーダへの矢印は, エンコードされた隠れ状態をデコーダの注意機構で参照していることを指す. また, 点線の矢印は, 見出しの生成順序を示す.

として, 見出し  $Y (= y_{0:h-1}, W, y_{t+1:J+1})$  を生成する場合, 指定語句の 1 つの前のトークン  $y_{h-1}$  から文頭トークン  $y_0$  への生成と指定語句の 1 つ後のトークン  $y_{t+1}$  から文末トークン  $y_{J+1}$  への生成を同時に行うことで実現する. 提案モデルは Transformer [6] 型の Seq2Seq モデルを基本とする.

## 2.1 Transformer

Transformer [6] は注意機構をベースとしたエンコーダ-デコーダモデルである. エンコーダは自己注意機構と 2 層のフィードフォワードネットワーク (FFN) からなる Transformer Encoder 層を複数層積み上げることで構成され, デコーダは自己注意機構, 注意機構, 2 層の FFN からなる Transformer Decoder 層を複数層積み上げることで構成される. これらの入力は単語埋め込み層と位置エンコーディング層によって生成される記事と見出しの各単語の埋め込みを利用する. また, デコーダの出力から線形変換層と Softmax 層を通すことで見出しの各単語を生成する. 本研究では, これら 2 層を合わせて**生成機構**と定義する.

## 2.2 Dual Outward Generation mechanism

指定語句を確実に含む見出し生成する Dual Outward Generation mechanism (DOG) は指定語句から文頭へ向けた前向きの生成と文末へ向けた後ろ向きの生成を行うため, 生成機構を 2 つ持つ構造となる. この構造の場合, 前向きの生成機構と後ろ向きの生成機構で独立に生成するか, あるいは前向きと後ろ向きの生成機構で生成過程を共有しつつ生成するか大きく 2 つのアイデアが考えられる.

### 2.2.1 各生成機構で独立に生成するモデル

前向きと後ろ向きの生成機構で独立に生成するモデルは, 前向きと後ろ向きのトークン列を個別に入力する必要がある, 各生成機構に対応する 2 つのデコーダを持つ. 見出し生成の各ステップでは, 前向きのデコーダに指定語句と前向きの生成トークン列, 後ろ向きのデコーダに指定語句と後ろ向きの生成トークン列を入力し, それぞれ独立に単語を生成する. 本モデルを DOG w/ dual-independent decoder と定義し, 図 2 (a) に概要を示す. また, 記事のトークン列  $X$ , 見出しのトークン列  $Y (= y_{0:J+1})$ , 指定語句のトークン列  $W (= y_{h:t})$ , 指定語句から文頭までの見出しのトークン列  $\vec{Y} (= y_{0:h-1})$ , 指定語句から文末までの見出しのトークン列  $\overleftarrow{Y} (= y_{t+1:J+1})$ ,  $\vec{Y}$  の長さ  $L_{\vec{Y}} = h$ ,  $\overleftarrow{Y}$  の長さ  $L_{\overleftarrow{Y}} = J - t + 1$  とし, 式 1 のように定式化される.

$$\begin{aligned}
 P(\vec{Y}|X, W) &= \prod_{j=1}^{L_{\vec{Y}}} P(y_{h-j}|y_{h-j+1:t}, X) \\
 P(\overleftarrow{Y}|X, W) &= \prod_{j=1}^{L_{\overleftarrow{Y}}} P(y_{t+j}|y_{h:t+j-1}, X)
 \end{aligned} \tag{1}$$

本モデルのデコーダの位置エンコーディング層に入力するトークン位置は, 前向きでは指定語句の末尾を 0 としたときの距離の値, 後ろ向きでは指定語句の先頭を 0 としたときの距離の値としている.

学習時には, 前向きと後ろ向きの見出しを分けて学習させるため, 見出しを分割する必要がある.<sup>3</sup>そこで, 学習させる見出し中で無作為に 1 トークンを指定し, その位置を基準として見出しの分割を行う.

3 2.2.2 節のモデルも同様の処理が必要である.

## 2.2.2 生成機構間で生成過程を共有するモデル

2.2.1 節のモデルでは、前向きと後ろ向きでそれぞれ独立に生成しているため、見出し生成中の各ステップにおいて互いの生成機構が生成したトークンを考慮しておらず、前向きと後ろ向きで似たトークン列が生成される可能性がある。そこで、DOGの生成機構間で生成過程を共有するモデルを考える。具体的には、見出し生成中の各ステップにおいて、前向きの生成トークン列、指定語句のトークン列、後ろ向きの生成トークン列を連結して1つのトークン列にまとめて入力とする。ここではデコーダを2つ持つモデルと1つ持つモデルを検討する。デコーダが2つのモデルをDOG w/ dual decoder、デコーダが1つのモデルをDOG w/ single decoderと定義し、DOG w/ single decoderの概要を図2(b)に示す。また、式1と同様の記号を用いて、式2のように定式化される。

$$P(\vec{Y}, \vec{Y} | X, W) = \prod_{j=1}^{L_{max}} P(y_{h-j}, y_{t+j} | y_{h-j+1:t+j-1}, X) \quad (2)$$

$L_{max} = \max(L_{\vec{Y}}, L_{\vec{Y}})$  とし、 $y_{<0}$  と  $y_{>J}$  はトークン列長を揃えるための特殊トークン“<pad>”とする。

本モデルのデコーダの位置エンコーディング層に入力するトークン位置は、中央から生成していくため、指定語句の中央を0とし、それより前向きは中央からの距離を負にした値、後ろ向きは中央からの距離の値としている。

また、本モデルの学習時には、デコーダの自己注意機構で使用するマスク方法に工夫を必要とする。通常のTransformerは文頭から文末に向けて見出しを生成するため、デコーダの自己注意機構にて入力時点以降の単語を参照しないために図3(a)に示すCausal Maskを活用している。しかし、DOGでは入力時点以降の単語を参照しないだけでなく、入力時点以前の単語も参照しないようにする必要がある。このため、図3(b)に示すDual Outward Causal Mask (DOC Mask) を利用している。また、本モデルは学習時の分割した見出しを前向きと後ろ向きで長さを揃える必要があることに注意する。

## 3 実験

### 3.1 実験設定

提案手法と従来手法を比較するために日本語の新聞記事から見出しを生成するためのコーパスで

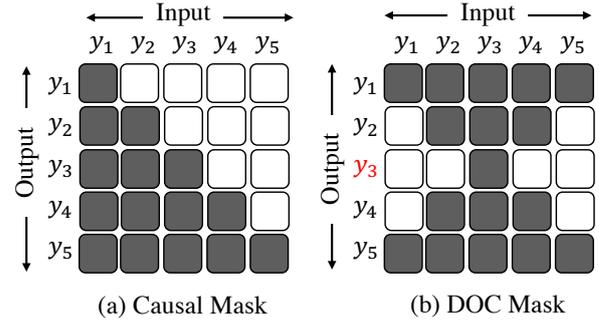


図3: Causal Mask (左)とDOC Mask (右)の概要図。白色のセルがマスクする箇所を示す。DOC Maskは学習時に $y_3$ を指定したときを示す。

あるJapanese News Corpus (JNC) [7]の2019年版を利用した。JNCには1,932,399件の記事-見出しペアが存在し、本研究ではこれらを学習セット、開発セット、テストセットとして98:1:1の比率で無作為に分割した。テキストの形態素解析にはipadic<sup>4</sup>を用いたMeCab [9]を使用し、Byte Pair Encoding (BPE)<sup>5</sup> [10]によるサブワード化を行っている。

指定語句は人手で作成された見出し中の内容語とし、評価指標にはROUGE-1, ROUGE-2, ROUGE-Lの適合率, 再現率, およびその調和平均であるF値を利用した。ROUGEによる評価する際には、人手で作成された見出しと生成された見出しから指定語句を除去している。これは従来手法では指定語句が必ず含まれた見出しになるとは限らず、本研究の提案手法では必ず指定語句が含まれた見出しとなっているため、指定語句を除去しなければ提案手法が有利な評価となってしまったためである。また、生成結果の長さを分析するために、生成された見出し数 $n$ 、生成した見出しの長さを $l_i$ 、人手で作成された見出しの長さを $len$ としてAverage Length Error (ALE) ( $= \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n l_i - len$ )を算出する。

比較する手法はTransformerをベースモデルとしたFanら[2]の手法とHeら[4]の手法とする。Fanらは記事の前に1トークンのみの指定語句を挿入、Heらは記事の前に複数トークンの指定語句と“!”を挿入し、学習時に指定語句を一定の確率でドロップアウトさせている。これらの手法の学習時の指定語句は人手で作成された見出しから抽出している。Heらの手法の学習時の指定語句は3-gramまでとする。

4 <https://taku910.github.io/mecab/>

5 <https://github.com/rsennrich/subword-nmt>

表 2: 従来手法および提案手法の実験結果. SR は指定語句出現率, P/R/F はそれぞれ適合率/再現率/F 値を示す.

	SR	ROUGE-1 P/R/F	ROUGE-2 P/R/F	ROUGE-L P/R/F	ALE	params ×10 <sup>6</sup>
Transformer [6]	52.0	55.8/50.0/51.4	29.7/26.4/27.1	46.4/41.5/42.8	-3.3	72
Fan et al. (2018) [2] (Transformer Ver.)	94.0	57.7/ <b>51.2/52.7</b>	31.1/ <b>27.4/28.2</b>	48.0/ <b>42.4/43.9</b>	-2.5	72
He et al. (2020) [4] (Transformer Ver.)	95.9	52.7/49.3/49.4	26.5/24.8/24.8	43.5/40.0/40.6	-1.2	72
DOG w/ dual-independent decoder	<b>100.0</b>	59.6/44.3/48.3	<b>33.1/24.5/26.6</b>	<b>53.9/38.7/43.1</b>	-5.8	106
DOG w/ dual decoder	<b>100.0</b>	<b>60.3/47.5/51.5</b>	32.9/25.8/27.9	50.9/40.1/43.6	-5.0	106
DOG w/ single decoder	<b>100.0</b>	59.3/47.9/51.4	31.9/25.6/27.5	50.0/40.2/43.3	-4.6	80

表 3: DOG w/ single decoder における生成例

<p>新聞記事: ▽約 1 万匹のイワシが群れて泳ぐ様子を見られる京都水族館 (京都市)。この展示に合わせ、ちょっと変わった特別スイーツが 6 月末まで販売される。▽名前は「桜といわしのパフェ」で、桜でんぶと甘辛いイワシのショウガ煮の下には、抹茶とバニラのアイスや小豆……。</p> <p>人手で作成された見出し: 「目からウロコのおいしさ」 京都水族館にイワシパフェ</p>			
指定語句	<p>桜といわしのパフェ 6 月末まで 「目からウロコのおいしさ」 泳ぐ 展示</p>	生成結果	<p>「桜といわしのパフェ」 京都水族館で特別スイーツ イワシの特別スイーツ 京都水族館、6 月末まで販売 「目からウロコのおいしさ」 京都水族館で特別スイーツ イワシ泳ぐイワシ、特別スイーツに 京都水族館 展示</p>

### 3.2 実験結果

表 2 に従来手法および提案手法の指定語句出現率 (SR), ROUGE-1, ROUGE-2, ROUGE-L の適合率, 再現率, F 値, ALE, パラメータ数 (params) を示す. 表 2 から従来手法が 95%前後の指定語句出現率なのに対し, 提案手法はモデルサイズを大きく変えずに 100%出現させることに成功している. また, 各 ROUGE の再現率は従来手法の方が高いが, 適合率は提案手法の方が高くなっており, F 値では同等のスコアとなっている. ここで, 提案手法で ROUGE の再現率が低いのは, ALE の値が小さいことから生成結果が全体的に短い傾向があるためであると考えられる. 以上の結果から, 指定語句を 100%含めた見出しを生成した上で, モデルサイズおよび ROUGE の F 値が同等である提案手法は, 実応用上においても有用であることが確認できる.

### 3.3 提案手法による見出し生成例

表 3 に DOG w/ single decoder による見出し生成例を示す. たとえば, 「桜といわしのパフェ」や「6 月末まで」のような商品名や日付情報を指定した結果, これらの語句に合わせて自然な見出しが生成できており, また, 記事中に存在しない「目からウロコのおいしさ」のようなフレーズを指定しても自然な生成ができていたことが確認できる. このような商品名や日付情報, フレーズの語句は忠実性が求められるため, 指定語句を確実に出現させる提案手法は実応用の観点で需要が高い. たとえば, プレスリ

リースを元にした記事や, ネイティブ広告の記事への見出し付与として活用が期待される.

しかし, DOG は両方向同時に生成するため, 「泳ぐ」を指定した生成例のように指定語句の前後どちらにも出現しうる単語を両方向共に生成させてしまったり, 「展示」を指定した生成例のように文頭と文末のどちらにも出現しやすいと判断された単語のときに, 両方向とも早い段階で生成を止める可能性があり, 課題が残る.

## 4 まとめと今後の展望

本研究では, 指定語句を確実に含んだ見出しを生成するために, 指定語句から文頭および文末に向かって見出しを生成する Dual Outward Generation mechanism (DOG) を提案した. JNC を用いて DOG を評価したところ, 従来手法では不可能だった指定語句出現率 100%の見出し生成を可能にし, その上で ROUGE の F 値にて同等のスコアを達成した.

実験では日本語の見出し生成を行ったが, DOG は多言語の見出し生成や機械翻訳などの他タスクにも応用可能だと考えている. DOG はモデルのデコーダ側の機構を変更したが, エンコーダ側で指定語句の位置情報などを取り込むことでスコアが改善されると考えている. また, ビームサーチなどの動的計画法による生成もスコアの改善が期待される.

## 謝辞

本研究は, 東京工業大学のスパコン TSUBAME3.0 を用いて行った.

## 参考文献

- [1] Alexander M. Rush, Sumit Chopra, and Jason Weston. A neural attention model for abstractive sentence summarization. In *Proceedings of the 2015 Conference on Empirical Methods in Natural Language Processing (ACL'15)*, pp. 379–389, 2015.
- [2] Angela Fan, David Grangier, and Michael Auli. Controllable abstractive summarization. In *Proceedings of the 2nd Workshop on Neural Machine Translation and Generation (WNMT'18)*, pp. 45–54, 2018.
- [3] Jonas Gehring, Michael Auli, David Grangier, Denis Yarats, and Yann N Dauphin. Convolutional sequence to sequence learning. In *Proceedings of the 34th International Conference on Machine Learning (ICML'17)*, pp. 1243–1252, 2017.
- [4] Junxian He, Wojciech Kryściński, Bryan McCann, Nazneen Rajani, and Caiming Xiong. CTRLsum: Towards generic controllable text summarization. *arXiv preprint arXiv:2012.04281*, 2020.
- [5] Mike Lewis, Yinhan Liu, Naman Goyal, Marjan Ghazvininejad, Abdelrahman Mohamed, Omer Levy, Veselin Stoyanov, and Luke Zettlemoyer. BART: Denoising sequence-to-sequence pre-training for natural language generation, translation, and comprehension. In *Proceedings of the 58th Annual Meeting of the Association for Computational Linguistics (ACL'20)*, pp. 7871–7880, 2020.
- [6] Ashish Vaswani, Noam Shazeer, Niki Parmar, Jakob Uszkoreit, Llion Jones, Aidan N Gomez, Łukasz Kaiser, and Illia Polosukhin. Attention is all you need. In *Advances in Neural Information Processing Systems (NeurIPS'17)*, pp. 5998–6008, 2017.
- [7] Yuta Hitomi, Yuya Taguchi, Hideaki Tamori, Ko Kikuta, Jiro Nishitoba, Naoaki Okazaki, Kentaro Inui, and Manabu Okumura. A large-scale multi-length headline corpus for analyzing length-constrained headline generation model evaluation. In *Proceedings of the 12th International Conference on Natural Language Generation (INLG'19)*, pp. 333–343, 2019.
- [8] Chin-Yew Lin. ROUGE: A package for automatic evaluation of summaries. In *Text Summarization Branches Out (WAS'04)*, pp. 74–81, 2004.
- [9] Taku Kudo, Kaoru Yamamoto, and Yuji Matsumoto. Applying conditional random fields to Japanese morphological analysis. In *Proceedings of the 2004 Conference on Empirical Methods in Natural Language Processing (ACL'04)*, pp. 230–237, 2004.
- [10] Philip Gage. A new algorithm for data compression. *C Users Journal*, Vol. 12, No. 2, pp. 23–38, 1994.



TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 産業利用 成果報告書

利用課題名 OpenFOAM による熱流体解析  
英文: Thermofluid solution by OpenFOAM

利用課題責任者 笹島 学  
Manabu Sasajima

所属 フォスター電機株式会社  
Foster Electric Co., Ltd.  
URL <http://www.foster.co.jp>

邦文抄録

自動車やテレビなどに用いられる動電型スピーカにおいて、ボイスコイルの発熱による振動系全体の温度上昇は、部品の接着層の破損や、部品自体の劣化などの原因となり、これを防止することは製品の信頼性向上のためには不可欠である。しかし、要素数が膨大となり、計算規模が大幅に増加してしまう問題が生じるため実用的な解析は困難であった。本件は TSUBAME を利用した OpenFOAM による熱流体解析を検討する。

英文抄録

The temperature rise of the entire vibration system due to the heat generated by the voice coil cause damage to the adhesive layer of the component and deterioration of the component itself. However, practical analysis has been difficult because the number of elements becomes enormous and the calculation scale increases significantly. In this case, we will consider thermo-fluid analysis by OpenFOAM using TSUBAME.

*Keywords:* OpenFOAM, Voice Coil, Thermofluid

背景と目的

自動車やテレビなどに用いられる動電型スピーカにおいて、ボイスコイルの発熱による振動系全体の温度上昇は、部品の接着層の破損や、部品自体の劣化などの原因となり、これを防止することは製品の信頼性向上のためには不可欠である。部品の温度上昇を抑えて、機器の動作や寿命を保証することが熱設計の大きな目的である。

また、熱流体解析を行うことで、部品の小型化、微細化により、細部にわたる部品の温度計測が困難の場合でも、熱流体解析を活用することで、全体の温度を詳細に把握することが可能になる。部品の温度は空気の流れや熱伝導、放射による熱移動の結果として決まる。目に見えない「空気や熱の流れ」を把握することができる。

これらを数値的な解析により検討しようとした場合、熱流体の時間領域の解析が必要となるが、数周期程度でも数千ステップの解析が必要で、周波数領域の音響解析などと比べると解析回数が膨大で、実用上許容できる解析が難しい。そこで、本課題では TSUBAME

と OpenFOAM を用いた多数の並列化を行い、時間領域での熱流体解析を、実用上許容可能なレベルでの高速化に取り組むことを目的としている。

概要

本検討では、スピーカのボイスコイル周りの熱流体解析を行った。解析モデルは 1/4 対称モデルである。解析モデルは図 1 に示すように、磁器回路の部分とボイスコイルとそれらを囲んだ空気の部分から構成される。スピーカの要素分割モデルを図 2 に示す。

また、スピーカの構成の中で、ボイスコイルと磁器回路の間隔は狭い場所で 0.02mm しかないが、ボイスコイル周りの空気の挙動を確認するために、空気メッシュを数層作成するため非常に細かく作成した。その結果、要素数は 4,344,682 個、節点数は 3,220,414 個となり、メッシュサイズは約 0.56~0.0068mm になった。

境界条件を図 3 に示す。左側面と底面は熱的に開放(空気の流入出なし)、発熱部であるコイルは 400K、その他の領域は 300K である。

400K に温度固定したボイスコイルによって暖められた空気が浮力によって上昇する。熱計算では、空気の

流体領域だけではなく、固体内の熱伝導計算も実施している。それによって、温度変化による空気の流れや空間の温度分布が確認できる。

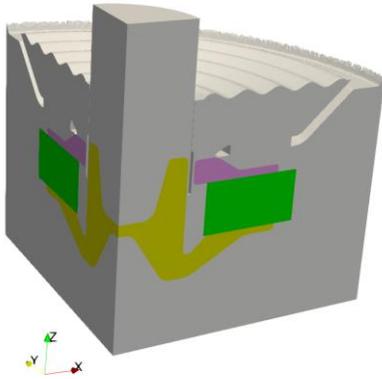


図 1 スピーカの 1/4 モデル

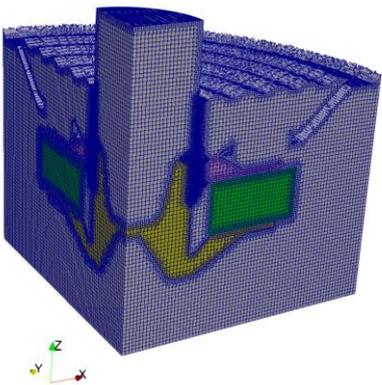


図 2 メッシュ

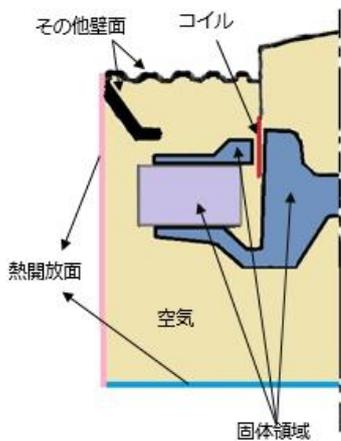


図 3 境界条件

### 結果および考察

熱流体解析結果の流速分布断面を図 4 に示す。赤は流速が速い部分、青は流速が遅い部分を示す。それら空気の流れをベクトル表示して、図 5 に示す。空気の流れ方向もはっきりと確認できた。

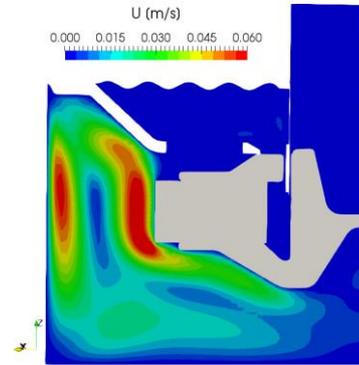


図 4 流速分布断面

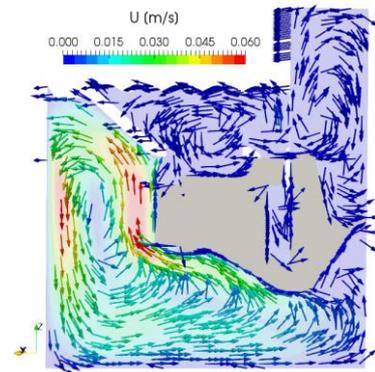


図 5 流速ベクトル

### まとめ、今後の課題

熱流体解析は測定できない部品の温度を把握することや現象の可視化などができた。また、TSUBAMEとOpenFOAMを用いた多数の並列化を行い、時間領域での熱流体解析を、実用上許容可能なレベルでの高速化に取り組むこともできた。

従来の社内で利用しているワークステーションより大幅に解析の時間短縮ができ、さらに従来では解析できなかった大規模のモデルでも解析できた。よって、本検討での目標は十分に達成できた。

今後、熱流体解析分野の部品形状の最適化と実証実験を行いつつ、スピーカの全モデルの熱流体解析を行おうと考えている。

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 産業利用 成果報告書

利用課題名 フィラー分散ポリマー複合材料の相分離構造シミュレーション  
 英文: Simulation of phase separated structures of polymeric materials with fillers

本田 隆  
 Takashi Honda

先端素材高速開発技術研究組合  
 Research Association of High-Throughput Design and Development for  
 Advanced Functional Materials (ADMAT)

<http://www.admat.or.jp/>

粒子フィラーと高分子混合系における相分離構造を計算するために、高分子の SCF 理論において、粒子フィラーを球形状に形状を固定された溶媒である DIP(Diffuse Interface Particle)として取り扱い MPI+GPGPU 大規模計算が可能なプログラム SOBA(Soft Blend Analyzer)の開発を継続した。新たな改良点として、フィラーの配置がローカルミニマムな構造に陥らないように計算途中で移動させる手法をいくつか導入した。

SOBA (Soft Blend Analyzer) is developed to calculate the phase separation structure of particle filler and polymer mixing system and use MPI + GPU computers. The SCF theory of the polymeric materials is introduced, and the particle filler is treated as DIP (Diffuse Interface Particle), which is a solvent whose shape is fixed in a spherical shape. To avoid local minimum structure, we introduced several methods of moving the filler in the SCF calculation.

*Keywords: SCF theory, polymer composite, particle filler, diffuse interface particle, phase separation*

高分子材料は、充填材とブレンドされ利用される場合が多く、タイヤ用途ではエラストマーにカーボンブラックやシリカが添加され強度や低燃費性の改良がされる。また、電気伝導性・熱伝導性を付与する高分子材料には、CNTを添加することも行われている。これらの材料物性は、フィラーの分散性に影響される。しかし、フィラーと高分子複合材料の構造解析や評価は難しく、材料の開発期間は長時間となる場合が多い。

本課題では、高性能な高分子複合材料の開発期間短縮のため、高分子の SCF 法(密度汎関数法の一つ: 以降では簡単のため SCF 法と記載する)[1,2]を利用し、フィラーの凝集構造と高分子マトリックスの相分離構造を同時にシミュレートできるプログラム Soft Blends Analyzer(SOBA)[3]の改良を行ってきた。本年度は、フィラー凝集構造を計算する方法を改良し、かつ並列化効率についてまとめた。

## 概要

1. 理論: フィラーを充填した系の高分子の SCF 法  
 フィラーの凝集構造をシミュレートするためにフィラーの境界に濃度勾配がある溶液粒子(以降では Diffuse

Interface Particle: DIP と記す)を利用した高分子の SCF 計算を用いた。DIP の形状は次のモデル式で記述される。

$$\Phi_p(\mathbf{r}) = \frac{\tanh\{\alpha(R-|\mathbf{r}-\mathbf{r}_0|)\}+1}{2} \quad (1)$$

ここで、 $\Phi_p(\mathbf{r})$ は位置 $\mathbf{r}$ における DIP 粒子の濃度分布、 $R$ はフィラー粒子の半径、 $\mathbf{r}_0$ は粒子中止の位置、 $\alpha$ は界面の幅を設定するパラメータである。

フィラーを充填した系の高分子の SCF 法の説明は、先の報告書等[4, 5]に記載したので詳細は割愛する。

## 2. フィラー間の非圧縮条件の導入

DIP が重ならない効果は、SCF 計算における非圧縮条件にて自動的に取り入れるとしてきたが、DIP 界面幅が広い場合、非圧縮条件のみではある程度 DIP が重なる場合が発生した。そこで、フィラー間の相互作用エネルギーを導入することにした。これは次式で定義される。

$$F_{pp}(\mathbf{r}) = \chi_{pp} \Phi_p(\mathbf{r}) \Phi_p(\mathbf{r}) \quad (2)$$

ここで、 $\chi_{pp}$ はフィラー用の相互作用パラメータである。

## 3. 粒子形状の導入方法の改良

ローカルミニマムな相分離構造にトラップされるのを

防ぐ方法として、計算初期に DIP の粒子形状を導入せず相分離を先行させ、あとから粒子形状を導入する方法が有効であることがわかった。

#### 4. フィラーの移動方法の改良

DIP を高分子マトリックス内で移動させるのに、以下のような簡易な動力学モデルを利用していた。

$$\frac{d\mathbf{r}_0}{dt} = D_e f(\mathbf{r}) \quad (3)$$

ここで、 $D_e$  は疑似的な易動度で時間の効果も考慮されている、 $f(\mathbf{r})$  は SCF 法で得られた力であり、この式は粒子を働く力  $f(\mathbf{r})$  の方向に微小移動させることを意味する。このモデルは高分子マトリックスが高粘度で慣性力が無視できる場合に導入できる。しかし、このモデルでは SCF 計算の収束性がよい場合、粒子はあまり移動せずローカルミニマムな相分離構造に収束することが多いことが判明した。そこで、次式による疑似的な粒子の慣性を導入した。

$$\frac{d\mathbf{r}_0^{i+1}}{dt} = v^{i+1}(\mathbf{r}) = v^i(\mathbf{r}) + D_e f^{i+1}(\mathbf{r}) - \eta v^i(\mathbf{r}) \quad (4)$$

ここで、上添え字  $i$  はスキームの番号を意味し  $v^i$  は  $i$  番目のスキームにおける疑似的な速度であり、右辺の式において第 1 項の  $i$  番目の速度は第 2 項の  $i+1$  番目の力の効果が加えられ  $i+1$  番目の速度に更新される。しかし、それだけでは力の効果が積分されて粒子の移動が止まらなくなるので、第 3 項による疑似的な粘性係数  $\eta (>0)$  を導入して移動を抑制する。この  $\eta$  は初期値 0 とし、スキーム毎に増加させ、最終的に 1 とし、式 (4) を最終的には式 (3) と同等とする。

### 結果および考察

#### 1. モデル系

鎖長  $N=10$  のポリマー A/B 熔融系(組成 0.5:0.5)に  $R=4$ 、 $\alpha=3$ 、 $D_e=0.0015\sim 0.015$  の DIP フィラーを添加した場合をベンチマーク用のモデルとして評価した。DIP は 100SCF 毎に移動させた。大規模系でのフィラーの初期配置は、最初に面心立方格子状の位置座標を発生し、モンテカルロ法により空いている位置座標に粒子を配置する方法をとった。

#### 2. 粒子形状の導入方法の改良

図 1 に示すのは粒子形状の導入方法を変化させた場合の相分離構造の変化であり、状態変化がわかるよ

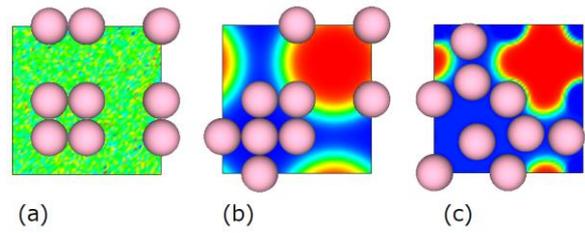


Figure 1. Phase separated structure of DIPs in an A/B polymer blend  
System size is  $32^3$ ,  $\chi_{PP}=10^6$ , two-dimensional system and periodic boundary conditions were introduced. (a) initial structure, (b) after 50 step without the shape of DIPs, (c) after 100 step with the shape of DIPs.

うに 2 次元の小さい系での 4 FlatMPI 計算の例である。(a): 計算初期の無秩序状態、(b): DIP 粒子の形状を導入しない相分離の先行による相分離構造、(c): DIP の形状を導入した後の相分離構造を示す。(b) の状態では相分離構造は粒子形状の影響を受けないので滑らかな界面形状を有している。その後粒子形状を導入するので最終的な構造(c)では相分離界面に粒子が存在し、界面は粒子形状の影響を受け、粒子配置も密な六方配置に変化している。

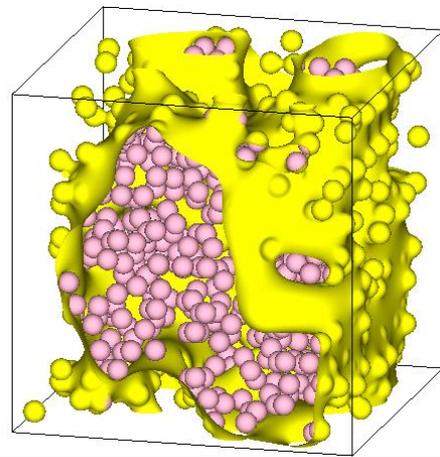


Figure 2. Phase separated structure of DIPs in an A/B polymer blend  
System size  $128^3$ , mesh size  $256^3$ ,  $\chi_{PP}=10^6$ , periodic boundary conditions were introduced. The number of DIPs is 782 and the volume fraction of the DIPs is 0.1.  $\chi_{AB}=\chi_{AP}=0.4$ .

#### 3. フィラーの移動方法の改良

図 2 に示すのは、粒子形状を無視する方法と疑似的な慣性を導入した方法を組み合わせて求めた相分離構造の一例であり、A/B ポリマーの相分離界面の等値面と DIP 粒子の配置を図示した。最初に、粒子形状を

無視する方法+疑似的な慣性を導入した方法による計算を 50 ステップ行い( $\eta = 1 - 0.999^i$ )、次に粒子形状を導入する計算のみを 50 ステップ行った結果である。構造はマクロ相分離であり、DIP 粒子との相互作用が無い B セグメントのドメイン内に DIP 粒子が移動していることがわかる。図 3 に示すのは、図 2 と同じ条件で A/B 間の相互作用パラメータ  $\chi_{AB}$  と A セグメント/DIP 間の相互作用パラメータ  $\chi_{AP}$  を同等な  $\chi = \chi_{AB} = \chi_{AP}$  として変化させた場合のフィラーの 2 体相関関数の比較である。面心立方格子状の位置は充填構造として安定位置に近いが、体積分率が 0.1 としてあるので、 $\chi$  が大きくなると DIP は凝集し、第一ピークが低  $r$  側にわずかに移動することがわかる。

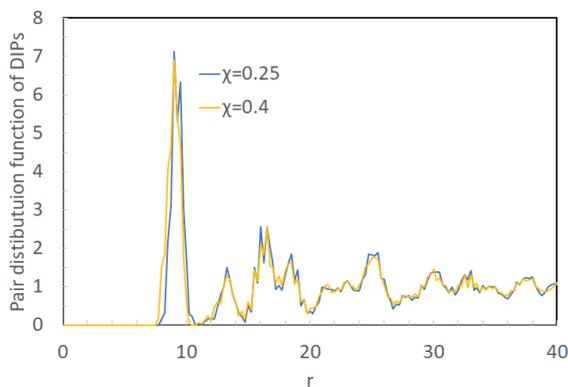


Figure 3.  $\chi$  parameter dependence of pair distribution function of DIPs

The condition is almost same as Figure2 but  $\chi = \chi_{AB} = \chi_{AP}$  are changed.

#### 4. 並列化効率

本課題で利用した SOBA の SCF 計算の並列化効率を計測したのでそれも報告する。標準とした問題は、高分子のマイクロ相分離構造である Gyroid を計算する SCF 計算であり、この問題では、経路積分 (場の exp 演算や四則演算を伴うステンシル計算) 等を  $100 \times 2 \times 100$  回行う演算を行う。システムサイズと並列数を変化させ計算効率を計測した。システムは全て周期境界条件とした。基本ユニットセルのメッシュサイズは  $32^3$  とした。利用した GPU は P100, CPU は Xeon E5-2697A V4 である。

##### 1GPU と 8GPU での計算効率

システムサイズを変化させた場合の 1GPU、CPU のみの FlatMPI (ここでの CPU 数はコア数を意味

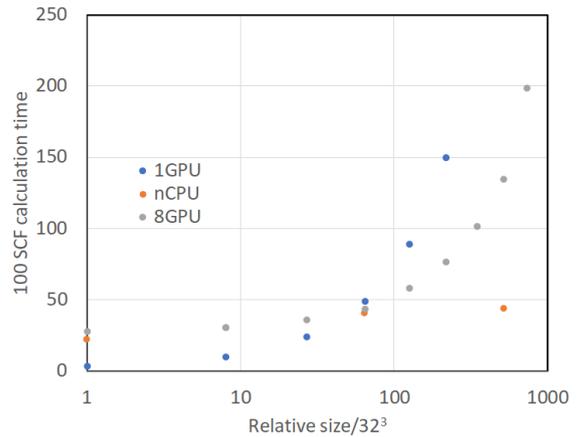


Figure 4. Comparison of calculation times [sec] for various system sizes

する)、および 8 (MPI+GPU) 計算での計算時間を図 4 に示す。CPU 数は横軸の値 (基本ユニットセルの倍数) と同じである。メッシュサイズが 64 倍未満では 1GPU の計算が早く、その後は MPI 計算が高速となる。メッシュサイズが 512 倍では、512CPU の FlatMPI 計算が高速であるが、8GPU を利用しても 3 倍程度の計算時間の増加で済む。

次に、GPU を利用する場合、できるだけ GPU のメモリを利用するジョブの方がコストパフォーマンスに優れるので、1GPU のみでの並列化効率  $\beta$  を測定した結果を図 5 に示す。 $\beta$  は次の式で定義される。

$$\beta = \frac{T_1}{T_n}$$

ここで、 $T_1$  は基本ユニットでの計算時間、 $T_n$  はシステム

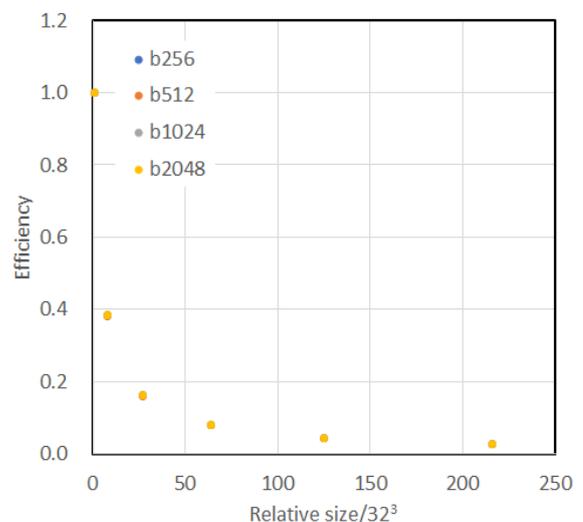


Figure 5. Calculation efficiency using 1 GPU "b" means the block size of CUDA calculation.

サイズを  $n$  倍した場合の計算時間である。システムサイズを大きくすると計算効率は低下するが、216 倍 (メッシュサイズ  $192^3$ ) のシステムサイズにしても効率は 2.6% 程度を維持しており、理論的な推算値  $1/216=0.46\%$  より 5 倍以上効率がよく、CUDA コアの並列計算により高速化されていることがわかる。また、CUDA 計算におけるブロック数を変化させてみたが、その影響は無視できる程度であることも分かった (点はほとんど重なっている)。

### MPI+GPU での並列化効率

GPU のメモリを多く利用する計算を行わないと計算のコストパフォーマンスはよくなるので、基本ユニットセルのメッシュサイズを  $192^3$  とし、 $n$ (MPI+GPU) 計算における並列化効率  $\beta$  を計測した結果を図 6 に示す。この場合  $\beta$  はウィーク・スケーリングの計算効率となる。図 6 中に示すキーの右脇の数字  $xyz$  は各方向へ拡張した領域の数でシステムのトポロジーの違いを意味する。 $xyz$  の積が MPI プロセス数  $n$  になる。最大のシステムサイズは  $xyz=666$  で基本ユニットの 216 倍である。この大きさでも計算効率は基本ユニットの 53% 程度である。 $xyz=122, 212, 221$  の場合効率が低下するが、これは 1 ノード内 (4GPU) の計算になる。何等かの計算効率の低下が発生しているようであるが理由は不明である。図 6 の Y 軸は各点の差異がわかるようにスケールを拡大してあるが、この計測でわかったことは、

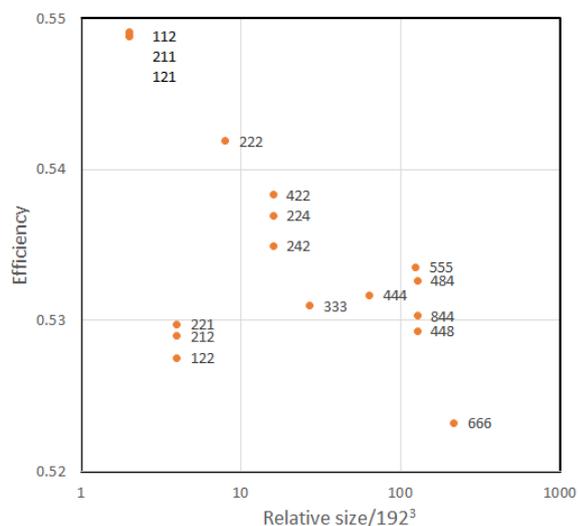


Figure 6. Calculation efficiency of weak scaling

システムサイズを大きくしても計算効率は 50% 程度で停滞するというので、MPI+GPU 並列の効果が大規模系でも発揮できているといえる。

### まとめ、今後の課題

フィラーが分散した高分子熔融系の相分離構造のローカルミニマムな構造を避ける手法を開発することができた。この手法は、今後高分子複合材料の相構造を予測する上で有用な技術となると考える。また、DIP 粒子間に粗視化ポテンシャルを与えることにより繊維状のフィラーを含む系の相分離構造の予測も可能となる。

開発したプログラムは、<http://octa.jp/> より SOBA Ver.3. や SUSHI1.1 として公開予定である。

今後は、様々な大きさや形状のフィラーを含む複合材料や、個体壁表面への密着性等の様々な高分子複合材料のアプリケーションの例を増やしてゆきたい。さらに、粒子の動力学における GPU を利用した並列計算の改良や、SCF 法の高速化にも取り組んでゆきたい。

### 謝辞

この成果は、国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構 (NEDO) の委託業 (JPNP16010) の結果得られたものです。

### 参考文献

- [1] 公益社団法人 新化学技術推進協会 (編集)、“増補版 高分子材料シミュレーション: OCTA 活用事例集”、化学工業日報社 (2017).
- [2] T. Honda and T. Kawakatsu, “Applications of SUSHI in OCTA system” in Nanostructured Soft Matter: Experiments, Theory and Perspectives, A. V. Zvelindovsky, ed., Springer-Verlag (2007).
- [3] <http://octa.jp/> にて公開中 (アカウント取得と login が必要であるが利用は無料) (2020).
- [4] 本田 隆、“フィラー分散ポリマー複合材料の相分離構造シミュレーション”、TSUBAME 共同利用 平成 30 年度 産業利用 成果報告書
- [5] H. Morita, M. Toda and T. Honda, *Polymer Journal*, **48**, 451 (2016).

## TSUBAME 共同利用 令和2年度 産業利用 成果報告書

金属錯体を触媒とする CO<sub>2</sub> 還元反応の機構に関する理論的研究  
Theoretical study on the reaction mechanism of CO<sub>2</sub> reduction reaction utilizing metal complexes.

白井 聡一  
Soichi Shirai

株式会社 豊田中央研究所  
Toyota Central R&D Labs., Inc.  
<https://www.tytlabs.co.jp/>

人工光合成の実用化に向け、CO<sub>2</sub> 還元反応の機構解明が求められている。本研究では ab initio 量子化学計算を用い、Ru(bpy)(CO)(MeCN)Cl<sub>2</sub> を触媒とする HCOOH 生成、CO 生成および副反応となる H<sub>2</sub> 生成について、実験および計算から推定されている反応機構の自由エネルギーダイアグラムを評価した。反応が進行する配位座が axial 位の場合と equatorial 位の場合を計算した結果、ダイアグラムに大きな差異は無く、いずれの配位座でも同様の機構によって反応が進行すると予測された。また、bpy 上に導入される置換基が反応の障壁に与える影響も解析した。電子密度の低い中間体が置換基の影響を受けやすく、その安定性の変化に起因して反応の障壁が増減する機構が示唆された。

It is of importance to finding out the mechanism of CO<sub>2</sub> reduction reaction toward the practical use of artificial photosynthesis. In this study, free energy diagrams of HCOOH/CO/H<sub>2</sub> generation reactions were evaluated using ab initio quantum chemical calculations. The reaction mechanisms were hypothesized based on experimental results and calculations. Here, the H<sub>2</sub> generation is a side reaction. The calculation results suggested that the three reactions at the axial position proceed in a similar manner with those at the equatorial position. The effects of substituents introduced on the bpy ligand were also investigated. The reactions could be seriously affected through stabilization/destabilization of intermediates with low electron density.

*Keywords:* CO<sub>2</sub> reduction, photocatalysis, metal complex, reaction mechanism, DFT calculation

## 1. 背景と目的

太陽光エネルギーを利用して水 (H<sub>2</sub>O) と二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) から有機物を生成する人工光合成は、エネルギー問題と地球温暖化を同時に解決する技術として注目されている。当所は、外部バイアスを必要としない人工光合成を世界に先駆けて提案し[1]、その効率の向上を図ってきた[2]。一方、実用化に向けては、更なる効率の向上、貴金属使用量の低減、低 CO<sub>2</sub> 濃度下での駆動などが求められている。これらを達成する上で、CO<sub>2</sub> 還元反応の機構解明は重要と考えられる。

CO<sub>2</sub> 還元反応の触媒として知られる Ru(bpy)(CO)<sub>2</sub>Cl<sub>2</sub> (bpy: 2,2'-ビピリジン) の CO 配位子を光配位子交換反応によりアセトニトリル (MeCN) に置換した Ru(bpy)(CO)(MeCN)Cl<sub>2</sub> は、より高い活性を示し、半導体と組み合わせたハイブリッド光電極上でも機能することが見出された[3]。そこで、量子化学計算を用い、この錯体を触媒とする CO<sub>2</sub> 還元反応の機構解

明を進めている。

これまでは、Ru(bpy)(CO)(MeCN)Cl<sub>2</sub> が axial 位で連結した多量体構造を形成することを想定し、equatorial 位 (bpy 配位子の分子面に水平の方向) で進行する CO<sub>2</sub> 還元反応を解析してきた。しかしながら、ハイブリッド光電極では、bpy 配位子にアルキルピロール基を導入し、錯体をポリマー化して用いる[3]。ポリマー中の錯体は分子運動が制限されるため、多量化せずに単量体として存在する場合もあると考えられる。また、CO<sub>2</sub> 還元反応の触媒となる Ru 錯体の中には axial 位で進行する反応機構[4]が提案されているものもある。このことから、単量体として存在する場合は、axial 位でも反応が進行する可能性がある。多量化の起点となりえることを考慮すると、axial 位の方が equatorial 位よりも反応性が高く、より効率的に反応が進行する可能性もある。そこで本研究では、axial 位で進行する反応について自由エネルギーダイアグラムを計算し、

equatorial 位で進む反応と比較した。

また、bpy 配位子上のアルキルピロール基はエステル基を介して導入されるが、エステル基の電子求引性と反応の障壁との相関は明らかになっていない。そこで、エステル基を省いたモデルの計算を行い、その影響を解析した。

## 2. 方法

### 2.1. 計算を行った反応機構

図 1 に示す錯体を触媒とする反応を計算した。錯体のポリマー化を目的として bpy 配位子上に導入されるアルキルピロール基は、メチルエステル (COOMe) 基でモデル化した。

次に、計算を行った反応機構を表 1 に示す。表中の X は axial 位もしくは equatorial 位の Cl を除いた部位を表す。副反応となる H<sub>2</sub> 生成についても計算を行った。各反応の開始となるステップ (f-1, c-1, h-1) は、実際の反応の活性種と考えられる X(OH<sub>2</sub>) とした。

また、エステル基の影響は、bpy 配位子上の COOMe を H とした錯体について同様の計算を行って解析した。

表 1. 計算を行った反応の機構

ステップ	反応系・生成系
<u>HCOOH 生成</u>	
f-1	X(OH <sub>2</sub> ) (aq) + CO <sub>2</sub> (g) + 2H <sup>+</sup> (aq) + 2e <sup>-</sup>
f-2	X(OCO) (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + 2H <sup>+</sup> (aq) + 2e <sup>-</sup>
f-3	[X(OCHO)] <sup>+</sup> (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + H <sup>+</sup> (aq) + 2e <sup>-</sup>
f-4	X(OCHO) (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + H <sup>+</sup> (aq) + e <sup>-</sup>
f-5	[X(OCHOH)] <sup>+</sup> (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + e <sup>-</sup>
f-6	X(OCHOH) (aq) + H <sub>2</sub> O (aq)
f-7	X(OH <sub>2</sub> ) (aq) + HCOOH (aq)
<u>CO 生成</u>	
c-1	X(OH <sub>2</sub> ) (aq) + CO <sub>2</sub> (g) + 2H <sup>+</sup> (aq) + 2e <sup>-</sup>
c-2	X(COO) (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + 2H <sup>+</sup> (aq) + 2e <sup>-</sup>
c-3	[X(COO)] <sup>-</sup> (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + 2H <sup>+</sup> (aq) + e <sup>-</sup>
c-4	X(COOH) (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + H <sup>+</sup> (aq) + e <sup>-</sup>
c-5	X(CO) (aq) + 2H <sub>2</sub> O (aq)
c-6	X(OH <sub>2</sub> ) (aq) + CO (g) + H <sub>2</sub> O (aq)
<u>H<sub>2</sub> 生成</u>	
h-1	X(OH <sub>2</sub> ) (aq) + 2H <sup>+</sup> (aq) + 2e <sup>-</sup>
h-2	[X(H)] <sup>+</sup> (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + H <sup>+</sup> (aq) + 2e <sup>-</sup>
h-3	X(H) (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + H <sup>+</sup> (aq) + e <sup>-</sup>
h-4	[X(H <sub>2</sub> )] <sup>+</sup> (aq) + H <sub>2</sub> O (aq) + H <sup>+</sup> (aq)
h-5	X(H <sub>2</sub> ) (aq) + H <sub>2</sub> O (aq)
h-6	X(OH <sub>2</sub> ) (aq) + H <sub>2</sub> (g)

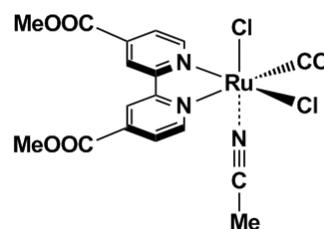


図 1. Ru{4,4'-(COOMe)<sub>2</sub>bpy}(CO)(MeCN)Cl<sub>2</sub> の分子構造

### 2.2. 計算の概要

量子化学計算を用い、表 1 の各ステップの自由エネルギーを求めた。その値を用いてステップ間の自由エネルギー変化 ( $\Delta G$ ) を計算し、その積算値をプロットして自由エネルギーダイアグラムを作成した。実際のステップ間には遷移状態が存在する可能性があるが、分子構造の不安定さや候補となる構造が多く存在するため、一般的に計算が困難である。そこで、ダイアグラム上で最も大きく自由エネルギーが増大するステップを (便宜上の) 障壁とした。複数のステップで連続して自由エネルギーが増大する場合は、それらの合計を障壁とみなした。

### 2.3. 計算条件

計算手法として ωB97XD を汎関数とする密度汎関数法 (density functional theory, DFT)、基底関数系として Ru に CEP-121G、その他の元素に 6-311++G(d,p) を用いた。H<sup>+</sup>(aq) 以外の水中の分子種の計算では、連続分極体モデル (polarizable continuum model, PCM) を適用し、水の溶媒効果を考慮した。全ての計算は、汎用プログラム Gaussian を用いて行った。

各分子種のギブス自由エネルギー  $G$  は、構造最適化および振動計算により求めた。H<sup>+</sup> の水和自由エネルギーを H<sup>+</sup>(aq) の自由エネルギー  $G[\text{H}^+(\text{aq})]$  とし、最も正確に見積もられた値として知られる  $G[\text{H}^+(\text{aq})] = -265.9 \text{ kcal/mol}$  を採用した [5]。また、e<sup>-</sup> の自由エネルギー  $G[\text{e}^-]$  は、各反応の最初と最後のステップの自由エネルギーが等しくなる電子の化学ポテンシャル (平衡電位) とした。

### 3. 結果および考察

#### 3.1. axial 位と equatorial 位の比較

計算により得られた自由エネルギーダイアグラムを図 2 に示す。ダイアグラムの形状は、axial 位と equatorial 位で顕著な差異は見られなかった。よって、axial 位でも、equatorial 位と同様の機構で CO<sub>2</sub> 還元反応(HCOOH 生成および CO 生成)および H<sub>2</sub> 生成反応が進行すると考えられる。

HCOOH 生成では、f-5 から f-6 を経て f-7 に至る過程が最も大きな  $\Delta G$  の増大を伴い、反応の障壁と予測された(図 2(a))。一方、axial 位と equatorial 位のエネルギー差は f-3 および f-4 で比較的大きく、axial 位の方が高かった。その理由を明らかにするため、これらのステップに現れる中間体の分子構造および HOMO (highest occupied molecular orbital, 最高被占有分子軌道)を解析した(図 3 および図 4)。HOMO は主に bpy 配位子上に広がっている。axial 位における反応では、CO<sub>2</sub> の一電子還元種である OCHO が空間的に bpy 上に位置しており、HOMO の反発を受ける。それに対し、equatorial 位の OCHO は HOMO とは Ru を隔てて反対側にあり、このような反発を受けにくい。ゆえに、f-3、f-4 のエネルギーは axial 位の方が高くなると考えられる。

CO 生成は、配位座によって障壁となるステップが異なり、equatorial 位が c-1 から c-3、axial 位が c5 から c6 と予測された(図 2(b))。ただし、その差は計算誤差(0.1 eV)以下のため、いずれが障壁となるかを厳密には断定できない。ステップ c-2 から c-3 は電極から錯体に電子が移動する過程であり、c-3 から c-4 はプロトンが付加する過程である。計算では、これらを分けて扱ったが、電子の負電荷は、正電荷のプロトンを引き付ける

と考えられる。同様に、正電荷を持つプロトンの付加は電子移動を誘起しうる。したがって、これらの過程は協奏的に起こる可能性がある。この機構によってステップ c-2 から c-4 までの障壁がより低いとすると、axial 位および equatorial 位のいずれも、後半の c-5 から c-6 までが反応の障壁となり得る。

H<sub>2</sub> 生成については、h-3 から h-4 を経て h-5 に至る過程が障壁と予測された(図 2(c))。反応の障壁は、axial 位の方が equatorial 位よりも低いと予測された。これは、特にステップ h-4 のエネルギーが axial 位の方が低いためと考えられる。その原因を明らかにするため、h-4 に現れる中間体の分子構造および中間体の正電荷の分布に対応する LUMO (lowest unoccupied molecular orbital, 最低空分子軌道)を比較した(図 5)。axial 位の反応では H<sub>2</sub> が Ru に結合しているのに対し、equatorial 位の反応では H<sub>2</sub> が Ru から脱離している。LUMO は主に bpy 上に広がっている。axial 位の H<sub>2</sub> は、その LUMO に近く、正電荷に引き付けられるため、Ru 上に残っていると考えられる。一方、equatorial 位の H<sub>2</sub> は、Ru を隔てて bpy 配位子から距離が遠いため、正電荷との相互作用が弱く、脱離しやすいと考えられる。H<sub>2</sub> と正電荷の相互作用の有無が、h-4 におけるエネルギー差に対応すると解釈できる。

反応の障壁は、HCOOH 生成が約 0.9 eV、CO 生成が約 0.7 eV、H<sub>2</sub> 生成が約 0.8 eV と予測された。過電圧によって障壁がより低減することを考慮すると、いずれも室温で進行する可能性がある。しかしながら、実験では HCOOH 生成が最も高い割合で生成しており、障壁の大きさと対応しない。このことから、多量化した錯体が触媒となる機構や、二座以上の配位座が関与した機構が存在する可能性があると推測された。

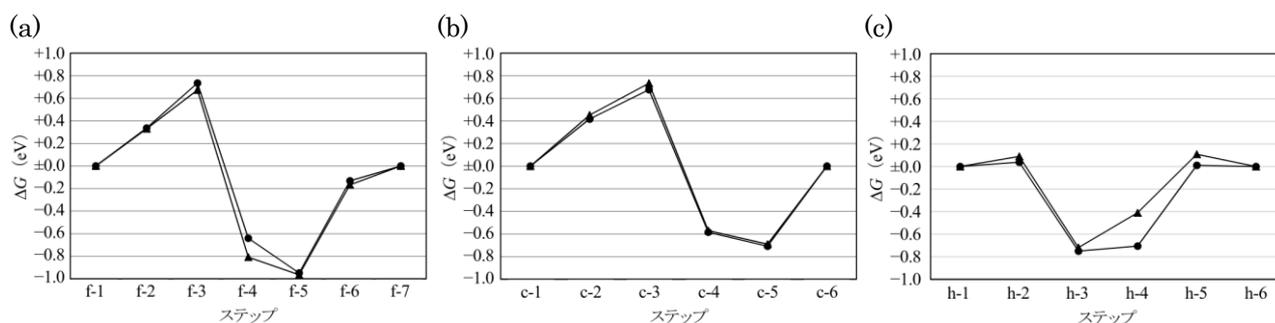


図 2. 計算により得られた自由エネルギーダイアグラム (a) HCOOH 生成, (b) CO 生成, (c) H<sub>2</sub> 生成 (●: axial 位, ▲: equatorial 位)

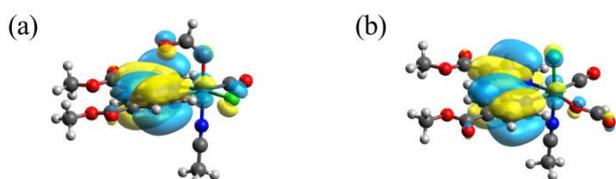


図 3. ステップ f-3 に現れる X(OCHO)の分子構造および HOMO (a) axial 位, (b) equatorial 位

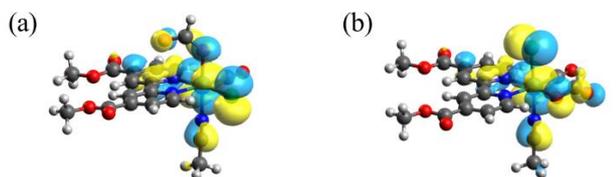


図 4. ステップ f-4 に現れる X(OCHO)の分子構造および HOMO (a) axial 位, (b) equatorial 位

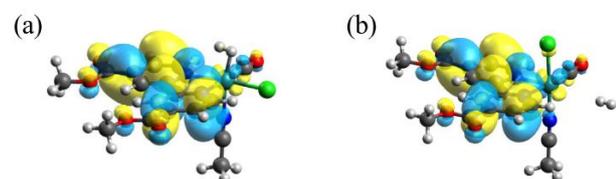


図 5. ステップ h-5 に現れる X(H<sub>2</sub>)の分子構造および LUMO (a) axial 位, (b) equatorial 位

### 3.2. エステル基の影響の解析

計算により得られた自由エネルギーダイアグラムを図 6 に示す。エステル基の無い錯体を触媒とする反応はエステル基のある錯体の場合より全体的に  $\Delta G$  が低い。特に、各反応の最安定となるステップ (f-5, c-4, h-3) のエネルギーが低下する結果、いずれの反応も障壁が増大すると予測された。

HCOOH 生成では、ステップ f-3 や f-5 に現れる中間体がプロトンの付加によって +1 の電荷を帯びており、電子密度が低い。ゆえに、電子求引性の COOMe 基が無い方が安定となりえる。H<sub>2</sub> 生成でも、ステップ h-2 や h-4 に +1 の電荷を帯びた中間体があり、これらのエ

ネルギーの低下がダイアグラムを全体的に押し下げている。また、CO 生成では、C 側で配位した CO<sub>2</sub> およびその還元中間体の多くが電子求引的となるため、COOMe 基が無い方が全体的に安定となり得る。これらの結果、いずれの場合も最安定となるステップから錯体が出発の構造に戻るのにより大きなエネルギーが必要となり、障壁が増大すると解釈できる。

以上の計算結果は、電子密度の低い中間体が bpy 上に導入された置換基の影響を特に受けやすく、その安定性の変化に起因して障壁が増減する機構を示唆する。よって、反応の障壁に支配的に関与する中間体と、その電子密度が錯体触媒の分子設計を検討する上で鍵になり得ると考えられる。

### 4. まとめ、今後の課題

Ru(bpy)(CO)(MeCN)Cl<sub>2</sub> を触媒とする CO<sub>2</sub> 還元反応 (HCOOH 生成および CO 生成) と、その副反応である H<sub>2</sub> 生成について、錯体の axial 位で進行する反応の自由エネルギーダイアグラムを計算し、equatorial 位で進行する反応と比較した。いずれの反応についても、ダイアグラムに大きな差異は無く、axial 位でも同様の機構によって反応が進行すると予測された。ただし、障壁の序列は HCOOH 生成が優位となる実験結果と対応しなかった。多量化した錯体あるいは二座が関与して進行する反応が寄与している可能性があり、今後、解析を進める必要がある。また、bpy 上に導入される置換基の影響も解析した。電子密度の低い中間体が特に置換基の影響を受けやすく、その安定性の変化に起因して反応の障壁が増減する機構が示唆された。今後は本結果を踏まえ、より高い活性および生成物選択性が見込める触媒を理論的に設計し、提案することが求

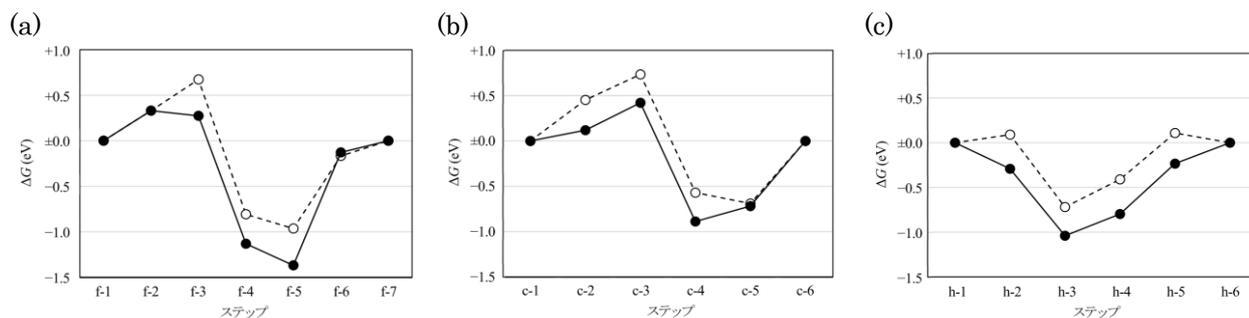


図 6. 計算により得られた自由エネルギーダイアグラム (a) HCOOH 生成, (b) CO 生成, (c) H<sub>2</sub> 生成 (●: Ru(bpy)(CO)(MeCN)Cl<sub>2</sub>, ▲: Ru{4,4'-(COOMe)<sub>2</sub>bpy}(CO)(MeCN)Cl<sub>2</sub>)

められる。

【謝辞】

本研究は、JSPS 科研費 JP19K05516 の助成を受けたものである。

【参考文献】

- [1] Sato, S.; Arai, T.; Morikawa, T.; Uemura, K.; Suzuki, T. M.; Tanaka, H.; Kajino, T., Selective CO<sub>2</sub> Conversion to Formate Conjugated with H<sub>2</sub>O Oxidation Utilizing Semiconductor/Complex Hybrid Photocatalysts. *J. Am. Chem. Soc.* **2011**, *133* (39), 15240–15243.
- [2] Arai, T.; Sato, S.; Morikawa, T., A monolithic device for CO<sub>2</sub> photoreduction to generate liquid organic substances in a single-compartment reactor. *Energy Environ. Sci.* **2015**, *8* (7), 1998–2002.
- [3] Sekizawa, K.; Sato, S.; Arai, T.; Morikawa, T., Solar-Driven Photocatalytic CO<sub>2</sub> Reduction in Water Utilizing a Ruthenium Complex Catalyst on p-Type Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> with a Multiheterojunction. *ACS Catalysis* **2018**, *8* (2), 1405–1416.
- [4] Kuramochi, Y.; Ishitani, O.; Ishida, H., Reaction mechanisms of catalytic photochemical CO<sub>2</sub> reduction using Re(I) and Ru(II) complexes. *Coord. Chem. Rev.* **2018**, *373*, 333–356.
- [5] Kelly, C. P.; Cramer, C. J.; Truhlar, D. G., Aqueous Solvation Free Energies of Ions and Ion–Water Clusters Based on an Accurate Value for the Absolute Aqueous Solvation Free Energy of the Proton. *J. Phys. Chem. B* **2006**, *110* (32), 16066–16081.



## TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 産業利用 成果報告書

車載レーダにおけるターゲットからの反射現象と受信特性の FDTD 法による数値解析  
Numerical analysis of target reflection and reception characteristics in automotive radar by FDTD  
method

山本 雅史  
Masashi Yamamoto

マツダ株式会社  
Mazda Motor Corporation  
<http://www.mazda.co.jp>

RCS(Radar Cross Section)はターゲットからのレーダ反射強度を示す重要な特性であるが、RCS 計算式の適用範囲外である近距離に存在する車両ターゲットに対して、RCS と反射波電力を比較解析した例は少ない。今回、TSUBAME3.0 を活用し、実際の車載レーダ周波数(24GHz)、実物大の 3-D 車両 CAD モデルを用いて、RCS と反射波電力を FDTD 法(Finite Difference Time Domain method)で比較解析した。結果、反射波電力から換算した RCS の角度特性は、計算式から求めた RCS の角度特性と一致しない所があった。ただし、RCS の角度特性の変動幅はほぼ一致していた。これにより、近距離の場合でも車両ターゲットのヨー角を変化させたときの受信電力の変動幅を RCS 変動から見積もることができる可能性を確認した。

RCS (Radar Cross Section) is an important characteristic to estimate intensity of reflected wave from a target, but there are few studies on comparison analysis between reflected power from a target vehicle and RCS for it in the case where the target exists at a short distance from a radar antenna, which means it exists out of the RCS definition. This study addresses comparison analysis between RCS and reflected power by the FDTD method with an actual onboard radar frequency of 24GHz and full-sized 3D vehicle CAD model, using TSUBAME3.0. As a result, the angle characteristics of the estimated RCS from the reflected power calculated by the FDTD was not partially coincident with the one of RCS, but the both fluctuation ranges were almost the same. Therefore, it was confirmed that the fluctuation range of the received power with changes in the yaw angle of the target vehicle could be estimated from the RCS fluctuation even when the target is at a short distance from the radar antenna.

*Keywords:* Automotive radar, RCS, FDTD, Electromagnetic simulations, vehicle target

## 1. 背景と目的

自動運転システムや安全運転支援システムにおいて車載レーダは走行環境認識の重要なセンシングデバイスである。レーダ性能向上のためには、アンテナに対する相対角度(ヨー角)が 360 度変化する車両ターゲットにおいて、角度変化に伴う受信電力変動を考慮した上で、アンテナ、信号処理、搭載レイアウト等の車載要件を設計する必要がある。RCS[1]はターゲットからのレーダ反射強度を把握する上で重要な特性であるが、RCS の計算式では送受信アンテナに対してターゲットが無限遠方に存在し、大きさの無い点と見なせることが前提となる。車載レーダの場合、検知ターゲットまでの距離は最大で 200m 程度であり、RCS 計算式の適用範囲外となる。さらに、ターゲットが車両の場合は、ミリ波帯(24GHz、76GHz)車載レーダの波長に比べてサ

イズが大きく複雑な形状であるため、ヨー角変化に対して受信電力や RCS 特性が大きく変動することが分かっている[2]。現状、RCS よりも正確にターゲットからのレーダ反射強度を表現できる指標は確立されていない。また、近距離に存在する車両ターゲットに対して、反射波電力と RCS を比較解析した例[3]は数少ない。

電磁界シミュレーションは、アンテナに対するターゲットの相対位置や相対角度の条件を統制して高い再現性で受信特性を定量解析でき電波伝搬を可視化できるため、車両ターゲットからの反射波の発生と伝搬のメカニズム、及びそれらと受信特性の関係性を解明する上で有効である。一般的に高周波数帯の電磁界解析は、レイトレース法や物理光学近似法(PO 法)、幾何光学近似法(GO 法)が用いられる。しかし、これらの解析手法は電磁波の波動性と粒子性(光線性)のうち粒子性

を再現することを重視した近似を含んでいる為、再現精度に課題がある。また、時間領域の解析ではないためターゲットからの反射波の発生と伝搬を時間経過とともに観察して解析することはできない。一方、時間領域で解析する手法として、電磁波の支配式であるマクスウェル方程式を基に解析空間全体の電磁界を、時間ステップを進めながら解く FDTD 法 (Finite Difference Time Domain method) [4] がある。FDTD 法は、電磁波の波動性と粒子性の双方を高精度に再現でき、時間ステップを進めながら繰り返し解く手法であるため、ターゲットへの入射からアンテナまでの伝搬過程を詳細に定量解析でき可視化観察も可能である。しかし、FDTD 法は波長の 10 分の 1 以下のセルで解析空間を分割して計算するため、ミリ波帯レーダの解析には膨大な計算資源 (メモリ量、計算時間) を必要とする問題がある。これをマルチノードでマルチ GPU を有する TSUBAME3.0 を用いることで解決した。本プロジェクトでは、TSUBAME3.0 上で高次精度差分スキームの FDTD (2,4) 法と実物大の 3-D 車両 CAD モデルを用いることで、高精度な定量解析を可能とした。

今回は、近距离に存在する車両ターゲットのヨー角を変化させ、(1) ターゲット表面電流分布と Poynting Vector 空間分布の分析から反射波電力の形成要因を解析すること、(2) 反射波電力と RCS を比較解析することを目的とした。

## 2. 計算条件

FDTD 法で車両ターゲットからの反射波を再現するためのアンテナとターゲットの位置関係及び伝搬環境条件を図 1 に、その他の計算条件を表 1 に示す。今回、車両形状による反射波発生と伝搬を正確に解析するために、実物大の 3-D 車両 CAD データを FDTD 計算に用いた。ただし、車両の金属部からの反射が支配的であると考え、タイヤのゴムやウィンドウのガラス等の誘電体材料は取り除いたデータを用いた。車両ターゲットはレーダアンテナ送信軸上に配置し、アンテナに対して車両背面が正対する角度を  $0^\circ$  として、ターゲットのヨー角を  $\pm 25^\circ$  の範囲で変化させた。アンテナからターゲット重心までの距離は、8.0m とした。地面からのアンテナ高さはセダンの搭載位置を想定して 0.5m とした。反射波電力の観測点は、ターゲット重心からアンテ

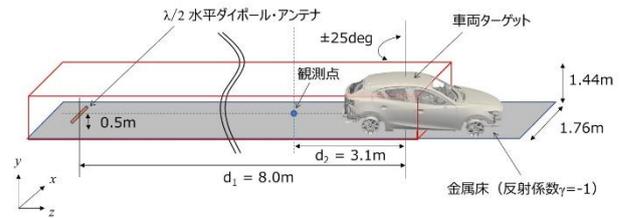


図 1. 車両ターゲットからの反射波の解析条件

表 1. FDTD 法の計算条件

周波数	24.0 [GHz]
解析空間	1408 x 1152 x 5568 [cell]
セルサイズ	$1.249 \times 10^{-3}$ [m] ( $\approx 1/10 \lambda$ )
計算手法	FDTD(2,4)
クーラン数 CFL	$1.3632 \times 10^{-1}$
時間ステップ	$5.68 \times 10^{-13}$ [sec]
放射源	1/2 波長ダイポールアンテナ + 連続正弦波
送信電力	7.575 [dBm]
計算ステップ数	45,000 [回]
吸収境界	PML 32 層、 $R_0 = 1.0^{-32}$ 、 $M = 4$
変数の型	float (GPU)

ナ方向へ 3.1m の位置とした。アンテナ放射周波数はミリ波帯車載レーダで用いられている 24GHz とした。リファレンスとして用いる RCS 角度特性は、同一の車両 CAD データを用いて Remcom 社製のレイトレース法 (PO 法と GO 法のハイブリッド) CAE で計算した。

## 3. 結果および考察

### (1) 反射波電力の形成要因の解析

FDTD 法シミュレーションで求めたターゲット表面電流分布を図 2 に示す。ターゲットのヨー角違いの 4 条件の結果を示す。ターゲット表面電流分布の強弱を見ることで、反射波の強弱を把握することができ、ターゲットからの反射波発生メカニズムを知る手掛かりとなる。図 2 より、ターゲットのヨー角によらず表面電流分布は水平方向に帯状に分布し、垂直方向に幾層もの強弱の分布があった。これは、ターゲットに入射する電波がアンテナからの直接波と路面からの反射を経て到達する 2 つの伝搬パスがあり、その 2 つの電波成分の位相差により干渉縞が現れた結果と考える。また、この干渉縞とは別に、バンパーフレーム縁やウィンドウ枠縁、リア

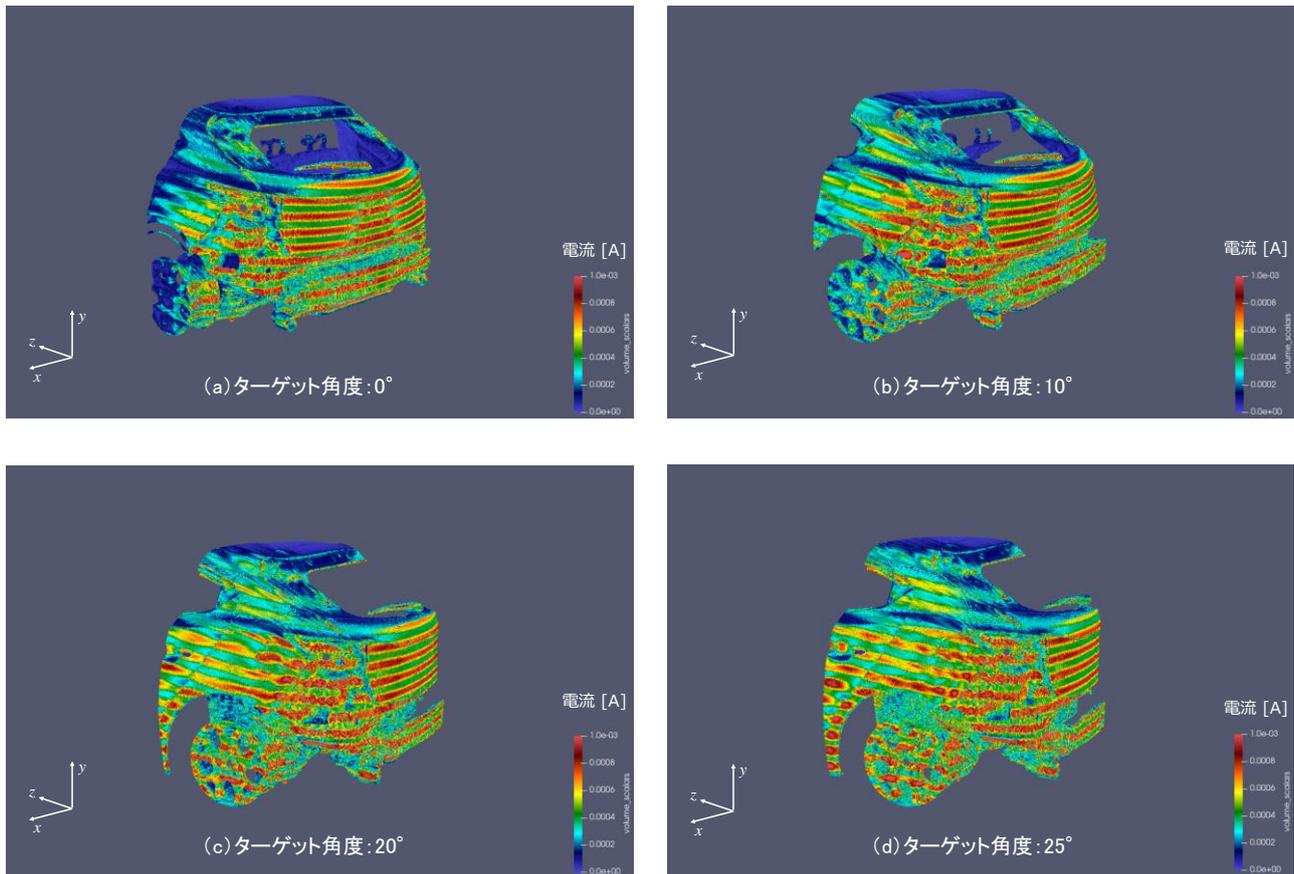


図 2. ターゲット表面電流分布

ワイパーなどのエッジ部で高い表面電流を観測した。ターゲットのヨー角が変わった場合、これらの電流値は変化するが、ターゲット全体の中では相対的に高い強度であり、強い反射波が発生していることを確認できた。

ターゲット近傍における反射波の電力分布( $X$ - $Z$ 面と $Y$ - $Z$ 面)を図 3 に示す。カット断面はアンテナ位置中心を原点とする直行座標系軸の断面である。 $Y$ - $Z$ 面(垂直面)での反射波の電力分布を見ると、大きく 2 つの成分に分類でき、アンテナ方向に強く反射する成分と上空方向に反射する成分である。この結果から推測すると、アンテナ方向に強く反射する成分の伝搬パスは、アンテナからターゲット直線に入射する直接パスと路面を經由してターゲットに入射してその反射波がアンテナに戻るパスの複合であると考えられる。一方、上空方向に強く伝搬する成分の伝搬パスは、アンテナからの直接波がターゲットで散乱して上空方向に伝搬するパスと路面反射波がターゲットでスネルの法則に従い反射して伝搬するパスの複合と考える。 $X$ - $Z$ 面(水平面)での反射を見ると、ターゲットのヨー角によってアンテナ方

向へ伝搬する反射波の強度は大きく異なっていた。ターゲットのヨー角が  $0^\circ$  のときに反射波電力は最も大きく、角度が大きくなるほどに電力が低下する傾向であった。ただし、ヨー角が  $20^\circ$  から  $25^\circ$  のときは、若干反射波電力が大きくなっていた。

Poynting Vector の  $X$ - $Z$ 面(水平面)空間分布を図 4 に示す。Poynting Vector を見ると、ターゲット角度が  $0^\circ$  の場合は、平面に近いバンパーフレームからの反射波がアンテナ方向に強く伝搬していた。ただし、反射波の一部はアンテナ方向以外の四方にも散乱していることを確認できた。この要因は、入射波が平面波ではなく円筒波に近い形でターゲットに到達して反射が起こっていたことと、バンパーフレームも完全な平面ではなく、僅かに曲面となっていることから伝搬方向に角度を有したと考える。また、ターゲットのヨー角が大きくなるとアンテナ方向への反射波は弱くなっていた。これは、バンパーフレームの平面がアンテナに対して傾斜したことと、アンテナの送信軸上に車体コーナー部が位置して、丸みの付いたコーナー部に入射した電波が拡散して反射

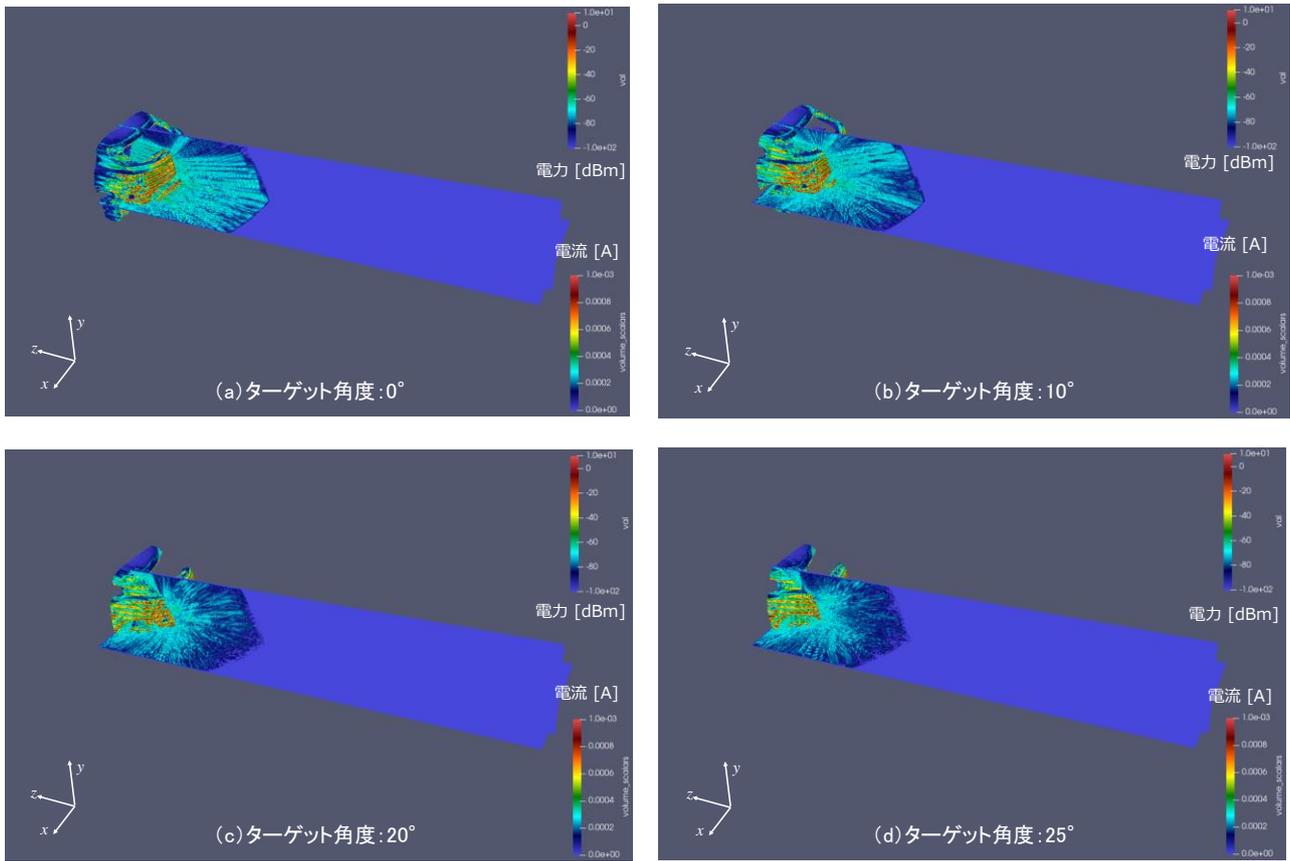


図 3. ターゲット近傍の反射波の電力空間分布(X-Z面とY-Z面)

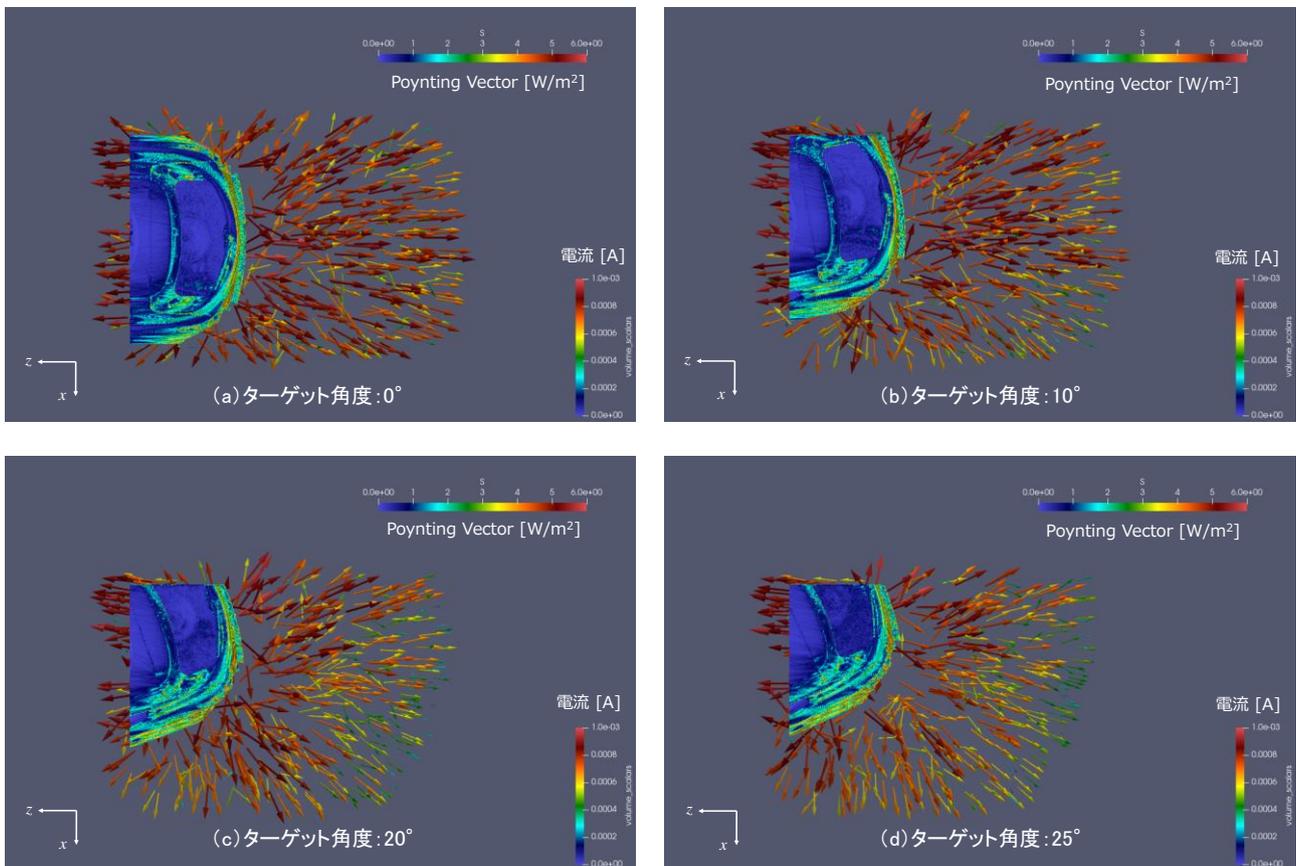


図 4. ターゲット近傍の反射波の Poynting Vector 空間分布(上面図、X-Z面)

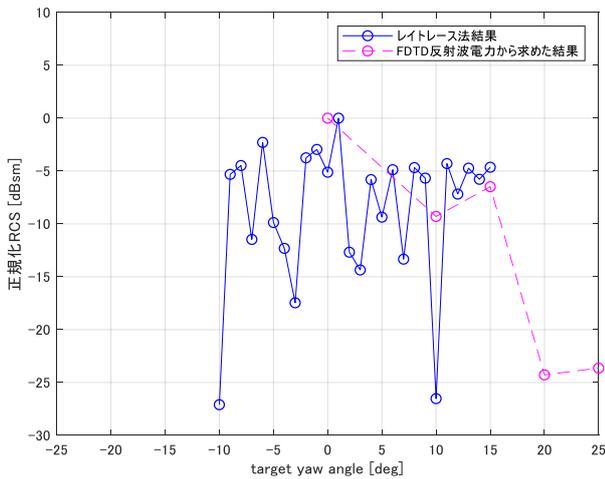


図 5. RCS 角度特性の計算結果

したためと考える。ヨー角が  $25^\circ$  の場合は、バンパーフレームと車体ボディとのつなぎ目がコーナーリフレクタのようになってアンテナ方向に向き、周囲よりも強い反射波が伝搬していることを確認できた。また、ホイール部のエッジからの反射波がアンテナ方向に伝搬している成分があることも確認できた。これらの要因により、ヨー角が  $20^\circ$  よりも  $25^\circ$  の方が、僅かに反射波電力が大きくなったと考える。

#### (2) 反射波電力と RCS の比較解析

レーダ方程式を変形した式(1)により FDTD 法で計算した反射波電力を換算した RCS と、レイトレース法 CAE で計算した RCS 角度特性を比較した。この結果を図 5 に示す。ただし、図 5 の RCS は、最大値が  $0 \text{ dBsm}$  となるように正規化した。

$$\sigma = \frac{P_r (4\pi)^3 d_1^2 d_2^2}{P_t G_t G_r \lambda^2} \quad (1)$$

ここで、 $\sigma$  は RCS、 $P_t \cdot P_r$  は送・受信電力、 $G_t \cdot G_r$  は送・受信アンテナゲイン、 $d_1 \cdot d_2$  はアンテナからのターゲット距離とターゲットからの観測点の距離を示す。

この結果では、ヨー角が  $0^\circ$  ( $1^\circ$  付近) のときに双方の RCS は最も大きくなっていった。また、レイトレース法の結果では  $10^\circ$  (または  $-10^\circ$ ) のときは大きく低下しており、 $1^\circ$  の数値と比べると  $25 \text{ dB}$  程度の差があった。一方、反射波電力から求めた RCS の結果では  $10^\circ$  で、低下傾向にあるがレイトレース法の結果ほど急峻な RCS 低下は見られなかった。この要因は、レイトレース法計算では平面波照射による入射波と反射波の比で RCS を計算するのに対して、今回の FDTD 法計算で

はダイポールアンテナからの放射に加えて、ターゲットまでの距離が近いために円筒波に近い波形が入射して反射したことで、入射波の位相が揃っていないことが考えられる。また、アンテナからターゲットまでの距離が近いことでターゲットの形状とサイズの影響を大きく反映した反射波が観測点に到達しており、RCS 計算式の条件と異なったためと考える。ただし、 $0^\circ \sim 25^\circ$  の範囲で見ると、双方の結果には最大値の RCS に比べて約  $25 \text{ dB}$  の変動があり、変動幅はほぼ一致していた。

#### 4. まとめ、今後の課題

TSUBAME3.0 を活用し、実際の車載レーダ周波数 ( $24 \text{ GHz}$ )、実物大の 3-D 車両 CAD モデルを用いて、RCS と反射波電力の関係を FDTD 法で数値解析した。結果、反射波電力から換算した RCS 角度特性とレイトレース法 CAE で計算した RCS 角度特性は、一致しない所があったが、変動幅はほぼ一致していた。これにより、近距離の場合でも車両ターゲットのヨー角を変化させたときの受信電力の変動幅を RCS 変動から見積もることができる可能性を確認した。

今回の FDTD 法の 1 条件の計算には、29 ノードの  $116 \text{ GPU}$  を使用し、メモリ量は  $3 \text{ TB}$ 、計算時間は  $11.8$  時間であった。

今後の課題は、異なる形状とサイズの車両ターゲットに対して、実際の車載レーダ周波数の  $76 \text{ GHz}$  や  $24 \text{ GHz}$  の条件で、RCS と受信特性の関係解明に取り組むことである。

#### 参考文献

- [1] Eugene F. Knott, 他, Radar Cross Section (2<sup>nd</sup> Edition), scitech publishing, (2004)
- [2] Emna Bel Kamel, 他, RCS modeling and measurements for automotive radar applications in W band, HAL, (2018)
- [3] Shigeki Ohshima, 他, A Method for Accomplishing Accurate RCS Image in Compact Range, IEICE TRANS. Vol.E79-B No.12 p.1799-1805, (1996)
- [4] 宇野 亨, FDTD 法による電磁界およびアンテナ解析, コロナ社, p.22(2009)



TSUBAME 共同利用 令和2年度 学術利用 成果報告書

アミロイド形成ペプチドの安定構造に関する自由エネルギー解析  
Free energy analysis on stable structures of amyloid-forming peptide水口 朋子  
Tomoko Mizuguchi京都工芸繊維大学 材料化学系  
Faculty of Materials Science and Engineering, Kyoto Institute of Technology

分子動力学シミュレーションで自由エネルギーを計算することにより、アミロイド形成ペプチドの安定構造を定量的に評価したい。タンパク質は複数の構造を取りうるため、まずは手法の有効性を確かめるために、構造がより明確な生体分子である DNA の断片を用いて引っ張りシミュレーションを行い、必要な仕事を計算した。その結果、塩基間の水素結合数が最も少ないアデニン-チミン(A-T)塩基対のみの鎖が、二本鎖をほどくための仕事が最も大きくなるという予想に反する結果が得られた。水素結合数の変化は、実際に A-T 塩基鎖が最も小さいため、水素結合以外の寄与が効いていると考えられる。

I would like to quantitatively evaluate the stable structure of amyloid-forming peptides by calculating the free energy in simulations. Since proteins can take on multiple conformations, I first performed steered molecular dynamics simulations using a fragment of DNA, a biomolecule with a clearer structure, to verify the effectiveness of the method by calculating the work to unwind the double strand. As a result, I obtained the unexpected result that a chain with only adenine-thymine base pairs, which has the lowest number of hydrogen bonds between bases, requires the most work. Since the change in the number of hydrogen bonds is actually the smallest for the adenine-thymine base chain, it is likely that contributions other than hydrogen bonds are in effect.

*Keywords:* タンパク質、DNA、SMD、仕事、自由エネルギー

## 背景と目的

アルツハイマー病やプリオン病に代表されるアミロイド病は、アミロイド線維の形成・沈着によって細胞が破壊されることが原因と考えられている。アミロイド線維形成は、タンパク質のミスフォールディングに始まると考えられているが、モノマー単独では変性状態で安定に存在することは難しく、凝集することが重要であると言われている。素過程であるモノマーの構造変化、およびダイマーの形成過程を調べることは実験では難しく、シミュレーションで明らかにすることによって、線維形成のメカニズム解明に貢献できるものとする。本研究では、モノマーやダイマーの構造安定性を調べるために、ジャルチンスキー等式を用いて、自由エネルギーを計算することを目指した。しかしながら、タンパク質は複数の構造を取りうるため、まずは手法の有効性を確かめるために、構造がより明確な生体分子である DNA の断片を用いて引っ張りシミュレーションを行い、必要な仕事を計算した。

## 概要

アルツハイマー病やプリオン病に代表されるアミロイド病は、アミロイド線維の形成・沈着によって細胞が破壊されることが原因と考えられている。アミロイド線維形成は、タンパク質のミスフォールディングに始まると考えられる。その後、核となる構造ができるで一気に成長して線維化すると考えられているが、初期の成長過程は実験的に捉えることが難しく、計算機シミュレーションに期待が寄せられている。本課題では、分子動力学シミュレーションで自由エネルギーを計算することにより、アミロイド形成ペプチドの安定構造を定量的に評価したい。タンパク質は複数の構造を取りうるため、まずは手法の有効性を確かめるために、構造がより明確な生体分子である DNA の断片を用いて引っ張りシミュレーションを行い、必要な仕事を計算した。

## 結果および考察

DNA の二本鎖をほどくための酵素ヘリカーゼが結合する塩基配列を取りだし、Steered Molecular Dynamics (SMD) シミュレーションで長軸方向と垂直に引っ張ることによって、二本鎖がほどけるのに必要な仕事を計算した。比較のために、A-T 塩基対(アデニンとチミン)のみの鎖と、G-C 塩基対(グアニンとシトシン)のみの鎖も、同様に引っ張って仕事を計算した。A-T 塩基対は水素結合を2つ持ち、G-C 塩基対は3つ持つので、G-C 塩基鎖が一番仕事が大きくなると予想される。また、ヘリカーゼ結合部位は、そこから DNA がほどけるのであるから、仕事は小さいと考えられる。計算結果は、ヘリカーゼ結合配列が最も仕事が小さくなった。これは、予想を裏切らない結果であった。一方で、予想に反して A-T 塩基鎖が最も仕事が大きくなった。水素結合数の変化は、実際に A-T 塩基鎖が最も小さかったので、仕事の内訳は他の寄与が効いているということになる。

## まとめ、今後の課題

タンパク質の安定性を調べる目的に向けて、まずは手法の有効性を確かめるために、より構造が明確な DNA 断片を用いて引っ張りシミュレーションを行い、仕事を計算した。10サンプルで仕事を計算したので、ジヤルチンスキー等式を使い、自由エネルギーを算出する予定である。タンパク質については、どの構造を採用し、どのように引っ張るかの選択肢が多いので、まずはダイマーをモノマーにするために必要な仕事を計算したいと考えている。

TSUBAME 共同利用 令和2年度 学術利用 成果報告書

第一原理計算による電池・触媒メカニズム解明と新物質探索  
Materials science of batteries and catalysts via first principles calculation

館山 佳尚  
Yoshitaka Tateyama

物質・材料研究機構  
National Institute for Materials Science  
<https://www.nims.go.jp/group/cs/>

邦文抄録(300 字程度)

蓄電池・触媒は電極および電解質(液)から構成され、各材料の物性が蓄電池・触媒の特性に大きな影響を与える。さらにそれらの表面界面における化学反応は重要な素過程となっている。しかしながら界面を含む材料内部の電子・イオン移動を実験的にその場観察することはいまだに難しく、不明な点が多い。我々はこのような微視的過程について、電子・原子状態を高精度に扱うことのできる第一原理計算を用いた理論計算研究を行ってきた。本利用課題では TSUBAME を利用して、特に全固体電池の硫化物電解質におけるイオン輸送を支配する因子について、第一原理分子動力学計算を駆使した探索を実行した。その結果、イオン移動の中間状態の体積(ボトルネック体積)以外に、準安定サイトの体積(Wyckoff サイト体積)も効いてくることが示された。

英文抄録(100 words 程度)

We have been working on microscopic processes in materials in battery and catalyst by means of density functional theory (DFT) based first-principles calculations with certain accuracy. In this project, with TSUBAME, we examined the effective descriptors for ion transport in Sulfide-based solid electrolyte by DFT molecular dynamics, and demonstrated that, in addition to the bottleneck volume around the transition state, the Wyckoff-site volume around the metastable site for ion is also responsible for the ion transport.

*Keywords:* 第一原理計算、分子動力学、蓄電池、触媒、拡散係数

## 背景と目的

蓄電池・触媒は電極および電解質(液)から構成され、各材料の物性が蓄電池・触媒の特性に大きな影響を与える。さらにそれらの表面界面における化学反応は重要な素過程となっている。しかしながら界面を含む材料内部の電子・イオン移動を実験的にその場観察することはいまだに難しく、不明な点が多い。我々はこのような微視的過程について、電子・原子状態を高精度に扱うことのできる第一原理計算を用いた理論計算研究を行い、様々なメカニズムの解明を行ってきた。

全固体電池は次世代蓄電池の有効候補として現在精力的に研究・開発が進められている。その中で 2019 年に阪府大の林らが、Na-ion 系固体電解質としては世界最高の室温イオン伝導度 ( $3.2 \times 10^{-2} \text{ S cm}^{-1}$  @25°C) を持つ  $\text{Na}_{2.88}\text{Sb}_{0.88}\text{W}_{0.12}\text{S}_4$  の合成・観測に成功した。しかし、なぜ当該物質が高速イオン伝導を示すのか?の理由は明らかになっておらず、従って高いイオン導電率を持つ材料設計指針の確立もほど遠い状況であった。

このような背景の下、本プロジェクトでは TSUBAME 等を用いて第一原理分子動力学計算を実行し、 $\text{Na}_{2.88}\text{Sb}_{0.88}\text{W}_{0.12}\text{S}_4$  周辺物質の拡散係数とその構造相関を解析することで、イオン伝導に関わる有力な記述子を提案することに成功した。

## 概要

室温にて世界最高イオン導電率を持つ  $\text{Na}_{2.88}\text{Sb}_{0.88}\text{W}_{0.12}\text{S}_4$ (図 1 a) およびその周辺物質(組成的に)について第一原理分子動力学計算を行うことにより、拡散係数を求め、さらに様々なファクターも評価し、それらと原子配置の相関を調べた結果、イオン移動の中間状態の体積(ボトルネック体積)以外に、準安定サイトの体積(Wyckoff 体積)も効いてくることが実証された。本研究で得られる知見は、高イオン導電率材料の設計に重要な指針を与えるものとなっている。

結果および考察

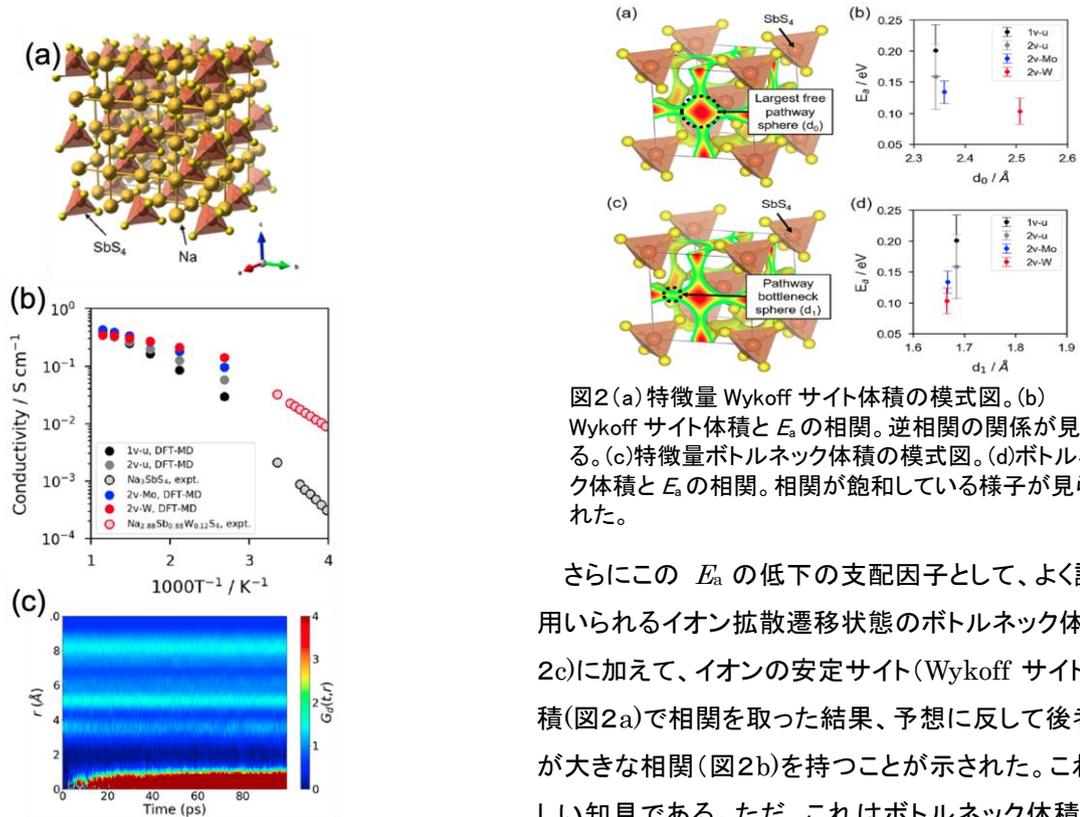


図1 (a) ノンドープ系  $\text{Na}_3\text{SbS}_4$  の結晶構造。(b) 対象系に対する各温度での Na-ion 伝導度の計算値(実験値は白抜きで表示)。W ドープ系が最も伝導度が高い。(c)イオンのジャンプ挙動の相関を記述する van Hove 関数2次元ヒートマップ ( $\text{Na}_{2.88}\text{Sb}_{0.88}\text{W}_{0.12}\text{S}_4$ )。

まずそれぞれの系について第一原理 MD による Na-ion の自己拡散係数や伝導度を求めたところ、図1b のように W ドープ系(赤印)が最も高い伝導度を持つことが示された。このトレンドは室温付近で観測された実験トレンドと符合する。次に Na-ion のサイト間ジャンプに関する相関を表すことのできる van Hove 関数を見ると(図1c)、W ドープ系の方がジャンプに関する相関が強いことがわかる。すなわち、協奏的な拡散メカニズムで主に支配されていることがわかった。

さらに我々はイオン伝導度がボルツマン項とプリファクターのどちらで支配されているか? という問いについても解析を行い、当初予想したプリファクターでは高々 12% 置換により伝導度が 1 桁向上することを説明できないことを示した。これから逆説的に、ボルツマン項、つまり置換による活性化エネルギー( $E_a$ )の低下が支配的であることを理論的に提示した。

図2(a) 特徴量 Wyckoff サイト体積の模式図。(b) Wyckoff サイト体積と  $E_a$  の相関。逆相関の関係が見える。(c)特徴量ボトルネック体積の模式図。(d)ボトルネック体積と  $E_a$  の相関。相関が飽和している様子が見られた。

さらにこの  $E_a$  の低下の支配因子として、よく議論に用いられるイオン拡散遷移状態のボトルネック体積(図2c)に加えて、イオンの安定サイト(Wyckoff サイト)の体積(図2a)で相関を取った結果、予想に反して後者の方が大きな相関(図2b)を持つことが示された。これは新しい知見である。ただ、これはボトルネック体積が全く相関がないということではなく、対象とした系では既に相関が飽和している(図2d)と解釈できることも明らかにした。

まとめ、今後の課題

本計算科学研究で得られた結果は、今後の Na-ion 硫化物系固体電解質探索において、計算コストのかかる拡散係数・イオン伝導度の第一原理計算解析を行う前に上記の記述子によって効率的スクリーニングが可能であることを示唆するものである。今後はこのスクリーニング手法の妥当性について更なる検証を行なっていく。

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 計算化学による固体分散体中の薬物とキャリアの相互作用の評価

英文: Evaluation of Interaction between Drug and Carrier in Solid Dispersion by Computational Chemistry

利用課題責任者 東 顕二郎

First name Surname Higashi Kenjirou

所属 千葉大学大学院薬学研究院製剤工学研究室

Affiliation Laboratory of Pharmaceutical Technology, Graduate School of Pharmaceutical Science, Chiba University

URL <http://www.p.chiba-u.jp/lab/seizai/index.html>

邦文抄録(300 字程度)

近年、難水溶性薬物の溶解性改善手法として固体分散体が広く研究されている。我々はこれまでに MD シミュレーションによる carbamazepine と新規添加剤である Rutin-G からなる固体分散体の調製・評価に成功した。本研究では、MD シミュレーションを用いて、各種薬物と Rutin-G からなる固体分散体の運動性評価を実施した。MD シミュレーションの運動性評価から得られた薬物と Rutin-G の相溶性は、DSC 測定により実験的に求めた相溶性の結果とよく一致していた。この結果より、MD シミュレーションによる運動性評価は、固体分散体の安定性評価法として有用であると考察した。

英文抄録(100 words 程度)

Nowadays, solid dispersions have been widely investigated to improve the solubility of poorly water-soluble drugs. We have succeeded in preparing and evaluating the solid dispersion consisting of carbamazepine(CBZ) and Rutin-G by MD simulation. In this study, the molecular mobility of the solid dispersions containing various drugs with Rutin-G was evaluated. The miscibility between drug and Rutin-G obtained from MD simulation was in good agreement with that obtained by DSC measurement. The evaluation of molecular mobility by MD simulation can be a useful method to evaluate the stability of solid dispersion.

Keywords: 非晶質, 固体分散体, 分子間相互作用, MD シミュレーション

## 背景と目的

近年、新規医薬品候補薬物の多くが水に溶けにくく、経口投与製剤として用いるにはその溶解性を改善することが必要である。これら難水溶性薬物の溶解性改善手法として固体分散体が挙げられる。固体分散体において、薬物は非晶質状態で存在しており、結晶状態よりエネルギー的に高い状態であるため、高い溶解度及び溶解速度を示す。一方、薬物を添加剤に分散させることで、薬物の結晶化を抑制し、固体分散体の安定化に寄与している。

固体分散体のキャリアとして、高分子担体が汎用されている。しかしながら、高分子担体の分子量は大きいため、最終的な製剤の体積が大きくなってしまふ。我々の研究グループでは新規機能性食品添加剤である $\alpha$ -glucosyl rutin (Rutin-G)を固体分散体に用いるキャリアとして研究している。Rutin-G は Rutin(ビタミン P)を酵素処理により glucosyl 化した化合物であり、疎水基である flavonol 部分と親水基である糖鎖を有する。これ

までに、低細胞毒性と高溶解度を有する Rutin-G を用い、種々の難水溶性薬物を非晶質化することで、薬物の溶解度及びバイオアベイラビリティを改善できることが報告されている。また、示差走査熱量測定(DSC)により、様々な薬物と Rutin-G の固体分散体が形成されることが示されている。しかし、Rutin-G と安定な固体分散体を形成する薬物の特性については不明であり、その調製はトライ&エラーであった。本研究では MD シミュレーションを用いて、各種薬物と Rutin-G からなる固体分散体を調製し、それらの固体分散体の安定化メカニズムの解明を行った。

## 概要

### 1. 固体分散体の調製

ボルテックスミキサーを用いて、薬物及び Rutin-G をモル比 1:1 で 3 分間混合し、物理的混合物(PM)を得た。各 PM を乾燥し、グローブボックスを用いて、約 4 mg の AI クロメート処理した簡易密封パンに入れた。

HITACHI DSC7000X を用い、50 mL/min の N<sub>2</sub> 雰囲気下で固体分散体の調製および DSC 測定を行った。初めに 10°C/min で 200°C まで昇温し、3 min 間維持した。続いて 10°C/min にて -20°C まで冷却し固体分散体を調製した。そして、10°C/min で 200°C まで再昇温した。

## 2. 固体分散体の MD シミュレーション

4 つの薬物 (acetaminophen (ACT), bifenazole (BFZ), nifedipine (NIF), phenylbutazone (PBZ)) を用いた。薬物 50 分子と Rutin-G 50 分子をランダムに周期境界条件のセルに配置した。これをエネルギー最適化することで、初期構造を構築した。DSC 内で実施した条件を模した温度履歴にて MD シミュレーション実施し、各種薬物と Rutin-G からなる固体分散体を調製した。

### 結果および考察

DSC 内で調製した固体分散体の DSC 曲線を Fig. 1. に示した。ACT 及び BFZ 固体分散体の DSC 曲線において、単一のガラス転移点 ( $T_g$ ) が認められ、薬物及び Rutin-G 単独非晶質のガラス転移に由来するピークは観察されなかった。このことから、ACT 及び BFZ は Rutin-G と十分に混和していることが示された。一方、NIF 及び PBZ 固体分散体の DSC 曲線においては、低温側に薬物単独の  $T_g$  も観察され (data no shown)、さらに薬物の結晶化及び融解に由来するピークが認められた。このことから、これらの固体分散体中は薬物と Rutin-G が相分離し、NIF 及び PBZ と Rutin-G の混和性は低いと考えられた。

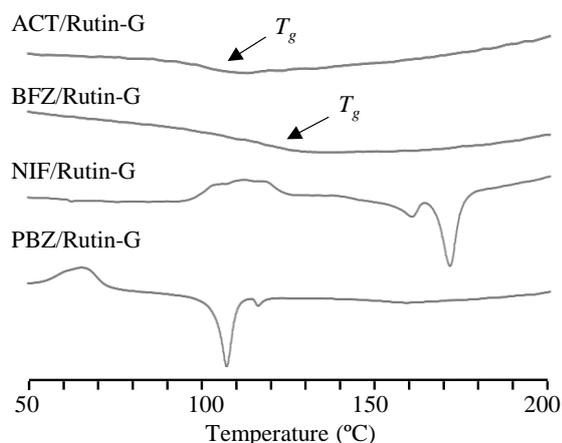


Fig. 1. DSC profiles of each solid dispersions.

MD シミュレーションで得られた各固体分散体では、いずれの薬物も、Rutin-G 中に分散していることが示された。より詳細に薬物と Rutin-G の混和性を評価する

ため、分子の運動性を表す指標として汎用される RMSD (平均二乗偏差) を用いた評価を行った。本研究では、固体分散体調製時の冷却における薬物と Rutin-G の RMSD をそれぞれ評価した。Fig. 2 に ACT 及び NIF の系についての結果を示す (BFZ と NIF の結果は省略する)。冷却開始直後の高温状態では、薬物と Rutin-G の高い分子運動により、RMSD 値は増加した。ACT 及び NIF の RMSD は 30 ns 付近で一定の値を示し、これは Rutin-G の RMSD が一定となるタイミングと一致した。すなわち、Rutin-G との混和性が高い ACT と BFZ では、Rutin-G の運動性抑制に応じてその運動性が抑制されたと考えられた。一方、NIF 及び PBZ の場合では、Rutin-G よりも遅いタイミングで RMSD が一定となった。これは、冷却過程で NIF 及び PBZ が Rutin-G と相分離しているためと推察した。

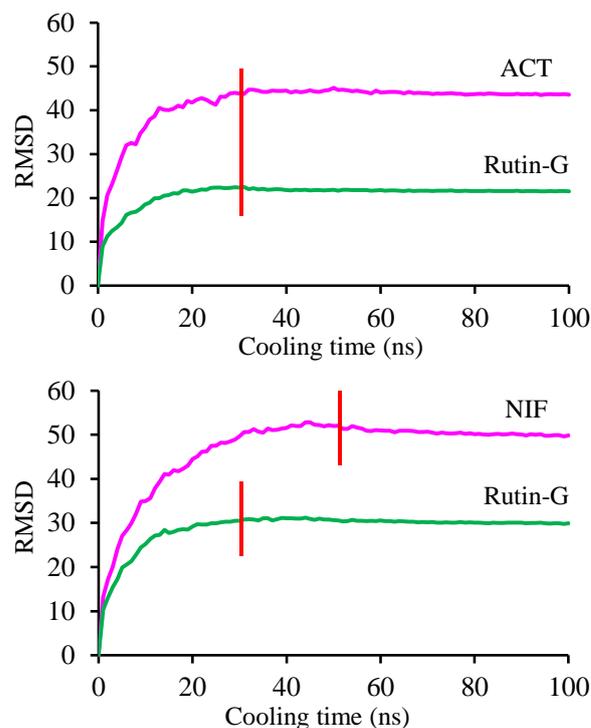


Fig. 2. ACT/Rutin-G and NIF/Rutin-G solid dispersions in MD simulation.

### まとめ、今後の課題

DSC 測定で予想された各種薬物と Rutin-G の混和性の結果は、MD シミュレーションの結果と一致しており、MD シミュレーションは固体分散体の安定性を評価する上で有効であると考えられた。

今後更に他の薬物についても同様の評価を行うことで、本手法の妥当性を検証する必要がある。また、固体分散体中の水が安定性に影響を及ぼすことから、今

後は水分子を含む固体分散体のシミュレーションに挑戦する。将来的には、シミュレーションを用いることで、新薬候補化合物に最適な固体分散体のキャリアや組成を速やかに見出すことが可能になると期待している。



TSUBAME 共同利用 令和2年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 廃棄物最終処分場における間隙内流体挙動の数値解析  
 英文: Numerical analyses of fluid dynamics in pores of landfill waste layer

利用課題責任者 鈴木和将  
 Kazuyuki Suzuki

所属 埼玉県環境科学国際センター  
 Affiliation Center for Environmental Science in Saitama  
 URL <http://www.pref.saitama.lg.jp/cess/index.html>

## 邦文抄録

本研究では、廃棄物最終処分場内部の水やガスの流れ問題の高品質な計算スキームの開発を目的として、数値流体解析の検討を行った。具体的には支配方程式に Navier-Stokes 方程式を用いて SUPG/PSPG 法に基づく安定化有限要素法により離散化した。さらに、GPGPU コンピューティングによる計算の高速化を試みた。連立一次方程式の求解には GPBi-CG 法を導入し、マルチ GPU を利用して高速並列計算によるシミュレーションを行った。

## 英文抄録

The purpose of this study is to establish a numerical simulation model of fluid flow in a landfill layer with high quality and high precision. A 3D finite element method is a powerful tool for flows having complex geometry such as porous media in landfill. However, it leads a huge amount of computation cost. In this study, we examined to accelerate the 3D FEM by using the Graphics Processing Unit as a general-purpose use (GPGPU).

*Keywords:* landfill, Numerical simulation, FEM, Navier-Stokes equations, GPGPU

## 背景と目的

近年、全国各地で頻発する集中豪雨が常態化する中、処分場においても今後適切な設計・管理を行っていく上で、廃棄物層の水分移動現象の把握は、ますます重要な課題となっている。種々雑多な廃棄物から構成される複雑な廃棄物層間隙形状と流体力学的作用は深く関わっているが、その相互作用は十分に解明されていない。そこで、本研究では、間隙形状とそれに寄与する水分移動現象のメカニズムを解明することを目的とした。前報<sup>1)</sup>では、これまで形の記述が困難であった間隙の幾何構造に対し、数学者が開発した新たなデータ解析手法 Topological Data Analysis<sup>2)</sup>の一つであるパーシステントホモロジーを適用し、間隙形状の特徴付けを行った。一方、これまで間隙内流れについては、シミュレーションを行い、計算結果は、速度ベクトル又は流線で可視化し流れ解析を行ってきた。本報では、さらに、間隙形状に起因する流れの流体力学的作用の指標であるエネルギー損失を算出し、より詳細な流れ挙動の解

析を行うとともに、間隙形状との関係性について考察する。

## 概要

試料には、一般廃棄物焼却施設から採取した主灰、不燃・粗大ごみ処理施設から採取した不燃残渣及び廃棄物最終処分場においてボーリングにより採取した廃棄物試料等を用いた。

これらの試料は、マイクロフォーカス X 線 CT 装置を用いて撮影した。その後、試料の CT 画像を画像処理ソフトウェアに読み込み、モデル間隙形状の作成を行った。さらに、作成した間隙形状のデータを STL ファイルへ変換し、この STL ファイルを基に、自動メッシュ生成ソフトウェア Gmsh<sup>3)</sup>を用いて有限要素メッシュの生成を行った。

数値シミュレーションの支配方程式には、下記(1),(2)式に示す非圧縮性 Navier-Stokes 方程式、連続の式を用いた。

$$\frac{\partial u_i}{\partial t} + u_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} = -\frac{\partial p}{\partial x_i} + \frac{1}{Re} \frac{\partial}{\partial x_j} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \text{ in } \Omega, \quad (1)$$

$$\frac{\partial u_i}{\partial x_i} = 0 \text{ in } \Omega. \quad (2)$$

ここで、 $u$  は流速、 $p$  は圧力、 $Re$  は Reynolds 数、 $\Omega$  は計算領域である。

上記(1),(2)の支配方程式に対して、安定化有限要素法(SUPG/PSPG 法)を適用すると以下の弱形式が導かれる。

$$\begin{aligned} & \int_{\Omega} w_i \left( \frac{\partial u_i}{\partial t} + \bar{u}_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right) d\Omega - \int_{\Omega} \frac{\partial w_i}{\partial x_i} \\ & + \int_{\Omega} \frac{1}{Re} \frac{\partial w_i}{\partial x_j} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \\ & + \sum_{e=1}^{n_{el}} \int_{\Omega} \left( \tau \bar{u}_k \frac{\partial w_i}{\partial x_k} \right) \left( \frac{\partial u_i}{\partial t} + \bar{u}_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial p}{\partial x_i} \right) d\Omega = 0, \quad (3) \\ & \int_{\Omega} q \frac{\partial u_i}{\partial x_i} d\Omega + \sum_{e=1}^{n_{el}} \int_{\Omega} \left( \tau \frac{\partial q}{\partial x_i} \right) \left( \frac{\partial u_i}{\partial t} + \bar{u}_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial p}{\partial x_i} \right) d\Omega = \\ & 0, \quad (4) \end{aligned}$$

ここで、 $w_i, q$  は、それぞれ式(1),(2)に対する Galerkin 項の重み関数である。また、 $\bar{u}_i$  は移流速度を表し、 $\tau$  は安定化パラメータを表している。これら(3),(4)式に対して Crank-Nicolson 法により時間方向の離散化を行うことで、有限要素方程式が導かれる。導かれた連立一次方程式の解法には GPBi-CG 法を適用した。

本研究では、計算の高速化を達成するために、GPGPU を用いた並列計算を取り入れ、NVIDIA 社の統合開発環境である CUDA とそれらのライブラリ(cuBLAS, cuSPARSE)を用いて GPBi-CG 法を適用した。

また、エネルギー損失は、下記に示す(5)式を用いて算出した。

$$\begin{aligned} \text{Energy Loss} = & 2 \left\{ \left( \frac{\partial u}{\partial x} \right)^2 + \left( \frac{\partial v}{\partial y} \right)^2 + \left( \frac{\partial w}{\partial z} \right)^2 \right\} \\ & + \left( \frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right)^2 + \left( \frac{\partial w}{\partial y} + \frac{\partial v}{\partial z} \right)^2 \\ & + \left( \frac{\partial u}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial x} \right)^2 \\ & - \frac{2}{3} \left( \frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} \right)^2 \quad (5) \end{aligned}$$

## 結果および考察

エネルギー損失を計算した結果を図 1(不燃残渣)、図 2(コア試料)及び図 3(焼却主灰)に示す。青い線は、間隙領域を表している。不燃残渣は、比較的大きい径の試料から構成されており、最も間隙率が高く、一方、主灰は、粒子が密に充填されており、間隙率が最も低いものである。図内の上部の面より垂直に流入する一様流を与え、流れの数値シミュレーションを実施した。その速度ベクトルから算出したエネルギー損失は、等値面を用いて可視化した。赤色の等値面がエネルギー損失 1000 を、オレンジ色の等値面 500 を黄色の等値面 100 を表している。不燃残渣試料のエネルギー損失が見られる箇所は、限定的であったが、コア試料に対して、エネルギー損失箇所が増え、主灰試料では、その領域がさらに広範囲になった。特に間隙の狭窄部では、エネルギー損失の大きい赤い領域が見られた。これは、間隙中に水が流れる際に、狭窄部位を抜けると、流れが乱れエネルギー損失が大きくなると考えられる。

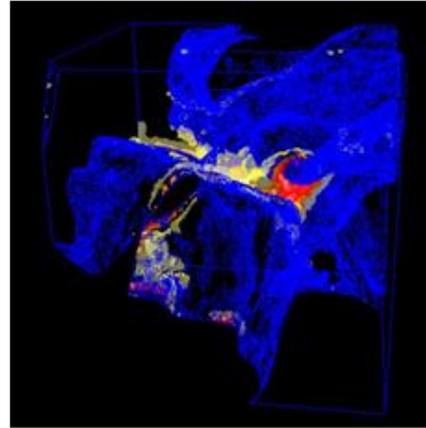


図 1 不燃残渣におけるエネルギー損失

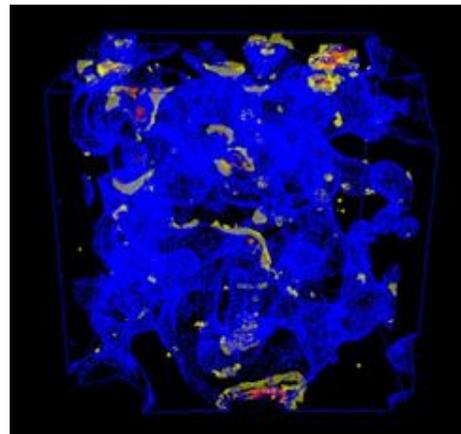


図 2 コア試料におけるエネルギー損失

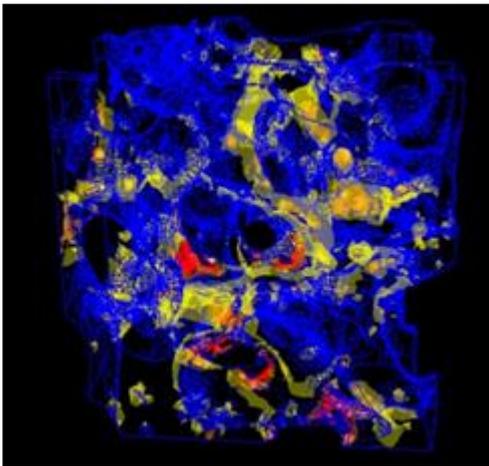


図 3 焼却主灰におけるエネルギー損失

#### まとめ、今後の課題

今後、エネルギー損失等様々な流体力学的作用と間隙形状との関係性について評価を行い、廃棄物最終処分場の水分移動現象のメカニズム解明につなげていきたいと考えている。

#### 参考文献

- 1) 鈴木和将, Huynh Quang Huy Viet, 宇田智紀, 水藤寛: パーシステントによる廃棄物埋立層の間隙構造解析、第 30 回廃棄物資源循環学会研究発表会講演原稿, 415-442 (2015)
- 2) Edelsbrunner, H. Letscher, D. & Zomorodian, A.: Topological persistence and simplification, *Discrete Comput. Geom.*, 28(4), 511-533 (2002)
- 3) Geuzaine, C. and Remacle, J.F.: Gmsh: a three-dimensional finite element mesh generator with built-in pre- and post-processing facilities, *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 79(11), 1309-1331 (2009)
- 4) Tezduyar, T.E.: Stabilized finite element formulations for incompressible flow computations, *Advanced in Applied Mechanics*, 28, 1-44 (1991)
- 5) Tezduyar, T.E., Mittal, S., Ray, S.E. & Shih, R.: Incompressible flow computations with stabilized bilinear and linear equal-order-interpolation velocity-pressure elements, *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 95, 221-242 (1992)
- 6) Zhang, S.L.: GPBi-CG: Generalized product-type methods based on Bi-CG for solving nonsymmetric linear system, *SIAM J. Sci. Comput.*, 18, 537-551 (1997)



TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名: 凝集誘起発光についての理論的研究  
 英文: Theoretical Study on the Aggregation Induced Emission

山本典史  
 Norifumi Yamamoto

千葉工業大学工学部応用化学科  
 Department of Applied Chemistry, Faculty of Engineering, Chiba Institute of Technology  
 www.appchem.it-chiba.ac.jp/yamamoto/

## 邦文抄録(300 字程度)

近年, 単体では発光しないが, 分子が多数凝集すると発光する特性を持つ蛍光色素が注目されている。この現象は凝集誘起発光と呼ばれている。シアノスチルベン誘導体の CN-MBE は凝集誘起発光を示す蛍光色素であり, 溶液中に分散した状態での蛍光量子収率( $\Phi$ )値は 0.001 であるが, 凝集して微粒子や結晶になると $\Phi$ 値は 0.69 まで増大する。この CN-MBE には E 体と Z 体の 2 種類の異性体があり, この 2 つの異性体のうち凝集誘起発光が観測されるのは E 体のみであり, Z 体は結晶構造でも発光が観測されない。このように CN-MBE は凝集状態における光物性がそれぞれの異性体で大きく異なるが, その分子機構は明らかではなかった。本研究では CN-MBE が示す凝集誘起発光のメカニズムについて, 分子シミュレーションを用いた解析をおこなった。

## 英文抄録(100 words 程度)

The aggregation-induced emission (AIE) of a cyanostilbene derivative, called CN-MBE, was studied theoretically by using electronic structure calculations, together with molecular dynamics (MD) simulations. The *E*-form of CN-MBE has been known to exhibit the AIE, which is non-emissive in dilute solutions but becomes highly emissive in solid or aggregated states; however, its *Z*-isoform is non-emissive even in a crystal. In this study, we have investigated the conformation-dependent AIE mechanism of CN-MBE. The method combining the quantum chemistry calculation and the MD simulation used in this study can not only be utilized for analysis of various other various AIE phenomena but also in the development of new photochemical devices making use of the specificity of molecular crystals.

## Keywords: 5つ程度

凝集誘起発光, 円錐交差, 分子結晶, 電子状態計算, 励起状態ダイナミクス

## 背景と目的

近年, 単量体では発光しないが, 分子が多数凝集すると発光する特性を持つ蛍光色素が注目されている。この現象は凝集誘起発光 (Aggregation Induced Emission: AIE) と呼ばれている。香港科技大学の Tang らは凝集誘起発光特性を持つ分子として tetraphenylethene を見だし, この分子を基本骨格とする AIE 色素を数多く開発している。ソウル国立大学の Park らも CN-MBE と呼ばれるシアノスチルベン誘導体が凝集誘起発光を示すことを発見し, この分子を基本骨格とした機能性蛍光色素を開発している。

シアノスチルベン誘導体の CN-MBE は凝集誘起発光を示す蛍光色素であり, 溶液中に分散した状態での蛍光量子収率( $\Phi$ )値は 0.001 であるが, 凝集して微粒

子や結晶になると $\Phi$ 値は 0.69 まで増大する。この CN-MBE には E 体と Z 体の 2 種類の異性体があり, この 2 つの異性体のうち凝集誘起発光が観測されるのは E 体のみであり, Z 体は結晶構造でも発光が観測されない。このように CN-MBE は凝集状態における光物性がそれぞれの異性体で大きく異なるが, その分子機構は明らかではなかった。そこで本研究では, CN-MBE の凝集誘起発光について分子シミュレーションを用いた理論的解析に取り組み, そのメカニズムを明らかにした。

## 概要

本研究では CN-MBE が示す凝集誘起発光のメカニズムについて, 分子シミュレーションを用いた解析をお

こなった。その結果, CN-MBE は基底電子状態と励起状態のポテンシャルエネルギーが分子内 C=C 結合軸周りの回転に伴って近接し, ねじれ角度  $\theta$  が 90 度付近となる地点で交差 (円錐交差) することが明らかになった。希薄溶液ではこの C=C 結合軸の回転がほぼバリアレスで起こり, 円錐交差を経由した光励起エネルギーの無輻射失活が起こる。しがしながら, 分子同士が密に集合した凝集状態では, E 体の場合, 凝集体中では光励起後, 分子構造の変化 (C=C 結合部分の回転) を経て円錐交差に至る経路がエネルギー的に著しく不利になっていることが明らかになった。このことから, E 体の場合, 凝集構造では無輻射に緩和する経路が著しく抑制されているために強い発光を示すと考えられる。一方で Z 体の凝集体が光励起されたときには, 垂直励起したポテンシャルエネルギー曲面上の地点からバリアレスで円錐交差へとすみやかに緩和することが明らかになった。したがって, Z 体が凝集誘起発光を示さない原因は, 凝集体中であっても比較的容易に C=C 結合部位の回転運動が起こることですみやかにポテンシャル曲面上の円錐交差に到達することが可能であり, 無輻射で緩和するためであることが明らかになった。本研究の成果は, イギリス王立化学会が発行する物理化学専門誌 *Physical Chemistry Chemical Physics* で発表した[1]。

### 結果および考察

CN-MBE の電子状態について, スピン反転時間依存密度汎関数 (SF-TD-DFT) 法を用いて解析した。汎関数には BHHLYP, 基底関数には 6-31G(d) を用いた。この分子の  $S_0/S_1$  最小エネルギー円錐交差点 (MECI) は penalty-constrained 最適化法を用いて決定した。Franck-Condon (FC) 点から MECI に至る最小エネルギー経路 (MEP) については string 法を用いて解析した。MEP に沿った自由エネルギー変化については, QM/MM 自由エネルギー摂動法を用いて算出した。解析には, 分子シミュレーションのプログラムとして Q-Chem と Amber を使用した。

CN-MBE 分子の FC 点から MECI に至る MEP に沿った構造変化を図 1 に, ポテンシャルエネルギー変化を図 2 に示す。

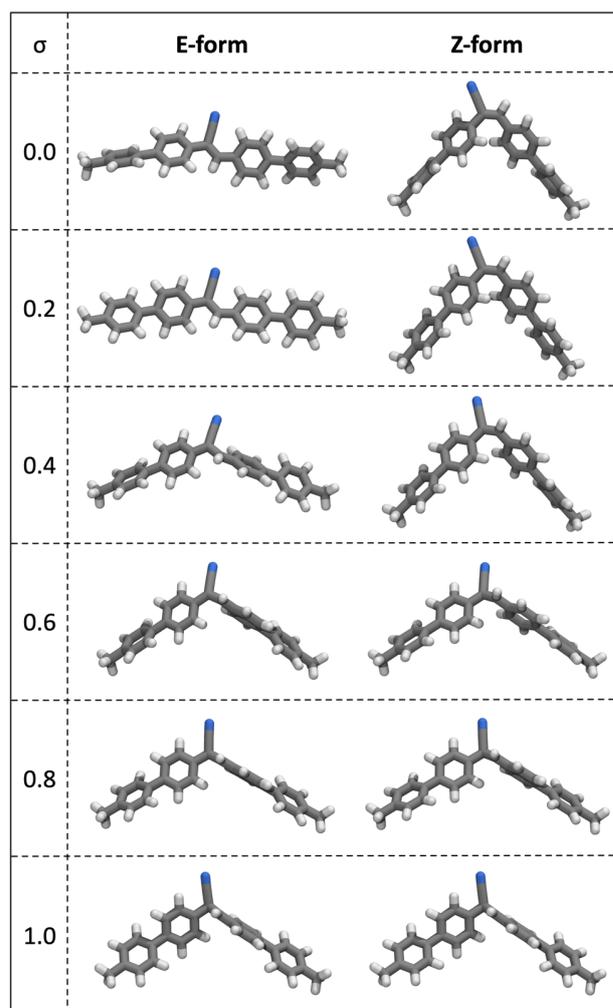


図1 凝集誘起発光色素 CN-MBE の FC 点から MECI に至る MEP に沿った構造変化

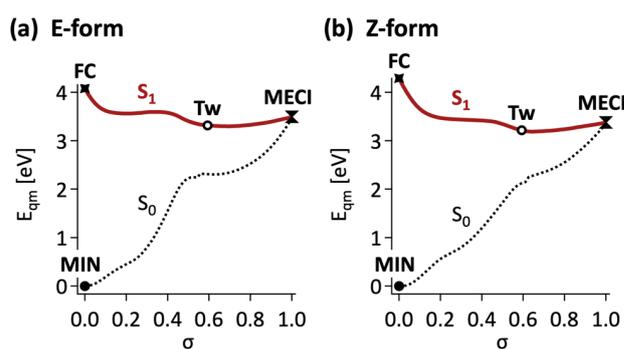


図2 凝集誘起発光色素 CN-MBE の FC 点から MECI に至る MEP に沿った構造変化

図 1 では,  $\sigma = 0$  における立体構造が  $S_0 \rightarrow S_1$  垂直励起した FC 状態に対応し,  $\sigma = 1.0$  における立体構造が MECI 状態に対応する。図 1 に示すように, CN-MBE の MECI 状態は, この分子のエチレン部位

の回転角がほぼ 90 度となるときに基底状態および励起状態のポテンシャル曲面が交差することが明らかになった。さらに、Z 型および E 型を垂直励起した FC 点から、この  $S_0/S_1$ MECI 状態まで、ほとんどバリアレスであることも明らかになった。これらの二つの事実から、この分子を光励起した後のふるまいとして、FC 状態から MECI 状態に至るまでの自発的な構造変化がおり、辿り着いた  $S_0/S_1$  交差点を経由してすみやかに基底状態に戻ると予想される。つまり図2のエネルギープロファイルからは、孤立あるいは希薄溶液中にあるような CN-MBE の場合、 $S_0/S_1$  交差点を経由して無輻射的に緩和するために、この分子は蛍光を示さないことが明らかになった。

図3には、E 型および Z 型 CN-MBE の凝集構造を示す。それぞれの凝集構造で分子動力学シミュレーションを実行し、拡散定数の値(D)を解析した。その結果、E 型の凝集体の場合には  $D = 6.07 \times 10^{-6} \text{ nm}^2 \text{ ps}^{-1}$  であり、密に凝集していることが明らかになった。一方で Z 型の凝集体の場合、 $D = 8.06 \times 10^{-6} \text{ nm}^2 \text{ ps}^{-1}$  であり、比較的疎に凝集していることが明らかになった。

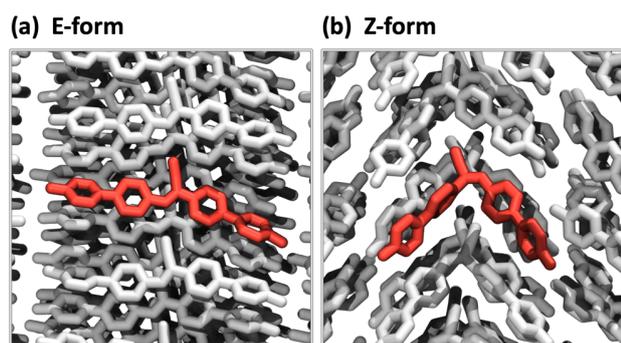


図3 E 型および Z 型 CN-MBE の凝集構造

図3で示す凝集体で QM/MM 分子動力学シミュレーションを実行し、その結果から、CN-MBE の FC 点から MECI に至る MEP に沿った自由エネルギー変化を解析した。E 型および Z 型の CN-MBE の凝集状態における自由エネルギープロファイルを図4に示す。この場合に得られたエネルギープロファイルは、図2で示す孤

立状態の結果と大きく異なる特徴を持つことが明らかになった。図4a から CN-MBE の凝集構造中におけるふるまいを読み取ると、E 型の CN-MBE を垂直励起した FC 点では直線状の構造を有しているが、凝集体中でこのような直線構造の分子がねじれようとすると周囲の分子が障壁となるので、これらを押しつけて ethylenic C=C 二重結合部分が回転するには大きなエネルギーが必要となる。このように、E 型 CN-MBE の場合、凝集体中では垂直励起後、分子構造の変化 (ethylenic C=C 二重結合部分の回転) を経て  $S_0/S_1$  交差点に至る経路がエネルギー的に著しく不利になっていることが明らかになった。以上のことから、E 型 CN-MBE の場合、凝集構造では無輻射に緩和する経路が著しく抑制されているために強い発光を示すと考えられる。

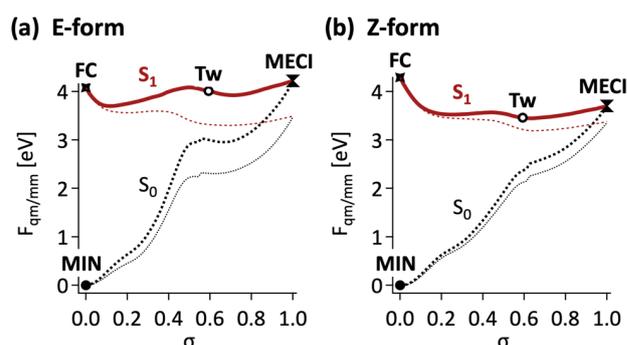


図4 E 型および Z 型 CN-MBE の凝集状態における MEP に沿った自由エネルギー変化

Z 型 CN-MBE の凝集構造中における MEP に沿った自由エネルギー変化を図4bに示す。Z 型の場合、図4aに示す E 型 CN-MBE の結果とは大きく異なることが明らかになった。Z 型 CN-MBE の凝集体が光励起されたときには、垂直励起した  $S_1$  ポテンシャルエネルギー曲面上の地点からほぼバリアレスで  $S_0/S_1$  交差点へとすみやかに緩和することを示している。したがって、Z 型 CN-MBE が凝集誘起発光を示さない原因は、凝集体中であっても Z 型は比較的容易に ethylenic C=C 二重結合部位の回転運動が起こることですみやかにポテンシャルの  $S_0/S_1$  交差点に到達することが可能であり、この交差点を経て無輻射で基底状態に構造緩和するためであることが明らかになった。また、基底状態に至

った分子は2つの経路に分岐し、Z型に戻るものとE型に変化するものが現れるために室温中でも容易に異性化反応が起こることも明らかになった。

#### まとめ、今後の課題

本研究では、CN-MBE が示す凝集誘起発光現象のメカニズムの詳細を明らかにするために、量子化学と分子動力学シミュレーションを組み合わせた理論的な解析をおこなった。この結果、これまで不明であった CN-MBE の凝集誘起発光のメカニズムを明らかにし、この現象を利用した分子設計をおこなうための基礎を確立した。

シアノスチルベン誘導体の他にも、凝集誘起発光現象を示す蛍光物質 (AIEgen: AIE luminogen) が報告されている。これらの AIEgen について、基本的なメカニズムは今回解析したシアノスチルベン誘導体と同様だと考えられるが、その詳細は不明である。そこで今後の課題として、本研究課題で確立した手法を駆使して、これまでに発見されている AIEgen の発光過程を調べることで、AIE の基本的なメカニズムの解明に取り組む予定である。

#### 参考文献

- 1) Norifumi Yamamoto,  
“Free energy profile analysis to identify factors activating the aggregation-induced emission of a cyanostilbene derivative”,  
Physical Chemistry Chemical Physics,  
Vol. 23, pp. 1317-1324 (2021)

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 分子動力学シミュレーションを用いた膜輸送タンパク質の分子機構の解明  
 英文: Analysis of transmembrane transporters by molecular dynamic simulation

利用課題責任者 木下賢吾  
 Kengo Kinoshita

所属 東北大学大学院情報科学研究科  
 Graduate School of Information Sciences, Tohoku University  
 URL <http://www.sb.ecei.tohoku.ac.jp/>

膜輸送タンパク質は栄養物質や薬剤などの分子を細胞内に輸送する重要な役割を果たしている。しかし多くのタンパク質ではその詳細な分子機構は明らかになっていない。本研究では塩化物イオン膜輸送タンパク質 SLC26A9 の野生型および疾病関連変異型の分子動力学シミュレーションを行い、基質輸送の機構の解明を試みた。変異型のシミュレーションでは基質分子の結合の阻害が観測され、また変異がタンパク質の動的挙動にも影響を与えていたことから、基質輸送のために重要な分子の運動の仕組みが明らかになった。また、この分子機構は生体内で SLC26A9 が他の膜輸送タンパク質に動的な影響を受けて共同的に働くことを示唆している。

Transmembrane transporters play an important role in transporting molecules such as nutrients and drugs into cells. However, the detailed molecular mechanism of many proteins has not been clarified. In this study, we performed molecular dynamics simulations of the wild-type and a pathological mutant of the chloride ion transmembrane transporter SLC26A9 to elucidate the mechanism of substrate transport. In the mutant simulation, inhibition of substrate binding was observed, and mutations also affected the dynamic behavior of the protein. From these results, the mechanism of molecular motion, which is important for substrate transport, was clarified. This molecular mechanism also indicates that SLC26A9 collectively functions the dynamics influence of the other transmembrane transporter in living cells.

*Keywords:* Membrane protein; Transporter; Molecular dynamics; Pathological mutation; Ligand binding;

#### 背景と目的

細胞膜内への分子の輸送は、栄養物質の取り込みや薬剤の細胞内への輸送に代表されるように、生体に重要な役割を果たしている。しかしその詳細な分子メカニズムについては、未だ明らかになっていないタンパク質も数多い。

本プロジェクトでは、SLC トランスポーターに着目し、分子動力学シミュレーションを用いることにより、分子の輸送に関わる分子運動および疾患関連変異による輸送形態の変化を分子レベルで明らかにした。

#### 概要

本プロジェクトでは塩化物イオン膜輸送タンパク質である SLC26A9 を対象とした分子動力学シミュレーションを行った。SLC26 ファミリータンパク質は肺や胃上皮に発現し、嚢胞性線維症の原因分子として知られる CFTR と共同的に塩化物イオンの輸送を行うことが知

られている。近年のクライオ電子顕微鏡による構造解析により、SLC26 タンパク質がドメイン運動を伴って基質輸送を行うことはわかってきたが、イオン輸送や CFTR との共同的な働きの詳細な分子メカニズムは未だに不明である。本研究では野生型および疾病関連変異として報告されているグルタミン 88 変異型(Q88A)双方の分子動力学シミュレーションを行ってその挙動を比較することにより、イオン膜輸送の機構や CFTR との共同性のトリガーの仕組みの解明を試みた。

#### 結果および考察

SLC26A9 の野生型および Q88A 変異型それぞれの全原子モデルで 1 マイクロ秒平衡分子動力学シミュレーションを行った。その結果、野生型のシミュレーションでは基質である塩化物イオンが一時的に基質結合サイトと推定される疎水性ポケットに位置するイベントが複数回確認された(図 a)。一方、Q88A 変異型では塩化物イオンは疎水性ポケットのやや外側までしか浸入する

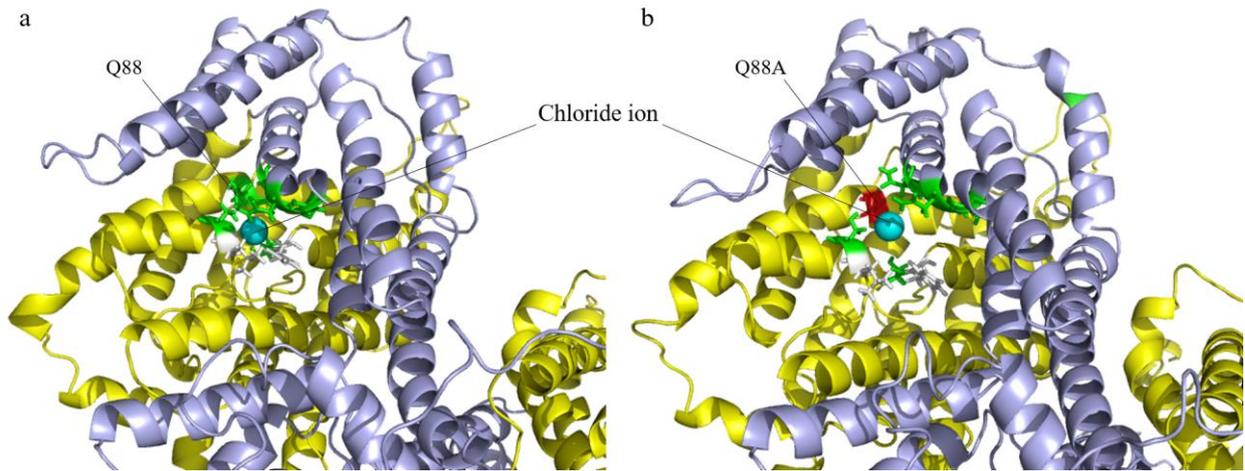


図 SLC26A9 分子動力学シミュレーションに於ける基質結合サイトのスナップショット

a: 野生型 b: グルタミン 88 変異(Q88A)型

塩化物イオン(水色 VDW 球), 疎水性ポケット(白スティック), 極性アミノ酸クラスター(緑スティック), Q88A 変異サイト(赤スティック), コアドメイン(黄色リボン), ゲートドメイン(薄青リボン)

野生型では塩化物イオンの疎水性ポケットへの一時的な結合が観測されたが、変異型ではポケットのやや外側までしか浸入できなかった。野生型と変異型では基質結合サイトの形状に違いが現れた。

ことができなかった(図 b)。この時、結合サイトに於いて疎水性ポケットの反対側に位置する極性アミノ酸のクラスターの形状の変化が観測された(図 a, b)。これは、極性アミノ酸の一つであるグルタミン 88 が疎水性アミノ酸であるアラニンに置き換わることによって、荷電物質である塩化物イオンが誘引されにくくなるという従来の仮説に加えて、変異の影響が SLC26A9 の動的性質にまで及ぶという知見であり、SLC の基質輸送がドメイン運動に伴われるという実験的観察事実とも合致する。この結合サイトを形成する極性アミノ酸の一部は CFTR との共同性を受け持つゲートドメインに位置しており、CFTR が結合サイトの動的挙動に影響を及ぼして SLC26A9 のイオン輸送を制御していることが示唆される。

まとめ、今後の課題

SLC26A9 トランスポーターの分子動力学シミュレーションにより、疾病関連変異がトランスポーターの動的挙動にまで影響して基質イオンの結合サイトへの結合が阻害されることが観測された。この結果から、膜輸送におけるイオンの結合に必要なトランスポーターの運動が明らかになった。しかしながら、CFTR が SLC26 に作用してその挙動に影響を与える仕組みの詳細には未だにわかっていないことも多

い。今後は著者によって並行して行われている SLC26A9 全長モデルの分子シミュレーションから得られた知見も併せて SLC26A9 の基質輸送のメカニズムの全体像を明らかにすることが課題である。

TSUBAME 共同利用 令和2年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 損傷船体の縦曲げ最終強度と波浪中安全性評価に関する研究  
 英文: Study on the ultimate bending strength and the safety assessment of damaged ships

橋本 博公  
 Hirotada Hashimoto

大阪府立大学 大学院工学研究科  
 Osaka Prefecture University  
[http://kyoindb.osakafu-u.ac.jp/html/110441\\_ja.html](http://kyoindb.osakafu-u.ac.jp/html/110441_ja.html)

船舶が衝突・座礁した場合、折損・沈没などの大規模損傷に至るかどうか、至る場合はどの程度の時間が残されているかを、海象条件を考慮して評価する必要がある。本研究は、漂流あるいは被曳航状態の損傷船体について、浸水流動が全船応答および縦曲げ強度に及ぼす影響を調査することを目的とする。TSUBAME3.0 上でのハイブリッド並列計算により、1.5 億超の粒子を用いた大規模な陽的 MPS 法を用いて、内部浸水を含む非線形流体挙動をシミュレートし、付加質量力や減衰力等の巨視的流体力に及ぼす影響を明確化することを試みた。特に、内部の浸水影響の詳細について議論するため、瘦型船のラディエーション流体力に及ぼす損傷破孔の有無の重要性について調査を行った。

In this study, the influence of floodwater on a ship response and longitudinal bending strength of a damaged hull was investigated. By using hybrid parallel computation on TSUBAME3.0, nonlinear fluid behavior including internal floodwater was simulated by a large-scale explicit MPS method with 150 million particles. Then influences on an added mass force and a damping force of a damaged hull were presented. In particular, in order to discuss the details of internal floodwater effects, we investigated the importance of the existence of a damage hole on the radiation forces of a slender ship.

*Keywords: Damaged ship, Floodwater, Radiation force, Explicit MPS, GPGPU*

## 背景と目的

船舶が衝突・座礁した場合、人命・財産・環境への影響を最小化するためには、漂流あるいは被曳航状態の損傷船が、折損や沈没に至るかどうか、あるいは至る場合にはそれまでの時間を、海象条件を考慮して、即時に精度良く判断する必要がある。そのため、まず上述の状態にある損傷船体を対象として、詳細な数値解析(波浪中弾性応答、縦曲げ崩壊挙動、浸水部流体挙動)、並びに水槽試験を行い、波浪中における損傷船体の縦曲げ崩壊挙動を浸水・傾斜影響を含めて明らかにすることを目的とする。

本研究では、損傷船体の縦曲げ最終強度評価法を確立するにあたり、損傷破孔を介して出入りする浸水滞留水が波浪中の船体応答及び縦曲げ荷重に及ぼす影響を明らかにすべく、スーパーコンピュータ TSUBAME3.0 を使用し、十分な大きさの数値水槽を用いた大規模粒子法によって、損傷破孔の有無が船体に作用するラディエーション流体力に及ぼす影響に

ついて明らかにした。

## 概要

浸水流動が全船応答や区画内部への荷重に及ぼす影響を縦強度の観点から調べた研究はこれまでなく、その第一歩となる検討を行う。数値計算には、研究代表者らが開発してきた複数 GPU を用いたの並列計算が可能な陽的 MPS コードを用いる。粒子法の計算コストは、GPU 単体でも大幅に低減させることが可能だが、MPI 通信を用いた複数デバイスによるマルチ GPU 並列プロセス計算を行うことで、2 億超の粒子数を用いた計算を可能としている。MPI によるプロセス並列は、複数の CPU プロセッサで複数のタスクを同時に実行することを可能としており、OpenMPI を並列処理に使用することで計算領域を分割し、それぞれの分割領域における演算を CPU プロセッサに割り当てて処理することで、計算負荷の分散を図っている。また、プログラムにおけるメインストリーム、領域分割の各種処理、分割領

域同士の情報通信(コミュニケータ)はホスト側で逐次処理を行い、分割領域内での粒子法による流体解析では、最も計算コストの高い時間発展部分の全てをデバイス側の演算によって処理する。

数値水槽とシミュレーション条件は Fig.1 と Table 1 に示した通りであり、水槽壁面からの反射波の影響を避けるため、損傷区画に対して十分に大きな水槽サイズを確保し、計算領域の両側には傾斜角 15 度の消波用ビーチを設けた。本研究では、TSUBAME3.0 の 4 ノード、16 プロセス、16GPU を用いて 30 秒間のシミュレーションを行った。

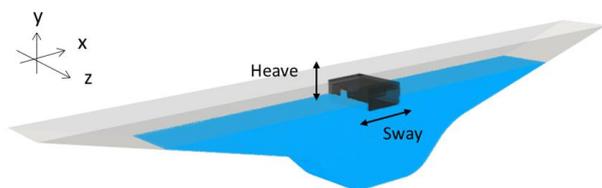


Fig.1 Numerical wave tank

Table 1 Simulation condition

粒子間距離 [m]	0.005
総粒子数	15,968,650(非損傷船モデル) 16,122,122(損傷船モデル)
マッハ数 [-]	0.2
クーラン数 [-]	0.2
時間刻み幅 [s]	$1.61 \times 10^{-4}$
動粘性係数 [ $m^2/s$ ]	$1.00 \times 10^{-5}$

数値水槽に設置した船体区画を強制的に規則的な上下運動(Heave)または左右運動(Sway)を与える、いわゆるラディエーション問題を解くことで、強制運動に対する反力としてラディエーション流体力を求めた。非損傷状態と右舷中央部に損傷破孔と損傷区画を有する損傷状態の 2 状態について、シミュレーションを実施した。強制動揺の条件は、線形の深水波の理論をもとに、左右方向に造波される波の波長が垂線間長 3.0m とその半分の 1.5m となる周期 1.39s と 0.57s に設定した。30 秒間のシミュレーションでは、最初の 5 秒間は静定状態を作り出すために動揺は与えず、5 秒時点から 10 秒間の線形ランプを設定したうえで強制動揺を与えている。

## 結果および考察

Sway 方向強制動揺シミュレーションで得られた非損傷船と損傷船の流体力を Fig.2-3 に示す。前者は動揺周期が 1.39s の結果、後者は動揺周期が 0.57s の結果である。x 軸方向では、ラディエーション流体力の変動振幅が損傷時の方が大きい。これは、損傷破孔から流入した滞留水が内部区画側壁に衝突する際の衝撃的な圧力が加わったためと推察される。動揺周期を短くすると区画全体に作用する流体力振幅が大きくなった。浮体には正弦的な強制動揺により生じる加速度、速度に比例する力が作用するため、動揺周期を短くする方が大きな流体力が船体に作用する。y 軸方向については、動揺周期が長い場合は制限的な変動となっているが、動揺周期が短い場合は損傷の有無に関わらず非線形な変動を示している。また、損傷時には一定の滞留水が船内区画に存在することによる定常値の変化がみられる。z 軸まわりのモーメントでは、損傷時に非対称浸水による定常傾斜モーメントが発生している。しかしながら、動揺周期が 0.57s のときには定常モーメントの発生に加えて振動振幅も大きくなることが確認できる。Fig.4-5 は各周期でのシミュレーションのスナップショットである。周期が長い場合でも区画内部のスロッシングや損傷破孔を通じての流入が生じていることが確認できる。

## まとめ、今後の課題

TSUBAME3.0 を用いた大規模な陽的 MPS により、瘦型船の非損傷/損傷状態でのラディエーション流体力の推定を試みた。本計算における空間解像度は、喫水に対して約 20 個、全幅に対して約 96 個の粒子を確保しており、圧力振動は避けられないものの、Sway 方向と Heave 方向のラディエーション流体力への損傷破孔および区画内部滞留水の影響を明らかにした。今後は水槽実験を実施し、その結果と比較することで、縦曲げ強度の解析に求められる精度が得られているかを検証する必要がある。また、現在の粒子法コードには壁境界条件にミラー粒子を用いているが、薄板を挟んで内外の流れをシミュレートするにはミラー粒子の生成位置に工夫が必要であり、今後解決すべき課題となっている。

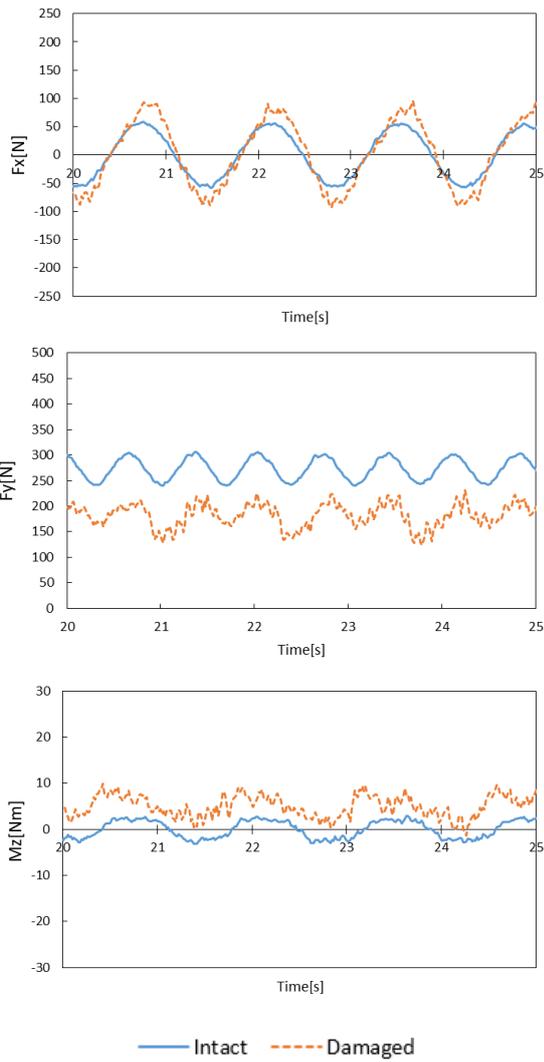


Fig.2 Time series of simulated radiation forces under forced sway [1.39s]

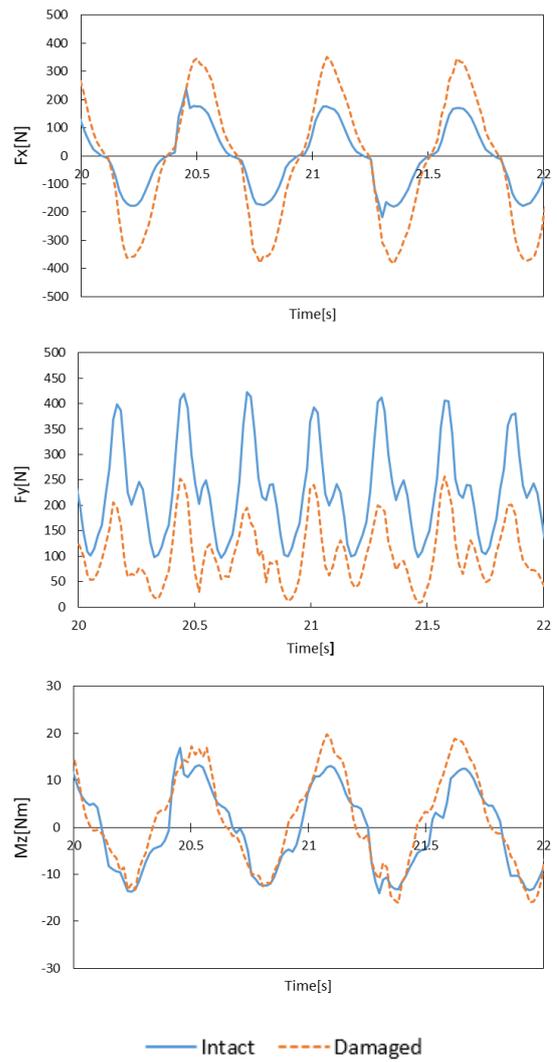


Fig.3 Time series of simulated radiation forces under forced sway [0.57s]

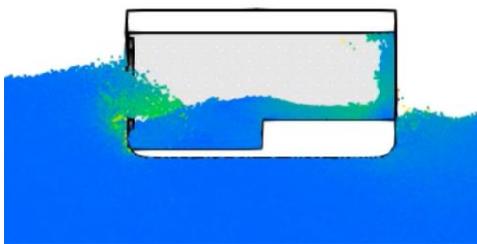


Fig.4 Interaction of water and a damaged hull under a forced sway motion at period of 1.39s

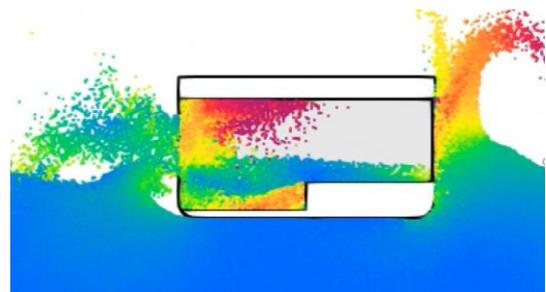


Fig.5 Interaction of water and a damaged hull under a forced sway motion at period of 0.57s



TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 LRnLA アルゴリズムを用いた物理シミュレーション  
 英文 : Simulation of Physical Processes with LRnLA Algorithms

善甫 康成

Yasunari Zempo

法政大学 情報科学部

Computer and Information Sciences

<http://cis.k.hosei.ac.jp/>

メモリバウンドの問題に関して、局所的にステンシル計算が可能な場合、GPU は CPU 処理と比較してシミュレーション速度を向上させる。ただし、データサイズが GPU デバイスメモリに適合しない場合、処理を CPU-GPU 間でデータの交換を行うと、大幅なオーバーヘッドが生じパフォーマンスが低下する可能性がある。temporal blocking を使用すると、データ交換の影響を隠すことができる。我々は wavefront 型 temporal blocking アルゴリズムでのデータ同期用に設計された新しいデータ構造を開発中である。この新しいデータ構造作成に向け、格子ボルツマン法の計算のための LRnLA アルゴリズム ConeFold についてテストしているところである。

For memory-bound problems with local stencil, the GPU increases the simulation speed compared to CPU processing. But if the data size does not fit the GPU device memory the CPU-GPU exchange can become a significant overhead, and decrease the performance. With temporal blocking, the exchange can be concealed. We develop a new data structure that is designed for the data synchronization in the wavefront-type temporal blocking algorithms. The data structure is tested for LRnLA algorithms ConeFold for Lattice Boltzmann Method computations.

*Keywords:* LRnLA algorithms, temporal blocking, data structure

## 背景と目的

物理問題の数値シミュレーション、特に波動現象や流体力学の分野では、矩形メッシュ上のステンシルスキームが非常によく使われている。しかし、シミュレーションのコードは、しばしば低い性能効率を持っている。

そこで、一般的なネストされたループではなく、wavefront 型のアルゴリズムを用いることで、データの再利用による効率化を図っている。Wavefront 型アルゴリズムを用いると計算ウィンドウも可能になる [1]。

LRnLA (Locally Recursive non-Locally Asynchronous) アルゴリズム [2,3] の中には、wavefront に似ているアルゴリズムもある。3D では、LRnLA アルゴリズムは、時間と空間の 3D1T タイリングを実現している。dD1T の ConeTorre という LRnLA アルゴリズムは、1D1T の wavefront 型のアルゴリズムの直積として表せる [1]。DiamondTorre LRnLA アルゴリズムも wavefront 型であり、十字型のステンシルに対してより良い局所性がある。

多次元 temporal blocking のもう一つの問題は、データアクセスの局所性、ベクトル化のためのデータ・アライメント、並列アクセスのための coalescing の原則を満たすデータレイアウトを探す

ことである。

そのため、コンパイラの自動的なループの最適化では、データレイアウトの制約を超えること不可能である。従って、手動によりデータレイアウト扱う方法が必要である。

複雑なデータアクセスに関する問題は、多くの LRnLA コードにも存在していた。データストレージのインデックス計算の複雑性が上がると、その影響がデータアクセスの coalescing が不十分になることなどに現れる。

本プロジェクトでは、波面型 LRnLA アルゴリズムにおけるデータ格納問題の解決策を開発することである。これにより、CPU の RAM を主なデータ保存場所として使用し、GPU での計算を行えば、CPU と GPU の間のデータ交換を行っても、計算性能影響を与えない。場合によっては SSD ストレージまで同じように使用できる。

本プロジェクトでは、wavefront 型および、その他の temporal blocking に使用できる方法を研究しています。さらに、GPU global メモリと GPU shared メモリで効率的なデータ交換する方法を探すものである。

## 概要

時空間の依存グラフには、 $(x, y, z, t)$  の点が、この

座標に対応するフィールド値を得るための演算を示す。LRnLA アルゴリズムは、その空間におけるポリトープとそのポリトープの細分で表せる。

すべてのメッシュ値を時刻  $N_T$  までに更新するタスクは、依存グラフ全体を覆うボックスで表現される。ネストされたループでは、同じ  $t$  座標を持つすべての点を覆うボックス (サブタスク) に細分される。そのあと、並列実行のためにさらにサブタスクに分解されることもある。再帰的な細分化は、メッシュノードの更新で終了となる。LRnLA アルゴリズムと temporal blocking アルゴリズムには、そのかわりに、 $t$  軸に伸びるピラミッドかプリズムなどの形に細分がおこなわれる。

依存関係グラフの  $dD$  座標空間への投影はデータ空間であり、ポリトープの投影はその実行時に保存しなければならないデータを表す。ステンシルコードでは、ロードしなければならないデータは、その投影の近辺にある。

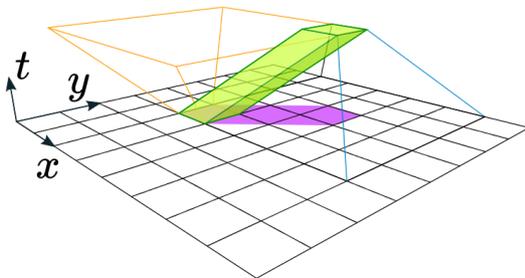


Fig. 1. 同期平面上の 2 つのキューブの影響領域と依存領域の交点としての ConeTorre と、その投影でのセルに格納されているデータ(ピンク)。2D1T で二次元のシミュレーションをあらわすが、実際のコードは 3D1T となっている。

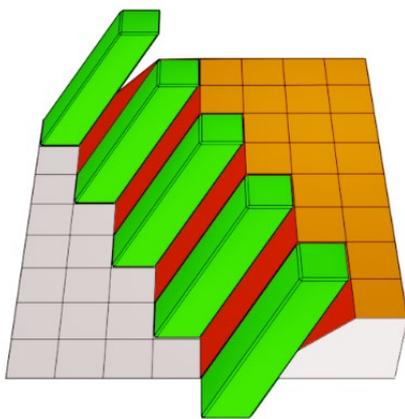


Fig. 2. 非同期 ConeTorre の wavefront. オレンジ色のタイル上では、 $t = N_T$ ; 赤色のスロープ上では、 $0 < t < N_T$ 。

ConeTorre という LRnLA アルゴリズム(図 1、2)は、Wavefront 型アルゴリズムの一般化である。その形は、2 つのハイパーキューブの間にある 3D1T プリズムと言え。この構造は、多次元で可能であり、座標軸で分割することができる。

## データレイアウト

立方体のシミュレーション領域を例にとって説明する。図 3 は、ConeTorre をデータ空間に投影した時の様子を表している。

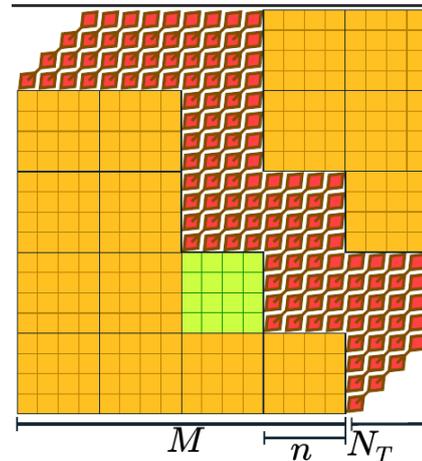


Fig. 3. データレイアウト。図中で一番小さ四角形は ConeTorre のベースの  $8 \times 8 \times 8$  セルと考える。緑色: Tile、黄色: BaseTile、赤: FARsh。

基本的な ConeTorre 計算では、 $t = 0$  の  $8 \times 8 \times 8$  セルの立方体が GPU レジスタ (またはターゲットとなるコンピュータシステムの上位メモリレベル) にロードされ、更新される。その後、その立方体の左側のセルがメインメモリストレージに保存され、立方体の右側のセルがそこからロードされる。この後、ConeTorre での計算はさらに 1 ステップ進む。

主なデータ保存場所では、データは AoS (array of structure) 方式で整理されている。配列要素には、ユニットスキームの更新で更新されるデータが含まれている。配列は、データアクセスの局所性のためにタイルで構成されており、その極端な例が Z カーブ配列である。これは自然なデータの保存方法であり、データの初期化や視覚化のための出力、その他の診断に便利である。

しかし、ConeTorre (図 1) でアクセスされるデータ配列の一部の形状は、このようなパターンに適合していない。配列のインデックス計算には、通常、整数演算のオーバーヘッドが存在する。計算したデータを保存する際には、正方形に準拠したデータ構造の中で、細長い六角形をループさせる必要がある(図 1、ピンク)。そして、次の ConeTorre で読み込まれる時に、再び六角形が横断されます。

本プロジェクトでは、wavefront 型アルゴリズムにおけるデータ交換に最適な新しい FARsh (Functionally Arranged Shadow) というデータ構造を提案する。

ベースとなる立方体の右側にある点  $(x_0, y_0, z_0, t_0)$  を考えてみる。点  $(x_{0+i}, y_{0+i}, z_{0+i}, t_{0+i})$ ,  $i = 0, \dots, N_T - 1$  の線は、FARsh の要素である。下の ConeTorre では  $i$  の大きい順に書かれ、上の ConeTorre ではその順に読まれる。このように、共通の面を持つ

ConeTorre間のデータは、このようなセルの並びによって交換することができる。FArShのデータは、サブタスク間でデータ交換がおける所でのみ必要となる。

ConeTorreには、GPUで保存されているTileという配列からベースキューブのデータと、FArShからスロープのデータを読み込む。実行後、上側の立方体のデータをBaseTileに、上側の斜面のデータをFArShに書き込み、以前に保存したデータを置き換える。

この手法は、計算流体力学のステンシル計算方式であるLattice Boltzmann Method (LBM)の実装でテストを行っている。GPUのグローバルメモリに格納されている主なデータはTile配列で、LBMのデータが格納されている。FArShは、セルのラインの配列としてGPUグローバルメモリに格納されている。

ConeTorreは、 $8 \times 8 \times 8$ のCUDAスレッドのブロック上で起動して計算が実装されている。まず、ベースとなるセルをメモリ上のTileからスレッドレジスタにロードし、CUDAスレッドごとに1セルずつロードする。BaseTileデータ構造は、CPU RAMで初期化されます。BaseTileは3次元配列であり、BaseTileの配列要素はTileである。GPUはTileをCPU RAMから1つつロードし、ConeFoldで実行して、結果のTileをCPU RAMにセーブする。FArShはGPUに格納されているので、前に計算されたものから次のConeFoldに必要なデータの送信を行う。

### まとめと今後の課題

現在の高性能アルゴリズムに関して、理論的に理想的な形は次のようになる。計算を局所化するために最も高いメモリレベルを使用し、プロセス間のデータ交換にはより小さなメモリレベルを使用し、ストレージには最も大きなメモリ容量を持つメモリレベルを使用することである。またシステム上でのデータの移動は、計算と同時に行うことである。

FArShでは、データ交換をより細かく制御し、この目標に限りなく近づけることができる。つまり、シミュレーションデータはCPU RAMにあるが、GPU内のサブタスク間のデータ交換に必要なデータはGPUメモリから出ることではない。

### 参考文献

[1] Wolfe, Michael. "Loops skewing: The wavefront method revisited." *International Journal of Parallel Programming* **15**(4), 279-293 (1986)

[2] Levchenko, V.D., Perepelkina, A.Y. Locally Recursive Non-Locally Asynchronous Algorithms for Stencil Computation. *Lobachevskii J Math* **39**, 552-561 (2018).  
<https://doi.org/10.1134/S1995080218040108>

[3] Zakirov, Andrey, Vadim Levchenko, Anastasia Perepelkina, and Yasunari Zempo. "High

performance FDTD algorithm for GPGPU supercomputers." In *Journal of Physics: Conference Series*, **759**(1), 012100. (2016)

[4] Endo, Toshio, "Applying Recursive Temporal Blocking for Stencil Computations to Deeper Memory Hierarchy." 2018 IEEE 7th Non-Volatile Memory Systems and Applications Symposium (NVMSA). IEEE, 2018.



TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 HPC を利用した自然言語処理技術の研究

英文: High Performance Computing for Natural Language Processing Technology Research

利用課題責任者

鳥澤 健太郎

所属

国立研究開発法人情報通信研究機構 ユニバーサルコミュニケーション研究所

データ駆動知能システム研究センター

<http://www2.nict.go.jp/direct/>

邦文抄録(300 字程度)

本課題では、課題責任者らが開発を進めてきた、大規模ニューラルネットワーク学習のための自動並列化深層学習ミドルウェア RaNNC について、TSUBAME の計算資源を用いながら、主に通信部のチューニングと動作検証を実施した。RaNNC は、ニューラルネットワークを分割するモデルパラレルと呼ばれる並列化を自動化する機能を持つ。別途実施した課題責任者らの所属組織の計算資源を用いた機能強化と合わせ、包括的なチューニングを進めた結果、同じくモデルパラレルによる並列学習を行うフレームワークである Megatron-LM と比較して、約 5 倍のパラメータを持つニューラルネットワークを学習できること、両方が学習可能な規模のニューラルネットワークでは、ほぼ同等の学習速度であることを確認した。また、RaNNC の動作検証を通じて堅牢化を進め、ソースコードを GitHub に公開した。

英文抄録(100 words 程度)

In this project, we improved the efficiency of communication of RaNNC, automatic parallelization middleware for training very large-scale neural networks, and tested RaNNC's features using TSUBAME. RaNNC automatically partitions a neural network for model parallelism. After we performed comprehensive performance tuning using TSUBAME and our clusters, we compared RaNNC with some existing frameworks. The experimental results showed that RaNNC can train models five times larger than Megatron-LM, a well-known framework for training very large neural networks with model parallelism, and RaNNC's training throughputs are comparable to Megatron-LM's when training the same models. We also improved the robustness of RaNNC though tests using TSUBAME and released the source code on GitHub.

*Keywords:* 自然言語処理, 大規模ニューラルネットワーク学習, モデルパラレル

## 背景と目的

近年、深層学習で用いられるニューラルネットワークの大規模化が進んでいる。例えば言語処理分野では、2018 年に Google から発表された BERT[Devlin 2018]を端緒として、事前学習を用いる極めて大規模なパラメータを持つニューラルネットワークが次々に発表されてきた。著名な例では、GPT-3[Brown 2020]と呼ばれるネットワークは、約 1750 億ものパラメータを持つ。

深層学習で広く用いられる、データパラレルと呼ばれる並列化方式は、ネットワーク全体を複製するため、こうした巨大なニューラルネットワークは困難である。そこで、我々はネットワークを分割するモデルパラレルを自動的に行うミドルウェア RaNNC (Rapid Neural Network Connector) を開発してきた。

当年度は、ニューラルネットワーク分割アルゴリズムの改善やパイプライン並列の導入によって、RaNNC の学習速度と学習可能なニューラルネットワークの規模を大幅に向上させてきた。本課題では、TSUBAME の計算資源を用いながら、各種のチューニングを行うことで学習速度を向上させると共に、動作検証を重ねることによって RaNNC の堅牢性の向上を目指した。

## 概要

TSUBAME は Intel Omni-Path による高速なノード間接続を備えているため、本課題では、TSUBAME の計算資源を用いながら、主に通信部分に関する RaNNC のチューニングを進めた。また TSUBAME は、仮想化によりノードが持つ GPU の一部のみを利用可

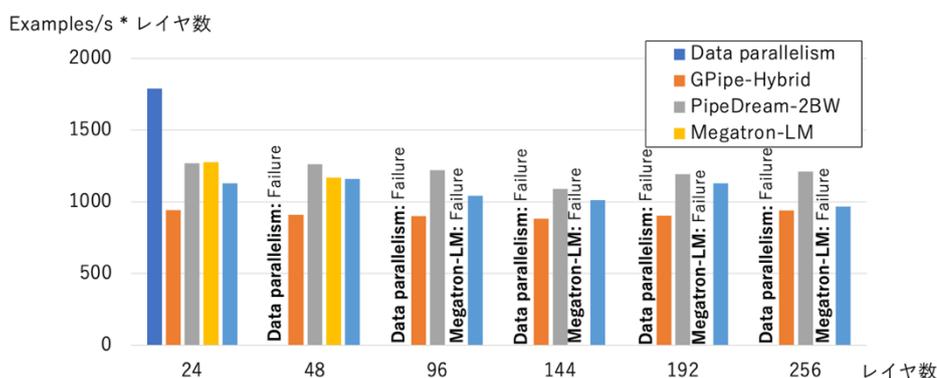


図 1 大規模 BERT モデル(隠れ層サイズ 2048)におけるスループット比較

能とする機能を持つため、様々な GPU 数での動作検証を行った。

### 結果および考察

RaNNC の有効性を評価するため、類似の関連フレームワークとの比較実験を行い、大規模化した BERT の事前学習でのスループットを調査した(図 1)。なお、以降に示す実験では、TSUBAME を用いたチューニングに加え、ニューラルネットワーク分割アルゴリズムの改善や、課題責任者らの所属組織の計算資源を用いたチューニングなど、別途実施した機能強化を包括的に適用している。また、必要リソース量の問題から、本実験は課題責任者らの所属機関の計算資源で実行した。InfiniBand により 100Gbps で接続され、NVIDIA V100 を 8 枚備えたサーバ 4 台を用いている。

BERT の隠れ層サイズは 2048 に設定し、レイヤ数を最大 256 まで拡張した(BERT の原論文では、隠れ層サイズは 1024, レイヤ数は 24)。256 レイヤの設定において、パラメータ数は 129 億に達する。バッチサイズは 256, 系列長 512, 数値精度は FP32 に設定した。

比較対象として、データパラレルのみの設定の他、GPipe[Huang 2018]、Megatron-LM[Shoeybi 2019]、PipeDream-2BW[Narayanan 2020]と比較した(GPipe は原論文ではモデルパラレルのみを行う手法が提案されているが、ここでは PipeDream-2BW の著者らによるデータパラレルと併用する実装を用いた)。

図 1 に示すように、RaNNC は最大で Megatron-LM の 5 倍のモデルを訓練できた。また同一条件で訓練できた場合では、ほぼ同等のスループットを得た。また、GPipe と比較すると、全ての設定でより優れたスループットを得られた。PipeDream-2BW と比較すると、

幾分スループットが低い結果となっているが、PipeDream-2BW は、RaNNC を含むその他のフレームワークと異なり、分割されたニューラルネットワーク間でパラメータの同期を省くことで高速化しているため、学習精度が低下する可能性があるという問題がある。

また、TSUBAME 上での各種の動作検証を通じて、RaNNC の堅牢性を向上させ、RaNNC のソースコードを GitHub に公開した。

### まとめ、今後の課題

当年度実施した、実行速度とスケーラビリティに関する RaNNC の改善を、他のフレームワークとの比較を通じて評価し、訓練速度と学習可能なネットワーク規模の両方において、優れた性能を確認した。

今後、更に大規模なニューラルネットワークを学習するための機能強化を進めると共に、言語処理分野を中心とした各種の大規模ニューラルネットワークに適用し、有効性を検証していく予定である。

### (参考文献)

[Brown 2020] T. B. Brown et al., Language Models are Few-Shot Learners, arXiv:2005.14165, 2020.  
 [Shoeybi 2019] M. Shoeybi et al. Megatron-LM: Training Multi-Billion Parameter Language Models Using Model Parallelism. arXiv: 1909.08053, 2019.  
 [Huang 2018] Y. Huang, GPipe: Efficient training of giant neural networks using pipeline parallelism, arXiv: 1811.06965, 2018.  
 [Narayanan 2020] D. Narayanan et al., Memory-Efficient Pipeline-Parallel DNN Training, arXiv:2006.09503, 2020.

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 二次制約無し二値最適化の古典計算機による高速解法

英文: High-performance solver for quadratic unconstrained binary optimization problems with classical computers

利用課題責任者

中野 浩嗣

所属

広島大学大学院先進理工系科学研究科

URL: <https://cs.iss-j.org/>

邦文抄録(300 字程度)

あらゆる組合せ最適化問題は二次制約無し二値最適化問題(QUBO)に帰着することができる。そこで近年、FPGA、GPU、専用プロセッサ等を用いて QUBO を解く研究が盛んに行われている。アダプティブバルクサーチ(ABS)は複数 GPU を用いて並列に QUBO の解を探索する新手法である。本プロジェクトではたくさんの GPU を搭載したスーパーコンピュータに向けて、ABS のスケーラブルな実装を開発した。TSUBAME3.0 における実験の結果、GPU の数を増やすごとに QUBO のより最適解に近い解を探索することができ、探索速度が線形に向上することを示した。

英文抄録(100 words 程度)

A wide range of combinatorial optimization problems can be reduced to the quadratic unconstrained binary optimization (QUBO) problem. In recent years, researchers have proposed to solve QUBO on FPGAs, GPUs, and special-purpose processors. The adaptive bulk search (ABS) is a framework for solving QUBO in parallel on multiple GPUs. In this study, we propose a scalable implementation of the ABS. Our results on TSUBAME3.0 suggest that the solution quality improves as the number of GPU increases, and show linear improvement of the search rate.

*Keywords:* parallel computing, GPGPU, quantum annealing, Ising model, combinatorial optimization

## 背景と目的

二次制約無し二値最適化 (Quadratic Unconstrained Binary Optimization, QUBO) 問題のソルバは、あらゆる NP 困難の組合せ最適化問題を解くための汎用ソルバとして注目されている。特に近年研究が進んでいる量子アニーリングは QUBO 問題を量子現象によって解くことができるとされている。

しかし、量子アニーリングではハードウェア上の制約によって、扱える QUBO 問題に制限がある。QUBO 問題は二値変数(ビット)と、ビット間の相互作用によって定式化されるが、このビット数と相互作用の数に限りがある。最新の実用量子アニーリングマシン D-Wave Advantage では、ビット数が約 5000、相互作用はビットあたり 15 程度しか扱うことができない。また、必ずしも最適解が求められるわけではない。

このような量子アニーリングの限界から、従来の古

典計算機を活用して QUBO 問題を解く研究が行われている。FPGA、専用プロセッサ、GPU などを使って、量子現象をシミュレートする研究や、あるいは量子現象をまったく用いずに並列計算によって QUBO 問題の近似解を高速に求める研究などがある。中でも我々の開発したアダプティブ・バルク・サーチでは、CPU で遺伝的アルゴリズムを動作させながら、複数の GPU で並列に局所探索を行うことによって高速に最適解に近い解を探索することができる。

本プロジェクトでは、TSUBAME3.0 の豊富な GPU を活用することによって、QUBO 問題の解の探索速度を、GPU を増やすごとに向上させる手法を研究した。MPI と OpenMP を組み合わせたスケーラブルな実装方式を考案し、TSUBAME3.0 での実験で GPU の数に比例した性能向上ができることを実証した。

概要

量子コンピュータの一方式である量子アニーリングは、あらゆる組合せ最適化問題をイジングモデルまたは二次無制約二値最適化問題(QUBO)として定式化することで高速に近似解を求めることができる。しかし現在の量子アニーリングが対応する問題のサイズは限られており、また必ずしも最適解が得られるとは限らない。そこで本プロジェクトでは、多数のGPUを搭載したスーパーコンピュータを活用することで高速な解の探索を行う手法を開発した。

結果および考察

TSUBAME3.0を最大64ノード(=256GPU)使用して提案するQUBOソルバの解精度と探索速度、特にそれらのスケーラビリティを評価した。

評価のためのベンチマークとして、QUBO問題の入力をランダムに生成したランダム問題に加えて、一般的なNP困難の組合せ最適化問題として最大カット問題、巡回セールスマン問題、最大独立頂点集合問題をQUBO問題に変換したものを利用した。

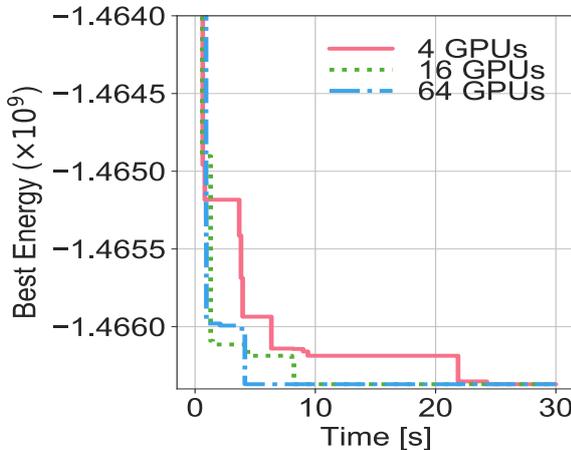


図 1. ランダム問題の探索結果

図1に4096ビットのランダム問題の探索結果を示す。時間経過とともにエネルギーが下がっていく様子が見られる。最もGPU数が多い64GPUの場合でより早く低いエネルギーに到達していくことがわかる。最大カット問題、巡回セールスマン問題、最大独立頂点集合問題においても同様の結果となり、GPUの数を増やすことで解精度が上がり、より最適解に近い解を出す確率が高いといえる。特に図2に示す最大独立頂点集合問題ではGPUの数による解精度の差が顕著に現れている。

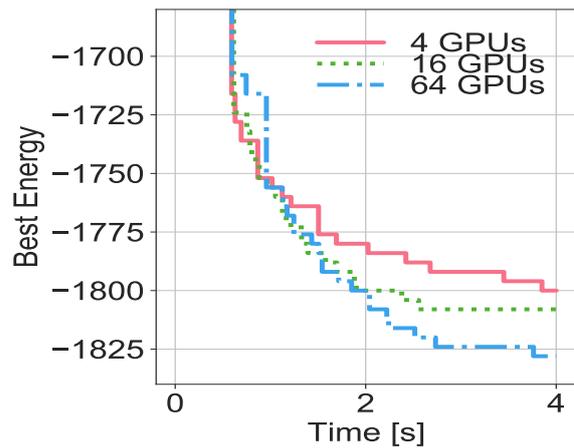


図 2. 最大独立頂点集合の探索結果

次いで探索速度の評価を行った。1秒間に目的関数を評価できる解の数を表すサーチレートを評価指標とした。

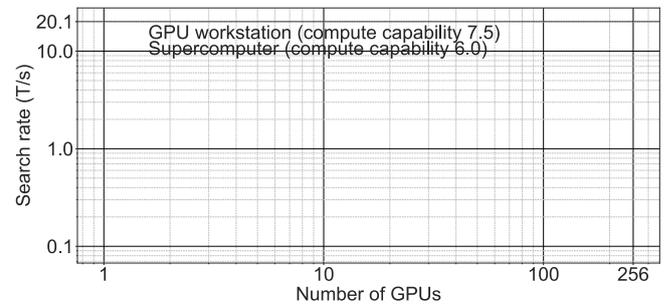


図 3. サーチレートの線形的向上

図3はGPU数を256まで増やしたときのサーチレートを示している。NVIDIA RTX 2080 Tiを4基搭載したGPUワークステーションでは1.2 T/sのサーチレートであるのに比べ、TSUBAME3.0では最大20.1 T/sのサーチレートまで線形的に向上することがわかる。なお、GPU1台あたりのサーチレートが異なるのはGPUが異なるためである。

まとめ、今後の課題

MPIとOpenMPを用いた効率的な並列計算手法によって、QUBOの探索速度をGPU数に比例して線形的に向上させられることを明らかにした。TSUBAME3.0において動作させた結果、256GPUの場合で1秒間に20兆を超える解のエネルギーを計算することができた。探索速度の向上によって、解の質も向上する。

今後は探索速度の向上だけでなく、より大規模なQUBO問題を効率よく解ける手法を研究していく予定である。

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 液体金属流れ CFD 手法の開発及び核融合研究への応用

英文: Development of a High Order Flux Reconstruction Interface Capturing Method for Multiphase Simulations

利用課題責任者 胡 長洪

Changhong Hu

所属 九州大学応用力学研究所

Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University

<https://www.tj.kyushu-u.ac.jp/>

邦文抄録(300 字程度)

高次精度の計算手法は従来の低次精度の解放と比較して、計算精度と計算性能などが優れている。しかし、高次精度方程式はギブズ現象の影響を受けやすく、シャープな界面を正確に扱うことが困難である。本研究では、高次精度 Flux Reconstruction 法(FR 法)を用いて、シャープな界面を捉える手法を提案する。局所的な人工粘性を課したレベルセット関数の前処理を利用することで、界面の法線ベクトルの計算精度を向上した。

英文抄録(100 words 程度)

High-order numerical methods can offer several advantages over conventional, low order methods for fluid dynamics simulations such as higher accuracy and computational performance. A major limitation of high-order methods is their susceptibility to the Gibbs phenomenon, preventing them from accurately resolving sharp interfaces. This work presents a method for capturing sharp interfaces using the high-order Flux Reconstruction approach. The numerical accuracy of interface normal vectors is improved by utilizing a preconditioning procedure based on the level set method with localized artificial viscosity stabilization.

*Keywords: Flux-reconstruction, High-order methods, Multiphase, Phase-field, GPU computing*

#### 背景と目的

Recent trends in CFD research indicate a steadily increasing interest in high-order numerical methods. The ability of such methods to produce results with more accuracy on coarser grids when compared to conventional low order methods resulted in a growing consensus among CFD practitioners that high-order methods may constitute the basis of next-generation CFD research tools. Furthermore, high-order methods, such as the flux-reconstruction and discontinuous Galerkin methods have compact stencils which renders them particularly suitable for computation on modern hardware such as general purpose graphical processing units (GPGPUs). However, these methods have seen little use for multiphase simulations due to their susceptibility to the Gibbs phenomenon; the appearance of spurious oscillations in the vicinity of discontinuities and steep gradients makes it difficult to accurately resolve shocks or sharp interfaces.

In order to address this issue in the context of sharp interface capturing, a novel, preconditioned and localized phase-field method is developed in this work and hereafter referred to as the Flux

Reconstruction Preconditioned Phase Field method (FR-PCPF). The numerical accuracy of interface normal vectors is improved by utilizing a preconditioning procedure based on the level set method with localized artificial viscosity stabilization. The developed method was implemented in the framework of the multi-platform Flux Reconstruction open-source code PyFR [1]. Kinematic numerical tests in 2D and 3D conducted on different mesh types showed that the preconditioning procedure significantly improves accuracy with little added computational effort.

#### 概要

This research aims to develop next generation CFD techniques for solving incompressible, free surface flows. Such phenomena are important in a variety of fields and applications such as flooding and tsunami simulations, applications in naval and marine engineering, and nuclear fusion applications (flow of liquid metal as plasma-facing material). This development is based on the high-order Flux Reconstruction method, which allows obtaining more accurate results while utilizing modern hardware more

efficiently when compared to conventional CFD techniques. The TSUBAME super-computer was used to carry out simulations for testing and validation of GPU-accelerated, high-order CFD code for solving free surface incompressible flows. The simulations aimed to test the accuracy and computational efficiency and scaling of the code for problems involving a large number of degrees of freedom.

### 結果および考察

Results from numerical benchmark tests that were carried out have shown that the FR-PCPF method is able to produce results that are comparable to some of the most accurate low and high order methods by using second order polynomial basis. Increasing the polynomial order further improves numerical accuracy. Figure 1 shows simulations of the Rider-Kothe vortex benchmark case [2], where the black dashed line is the initial state of the droplet, and the red line shows the final state, which demonstrates the good accuracy of the method.

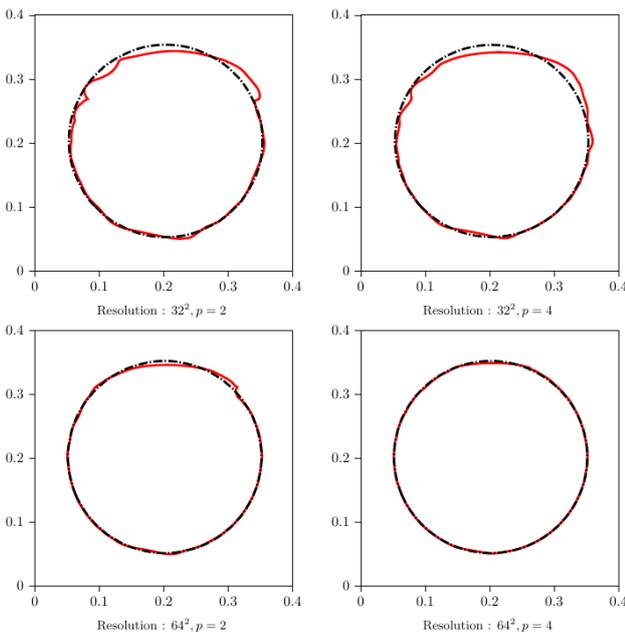


Figure 2: Rider-Kothe simulation using the FR-PCPF method (red line is final state and black line is initial state of droplet)

The FR-PCPF method is shown to be able to conserve mass and resolve challenging interface features even with long time integration. Increasing effective resolution (by either increasing the polynomial order per computational element or by increasing the mesh resolution) was shown to produce consistent improvements in global mass conservation, accuracy and the ability to resolve complicated interface features.

The FR-PCPF method's applicability to

multi-phase flows has been demonstrated by coupling the interface capturing algorithm to the Entropically Damped Artificial Compressibility (EDAC) Navier-Stokes system of equations, and simulations of the Rayleigh-Taylor instability (in figure 2) and bubble rise problems yielded good matching with previously published results.

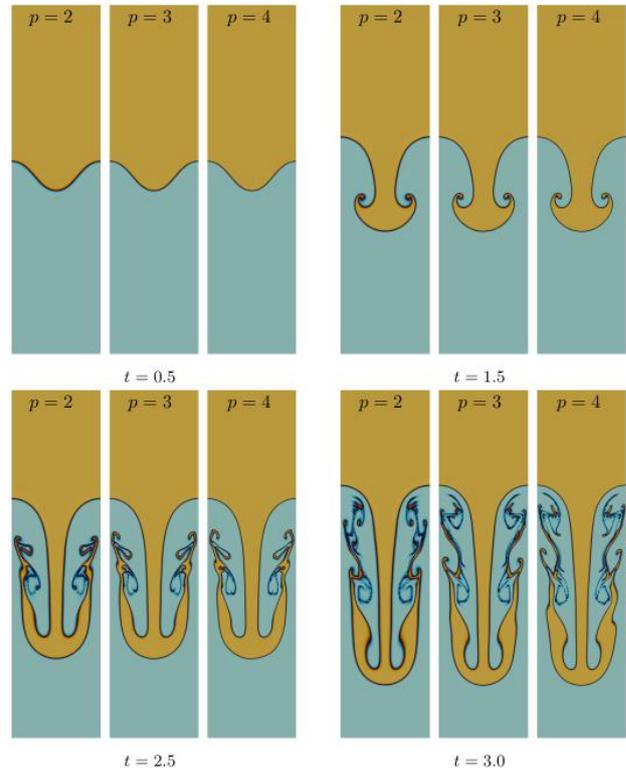


Figure 1: Simulation of the Rayleigh-Taylor instability using the FR-PCPF coupled with the EDAC formulation using different polynomial orders

### まとめ、今後の課題

In this report, progress on the development of a high-order method for interface capturing for use in high-accuracy and large-scale simulations has been summarized. Satisfactory results of benchmark tests were obtained. Future work includes optimization of model parameters and extending the range of tractable density ratios to cover those needed in applications such as liquid metal flow in low pressure environments.

### References

- [1] Witherden FD, Farrington AM, Vincent PE. PyFR: An open source framework for solving advection-diffusion type problems on streaming architectures using the flux reconstruction approach. *Computer Physics Communications*. 2014 Nov 1;185(11):3028-40.
- [2] Rider WJ, Kothe DB. Reconstructing volume tracking. *Journal of computational physics*. 1998 Apr 10;141(2):112-52.

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

GPU クラスタを用いたミリ波帯大規模広帯域電波伝搬シミュレーション  
Large-Scale Propagation Simulations of Ultra-Wideband Electromagnetic Fields in Millimeters Wave  
Frequencies Using GPU Cluster

チャカロタイ ジェドヴィスノフ  
Jerdvisanop Chakarothai

国立研究開発法人情報通信研究機構  
National Institute of Information and Communications Technology  
URL: www.nict.go.jp

これまでのミリ波帯電波伝搬解析において、地面等の複素誘電率の分散特性が Cole-Cole モデルによって表され、電磁界解析に盛り込むことが困難であった。本研究において、新たな周波数依存型 FDTD 法を用いることにより、一度の解析で複数点の周波数における解を求めることができ、かつパルス波形の伝搬特性を求めることができた。大規模 GPU クラスタにより高速化を行った結果、4 ノード(16 GPU)による計算時間(10000 ステップ)は 58 分で終わることができ、通常ワークステーションによる 24 並列での計算よりも約 20 倍速い結果が得られた。

Since dielectric properties of natural materials such as soils are frequency-dependent and they are often expressed by the Cole-Cole model, it is difficult to incorporate the material properties into time-domain electromagnetic simulations for analyses of propagation in millimeter-wave band. In this study, we use a new finite-difference time-domain method and perform parallelization on the TSUBAME 3.0 GPU cluster to accelerate the calculation of millimeter-wave propagations. As a result, the acceleration rate performed on the 4 nodes with 16 GPUs was approximately 20 times faster than that using common workstation with 24 parallel threads.

*Keywords: Large-scale simulations, Electromagnetic pulse, Frequency-dependent, Finite-difference time-domain method, millimeter-wave*

## 背景と目的

5G や Beyond 5G の次世代無線通信技術はミリ波帯電波が利用される。しかし、ミリ波帯電波は波長が短く、表面が凹凸な地面や物体から散乱されやすいため、従来のレイトレーシング法や光学近似法による受信電力の予測が困難である。そこで、本研究では、様々な伝搬環境(地表上・室内など)におけるミリ波帯広帯域電波の受信電力を高精度に予測するために、大規模電磁界シミュレーションを新たに開発する。加えて、地面やコンクリートなどの広帯域な電磁的分散特性を考慮できるようにする。

本プロジェクトでは、ミリ波帯の電波伝搬計算のために、TSUBAME3.0 の GPU クラスタを用いて、高速に解析を行うとともに、物質との相互作用を正確にモデリングするために、電磁的特性の周波数分散を考慮できる手法を組み込み、広帯域パルス電磁界に対する大規模電磁界シミュレーション技術を確立することを目的とする。

## 概要

ミリ波帯における電波は他の周波数帯と比較して、電波の直進性が大きく、見通し伝搬の形態が多い。しかし、ひとたび電波伝搬のフレネルゾーン内に該当帯域電波の吸収体・散乱・反射体などが存在すると、受信電力の予測手法の複雑さが増大し、不確かさが大きくなる。そこで、本研究では、様々な伝搬環境(地表上・室内など)におけるミリ波帯広帯域電波の受信電力を高精度に予測するために、大規模電磁界シミュレーションを新たに開発する。加えて、地面やコンクリートなどの広帯域な電磁的分散特性を考慮できるようにする。

## 結果および考察

TSUBAME3.0 の GPU クラスタによる大規模電磁界シミュレーションのための並列化周波数依存型時間領域有限差分 (Frequency-Dependent Finite-Difference Time-Domain, (FD)<sup>2</sup>TD)法を開発した[1]-[5]。各ノードにおいて 4 つの GPU を同時に

使用し、並列化を行った。また計算速度を加速するために、GPU 間での通信を NVIDIA の GPUDirect 技術によって直接行うと共に、各ノード間の通信については、MPI(Message Passing Interface)によって行った。本研究ではモデルの大きさに合わせて、計算に使用する並列ノード数を設定し、開発した並列化 FDTD 法の計算性能及び妥当性を以下のように確認した。

まず、Cole-Cole 分散特性を有する誘電体球モデルに対して、大規模並列化周波数依存型 FDTD 法による解析を行った。誘電体球の半径は 0.1 m で、分散特性を考慮するために、必要な項数は 21 項であった。最大 256 GPU (64 ノード)を同時用いたときの計算効率(理想的な計算時間と実際の計算時間との比)は 82%であった。計算速度に換算すると、55 億セルの電磁界値を更新することができた。誘電体球内に吸収されるエネルギー(Specific Energy Absorption)分布を比較した結果、2%以下の差異で一致したため、本手法の妥当性検討を確認することができた(図 1)。

これまでのミリ波帯電波伝搬において、地面の複素誘電率の分散特性が Cole-Cole モデルによって表され、電磁界解析に盛り込むことが困難であったことから、単一周波数によって解析が行われてきた。本研究において、新たな周波数依存型 FDTD 法を用いることにより、一度の解析で複数点の周波数での解を求めることができ、かつパルス波形そのものを求めることができる。特に、地中レーダ等において、実際のパルス波形を信号処理に用いることができることから、高精度・高分解能なイメージング手法の開発にも有用であると考えられる。また GPU により高速を行い、ミリ波帯電波伝搬に用いると共に、大規模 GPU クラスタにより高速化を行った結果、4 ノード(16 GPU)による計算時間(10000 ステップ)は 58 分で終わることができ、24 コアの CPU で並列したワークステーションによる計算速度よりも約 20 倍速い結果である。さらに、ノード数を増やすことにより、計算速度を向上させることができる(図 2)。

さらに、ミリ波帯の伝搬電波解析では、これまで大規模で計算時間が長かったものを GPU クラスタの使用により現実的な計算時間で解を得ることができ、今後のミリ波帯の研究を加速させることができる。

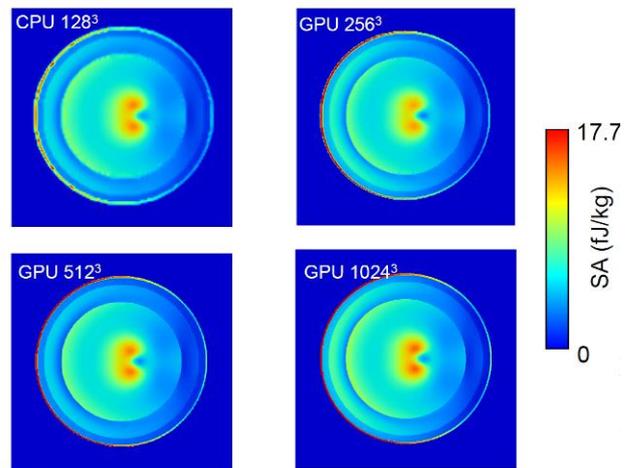


図 1 Cole-Cole 分散特性を有する誘電体球モデルに吸収されるエネルギーの分布

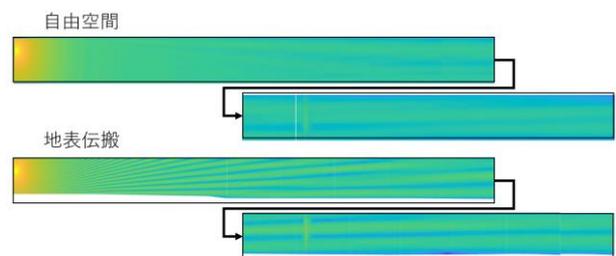


図 2 ミリ波帯電波の地表の電波伝搬解析(自由空間伝搬及び地表電波伝搬)

#### まとめ、今後の課題

本研究は、GPU クラスタを用いることによって高速にモデル環境内における電波伝搬の解析が可能となり、様々な条件における伝搬モデル推定のためのデータを取得できた。さらに、同一環境内における複数デバイスによって形成された電磁環境を解析でき、次世代無線通信システムの設計にとって非常に重要な技術である。今後は、大規模計算に適した吸収境界条件の設定や計算高速化、さらなる高周波化してテラヘルツ帯電波に対する電波伝搬解析が課題である。

本研究の目標を達成するために、東京工業大学の TSUBAME3.0 の GPU クラスタの計算資源を多く利用させて頂いた。また GPU クラスタの不具合が生じたときに早急かつ丁寧に対応して頂いたことに感謝する。おかげで、FDTD 法による大規模電磁界シミュレーション分野においては、Cole-Cole 分散特性を考慮できる周波数依存型 FDTD 法の大規模並列化が可能となり、

多くの研究会・国際会議での発表を行うことができ [6]-[10], 非常に大きな成果が得られた。今後, 学術論文への執筆・投稿も進める予定である。

### 参考文献

- [1] Jerdvisanop Chakarothai, “Novel FDTD scheme for analysis of frequency-dependent medium using fast inverse Laplace transform and Prony’s method,” *IEEE Trans. Antennas Propagat.*, vol. 67, no. 9, pp. 6076-6089, Sep. 2019. DOI: 10.1109/TAP.2018.2878077
- [2] Jerdvisanop Chakarothai, Soichi Watanabe, Kanako Wake, “Numerical dosimetry of electromagnetic pulse exposures using FDTD method,” *IEEE Trans. Antennas Propagat.*, vol. 66, no. 10, pp. 5397-5408, Oct. 2018. DOI:10.1109/TAP.2018.2862344.
- [3] チャカロタイジエドヴィスノブ, 和氣加奈子, 渡辺聡一, 陳強, 澤谷邦男, “超広帯域電磁界解析のための周波数依存性 FDTD 法,” 電子情報通信学会 和文論文 C, vol. J102-C, no. 5, pp. 102-113, May 2019.
- [4] 小内利仁, チャカロタイジエドヴィスノブ, キックアルフレード, 鈴木敬久, 柴山純, “GPU を用いた超並列計算による高速逆ラプラス変換及び Prony 法を適用した周波数分散性 FDTD スキームの高速化に関する検討,” 電子情報通信学会 和文論文 C レター, vol. J102-C, no. 5, pp. 156-160, May 2019.
- [5] Jerdvisanop Chakarothai, Katsumi Fujii, “A unified approach for treatment of frequency-dependent materials in FDTD method,” ISAP 2019, Xi’an, China, Oct. 30, 2019.
- [6] チャカロタイジエドヴィスノブ, 勝巳藤井, “高速逆ラプラス変換と Prony 法を適用した広帯域時間領域電磁界解析及びその応用,” 電子情報通信学会 ソサイエティ大会, CS-1-5, pp. S9-S10, 2020 年.
- [7] 鈴木敬久, 小内利仁, 柴山純, チャカロタイジエドヴィスノブ, “FILT 及び Prony 法を用いた(FD)<sup>2</sup>TD スキームの並列化とパフォーマンス評価,” 電子情報通信学会 ソサイエティ大会, CS-1-6, pp. S11-S12, 2020 年.
- [8] 李鯤, チャカロタイジエドヴィスノブ, 勝巳藤井, 和氣加奈子, 有馬卓司, 宇野亨 “FDTD 法を用い

た人体近傍 UWB 信号の到来波電力遅延特性解析,” 電子情報通信学会 ソサイエティ大会, B-19-7, pp. 323, 2020 年.

[9] Jerdvisanop Chakarothai, Katsumi Fujii, “Retrieval of Debye Parameters from Cole-Cole Model for Broadband FDTD Analyses,” ISAP 2020, Osaka, Japan, Jan. 25-28, 2021.

[10] Li Kun, Jerdvisanop Chakarothai, Katsumi Fujii, “FDTD analysis of pulsed electromagnetic fields for intra-vehicle UWB radios using a voxel human head model,” International Conference on Emerging Technologies for Communications (ICETC) 2020, H1-1, Dec. 12, 2020.



TSUBAME 共同利用 令和2年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 ヒト抗体における構造多様性の網羅的解析

英文: Comprehensive analysis of the structural diversity in human antibodies

利用課題責任者 石川俊平

Shumpei Ishikawa

所属 東京大学大学院医学系研究科

Graduate School of Medicine, The University of Tokyo

<https://plaza.umin.ac.jp/prm/>

邦文抄録(300 字程度)

B リンパ球ではあらゆる抗原に対応するため、同一個体内においても多様な DNA 配列を持つ抗体(免疫グロブリン)を産生する。抗体の多様性を把握することは液性免疫を理解する上で重要な手がかりの一つである。しかしながら、一個体が作り出す抗体の構造多様性、および複数個体間における抗体の構造多様性がどの程度であるのかに関しては、多くの計算資源を利用することもあり、未だにほとんど知られていない。本課題では、申請者の研究室がシングルセルシーケンス技術を用いて取得したヒト抗体アミノ酸配列をもとに、多数の抗体の構造を分子動力学シミュレーションによって解析し、その構造多様性に関する結果を得た。

英文抄録(100 words 程度)

B-lymphocytes produce antibodies (immunoglobulins) with diverse DNA sequences even within the same individual in order to respond to all antigens. Understanding the diversity of antibodies is one of the most important clues to understanding humoral immunity. However, little is known about the structural diversity of antibodies produced by a single individual and the extent of structural diversity of antibodies among multiple individuals, due in part to the use of many computational resources. In this project, based on the human antibody amino acid sequences obtained by our laboratory using single-cell sequencing technology, the structures of a large number of antibodies were analyzed by molecular dynamics simulations to obtain results on their structural diversity.

*Keywords:* 抗体、立体構造、分子動力学シミュレーション、GROMACS

## 背景と目的

B リンパ球ではあらゆる抗原に対応するため、同一個体内においても多様な DNA 配列を持つ抗体(免疫グロブリン)を産生する。抗体の多様性を把握することは液性免疫を理解する上で重要な手がかりの一つである。しかしながら、一個体が作り出す抗体の構造多様性、および複数個体間における抗体の構造多様性がどの程度であるのかに関しては、多くの計算資源を利用することもあり、未だにほとんど知られていない。

本課題では、申請者の研究室がシングルセルシーケンス技術を用いて取得したヒト抗体アミノ酸配列をもとに、多数の抗体の構造を分子動力学シミュレーションによって解析し、その構造多様性を把握することが目的である。

## 概要

まず初めに、当研究室で取得した 9,453 種類のヒト抗体アミノ酸配列に対して、Repertoire Builder [1]を用いることにより分子動力学シミュレーションに入力する抗体の初期立体構造を求めた。その結果、8,838 種類の抗体アミノ酸配列に対しては正常にプログラムが終了し、初期立体構造を得ることができた。

ここで得られた 8,838 種類の抗体立体構造を入力として分子動力学シミュレーションを行った。ソフトウェアは GROMACS を使い、1 ステップあたり 2 フェムト秒、計 50,000,000 ステップ 100 ナノ秒のシミュレーションを行った。その結果、8,585 種類の抗体に対しては正常にプログラムが終了し、経時的な立体構造を得ることができた。

また、クローン内・クローン間の立体構造の差異を解析するため、Immcontation [2]を用いて抗体 DNA 配

列からクローン推定を行った。

### 結果および考察

本課題によって得られた抗体の立体構造データ、および以前分子動力学シミュレーションによって計算した抗体の立体構造データ、計 15,437 抗体の立体構造データを用いて解析を行った。分子動力学シミュレーションの最終時刻における立体構造を UMAP によってプロットした結果を図 1 に示す。赤の点は軽鎖が IGL の抗体、緑の点は軽鎖が IGK の抗体、青の点は軽鎖が不明の抗体を表している。図から、抗体の立体構造は軽鎖が IGL であるか IGK であるかによって大きく分かれることが分かる。

また、クローン内・クローン間で立体構造にどのような差異があるか確認した。その結果、同一のクローンに属する抗体は類似した立体構造を持つこと、その一方で異なるクローンであったとしても似た立体構造を持つケースが存在することが分かった。

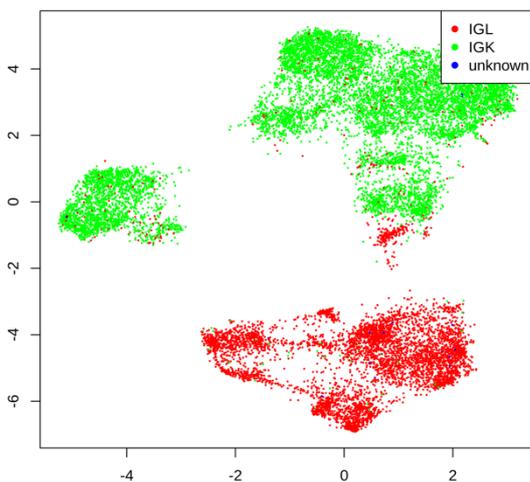


図 1 抗体立体構造の UMAP

### まとめ、今後の課題

本課題では当研究室で取得したヒト抗体アミノ酸配列に対して分子動力学シミュレーションを行い、8,585 種類の抗体に対する経時的立体構造データを得た。また、このデータをもとに解析を行い、抗体の立体構造に関するランドスケープ、およびクローン内・クローン間の立体構造の差異に関する知見を得ることができた。

ここで得られた結果は抗体の構造多様性を探る上で

重要であり、今後の解析の基盤的データとして用いられる予定である。

### 参考文献

- [1] Schritt, D. et al. Repertoire Builder: high-throughput structural modeling of B and T cell receptors. *Molecular Systems Design & Engineering* 4, 761-768 (2019).
- [2] Gupta N. T. et al. Change-O: a toolkit for analyzing large-scale B cell immunoglobulin repertoire sequencing data. *Bioinformatics* 31, 3356-8 (2015).

## TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名: 多様なデータを活用する深層学習モデルの検証

英文: Development of Computational Science and Technology for Functional Property Analysis

利用課題責任者 後藤 仁志

First name Surname Hitoshi Goto

所属 豊橋技術科学大学

Affiliation Toyohashi University of Technology

URL <https://www.tut.ac.jp/>

## 邦文抄録(300 字程度)

医薬候補化合物の活性や、新規機能材料の物性の予測にはグラフニューラルネット(GNN)、野菜市場価格の予測に RNN/LSTM 等の機械学習モデルを適用するなどして、比較的高い予測精度を実現している。本申請課題では、さらに予測精度を向上させるために、多様なデータを大規模に収集し、正当な精査を適用し、最先端の機械学習モデルの検証を行った。令和 2 年度は活性予測精度の向上に関する取り組みを主として計算を行った。成果として、ハイパーパラメータ変更による予測精度への影響や、ターゲットタンパク質の違いによる予測の性質を捉えることができた。

## 英文抄録(100 words 程度)

Recurrently high prediction accuracy is achieved by applying graph neural networks (GNN) to predict the activity of drug candidate compounds and physical properties of new functional materials, and machine learning models such as RNN / LSTM to predict vegetable market prices. It has been realized. In this application, in order to further improve the prediction accuracy, we collected various data on a large scale, applied proper scrutiny, and verified the most advanced machine learning model. In this year, calculations were mainly made for efforts to improve the accuracy of activity prediction. As a result, we were able to grasp the effect of hyperparameter changes on prediction accuracy and the nature of prediction due to differences in target proteins.

*Keywords:* DNN, GNN, RNN/LSTM, QSAR

## 背景と目的

深層学習法は物性/活性予測にも有効であることが示されており、さらに時系列データの予測にも効果を発揮することが分かってきた。我々はこれまで医薬候補化合物の活性や、新規機能材料の物性の予測にはグラフニューラルネット(GNN)、野菜市場価格の予測に RNN/LSTM 等の機械学習モデルを適用し、予測精度のさらなる向上を目指している。

令和 2 年度のプロジェクトでは特に活性予測精度の向上ならびに予測機序の解明を中心として計算を行い、成果として予測精度の向上を確認し、ターゲットタンパク質の違いによる予測の性質を捉えることができた。

## 概要

我々の活性予測に関するプロジェクトでは重大な疾患に関わる 15 種類の標的タンパク質に対する数千もの化合物の分子構造データ(記述子)と活性値から構造-

活性モデルを構築し、より高い活性値を有する新たな化合物を探索するための生理活性予測システムを開発している。一般に、全結合多層ニューラルネットワークは広範囲な予測問題に適用できる汎用性の高い機械学習法である。本プロジェクトでは活性予測のために本手法を用いており、ハイパーパラメータの最適化を行うことによってより高精度な予測を目指している。

## 結果および考察

学習の繰り返し回数である epoch に関しては、以前までは 3000、試行回数を最低 3 回と定義していた。Figure 1 は各ターゲットのデータセットを用いた DNNs 予測において、どの epoch タイミングで最良の  $R^2$ (データセットに含まれる実験により求められた活性値とそれに対応するシステムによる予測値間の相関係数)が出現したかを示している。なお、試行回数は 10 回行っており、最大 epoch は 4000 としている。結果として、最良

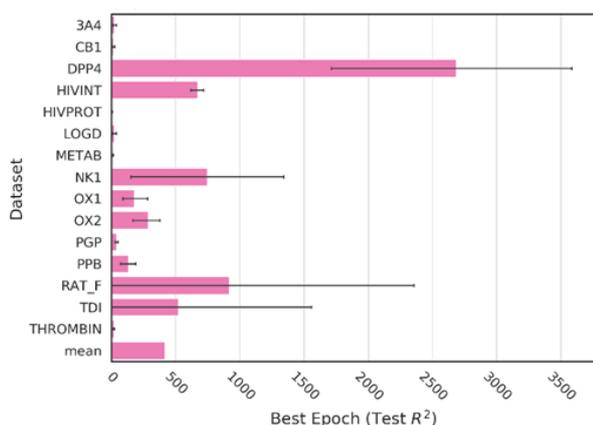


Figure 1 Appearance of Best Value Epoch

値の  $R^2$  が出現するタイミングはデータセットによって大きく異なることが分かった。この傾向は予測精度と大きく関係しており、予測精度が良いものは少しの epoch で最良の精度へ到達し、悪いものほど epoch が必要である。これは予測しようとしている対象がどれだけ複雑なものであるかが起因していると考えている。また、学習の繰り返しを最適化することは計算コストを抑えることに繋がり、試行回数を増やすことができるため、予測精度の優位性を明確にすることができる。

これまで我々が行った検証において精度向上に有意であるとされたミニバッチサイズの検証を追加で行った。ミニバッチサイズとは一度の順/逆伝搬において対象とするデータの個数である。従って、本問題においては学習をする際にどれだけ個々の分子の情報を反映するか変化させるパラメータといえる。比較結果を Figure 2 に示す。結果として、活性予測においては、網羅的な分子情報よりも個々の分子がどのように作用するかが重要であることが示された。平均として、ミニバッチサイズをデフォルトの 1/10 にした場合 (HL4//10) が最良の結果を示した。ミニバッチサイズは小さくするほど 1つ1つの分子の情報を捉えてネットワークの更新を行っていくようになる。更に、HIVINT においては 0.1 程度の大きな改善が行われている。なぜ HIVINT が突出して改善傾向になるのかについては現在検討を行っている。また、よりミニバッチサイズを小さくすることも検討したが、小さくすると計算コストがそれによって大きくなるため、現状では行っていない。本結果が意味することは、それぞれの分子特徴を明確に捉える必要があると考えるのが妥当であるため、今後実施予定である各分子の配座異性体情報が予測として重要となりうることを示唆されている。

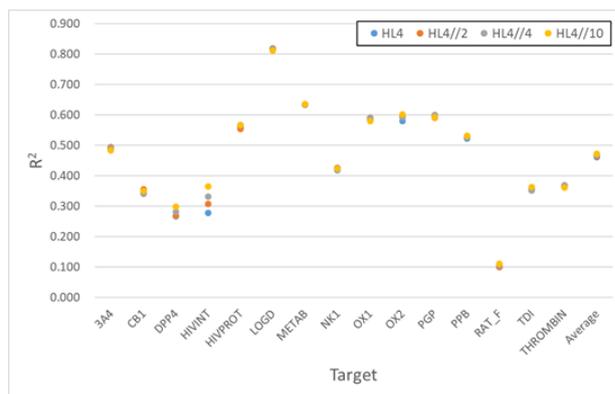


Figure 2 Comparison of Minibatch Size

### まとめ、今後の課題

令和 2 年度では特に活性予測精度の向上ならびに予測機序の解明を中心として計算を行い、成果として予測精度の向上を確認し、ターゲットタンパク質の違いによる予測の性質を捉えることができた。学習の繰り返しに関する計算では、対象となるタンパク質ならびに予測しようとする活性値の複雑さによって、最良の精度へ到達するタイミングが大きく変化することが分かった。また、ハイパーパラメータの一つであるミニバッチサイズに関する計算では、今回新たに計算したよりミニバッチサイズを小さくした場合において、最良の予測精度を記録した。従って、本問題においては 1つ1つの分子の特徴を捉えてネットワークを更新していくことが重要であるといえよう。

今後は、引き続き予測ネットワークの最適化を行うとともに、該当データセットから予測することができる予測ネットワークの精度の上限値を探索したいと考えている。これはどの程度まで精度が向上すればネットワークの最適化が十分であるのかを確認するための指標になる。また、新たな試みとして、各入力分子の配座異性体を生成し、三次元的情報を学習に用いる予測を行いたいと考えている。

TSUBAME 共同利用 令和2年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 高解像度画像を使った広域の家屋及び道路の深層学習による自動判別システムの開発(4)  
 英文: System development of automatic building and road network detection using high resolution  
 imagery by deep-learning 4

柴崎 亮介  
 Ryosuke Shibasaki

東京大学 空間情報科学研究センター  
 Center for Spatial Information Science, University of Tokyo  
<http://csis.u-tokyo.ac.jp>

本研究では衛星画像データに深層学習による画像認識で都市スラムを検出するモデルの開発を試みた。モザンビークの首都マプトと地方都市ベイラを対象として、高分解能衛星画像の目視判読による学習データとして作成し、セマンティックセグメンテーションのモデルを学習した。Planet 衛星画像データに超解像度を適用し、モデル学習をおこなった結果、精度 (IoU, F1) はそれぞれ、3.0 m 分解能では 0.833、0.909、1.5 m 分解能では 0.842、0.914、0.3 m 分解能では 0.872、0.932 と、高い精度が確認された。しかし、モデルを広域に適用した結果は学習データに一致しないケースが多く見られた。今後の課題として、衛星データの画像情報だけでなく、道路の密度や規則性といった都市の空間的構造の特徴量を要すると考えられる。

In this study, we developed a model for detecting urban slums by image recognition using deep learning on satellite image data. We trained a semantic segmentation model on high-resolution satellite images for cities of Maputo and Beira in Mozambique. The accuracy (IoU, F1) was 0.833 and 0.909 at 3.0 m resolution, 0.842 and 0.914 at 1.5 m resolution, and 0.872 and 0.932 at 0.3 m resolution, respectively. However, the results of applying the model to a wide area were with cases not matching with the training data. We will proceed future works to apply not only image data from satellite observation, but also features of the spatial structure of cities, such as density and regularity of roads.

*Keywords:*

#### 背景と目的

持続可能な開発課題 (Sustainable Development Goals; SDGs) に Goal 11 “Make cities and human settlements inclusive, safe, resilient and sustainable” として掲げられているように、都市の成長を適切に管理するためのデータ基盤の整備には早急な対応が求められている。地球観測データは、このようなニーズに対応するデータ資源として、特に広域性と高頻度の特長が、都市成長の観測において高い有用性が期待されている。近年、Google Earth をはじめとした高分解能衛星画像データの普及により、個別の建物を衛星画像から検出し、衛星画像データの位置情報とあわせることで正確にマッピングする可能性が議論され、機械学習や深層学習の適用によって、自動的に衛星画像内の建物を検出する研究がなされてきた。建物や道路のマッピングの自動化は、広域にわたる地図作

成を低コストで実現し、インフラ開発や公衆衛生の課題において、都市部だけでなく郊外の社会経済の状況を概観するのに有用である。広域にわたる自動マッピングへのニーズは高まる一方、これまでの研究の成果は、単一シーンの衛星画像データといった限られた領域でのみ処理されており、全国土といった広域を対象とした処理は未だ試みられていない。

建物などの地物のマッピングにおいて、衛星画像に深層学習による画像認識を適用する手法は確立しつつある一方で、発展途上国を対象とした観測では開発の状況を直接測る指標としてスラムの分布を分析のインプットとして用いる研究が表れつつある。スラムは都市の脆弱性に影響するが、早期発見が困難であるため、衛星データを用いた広域にわたる定期的な観測は、スラムに対する人道支援を効率化し、SDG 11 に掲げる都市の強靱化に貢献しうる。

本研究では、社会経済の状況を表す都市スラムの位置と範囲を衛星画像データから検出・マッピングする方法を考案、TSUBAME にて実験するほか、近年に利用普及が拡大しつつある小型衛星による画像データの利用方法についても考案し、TSUBAME にて実験した。

## 概要

本研究では Google Maps が提供する高分解能衛星画像のほか、昨今に利用普及が進む小型衛星による衛星画像データに対し、深層学習による超解像度を適用することで、小型衛星データによる高頻度観測の長所を活かした都市スラムの早期発見に貢献する可能性を検討した。

モザンビークの首都マプトと地方都市ベイラを対象として、Google Earth 上の高分解能衛星画像を目視判読し、スラムの位置と領域を表すポリゴンデータを学習データとして作成し、Multi-Constraint Fully Convolutional Network で構成されるセマンティックセグメンテーションのモデルを学習した。これに加えて、Planet が提供する小型衛星の画像データに対して、高分解能衛星画像で作成した超解像度モデルを適用することで精度向上を図った。

その結果、モデル学習の精度 (IoU, F1) はそれぞれ、3.0 m 分解能では 0.833, 0.909, 1.5 m 分解能では 0.842, 0.914, 0.3 m 分解能では 0.872, 0.932 となり、分解能の向上にしたがってモデル学習性能の向上が確認された。しかし、高いモデル学習性能にもかかわらず、スラム検出モデルを広域に適用した結果は必ずしも学習データとして用いた目視判読結果のデータに一致しないケースが多く見られた。

今後の課題として、衛星データの画像情報だけでなく他の地理情報、特にスラムの形成過程を考慮して道路ネットワークのデータより道路の密度や規則性といった都市の空間的構造を指標化したレイヤを画像情報と複合的に用いる必要があると考える。

## 結果および考察

以下に、深層学習の学習データとして入力された目視判読データを示す。これらのデータは、スラムの都市

景観に関する専門家が衛星画像を判読して、スラムに分類される領域をポリゴンデータで表現した(図 1、図 2)。

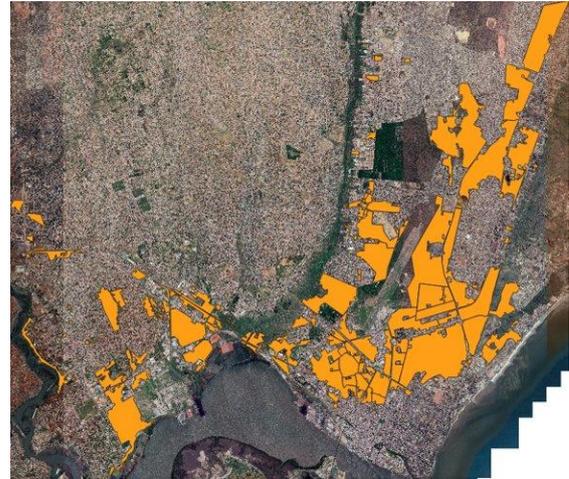


図 1 スラム地区の目視判読結果(マプト)



図 2 スラム地区の目視判読結果(ベイラ)

以下に深層学習の入力データとして用いられた衛星画像データを示す(図 3)。Planet 衛星画像データの分解能は 3 m であるが、高分解能衛星画像をもとに作成した超解像度モデルを用いて、0.5 m 分解能、1.5 m 分解能の画像データを作成し、それぞれについてスラムを検出するセマンティックセグメンテーションのモデルを学習した。表 1 に結果を示す。モデル学習の結果では、IoU は 0.8 以上、F1 スコアが 0.9 前後ときわめて高精度のモデル学習が示唆された。

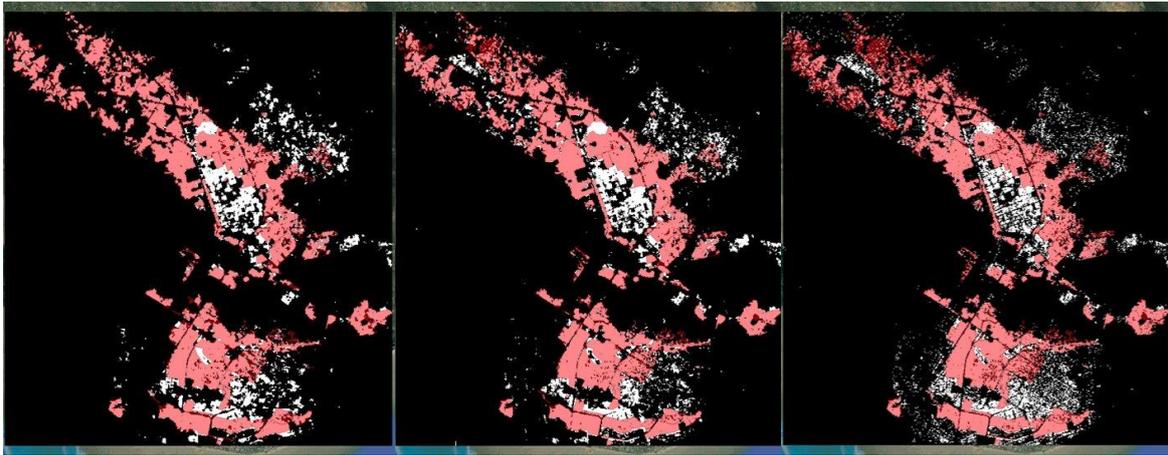


図 4 スラム検出モデルの適用結果。左: 3 m 解像度、中央: 1.5 m 解像度、右: 0.3 m 解像度



図 3 マプトを撮像した Planet 画像

でも詳細な分解能では過剰検出していることから、スラム地区における景観の不均一さは詳細スケールで表れることがわかる。

マプトの衛星画像にスラム検出モデルを適用した結果を図 5 に示す。推定結果が学習データに一致しない箇所が多く表れ、スラムにおける景観の不規則さが深層学習による画像認識の障害になることが伺える。

学習済みモデルを超分解能処理した Planet 衛星画像に適用した結果を図 4 に示す。ペイラの結果ではいずれの分解能においても、都市中央部を除いて、推定されたスラム領域が学習データに一致した。推定結果が学習データに一致しなかった都市中央部は緑地と建物が混在する区画であるため、建物が不規則に並ぶ傾向にあるスラム地区の景観と混同したためにスラム領域を過剰推定したと考えられる。また、南東部におい

表 1 モデル学習の精度評価結果

Model Resolution	Data Resolution	Overall Accuracy	Precision	Recall	F1Sc	IoU
0.3M	0.3M	0.955	0.909	0.889	0.932	0.872
	1.5M	0.830	0.967	0.813	0.893	0.808
	3.0M	0.817	0.987	0.810	0.893	0.808
1.5M	0.3M	0.844	1.000	0.844	0.915	0.844
	1.5M	0.918	0.911	0.862	0.914	0.842
	3.0M	0.913	0.865	0.824	0.888	0.799
3.0M	0.3M	0.844	1.000	0.844	0.915	0.844
	1.5M	0.844	0.989	0.843	0.910	0.836
	3.0M	0.910	0.908	0.853	0.909	0.833



図 5 学習済みモデルによるいすライム分布の推定結果  
(上:学習データ、下:検出結果)

#### まとめ、今後の課題

本報告では、モザンビークのマプトとベイラを対象として、衛星画像への深層学習の適用によるスラム検出モデルの開発を試みた。予め作成した超分解能モデルで高分解能化した Planet 衛星画像に対し、Multi-Constraint Fully Convolution Network で構成されるセマンティックセグメンテーションの画像認識モデルを学習し、Planet 衛星画像に適用した。その結果、モデル学習における精度は高い精度指標を示したが、モデルを衛星画像に適用しスラム地区を推定した結果では、学習データとは整合しない結果となった。

スラム地区は画素や建物を個別に判別するよりも、ブロックや区域を単位として、内部構造を指標化し、それに基づく判別が有効であると考えられる。今後の課題として、そのような方法を具体的なアルゴリズムとして実装することが挙げられる。

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 革新的 4 次元イメージング法: 生体分子構造変化の高解像度解析への挑戦

英文: A Novel Four-Dimensional Imaging Method: Challenge for High-Resolution Analysis of Structural Change of Biomolecules

利用課題責任者 吉留 崇

Takashi Yoshidome

所属 東北大学 大学院工学研究科 応用物理学専攻

Affiliation Department of Applied Physics, Tohoku University

URL <https://researchmap.jp/7000010917/>

邦文抄録(300 字程度)

低温電子顕微鏡実験データから、生体分子の連続的な構造変化をイメージングする「4 次元イメージング法」を確立することを目的とした。4 次元イメージング法の妥当性を示すために、正解の構造変化が既知である低温電子顕微鏡実験を想定したシミュレーションを行った。その際、投影方向は 1 つに固定した。4 次元イメージングを行った結果、正解の構造変化とコンシステントな構造変化を得ることが出来た。

英文抄録(100 words 程度)

In order to establish a four-dimensional imaging method from cryo-electron microscopy data, a simulation for a cryo-electron microscopy experiment of a protein was performed. Projection direction was assumed to be fixed at a certain value. It was found that the structural change of the protein obtained using the four-dimensional imaging method was consistent with the correct structural change.

*Keywords:* 低温電子顕微鏡、4 次元イメージング、マニフォールド理論、分子動力学シミュレーション

## 背景と目的

近年の低温電子顕微鏡実験の技術発展は、これまで X 線結晶構造解析が困難だった生体分子の構造解析を可能にした。これは、X 線結晶構造解析では、生体分子の結晶化が不可欠であるものの、低温電子顕微鏡実験ではそれが不要であるためである。

低温電子顕微鏡実験では、生体分子の結晶化を行わないため、実験データには構造変化に関する情報が含まれている。しかし、現在の低温電子顕微鏡実験データ解析から得られるのは生体分子のある瞬間の構造のみであり、生体分子の構造変化の情報を得る手法は確立されていない。生体分子は体内で活発に動く事でその機能を果たすため、生命現象を理解するには生体分子の構造変化を可視化して、作動原理を解明することが不可欠である。

本プロジェクトでは、生体分子の連続的な構造変化を可視化する「4 次元イメージング法」を確立する事を目指した。我々が提案する 4 次元イメージング構築の手順は、① 生体分子の実験データ(2 次元投影像、「実験投影像」と呼ぶ)をマニフォールド理論(Yoshidome *et al.*, 2015)で構造変化に応じて並べ替

える、② 生体分子の分子動力学(MD)シミュレーションを行い、生体分子の構造サンプリングを行う、③ サンプリングした構造を用いて 2 次元投影像(「計算投影像」と呼ぶ)を作成、④ 実験投影像と相関最大となる計算投影像を選ぶ、⑤ 対応する立体構造を実験投影像の順番に並べ、4 次元イメージングを行う、である。本プロジェクトでは、構造変化の正解が既知である、低温電子顕微鏡実験を想定した計算機実験を行い、本手順で 4 次元イメージングが正しく出来るかを議論した。

## 概要

生体分子として、アデニル酸キナーゼを使用した。このキナーゼは、オープン状態とクローズド状態の 2 状態を有する。まず、実験投影像を作成するために、オープン状態とクローズド状態の MD、並びにオープン状態からクローズド状態への構造変化の Targeted MD を行った。オープン状態とクローズド状態の MD は、Gromacs 2018.5 で行い、Targeted MD は Marble(Ikeguchi, 2014)で行った。温度は 300 K に設定し、力場として charmm22(タンパク質)と TIP3P(水)を用いた。Targeted MD で得られた構造変化が、正解の構

造変化である。次に、文献(Yoshidome & Takano, 2019)に従って実験投影像を作成した。その際、投影方向は 1 つに固定した。最後に、マニフォールド理論を用いて実験投影像を構造変化の順番に並べ替えた。

次に、上記とは別の MD を行い、4 次元イメージングを行うために必要な構造サンプリングを行った。MD にはクローズド構造からリガンドを取り除いたものを使用し、330 K の MD を行った。力場は上記と同じものを使用した。次に、文献(Yoshidome & Takano, 2019)に従って計算投影像を作成した。

その後、独自に実装したプログラムで実験投影像と相関最大となる計算投影像を選び、対応する立体構造を実験投影像の順番に並べた。

### 結果および考察

図 1 に、作成した実験投影像をいくつか示す。水に起因するノイズで画像が乱れていることが分かる。これらの画像をガウシアンローパスフィルタで処理すると、ノイズの中からアデニル酸キナーゼの像が現れた。本研究では、ガウシアンローパスフィルタで処理した後の投影像に対し、マニフォールド理論で並べ替えを行った。

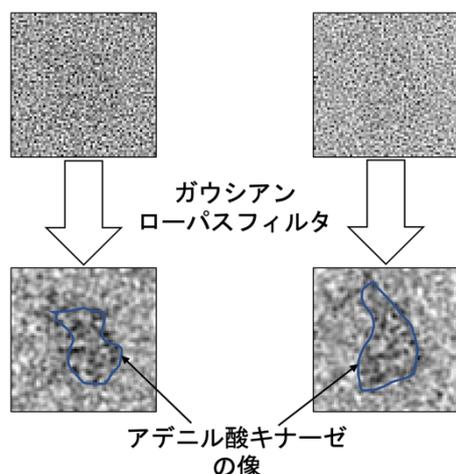


図 1: 作成した実験投影像(上)と、それをローパスフィルタで処理した投影像(下)。

図 2 の横軸に、マニフォールド理論で実験投影像を並べ替えた結果を示す。実験投影像は、図の左側から右側になるにつれて、クローズド構造の投影像からオープン構造の投影像が並んだ。次に、各実験投影像と相関最大の計算投影像を選び、それぞれの投影像の作成に用いた立体構造の間の  $C\alpha$ -RMSD を計算した。

その結果を図 2 の縦軸に示す。ほとんどの実験投影像において、 $C\alpha$ -RMSD の値は 2~3 Å だった。解析の結果、図 2 横軸において、右から左に移動するにつれて、立体構造はオープン状態からクローズド状態に変化しており、この構造変化は Targeted MD の結果とコンシステントだった。この結果は、今回提案する 4 次元イメージングの妥当性を示す。

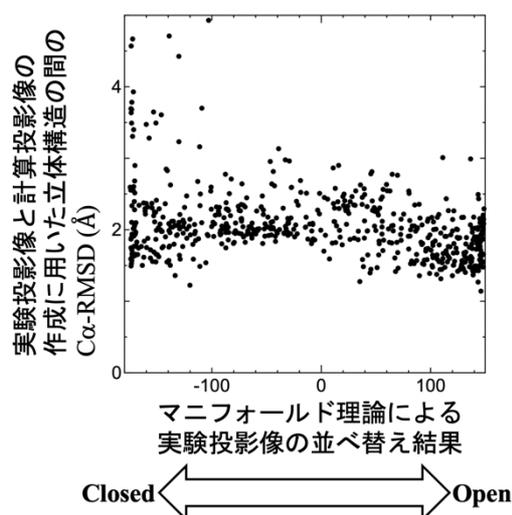


図 2: マニフォールド理論による並べ替え結果(横軸)と、実験投影像と計算投影像の作成に用いた立体構造の間の  $C\alpha$ -RMSD。

### まとめ、今後の課題

本プロジェクトでは、我々が提案する 4 次元イメージング法の妥当性を示すために、低温電子顕微鏡実験を想定したシミュレーションを行った。4 次元イメージングを実際に行った結果、正解の構造変化である Targeted MD の結果とコンシステントな構造変化を得ることが出来た。今後は、実験投影像作成の際の投影方向をランダムにし、より実際の実験に近い状況下での 4 次元イメージングを行う。

TSUBAME 共同利用 令和2年度 学術利用 成果報告書

利用課題名: フラクタル構造を有する粗さ面の乱流熱流動の大規模直接数値解析

英文: Large-scale direct numerical simulation of turbulent heat transfer over fractal roughness elements

利用課題責任者 桑田 祐丞

Kuwata Yusuke

大阪府立大学 工学研究科 機械系専攻 機械工学分野

Department of mechanical engineering, Osaka Prefecture University

<http://www2.me.osakafu-u.ac.jp/htlab/>

邦文抄録(300字程度)

複数スケールの自己相似構造を有するフラクタル構造粗さによる伝熱促進の可能性を探るため、フラクタル構造が有するマルチスケール粗さが伝熱促進に与える影響を直接的な数値解析を用いて調査した。一般的に、壁面粗さは、熱・運動量輸送を増加させ、熱伝達率・壁面摩擦係数が増大するが、熱伝達率の増大率は壁面摩擦係数の増大率に比べて小さくなる傾向がある。しかし、単一スケール粗さに比べて、マルチスケール粗さは、壁面摩擦係数の増加を抑えつつ、より高い熱伝達率の増加効果が得られることが明らかになった。これら結果から、マルチスケールの粗さを有するフラクタル粗面を用いることで、より高効率な伝熱促進が可能であることが示唆された。

英文抄録(100 words 程度)

To explore the effectiveness of the heat transfer enhancement by fractal roughness which has the same roughness elements at different scales, we performed the direct numerical simulation of turbulent heat transfer over walls roughened by multi-scale roughness elements. The roughness increases the heat and momentum transfer leading to the enhancement of the skin friction and heat transfer rate; however, the augmentation of the heat transfer is generally smaller than that of the skin friction. However, it is found that the multi-scale roughness yields more ideal heat transfer performance than the single scale roughness; that is, the multi-scale roughness leads smaller drag increasing but larger heat transfer enhancement. This suggests that the fractal roughness has high heat transfer performance.

*Keywords:* rough wall, turbulent heat transfer, lattice Boltzmann method, direct numerical simulation, fractal structure.

## 背景と目的

壁面上に粗さを設置することで、壁面に接する流れの混合を促進させることができ、運動量・熱輸送を飛躍的に向上させることが可能である。とりわけ、熱輸送の向上を目的として、伝熱機器に粗さを設置する取り組みが盛んに行われてきた。粗さを有する壁面(粗面)の伝熱に関しては、実験研究が古くから行われており、様々な粗さ構造による伝熱促進技術が数多く提案されてきた。しかし、実験的な研究では3次元的速度場・温度場の時空間データを取得することは困難であり、粗さを有する壁面を用いた伝熱促進メカニズムに関しては十分に理解されていない。また、粗面の熱伝達率の予測式に関しても、数多くの経験式が提案されているものの、未だに粗さ構造と熱伝達率の関係を汎用的に予測する方法は見つかっていない。

いっぽう、近年のスーパーコンピューティング技術

に進展に伴い、粗面近傍の乱流熱伝達の直接的な数値解析が現実味を帯びてきた。しかし、依然として、粗面近傍の乱流熱伝達をシミュレーションするには非常に膨大な計算コストが要求されるため、その実施例は極めて少ない。本研究では、格子ボルツマン法を支配方程式として、複数GPUを用いた並列計算に特化した乱流熱流動解析プログラムを開発し、粗面熱流動の直接的な数値解析を実施した。本プロジェクトでは、複数スケールの自己相似構造を有するフラクタル構造に着目し、フラクタル構造が有するマルチスケール性が乱流熱流動に与える影響を詳細に調査する。マルチスケール粗面の乱流熱輸送現象を詳細に理解するとともに、フラクタル構造を利用した新たな伝熱促進デバイスの検討を行うことを目的とした。

概要

壁面に設置された粗さは流体の混合を促進させ、運動量・熱・物質輸送を大幅に増大させることが知られており、人工的な粗さを設置することで伝熱機器の性能を向上させる取り組みが古くから行われてきた。本研究では特に複数スケールの粗さ要素を持つフラクタル構造に着目し、マルチスケール粗さが乱流熱流動に与える影響を調査する。対象とした計算系と粗さ構造をそれぞれ図1、図2に示す。解析は2次元平板チャンネルの半分の計算領域を持つオープンチャンネル流を対象とし、スパン方向 $L_z = 3L_y$ 、主流方向 $L_x = 6L_y$ の計算ボックスを使用した。主流方向に圧力勾配を付与することで流体を駆動し、上面はフリースリップ境界条件、主流・スパン方向には周期境界条件を適用する。熱的境界条件として、上面は断熱条件、粗面は等温冷却条件とし、流体には一様発熱を与えた。流体は空気を想定し、プラントル数を0.71とした。

摩擦レイノルズ数は150, 300, 600の3ケースとした。対象とした粗面は図2に示す3ケースであり、半球を等方的に配置した mono6k (図2a) を基本として、multi6k (図2b) は mono6k の構造に 1/2 スケールの半球を敷き詰めた粗面である。また、mono3.46k (図2c) は単一スケールの半球を用いて、multi6k と同等の表面積を持つ粗面である。

乱流熱伝達の解析は乱流モデルを使用しない直接数値解析であり、壁面近傍の微細な乱流変動も全て格子解像可能な格子幅を設定し、計算格子数は最大で4.6億点となった。計算プログラムは、Cuda Fortran で記述されており、複数 GPU を用いた並列計算を行った。

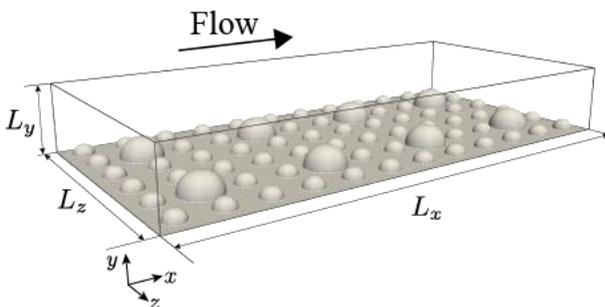


図1 粗面オープンチャンネル流れの計算領域

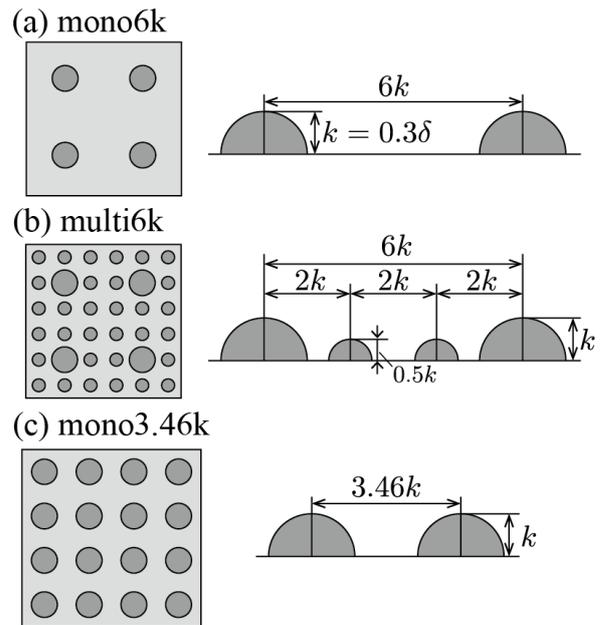


図2 対象とした粗面形状: (a) 単一スケール粗さ, (b) マルチスケール粗さ, (c) 粗面(b)と同様の表面積を有する単一スケール粗さ。

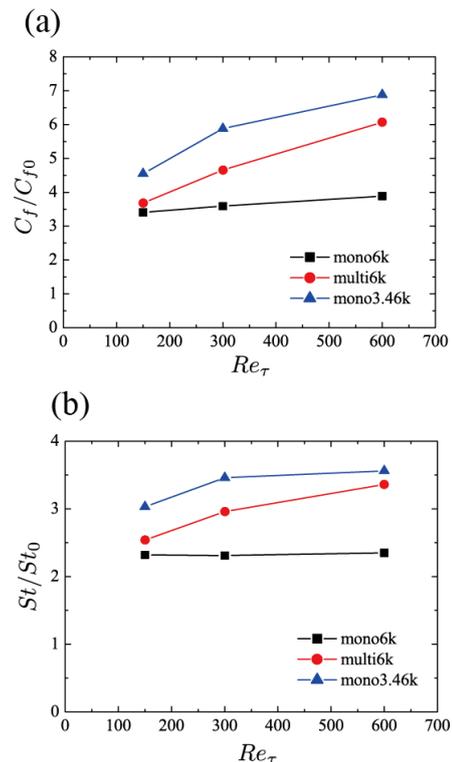


図3(a) 壁面摩擦係数の増大率, (b) スタントン数の増大率

結果および考察

粗さによる運動量・熱輸送の増大を評価するために、粗面の壁面摩擦係数 $C_f$ 、スタントン数 $St$ を滑面

の値( $C_{f0}, St_0$ )で除した結果を図4に示す. すべてのケースにおいて, 壁面摩擦係数, スタントン数は粗さによって増大していることが確認できる. 粗さ要素が最も疎に並ぶケースである mono6k は増大率が一番低く, 単一スケールで密な配置である mono3.46k が一番高い値を示している. multi6k は mono6k, mono3.46k の中間に位置しており, 摩擦レイノルズ数が低いケースでは mono6k の結果に近く, 摩擦レイノルズ数が高いケースでは mono3.46k に近い結果が得られていることが分かる. これは, レイノルズ数が低いケースでは, サブスケールの半球粗さが粘性底層内に埋もれてしまい, 運動量・熱輸送の増大に大きく寄与しないのに対して, レイノルズ数が高いケースでは, 相対的に粘性底層が薄くなるために, サブスケール粗さであっても粘性底層を超えて, 輸送現象の増大に対して有効であるからであると考えられる.

次に, 摩擦係数とスタントン数の比であるレイノルズアナロジーファクター  $RA = 2St/C_f$  を図4に示す. 滑面乱流においては,  $RA_0 = Pr^{-2/3}$  となることが知られており, プラントル数が1の時には, 運動量・熱輸送の間には強い相似性が見られ  $RA_0 = 1$  となる. しかし, 図4から分かるように, 粗面乱流のケースでは滑面の値と比べて非常に小さく, 運動量輸送における粗さ効果が, 熱輸送における粗さ効果と比べて, 大きいことを意味している. 言い換えると, 壁面粗さは, 熱伝達率よりも壁面摩擦係数をより増加させる効果がある. 図より, この非相似的なふるまいは, 摩擦係数の増大率  $C_f/C_{f0}$  が大きくなるに従って, より顕著になることが分かる. しかし, 表面積の増大率の等しい multi6k, mono3.46k は, mono6k に比べて,  $C_f/C_{f0}$  に対する  $RA$  の値が大きく, より理想的な伝熱促進が可能であることが分かる.

これらの結果より, 表面積の増大率の大きい粗面ほど, 理想的な伝熱促進が可能であることが分かる. つまり, よりフラクタル次元の高い構造粗さにすることで, 効果的に表面積を増大させ, 理想的な伝熱促進が可能であることが示唆される.

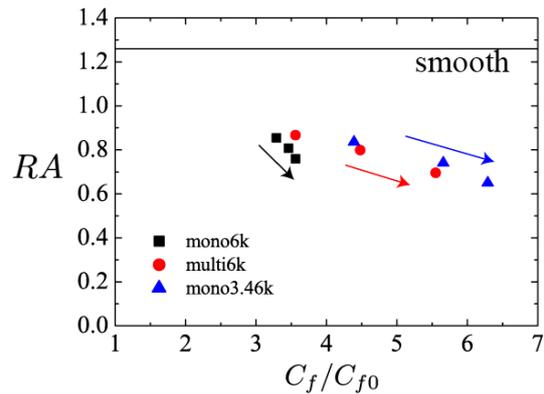


図4 レイノルズアナロジーファクター

#### まとめ、今後の課題

フラクタル構造を持つ粗さによる伝熱促進法の可能性を検討するために, フラクタル構造に特徴的なマルチスケール性が乱流熱伝達に与える影響を直接数値解析によって調査した. その結果, 比表面積の大きな粗面は, 少ない流動抵抗増で大きな熱伝達促進をもたらすことが分かり, 表面積の大きなフラクタル構造粗さが理想的な伝熱促進法である可能性が示唆された. 今後は, 実際のフラクタル構造に近い構造粗さを用いた検討を行う.

#### 参考文献

- [1] K Suga, Y Kuwata, K Takashima, R Chikasue, Computers & Mathematics with Applications 69 (6), 518-529.
- [2] K Suga, R Chikasue, Y Kuwata, International journal of heat and fluid flow 68, 225-236.



TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 電気コイル隙間内に流れ込む冷却液挙動に関する大規模数値解析  
 英文: Large-scale computing of pouring coolant on the electric coil

利用課題責任者 金田 昌之  
 First name Surname Masayuki Kaneda

所属 大阪府立大学  
 Affiliation Osaka Prefecture University  
 URL <http://www2.me.osakafu-u.ac.jp/htlab/>

邦文抄録(300 字程度)

電気コイルを冷却するための手法として用いられている、上部からノズルで冷却液を流下する現象において、冷却液が冷却対象である電気コイル内外でどのように流動するのかを解明することを目的として、大規模二相流数値解析を実施した。コイル形状については水平角柱群を層ごとで角度をつけて積層したものを採用することで、実機において冷却液が直接流下する領域の一部を模擬した。解析結果より、冷却液は角柱群の各層で長手方向のみならず角柱横断方向にも濡れ広がりながら下層にいきわたり、二層目以降では上下に挟まれた角柱間において作用するキャピラリカも寄与することで濡れ広がりが拡大することがわかった。

英文抄録(100 words 程度)

To investigate the coolant behavior poured on the electric coil, the large scale two-phase simulations were carried out for the liquid poured onto the simplified electric coil. The accumulated horizontal rod arrays are employed for the simplified coil model, of which layer is crossed with angle. The computational results show that the poured liquid spreads on each rod layer not only for the rod direction but also the spanwise direction, then goes down to the layer below. On the layers below the top, due to the capillary force between the above and below rods, the liquid spreads wider than the upper layer.

*Keywords:* 5つ程度 Cooling of electric devices, coolant behavior, two-phase flow, phase-field, lattice Boltzmann method

## 背景と目的

近年の電気機器の高出力化に伴い、発熱密度の上昇とその効果的な徐熱が課題となっている。たとえば自動車用のモータの徐熱問題として、非電気伝導性の冷却液を発熱する電気コイル部分に直接流下する方法がとられている。しかしながら狙い通りに流体が電気コイルの隙間を通過して流下しているかは経験則に依存しており、適切に冷却できているかは不明である。

冷却液がどのように内部を浸潤するのかを把握することができれば機器設計のヒントとなるが、実機において直接観察することは非常に困難であることから数値解析による検討が有効であるとされた。しかしながら実際のコイル形状は大変複雑な構造をしており、これをそのまま解析対象とすると不正確な解析もしくは解析の発散が懸念された。また、複雑形状を取り扱うことができ、さらに二相流解析の可能なモデルが必要であることも課題であった。

本プロジェクトでは、明らかにすべき流動場と対象構造に着目することで構造を簡略化することで、そこに流下した冷却液の挙動を最新の数値解析シミュレーション手法で解析することで、冷却液挙動を明らかにした。

## 概要

課題責任者の所属する研究室では、これまで格子ボルツマン法(LBM)を素地とした二相流解析手法に関する研究を進めてきた。LBM は複雑形状の流動解析が比較的容易であり、本研究室で開発してきた手法はこれまで課題であった相体積の保存性を向上させたモデルである。この手法を今回の対象に適用することで解析が可能となると考え、三次元二相流 LBM を用いて、簡易化した電気コイル内に浸潤・流下していく冷却液挙動に関する大規模数値解析を実施した。電気コイル構造は水平角柱群を相ごとに斜めに積層したもので模擬した。これは実際のモーターコイル構造の一部、特

に流体が直接流下する箇所を取り出し、簡略化したものである。コイル構造の概念図を図 1 に示す。図 2 に示すようにコイル上部から冷却液が一定流量で流下するとした。実機で用いられている冷却液の詳細な物性値が不明であったことから、一部似た物質の物性を参照した。

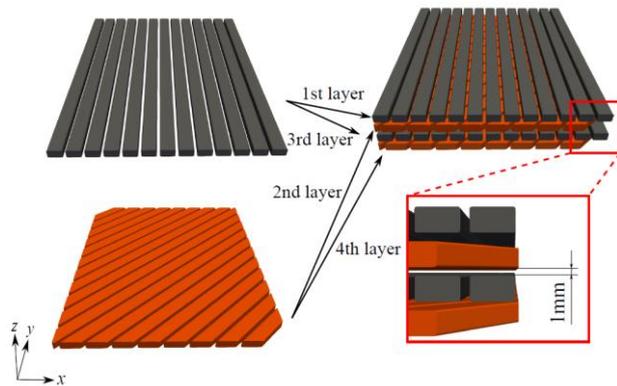


図 1: 積層構造の概念図

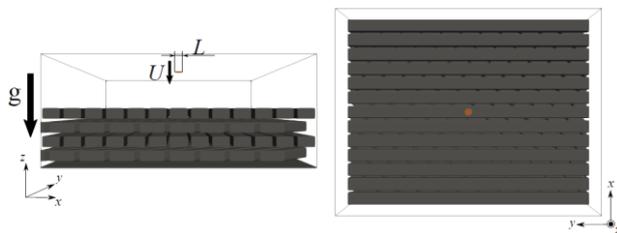


図 2: 解析ドメインならびに冷却液流下位置

### 結果および考察

本解析では特に、基本的な流体挙動を把握するために、流量一定条件で冷却液がコイル内をどのように流下するかについて議論した。解析結果のスナップショットを図 3 に示す。最上層の角柱群に衝突した液体は角棒の流れ方向に濡れ広がるとともに、液体粘性に依存して隣接する角柱への濡れ広がることがわかった。第 1 層から各層に濡れ広がった様子を図 4 に示す。第 2 層に流下した液体は角柱群に衝突してそこでも角柱の長手方向および隣接角柱へと濡れ広がる。各層の長手方向が角度をなしているため、それぞれの層の方向に広がるのだが、下層に行くにつれてその濡れ広がりが大きくなることがわかった。これは、図 5 に示すように 2 層目以降は上下が角柱で挟まれている場所が存在し、そこでは単なる濡れ広がりというよりはむしろキャピラリ力による液体輸送が顕在化するためと結論付けられた。

これは各層における角柱間でも同様に生じ、一部の液体は隙間にとどまることもわかった。

以上より、コイルの巻き線方向が層ごとで角度をなしていることで、冷却液の濡れ広がりを促進できることが明らかとなった

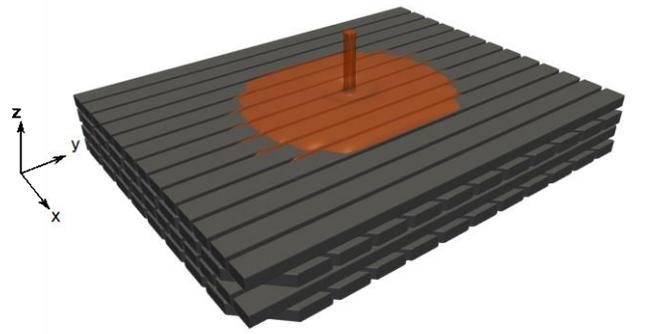


図 3: 流下した冷却液挙動のスナップショット



図 4: 積層構造内の液体の分布

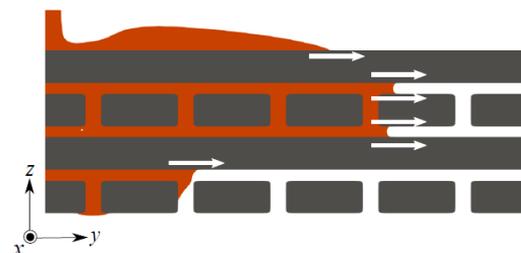


図 5: 各層における流動

### まとめ、今後の課題

本課題では、三次元二相格子ボルツマン法を最適化して用いることで積層構造に流下する液体の特有の流れ場を解明することができた。この知見は今後の構造決定のための指標となるとともに、物性による影響や温度場解析の実装をすることで、さらなる詳細な現象解明を目指したい。

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 揺動電磁気シミュレーションを用いた光放射現象に関する研究

英文: A study of light emission phenomena using fluctuational electromagnetic simulation

利用課題責任者

櫻井 篤

所属

新潟大学工学部

<http://www.eng.niigata-u.ac.jp/~rad/index.html>

邦文抄録(300 字程度)

本研究では、半導体発光素子(light emitting diode ; LED)を用いた 熱フォトニクス(Thermophotonics ; TPX)発電システムに注目した。これはエミッタに LED を用いることが特徴である。LED では、電圧を印加して非平衡状態にすることで、プランクの法則による黒体放射とは異なったエレクトロ・ルミネセンスと呼ばれる発光を生じる。そのため、遠方場においても高効率なエネルギー輸送ができる可能性がある。TPX システムは、大きな電力密度を有する発電手法である。また、バイアスのかけ方を工夫することで冷却機としても応用できる。

英文抄録(100 words 程度)

In this study, we focused on a thermophotonics (TPX) power generation system using semiconductor light emitting diodes (LEDs). This is characterized by using LEDs as the emitter. In LEDs, by applying a voltage to bring them into an unbalanced state, light emission called electroluminescence, which is different from blackbody radiation according to Planck's law, is generated. Therefore, there is a possibility that highly efficient energy transportation can be performed even in a distant field. The TPX system is a power generation method with a large power density. It can also be applied as a cooler by devising how to apply bias.

*Keywords:* thermophotonics, light emitting diodes, electroluminescence, power generation

## 背景と目的

現在、世界規模での急速な工業化に伴い、エネルギー消費の増加、化石燃料の枯渇や地球温暖化が大きな問題となっている。更に東日本大震災の発生などにより、脱原子力エネルギーの潮流がある。このような現状から、エネルギー利用の高効率化や自然エネルギーによって生み出される再生可能エネルギーの利用に注目が集まっている。

これらの問題の解決策の一つとして、近接場熱光起電力発電(Near-field Thermophotovoltaic ; NTPV)システムがある。NTPV システムでは、太陽光だけでなく工場の排熱など多様な熱源が利用可能である。発電原理は、太陽光発電と大きな違いはないが、波長選択的エミッタによって PV セルの高感度波長域に整合した熱ふく射光を放射することで高効率な発電ができる。しかし、エミッタと PV セル間の距離をナノメートルスケールで維持する必要があり、電力密度が小さいという

## 問題点がある。

そこで本研究では、半導体発光素子(light emitting diode ; LED)を用いた 熱フォトニクス(Thermophotonics ; TPX)発電システムに注目した。これは NTPV 発電システムと異なり、エミッタに LED を用いることが特徴である。LED では、電圧を印加して非平衡状態にすることで、プランクの法則による黒体放射とは異なったエレクトロ・ルミネセンス(EL)と呼ばれる発光を生じる。そのため、遠方場においても高効率なエネルギー輸送ができる可能性がある。TPX システムは、大きな電力密度を有する発電手法である。また、バイアスのかけ方を工夫することで冷却機としても応用できる。

## 結果および考察

TPX システムの LED-PV セル間のふく射熱伝達を計算するために、揺動電磁気学シミュレーションを用い

た。一般的な電磁波解析手法では、有限温度を持つ物体から生じる電磁波を表現できない。揺動電磁気学の理論では、物体内部でランダムに熱揺動する格子振動を揺動電流としてマクスウェル方程式の電流密度の項に導入される。従来の電磁波解析手法に揺動電磁気学の理論を組み入れることによって、2 物体間の熱ふく射解析が可能となる。

これまでの TPX に関する研究は、発電、冷却システムのいずれも近接場での運用を想定しているものがほとんどであり、遠方場での運用を想定したシステムの研究・開発は行われていない。TPX システムを遠方場で運用するための最低条件としてシステムの発電量が LED の駆動電力を上回る必要がある。しかし、実際には非放射再結合や表面フォノンポラリトンなどの非理想特性も考慮する必要がある。そこで本研究では遠方場 TPX 発電システムにおける発電特性について数値シミュレーションによって求め、非理想特性を含めた現実的な状態におけるシステムの有効性について調査した。

遠方場 TPX 発電システムでは、LED と PV セルの材料として損失の少ない直接遷移型半導体であるヒ化アルミニウムガリウム ( $\text{Al}_{1.75}\text{Ga}_{0.825}\text{As}$ ) を用いた。LED と PV セルの背面には光の透過を防ぐために完全導体 (PEC) を使用した。基板と LED/PV セルの間にはキャリアを活性層に閉じ込めるための Confinement Layer を堆積させ、材料はバンドギャップが LED と PV セルよりも十分大きくなるように Al の混晶比を決定した  $\text{Al}_{1.8}\text{Ga}_{0.2}\text{As}$  を用いた。LED-PV セル間のギャップは、近接場 (10 [nm]) と遠方場 (1000 [nm]) の 2 パターンで計算、比較した。

さらに、TPX システムの発電特性を高めるために近接場エクストラクターを導入したシステムを設計した。近接場エクストラクターを PV セルの上部に堆積することによって、本来真空中で距離減衰する近接場光を近接場エクストラクターを介して PV セルに伝搬することができる。また、もう一つの利点として非理想特性である表面フォノンポラリトンの影響を抑えることができる。したがって、TPX 発電システムに近接場エクストラクターを組み入れることで発電特性が向上すると考えられる。

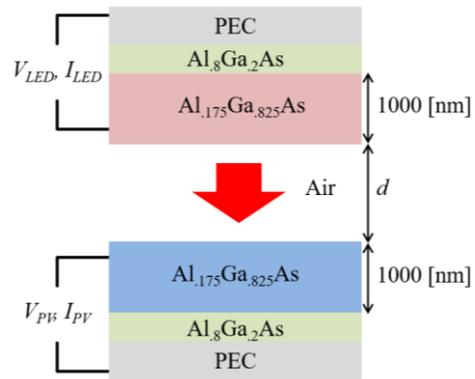


Fig. 1. Schematic of TPX system.

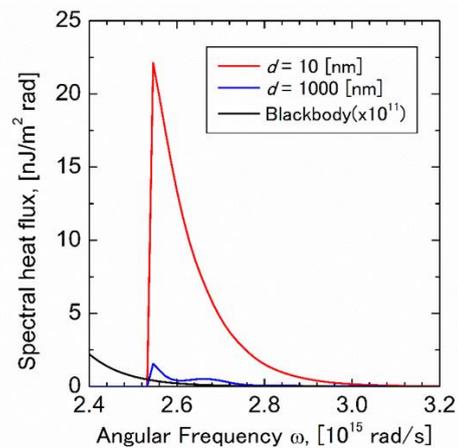


Fig. 2. Spectral heat fluxes with different gaps.

#### まとめ、今後の課題

TPX 発電システムモデルの揺動電磁気学シミュレーションによって得られた結果から、以下の知見が得られた。

- LED-PV セル間が遠方場である場合においてもプランクの法則による黒体放射を上回るエネルギー伝達が可能であることを示した。
- LED ではキャリア注入によって非平衡状態を作ることによって光子エネルギーが増加し、発光強度が増加していることを示した。
- 遠方場 TPX 発電システムが非放射再結合を考慮した場合においても、動作可能であることを示した。
- 近接場エクストラクターによって本来ナノメートルで消失する近接場光を遠方に伝達できることが分かった。

今後は、より現実的な発光・消失過程を再現し、実証実験に向けて検討を行う予定である。

TSUBAME 共同利用 令和 2 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 不動態皮膜の物性に関する量子化学計算

英文: Quantum chemical calculations for the physical properties of the passive film

利用課題責任者

橋本 永手

所属

東京理科大学大学院理工学研究科

## 邦文抄録(300 字程度)

高 pH 環境下の鉄は表面に不動態皮膜と呼ばれる緻密な酸化皮膜を生成し、高い耐食性を維持している。しかし、不動態皮膜の破壊因子である塩化物イオンが鉄周囲にある程度の濃度で存在すると、不動態皮膜が破壊され腐食が発生する。腐食化学の大きな課題のひとつは不動態皮膜の生成・破壊機構が解明されていないことにある。本利用課題は、量子化学計算により、不動態皮膜の上記物性を明らかにすることを目的とする。

高 pH 環境下の鉄が生成する不動態皮膜の主たる物質は、 $\alpha$ -FeOOH とされている。本利用課題では、まず  $\alpha$ -FeOOH の安定構造を計算した。その後、 $\alpha$ -FeOOH の-OH 基と塩化物イオンを置換し、再度、安定構造を計算した。その結果、塩化物イオンの置換により、 $\alpha$ -FeOOH の格子定数が変化することが明らかとなった。

## 英文抄録(100 words 程度)

The steel in a high pH environment forms oxide film called a passivation film. However, if a lot of chloride ions exists, the passivation film is destroyed. One of the major issues in corrosion chemistry is that the mechanism of formation and destruction of passivation films has not been elucidated. The purpose of this study is to clarify the physical properties of the passivation film by quantum chemistry calculation.

The main substance of the passivation film formed by steel in a high pH environment is  $\alpha$ -FeOOH. In this study, we calculated the stable structure of  $\alpha$ -FeOOH. After that, the -OH of  $\alpha$ -FeOOH was replaced with chloride ion, and the stable structure was calculated again. As a result, it was clarified that the lattice constant of  $\alpha$ -FeOOH changes according to the substitution of chloride ions.

*Keywords:* Passivation Film, Quantum chemistry, goethite, Chloride ion, lattice constant

## 背景と目的

高 pH 環境下の鉄は表面に不動態皮膜と呼ばれる緻密な酸化皮膜を生成し、高い耐食性を維持している。しかし、不動態皮膜の破壊因子である塩化物イオンが鉄周囲にある程度の濃度で存在すると、不動態皮膜が破壊され腐食が発生する。腐食化学の大きな課題のひとつは不動態皮膜の生成・破壊機構が解明されていないことにある。2018 年に発表された国際ジャーナルでも不動態皮膜の破壊機構は現在未解明現象と位置付けられている。

申請者や他研究者の既往の成果で、不動態皮膜の密度や分子結合性、厚さ等の各種物性は不動態皮膜の生成機構に対しても破壊機構に対しても重要なパラメーターであることが明らかとなっている。本利用課題は、量子化学計算により、不動態皮膜の電気伝導度や静電ポテンシャル、構造最適化等を行い、

上記のような不動態皮膜の物性を把握することを目的とする。

## 概要

本利用課題の量子化学計算には、量子化学計算の GUI アプリケーションである WINMOSTAR と量子化学計算ソルバーである Quantum ESPRESSO を用いた。高 pH 環境下の鉄が生成する不動態皮膜の主たる物質は、 $\alpha$ -FeOOH とされている。本利用課題では、まず  $\alpha$ -FeOOH の安定構造を計算した。その後、 $\alpha$ -FeOOH の-OH 基と塩化物イオンを置換し、再度、安定構造を計算した。

## 結果および考察

塩化物イオンの置換により、 $\alpha$ -FeOOH の格子定数が変化した。塩化物イオン置換前の  $\alpha$ -FeOOH の安定構造では結晶の形は概ね長方形であるが、塩化物イオン置換後の安定構造では、結晶の形は概ね平行四

辺形となった。格子  $\alpha\text{-FeOOH}$  は結晶内に水素結合を有することが知られているが、格子定数が変化した構造では、水素結合が弱まり、条件によっては切断される様子が得られた。 $\alpha\text{-FeOOH}$  は結晶格子の中に  $\text{-OH}$  基を 4 つ含むが、置換数や置換箇所によって、格子定数の変化の大きさは異なった。

#### まとめ、今後の課題

本利用課題で得られた知見および今後の課題は次の通りである。

- $\alpha\text{-FeOOH}$  の安定構造を計算した。
- $\alpha\text{-FeOOH}$  内の  $\text{-OH}$  基と塩化物イオンが置換することにより、 $\alpha\text{-FeOOH}$  の格子定数が変化した。
- 塩化物イオン置換前の  $\alpha\text{-FeOOH}$  の安定構造では結晶の形は概ね長方形であるが、塩化物イオ

ン置換後の安定構造では、結晶の形は概ね平行四辺形となった。

- 格子定数が変化した構造では、水素結合が弱まり、条件によっては切断される様子が得られた。
- $\alpha\text{-FeOOH}$  は結晶格子の中に  $\text{-OH}$  基を 4 つ含むが、置換数や置換箇所によって、格子定数の変化の大きさは異なった。
- 量子化学計算は、計算条件によって結果が大きく変化することが知られている。今後、計算の妥当性を確認し、具体的な数値を出力する必要がある。



# 東京工業大学 TSUBAME 共同利用 令和2年度利用終了課題 利用成果報告書集

発行：令和4年 7月

国立大学法人 東京工業大学 学術国際情報センター 共同利用推進室

住所：〒152-8550 東京都目黒区大岡山 2-12-1 E2-6

E-mail：kyoyo@gsic.titech.ac.jp

URL：https://www.gsic.titech.ac.jp/tsubame

本書に記載の記事・写真等の二次利用を禁じます。これらの情報は著作権法上認められた「私的利用」または「引用」の条件をみたした場合を除いて、著作権者に無断で転載、複製、放送、公衆送信、翻訳、販売、貸与等の利用を禁じます。