

東京工業大学 TSUBAME 共同利用
令和3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3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_r3

■令和3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
車載レーダにおけるターゲット表面電流分布の 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	1
分子標的型農薬開発のためのタンパク質-阻害剤複合体シミュレーション 株式会社アグロデザイン・スタジオ／田中良樹	5

■令和3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
<p>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</p> <p>千葉大学大学院薬学研究院製剤工学研究室/東頭二郎</p> <p>[1] Computational approach to elucidate the formation and stabilization mechanism of amorphous formulation using molecular dynamics simulation and fragment molecular orbital calculation. Xiaohan Ma, Kenjiro Higashi, Kaori Fukuzawa, Keisuke Ueda, Kazunori Kadota, Yuichi Tozuka, Etsuo Yonemochi, Kunikazu Moribe, International Journal of Pharmaceutics, (査読あり), 615, 121477 (2022) DOI:10.1016/j.ijpharm.2022.121477</p>	
<p>大規模メタサーフェスの光学応答解析</p> <p>東京農工大学/岩見健太郎</p> <p>[1] Chikara Ogawa, Sotaro Nakamura, Takumi Aso, Satoshi Ikezawa, and Kentaro Iwami, “Rotational varifocal moiré metalens made of single-crystal silicon meta-atoms for visible wavelengths,” Nanophonics, Accepted, 2022(査読あり) DOI: 10.1515/nanoph-2021-0690</p> <p>[2] Kentaro Iwami, “Rotational varifocal Moire metalens at the visible Wavelength”, The 5th A3 (China- Japan- Korea) Metamaterials Symposium, Online, June 27th 2021</p> <p>[3] Kentaro Iwami, “Dielectric metasurface for imaging and visualization”, International Symposium on Imaging, Sensing, and Optical Memory (ISOM) 2021, Online, October 6th 2021</p>	
<p>MPI アプリケーションのプロファイルおよびトレース予測に関する研究</p> <p>電気通信大学/三輪忍</p> <p>[1] 岡田 悠希, 三輪 忍, 八巻 隼人, 本多 弘樹, MPI における小規模実行時の通信トレース解析による大規模実行時の通信タイミング予測の評価, 情報処理学会研究報告 2021-HPC-182, No.16, pp.1-8 (2021)</p>	
<p>第一原理計算による SOFC 電極上の炭素析出解析</p> <p>立命館大学理工学部/渡部弘達</p> <p>[1] First-Principles Calculation and Multi-Scale Observation for a Carbon Deposition on a SOFC Anode Near the Interface, Hirotsu Watanabe, Teppei Ogura and Katsunori Hanamura DOI:10.1149/10301.0825ecst</p>	
<p>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</p> <p>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</p> <p>[1] Kotani O, Suzuki Y, Saito S, Ainai A, Ueno A, Hemmi T, Sano K, Tabata K, Yokoyama M, Suzuki T, Hasegawa H, Sato H. Structure-Guided Creation of an Anti-HA Stalk Antibody F11 Derivative That Neutralizes Both F11-Sensitive and -Resistant Influenza A(H1N1)pdm09 Viruses. Viruses. 2021 Aug 31;13(9):1733. DOI:10.3390/v13091733. PMID: 34578314; PMCID: PMC8473006.</p>	

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

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

[1] 立花尚登、五十幡康弘、後藤仁志（豊橋技科大）、配座データを用いたニューラルネットワークによる分子物性予測, 日本コンピュータ化学会 秋季年会 ポスター 3P08, 2022、長野

■ 令和3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
動的均衡にある神経回路の機械学習とその場の理論的解析 日本大学医学部薬理学分野／早川隆	7
大規模ソフトウェア分散共有メモリシステムにおける高性能計算の研究 成蹊大学理工学部情報科学科／緑川博子	11
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	17
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	21
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	23
海洋底探査を加速する AI とシミュレーション技術の開発 大阪府立大学大学院工学研究科／橋本博公	25
逐次導入法による長鎖化合物の全原子自由エネルギー計算 大阪大学大学院基礎工学研究科／松林伸幸	27
ヒト血清アルブミン-環状ペプチド複合体の相互作用解析 長岡工業高等専門学校／和久井直樹	29
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	31
ヘロナミド類の抗真菌作用メカニズムの解明のための計算分子設計技術の開発 北陸大学薬学部／齋藤大明	33
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	35
GPU クラスタを用いたミリ波帯・テラヘルツ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	39
フェーズフィールド法に立脚した多結晶組織形成の大規模シミュレーション 東京農工大学大学院工学研究院／三好 英輔	43

申請課題名 所属機関／利用課題責任者	頁
水圏動物が有する酵素の構造解析 東京大学大学院農学生命科学研究科／潮 秀樹	47
蛋白質天然変性領域の動力学特性に関する計算科学的検討 立命館大学生命科学部／笠原浩太	49
超流動ヘリウムにおける量子乱流の数値的研究 慶應義塾大学自然科学研究教育センター／湯井悟志	51
新規 BRCAness 誘導阻害剤開発に向けた理論研究 名古屋大学大学院医学系研究科／小関準	55
粗さを用いた熱・運動量輸送の非相似制御に関する研究 大阪府立大学大学院工学研究科／桑田祐丞	57
二酸化炭素の分離回収に適した分離材料の探索 産業技術総合研究所／藤井達也	61
光熱変換機構に関する第一原理計算 山形大学大学院理工学研究科／江目宏樹	63
シアシックニング機構の解明に向けた理論シミュレーション 高度情報科学技術研究機構／山田達矢	65
二酸化炭素の分離回収におけるゼオライト構造の最適化 産業技術総合研究所／池田歩	71
臨床情報統合データベースの機械学習解析 日本大学医学部生体機能医学系薬理学分野／浅井聡	73
CFD 解析を用いた卓球ボールの空力特性の計算 新潟工科大学／伊藤建一	75

TSUBAME 共同利用 令和 3 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表面電流分布の FDTD 法による数値解析
Numerical analysis of surface current distribution for an 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>

レーダ電波が照射された車両の表面電流分布は、車両のどの箇所からレーダ電波が強く反射しているかを把握する上で重要な物理量である。表面電流分布の数値解析は、時間領域でマクスウェル方程式を解く FDTD 法 (Finite Difference Time Domain method) により可能である。しかし、車載レーダのミリ波・準ミリ波帯で車両を対象にした FDTD 計算を実施するためには、大規模な計算リソースと数値分散誤差の問題があった。今回、TSUBAME3.0 と FDTD(2,4)法を活用することで問題解決でき、実物大のターゲット車両の表面電流分布を解析できた。これにより、車両からのレーダ反射波の発生メカニズムおよび受信電力の変動メカニズムを解明する手掛かりを得ることができた。

Surface current distribution is an important physical index for understanding from which part of a target vehicle radar waves will be strongly reflected. Surface current can be calculated by FDTD method. However, FDTD method requires large-scale calculation resources and has large numerical dispersion errors in millimeter-wave and quasi-millimeter-wave bands analyses. These problems could be solved by using TSUBAME3.0 and FDTD(2,4) method, to analyze the surface current distribution on a target vehicle. This method will make us able to be obtained clues to elucidate mechanisms of reflected waves generation and fluctuation of received power for a vehicle target.

Keywords: automotive radar, surface current, FDTD, electromagnetic simulations, vehicle target

1. 背景と目的

車載レーダは、自動運転システムや安全運転支援システムにとって走行環境を認識するため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、自車の先行車両を検知する場合や、自車の前方交差点を横断する車両を検知する場合など、あらゆる走行シーンを想定する必要がある。つまり、アンテナに対するターゲット車両の相対角度(ヨー角)が 360 度変化することを想定し、角度変化に伴う受信電力の変動を考慮してアンテナや信号処理などを開発する必要がある。

RCS[1]はターゲット車両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 の計算式ではターゲットがアンテナに対して無限遠方に存在し、大きさの無い点と見なせることが前提である。車載レーダの場合、ターゲット車両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、ミリ波帯・準ミリ波帯(周波数: 76GHz、24GHz)車載レーダの波長(4mm、12mm)に比べて、ターゲット車両のサイズが大きく形状が複雑であるため、

ヨー角変化に対して RCS 特性と受信電力が大きく変動することが分かっている[2]。現状、ターゲット車両のヨー角変化に伴う RCS 特性の変動メカニズムや車両特有の反射波の発生メカニズム、受信電力の変動メカニズムは解明できていない。

電波がターゲットに入射すると、電磁誘導によりターゲット表面に電流が流れ、その電流により周囲に磁界と電界が発生して反射波となる。したがって、ターゲット上の表面電流の生じ方を知ることができれば、照射されたレーダ電波がどのようにターゲットで反射するのかを把握できると考えられる。

そこで我々は、ターゲット車両からのレーダ反射波の発生メカニズムおよび受信電力の変動メカニズムを解明する手掛かりを得るために、車両の表面電流分布の数値解析に取り組んだ。

2. 車両の表面電流分布数値解析の課題

車載レーダの電波伝搬シミュレーションは、幾何光学近似を用いたレイトレース法や PO 法、GO 法が一般的に用いられる。しかし、上記の数値解析手法は、電波

の波動性を厳密に再現できないことと時間領域の解析ではないことから、電磁誘導による表面電流を計算できない。FDTD 法(Finite Difference Time Domain method)[3]は、電波の支配方程式であるマクスウェル方程式を差分化して、時間領域で電界と磁界を解く手法である。この計算原理より、ターゲット表面の電界と磁界の時間変動から表面電流を計算できる。

しかし、FDTD 法でターゲット車両の表面電流を解析する上で 2 つの問題点がある。1 つ目の問題点は、FDTD 法では、波長の 1/10 以下のサイズのセルで解析空間全体を分割して、時間ステップを進めながら繰り返し計算するため、大規模な計算リソース(メモリ量、計算時間)を必要とすることである。具体的には、ミリ波帯(周波数:76GHz、セルサイズ:0.4mm)・準ミリ波帯(周波数:24GHz、セルサイズ:1.2mm)で車両を対象にした解析では、セル数が数十億セルから数千億セルとなり、所要メモリ量は数百 GB から数 TB 程度、CPU 計算は数百時間を所要する見積りである。

2 つ目の問題点は、FDTD 法が差分近似を用いた計算原理であるため、数値分散誤差(位相誤差)が生じることである。波長に対する伝搬距離が長くなるほど位相誤差は累積するため、高周波数帯の大規模空間解析では伝搬波形が崩れる。

今回、上記 2 つの問題点に対して、TSUBAME3.0 を活用し、我々が開発した高精度差分スキームの FDTD(2,4)法プログラムを用いてターゲット車両の表面電流分布の数値解析に取り組んだ。

3. TSUBAME3.0 による計算リソース問題の解決

FDTD 法の計算アルゴリズムは、リープフロッグアルゴリズムで、時間ステップを進めながら 1 ステップ過去の電界と磁界から現在の電界と磁界を交互に計算する。そして、空間領域を分割したセルに対して当該セルと隣接したセルの 1 ステップ過去の電界と磁界を用いて、当該セルの電界と磁界を計算する。したがって、1 ステップ過去の計算結果を保持することで空間領域全体を一括して並列計算ができる。ただし、セル毎の電界と磁界データをメモリから読み込みと書き出しをするため、計算速度はメモリ・バンド帯域幅(メモリ・データ転送速度)に律速される。

TSUBAME3.0 は、540 台の計算ノードで構成され

た大規模クラスタ型スーパーコンピュータである。1 台の計算ノードには、NVIDIA 製 GPU Tesla P100(単精度浮動小数点演算性能:9.3 TFLOPS、GPU メモリ:16GB)を 4 機搭載している。全計算ノードの GPU メモリ量は約 34.6TB である。また、GPU P100(CUDA コア数:3,584 コア、メモリ・バンド帯域幅:720 GB/s)は、ハイパフォーマンス CPU と RAM メモリ(CPU: Intel Xeon E5-2680 14 コア、RAM: DDR4-2400 メモリ帯域幅 19.2GB/s)と比較して、数百倍の並列計算コア数と数十倍のメモリ帯域幅を有する。

以上のような TSUBAME3.0 のマルチ計算ノードのマルチ GPU を用いることで、FDTD 法の計算リソースの問題を解決できた。今回取り組んだターゲット車両の表面電流分布解析のための FDTD 計算は、約 20 億セルの解析規模で 8 ノードの 32GPU を必要とした。計算実施の結果、所要メモリ量は 458GB、計算時間は約 50 分であり、有効性を検証できた。

4. FDTD(2,4)法による位相誤差の解決

一般的な FDTD 法は、マクスウェル方程式の時間微分と空間微分を 2 次精度で差分近似した Standard-FDTD 法である。この計算手法は、自由空間中で位相速度が光速とならず、伝搬距離が長くなるほど位相が遅れる。セルサイズをより小さくすることで位相誤差を低減できる。しかし、セルサイズを波長の 1/20 と設定した場合で 1 波長分の距離の伝搬で約 1° の位相誤差が生じ、50 波長分の伝搬では約 50° 、100 波長分の伝搬では約 100° の誤差が生じることとなり、許容できない。またセルサイズをより小さくした場合、計算リソースが指数関数的に増大するため計算リソースの問題を誘発する。

一方、FDTD(2,4)法は、時間微分を 2 次精度差分で、空間微分を 4 次精度差分で近似する。この計算手法は、時間領域で位相が進み、空間領域で位相が遅れる。この特徴から、時間領域の計算分解能(時間ステップ)に作用するクーラン条件 CFL を最適化することで、時間領域と空間領域で生じる位相誤差を相殺できる。

セルサイズを波長の 1/10 に設定した場合のクーラン条件 CFL と位相誤差の関係を図 1 に示す。この結果から、FDTD(2,4)法で CFL を 0.1363212 に設定することで 1 波長分の伝搬の位相誤差が $1.09 \times 10^{-5}^\circ$ とな

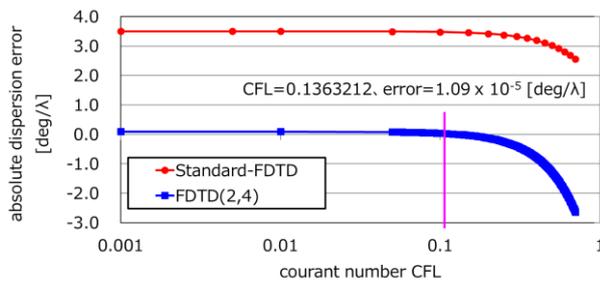


図 1.1 波長分の伝搬における位相誤差と CFL の関係

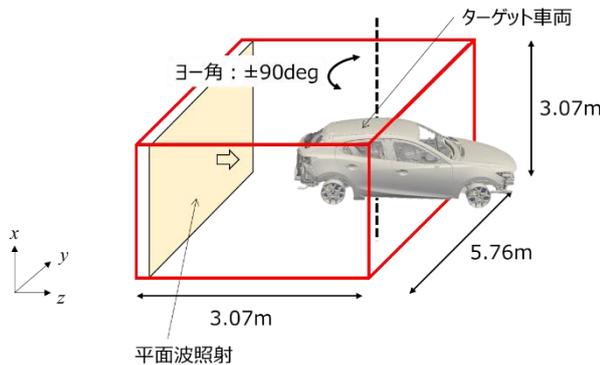


図 2. ターゲット車両の表面電流分布の解析条件

り、ほぼ無視できるレベルに低減できた。これより、FDTD 法の位相誤差の問題を解決できた。

5. ターゲット車両の表面電流分布の数値解析

実物大のターゲット車両を対象に、準ミリ波帯(周波数: 10GHz、波長: 30mm)レーダが照射されたときの表面電流分布を FDTD(2,4)法で解析した。図 2 に、ヨー角が変化した際のターゲット車両の表面電流分布を解析するための平面波照射とターゲット車両の条件を示す。表 1 にその他の計算条件を示す。ヨー角は、ターゲット車両の中心を通り、水平面に対して垂直な直線を回転軸として回転させた角度である。ターゲット車両の真後ろを 0° に設定して、左右 $\pm 90^\circ$ の範囲で回転させた。

ターゲット車両の表面電流分布の数値解析結果を図 3 に示す。濃い赤色の所のほど表面電流が大きく流れていることを示している。このように、TSUBAME3.0 と我々が開発した高精度差分スキームの FDTD(2,4)法プログラムで、ターゲット車両の表面電流分布を数値解析することができた。

6. まとめと今後の課題

ターゲット車両からのレーダ反射波の発生メカニズム、および受信電力の変動メカニズムの解明に向けて、ターゲット車両の表面電流分布の数値解析に取り組んだ。

表 1. FDTD 法の計算条件

周波数	10.0 [GHz]
解析空間	3.07 x 5.76 x 3.07 [m] (1024 x 1920 x 1024 [cell])
セルサイズ	2.99x10 ⁻³ [m] (≒ 1/10 λ)
計算手法	FDTD(2,4)
クーラン条件 CFL	0.1363212
時間ステップ	1.36x10 ⁻¹² [sec]
放射源	平面波+ガウスパルス波
計算ステップ数	7,200 [回]
吸収境界	PML 32 層、R ₀ =1.0 ⁻³² 、M=4
変数の型	float (GPU)

ターゲット表面電流は、時間領域でマクスウェル方程式を解く FDTD 法で計算可能である。しかし、ミリ波帯・準ミリ波帯で車両を対象にした FDTD 解析を行うためには、大規模な計算リソースが必要となることと、解析規模に応じて位相誤差が大きくなる問題があった。

上記の問題に対して、マルチ計算ノードのマルチ GPU を搭載した TSUBAME3.0 を活用し、我々が開発した高精度差分スキームの FDTD(2,4)法プログラムを用いて表面電流分布の数値解析を行った。その結果、実物大のターゲット車両を対象に、準ミリ波帯レーダを照射したときの表面電流分布を実用的な計算時間で解析可能であることを示すことができた。

今後、ターゲット車両にレーダ電波を照射したときの反射箇所を把握して、反射波の発生メカニズムおよび受信電力の変動メカニズムを解明する。

参考文献

- [1] Eugene F. Knott, 他, Radar Cross Section (2nd Edition), scitech publishing, (2004)
- [2] Emna Bel Kamel, 他, RCS modeling and measurements for automotive radar applications in W band, HAL, (2018)
- [3] 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)

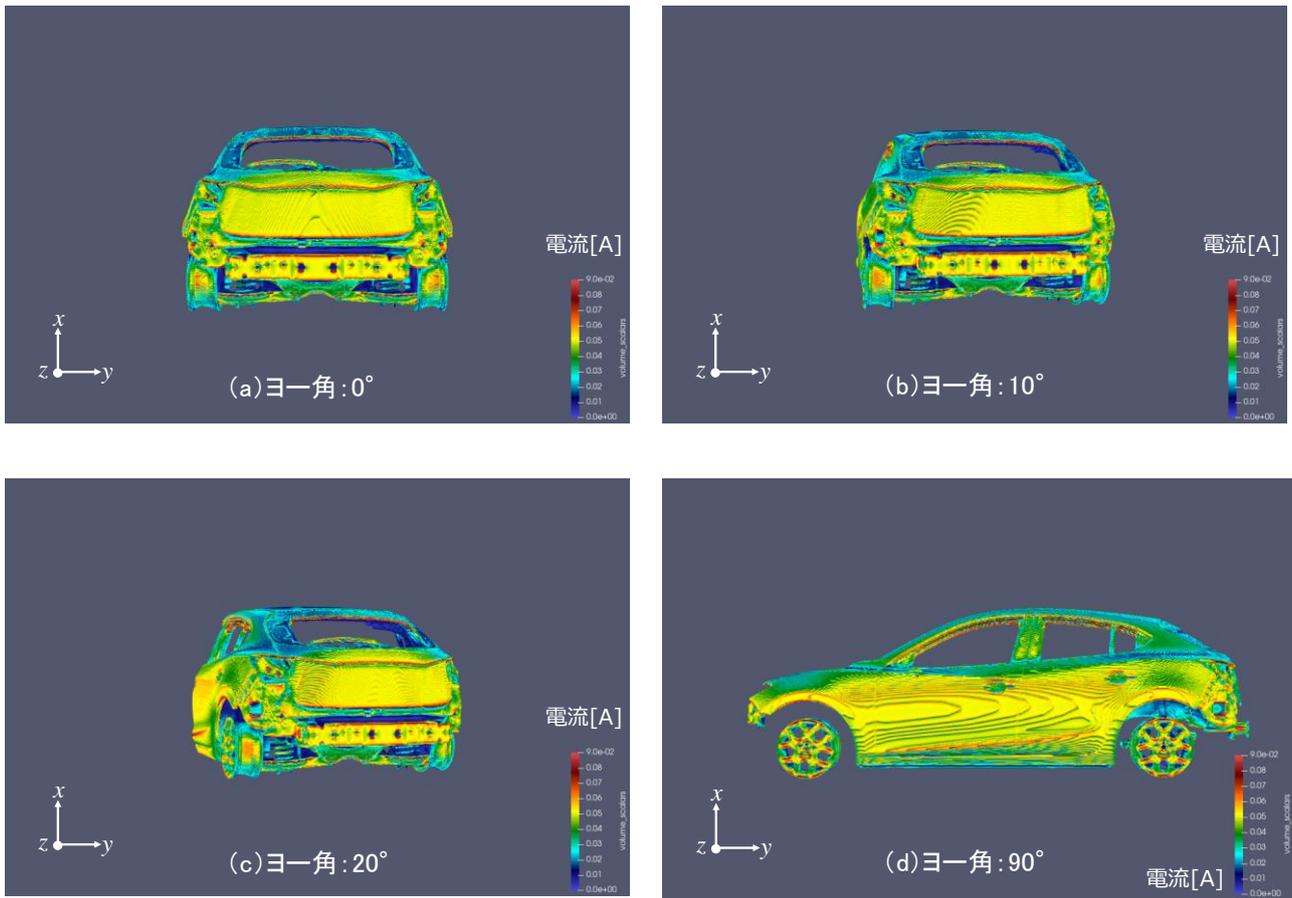


図 3. ターゲット車両の表面電流分布

TSUBAME 共同利用 令和 3 年度 産業利用 成果報告書

利用課題名 分子標的型農薬開発のためのタンパク質-阻害剤複合体シミュレーション
英文: Simulation of protein-inhibitor complex for molecularly-targeted pesticide development

利用課題責任者

田中良樹

所属

株式会社アグロデザイン・スタジオ

<https://www.agrodesign.co.jp/>

邦文抄録(300 字程度)

当社では医薬品で用いられている技術を応用し、分子標的農薬の研究開発を行っている。分子標的農薬の薬剤開発には、候補化合物との複合体立体構造情報が必要であるが、対象生物が多岐にわたる農薬開発においては医薬品以上に困難がある。本研究課題では、TSUBAME を利用した具体的な分子標的農薬の研究開発に繋がる情報の取得を目的とし、標的タンパク質-阻害剤複合体のフラグメント分子軌道法の条件検討を行った。

英文抄録(100 words 程度)

We are conducting research and development of molecularly targeted agrochemicals by applying the same technology used for pharmaceuticals. The development of molecularly targeted agrochemicals requires information on the complex structure of candidate compounds, which is more difficult than for pharmaceuticals in the development of agrochemicals that target a wide range of organisms. In this research project, we investigated the conditions for fragment molecular orbital method of target protein-inhibitor complexes to obtain information that will lead to the research and development of specific molecularly targeted pesticides using TSUBAME.

Keywords: フラグメント分子軌道法、農薬開発

背景と目的

近年の環境保全意識の高まりにより、従来使用されてきた農薬の使用禁止が相次いでおり、次世代型の農薬の開発が期待されている。そこで当社では医薬品で用いられている技術を応用し、分子標的農薬の研究開発を行っている。分子標的農薬の薬剤開発を進めるには、標的タンパク質と候補化合物との複合体の立体構造を決定する必要がある。しかし、医薬品と異なり、対象生物が多岐にわたる農薬開発において、その全ての構造を実験的に明らかにするのは実現困難である。そこで、分子シミュレーションを用いて不足している構造情報を補い、その構造に対しドッキングや分子動力学、フラグメント分子軌道法といった種々の分子計算手法を適用して化合物を探索することで、化合物の改良を加速する必要がある。本研究課題では、標的タンパク質-阻害剤複合体の分子動力学シミュレーションやフラグメント分子軌道法の条件検討を行い、計算速度や

精度の検証および PIEDA による詳細な相互作用解析を行う。

概要

次世代の農薬には、高い安全性と薬剤抵抗性への対処が求められている。そのための開発手法の一つとして、特定のターゲットタンパク質を低分子農薬の標的とした分子標的農薬の研究開発を進めている。本研究課題では、標的タンパク質-阻害剤複合体の分子動力学シミュレーションやフラグメント分子軌道法の条件検討を行い、TSUBAME を利用した具体的な分子標的農薬の研究開発に繋げる。

結果および考察

PDB ID: 5K6R から取得されるアセト乳酸合成酵素 (Acetolactate Synthase: ALS) とそれを阻害するスルホニルアミノカルボニルトリアゾリノン系除草剤の

一つである、チエンカルバゾンメチルからなる複合体間の相互作用解析を、補因子であるチアミンニリン酸 (Thiamine Diphosphate: ThDP)、フラビンアデニンヌクレオチド (Flavin Adenine dinucleotide: FAD) 存在下で FMO 計算により試みた。計算は 2 Node、Flat MPI (28 プロセス) で行ったが、Monomer SCC 計算が終了したところでエラーにより計算が中断された (fortrtl: severe (174): SIGSEGV, segmentation fault occurred)。

まとめ、今後の課題

複数回条件を検討しつつ FMO 計算を実行したが、エラーにより計算が中断してしまったため、目標としていた計算精度の計算や分子動力学計算との比較を行うには至らなかった。今回の実施結果を精査し、中断原因を解明して改めて計算を行いたいと考えている。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 動的均衡にある神経回路の機械学習とその場の理論的解析
 英文: Machine learning in neural networks on a dynamical balance
 and its field-theoretic analysis

利用課題責任者 早川 隆
 Takashi Hayakawa

所属 日本大学 医学部 生体機能医学系 薬理学分野
 Department of Pharmacology, School of Medicine, Nihon University
<https://nu-pharmacology.com>

本課題では科研費研究課題「場の理論にもとづく動的均衡にあるレザボワ計算神経回路の設計」の一環として、動物脳にみられる動的均衡という性質を持った人工神経回路のレザボワ計算と呼ばれる学習問題における性能を、数値実験と理論解析を併用し調べた。研究代表者の開発した統計力学理論により、学習時にどのような入力に対してどのような応答・情報の読み出しがどのような確率で得られるのかを見積もることができていた。そこでこの結果をもとに従来のレザボワ計算の問題点を改善する手法を提案し、TSUBAME の計算環境を活用した大規模数値シミュレーションにて学習性能が向上することを示した。本研究はリカレント神経回路のこれまで利用されてこなかった動的な性質を機械学習に応用する試みであり、上記の結果がリカレント人工神経回路を用いた人工知能の性能を質的に向上させる手がかりとなることが期待される。

In the present study, we investigated reservoir computing with artificial neural networks whose excitatory and inhibitory recurrent feedbacks are dynamically balanced in a similar manner to those of animal brain circuits. This investigation was supported by JSPS KAKENHI Grant No. JP19K20359. Using a statistical mechanical theory that we developed in the previous fiscal year, we probabilistically described the readout from the dynamically balanced neural networks in learning. Based on this theoretical result, we designed a learning algorithm that potentially resolves a few bottlenecks in conventional reservoir computing. With large-scale numerical simulations of learning enabled by the computing environment in TSUBAME, we confirmed that the algorithm improves learning performance. The success in taking advantage of dynamical properties of recurrent neural networks in machine learning might lead us to obtain a clue to a better design of artificial intelligence based on recurrent neural networks.

Keywords: recurrent neural networks, GPU computing, machine learning, reservoir computing, mean-field theory

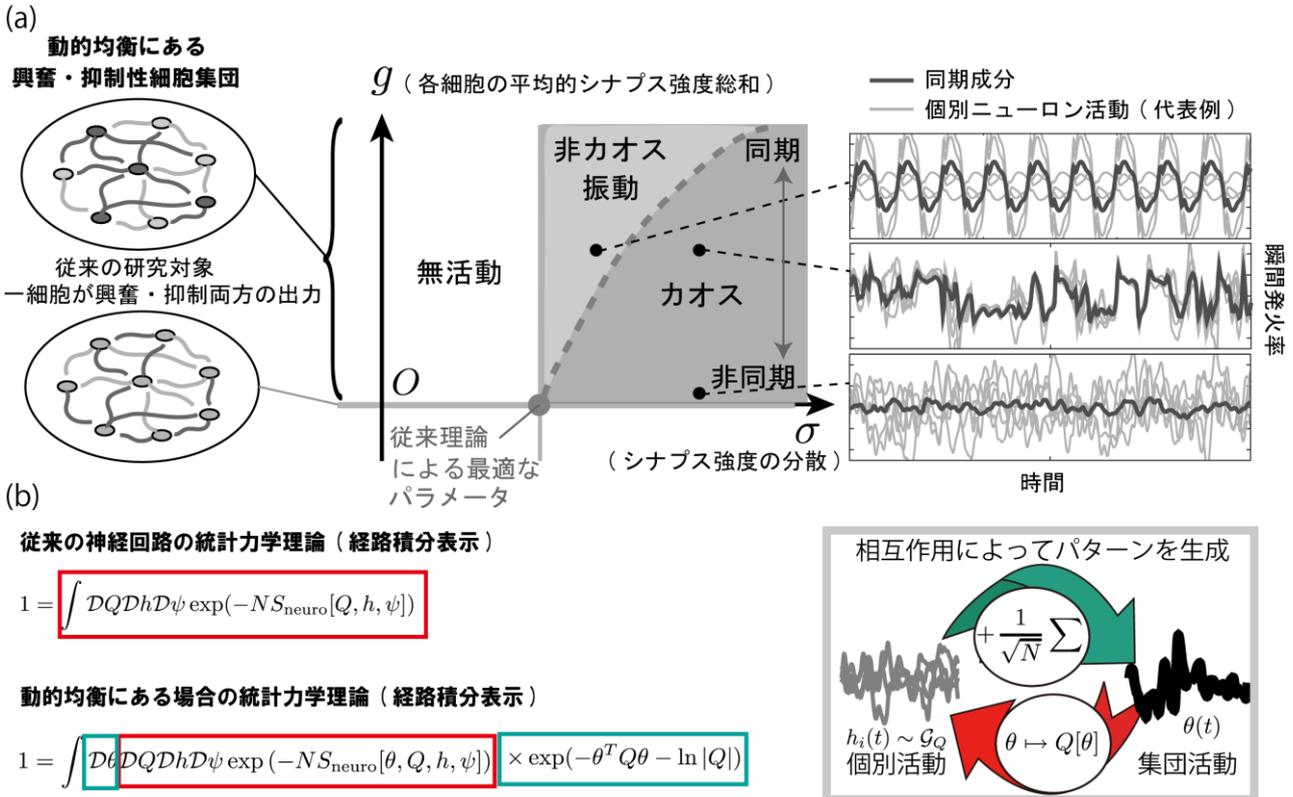
背景と目的

この TSUBAME 共同利用課題は研究代表者の科研費課題「場の理論にもとづく動的均衡にあるレザボワ計算神経回路の設計」の遂行を目的としたものである。研究の背景は科研費実績報告書に記載した内容と重複するものであり、これを以下に引用する。(引用開始)近年、人工的な神経回路を用いた情報処理技術が社会に大きな影響を与えている。特に、入力層から出力層への処理の流れが明確に決まっているフィードフォワード回路は画像認識や言語処理などで高性能を発揮しており、そのふるまいの理論的な解明も徐々に進んできている。一方、自身の出力が次の時刻での入力になるリカレント神経回路を用いると過去の情報を内部

に記憶することができると考えられ、実応用で一定の成功例が知られていたが、依然として扱う際の技術的難易度が高いことが指摘されており、どのような条件であれば学習がうまくいくのか、理論的な解明が求められてきた。

そのような中、ランダム結合を持つリカレント神経回路については統計力学理論を用いてそのふるまいを記述する方法が古くから知られていた。これらのランダム結合神経回路を実問題における学習に用いた場合もそこその性能を示すことが注目され、リカレント神経回路のふるまいを理解するためのモデルケースとしてさかんに研究されていた[1-3]。このようなランダム結合神経回路を実問題に用いる方法は「レザボワ計算」と

図 1



呼ばれる。一方、統計力学理論が適用可能な神経回路と一般のリカレント神経回路には依然として隔たりがあり、その中間的なケースについても理論を構築したいという要請があった。

そのような中、研究代表者は神経回路の結合が完全にランダムではなく構造を持っている場合についての新しいタイプの理論を世界に先駆けて構築したところであった[4]。特に、哺乳類脳に見られるように正の結合を作るニューロン集団と負の結合を作るニューロン集団が分離しているようなケースで[図 1(a)]、回路全体の正の入力と負の入力が動的な均衡を保つような特定の条件を満たすと、個々のニューロン活動と回路全体の集団活動が相互作用しながらパターンを形成することが示された[図 1(b)]。とりわけ、コヒーレント状態・カオス的振動・非自明な静止状態など完全にランダム結合の神経回路では見られないような多様な挙動を示すようになり、その様子が拡張された統計力学理論を用いて記述できることを示していた[図 1(a)]。そこで、この研究代表者自身の理論を用いてレザボワ計算の枠組みを拡張することを科研費研究課題として策定した。(引用終了)

概要

上記の背景と目的をふまえ、令和2年度までの研究で、研究代表者は動的均衡にある神経回路に外部から入力があった場合に、神経回路がどのように応答し、その結果どのような出力が読み出されるかを表す、(線形)応答理論を構築していた。またその結果に基づき、動的均衡にある神経回路を用いてレザボワ計算の学習性能を向上させるアルゴリズムが設計できたため、課題学習の数値シミュレーターのプロトタイプを作成していた。数値シミュレーターの実行や、線形応答理論にもとづく数値解析の実行には大きな計算量が必要とされたため、令和3年度はこの計算を TSUBAME 上で複数 CPU と GPU アクセラレーターを活用して行うこととした。

結果および考察

TSUBAME 上で動的均衡にある神経回路の学習を数値シミュレートするプログラムコードを開発し、従来のランダム結合神経回路に内在する問題点である初期値依存性や時間的な記憶減衰の問題に取り組んだ。TSUBAME の GPU アクセラレーターを活用することにより、計算性能の大幅な向上を得た。

まず、数値計算と線形応答理論を組み合わせた解析によりマクロ・ミクロのリアプノフ指数の上界を見積もったところ、動的な均衡にある神経回路ではミクロな個別ニューロン活動のレベルではカオス的であるにも関わらずマクロな集団活動のレベルでは非カオスとみなせる場合があるという観察結果を得た。また、この上界は同じパラメータ値を持つ神経回路でも神経結合の詳細な実現値によって変化することが示された。そこで、事前にこのリアプノフ指数がなるべく小さくなる回路を選んで学習をさせる数値シミュレーションプログラムを開発したところ、マクロな安定性を利用して学習結果の初期状態への依存性を減らせることが確認できた。

次に入力が時間的にスパースにしか与えられず、離れた時間の間に関連を学習する課題にも取り組んだ。この場合、動的な均衡にある神経回路は、前述の集団活動のリアプノフ指数がほぼゼロになるように回路結合をあらかじめ事前学習すると性能が向上することを見出した。

最後に、動的均衡にあるランダム結合神経回路の活動がガウス過程を非線形変換したものとして表されることとガウス過程の学習理論[5]をもとに、汎化誤差を抑えるための正則化入りの確率的勾配法を設計した。これによってノイズ下で有限サンプルから統計的に学習をする場合に、学習性能が向上することが数値計算によって確かめられた。

まとめ、今後の課題

以上に述べたように動的均衡により定性的に異なるタイプの集団活動と個別活動のパターンが形成され、そのことが学習に貢献することが確かめられた。科研費研究課題の補助期間は終了したが、これらの観察事実を追加の数値シミュレーションや理論解析により強固に基礎付けし、論文発表を行う予定である。これによって、リカレント神経回路の学習、ひいては人工知能の性能を質的に向上させる手がかりが与えられたと考える。

参考文献

- [1]W.Maass *et al.*, *Neural Computation*, 2002
- [2]H.Jaeger & H.Haas, *Science*, 2004

[3]M.Lukosevicius *et al.*, *KI-Künstliche Intelligenz*, 2012

[4]T.Hayakawa & T.Fukai, *Phys.Rev.Res.*, 2020

[5]L.L.Gratiet & J.Garnier, *Machine Learning*, 2015

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 高性能計算向け分散メモリ・ストレージ統合システムの研究

英文: The Unified System of Distributed Memory and Storages for High Performance Computing

利用課題責任者

緑川 博子

所属

成蹊大学 理工学部

<http://www.ci.seikei.ac.jp/midori/>

邦文抄録(300 字程度)

本研究では、スパコンをはじめとするクラスタシステムにおいて、複数の計算ノードメモリを一つの共有アドレス空間にマップし大規模共有メモリとして提供し、各ノードコアから制限のない高速アクセスを実現するソフトウェア分散共有メモリ mSMS を構築している。これにより、単一計算ノードで広く用いられる OpenMP, OpenACC や C 言語による大規模配列への記述を、クラスタ上の大規模共有データに対して利用可能とした。本年度は、並列処理未経験である研究者に対し mSMS を提供し、音響流体解析応用 FDTD を実装して高速処理を実現し、複数ノードにまたがる大規模データに対する複雑な境界条件の設定などが非常に容易であるなどの成果を得た。

英文抄録(100 words 程度)

The mSMS, software-based distributed shared memory system, provides a very large shared memory, which can be accessed from any CPU core on any computing-node in a cluster system without accessible-area limitations. It realizes a parallel programming environment for shared large data on a cluster system which is easy to use and similar to the single-node parallel programming environment, such as C programming with OpenMP and/or OpenACC. The mSMS is used for large-scale acoustic energy simulations in this paper and shows its effectiveness not only in the processing performance but also in the program development.

Keywords: software distributed shared memory; partitioned global address space; cluster computing;

背景と目的

クラスタ利用による高性能計算では、現在も MPI が広く用いられ、分散メモリモデルによるプログラム開発の低生産性が未だ解決されたとは言えない。これを軽減するため、PGAS (Partitioned Global Address Space) モデルと総称される様々な言語・API が提案されてきたが[1]、大域データ配列や大域インデックスを利用可能とするものはあるものの、可能なアクセス範囲がノード隣接データ領域に限っていたり、範囲を超えた大域データアクセスには明示的な MPI のような局所的記述が必須であったり、定義できる大域データサイズに制限があり大規模計算には利用できないなど、多くの不自由さが存在する[2][3]。

本研究は、スパコンをはじめとする大規模クラスタシステムにおいて、以下を実現する汎用かつ大規模なソフトウェア分散共有メモリシステムを構築し、従来の並列プログラム開発を容易にすることをめざしている[4]。

- 計算ノードメモリを範囲を超える大域共有アドレス空間の実現と計算ノード全体に配置された大規模データへの制限のない高速アクセス
- クラスタシステムにおける並列プログラム開発の生産性向上のためのプログラミン環境, API の提供

本年度は、並列処理未経験である研究者に対し mSMS を提供し、音響流体解析応用を実装して高速処理を実現し、複数ノードにまたがる大規模データに対する複雑な境界条件の設定などが非常に容易であるなどの成果を得た。

概要

ソフトウェア分散共有メモリシステム mSMS

mSMS (multithreaded Shared Memory System) は、クラスタ上の分散メモリを大規模共有メモリとして利用可能にするため、各ノードのローカルメモリアドレス空

間の他に、どのクラスタノードからもアクセスできる大規模な共有メモリアドレス空間を構築する。図1に示すように、各ノードが共有メモリとして提供するメモリは、「オーナーページエリア」として共有メモリアドレス空間上のそれぞれ違うアドレス領域として割り当てられる。プログラムが遠隔ノードの共有データアドレス領域にアクセスした場合には、ユーザ(プログラム)には見えない形で、SEGVシグナルで検知し、ページ単位でローカルノードに遠隔ページをフェッチして該当アドレス領域にキャッシュする。並列プログラムにおける実行バリア同期などの際に、共有データの一貫性同期が行われ、各ノードにキャッシュされたページの更新情報は、そのページのホームノードに送られてページに反映される。

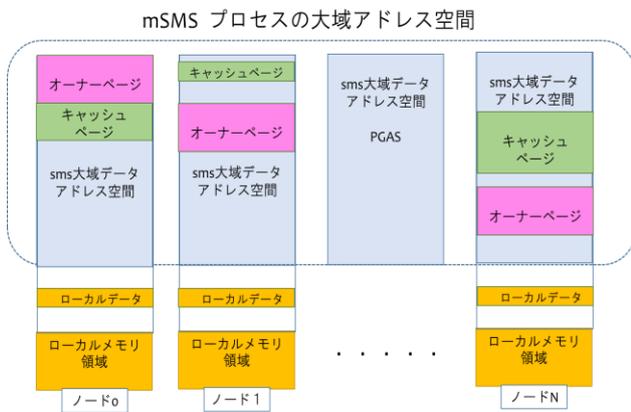


図1 クラスタ上で大域アドレス空間を実現するソフトウェア分散メモリ mSMS

mSMS では、従来の単一ノードにおける C 言語による並列プログラム記述を、ほぼそのままの形でクラスタ上の大規模共有データに対して利用できるように設計されている。クラスタシステムでは、マルチノード、マルチ CPU コア、マルチ GPU コアなど、様々な並列方式が利用可能であるが、複数の API を自由に組み合わせて、mSMS では高性能計算に利用できる[4]。図2に示すように、単一計算ノードで広く用いられるマルチコア向け OpenMP や GPU 向け OpenACC などと同等のマルチノード向けの API である SMint も提供しており、逐次コードから容易に好みの API を組み合わせてインクリメンタルにプログラムを作成することもできる。

応用分野の計算特性や利用可能なシステム環境、ユーザの好みに応じ、(1)標準の C 言語と sms ライブラリ関数による記述、(2)大域共有配列宣言が可

能な拡張 C 言語 MpC、(3)pragma 文 SMint によるプログラミングと、図3に示すように、複数のプログラミングインターフェースを提供している。

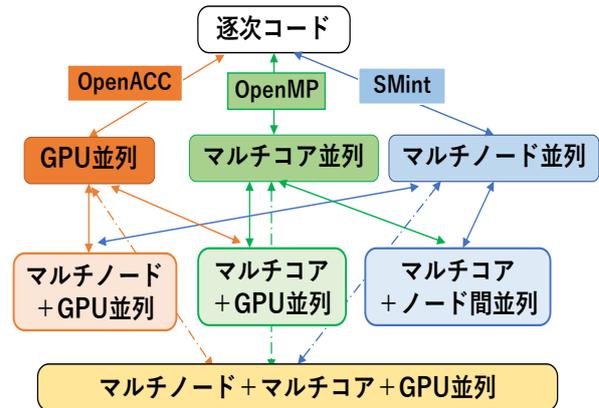


図2 インクリメンタルプログラミング
逐次コードに、OpenACC、OpenMP、SMintの並列コメントを加えるだけで自由な組み合わせでプログラムが書ける

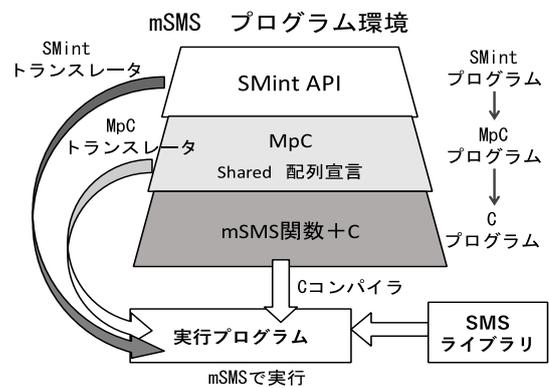


図3 SMSにおける3つのAPI
CとSMSライブラリ関数利用から、SMint APIまで、好みのレベルのAPIを利用可能

FDTD (2,4) 法のマルチノード並列処理

並列処理の経験がない応用分野(音響解析)の研究者と共同でTSUBAME3.0においてmSMSを用いて、音響エネルギーシミュレーションの並列処理を行った。大規模な音響解析を効率的に行うために、FDTD(2,4)法等の高次FDTD法の有効性が検討されている[7]。マルチノード環境でのプログラミングの生産性を向上させるため、ページベース分散共有メモリシステム mSMS を利用し、図4のスケルトンコードに示す様に、複数の計算ノード全体にある大域データを対象としてグローバルビューでプログラミングを行った。mSMSを用いたマルチノード実装では、SIGSEGVシグナルハンドラによるリモートページフェッチ機能による手法の他に、図5のスケルト

ンコードに示す様なリモートデータプリロード API (sms_preload_array 関数) を用いて、計算利用前に事前に遠隔ノードからデータをプリフェッチする機能もある。これを隣接ノードとの袖領域データ交換に使用し、ノード内の並列化には OpenMP を利用することもできる。

FDTD 並列処理の流れ

図 4 では、sms_startup 関数で SMS が起動され各ノードに同一プログラムが並列に実行される。最後の sms_shutdown でマルチノード実行が終了となる。各ノードでは、大域データを sms_mapalloc で確保した後、全ノードで実行同期 sms_sync を行った後、NT 時間ステップの計算ループを実行する。計算ループ内では明示的な遠隔データのフェッチの記述はないが、SMS システムにより遠隔ノードより袖データが自動的にフェッチされて計算に用いられる。FDTD であるため、時間ループ内には 2 つの処理ループが含まれ、いずれも OpenMP を用いてマルチコアによる並列処理が行われる。各処理ループの終わりに sms_sync_drop 関数により、実行同期と各ノードにおけるキャッシュページ廃棄が行われる。

遠隔データ一括プリフェッチ関数 sms_preload

今回の FDTD や典型的なステンシル計算のように、予め次にアクセスする遠隔データの範囲がわかっている応用処理では、プログラムが遠隔データにアクセスしてから SEGV シグナルで検知し、ページ単位にデータをフェッチするのではなく、予め計算開始前（データアクセス前に）に次に使う連続データ領域をアドレスで指定して、指定領域を含む複数ページを一括でプリフェッチできる sms_preload 関数を利用し、さらに高速化できる。事前に遠隔データアクセス範囲が既知の場合、ページ毎の SEGV ハンドラが省き、高速化が図れる。

sms_preload_array 関数は、多次元大域配列の中の矩形の部分配列を指定して preload する関数で、関数内部で指定部分配列に含まれるページを自動的に計算し一括で preload する関数である。図 4 の 2 つの配列アップデートの for 文の前に、図 5 に示すようなデータのプリフェッチを加えると、高速化が図れる。

遠隔データ再プリフェッチ関数 sms_overload

ローカルノードに実データのないアドレス範囲のページ (図 1 のオーナーページ以外の領域) は、当初、アクセス不可 (NO) に設定されているので、preload 関数で、遠隔データをアドレス空間に配置する際には、そのアドレス範囲のページをリードライト可能 (RW) に設定してからデータを受け取る。その後、受け取ったノードで当該ページへの書き込みがあったかどうかの有無を記録するためキャッシュページは読み出し専用 (RO) に設定し直す。本応用のように遠隔データの袖領域への書き込みがない場合には、バリアデータ同期 (sms_barrier) の際に、キャッシュページは廃棄 (すなわちアクセス不可 NO へ設定) される。しかし、ステンシル計算のように、時間ステップ毎に、繰り返し同じデータ領域を遠隔ノードから繰り返し読み込む場合には、キャッシュページは NO→RW→RO→NO のようにアクセス設定 (mprotect システムコール) を繰り返すことになる。同じ領域に遠隔データを繰り返し読み込む場合 (ステンシル計算のような処理の場合) には、最初の遠隔データプリフェッチで sms_preload を用いた後、実行同期 (sms_sync) のみを行いキャッシュページをそのまま (RW) で保持し、2 回目以降の時間ステップでは、すでに存在するキャッシュページにそのまま上書きする sms_overload を用いることで高速化が図れる。実際のコードでは、時間ブロッキングアルゴリズムにより、複数時間ステップ (BT) の隣接境界データを一度に preload, overload することで、遠隔データのフェッチをさらに効率化している。

結果および考察

mSMS 利用による FDTD (2, 4) 処理の性能評価

ここでは、前述のような高速化を測った場合 (Preload API 利用、ステンシル計算部分のみ) の、マルチノード環境における並列性能評価 [6] を示す。性能評価は、TSUBAME3.0 (Intel Xeon E5-2680 v4, 14 core, 2.4GHz × 2 / node, Intel Omni-Path 100Gb/s × 4, Intel MPI 2018.1.163) と九州大学の ITO Subsystem A (Intel Xeon Gold 6154, 18 core, 3.0GHz × 2 / node, InfiniBand EDR 4 ×

100Gb/s, MVAICH2-X 2.2) 上で実行した. OpenMP スレッド数は両アーキテクチャともに 24 とする. データメッシュサイズは倍精度で, z 方向に分割して並列処理する. 各ノードの z サイズは 1024 である.

図 6 は, 1 ノードから 32 ノードまでの並列化された FDTD(2,4) ソルバーの Weak スケーリングの実行時間を示している. 凡例の 'Calculation', 'Preload' 及び 'Barrier' はそれぞれ, 計算時間, Preload API によるデータ交換時間, バリア同期時

間を示す. 図 6 のノード 1 の値はベースライン, すなわち, 各アーキテクチャで mSMS を使用しなかった場合のシングルノードの実行時間を示している.

ITO-A および TSUBAME3.0 を用いて求めたベースライン実行時間に対する 2-32 ノードの実行時間の比率は, それぞれ 1.07~1.16 および 1.09~1.30 である. 図に示す様に, mSMS と OpenMP で並列化した FDTD(2,4) ソルバーはほぼ理想的なスケーリング結果を示している.

```
#include <sms.h>
int main(int argc, char const *argv[]) {
    double (*matrix)[y_size][x_size];
    matrix=sms_mapalloc(dim,div,sizeof(double),0,sms_nprocs);
    sms_startup(&argc, &argv); // start mSMS system
    bz = NZ/sms_nprocs; // block size for one node
    sz = sms_rank * bz; ez = (sms_rank + 1) * bz; // z-division
    sms_sync(); // execution-synch.
    for ( int time_step = 0; time_step < NT; i++) { // main loop of fdttd(2,4) method
        #pragma omp parallel for
        for (k = sz; k < ez; k++) for (j = sy; j < ey; j++) for (i = sx; i < ex; i++) {
            qx[k][j][i]=-CQ*(K1*(p[k][j][i+1]-p[k][j][i])-K2*(p[k][j][i+2]-p[k][j][i-1]));
            qy[k][j][i]=-CQ*(K1*(p[k][j+1][i]-p[k][j][i])-K2*(p[k][j+2][i]-p[k][j-1][i]));
            qz[k][j][i]=-CQ*(K1*(p[k+1][j][i]-p[k][j][i])-K2*(p[k+2][j][i]-p[k-1][j][i]));
        }
        sms_sync_drop(); // execution-synch. & discard cache pages
        #pragma omp parallel for
        for (k = sz; k < ez; k++) for (j = sy; j < ey; j++) for (i = sx; i < ex; i++) {
            p[k][j][i]=-CP*(K1*(qx[k][j][i]-qx[k][j][i-1])-K2*(qx[k][j][i+1]-qx[k][j][i-2]))
                +CP*(K1*(qy[k][j][i]-qy[k][j-1][i])-K2*(qy[k][j+1][i]-qy[k][j-2][i]))
                +CP*(K1*(qz[k][j][i]-qz[k-1][j][i])-K2*(qz[k+1][j][i]-qz[k-2][j][i]));
        }
        sms_sync_drop();
    }
    sms_shutdown();// finalize mSMS system
}
```

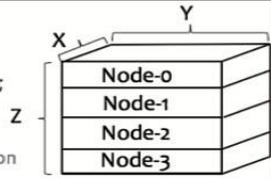


図 4 mSMS における FDTD (2, 4) 並列スケルトンコード

```
size_t g_stld[3]= { NZ,NY,NX}; // global data size
size_t e_size[3]= { load_ez - ez,NY,NX}; // prefetch data size
if( time_step == 0)
    // prefetch e_size data from &matrix[ez][0][0] pointer to cache page
    sms_preload_array(&matrix[ez][0][0], g_stld, e_size, 3, sizeof(double), 1);
else{
    // overwrite cache page
    sms_overload_array(&matrix[ez][0][0], g_stld, e_size, 3, sizeof(double),1);
}
```

図 5 データプリフェッチ利用時のスケルトンコード

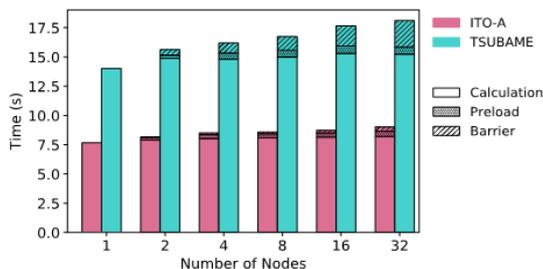


図 6 FDTD(2,4)法の SMS によるマルチノード並列処理 weak scaling 性能 sms_preload 利用 1024x1024x1024 格子/ノード, 24 スレッド/ノード

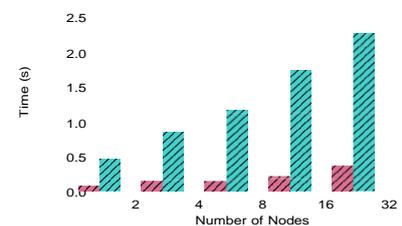


図 7 バリア時間 エラーバーは標準偏差

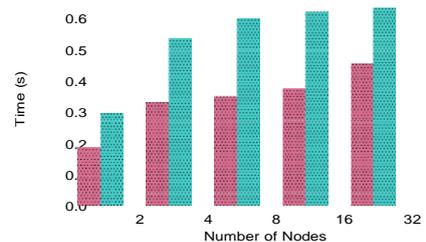


図 8 preload 時間 エラーバーは標準偏差

また、図 7、図 8 はそれぞれ、図 6 の 'Barrier' 及び 'Preload' の平均実行時間を示す (エラーバーは標準偏差を示す)。図の様に、TSUBAME3.0 における実験では より新しいシステムである ITO-A と比較して、比較的長い傾向があり、それぞれノード数の増加に伴い向上する。また、Preload API によるデータ交換時間はノード数の増加に伴い飽和する傾向にあり、ほぼ理想的な結果を示している。

さらに実応用として PML 吸収境界条件を導入し、ヘルムホルツ共鳴器モデルの解析を行った結果を図 9 に示す[6]。このようなシミュレーションでは通常、複雑な境界条件を記述する。これまでの分散データ型の MPI などでは、記述が複雑でミスを生みやすくコストが大きかった。今回、一つの共有大域データに対し境界条件などが容易に記述できる点は、mSMS の大きな利点として指摘された。

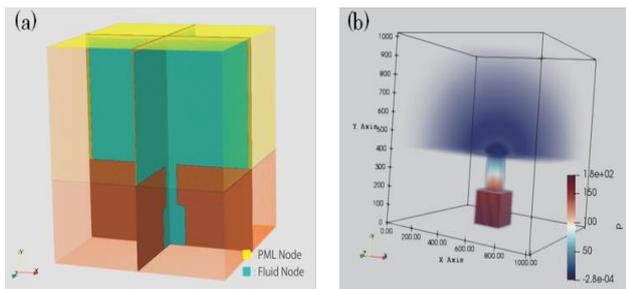


図 9 FDTD(2,4)法へ Berenger PML 吸収境界条件(実用に近い条件)を導入した、ヘルムホルツ共鳴器モデルの解析結果

まとめ、今後の課題

2020 年度から、並列処理プログラム開発経験のない音響解析研究者と共同で TSUBAME3.0 において mSMS を利用しソフトウェアを開発し、2021 年度、その成果が米国音響学会の論文誌に採択された[5]。

mSMS では、ユーザの経験やシステム的环境に応じた複数のプログラミング API を提供しており、既存の CPU コア、GPU コア並列 API (OpenMP,

OpenACC)とも組み合わせることが可能である。これらを組み合わせ、スパコンクラスタにおいて高性能処理が比較的容易に可能であることを示した。また、mSMS の提供する大域共有配列に対し、データの所在(計算ノードの内外)を意識せずに、複雑な記述が可能である点は、並列処理を専門としない応用分野のユーザにとって、大きな利点であることが明らかになった。

今後、応用処理プログラムを作成するユーザが容易に mSMS を利用したプログラム開発ができるように、マニュアルやサンプルプログラムなどを整備、提供することが重要と考える。

参考文献

- [1] M.D. Wael, et al.: "Partitioned Global Address Space Languages", Journal of ACM Computing Surveys (CSUR), Vol.47, No.62, 2015
- [2] 阪口裕悟, 緑川博子: "グローバルビュープログラミングをサポートする PGAS 言語の記述性と性能の比較", 情報処理学会, HPC 研究会報告, Vol.2019-HPC-170, No.41, pp.1-10, 2019.7
- [3] Y.Sakaguchi, H.Midorikawa: "Programmability and Performance of New Global-View Programming API for Multi-Node and Multi-Core Processing", IEEE Pacific Rim Conference on Communications Computers and Signal Processing, 2019.8
- [4] 緑川博子, 阪口裕悟: "分散共有メモリシステム 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", 情報処理学会, 研究報告ハイパフォーマンスコンピューティング (HPC), Vol.2021-HPC-178, No.24, pp.1-10, 2021.3
- [5] Ryoya Tabata, Rei Mastuda, Toshiaki Koiwaya, Shoiwagami, Hiroko Midorikawa, Taizo Kobayashi, Kinya Takahashi: "Three-dimensional numerical analysis of acoustic energy absorption and generation in an air-jet instrument based on Howe's energy corollary", The Journal of the Acoustical Society of America, Vol.149, No.6, pp.4000-4012, 2021.6
- [6] Ryoya Tabata, Hiroko Midorikawa, Kinya Takahashi: "Performance Evaluation of Acoustic FDTD(2,4) Method Using Distributed Shared Memory System mSMS", 2020 International Conference on High Performance Computing in Asia-Pacific Region HPC Asia 2020, pp.1-2, Fukuoka, Japan, Jan. 15-17, 2020. 1
- [7] Y. Sendo, H.Kudo, T. Kashiwa, and T. Ohtani: The fdtd(2,4) method for highly accurate acoustic analysis in three-dimensional space. Electronics and Communications in Japan (Part III: Fundamental Electronic Science), 86:30 - 37, 11 2003.

TSUBAME 共同利用 令和3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、資源開発や地球科学の分野では、岩石のような多孔質媒体における流体特性を明らかにするため、デジタル岩石物理学の研究が進んでいる¹⁾。デジタル岩石物理学は、岩石をデジタル化し、それに対し数値シミュレーションを適用することにより、不均質な岩石の間隙形状を考慮して水理特性といった物理特性を求めることが可能となる。この手法は、複雑な廃棄物層間隙形状を有する廃棄物最終処分場の流体挙動の解析においても有用なツールとなるものと期待される。廃棄物層内の流体挙動は、間隙形状に強く依存すると考えられるものの、従来の方法では、定量的な間隙形状分布や間隙に関する幾何学的な位置情報を表すことができなかつたため、間隙形状と流体挙動と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、マイクロフォーカス X 線 CT を用いて、廃棄物材料の間隙に関する 3 次元ボリュームデータを取得し、このデータから定量的な間隙の幾何学的な情報の抽出を試みるとともに、モデ

ル化した流れ場において流体シミュレーションを行い、流体特性と間隙形状の関係を明らかにすることを目的とする。

概要

試料には、一般廃棄物焼却施設から採取した主灰と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 Gmsh²⁾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。

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

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

ここで、 u は流速、 p は圧力、 Re は Reynolds 数、 Ω 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)^{3,4)}を適用すると以下のように弱形式が導かれる。

$$\int_{\Omega} w_i \left(\frac{\partial u_i}{\partial t} + \bar{u}_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} \right) d\Omega - \int_{\Omega} \frac{\partial w_i}{\partial x_i} + \int_{\Omega} \frac{1}{Re} \frac{\partial w_i}{\partial x_j} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right)$$

$$+ \sum_{e=1}^{n_{el}} \int_{\Omega} \left(\tau \bar{u}_k \frac{\partial w_i}{\partial x_k} \right) \left(\frac{\partial u_i}{\partial t} + \bar{u}_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial p}{\partial x_i} \right) d\Omega = 0, (3)$$

$$\int_{\Omega} q \frac{\partial u_i}{\partial x_i} d\Omega + \sum_{e=1}^{n_{el}} \int_{\Omega} \left(\tau \frac{\partial q}{\partial x_i} \right) \left(\frac{\partial u_i}{\partial t} + \bar{u}_j \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial p}{\partial x_i} \right) d\Omega = 0, (4)$$

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、 τ 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⁵⁾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、X 線 CT 画像データからの間隙構造解析は、ExFact VR 及び ExFact Analysis for Porous / Particles (日本ビジュアルサイエンス) を用いて行った。この解析により、間隙の 3 次元幾何学的情報として空隙中心軸 (medial axis) とその過程で得られる連結経路 (connecting path) あるいは屈曲度 (tortuosity) の情報を得た。空隙中心軸の決定には、burn algorithm⁶⁾が採用されている。また、屈曲度は次式で定義される。

$$Tortuosity = -\frac{f}{s}$$

ここで、 f は向かい合う面を貫通する中心軸の実際に通った経路の長さ、 s は f の経路の始点と終点を結ぶ直線の長さである。

結果および考察

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。焼却灰の間隙内速度ベクトルを図 1 に示す。焼却灰は、コアサンプルと比較して、粒径が小さく、密に充填されているため、より複雑なパスと通り水が流れている様子が確認できた。

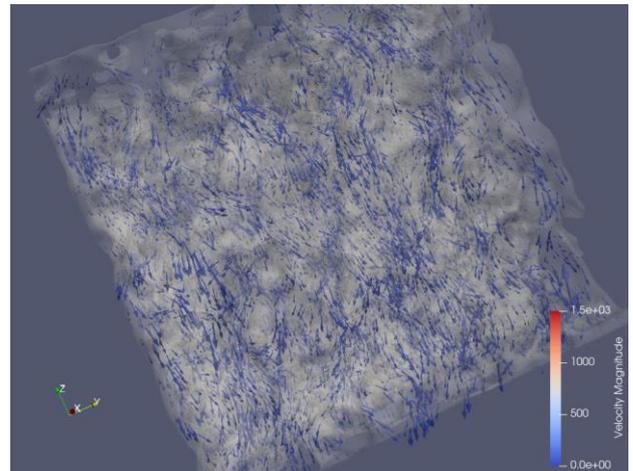


図 1 焼却灰試料における数値シミュレーション結果

そこで、これらの試料に対して定量的な間隙の構造解析を行った。中心軸に対し直交する面の中で周囲より面積の小くなる場所(くびれた部分)をスロートと定義し、スロートによって囲まれた領域をポアと定義した。焼却灰とコア試料を比較すると、空隙率は、焼却灰がわずかに小さかったものの、ポア数は、焼却灰が極めて多く特徴的であった。平均ポア体積、平均ポア有効半径は、コア試料より小さかった。また、くびれた部分のスロートは、平均面積、平均有効半径ともに焼却灰が、コア試料と比べて小さかった。

図 2 に、焼却灰とコア試料の間隙のネットワーク構造を細線化した結果を示す(中心軸分布)。焼却灰は、コア試料と比較して多くのパス(path)が存在しており、比較的小さい径のポアが連結し多数のパスを形成している。これは、流体移動が可能となるルートがより複雑になることを示唆しており、数値シミュレーション結果と同様の傾向であった。

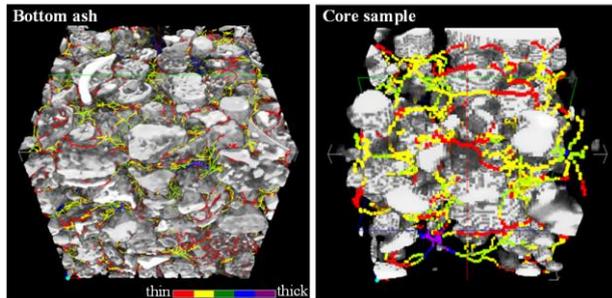


図 2 間隙のネットワーク構造
(左図: 焼却灰、右図: コアサンプル)

まとめ、今後の課題

今後、間隙内流体挙動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) 辻健:貯留層マネージメントに向けたデジタル岩石の利用、石油技術協会誌,84(6) 403-410 (2019)
- 2) 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)
- 3) Tezduyar, T.E.: Stabilized finite element formulations for incompressible flow computations, *Advanced in Applied Mechanics*, 28, 1-44(1991)
- 4) 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)
- 5) 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)
- 6) Lindquist, W. B., et. al: Medial axis analysis of void structure in three-dimensional tomographic images of porous media, *Journal of Geophysical Research*, 101(B4),8297-8310(1996)

TSUBAME 共同利用 令和3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)を用いた熱フォトンクス(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)を用いた熱フォトンクス(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、TPX 発電システムの LED と PV セルに用いる半導体材料として、2 層グラフェン (bilayer graphene; BLG) を用いる。BLG はゲート電圧と構造に応じてバンドギャップが変化する材料であり、比較的低いバンドギャップを取るためバンドギャップ波長が赤外となりやすい。通常、グラフェンは価電子帯と伝導帯がディラック点 1 点で交わる特異なバンド構造を持つため、バンドギャップを形成せず発光素子としては利用できない。しかし、グラフェンが 2 層重なった BLG の場合においては、垂直方向のゲート電圧を印加することによって 2 層間の原子の反転対称性が崩れ、バンドギャップが形成されるため発光素子として利用することができる。

計算モデルの概略図を Fig.1 に示す。この構造で解析を行った結果が Fig.2,3 である。Fig.2 より近接場領域では単層グラフェンデバイス、2 層グラフェンデバイス共に黒体放射限界を大きく上回るエネルギー伝達が起きているのが確認できる。一方で、Fig.3 によると遠方場領域では単層グラフェンデバイスでは黒体放射下回るが、2 層グラフェンデバイスではバンドギャップ波長付近で黒体放射限界以上のエネルギー伝達が達成できている。

まとめ、今後の課題

本研究では、揺動電磁気学シミュレーションを用い

て TPX 発電システムのエネルギー輸送メカニズムについて検討した。今後は異なる半導体材料の活用も視野に入れて新たな光と物質の相互作用に起因するエネルギー輸送メカニズムの解明を目指す。

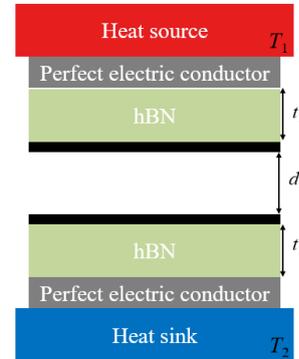


Fig. 1 Schematic of the TPX system.

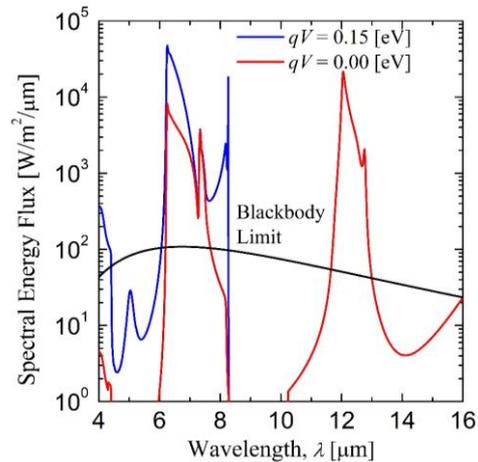


Fig. 2 Spectral Energy flux between the emitter and the PV cell at $d = 0.1$ [μm].

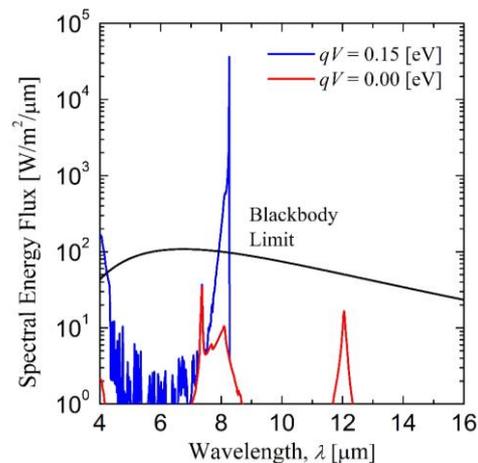


Fig. 3 Spectral Energy flux between the emitter and the PV cell at $d = 20$ [μm].

TSUBAME 共同利用 令和3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: High-order flux reconstruction method for the hyperbolic formulation of the incompressible Navier-Stokes equations on unstructured grids

利用課題責任者

胡 長洪

所属

九州大学応用力学研究所 新エネルギー力学部門

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

邦文抄録(300 字程度)

英文抄録(100 words 程度)

A high-order Flux reconstruction implementation of the hyperbolic formulation for the incompressible Navier-Stokes equation is presented. The governing equations employ Chorin's classical artificial compressibility (AC) formulation cast in hyperbolic form. Instead of splitting the second-order conservation law into two equations, one for the solution and another for the gradient, the Navier-Stokes equation is cast into a first-order hyperbolic system of equations. Including the gradients in the AC iterative process results in a significant improvement in accuracy for the pressure, velocity, and its gradients. Furthermore, this treatment allows for taking larger time-steps since the hyperbolic formulation eliminates the restriction due to diffusion.

Keywords: Hyperbolic method, Flux reconstruction, Unstructured grid, Incompressible Navier-Stokes equations, Artificial compressibility method

背景と目的

High order methods, such as flux reconstruction (FR) method, can achieve high order spatial accuracy on complicated geometries using compact stencils that only involve immediate face neighbors. 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). A challenge that arises when solving the Navier-Stokes equations using the classic formulation is the severe time-step restriction in diffusion dominated problems.

Even in advection dominated problems (i.e., high Reynolds number flows), localized high diffusion areas, either due to a high turbulent eddy viscosity or an artificially introduced stabilization viscosity, can have an adverse effect on stability, especially if such regions overlapped with highly refined mesh zones. To address this limitation in the context of the flux reconstruction method for incompressible flows, a hyperbolic method [1] for solving the advection-diffusion method is implemented in the flux reconstruction code PyFR[2]. Using hyperbolic diffusion, the restriction on stability from

diffusion can be significantly alleviated. Additionally, the hyperbolic method was found to increase the accuracy and order of accuracy of variables and their gradients. This can be a desirable feature in applications that require accurate gradients.

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

Numerical tests of the hyperbolic incompressible flux reconstruction implementation showed significant reductions in the absolute error of the field variables and the gradient of the velocity have been demonstrated. Additionally, it has been shown that equal orders of accuracy can be obtained for both the field variables and velocity gradients. Numerical results suggest that the improvement in the order of accuracy of the velocity gradients lead to a matching improvement in the order of accuracy of pressure. Analysis shows that the time-step requirements are significantly relaxed when using the hyperbolic solver.

This leads to a considerable speed-up of convergence especially for diffusion dominated problems where the parabolic restriction can be quite severe.

The strong scaling performance of the developed solver has been shown to be superior to the existing INS-FR solver due to the extra communication required for the computation of the viscous fluxes in the latter.

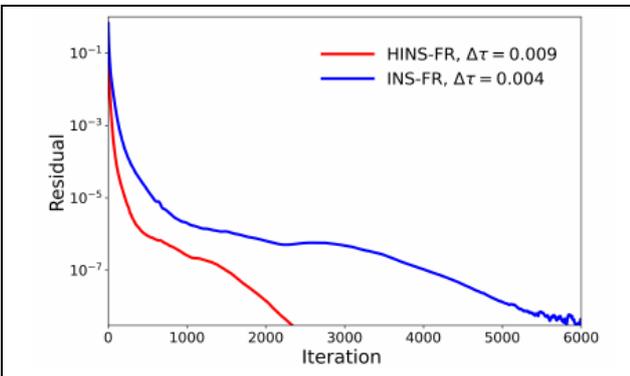


Figure 1: Convergence of the residual of the pressure for laminar flow past a sphere at $Re=100$ using the classic incompressible NS (blue) and hyperbolic method (red)

Figure 1 shows the significant reduction in the number of iterations required by the hyperbolic solver to reach convergence, when compared to the classical incompressible solver.

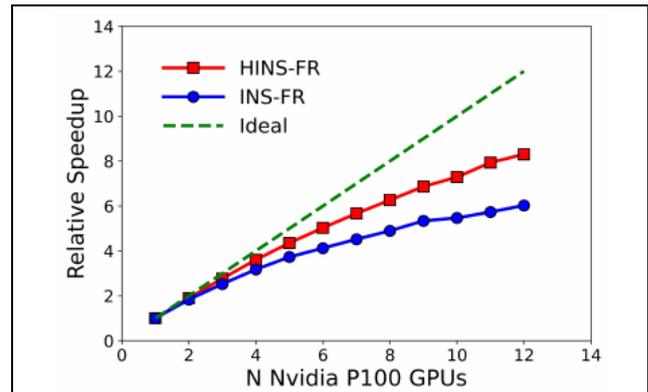


Figure 2: Strong scaling performance for the developed solver on multiple GPUs in TSUBAME

Figure 2 shows the result of a strong scaling study carried out on TSUBAME, demonstrating the better scaling performance of the hyperbolic flux reconstruction method.

まとめ、今後の課題

In this report, progress on the development of a high-order hyperbolic method for incompressible flows 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 reducing the memory foot-print and computational cost of the solver.

References

- [1] H. Nishikawa, Y. Liu, Hyperbolic Navier-Stokes Method for High Reynolds-Number Boundary Layer Flows.
- [2] 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.

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 海洋底探査を加速する AI とシミュレーション技術の開発

英文: Development of AI and simulation technologies to accelerate ocean-bottom exploration

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

海溝型地震や熱水活動観測による資源評価など、調査船を用いた海洋底探査の重要性が増している。外乱が複雑に変化する状況下では、革新的な船舶制御が求められるため、その第一歩として深層 Q 学習にもとづく自律操船 AI の開発を行った。また、海底での採掘・揚鉱装置の開発を加速させるために、個別要素法の GPU シミュレーションコードを開発し、その精度検証を行った。

The importance of seabed exploration using research vessels is increasing. An innovative ship control is required in a situation where natural disturbances complicatedly change in time. As a first step, we developed AI for autonomous ship maneuvering based on deep Q-learning. In addition, in order to accelerate the development of mining and mining equipment, a GPGPU DEM code for simulating seabed environment was developed.

Keywords: Seabed exploration, AI, DEM, GPU

背景と目的

海溝型地震や海底火山噴火の予測、熱水活動観測による資源評価など、調査船を用いた海洋底探査の重要性が増している。気象海象が複雑に変化する状況下において、海洋底探査に課せられた高度ミッションを達成するためには、革新的な船舶制御が求められる。本研究では、既存の制御理論では取り扱いが困難な海洋底探査における操船問題の新たな解として、深層強化学習にもとづく自律操船 AI の開発を行う。スパコンを利用した学習環境を構築し、学習用パラメータの最適化と分散型の強化学習を行うことで、海洋底探査の高度化と効率化に資する船舶制御を実現する。開発した自律操船 AI は、模型船を用いた水槽試験による検証に加えて、実船を用いた実海域での実証実験を実施することにより定量的な評価を行う。これらの研究成果をもとに、今後の海洋底探査を加速させるための基盤的な船舶制御技術として確立することを目的とする。

また、探査・開発の対象となる海底環境は、砂、泥、礫などの離散体で構成されており、採掘・揚鉱装置の開発を加速させるためには、連続体である海水との連成シミュレーションが求められる。本研究では、個別要素法と粒子法を組み合わせた離散対・連続体の連成シ

ミュレーションを開発し、スパコン上で実行可能なツールとして確立する。

概要

今年度は、深層 Q 学習ベースの自動避航 AI の開発を行った。ニューラルネットワークの入力には対象とする海域をメッシュで分割した各セルの数値を入力する。セルに与える数値は周辺他船との衝突予測領域と危険度、および目標となるウェイポイントにもとづき算出される。空間的な情報を保持するため、畳み込みニューラルネットワーク層と全結合ニューラルネットワーク層を用いた。

海底資源開発のための海底環境の模擬シミュレーションについては、個別要素法の GPGPU コードを自前で開発した。また、重力作用下の粉体挙動の計算精度について検証を行った。

結果および考察

開発した自動操船 AI を過去に実施した実船実験の遭遇シナリオに対して適用したところ、Fig.1 のように、輻輳する海域においても、相手船との衝突を好ましい余裕を持って回避しつつ、目的地に向かって自動航行

できることを確認した。

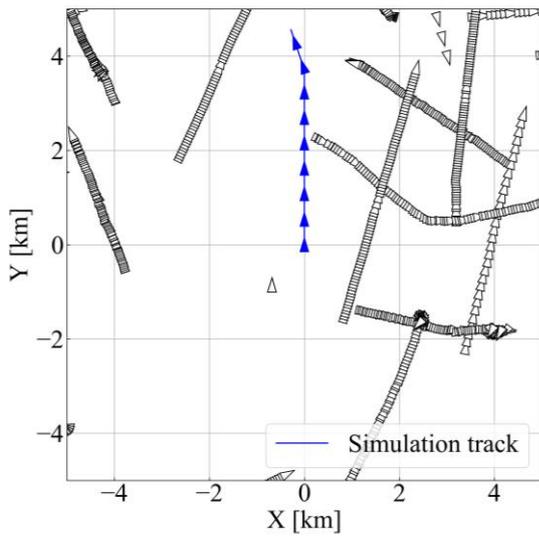


Fig.1 An example of ship trajectory of collision avoidance by AI

開発した DEM コードの精度検証のため、排出法と呼ばれる実験を行った。実験結果とシミュレーションの比較を Fig.2 に示す。



Fig.2 Visual comparison of discharge flow

両者の比較より、時間の経過とともに排出が減っていく様子が再現されていることが分かる。上部円筒内からの排出だけでなく、受け皿内のガラスビーズの盛り上がりなども良好に再現されていることが確認できる。ただし、流量や安息角については定性的な予測精度にとどまっており、今後の精度改善が必要である。

まとめ、今後の課題

今年度は、深層 Q 学習ベースの自動操船 AI の開発と GPU シミュレーション用の DEM コードの作成を行い、両者についてバリデーションを実施した。その結果、自動操船 AI は輻輳した海域であっても目的地へと向かいつつ、相手船との衝突を安全に回避できることを確認した。今後は、AI の改良を進めるとともに、模型実験や実船実験を通じて、その有用性を明らかにすることが求められる。

DEM の計算コードについては、検証実験と同条件でのシミュレーションの実施により、粉体挙動としては良好な精度での再現が可能であるが、流量と安息角の予測については課題が残る結果となった。今後は接触力のモデルを再検討したうえで、陽的 MPS 法との連成解析コードを開発していく予定である。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 逐次導入法による長鎖化合物の全原子自由エネルギー計算

英文: All-atom free energy calculation of long-chain compounds by chain-increment method

利用課題責任者

Nobuyuki Matubayasi

所属 大阪大学

Affiliation Osaka University

URL

邦文抄録 本課題では、本グループが開発中の逐次導入法を用いて、polyethylene(PE)/polyvinylidene difluoride(PVDF)ブレンドおよび poly(vinyl) alcohol(PVA)/polyvinylpyrrolidone(PVP)ブレンド系の混合ギブス自由エネルギーを全原子分子動力学シミュレーションを用いて計算した。原子スケールのエネルギー解析および構造解析によってブレンドの相溶/非相溶性やその原因を明らかにした。

英文抄録 In this project, Gibbs free energies of mixing of polyethylene (PE)/poly(vinylidene fluoride) (PVDF) and polyvinyl alcohol (PVA)/poly(vinylpyrrolidone) (PVP) blends were calculated by all-atom molecular dynamics simulations using the chain-increment method being developed by our group. An atomic-level energies and structural analyses revealed miscibility/immiscibility of the blends and their causes.

Keywords: all-atom molecular dynamics simulation, free energy calculation, polymer blend, mutual miscibility

背景と目的

ポリマーブレンドとは、異なる種類のポリマーを混ぜ合わせてできた多成分ポリマーの総称である。複合的なポリマーの性質を有するポリマーブレンドは家電製品や生体デバイス、自動車製品など多岐にわたって活用されている。ブレンドの物性は、混ぜ合わせるポリマーのお互いへの溶けやすさである相溶性に依存することが知られている。そこで、新規ポリマーブレンド材料を設計する安価な手段として、計算機シミュレーションを用いて相溶性を評価する手法の開発が期待されている。

ブレンド系の相溶性は、熱力学的には混合前後の自由エネルギー変化である混合ギブス自由エネルギーで決まる。本研究では、ポリマー混合系における混合ギブス自由エネルギー評価を用いて、ポリマー溶液系の相溶性を見積もる。分子間相互作用を考慮するために全原子分子動力学(MD)シミュレーションを行い、各ポリマー鎖の平衡化学ポテンシャル(自由エネルギー)計算から混合ギブス自由エネルギーを見積もる。しかしながら、非常に大きな内部自由度を持ち排除体積が大きいポリマー鎖は、自由エネルギー計算に膨大な数のサ

ンプリングが必要となり、大きな計算コストがかかる。

本プロジェクトでは、この問題を解決するために、高分子がモノマーの繰り返し構造からなる点に注目する。高分子全体ではなく、その構成要素であるモノマーの溶媒和自由エネルギーを計算することを考えるのである。高分子に属するモノマー単位の溶媒和自由エネルギーは incremental chemical potential と呼ばれ、同じ構造の繰り返しモノマーの数が長い長鎖ポリマーほど一定になることが期待される。ポリマー鎖全体の自由エネルギーは incremental chemical potential の総和となるため、ごく少数の incremental chemical potential 計算から全体の化学ポテンシャルを見積もることができれば、計算時間を大幅に短縮することができる。

概要

本課題では、重合度 $N = 100$ の polyethylene (PE), polyvinylidene difluoride (PVDF) およびそのポリマーブレンド系である PE/PVDF ブレンド, polyvinyl alcohol (PVA), polyvinylpyrrolidone (PVP) およびそ

のポリマーブレンドである PVA/PVP ブレンドについて、モル比をさまざまに変化させた系を用意して全原子 MD シミュレーション計算を行った。さらに、得られた平衡構造に基づく incremental chemical potential 計算を行なった。incremental chemical potential からブレンド状態および分離状態の高分子全体の化学ポテンシャルを見積もり、混合ギブス自由エネルギーを評価することでブレンドの相溶/非相溶性を判定した。さらに、エネルギー論的解析と分子スケールの構造解析から、ブレンドの相溶/非相溶性の原因を考察した。

結果および考察

図 1 は PE/PVDF ブレンド中の各溶質分子(PE, PVDF)の incremental chemical potential およびモノマー単位平均相互作用エネルギーの PVDF モル分率依存性を表す。左が溶質 PE の、右が溶質 PVDF の結果であり、横軸の 0 が PE 単成分系, 1 が PVDF 単成分系の結果である。溶質 PE の場合、ブレンド中の PVDF の割合に対して自由エネルギーも相互作用エネルギーも変わらないのに対し、PVDF はブレンド中の PVDF の割合が増えるとともにどちらも負に大きくなり、化学的に安定化していく。これは、PE が非極性ポリマーであるがゆえに周囲に非極性分子がいようが極性分子がいようがエネルギー的な違いをほとんど受けないのに対し、PVDF が極性ポリマーであるがゆえに同じ極性ポリマーである PVDF との結びつきが強くなるという化学的性質の違いに由来すると考えられる。

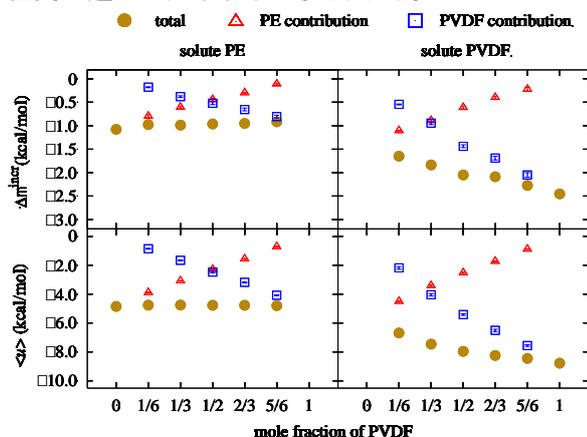


図 1: PE/PVDF ブレンド中の各溶質の incremental chemical potential $\Delta\mu^{\text{incr}}$ およびモノマー単位平均相互作用エネルギー $\langle u \rangle$ のブレンド中 PVDF モル分率依存性。左が溶質 PE、右が溶質 PVDF の結果を表す。赤および青はそれ

ぞれ溶媒 PE 分子と溶媒 PVDF 分子の寄与を表し、黄土色はそれらの和を意味する。

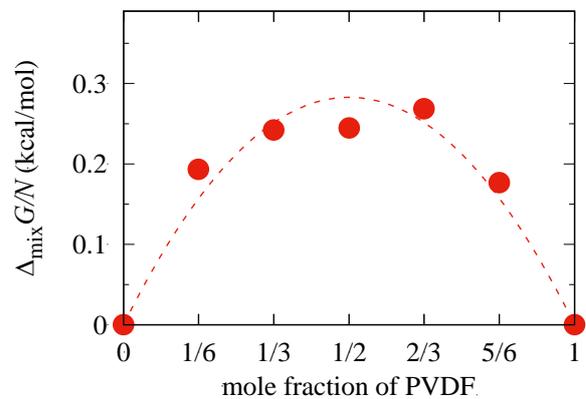


図 2: PE/PVDF ブレンド系における、モノマーあたりの混合ギブス自由エネルギーの PVDF モル分率依存性。

図 2 は図 1 から見積もった PE/PVDF ブレンド系の混合ギブス自由エネルギーの PVDF モル分率依存性である。ブレンド状態にある全ての PVDF モル分率について正となっており、PE/PVDF ブレンドは非相溶であることが分かる。この結果は実験結果と整合している。さらに、図 1 の結果から、このブレンドが非相溶であるのは PE と PVDF が非極性・極性ポリマーであることによる PVDF-PE 間の親和性が弱いことが原因であることが分かった。

まとめ、今後の課題

全原子 MD シミュレーションを用いたポリマー相溶/非相溶性の判定手法である逐次導入法を PE/PVDF ブレンドのような実在するポリマーを対象として実行し、実験結果と整合する結果を得ることができた。これは、逐次導入法がブレンド相溶性評価に有用であることを示唆している。計算効率を向上させるために、計算時間の更なる短縮が今後の課題として挙げられる。本課題では、十分な鎖の長さをとって鎖長 $N=100$ として計算を行なったが、今後は混合ギブス自由エネルギーの鎖長依存性を調べることにより、より短い長さの高分子で相溶/非相溶性の判定が可能かどうかを調べる予定である。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 ヒト血清アルブミン-環状ペプチド複合体の相互作用解析
英文: Interaction analysis of human serum albumin-cyclic peptide complex

利用課題責任者 和久井 直樹
First name Surname Naoki Wakui

所属 独立行政法人国立高等専門学校機構 長岡工業高等専門学校
Affiliation National Institute of Technology (KOSEN), Nagaoka College
URL <http://www.nagaoka-ct.ac.jp/>

邦文抄録(300 字程度)

医薬品として近年注目を集めている環状ペプチドであるが、腎排出によって急速に体外へと排出されてしまう課題を抱えている。この課題を克服するためには輸送体であるヒト血清アルブミンとの結合が重要である。環状ペプチドとアルブミンの複合体構造の相互作用を解析することで、アルブミンとの結合に重要な相互作用を明らかにし、環状ペプチド設計に役立てることが出来る。結晶構造解析によって得られたヒト血清アルブミンとコリスチンの複合体構造に対して分子動力学シミュレーションと相互作用解析を実施した。相互作用解析の結果、コリスチンの直鎖アミノ酸構造とアルブミンの極性アミノ酸の相互作用が形成されていることが明らかとなった。

英文抄録(100 words 程度)

Cyclic peptides have attracted much attention in recent years as pharmaceuticals, but they face the problem of being rapidly eliminated from the body by renal efflux. In order to overcome this problem, binding to the transporter, human serum albumin, is important. Analysis of the interaction between cyclic peptides and albumin in complex structures will reveal the interactions that are important for binding to albumin and will be useful for cyclic peptide design. Molecular dynamics simulations and interaction analysis were performed on the complex structure of human serum albumin and colistin. Interaction analysis revealed that the interaction between the linear amino acid structure of colistin and the polar amino acids of albumin is formed.

Keywords: Cyclic peptides, Human serum albumin, Molecular dynamics

背景と目的

低分子医薬品、抗体医薬品に続く第 3 の医薬品として環状ペプチド医薬品が注目を集めている。しかし、環状ペプチドは腎臓でろ過され、体外へと急速に排出されてしまうという課題がある。この課題を克服するためには血漿中に存在する輸送体であるヒト血清アルブミンとの結合が重要になってくる。ヒト血清アルブミンと環状ペプチドの複合体構造の報告数は限られており、ヒト血清アルブミンへの結合メカニズムを解明するにはより多くの複合体構造に対して相互作用解析を行う必要がある。結晶構造解析によって新たに得られたヒト血清アルブミンと環状ペプチドの複合体構造に対して分子動力学シミュレーションおよび相互作用解析を実施し、ヒト血清アルブミンとの結合に重要となる相互作用を明らかにする。

概要

結晶構造解析によって得られた、ヒト血清アルブミンとコリスチンの複合体構造を初期構造とし、1 μ s の分子動力学シミュレーションを実施した。分子動力学シミュレーションによって得られたトラジェクトリに対して相互作用解析を実施し、ヒト血清アルブミンとコリスチンの間に形成されている重要な相互作用の同定を行った。

結果および考察

相互作用解析の結果、全シミュレーション時間中の 30%以上にわたって相互作用を形成していたアミノ酸は Chain A で LYS212、ALA213、THR236、ASP324、Chain B では LYS281 と LYS286 であった(図 1)。LYS212 はコリスチンの直鎖アミノ酸構造上の主鎖カルボニルとの相互作用を形成していた。ALA213 はコリスチンのアルキル鎖との疎水性相互作用を形成していた。ASP324 は直

鎖アミノ酸構造の末端に位置するカルボニルとの相互作用を形成していた。THR236 は直鎖アミノ酸構造上の側鎖との相互作用を形成していた。Chain B の LYS281 と LYS286 は共にコリスチンの環構造を形成するアミノ酸の側鎖と相互作用を形成していた。先行研究¹のダルババンシンで見られたような環状ペプチドの環構造とアルブミンの相互作用が見られなかった。これはダルババンシンとの結合部位が異なる事や複合体の形成様式が異なることが大きな要因であると考えられる。また、コリスチンにはダルババンシンには見られない直鎖アミノ酸構造があり、直鎖アミノ酸構造との相互作用を確保するためにアルブミンの極性アミノ酸が集中している部位に結合したと考えられる。

参考文献

Ito, Sho, *et al.* "Structural basis for the binding mechanism of human serum albumin complexed with cyclic peptide dalbavancin." *Journal of medicinal chemistry* 63.22 (2020): 14045-14053.

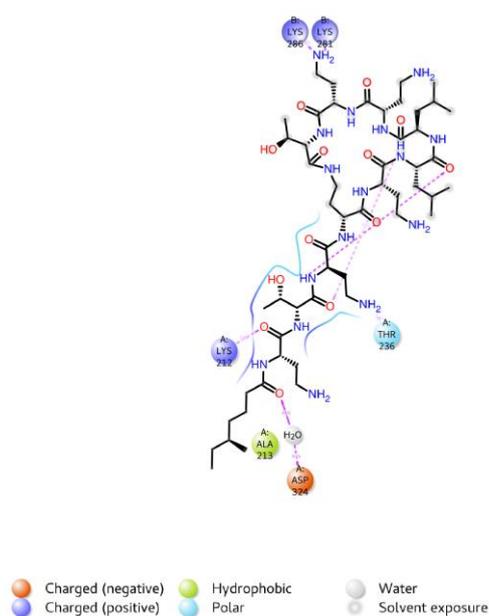


図 1. ヒト血清アルブミンとコリスチンの相互作用様式

まとめ、今後の課題

結晶構造解析の結果得られたヒト血清アルブミンとコリスチンの複合体を初期構造とし、分子動力学シミュレーションと相互作用解析を行った。コリスチンの構造的特徴である直鎖アミノ酸構造とヒト血清アルブミンの相互作用が形成されていることが明らかとなった。ヒト血清アルブミンとコリスチンの複合体構造はヒト血清アルブミンとダルババンシンの複合体構造と大きく異なっていることから、2つの複合体の形成メカニズムについて詳細な解析が必要である。

TSUBAME 共同利用 令和3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

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、フェーズフィールド法 LBM を用いた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、角棒間隔を広げると表層の濡れ広がりが小さくなり、内部の濡れ広がりが小さくなることが分かった。これを無次元数により整理したところ、速度境界層厚さに由来した無次元数により各層の濡れ面積が整理できることが分かった。

英文抄録

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 spreading area depends on the rod gap. Since the spreading on the surface at the top layer decreases as the gap increases, the spreading in inner layer also decreases. This tendency can be normalized at each layer by the dimensionless number.

Keywords: 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除熱が課題となっている。たとえば自動車用のモータでは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ことで冷却されている。この場合、冷却液がまんべんなくコイル内を浸潤して流下することが求められ、そのためにノズルの位置、穴径、流量、穴の数などを規定することが理想である。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とした。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り、前年度と同様の形状である。コイル構造の概念図ならびに解析ドメインを図 1 に示す。今年度は現象の対称性に鑑み、半分の領域を解析したのも実施した。これは格子解像度の検証ならびに解析高精度化のためである。

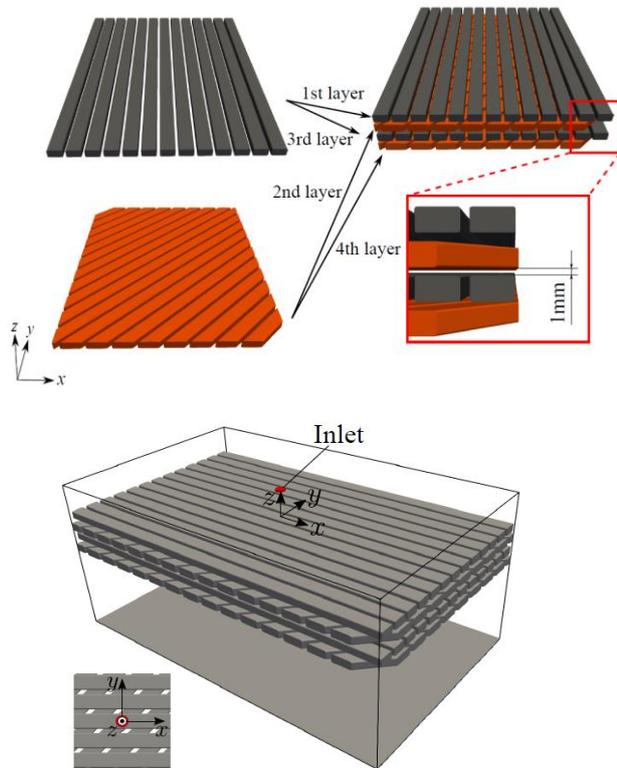


図 1: 積層構造の概念図と解析ドメイン

結果および考察

本年度は角棒間隔ならびに液体粘度 (= 温度変化に相応) を変えた場合の解析を実施し、各層の濡れ面積を評価した。各層の濡れ面積は図 2 に示すように分割して評価した。角棒の間隔が広くなるにつれて上層の表層での濡れ広がり小さくなること、角棒長手方向への濡れが顕在化することが分かる。その隙間から液体が下の層に流下するが、上層の影響を受けるため、こちらの濡れ広がり面積も小さくなること分かった。これは粘度を低く (= 温度を高く) した場

合も同様であった。

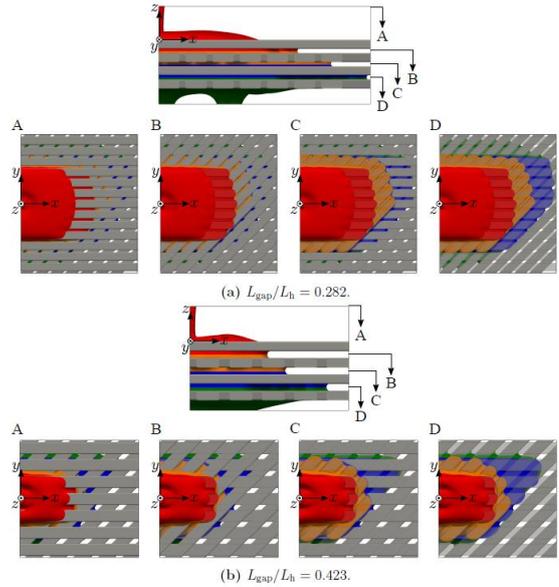


図 2: 角棒間隔が異なる場合の濡れ広がり

これらの因子が濡れ広がり面積に及ぼす効果を議論するために、ノズル径で無次元化した面積を、レイノルズ数の平方根と角棒間隔で整理した。結果を図 3 に示す。いずれの層においても反比例の関係が確認できた。これはレイノルズ数の平方根が速度境界層厚さに反比例する現象と似ており、単層の場合に得られた結果とも相応する。

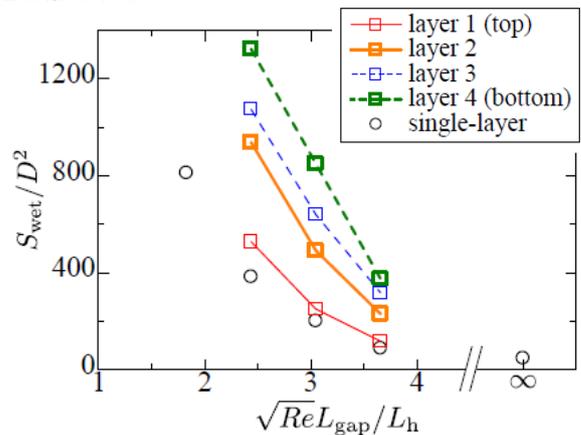


図 3: 各層の無次元濡れ面積

まとめ、今後の課題

積層構造への二相流解析を実施してその濡れ広がり面積を整理することで、透過性壁面への流動と濡れ面積を明らかにした。今後は温度場解析の実装と周辺現象の解明を行う予定である。

TSUBAME 共同利用 令和 3 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 ヘロナミド類の抗真菌作用メカニズムの解明のための計算分子設計技術の開発
 英文: In silico molecular design for understanding antifungal mechanism of heronamides

齋藤大明 / Hiroaki Saito

北陸大学 / Hokuriku University

ヘロナミド類の抗真菌作用メカニズムの解明のために、ヘロナミドを脂質膜に挿入した分子動力学シミュレーションを行い、ヘロナミドの膜内での動的構造や相互作用特性の詳細な解析を行う。さらに、化合物の膜への会合・透過・離脱の起こりやすさを定量的に評価するための自由エネルギー計算技術を確立する。

In this study, we have carried out molecular dynamics (MD) simulations of heronamides in the lipid bilayer to understand the structure and dynamics of compounds in the membrane.

Keywords: heronamide, lipid bilayer, molecular dynamics simulation, free energy profile

背景と目的

近年、化合物やペプチドを含む生体分子の膜会合の分子メカニズムの理解には、化合物やペプチドだけではなく、それを取り囲む脂質膜も含めた動的構造や相互作用特性の理解が重要であるとの研究が多数報告され、多くの注目を集めている。抗真菌活性を有するヘロナミド類は飽和型の脂質膜にはタイトに結合する一方で、不飽和型脂質膜には弱く結合することが報告されている。このようなヘロナミドの脂質膜への結合特性の違いは、ヘロナミドと脂質膜内における結合構造や相互作用特性の違いによるものと考えられる。このような分子会合の膜特異性の理解には会合分子と脂質膜の動的構造や相互作用特性の評価が課題となるが、添加分子を含んだ混合脂質膜は実験観測の難しさのために、これら特性は未だ明らかではなく、分子シミュレーションによる解析が望まれている。

本研究は、化合物やペプチドの膜への特異的会合の機構解明を目的として 1. 脂質の疎水鎖の長さや不飽和度を変更した脂質膜に標的化合物を挿入した MD 計算を行い、膜内での添加分子の動的構造や相互作用特性の詳細な解析を行う。2. 高速・高精度の自由エネルギー計算法を開発し、化合物の膜への会合・透過・離脱の起こりやすさを定量的に評価する計算技術を確立する。

概要

本申請研究では分子シミュレーション技術(分子動力

学シミュレーション・自由エネルギー計算)を用いてヘロナミド類の抗真菌作用メカニズムを解明を目的に、以下の3つの研究課題を行う。1. 「化合物(ヘロナミド類)を含んだ脂質膜の構造・相互作用解析」2. 「化合物(ヘロナミド類)の膜会合の自由エネルギー計算手法の開発」3. 「脂質・化合物の分子構成変化に対する分子会合特性変化の検証」。これにより実在系の化合物・ペプチドの脂質膜への膜会合過程(吸着・透過・離脱)における「動的構造」や「自由エネルギー変化」の詳細が明らかになる。

結果および考察

図1に本研究で取り扱うヘロナミドの分子構造を示す。これらヘロナミドを DMPC を 128 個、水分子を 8192 で構成する脂質二重層膜に1分子だけ存在する系と、20 %濃度で存在する系を作成し、各々の系での膜内構造と、膜への結合特性評価を MD シミュレーションによって評価した。

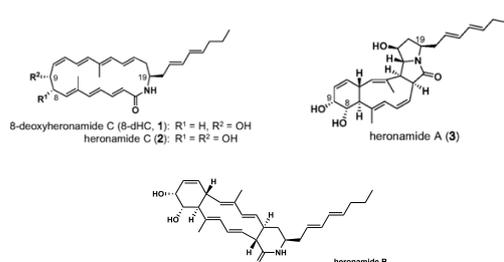


図 1. 8-deoxyheronamide C, heronamide C, heronamide A, heronamide B の分子構造

MD シミュレーションは全て定温・定圧条件下($T=303\text{K}$, $P=1\text{atm}$)で実行した。脂質のカ場には CHARMM36 を用い、水モデルは TIP3 を用いた。ヘロナミドの DMPC 膜への結合特性の評価には、アンブレラサンプリングによる膜厚方向に対する PMF 計算によって評価した。反応座標は z 軸(膜厚方向)とし、ヘロナミド分子の水酸基を膜内中心方向に移動させた場合と、膜外方向に移動させた場合の PFM を DMPC の膜からの離脱エネルギー曲線と定義して計算を行った。

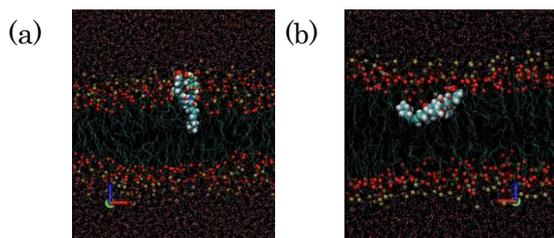


図 2. (a) heronamide C と(b) heronamide A の膜内分子配向

図 2 に DMPC 膜に (a) heronamide C と (b) heronamide A を 1 分子挿入した系における構造のスナップショットを示す。heronamide C は 2 つの水酸基を膜の極性基領域に向けて配向する結果が示されたが、heronamide A の場合は、膜圧方向に対して大きくチルトして配向する様子が示され、膜内における配向特性の違いが示された。図 3 に各々のヘロナミド分子の膜圧方向に対する PMF 計算の結果を示す。自由エネルギー値の比較の結果、膜からの離脱のエネルギー障壁では heronamide A < heronamide C となり、heronamide A の弱い膜結合特性が PMF 計算より示された。これらは生物活性の評価実験と対応する結果であり、シミュレーションや PMF 計算の正当性を示す結果である。さらに本研究では、ヘロナミド C の構造異性体、コレステロールやエゴステロールを 20% 濃度における MD 計算も実施した。各々の系における膜内の構造や安定性に関する解析をし、それぞれヘロナミドの分子構造の違いに起因する、膜内構造や安定性の違いが解析計算により明らかとなっている。

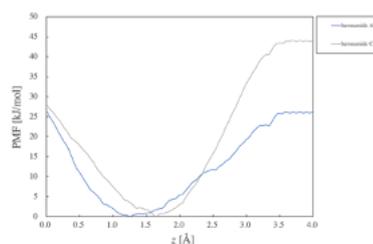


図 3. heronamide A と C の膜厚方向に対する PMF 曲線

まとめ、今後の課題

今後はヘロナミド 20% 濃度における膜内凝集のメカニズムと抗真菌機能の解明に関するシミュレーションの実施と解析を行う。

TSUBAME 共同利用 令和 3 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 Algorithm

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/>

DiamondTorre LRnLA アルゴリズムは、クロスステンシル数値計算スキームのためのデータの局所化に優れた temporal blocking アルゴリズムである。ただ計算強度は高いが、菱形のデータの鳥圧 t 回はデータの coalesce および aligned データアクセスは難がある。一方 FArSh データ構造は、波面型時間ブロッキング手続きのデータ転送のために以前導入した実績がある。そこで FArSh のインデックス付けに単純な方法を、主データストレージ、1 つの菱形形状のデータ内、および DiamondTorre 間のデータ交換においても、同様にその手順のルートを決めるために最適な方法を導くことにより、この方法をさらに発展させていく予定である。

The DiamondTorre LRnLA algorithm is a temporal blocking algorithm with good data localization for cross-stencil numerical schemes. The Arithmetic intensity is high, however, the traversal of a diamond shape is not convenient for coalesced and aligned data access. FArSh data structure has been introduced previously to transfer data for wavefront-type temporal blocking procedures. Here we develop the method further by describing a simple way for FArSh indexing, as well as for space-filling curve in the main data storage, in one diamond, and in the exchange between DiamondTorre.

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が、それを使ったシミュレーションコードは、性能効率が上がらないことが多い。そこで、一般的な入れ子になったループではなく、wavefront 型のアルゴリズムを用いると、データの再利用による効率化が図れる。また Wavefront 型アルゴリズムを用いると計算ウィンドウを作ることも可能である [1]。

LRnLA (Locally Recursive non-Locally Asynchronous) アルゴリズム [2,3] の中には、wavefront に似たアルゴリズムもある。Torre という LRnLA アルゴリズムは、1D1T の wavefront 型のアルゴリズム [1] と類似している。このアルゴリズムは、GPU-CPU データ交換の性能効率が、効率が高い並列計算ができる temporal blocking 法 [4] の一つである。DiamondTorre LRnLA アルゴリズム [3] 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を提供する。十字型のステンシルは特に FDTD のような波動現象の数値計算スキームで頻繁に使用した効率の高い計算例もある [3]。DiamondTorre を使う上で難しいのは、データアクセスの局所性、ベクトル化のためのデータ・アライメントおよび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。

これまでの研究でキューブステンシルに合わせる FArSh というデータレイアウトがあることを紹介した。十字型ステンシルの数値計算スキームの局在化では、2 次元シミュレーションでは菱形のタイリングが [5]、3 次元シミュレーションでは正八面体元にしたタイリングが最適である。ただ、この種の形状に沿ってデータアクセスを行うことは、かなり複雑でありアクセスの coalescing が不十分である。

我々のプロジェクトの目的は、データレイアウトに主眼を置き、(1) 主データストレージ、(2) DiamondTorre の中のデータレイアウト、(3) DiamondTorre の間のデータ交換のためのデータ構造を開発し、配列のインデックスの計算のオーバーヘッドを減少させることである。

概要

先ず 2D 計算の 1 セルの幅の十字型のステンシルを例として DiamondTorre を構築から始める。

2D1T · DiamondTorre というアルゴリズムは、菱形を底面とする $x-y-t$ 柱体で表す、2D1T temporal blocking を実現する。3Dシミュレーションの場合には、3 番目の z 軸では通常のループを用いる。

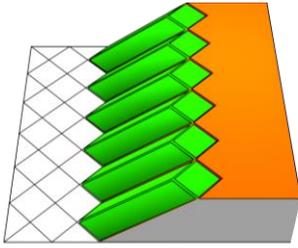


図 1. 2D1Tで二次元の DiamondTorre シミュレーションをあらわす。wavefront と同様に領域全体を覆う。緑色で示された DiamondTorre では並列計算を行うことができる。

DiamondTorre のコードの要点は、 t ループである。ループの繰り返しを行っている間に菱形形状の中のセルのアップデートを実施する。ループの繰り返いで、それぞれの菱形形状は1セルに x 軸の右にずれていく。シミュレーション領域の右から始めると、DiamondTorre は wavefront と同様に領域全体を覆うことができる(図 1)。

(1) 主データストレージ

データの初期化および出力は、同期の瞬間に可能である(図 2(1))。DiamondTorre の菱形の底面はこのデータからロードする。なので、主データストレージは菱形のタイルで構成される。 d 次元の一般的な場合、多次元配列を使用して、配列 $\mathbf{j} = (j_1, j_2, \dots, j_d)$ での要素のセルの座標は $\mathbf{r} = j_1\mathbf{e}_1 + j_2\mathbf{e}_2 + \dots + j_d\mathbf{e}_d$ である。ここで、

$$\begin{aligned} \mathbf{e}_1 &= (3-d, -1, -1, \dots, -1) \\ \mathbf{e}_2 &= (1, 1, 0, \dots, 0) \\ \mathbf{e}_3 &= (1, 0, 1, \dots, 0) \\ &\vdots \\ \mathbf{e}_d &= (1, 0, 0, \dots, 1) \end{aligned}$$

である。

d 次元の配列はZ階数(モートン符号)により格納する。階数 R の配列は 2^{Rd} の要素をもつ。この配列をそれぞれの軸には細分化すると、 2^d の配列を取得する、その配列は $2^{(R-1)d}$ の要素をもつ。細分化を進めると、最後には1セルになる。つまり、再帰的なデータ構造となっている(図 3)。

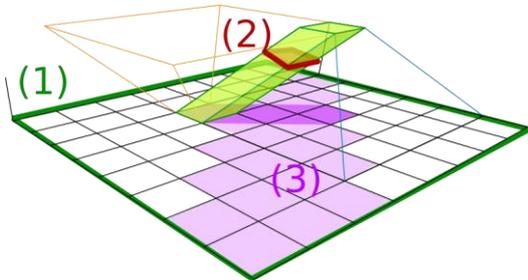


図 2. DiamondTorre のために開発されたデータ構造。

DiamondTorre の菱形の底面はその配列の中の 2^{rd} の部分位置と一致する。セルのデータはAoS (array of structure) 方式で整理される。

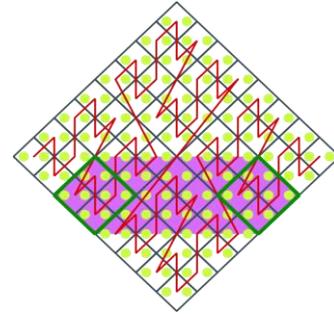


図 3. 主データストレージは再帰的なデータ構造をしている。ピンクは1つの DiamondTorre で更新されるデータである。

(2) DiamondTorre 中のデータレイアウト

DiamondTorre 中のデータは GPU レジスタにロードされて、そのデータに計算を行うので、菱形の中のデータ交換ができるだけ早い方が良い。(図 2(2))。

$M \times M$ 形状の菱形の場合、1つの CUDA スレッドに M セルの計算を行うことができる(図 2)。それを $\mathbf{c} = (1, 1, \dots, 1)$ とする。番号が $\mathbf{j} = (j_1, j_2, \dots, j_d)$ のセルから始まって、 $\mathbf{j} + i\mathbf{c}, i \in \mathbb{Z}$ というルートを考えたと、このルート上のセルは、 $\mathbf{j}_B = \mathbf{j} - i_m\mathbf{c}$ のセルから $\mathbf{j}_F = \mathbf{j} + (M - i_m - 1)\mathbf{c}$ のセルまで $M \times M$ の菱形の中にある。ここで、 $i_m = \min s(i_s), i_M = \max s(i_s), s = 1..d$ である。 $\{\mathbf{j}_F\}$ の集合または $\{\mathbf{j}_B\}$ の集合は菱形のグノモンとなっている(形状によって決まる数、つまり図形数:gnomon)。

DiamondTorre という t ループの繰り返しには、菱形は一セルに x 軸の右にずれる。そこで、 $\{\mathbf{j}_B\}$ のセルの出力と、 $\{\mathbf{j}_F\}$ のセルの入力を行う。その他のセルは菱形形状内で移動させる。

そのためデータの局所とアライメントのため、 $(d-1)$ 次元のZ階数配列を使用する。その配列の要素は、 $\mathbf{j} + i\mathbf{c}$ に対応するルートである。

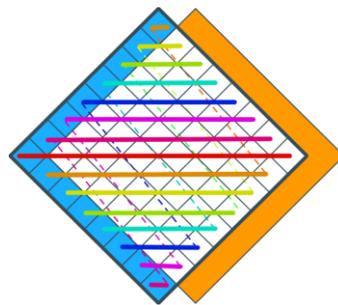


図 4. 図 2(2)菱形内のデータ構造。青は $\{\mathbf{j}_B\}$ 、オレンジは次の繰返しでロードして青のメモリ位置に書き換える。

(3) DiamondTorre 間のデータ交換

には、以前開発した FArSh というデータ構造を使用する(図 2,(3))。DiamondTorre には、GPU で保存されている配列から菱形の底面のデータと、FArSh からスロープのデータを読み込む。

実行後、上側の底面のデータを主データストレージに、上のスロープのデータを FArSh にセーブし、以前保存したデータを書き換える。これにより計算ウィンドウも可能になって、wavefront 上のデータ

だけ保存している。

まとめと今後の課題

TSUBAME でも実行したことがあるアルゴリズムである DiamondTorre [3]に最適なデータ構造を開発し、コードを実装した。

我々のプロジェクトにおいて開発したデータ構造を使用すると、菱形の底面をコードに実装すると非常に使いやすいものとなる。また、上述のコードで [3] に実装した2D1Tアルゴリズムだけではなく、 d 次元の菱形の底面でも使えるようになった。十字型のステンシルを持つ数値スキームでは、 d 次元の DiamondTorre を実装できるようになった。 d 次元の菱形のデータアクセス法を使用し、以前のコード [3]と比べ、更に高いパフォーマンスが得られるものと期待している。この結果は、他の数値計算法へも適用できるものと確信している。

参考文献

[1] Wolfe, Michael. "Loops skewing: The wavefront method revisited." *International Journal of Parallel Programming* **15.4** (1986): 279-293.

[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. IOP Publishing, 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.

[5] Terrano, Anthony E. "Optimal tilings for iterative pde solvers." *Proceedings 2nd Symposium on the Frontiers of Massively Parallel Computation*. IEEE Computer Society, 1988.

TSUBAME 共同利用 令和 3 年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 GPU クラスタを用いたミリ波帯・テラヘルツ帯大規模広帯域電波伝搬シミュレーション
 英文: Large-Scale Propagation Simulations of Ultra-Wideband Electromagnetic Fields in Millimeters and Terahertz
 Wave Frequencies Using GPU Cluster

チャカロタイ ジェドヴィスノブ
 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

ミリ波帯・テラヘルツ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、見通し伝搬の形態で利用されることが多い。しかし、ひとたび電波伝搬経路のフレネルゾーン内に吸収体・散乱体・反射体などの障害物が存在すると、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。特に屋内伝搬環境は、壁、天井、机、棚や椅子等の様々な障害物が存在し、伝搬状況を正しく予測することは困難である。そこで、本研究では、オフィス等の室内環境においてミリ波帯(特に 28 GHz 帯)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技術を開発した。実際に、大きさ $3 \times 4.8 \times 2.6 \text{ m}^3$ 規模の解析モデル(約 384 億セルで約 2 TB の総使用メモリ)に対して、大規模 GPU クラスタにより並列計算を行った結果、32 ノード(128 GPU)による計算時間は 1000 ステップ当たり、約 32 分で実用的な計算時間で終わることができた。通常の計算機では、解析が不可能であるモデルであるが、TSUBAME3.0 を用いて 28 GHz 帯屋内電波伝搬環境の解析が可能であることを示した。

Electromagnetic wave in millimeter-wave and terahertz bands is normally used in the line-of-sight communication systems due to its directivity since the size of the wall, building, objects, etc., is much larger than the wavelength of the EM field. When there is an obstruction such as absorbers, scatterers or reflectors inside the Fresnel zone of EM propagation path, the receiving power at the receiver fluctuates and changes abruptly. Therefore, it is difficult to predict the receiving power in such cases, especially, an indoor propagation environment, since it includes many scatterers such as chair, table, shelf, ceiling, wall, and so on. In this report, we have developed large-scale EM simulation technique for prediction of receiving power at 28 GHz in an indoor environment (office environment). As a first step, we have performed simulation of mock room having a size of $4.8 \times 3 \times 2.8 \text{ m}^3$ (40.3 billion cells with 2 TB memory usage) by using 32 node (128 GPUs) of TSUBAME3.0 GPU supercomputer. It takes approximately 32 minutes to calculate 1000 time steps using TSUBAME3.0. Therefore, it has been shown that large-scale simulation of 28 GHz EM propagation inside an indoor environment is possible using TSUBAME3.0.

Keywords: 5つ程度

背景と目的

5G 無線通信や Beyond 5G の次世代無線通信技術は主にミリ波帯電波が利用される。しかしながら、ミリ波帯電波の伝搬経路のフレネルゾーン内に吸収体・散乱体・反射体などの障害物が存在すると、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。また、波長が短いため、物体の表面形状等による散乱が生じ、従来のレイトレーシング法や光学近似法による高精度な解析が困難である。特にオフィス等の屋内電波環境においては、様々な障害物によって電波が散乱され、複雑な電波環境を形成するため、受信電力を正確に予測することが難しい。そこで、本研究では、様々な伝搬

環境(特に室内環境)におけるミリ波帯電波の受信電力を高精度に予測するために、超大規模電磁界シミュレーション技術を開発する。

概要

本研究では、オフィス等の室内環境においてミリ波帯(特に 5G 無線通信に使われる 28 GHz 帯)電波の受信電力を高精度に予測するために、TSUBAME3.0 GPU クラスタを用いた大規模並列化電磁界シミュレーション技術を開発した。解析に用いた計算手法は、電磁界解析でよく使われている時間領域有限差分(Finite-difference time-domain, FDTD)法である[1]。

本研究に用いたプログラムは文献[2]-[7]にも用いられた人体ばく露評価のためのプログラムを改良・拡張したものである。主な改良及び拡張した点は、以下の 3 点である。

(1) 電気定数をセルごとに設定するのではなく、セルの各辺に細かく設定することができるように変更した。より細かく、かつ忠実にモデル構築が可能となった。

(2) 従来では、モデリングを行うプログラムと解析プログラムを分離し、モデル全体を一旦ハードディスクに保存してから、解析の際に読み込む手順を踏んでいたが、大規模モデルの場合、ハードディスク容量が多く要したため、モデルデータをハードディスクに保存することなく、解析プログラムの中に直接組み込んだ。

(3) 様々なアンテナ(特に指向性アンテナ)を精度よく解析領域に組み込むために、アンテナ開口面の電磁界分布を波源とした解析手法に拡張した。

本研究の解析対象としては、主にオフィス等の屋内電波環境であるが、実測結果と比較検討を行うために、まず、模擬部屋内の電波環境を可視化することを目的とした。実際に、大きさ $3 \times 4 \times 2.6 \text{ m}^3$ 規模の解析モデル(約 384 億セル、約 2 TB の総使用メモリ)に対して、大規模 GPU クラスタにより高速化を行った結果、32 ノード(128 GPU_s)による計算時間は 1000 ステップ当たり、約 32 分で終わることができ、実用的な時間で解析が可能であることを確認した。

結果および考察

まず、図 1 に示すように、実際に測定に用いた模擬部屋の大きさ $4 \times 3 \times 2.4 \text{ m}^3$ の約 3/5 の体積を有する $3 \times 2.4 \times 2.3 \text{ m}^3$ の模擬部屋内に、波源としての長さ 5 mm のダイポールアンテナを配置して解析を行った。模擬部屋は、 $\epsilon_r = 2.4$, $\sigma = 0.001 \text{ S/m}$ の施工ボード、金属製のランナーとスタッドから構成されており、各部の詳細な寸法は図 1 に示す。床面は、 $\epsilon_r = 13$, $\sigma = 0.01 \text{ S/m}$ の厚さ 10 cm のコンクリートである。解析モデルの解像度は、1 mm で、8 層の完全整合層 (Perfectly matched layers) を含めた解析領域は、 $3,024 \times 2,424 \times 2,424$ セルで、総セル数は、約 164 億セルである。ダイポールアンテナの中心座標は、 $(x, y, z) = (2.0 \text{ m}, 1.1 \text{ m}, 1.3 \text{ m})$ である。励振周波数は、28 GHz とした。計算ステ

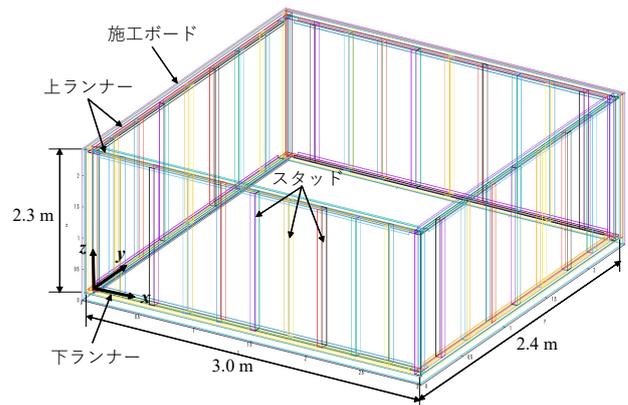
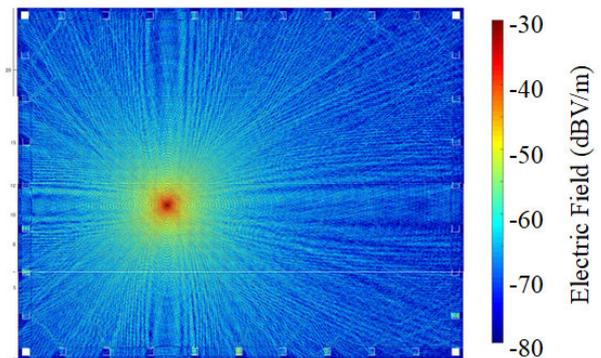
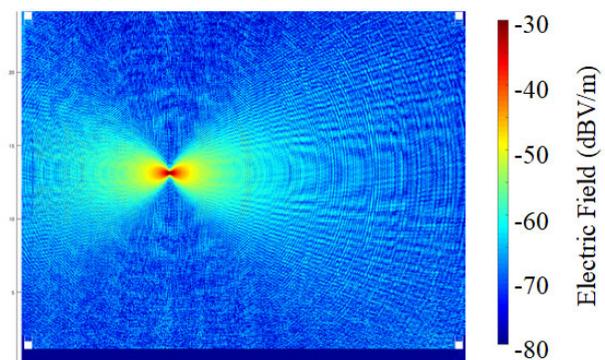


図 1 模擬部屋 (大きさ $3 \times 2.4 \times 2.3 \text{ m}^3$)



(a) xy 面

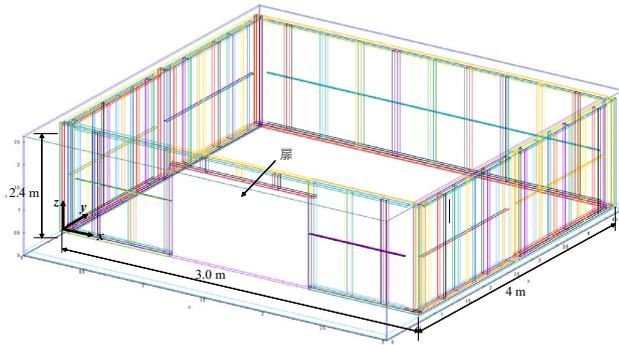


(b) xz 面

図 2 模擬部屋内の電界分布

ップ数及び計算時間ステップ間隔は、それぞれ 30,000 ステップ及び 1.907 ps である。並列計算に使用したノード数は 16 ノード(64 GPU_s)で、使用メモリは約 757 GB である。30,000 ステップにかかる計算時間は、約 10 時間 27 分で、1 ステップ当たりの計算時間は、1.255 秒であった。

模擬部屋内の 28 GHz における電界分布を図 2 に示す。図からわかるように、電界強度は自由空間に配置されたダイポールアンテナと同じように、アンテナ中心で強く、距離が大きくなるにつれて小さくなる傾向がみ

図3 模擬部屋 (大きさ $3 \times 4 \times 2.4 \text{ m}^3$)

てとれる。しかしながら、施工ボートやスタッド等から多重散乱波によって、単純に距離に依存して減衰するのではなく、定在波のような強弱が生じることがわかる。また、ダイポールアンテナの周囲方向にも同様に電界強度の強弱が生じていることが分かる。

次に、図3に示すように、実際の模擬部屋と同じ大きさ ($4 \times 3 \times 2.4 \text{ m}^3$) の解析モデルを作成した。模擬部屋には、大きさ $10 \times 25 \times 10 \text{ mm}^3$ の振止めが各スタッド中心を通しており、実際の模擬部屋を完全に再現した。一部施工ボードが切り取られた出入り口を設けた。扉の材質は、木材とし、比誘電率と導電率は、それぞれ 2.0 及び 0.001 S/m とした。解析領域は、 $3,024 \times 4,824 \times 2,624$ セルで、総セル数は、約 384 億セルである。並列計算に使用したノード数は 32 ノード (128 GPU) で、使用メモリは約 1.62 TB である。8,000 ステップにかかる計算時間は、約 3 時間 9 分で、1 ステップ当たりの計算時間は、1.422 秒であった。図1の解析モデルに比べて、約 13% 増加した。これはノード間通信が増加したことによるものであるが、実際の模擬部屋を実時間で解析することが可能であることを確認した。

図4に座標 $(x, y, z) = (2.0 \text{ m}, 2.3 \text{ m}, 1.4 \text{ m})$ に配置されたダイポールアンテナによる電界分布を示す。図4に示すように、28 GHz における電波はほとんど施工ボードを透過し、スタッドによって電界レベルが低い領域(影)ができていることを確認した。また、スタッドからの散乱波と入射波が作る定在波が確認できる。図2と図4を比較すると、領域が狭く、かつ開放部(扉)がないモデルではより複雑な電界分布を示していることが分かる。

これまででは、波源としてダイポールアンテナを用いたが、実際の 28 GHz 帯電波を放射するアンテナとしてホーンアンテナ等のより指向性が鋭いアンテナが使われ

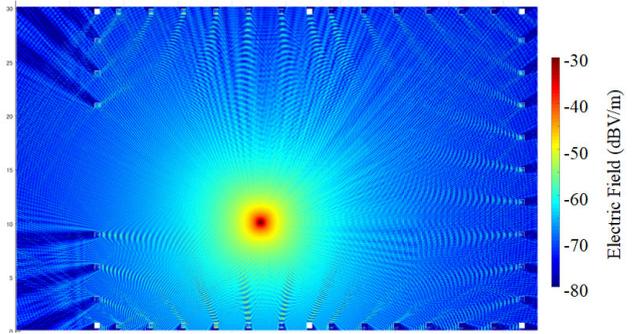


図4 模擬部屋内の電界分布

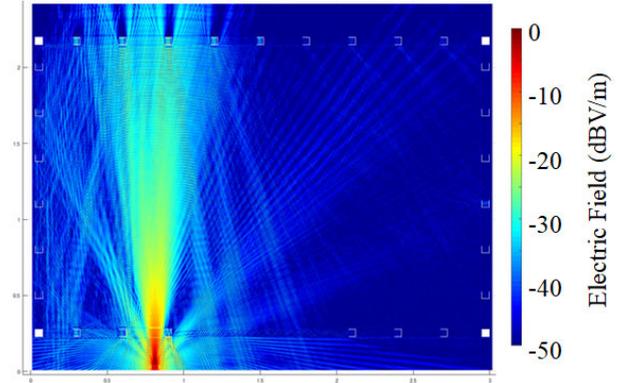


図5 ホーンアンテナを波源とした電界分布 (垂直入射)

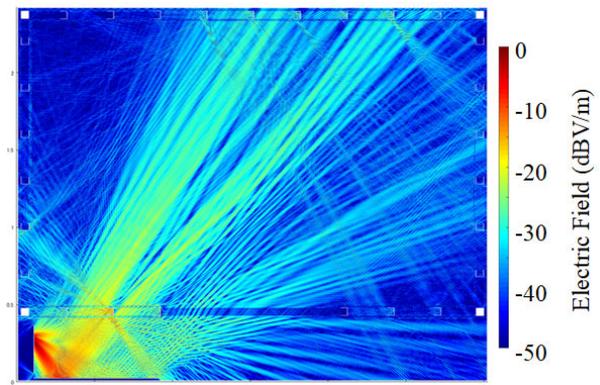


図6 ホーンアンテナを波源とした電界分布 (斜め入射)

る。そこで、本研究では、アンテナの開口面分布の電界及び磁界を波源として入力できるようにした。解析モデルは、 $3 \times 2.4 \times 2.6 \text{ m}^3$ とした。ホーンアンテナの開口面分布をモーメント法により求めておき、それらを波源とした。ホーンアンテナを用いた場合、開口面分布は磁流のみで表現できるが、任意波源の場合は電流及び磁流の両方をモデリングする必要がある。図5及び図6は模擬部屋の外に波源(Kバンドの標準ホーンアンテナ)を設置したときの電界分布を示す。図5では、模擬部屋の壁面を平行にアンテナを配置し場合の解析結果

である。スタッドの間を透過することが分かる。またホーンアンテナから細く、鋭いビームが形成されていることを確認できた。一方で、図 6 では、ホーンアンテナを反射板(完全導体)に向けて斜めに配置した場合の解析結果を示す。斜めに入射された電波は、スタッドによって進路が遮られているため、後ろに影ができており、複数の細かいビームが形成されていることが見て取れる。また、模擬部屋内の電波の反射や散乱の様子がよくわかる。実際に 20,000 ステップにかかる計算時間は、約 7 時間 53 分で、1 秒当たりの計算時間は、1.412 秒であった。従って、開口面分布を波源とした場合、ダイポールアンテナを波源とした場合と比較して同程度の計算時間で解析が可能であることを確認した。一方、使用メモリは、884 GB であった。このように、通常の計算ワークステーションでは、解析が不可能なものに対して、TSUBAME3.0 の大規模 GPU クラスタを用いることにより、実用的な計算時間で大規模電磁界解析が可能であることを示した。

まとめ、今後の課題

本研究では、28 GHz における室内電波伝搬環境を高精度に解析できる時間領域有限差分法を開発した。本手法では、これまでのプログラムに対して、(1) セルの各辺に対して媒質定数を設定できるようにした。(2) モデル作成のために一時的にハードディスクに解析モデルを保存する作業を削減した。そして(3) アンテナの開口電磁界分布を波源とした解析が可能となった。例として、ダイポールアンテナ及びホーンアンテナを波源とした場合の $3 \times 4.8 \times 2.6 \text{ m}^3$ 及び $3 \times 2.4 \times 2.6 \text{ m}^3$ 規模の模擬部屋内の 28 GHz における大規模電波伝搬の様子をシミュレーションによって可視化することができた。

今後は、解析結果と測定結果との比較を行い、解析手法の妥当性を確認し、さらに、より現実に近いオフィス環境内の電波伝搬を解析し、様々な反射体・散乱体(電波散乱壁やリフレクタレー等)を組み込んだ大規模電波伝搬解析へ拡張する予定である。

参考文献

[1] K. S. Yee, “Numerical solution of initial boundary

value problems involving Maxwell’s equations in isotropic media,” *IEEE Trans. Antennas Propag.*, vol. AP-14, no. 3, pp. 302–307, May 1966.

[2] J. Chakarothai, K. Wake, S. Watanabe, “Scalable GPU-parallelized FDTD method for analysis of large-scale electromagnetic dosimetry problems,” *Applied Computational Electromagnetics (ACES) Journal*, vol. 31, no. 6, pp. 661–668, June 2016.

[3] J. 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.

[4] J. Chakarothai, S. Watanabe, K. Wake, “Numerical dosimetry of electromagnetic pulse exposures using FDTD method,” *IEEE Trans. Antennas Propagat.*, vol. 66, no. 10, pp. 5397–5408, Oct. 2018.

[5] チャカロタイジェドヴィスノプ, 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.

[6] J. Chakarothai, K. Fujii, “A unified approach for treatment of frequency-dependent materials in FDTD method,” ISAP 2019, Xi’an, China, Oct. 30, 2019.

[7] J. Chakarothai, K. Wake, S. Watanabe, “Convergence of a single-frequency FDTD solution in numerical dosimetry,” *IEEE Trans. Microw. Theory Techn.*, vol. 64, no. 3, pp. 707–714, March 2016.

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

フェーズフィールド法に立脚した多結晶組織形成の大規模シミュレーション
Large-scale phase-field simulation on the formation of polycrystalline microstructures

三好 英輔
Eisuke Miyoshi

東京農工大学大学院工学研究院
Institute of Engineering, Tokyo University of Agriculture and Technology
<https://web.tuat.ac.jp/~miyoshi/>

少数の結晶粒が優先成長する異常粒成長現象の適切な予測は、高性能材料の開発において極めて重要な役割を担う。本研究では、フェーズフィールド法と複数 GPU 並列計算に基づき、異常粒成長の超大規模シミュレーション手法を開発した。さらに、数十万の結晶粒を用いた世界最大の 2D および 3D シミュレーションを行うことで、異常粒成長の代表的理論である平均場理論の妥当性の解明を試みた。特定の結晶粒と周囲粒との初期サイズ比、粒界エネルギー比、移動度比を変化させた系統的な大規模シミュレーションを実施し、シミュレーション結果と平均場理論による解析解とを詳細に比較した結果、特定粒の異常成長挙動(異常成長の発生の有無、異常成長した際に到達する限界サイズ)が理論と良好に一致することが初めて定量的に明らかとなった。

This study developed a large-scale simulation method for abnormal grain growth phenomena based on the phase-field modelling and parallel computing on multiple GPUs. The developed method was applied to 2D and 3D abnormal grain growth to elucidate the validity of the well-known mean-field theory proposed by Humphreys. A series of large-scale simulations were performed while varying the initial size ratio, boundary energy ratio, and mobility ratio of a specific grain and matrix grains. Detailed comparisons of the simulated results and theoretical predictions demonstrated that the abnormal grain growth behaviors (i.e., whether or not the abnormal growth occurs and the limiting size that can be reached by an abnormally growing grain) is well described by the mean-field theory.

Keywords: Polycrystals; Microstructure; Grain boundary properties; Phase-field method; GPGPU

背景と目的

多結晶固体の焼鈍過程で少数の結晶粒が優先成長する異常粒成長は、集合組織や単結晶の創生において必須の役割を担うことに加え、再結晶核生成などの冶金学現象の発生機構としても知られ、工学的に極めて重要な現象である。異常粒成長を解析的に予測する有力なモデルとして、Humphreys [Acta. Mater. 45 (1997) 4231] の平均場理論が多用されている。平均場理論では、特定の結晶粒の異常成長挙動を、その結晶粒と周囲のマトリクス粒とのサイズ比、粒界エネルギー比、移動度比という 3 つのパラメータのみの関数として記述することができる。しかしながら、この理論の妥当性の詳細な検証は未だされていない。これは、理想的なモデル系に対する実験の困難さと、従来の数値研究における計算スケールおよび計算精度の限界に強く起因するものである。

本研究では、フェーズフィールド法と複数 GPU 並列計算に基づき、異常粒成長の超大規模シミュレーション

手法を開発し、数十万の結晶粒を用いた世界最大の 2D および 3D シミュレーションを行うことで、平均場理論の妥当性を初めて明らかとすることを目的とした。

概要

特定の結晶粒とマトリクス粒の初期サイズ比、粒界エネルギー比、移動度比を変化させて系統的な大規模 2D・3D 粒成長シミュレーションを実施し、結果と平均場理論による解析解とを詳細に比較した。使用した計算条件や平均場理論の詳細を以下に示す。

計算条件

数値モデルとして、多結晶系の粒界移動を精度良く表現可能な Steinbach ら [Physica D 134 (1999) 385] のマルチフェーズフィールド (MPF) モデルを用いた。計算領域サイズは、2D で $12,288^2 \Delta x^2$ ($\Delta x = 1$: 差分格子間隔)、3D で $1280^3 \Delta x^3$ とし、時間増分 Δt は、陽解法の安定条件を満たす範囲でなるべく大きく設定

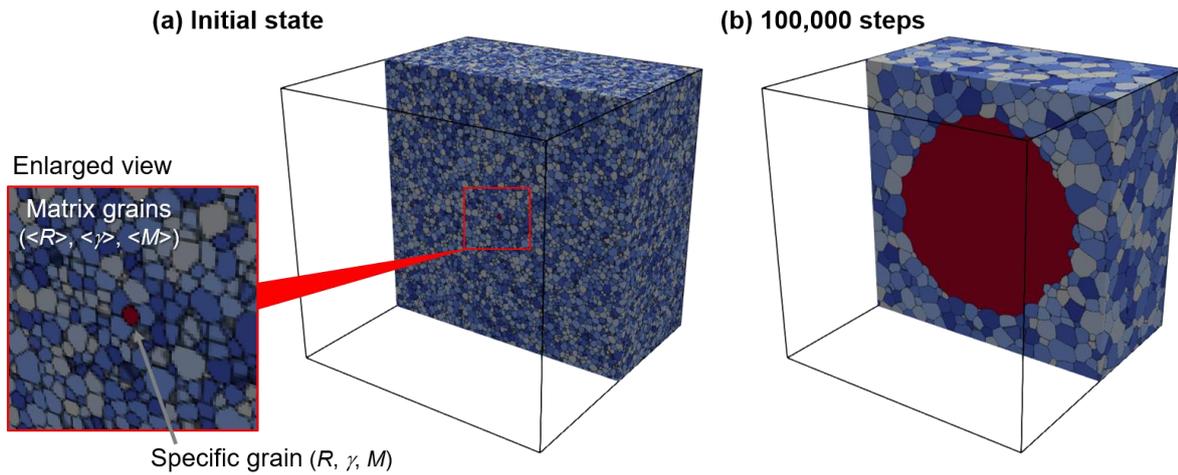


Fig. 1 3D polycrystalline system for simulating the abnormal growth of a specific grain: (a) initial state, (b) 100,000 steps. Different grains are distinguished by different colors. The matrix grains are visualized only for a half of the entire domain to make the specific grain visible.

した。Figure 1 (a)に例示するように、粒径 R 、粒界エネルギー γ 、モビリティ M の球形の結晶粒(特定粒, specific grain)を領域中央に配置し、その周囲を平均粒径 $\langle R \rangle$ 、粒界エネルギー $\langle \gamma \rangle$ 、モビリティ $\langle M \rangle$ の約 30 万の結晶粒群(マトリクス)で充填した。2D 計算には 16GPU, 3D 計算には 64GPU を使用した。

以上の条件の下、特定粒とマトリクスとの初期粒径比 $\rho_{ini} = R_{ini} / \langle R \rangle_{ini}$ 、粒界エネルギー比 $\Gamma = \gamma / \langle \gamma \rangle$ 、モビリティ比 $\mu = M / \langle M \rangle$ を変化させて計算を行い、特定粒の異常成長挙動を下記の平均場理論と比較した。

平均場理論

Humphreys は、Hillert の平均場解析に立脚し、マトリクス中の特定粒の異常成長挙動を、粒径比 $\rho = R / \langle R \rangle$ 、粒界エネルギー比 $\Gamma = \gamma / \langle \gamma \rangle$ 、モビリティ比 $\mu = M / \langle M \rangle$ の関数として記述する解析的モデルを提示した。この理論によれば、特定粒の異常成長が生じる最小粒径比 ρ_{min} 、異常成長した粒が到達する最大粒径比 ρ_{max} は次のように表される。

$$\rho_{min} = 2\mu - 2\sqrt{\mu(\mu - \Gamma)},$$

$$\rho_{max} = 2\mu + 2\sqrt{\mu(\mu - \Gamma)}.$$

この関係を図示すると、Fig. 2 のようになる。特定粒とマトリクスとの粒径比 ρ が実線の下側 (ρ_{min}) より上にあると、特定粒は異常成長し、粒径比 ρ が次第に増加す

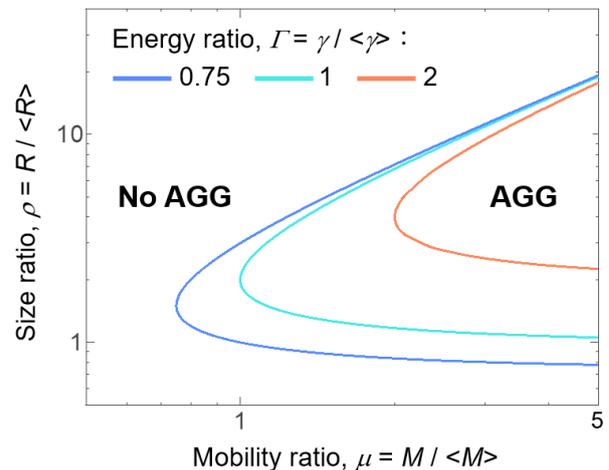


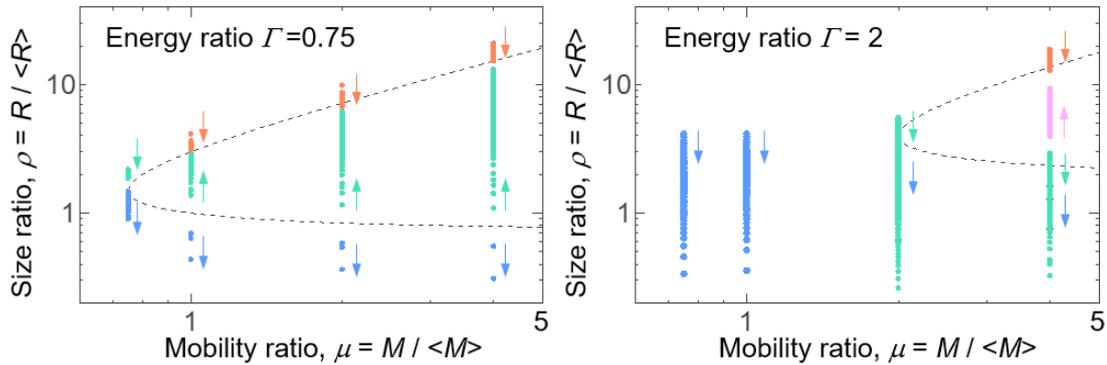
Fig. 2 Abnormal growth conditions of the specific grain shown in Fig. 1 as a function of the grain size ratio $\rho = R / \langle R \rangle$, boundary energy ratio $\Gamma = \gamma / \langle \gamma \rangle$, and mobility ratio $\mu = M / \langle M \rangle$.

る。 ρ が実線の上側 (ρ_{max}) に達したところで異常成長は止まり、以後、 ρ は一定値 ρ_{max} を保つと予想できる。

結果および考察

Figure 1(b)は、シミュレートされた異常粒成長挙動の一例として、粒界エネルギー比 $\Gamma = 0.75$ 、モビリティ比 $\mu = 4$ の条件における 100,000 steps 時の組織形態を示す。特定粒が周囲のマトリクスを蚕食して優先成長

(a) 2D simulations



(b) 3D simulations

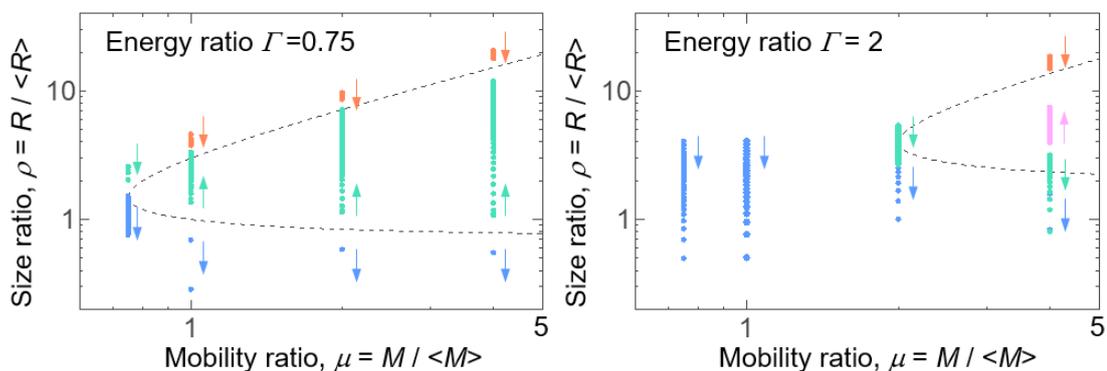


Fig. 3 Temporal variations in size ratio ρ as functions of boundary energy ratio Γ and mobility ratio μ compared to the theoretical diagram shown in Fig. 2: (a) 2D and (b) 3D simulations. Plots with different colors indicate results for different initial size ratios $\rho_{\text{ini}} = R_{\text{ini}} / \langle R \rangle_{\text{ini}}$.

する、異常粒成長の典型的な描像が得られている。

Figure 3 は、計算と平均場理論との比較の例として、粒界エネルギー比 $\Gamma = \gamma / \langle \gamma \rangle$ を 0.75 ~ 2、モビリティ比 $\mu = M / \langle M \rangle$ を 0.75 ~ 4 と変化させ、さまざまな初期粒径比から計算を行い、得られた粒径 ρ の時間変化を理論線図 (Fig. 2) 上にプロットした結果を示す。ここで、異なる色のプロットにより、異なる初期粒径比 $\rho_{\text{ini}} = R_{\text{ini}} / \langle R \rangle_{\text{ini}}$ からスタートした計算結果を区別している。また、プロットの近くに示した矢印は、粒径比 ρ の時間変化の方向 (上矢印: 増大 [$d\rho/dt > 0$], 下矢印: 減少 [$d\rho/dt < 0$]) を示す。Figure 3 より、異常粒成長の発生の有無 ($d\rho/dt$ の正負) は、ほとんどの結果において平均場理論による予測と一致することがわかる。さらに、異常成長発生時の最終的な粒径比は、同理論の解析解の近傍に収束している。

これらの結果から、マトリクス中の特定粒の異常成

長挙動 (異常成長の発生の有無や最終到達サイズ) は、平均場理論による予測と良好に一致することが示された。以上の内容に加え、より詳細・広範なデータや、計算と理論との若干のずれの原因に関する考察を盛り込んで論文化し、現在、国際誌に投稿中である。

まとめ、今後の課題

フェーズフィールド法と複数 GPU 並列計算を活用した大規模シミュレーションにより、Humphreys の著名な異常粒成長理論の妥当性を初めて定量的に明らかとした。また、この成果を通じて、異常粒成長等の多結晶組織形成における粒界物性 (エネルギー、モビリティ) の重要性が改めて浮き彫りとなった。今後は、分子動力学による原子論的解析と、データ同化をはじめとするデータ科学手法を援用することで、情報が著しく不足している状況にある各種粒界物性値の評価・蓄積の

方法論を確立し、大規模フェーズフィールド計算に立脚した多結晶組織形成予測の更なる高度化を目指す。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

水圏動物が有する酵素の構造解析
Structural analysis of enzymes from aquatic animals
潮 秀樹
Hideki Ushio

東京大学大学院農学生命科学研究科
Graduate School of Agricultural and Life Sciences, The University of Tokyo
<http://www.a.u-tokyo.ac.jp/index.html>

長鎖高価不飽和脂肪酸の生合成能が高いフトメリタヨコエビ (*Melita rylovae*) に着目し、トランスクリプトーム解析を行なった。トランスクリプトームから脂肪酸伸長酵素 *Elovl6* を同定し、演繹的にアミノ酸配列を得た。得られたアミノ酸配列をもとに立体構造予測を行った。予測された立体構造について Ramachandran plot の描画などによって検証した結果、活性部位を含む大部分は信頼度が高いことが示された。これを用いて分子動力学シミュレーションを行い、*M. rylovae* の *Elovl6* の基質特異性や温度依存性について検討している。

Transcriptomic analysis of *Melita rylovae* identified the expression of *Elovl6*. The amino acid sequence of *M. rylovae* *Elovl6* was determined by translation of the identified mRNA and used to predict its structure. The predicted structure was evaluated by the Ramachandran plot. The results showed that most of the predicted structure of the *M. rylovae* *Elovl6* including active site has high confidence. Molecular dynamics simulation by using the predicted structure has been running to investigate the specificity or temperature-dependent activity of the enzyme.

Keywords: aquatic bioscience, LC-PUFA, *Elovl*, amphipoda, crustacea

背景と目的

水圏動物の組織で発現する酵素には、水圏動物に特有なものや陸上動物よりも活性が高いものなどがある。これらの酵素の反応機序を明らかにすることによって、遺伝子工学的に活性の向上や基質特異性の改変が可能となり、様々な産業利用が拓かれる期待される。しかし、それらの詳細な反応機構については未解明な部分が多く、ゲノム編集による活性の向上や基質特異性の改変において大きな障壁となっている。本課題では、トランスクリプトーム解析で得た mRNA 配列から演繹的に推定したアミノ酸配列をもとに立体構造の予測および分子動力学シミュレーションを行い、水圏動物由来酵素の反応機構について明らかにする。

概要

本課題ではヨコエビ類を対象とし、長鎖高価不飽和脂肪酸 (long-chain polyunsaturated fatty acids, LC-PUFA) 伸長酵素 (elongation of very-long-chain fatty acids, *Elovl*) の発現についてトランスクリプトーム解析によって調べ、アミノ酸配列を演繹的に推定した。得られた *Elovl* のアミノ酸配列から立体構造の予測を

行った。

結果および考察

ヨコエビ類の数種について LC-PUFA 生合成能を比較した結果、フトメリタヨコエビ (*Melita rylovae*) が高い LC-PUFA 生合成能を有することが示唆された。そこで、*M. rylovae* の *Elovl6* について、立体構造予測を行なった (図 1)。Ramachandran plot の描画、及び立体構造既知のヒト由来 *ELOVL7* の立体構造との比較によって、予測構造の妥当性を検証した。その結果、概ね信頼度が高い立体構造が得られた。ただし、C 末端、N 末端の予測構造については信頼度が低かった。得られた立体構造をもとに、力場として charmm36m を用い、Gromacs による分子動力学シミュレーションを進めている。

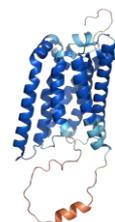


図 1 *Elovl6* の予測構造

まとめ、今後の課題

予測された Elov16 の立体構造は一部で信頼度が低かったが、活性部位を含む大部分では高い信頼度であった。今後は、*M. rylovae* の Elov16 の基質特異性や温度依存性について検討を行う。また、翻訳後修飾の有無などについても調べる必要がある。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 蛋白質天然変性領域の動力学特性に関する計算科学的検討
 英文: Computational study on dynamics of intrinsically disordered proteins

利用課題責任者

Kota Kasahara

所属

立命館大学生命科学部

独自の拡張アンサンブル分子動力学法である Virtual-system canonical coupled molecular dynamics 法 (VcMD) の改良を行い、転写因子 TGIF-1 の天然変性領域 (Intrinsically disordered region; IDR) の動的特性の解析を行った。VcMD の改良により反復計算の過程で得られたすべてのアンサンブルを reweighting し、カノニカル分布を近似的に得ることができるようになった。TGIF-1 では IDR がリン酸化を受けることで構造ドメインの DNA 認識ヘリックス上の Arg と塩橋を形成し、DNA 結合を競争的に阻害するメカニズムが示唆された。

We have developed a new version of our original extended-ensemble molecular dynamics method, named virtual-system coupled canonical molecular dynamics (VcMD). In this method, all the conformational ensembles obtained in the iterative simulations can be reweighted to estimate the canonical ensemble. This method was applied to investigate dynamic properties of an intrinsically disordered region (IDR) of the transcription factor, TGIF-1. As a result, representative structures in the simulated ensemble show salt-bridge formation between DNA recognition helix and phosphorylated IDR, suggesting that interactions between them competitively inhibit recognition of DNA recognition.

Keywords: 5つ程度

背景と目的

蛋白質の天然変性領域 (intrinsically disordered regions; IDRs) は特定の立体構造を持たないにも関わらず様々な重要な機能を担っている。その構造は常に揺れ動いているため、従来の構造生物学的手法ではその分子機構を解析することが困難である。これに対し、分子動力学法 (molecular dynamics; MD) による動力学特性の解析が、分子機構解明に向けた有効な手段となる。一方で、IDRs の極めて高い構造自由度は、サンプリングすべき構造アンサンブルを膨大なものとするため、MD による計算も容易ではない。そこで本プロジェクトでは独自の手法である Virtual-system coupled canonical molecular dynamics 法 (VcMD) のさらなる開発を行い、この手法を活用することで IDRs の動力学特性の解明を目指す。

概要

VcMD は我々のグループで考案し開発を行ってきた

手法であり、本プロジェクトでは IDRs の広大な構造空間を効率よくサンプリングするために方法論のさらなる改良を行った。これを応用し、転写因子 TGIF-1 の IDR がリン酸化を受けて DNA 結合ドメインの機能を制御するメカニズムを調べた。IDR の一部をペプチドとしてモデル化し、DNA 結合ドメインとの相互作用を解析した。IDR についてはリン酸化状態と非リン酸化状態の 2 状態のモデルについて計算を行った。

結果および考察

VcMD 法では任意の構造パラメータ (collective variables; CVs) を設定し、バイアスポテンシャルによって CVs に沿った構造変化を促す。バイアスポテンシャルは直接的に構造変化を促すように印加されるのではなく、望まない構造変化を起こした際にそれを妨げるように働く。従来法のように人工的なポテンシャルによって構造変化を積極的に引き起こすのではなく、望ましい構造変化が起こる確率を高めるという方針で構造変化を促

す。このため得られたアンサンブルには人工的な構造変化(ゆがみ)が少なく、より自然に近いアンサンブルが得られるものと期待できる。

本研究ではさらなる方法論の開発を進め、状態密度分布の推定方法などについて改良を行った。VcMD 法では反復計算によって状態密度分布を推定するが、反復計算の過程で得られたアンサンブルは最終的には用いることはできず、反復計算で得られた状態密度を固定して production run を改めて実行する必要がある。この点を改良し、反復計算で得られたすべてのアンサンブルを再重み付けしてカノニカルアンサンブルを近似的に算出する方法論を考案し、実装を行った。

次に VcMD 法を用いて転写因子 TGIF-1 における IDR の動力学特性の解析を行った。TGIF-1 はホメオドメインによって DNA を認識する転写因子であり、がんなどの疾患との関連も高く医学・薬学の観点から重要な転写因子である。ホメオドメイン近傍に IDR を有しており、IDR の存在によって DNA 結合能が制御されることが示唆されている。特に IDR がリン酸化されることで転写活性が阻害される。本研究では TGIF-1 ホメオドメインおよび IDR の一部を切り出したペプチドの 2 分子を含むモデルを構築し、ホメオドメインとペプチドの距離を CV として設定して計算を行うことで、IDR がホメオドメインに対してどのように作用するのか、その分子メカニズムを調べた。特に IDR についてリン酸化状態と非リン酸化状態の両方について計算を行い、リン酸化による影響を調

べた。

その結果得られた構造アンサンブルより、特に安定だった代表構造を図 1 に示す。リン酸化状態では IDR が認識ヘリックスと直接相互作用している。特に負電荷を帯びたリン酸期が、kink 周辺の Arg 残基と塩橋を形成していた。この部位は本来負電荷を帯びた DNA と相互作用するべき部位であり、リン酸化した IDR は DNA と競争的に結合するものと考えられる。一方非リン酸化体では IDR は認識ヘリックスとは逆側の表面へと接触しており、DNA 結合に干渉しないことが示唆された。

すなわち TGIF-1 では IDR におけるリン酸化、脱リン酸化サイクルによって、DNA 結合ドメインと IDR の相互作用が制御されているものと考えられる。すなわち、IDR の動的な構造変化によって転写因子の機能制御が行われていることが示唆された。

まとめ、今後の課題

独自の拡張アンサンブル法である VcMD の改良と、転写因子 TGIF-1 における IDR の動的特性解析への応用を行った。リン酸化が IDR の動的特性を変化させ、転写因子の機能制御を行うメカニズムが示唆された。一方で IDR の広大な構造空間のうちどの程度がサンプリングされたのか、その解釈や妥当性の評価は不十分である。今後さらなる詳細な解析を行っていくことが望まれる。

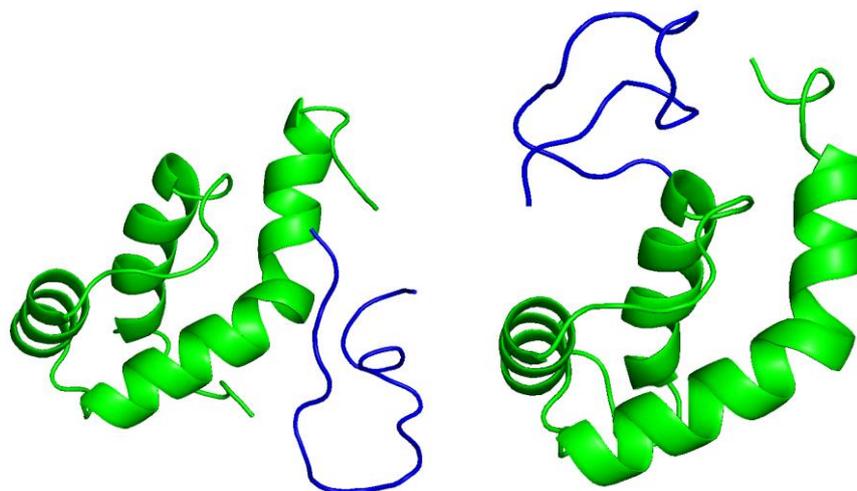


図 1. 計算より得られた代表構造。(左)リン酸化状態、(右)非リン酸化状態。DNA 結合ドメイン(ホメオドメイン)を緑で、IDR を青で示した。図中右側の kink したヘリックスが認識ヘリックスである。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

超流動ヘリウムにおける量子乱流の数値的研究
Numerical study of quantum turbulence in superfluid helium

湯井 悟志
Satoshi Yui

慶應義塾大学 自然科学研究教育センター
Research and Education Center for Natural Sciences, Keio University
<https://www.sci.keio.ac.jp/>

我々は、量子流体力学における重要問題である 2 流体結合ダイナミクスを研究している。本課題では、量子乱流と常流体乱流の結合ダイナミクスを研究した。そのような 2 流体同時乱流は、未解決問題である量子乱流の T2 状態の原因だと予想されてきた。我々は、2 流体結合ダイナミクスの数値計算を行い、2 流体同時乱流を解析した。我々の研究結果は常流体乱流が量子乱流を強化することを明らかにし、得られた結果は実験と一致していた。

We study the coupled dynamics of two fluids, which is an important problem in quantum hydrodynamics. In this project, we studied the coupled dynamics of quantum turbulence and normal-fluid turbulence. The dual-turbulent state has been expected to be the cause of the unsolved T2 state of quantum turbulence. We performed numerical simulations of the coupled dynamics of two fluids, and analyzed the dual-turbulent state. The results of our study showed that the normal-fluid turbulence enhances the quantum turbulence, and the obtained results are consistent with the experiments.

Keywords: 量子流体力学, 超流動, 量子渦, 量子乱流, 2 流体モデル, 渦糸モデル

背景と目的

我々の研究目標は、超流動ヘリウム中の量子乱流の物理を明らかにすることである。液体ヘリウム 4 は、大気圧下の温度 2.17 K 以下で粘性が消失する超流動性を示す。ティサとランダウの 2 流体モデルによると、超流動状態の液体ヘリウム 4 は非粘性の超流体と粘性をもつ常流体の混合流体として理解できる[1,2]。本課題で取り組む量子乱流とは超流体の乱流のことであり、量子渦(渦芯まわりの速度循環が量子化された渦)のタンブルとして実現される[3]。量子乱流は、他の様々な系(超流動ヘリウム 3, 原子気体ボース・アインシュタイン凝縮体, 中性子星など)においても出現し得る。したがって、量子乱流の研究は、物理学の広範囲の分野に対して重要な意味をもつだろう。

本課題では、超流動ヘリウム 4 における超流体と常流体の結合ダイナミクスの解明に取り組んだ。量子乱流状態では、量子渦を介して 2 流体間に相互摩擦力が働くようになり、2 流体が互いに影響を与えながら運動を行う。そのような 2 流体結合ダイナミクスは、量子流体力学における根本的かつ重要なテーマである。

2 流体の両方が乱流である状態は、量子乱流における長年の未解決問題である T1-T2 遷移の原因であると予想されてきたが[4]、2 流体結合ダイナミクスを考慮しなければ取り組めない問題である。ここで、T1-T2 遷移とは超流体が T1 状態と T2 状態の 2 段階で乱流遷移する現象のことである。これに対して、T2 状態は 2 流体両方が乱流の状態である、という仮説がある。我々は、量子乱流の T2 状態を解明するために、2 流体モデルの数値計算を用いて 2 流体同時乱流状態の研究を行なった。具体的には、超流体の渦糸モデルと常流体のナビエ・ストークス方程式を連立して数値計算を実行する。

我々の先行研究において、2 流体結合ダイナミクスの計算の基本的な導入には成功し、興味深い物理を明らかにしてきた[5,6]。しかし、T2 状態の量子乱流等に対しては数値計算コストが非常に大きい等の問題点があった。そこで、渦糸モデルの数値計算に対して Fast Multipole Method [7,8]などの計算高速化を適用して TSUBAME の性能を活用する。

概要

超流動とは非粘性の流れのことであり、極低温において量子力学的な効果がマクロに現れた現象である。そのような超流動の非線形・非平衡状態である量子乱流は、超流動ヘリウム 3 および 4、冷却原子気体、中性子星等分野を横断する重要な現象である。我々は、典型的な系である超流動ヘリウム 4 の量子乱流の研究を行う。本課題では、量子乱流の長年の未解明問題である T1-T2 遷移に関連した研究を行う。

結果および考察

超流体に対する渦糸モデルでは、量子渦の芯の太さを無視して糸で近似する[3]。通常の古典流体と違い、超流動ヘリウム 4 に対しては渦糸モデルが非常に有効な方法として知られている。超流動速度場は、全渦糸に沿って積分を行なうビオ・サバル則によって決定される。温度 0 K においては、渦糸は超流動速度場に完全に追従して運動を行なうとされる。しかし、有限温度においては常流体との相互摩擦の影響も受けて運動を行なう。一方、常流体はナビエ・ストークス方程式のような運動方程式に従い、外力として量子乱流から受ける相互摩擦力が考慮される。このように 2 流体は相互摩擦を介して互いに影響を与えながら運動を行なう。今回の研究では、常流体に Arnold–Beltrami–Childress 型の外力をさらに与えることで常流体を乱流にしている。また、常流体には非圧縮条件を課している。

数値計算は、体積(1.0 mm)³の空間 3 次元の系で行なう。x, y, および z 方向に周期的境界条件が課されている。x 軸方向に熱対向流を印加して量子乱流を駆動する。温度 1.9 K に対応するパラメータを用いる。超流体の時間積分は 4 次の Runge–Kutta 法、常流体の時間積分は 2 次の Adams–Bashforth 法で行う。平均の常流体流速を $V_n = 2.5 \text{ mm/s}$, 3.0 mm/s , 4.0 mm/s , 4.5 mm/s として数値計算を行う。

数値計算の結果、2 流体同時乱流の統計的定常状態が得られた。量子乱流の統計量としては、渦糸長密度 L (単位体積あたりに含まれる渦糸の長さ)に注目した。初期状態として少数の渦糸を配置しているが、熱対向流からエネルギー注入を受けて時間とともに L の値が増加していく。今回の数値計算の場合、時間が 5 s 程度経過すると L

の値が一定値の周りを揺らぐようになる。これは、エネルギーの注入と散逸がつりあった統計的定常状態に到達したことを示している。

以上のようにして得られた量子乱流および常流体乱流の統計量を解析していく。統計量は、統計的定常状態において時間平均されている。量子乱流の統計量は上述の渦糸長密度 L であるが、常流体の統計量としては常流体速度ゆらぎ I を採用する。常流体速度ゆらぎ I は、量子乱流の可視化実験等により調べられており、それらの実験と値を比較することが可能である。数値計算では、外力の振幅を調整することにより、常流体乱流のゆらぎの大きさを変化させることができる。各平均常流体流速 V_n に対して、外力の振幅を変化させていくつかの数値計算を実行し、ゆらぎ I と渦糸長密度 L の関係を探索した。さらに、ゆらぎ I が実験と一致するように外力の振幅を調整した状況において、平均流速 V_n と渦糸長密度 L の関係を解析した。その結果、多くの実験で知られているように[3,4], $L^{1/2}$ が V_n に比例することを確認した。この比例関係の係数 γ は、量子乱流の T1 状態と T2 状態を判別するパラメータであり、T2 状態の γ は T1 状態のものより大きい傾向がある。我々の数値計算の結果、2 流体同時乱流状態の γ の値は、T2 状態のものと一致することが明らかになった。以上の結果は、背景と目的で説明した「T2 状態は 2 流体の同時乱流状態である」という考えを支持している。

まとめ、今後の課題

以上のように、我々は量子流体力学における長年の未解明問題である T1-T2 遷移に関連する研究を行なった。具体的には、T2 状態では常流体と超流体の両方が乱流である、という仮説を確かめるために、2 流体結合ダイナミクスの数値計算を実行した。結果として、2 流体同時乱流の統計的定常状態を得ることに成功し、得られた統計量は T2 状態の実験値と一致していた。これらの結果は、T2 状態の仮説を支持しており、大きなインパクトがあるだろう。

しかしながら、研究結果を論文としてまとめて投稿したところ[9]、いくつかの批判を受けて掲載拒否となった。批判の一つは、数値計算を行なったパラメータの範囲に関することであった。そこで、我々は TSUBAME の計算機資源を活用してさらに広いパラメータでのデータを集める

など、研究内容の説得力を上げていたが、利用期間中には計算が完了しなかった。今後も、TSUBAME を利用してデータを集め、近い内に論文として結果を発表したいと考えている。

参考文献

- [1] L. Tisza, *Nature* **141**, 913 (1938).
- [2] L. Landau, *J. Phys. U.S.S.R.* **5**, 71 (1941).
- [3] R. J. Donnelly, *Quantized Vortices in Helium II*, (Cambridge University Press, Cambridge, England, 1991).
- [4] J. T. Tough, *Superfluid Turbulence*, in *Prog. in Low Temp. Phys.* **8**, Chap. 3 (1982).
- [5] S. Yui, M. Tsubota, and H. Kobayashi, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 155301 (2018).
- [6] S. Yui, H. Kobayashi, and M. Tsubota, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 155301 (2020).
- [7] R. Yokota, T. Sheel, and S. Obi, *J. Comput. Phys.* **226**, 1589 (2007).
- [8] R. Yokota et al., *Comput. Phys. Commun.* **180**, 2066 (2009).
- [9] S. Yui et al., arXiv:2105:09499.

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 新規 BRCAness 誘導阻害剤開発に向けた理論研究
 英文: Theoretical study for the development of novel BRCAness inhibitor

小関 準
 Jun Koseki

国立大学法人東海国立大学機構名古屋大学大学院医学系研究科
 Graduate School of Medicine, Nagoya University
 URL

邦文抄録(300 字程度)

近年、合成致死の原理を利用した PARP 阻害剤による BRCA 変異陽性がんの治療法が再脚光を浴びている。PARP 阻害剤の有効性は様々な癌腫においても確認されているため、幅広くリバース・イノベーションを起こしうる可能性がある。そこで、未だ詳細が明らかではない「BRCAness」に関わる分子を標的とした、革新的新規誘導阻害剤の研究開発を行うことを目的とし、研究を推進した。共同研究先では現在、「BRCAness」に関わる有効分子標的探索を並行して実施しているため、TSUBAME を用いた創薬標的分子解析では、まずは Alphafold2 を用いてヒトの全タンパク質の立体構造予測を実施した。

英文抄録(100 words 程度)

Recently, PARP inhibitors, which utilize the principle of synthetic lethality, are gaining renewed attention for the treatment of BRCA mutation-positive cancers, and their efficacy has been confirmed in various types of carcinomas, which may lead to a wide range of reverse innovation. Therefore, we promoted research aimed at developing innovative novel inducible inhibitors targeting molecules involved in "BRCAness," the details of which are still unclear. Since our collaborators are currently searching for effective molecular targets related to "BRCAness" in parallel, we first used Alphafold2 to predict the 3D structures of all human proteins in the analysis of drug target molecules.

Keywords: 5つ程度 BRCA, Drug Target, Drug Design, Structure Prediction, Structure Analysis

背景と目的

近年、合成致死の原理を利用した PARP 阻害剤による BRCA 変異陽性がんの治療法が再脚光を浴びており、国内外の臨床試験から様々ながん腫における有効性が実証されてきた。2016 年に転移性前立腺がんの大規模解析から、標的候補として ATM を含む 15 個の遺伝子に変異が同定されている。しかしながら BRCA 以外の変異は 1%前後と非常にレアであることや、ATM 変異陽性患者では PARP 阻害剤に対する有意なレスポンスが認められないこと、事実上全ての患者が治療に対する抵抗性を示すことも報告されており、臨床的に有望な PARP 阻害剤の用途を新たな視点から開拓することが求められている。そこで、未だ詳細が明らかではない「BRCAness」に関わる分子を標的とした、革新的新規誘導阻害剤の研究開発を行うことを目的とした。

概要

本プロジェクトでは、Domainfocused CRISPR スクリーニングから得られた合成致死性を示す機能的ドメイン近傍のタンパク質に対する創薬に備えて、Alphafold2 を用いてヒトの全タンパク質の立体構造を予測し、さらに申請者が作成した独自のプログラムにより、生体内環境を模倣した分子動力学シミュレーション用のインプットファイルを自動生成した後、エネルギー最小化計算を実施した。

結果および考察

いかなるタンパク質が「BRCAness」創薬標的になっても対応できるように、ヒトで発現している全てのタンパク質の WT 配列から、Alphafold2 を用いてタンパク質構造を予測した。その後、申請者の小関が作成した自動解析プログラム (Fortran, Bash を使用) により、各タンパク質におけるそれぞれのアミノ酸の荷電状態(プロ

トン化状態、脱プロトン化状態)及び、ジスルフィド結合形成判定、そしてタンパク質内における水素結合ネットワークの最適化を実施し、生体内における最適なタンパク初期構造を自動作成した。作成したプログラムでは、これらの初期構造を用いて分子動力学シミュレーション用ソフト Amber 及び Gromacs で使用できるエネルギー最小化用のインプット作成までを自動で取り扱える。この作成プログラムは、後日、本申請研究とは別研究で開発中の構造解析プログラムとともに、Github へのアップロードする予定である。上述した分子動力学シミュレーション用のインプットを利用し、全タンパク質に対するエネルギー最小化計算を実施した。申請者は、現在、ヒト全タンパク質の立体構造解析に取り掛かっている。申請者は来年度の追加利用申請をしているが、来年度では分子動力学シミュレーションを実施することで、各タンパク質の熱構造サンプリングを実施し、酵素活性部位の有無および同定と、薬物標的箇所の同定(酵素である場合は酵素部位、そうでない場合は機能性タンパク質 - タンパク質相互作用界面の同定)をすることで、目的である BRCAnessにかかわる有効分子標的における創薬分子(低分子、中分子)の設計に取り掛かる予定である。

まとめ、今後の課題

令和3年度では、ヒトタンパク質全ての構造について立体構造を予測し、Amber, Gromacs での計算インプットを作成してエネルギー最小化及び平衡化計算を実施した。令和4年度はこれらの結果を用いて、サンプリング構造分布から、創薬ターゲットとなりえる箇所を特定し、阻害分子設計につなげる。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 粗さをういた熱・運動量輸送の非相似制御に関する研究

英文: Controlling the dissimilarity between the momentum and heat transfer by the wall roughness

利用課題責任者

桑田 祐丞

Yusuke Kuwata

大阪府立大学 工学研究科 機械系専攻
Department of Mechanical engineering
Osaka Prefecture UniversityURL: <http://www2.me.osakafu-u.ac.jp/htlab/>

邦文抄録(300 字程度)

壁面に設置された粗さが熱・運動量輸送の非相似性に与える影響を理解するために、粗面乱流熱伝達の直接数値解析を行なった。本研究では、粗さの波長が非相似性に与える影響を調査する為に、3次元正弦波粗さを対象として、波長を変えた粗面を用いた数値解析を行った。数値解析手法に格子ボルツマン法を用い、乱流モデルを使用しない直接数値解析を行った。粗面の波長は速度場のスケーリングには影響を与えないが、温度のスケーリングに大きな影響を与えることが分かった。波長の短い粗面では、スタントン数と摩擦係数との比で定義されるレイノルズアナログファクタの減少が小さく、少ない流動抵抗で高い伝熱促進効果が得られることが示唆された。

英文抄録(100 words 程度)

We performed direct numerical simulation of rough wall turbulence to understand the effects of wall roughness on an analogy between the heat and momentum transfer. This study considered three-dimensional sinusoidal rough surfaces with various wavelength values. We utilized the lattice Boltzmann method for the direct numerical simulations. It is found that the wavelength does not affect the scaling for the mean velocity but has considerable effects on the scaling for the mean temperature. The Reynolds analogy factor, which is defined as the ratio of the doubled Stanton number to the skin friction coefficient, is larger for the surface with a small wavelength value, suggesting that surfaces with small wavelength roughness yield higher heat transfer rate with lower frictional resistance.

Keywords: Rough surface, Turbulence, Heat transfer, Lattice Boltzmann, Reynolds analogy

背景と目的

平滑面の乱流熱伝達に関しては、運動量・熱輸送の間に相似性が成立することが知られており、プラントル数が1の条件下では、スタントン数と摩擦係数との比はレイノルズ数に拠らずほぼ一定値を示す。しかし、表面粗さが出現すると、熱輸送に対する運動量輸送の増大が著しく、熱・運動量輸送の相似性が悪い意味で崩壊することが知られている。つまり、粗さによる流動抵抗の増大効果は、熱伝達の増大効果を上回る。粗さをういた伝熱制御を考えた際、流動抵抗の増加を最小限にしつつ、熱伝達率を最大化することが求められるが、粗さが非相似性の大きさに及ぼす影響は十分に理解されていない。本研究では、少ない流動抵抗で高い伝熱促進効果をもたらす理想的な粗さ構造を探求するために、粗面の乱流熱伝達に関する直接数値解析を実施し、相似性を表すパラメータであるレイノルズアナログファ

クタのスケーリングに関する調査を行う。

概要

本研究では、少ない流動抵抗増で高い伝熱促進効果をもたらす理想的な粗さ構造を探求するために、粗面の乱流熱伝達に関する直接数値解析を実施し、相似性を表すパラメータであるレイノルズアナログファクタのスケーリングに関する調査を行う。

本研究で対象とする解析系は、粗面を下面にもつオープンチャンネル流である。粗面の平均高さ位置 $y = k$ から、上面 $y = \delta$ までの高さで定義される有効チャンネル高さ $\delta_e = \delta - k$ に対して、計算領域は主流方向に $6\delta_e$ 、スパン方向に $3\delta_e$ とした。入口・出口境界の圧力差を一定とすることで流体を駆動し、有効チャンネル高さを代表長さとする摩擦レイノルズ数 $Re_\tau = 180, 300, 600$ の3つの条件で解析を行った。境界条件は、主流方向およびスパン方向に周

期境界条件を課し、上面は滑り境界条件を課した。熱的境界条件として、粗面は等温条件、上面は断熱条件とし、流体には一様発熱を与えた。プラントル数は空気を仮定し $Pr = 0.7$ とし、浮力の影響を無視したパンプスカラーとして温度を取り扱った。解析に用いた三次元正弦波粗面の粗面高さ $h(x, z)$ は以下のように与えられる。

$$h(x, z) = k \left(1 + \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} x\right) \cos\left(\frac{2\pi}{\lambda} z\right) \right),$$

ここで、 λ は波長、 k は振幅を表し、粗面領域は $0 < y < 2k$ である。粗面の振幅 $k = \delta/11.5$ とし、波長 λ と振幅 k との比を $\lambda/k = 2, 4, 8, 16$ とした 4 種類の粗面で解析を行った。

熱流動の解析は 2 種類の分布関数を用いる格子ボルツマン法によって行った。速度場は 3 次元 27 方向多緩和時間格子ボルツマン法⁽¹⁾を用いて解析し、温度場には 3 次元 19 方向速度正規化格子ボルツマン法⁽²⁾を用いる。格子ボルツマン方程式は、全て等間隔格子で離散化されており、計算格子の解像度は壁単位で 2.0 程度となるように設定した。計算格子数は、 $Re_\tau = 180$ のケースで $640(x) \times 116(y) \times 320(z)$ 、 $Re_\tau = 300$ のケースで $896(x) \times 162(y) \times 448(z)$ 、 $Re_\tau = 600$ のケースで $1536(x) \times 277(y) \times 768(z)$ となった。プログラムコードは CUDA Fortran によって記述されており、複数の GPU を用いた領域分割法によって並列化した。GPU 間の通信は、CPU を通じて MPI 通信によって行い、分割した領域には袖領域を設けており、領域間の通信時間を隠蔽するように工夫した。

結果および考察

図 1 に波長 $\lambda/k = 16$ 、摩擦レイノルズ数 $Re_\tau = 600$ のケースにおける、乱流渦と温度変動を可視化した図を示す。乱流渦は速度勾配テンソルの第 2 不変量の等値面で可視化をしており、コンター図は温度変動を示す。乱流渦は粗面の近傍で見られ、小スケールの乱流変動による激しい温度変動が見られる。これらの熱流動場を統計的に議論するために、図 2 に主流平均速度・温度分布を示す。

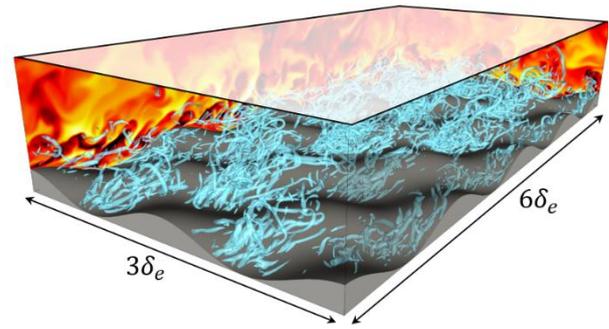


図 1 波長 $\lambda/k = 16$ 、摩擦レイノルズ数 $Re_\tau = 600$ のケースにおける、乱流渦と温度変動の可視化結果。

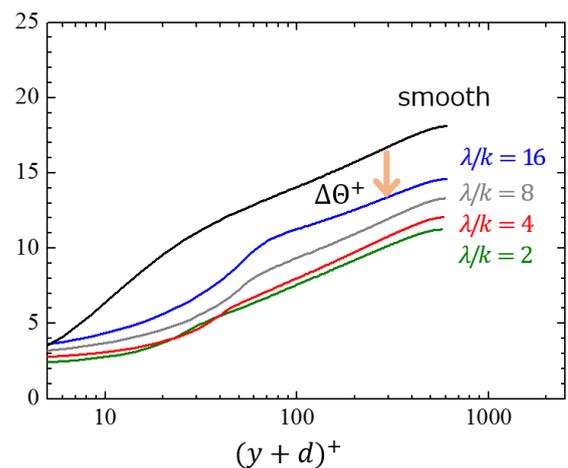
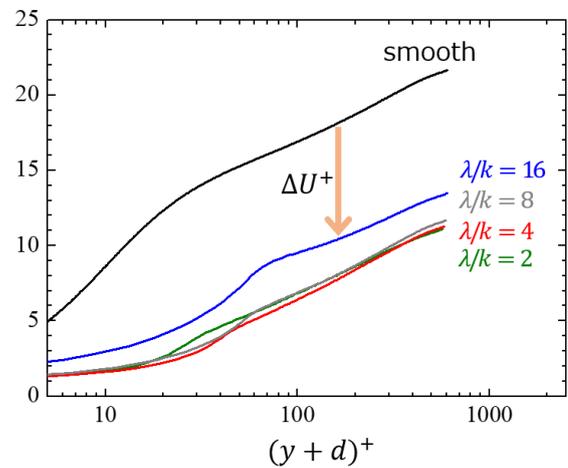


図 2 上図は摩擦速度で無次元化された主流平均速度分布、下図は摩擦温度で無次元化された平均温度分布。壁からの距離には、Jackson モデル⁽³⁾で得られた仮想原点からの距離を用いた。

平均速度は、摩擦速度を用いて無次元化しており、平均温度は摩擦温度を用いて無次元化した。図2より、粗面の平均温度・速度分布は滑面の結果と比較して、下方に位置していることが確認できる。これは、粗面によって壁面摩擦・熱伝達率が増加した結果である。対数領域における平均速度・温度の下方シフト量である速度粗さ関数 ΔU^+ 、温度粗さ関数 $\Delta \theta^+$ は波長が短くなるほど大きくなる。温度粗さ関数 $\Delta \theta^+$ は、 ΔU^+ と比較して小さいが、波長 λ/k の影響を大きく受けている様子が観察される。

これら平均速度・温度の変化が流動抵抗・熱伝達率に与える影響を調べる為に、熱伝達率の無次元数であるスタントン数 S_t 、流動抵抗の無次元数である摩擦係数 C_f を議論する。図3に、スタントン数と摩擦係数との比で表されるレイノルズアナログファクタ $RA = 2S_t/C_f$ と摩擦係数 C_f との関係を示す。なお、図中には、レイノルズアナログファクタ RA 、摩擦係数 C_f を滑面における値 RA_0 、 C_{f0} で無次元化した値を示す。図より、 RA/RA_0 は1を下回っており、粗面による摩擦係数の増大効果は、熱伝達率の増大効果を上回っていることが分かった。粗面乱流熱伝達における速度場と温度場の非相似的なふるまいは、摩擦係数 C_f が大きくなるほど顕著であり、 RA は C_f の増大に従って減少することが分かる。興味深いことに、波長が短くなるほど、 RA の減少が緩やかであることが確認される。つまり、波長の短い粗面では、より少ない流動抵抗増で高い伝熱促進効果をもたらすと言える。

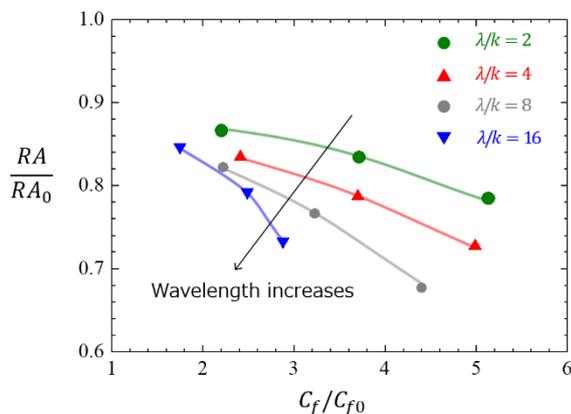


図3 レイノルズアナログファクタ RA/RA_0 と摩擦係数 C_f/C_{f0} との相関関係。 RA_0 、 C_{f0} は同じ摩擦レイノルズ数条件における滑面の値を示す。

まとめ、今後の課題

少ない流動抵抗増で高い伝熱促進効果をもたらす理想的なパッシブ伝熱制御を確立するために、粗さの特徴量が運動量・熱輸送に与える影響を直接数値解析によって調査した。対象とした粗面は3次元正弦波粗さとし、波長を変えたケースを複数の摩擦レイノルズ数条件で解析した。直接数値解析は密度分布関数・エネルギー密度分布関数を用いた格子ボルツマン法を用いて、複数GPUを用いた並列計算によって実施した。粗面要素の波長の大きさは、速度場のスケージングには影響を与えないが、温度場のスケージングに大きな影響を与えることが分かった。また、波長の短い粗面は、少ない流動抵抗で高い伝熱促進効果をもたらすことが示唆された。

参考文献

- [1] K Suga, Y Kuwata, K Takashima, R Chikasue, *Computers & Mathematics with Applications* **69** (6) (2015), 518–529.
- [2] K Suga, R Chikasue, Y Kuwata, *International journal of heat and fluid flow*, **68** (2017), 225–236.
- [3] Jackson, P. S., *Journal of fluid mechanics*, **111** (1981) 15–25.

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

二酸化炭素の分離回収に適した分離材料の探索
Prediction of separation materials suitable for CO₂ capture

藤井 達也
Tatsuya Fujii

産業技術総合研究所化学プロセス研究部門

Research Institute for Chemical Process Technology, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

<https://unit.aist.go.jp/cpt/>

CO₂ 分離回収技術を省エネルギー化できる CO₂ 化学吸収液の性能を予測するモデルの構築に取り組んだ。量子化学計算により、化学吸収液に用いられる有機化合物の物性を計算し、化学吸収液に用いられる有機化合物の特徴量を獲得した。既往の化学吸収液に関する研究データを収集して、プロセスパラメータ(温度、圧力、濃度等)と有機化合物の関係をデータセット化し、既存のソフトウェアで算出した特徴量と、量子化学計算で獲得した特徴量を基に、予測モデルを構築した。モデルの性能を文献データにより検証したところ、既存の有機化合物で構成される化学吸収液については、高精度(RMSE = 0.1 未満)で CO₂ 吸収量を予測できた。一方で、モデルに含まれない有機化合物を含む吸収液の性能を予測することで汎化性能を調べたところ、予測精度は低下(RMSE = 0.2 程度)した。汎化性能の面においては予測モデルの改良やさらなる特徴量の探索が必要と考える。

Predicting method of the performance of CO₂ absorbent by machine learning was investigated. Some features for designing chemical absorption were obtained by quantum chemical calculation. References on the performance of absorbents were collected and the dataset describing the relation between amines, process parameters and performances. Predicting models were constructed using features calculated by the combination of an existing descriptor calculator quantum chemical calculation. The predicting performance was high (RMSE < 0.1) for absorbents consisting of existing amines. On the other hand, the performance was lower (RMSE = ca. 0.2) for amine solutions that were not included in the learning process. To improve the predicting performance, improvement of the modeling method and finding of new features should be needed.

Keywords: CO₂ 分離、化学吸収液、機械学習、量子化学計算、特徴量

背景と目的

地球温暖化問題の解決へ向けてカーボンニュートラルを実現するためには、CO₂ を省エネルギーに分離回収する技術が必須である。分離回収プロセスにおいて、CO₂ 分離材料はプロセス全体の省エネルギー性能を左右する重要な要素である。本利用課題では、CO₂ 分離回収技術を省エネルギー化できる CO₂ 化学吸収液の性能を、量子化学計算と機械学習の融合により予測するモデルの構築に取り組んだ。化学吸収液の CO₂ 吸収量は、吸収液を構成する塩基及び溶媒、塩基の組成、温度、CO₂ 分圧など数多くの因子に依存する。化学吸収液に関する従来型研究では、数多くの吸収液合成と性能試験のサイクルを回しており、開発に膨大な時間を要している。CO₂ 吸収量の予測モデルが確立されれば、試験数の低減など、化学吸収液の開発の加速化が期待できる。また、従来にない特徴量の発見による新規な

吸収液設計法への発展が期待される。そこで、本研究では、量子化学計算(Gaussian)と機械学習とを組み合わせ、前記因子を入力として CO₂ 吸収量を予測するモデルを構築することを目的とした。

本研究では、既往の化学吸収液に関する研究データを収集して、プロセスパラメータ(温度、圧力、濃度等)と有機化合物の関係をデータセット化した。また、プロセスパラメータ、既存の特徴量計算ソフトウェアによって得られた特徴量に加え、量子化学計算で得られた特徴量を組み合わせ、機械学習によって CO₂ 吸収量を予測するモデルを構築した。構築したモデルについて、既存の有機化合物で構成される化学吸収液、ならびに、モデルに含まれない有機化合物を含む吸収液の性能の予測精度について、検証を行った。

概要

CO₂ 化学吸収液として、アミン水溶液に着目し、アミン水溶液系の既往の文献を整理して、アミンを一種類、ないし二種類含む化学吸収液について、アミンの種類、その組成、温度、圧力に対する CO₂ 吸収量を整理しデータセット化した。44 種類のアミンについて、4099 点のデータからなるデータセットを構築した。この中から、物理吸収の影響が大きいと考えられる高圧領域を除き、1000 kPa 未満のデータを用いてモデルを構築した (3533 点)。

機械学習を行うにあたり、アミンを特徴量に変換する必要がある。本研究では、既存のソフトウェアである RDkit ならびに HSPiP を用いて、特徴量を算出した。また、44 種類のアミンについて、量子化学計算を行い、アミンの N 原子の電荷や、プロトン親和力等についても検討を行った。量子化学計算は、Gaussian 16 を用い、wb97xd/6-311+G(d,p)//IEF-PCM により水の分極体モデル中で計算を行った。

回帰計算は Scikit-learn のライブラリを用い、ランダムフォレスト回帰により行った。予測性能の評価を行うために、トレーニングデータとテストデータを 80:20 の割合にランダムで分けて、トレーニングデータで構築したモデルによってテストデータの予測性を検証した。指標には二乗平均平方根誤差 (RMSE) を用いた。

結果および考察

アミン 1 種類の系について、予測性能の検証を行った。図 1 にその結果を示す。トレーニングデータはもとより、テストデータも良好に CO₂ 吸収量を再現することが分かった。RDkit 特徴量、HSPiP 特徴量を用いた場合、RMSE=0.078, 0.077 といずれも同程度の予測精度であった。ランダムフォレスト回帰においては、特徴量の重要度を計算することができる。重要度を評価した結果、温度、圧力等のプロセスパラメータに加えて、電荷に関する特徴量が CO₂ 吸収量の予測に重要な役割を果たしていることが明らかとなった。

アミン 2 種類を含む系についても、同様に予測精度の検証を行った。その結果、アミン 1 種類の場合と同様に、RMSE=0.079 と、高精度で CO₂ 吸収量を予測することができた。重要度の高い特徴量についても、アミン 1

種類の場合と同様であることが確認された。

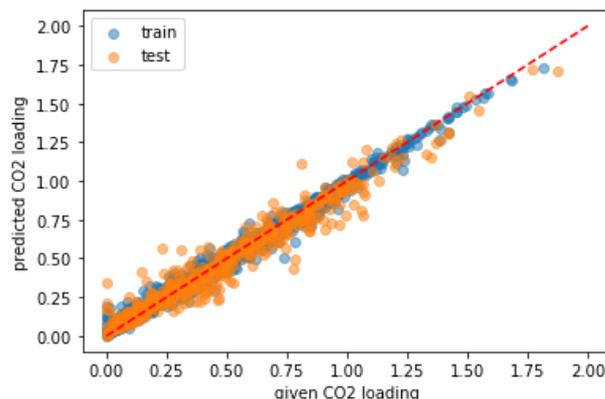


図 1 アミン吸収量のパリティプロット (RDkit 特徴量を用いた場合)

続いて、新規アミンへの対応可能性を検討するために、1 つのアミンをモデルの学習過程で外し、そこで学習したモデルでそのアミンの吸収量を予測する、ということを繰り返す、leave-one-group-out 法により、モデルの予測精度を検証した。その結果、44 のアミンについて、検討しその RMSE の平均値を算出したところ RMSE=0.179 となった。この値は、当該アミンを含んで学習したときの RMSE(0.079) と比べて大きな値となっており、予測精度の低下を示している。アミン種ごとに見ると、特に環状やジアミン等の特徴を有するアミンについて予測精度の低下がみられており、新規特徴量やモデルの改善が予測精度の向上に寄与する可能性がある。本研究では、量子化学計算で得られた N 原子における電荷や、プロトン親和力を特徴量として加え、予測精度の変化を検討したところ、RMSE=0.175 とわずかながら改善傾向も見られたため、有効な特徴量を取り入れることで予測精度をさらに改善することが期待される。

まとめ、今後の課題

アミンの特徴量およびプロセスパラメータを利用することで、アミンを 1~2 種類含む水溶液系での CO₂ 吸収量を予測可能であることを示した。一方、新規アミン種が含まれると予測精度が低下することが示唆されたため、モデルの汎化性能を向上することが今後の課題である。そのための方策として、モデル自体の改良に加え、新規特徴量を取り入れることがアプローチ法の一つとして考えられる。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

光熱変換機構に関する第一原理計算
First-principles calculations on photothermal conversion mechanisms

江目 宏樹
Hiroki Gonome

山形大学 大学院 理工学研究科 機械システム工学専攻
Graduate School of Science and Engineering, Yamagata University
<http://gonome-lab.yz.yamagata-u.ac.jp>

太陽光は最も有力な再生エネルギーであり、これを効率良く回収・エネルギー変換を行う手段として、太陽電池や光触媒等の利用し光と物質の相互作用の理解を深める必要がある。本プロジェクトでは第一原理計算を用いて励起状態の物質の過渡的エネルギー散逸について評価を行った。イオン温度の過渡的な上昇は1 ps以内で起こっていることが明らかになった。 α -quartz では、非結合性の電子が電子励起によって反結合性軌道を占有し、これが駆動力となって結晶の破壊を引き起こすことが示された。同様に、Rutile-TiO₂ 及び Anatase-TiO₂ でも Fermi 準位近傍の結合電子軌道が反結合性軌道の状態に遷移することが確認された。本プロジェクトは光と物質の相互作用の原理解明に寄与するものである。

Sunlight is the most promising renewable energy source. It is necessary to use solar cells and photocatalysts as a means of efficiently recovering and converting this energy, and to deepen our understanding of the interaction between light and matter. In this project, first-principles calculations were used to evaluate the transient energy dissipation of materials in the excited state. In α -quartz, it was shown that non-bonding electrons occupy anti-bonding orbitals due to electronic excitation, which acts as a driving force to cause crystal breakdown. Similarly, in Rutile-TiO₂ and Anatase-TiO₂, it was confirmed that the bonding electron orbitals near the Fermi level transition to the antibonding orbital state.

Keywords: 光熱変換, 太陽光エネルギー, 第一原理計算, 分子動力学計算, 時間依存密度汎関数理論

背景と目的

現代の化石燃料に代わるエネルギー利用の手段として、いわゆる再生可能エネルギーを利用した技術開発が数多く進んでいる。太陽光は最も有力な再生エネルギーであり、これを効率良く回収・エネルギー変換を行う手段として、太陽電池や光触媒等の利用し光と物質の相互作用の理解を深める必要がある。光の励起によるキャリア輸送や熱散逸といった微視的過程は古典的な電磁場解析では取り扱えないため、量子力学的に定式化を行う必要がある。そこで本プロジェクトでは第一原理計算を用いて励起状態の物質の過渡的エネルギー散逸について評価を行った。

概要

密度汎関数理論に基づいて電子状態の解析を行い、さらに励起状態の電子を Fermi-Dirac 分布に従う占有率を与えた。この時の原子の時間発展を古典運動方程

式により計算し、逐次的にこれらのステップを繰り返し解くことで分子動力学計算を行った。また、さらに厳密に励起状態の電子を取り扱うため、時間依存密度汎関数理論の導入も行った。

結果および考察

光と物質の相互作用を評価するため、典型的な絶縁体である α -quartz(SiO₂)、光触媒及び半導体として Rutile-TiO₂、Anatase-TiO₂ 及び CuO を選択しそれぞれ分子動力学計算を実行した。その結果、すべての材料でイオン温度の過渡的な上昇は1 ps以内で起こっていることが明らかになった。さらに、結合状態解析を行い電子の結合性を解析した。 α -quartz では、非結合性の電子が電子励起によって反結合性軌道を占有し、これが駆動力となって結晶の破壊を引き起こすことが示された。同様に、Rutile-TiO₂ 及び Anatase-TiO₂ でも Fermi 準位近傍の結合電子軌道が反結合性軌道

の状態に遷移することが確認された。一方で, CuO は Fermi 準位から大きく離れたエネルギー準位に結合性軌道の電子が多く存在していることが確認された。また, Fermi 準位近傍の反結合性軌道の電子が確認されたが, これらの電子励起後の状態も同程度の反結合性を示していた。これに対して分子動力学計算を実行すると, 他の材料より温度の上昇は低い値を示した。これは, 電子励起による結合性軌道の電子の遷移がほとんどなく, また, 遷移した電子もその前後で反結合性の差が小さく, 大きな駆動力が生まれなかったためであることが示唆された。

まとめ、今後の課題

本プロジェクトでは, 分子動力学計算及び結合解析により電子と格子の相互作用に対する評価を行った。また, 光と電子の相互作用を評価するために時間依存密度汎関数理論の導入を行った。本プロジェクトは光と物質の相互作用の原理解明に寄与するものである。

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 **ダイラタント系のシアシックニング機構の解明に向けた理論シミュレーション**
 英文: A theoretical study on the mechanisms of shear thickening

利用課題責任者

山田達矢

所属

高度情報科学技術研究機構・計算科学技術部

邦文抄録(300 字程度): 我々の研究グループでは、分子シミュレーションの方法を使用して、高分子系や粒子分散溶液系のダイラタント性(あるいはシアシックニング)に関する理論的検討を行っている。本研究では、ポリエチレングリコール(PEG)/シリカ粒子分散水溶液系の散逸粒子動力学法(DPD)シミュレーションを行った。この系は典型的なダイラタント系で、その振る舞いは古くからよく知られているが、対応する分子レベルの現象はわかっていない。適当なモデルを用いて一連のシミュレーションを行い、構造や粘弾性に関する解析を行ってみた。

英文抄録(100 words 程度): Shear thickening/thinning behaviors of dilatant systems of polymer solutions and nano-particle-suspended solutions have been studied in our group with molecular simulations. We focused in this study on a dilatant system of polyethylene glycol solution with silica particle suspension. We analyzed molecular level structures and viscoelastic properties of this system through a series of dissipative particle dynamics (DPD) simulations.

Keywords(5つ程度): dissipative particle dynamics (DPD), ダイラタンシー, ポリエチレングリコール/シリカ粒子分散溶液, レオロジー

背景と目的

遅い剪断刺激に対しては液体として振る舞う物質が、速い剪断刺激に対して固体のような抵抗力を示す場合があることが知られている(ダイラタント現象)。この種の物質を衝撃緩衝材や制動装置などへ応用する研究が行われているが、剪断速度に応じて粘度の増加する(シアシックニング)物理的メカニズムが十分に理解されていないため、いまのところ材料設計の適当な指針が確立していない。我々は、分子動力学および粗視化動力学シミュレーションを研究方法として用い、シアシックニングの分子レベルの現象解明に取り組んでいる。本研究では、ポリエチレングリコール(PEG)/シリカ粒子分散水溶液系のダイラタント性に関する検討を行った。

概要

この系のダイラタント性は PEG とシリカのインタープレイによるものと考えられているが、構造に関する具体的データは報告されていない。本研究では、適当なモデルを用意して散逸粒子動力学法(DPD)シミュレーションによる解析を行ってみた。DPD 法は粗視化動力学計算法の一つで、通常の分子動力学計算に比較してタイム

ステップ間隔を大きく取れるため、ポリマーや生体分子などの大きな分子系の構造を調べるのにしばしば用いられる方法である。本研究でもこの理由で DPD 法を使用した。ポリマーダイラタント系への応用の前例は無く、ここでの調査は方法評価を兼ねる。

結果および考察

図1のように PEG 水溶液/シリカ粒子分散系を粗視化(DPD 粒子化)して、表1のような大小の構成のシミュレーションモデルを用意した。これらモデルの構成にはダイラタント現象の観測されている実験系の物質構成[1]を参考にしたが、実験系とは表1脚注のような相違があるので注意されたい。粒子間相互作用についてはあまり情報がないため、暫定的に表2の二種のソフトポテンシャルパラメータセットを用意した: 異種粒子が特に強い親和性や排他性を持たないもの(SP1)と、P 粒子と S 粒子が親和するもの(SP2)である。

A. 計算可能なシミュレーション時間に関する検討

はじめに DPD 法によるダイラタント現象の直接シミュレーションの可能性について検討した: ダイラタント現象

の時間スケールは 10^{-1} - 10^{-3} sec の程度で (10^1 - 10^3 /sec の剪断速度で観測される), これは分子シミュレーションの時間スケール (タイムステップが *f*sec や *p*sec オーダー) に比べるとずっと大きく, DPD 法でも実時間的に十分なシミュレーションができない懸念があったからである。

計算を実行したところ, 表 2 の大小のモデル系の計算速度は, スパコン 4 ノード使用でそれぞれ ~2M と ~20M ステップ/日であった。したがって, それぞれのモデルを使って実行できる計算総量は, 現実的には ~100M と ~1G ステップの程度で, シミュレーション実時間は ~ $1M\tau_0$ (数十 μ sec) と ~ $10M\tau_0$ (数百 μ sec) の程度までと試算される (1 ステップは $0.01\tau_0$, $1\tau_0 = 25$ psec, DPD 単位については図 1 脚注参照)。非平衡動力学計算では定常状態到達までにある程度大きな剪断変形を与える必要があるが, これを仮に $\gamma=1$ とすると, 定常状態を調べられるのは, 小さくてせいぜい $\sim 10^4$ /sec や $\sim 10^3$ /sec の剪断速度までということになる。斯くして, ダイラタント現象の剪断速度領域 (低粘度-高粘度の遷移の領域) を調べるのは困難であるということが分かった。

B. 相互作用モデル SP1 を用いた DPD 計算

次に, モデル系の不具合や DPD 法の計算手法に絡んだ問題などについて知見を得るため, $10^2/\tau_0$ から $10^6/\tau_0$ ($4 \cdot 10^8$ /sec から $4 \cdot 10^4$ /sec) の範囲の剪断速度のシミュレーションを行い, viscosity や構造に関する一連の解析を行ってみた。ここでは表 2 の SP1 の相互作用モデルを使用した。

大モデル系の viscosity 解析の結果を図 2 に示した (小モデル系の結果は大モデル系と同様なので割愛)。大きい揺らぎのために viscosity の数値をあまり正確に計算できない問題のあることが明確になった。この問題はそもそも応力計算値の揺らぎが大きいことに由来していて, 剪断速度が小さくなるに従って viscosity (= 応力 ÷ 剪断速度) の揺らぎが深刻になっているためである (応力計算値の揺らぎが剪断速度によらずにほぼ一定になっていることにも注意されたい)。剪断速度の小さい $10^6/\tau_0$ については, 100M 超のステップ数を費やしても大きなエラーバーが残っており, viscosity の統計

解析という側面でも (A の節で述べた事柄に加えて) 検討できる剪断速度領域が制約を受けることを象徴的に示している。この問題は MD 法の計算については指摘されていたが, DPD 法でも同様であることが分かった。

調べた剪断速度領域では shear thinning という結果になった。また viscosity の剪断速度ゼロの極限を平衡系の計算から Green-Kubo 法により求めたところ, $5-6\eta_0$ の値が得られたので, $0-10^{-6}\tau_0^{-1}$ のどこかで shear thickening の剪断速度領域があることが示唆される。しかしながら計算で得られた viscosity の増減は実験系に比べると小さく (実験系では値が数桁変化する), ダイラタント現象に対応する変化かどうかは疑問である。

ここで得られている viscosity の数値の由来を検討するため, 2 成分や 1 成分系の計算を行ってみた。(表 3. 簡易な検討のために小モデルを使用した。また統計解析に要する計算ステップ数を少なく抑えるため, あまり小さくない剪断速度ということで $10^4/\tau_0$ の系を調べた)。計算モデルからシリカを取り去ると viscosity が若干上昇する, また PEG を取り去ると viscosity が極端に減少する (溶媒レベルの値まで) という結果が得られていて, これは系の viscosity の殆どが PEG 由来であることを意味している。また, viscosity は PEG を寸断すると極端に減少するため, PEG の紐状に長いという特徴と関係したものであることを示している。

各剪断速度での構造を図 3 に, PEG の構造パラメータを表 4 に示した。これらのデータを全体的に見ると, 剪断速度の遅い非平衡系 ($10^6/\tau_0$) と平衡系の構造には違いが殆ど無く, ある程度剪断速度が大きく (10^4 - $10^3/\tau_0$ の辺り) になると違いが明確になるようである。見た目の構造については (図 3), 剪断速度が $10^3/\tau_0$ 以上で PEG 鎖が剪断速度方向に並ぶという特徴 (平衡系では見られない) を持つことがわかる。PEG の広がり具合を表す両端距離や慣性半径 (表 4) は剪断速度に応じて比較的にはつきり変化する。慣性半径のデータを見ると, 剪断速度が大きくなるのに伴って PEG が剪断速度方向 (*x* 軸方向) に引き伸ばされ, これに垂直な方向 (*y* および *z* 軸方向) には広がりを失うことがわかる。PEG の結合長や結合角といった局所的な構造は, 基本的に剪断速度に応じて値を変えない (表 4) ので, 上記の変形は PEG の 2 面角振れを通じた折り畳みの具合によるも

のである。表 4 のデータを総合的に見ると、系の構造変化はどこかの剪断速度で急激に起こるというタイプのものではないようである。

以上、パラメータセット SP1 を用いた計算の結果を詳細に調べたが、次のように実験と相容れない部分がある。i) viscosity がほぼ PEG 由来でシリカとの interplay による寄与が無い、ii) 平衡系と非平衡系で構造があまり変わらず ($10^{-6}/\tau_0 \sim 4 \cdot 10^4/\text{sec}$ は実験的にはかなり大きな速度である)、iii) 違いがあっても剪断速度に応じて連続的に変化するものである(ダイラタント転移の前後では急激な構造変化が起こるとも考えられている)。以上の事柄はここで使用したモデルに問題があり修正の必要があることを意味している。

C. 相互作用モデル SP2 を用いた DPD 計算

上記の i) の点に関係したモデルの変更として、P 粒子-S 粒子間の親和性を強化したモデル SP2(表 2)を用いた計算を行ってみた。ここでは前節のような大規模な検討はしないで、剪断変形に対する系の応答を簡易に検討するという事にして、 $1 \times 1 \times 1$ モデルを使用し $10^{-4}/\tau_0$ の剪断速度の非平衡系の計算だけを行った。

計算結果を図 4 と表 5 に示した(これに対応した SP1 による計算の結果を図 5 と表 6 に参考のために掲載した)。相互作用モデル SP2 を用いた計算では、SP1 の場合と対照的に、PEG のほとんどのセグメントがシリカ表面に張り付き(図 4 と 5 の initial structure 参照)、これに付随してシリカ球が PEG を介して会合するのが特徴である。また、PEG のセグメントの一部は、このシリカ球クラスターの間を架橋する。このために、ポリマー・シリカのネットワークが実効的に空間的に無限に広がった格好になっている。この構造は、PEG 水溶液シリカ分散系の高 viscosity 状態として ref.1 において想像されているものに近い。

この系に剪断変形を与えると、上記の架橋部が引っ張られる(架橋の上部と下部が異なる速度で横方向に動くため)ことにより、viscosity の大きい状態($\sim 20M$ ステップまで、 $\eta \sim 10-20 \eta_0$)が現れる。このタイムステップの間、平衡系に比べて PEG の結合角が大きい、結合偏角のエネルギーが大きい(表 5)などの特徴が認められ、剪断変形が与えられたことにより PEG が伸長の変形を

強いられていることがわかる。この間の viscosity の数値はシリカの無い場合の値($\sim 9.9 \eta_0$, 表 3 参照, シリカの無い系では SP1 と SP2 の区別はないことに注意)より有意に大きい。斯くして、速度の異なる剪断流を跨ぐような PEG-シリカネットワーク(図 4 でいえば縦方向の隣接ユニットセルに跨るもの)を持てば高 viscosity 状態を与えることが分かった。

一方で $\sim 20M$ ステップを過ぎると、viscosity が極端に低下するという結果になった。これは、上記の引っ張りのために、シリカに張り付いた PEG が徐々にはがれ、終には上述の剪断流を跨ぐ架橋が失われてしまったためである。一旦こうなると、剪断流を跨ぐ架橋が再生することはない(剪断流方向(横軸方向)の架橋は保持されるが)。この構造では PEG がシリカに緊密に張り付いて、またシリカ球が剪断流方向に整列するため、PEG の縦軸方向(剪断速度勾配方向)の空間的な広がりが 1 個のシリカ球程度しかない(図 4, 表 5 の r_{gy})。このために viscosity が溶媒並みに小さい値になるというわけである。斯くして、 $1-20M$ ステップの高 viscosity 構造は過渡的な短寿命のもので、むしろ $24M$ step 以降の低 viscosity 構造が定常状態である。

こうして考えると、図 4 の $1-20M$ ステップの構造が高 viscosity であるからと言って PEG 水溶液シリカ分散系のダイラタント状態に単純に対応するとは言えない。ここで行ったシミュレーションが実験に忠実なものではない(剪断速度($10^{-4}/\tau_0 \sim 4 \cdot 10^6/\text{sec}$)が実験系でダイラタンシーの観測される剪断速度($10^1-10^3/\text{sec}$)よりずっと大きいなどの違いがある)ことには注意する必要があるが、上述のような架橋には剪断速度の大小に関係なく寿命があるはずなので、高 viscosity が維持されるメカニズムが何か無くてはならない。この点で現状モデルには欠陥があることは明らかであり、今後の検討のためにはより適切なものを構築する必要がある。

まとめ、今後の課題

PEG/シリカ粒子分散水溶液系の DPD シミュレーションを行った。検討の結果、以下のような知見を得た。

i) DPD 法で定常化できる剪断速度系は小さくてもせいぜい $\sim 10^4/\text{sec}$ や $\sim 10^3/\text{sec}$ の剪断速度までで、ダイラタント性の現れる剪断速度領域のシミュレーションは困難

である. ii) DPD 法による計算でも, MD 法の計算の場合と同様で, 大きい揺らぎのために viscosity の数値を正確に計算できない問題が深刻である. iii) SP1 を SP2 の相互作用モデルを用い DPD 計算を行ってみたが, それぞれ, シリカの有無が viscosity にあまり寄与しない, 定常状態が溶媒並みの viscosity しか示さない, など実験と相容れない結果を与えるものであり, 今後の検討のためにはより適切なものを構築する必要がある.

参考文献:

- [1] M. Kamibayashi, H. Ogra, and Y. Otsubo, *Journal of Colloid and Interface Science*, **321**, 294–301, (2008). 表 2 のモデル構成は, シリカ 8 vol% (9 nm 径) / PEG 0.5w%(分子量 50 万)の実験系を参考にした.
- [2] R. D. Groot and K. L. Rabone, *Biophysical Journal*, **81**, 725-736 (2001). W 粒子の拡散係数を独自に計算し, この論文の方法に倣い τ_0 を算出した.
- [3] Z. Shen, H. Ye, M. Kroger, and Y. Li, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **19**,13294 (2017). 実際には「シリカ粒子のダイラタント特性に関するソフトウェア OCTA を使った粗視化シミュレーション」報告書の様に値を調整した.

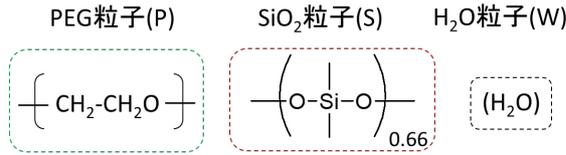


図 1. PEG 水溶液/シリカ粒子分散系の DPD 粒子(P, S, W)への粗視化. この粗視化により, エネルギー, 距離, 質量, 時間, viscosity の DPD 単位はそれぞれ $E_0 = k_B T$, $L_0 = 0.445 \text{ nm}$, $m_0 = 18 \text{ amu.}$, $\tau_0 = 24.7 \text{ psec}$ (1step = $10^{-2} \tau_0$), $\eta_0 = 1.1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ になる[2].

表 1. シミュレーションモデルの構成

	(-P-)1140 ^a	(W)	(S1139) ^b
1x1x1	4	87,402	7
2x2x2	32	699,216	56

a) P 粒子 1140 個を直鎖状に結合して PEG 分子をモデル化した(先行研究[3]の結合伸縮と偏角のポテンシャルを適用). b) S 粒子の面心立方格子から球状(直径 ~ 9 L_0)に領域を切りだしシリカクラスタを作成した(S-S 結合に調和ポテンシャル $r_0 = 0.78 L_0$, $k = 16.5 E_0$ を適用). これらのモデルの構成にはダイラタント現象の観測されている実験系の物質構成[1]を参考にしたが, 次のような実験系との相違がある: i) PEG 分子1本の鎖長が実験系の 1/10; ii) シリカ球の径が実験系の 1/2; iii) PEG の濃度が 10 倍大きい. i)と ii)は計算系のサイズを限定的にするためのもので, iii)は, PEG 濃度が実験系のままだと, 性質の違いが顕著に観測できない(純溶媒系とあまり変わらない)ので, その対処である. DPD 単位については図 1 脚注参照.

表 2. ソフトポテンシャル反発パラメータ(所謂 a_{ij} , $E_0 = k_B T$ 単位)

	a(P-P)	a(P-W)	a(P-S)	a(W-W)	a(W-S)	a(S-S)
SP1	25 ^a	26.3 ^a	25 ^c	25 ^a	25 ^c	35 ^b
SP2	25 ^a	26.3 ^a	20 ^c	25 ^a	30 ^c	35 ^b

a) 先行研究モデルの値[3]を適用. b) シリカクラスタが会合しないよう大きめの値に設定. c) SP1 では異種 DPD 粒子が特に強い親和性や排他性を特に持たないよう設定; 一方 SP1 では P 粒子と S 粒子が親和的になるよう設定.

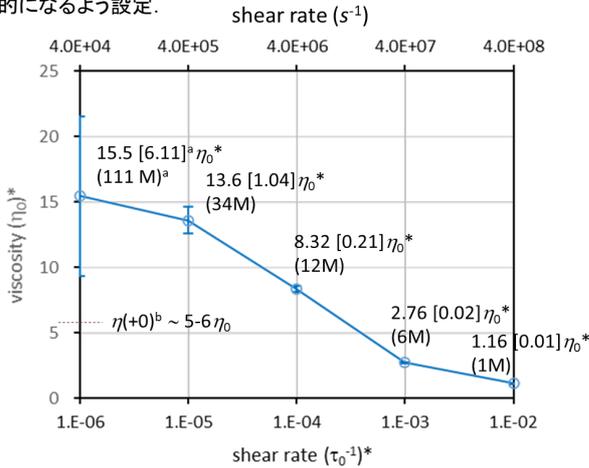


図 2. 2x2x2 モデル系の各剪断速度での viscosity 解析の結果: 記載の数値は平均値, 標準誤差(角括弧)と計算ステップ数(丸括弧). $\eta(+0)$ は Green-Kubo 法に基づき平衡系の計算データから解析. DPD 単位については図 1 脚注参照.

表 3. 構成の異なるモデル系の viscosity (η_0 単位)*

P+W+S	P+W	W+S	W	P'+W+S
7.70	9.94	0.88	0.55	0.98
[0.46]	[0.63]	[0.15]	[0.17]	[0.18]

*1x1x1 モデルを使用し剪断速度 $10^{-4}/\tau_0$ で計算. []は標準誤差.

P': ポリマ結合を寸断し2粒子分子にした. $\eta_0 = 1.1 \text{ mPa}\cdot\text{s}$.

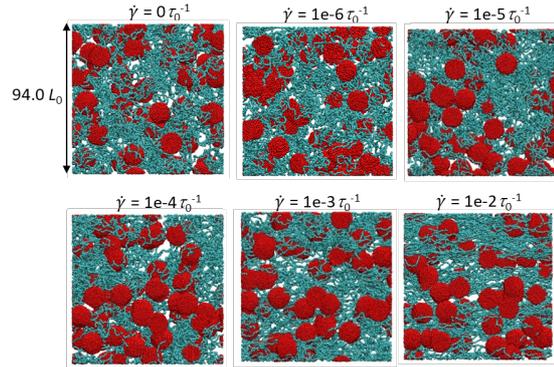


図 3. 2x2x2 モデルの各剪断速度での計算のスナップショット: P 粒子(シアン), S 粒子(赤), W 粒子は見やすさのためプロット省略. 剪断速度の方向は横軸(x 軸)方向で, 速度勾配の方向は縦軸(y 軸)方向である. DPD 単位については図 1 脚注参照.

表 4. 各剪断速度でのモデル系の構造パラメータ*

剪断速度	0/ τ_0	$10^{-6}/\tau_0$	$10^{-5}/\tau_0$	$10^{-4}/\tau_0$	$10^{-3}/\tau_0$	$10^{-2}/\tau_0$
$l(L_0)$	0.380 [0.016]	0.380 [0.016]	0.380 [0.016]	0.380 [0.016]	0.380 [0.016]	0.380 [0.016]
$\theta(\text{deg.})$	140.15 [0.009]	140.14 [0.070]	140.15 [0.066]	140.16 [0.066]	140.27 [0.010]	140.61 [0.072]
$d_{e-e}(L_0)$	34.6 [0.03]	34.8 [1.37]	37.2 [2.07]	59.5 [2.33]	123.8 [5.09]	154.2 [1.08]
$r_{gy}(L_0)$	15.3 [0.05]	15.3 [0.36]	16.0 [0.48]	23.3 [0.62]	45.7 [1.49]	59.7 [0.14]
$r_{gy-x}(L_0)$	7.78 [0.17]	8.03 [0.63]	9.10 [0.20]	19.99 [0.82]	44.92 [1.62]	60.52 [2.17]
$r_{gy-y}(L_0)$	8.81 [0.28]	8.74 [0.59]	8.38 [0.28]	7.43 [0.37]	5.07 [0.10]	3.14 [0.08]
$r_{gy-z}(L_0)$	8.61 [0.12]	8.42 [0.42]	8.94 [0.68]	7.78 [0.22]	6.72 [0.28]	4.18 [0.20]

*各エントリ: PEG 結合長と結合角 (l, θ), PEG 両端距離 (d_{e-e}), PEG 慣性半径とその x-z 成分 (r_{gy}, r_{gy-x} など). 剪断速度は x 軸方向, 速度勾配は y 軸方向. [] 内数値は標準誤差. 数値は DPD 単位で表現(DPD 単位については図 1 脚注参照).

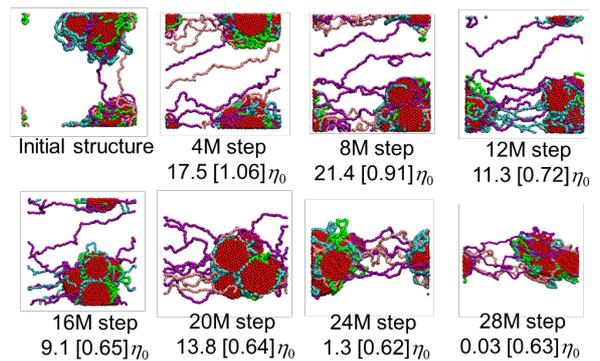


図 4. SP2 相互作用モデルを用いた計算における各ステップでの構造. P 粒子(シアン, 紫, 緑, ピンクで 4 個の PEG 分子を区別), S 粒子(赤), W 粒子は見やすさのためプロット省略. 剪断速度 ($10^{-4}/\tau_0$ で計算)の方向は横(x 軸)方向で, 速度勾配の方向は縦(y 軸)方向. 初期構造は平衡系のスナップショットから取った. 数値は viscosity の 4M ステップ区間平均と標準誤差(DPD 単位については図 1 脚注参照).

表 5. SP2 相互作用モデルによる計算結果 ($10^{-4}/\tau_0$ で計算)

step	$\eta(\eta_0)$	$l(L_0)$	$\theta(\text{deg.})$	$E_{\text{bond}}(E_0)$	$E_{\text{angle}}(E_0)$	$E_{\text{nb}}(E_0)$
ref.*	10.1	0.3800	140.18	15862.5	2322.29	468867
0-4M	17.5	0.3800	140.93	15856.1	2325.71	468885
4M-8M	21.4	0.3800	141.16	15855.8	2332.54	468911
8M-12M	11.3	0.3800	141.10	15853.8	2331.95	468886
12M-16M	9.11	0.3800	141.12	15854.2	2331.94	468852
16M-20M	13.8	0.3800	141.15	15853.5	2332.72	468852
20M-24M	1.31	0.3800	141.04	15855.0	2329.27	468830
24M-28M	-0.29	0.3800	141.03	15853.1	2328.92	468786

表 5. 前段の続き

step	$d_{e-e}(L_0)$	$r_{\text{gy}}(L_0)$	$r_{\text{gy } x}(L_0)$	$r_{\text{gy } y}(L_0)$	$r_{\text{gy } z}(L_0)$
ref.*	28.8	13.5	4.2	9.6	7.0
0-4M	52.3	21.4	16.0	8.7	7.6
4M-8M	97.1	34.0	30.5	7.4	6.8
8M-12M	90.6	31.5	28.5	5.8	6.3
12M-16M	88.8	31.0	27.4	5.4	6.9
16M-20M	88.3	30.5	27.3	5.4	6.3
20M-24M	68.7	25.9	22.7	3.9	6.7
24M-28M	51.9	22.2	18.9	4.1	6.8

*ref.: 平衡系(剪断速度 0)の結果. 各エントリ: viscosity(η), PEG 結合長と結合角(l, θ), ポテンシャルエネルギー成分(E_{xxx} , 結合伸縮・偏角と非結合相互作用), PEG 両端距離(d_{e-e}), PEG 慣性半径とその成分(r_{gy} , 剪断速度は x 軸方向, 速度勾配は y 軸方向). 数値は DPD 単位(図 1 脚注参照)で表現.

表 6. 前段の続き

step	$d_{e-e}(L_0)$	$r_{\text{gy}}(L_0)$	$r_{\text{gy } x}(L_0)$	$r_{\text{gy } y}(L_0)$	$r_{\text{gy } z}(L_0)$
ref.*	42.1	17.4	10.7	9.1	8.6
0-4M	61.5	23.2	17.0	12.5	6.9
4M-8M	83.9	30.6	27.4	9.9	6.6
8M-12M	89.4	31.5	28.7	7.9	8.6
12M-16M	66.6	25.1	22.2	7.1	8.3
16M-20M	74.5	28.1	25.1	8.3	7.9
20M-24M	80.8	28.9	25.5	8.3	8.5
24M-28M	58.5	22.5	19.8	6.6	6.7

*ref.: 平衡系(剪断速度 0)の結果. 各エントリ: viscosity(η), PEG 結合長と結合角(l, θ), ポテンシャルエネルギー成分(E_{xxx} , 結合伸縮・偏角と非結合相互作用), PEG 両端距離(d_{e-e}), PEG 慣性半径とその成分(r_{gy} , 剪断速度は x 軸方向, 速度勾配は y 軸方向). 数値は DPD 単位(図 1 脚注参照)で表現.

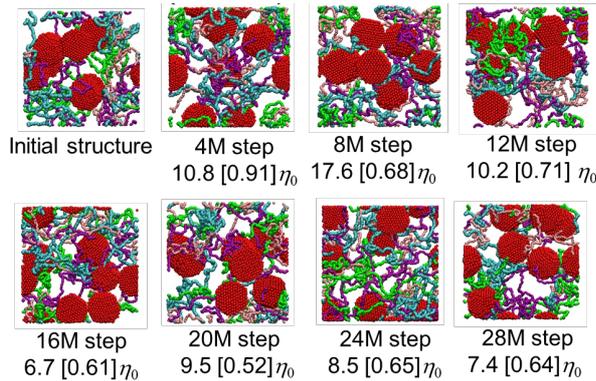


図 5. SP1 相互作用モデルを用いた計算における各ステップでの構造. P 粒子(シアン, 紫, 緑, ピンクで 4 個の PEG 分子を区別), S 粒子(赤), W 粒子は見やすさのためプロット省略. 剪断速度 ($10^{-4}/\tau_0$ で計算) の方向は横(x 軸)方向で, 速度勾配の方向は縦(y 軸)方向. 初期構造は平衡系のスナップショットから取った. 数値は viscosity の 4M ステップ区間平均と標準誤差 (DPD 単位については図 1 脚注参照).

表 6. SP1 相互作用モデルによる計算結果 ($10^{-4}/\tau_0$ で計算)

step	$\eta(\eta_0)$	$l(L_0)$	$\theta(\text{deg.})$	$E_{\text{bond}}(E_0)$	$E_{\text{angle}}(E_0)$	$E_{\text{nb}}(E_0)$
ref.*	~2	0.3800	140.12	16080.1	2318.38	469798
0-4M	10.8	0.3800	140.18	16079.1	2318.78	469797
4M-8M	17.6	0.3800	140.21	16080.0	2322.17	469785
8M-12M	10.2	0.3800	140.16	16079.4	2321.52	469793
12M-16M	6.7	0.3800	140.11	16082.0	2319.05	469802
16M-20M	9.5	0.3800	140.15	16080.2	2320.31	469798
20M-24M	8.5	0.3800	140.18	16079.9	2320.86	469794
24M-28M	7.4	0.3800	140.17	16080.6	2319.96	469796

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 二酸化炭素の分離回収におけるゼオライト構造の最適化
 英文: Optimization of zeolite structure for CO₂ separation

利用課題責任者 池田歩
 Ayumi Ikeda

所属 産業技術総合研究所
 National Institute for Advanced Industrial Science and Technology (AIST)
<https://www.aist.go.jp/>

邦文抄録(300 字程度)

二酸化炭素吸着に適したゼオライト構造を探索するため、二酸化炭素の分子径に近い細孔径をもつゼオライトについて、第一原理計算に基づく密度汎関数理論 (DFT) 計算を利用して、二酸化炭素の吸着エネルギーを算出した。まず、ゼオライトの組成 (Si/Al 比) ごとに、最安定エネルギーを計算し、各組成のゼオライト中に二酸化炭素を存在させたときのエネルギーを計算した。この結果、算出したチャバザイト型ゼオライトの CO₂ 吸着エネルギーは、実験値と良好に一致することを確認した。これより、DFT 計算を利用することで、分子動力学法やモンテカルロ法と異なり、ノンパラメータでゼオライトに対する CO₂ 吸着エネルギーが算出できることを示した。

英文抄録(100 words 程度)

Searching for zeolite structures suitable for carbon dioxide adsorption, we used DFT calculations based on the first-principles calculations to calculate the adsorption energy of carbon dioxide for zeolites with pore diameters close to the molecular diameter of carbon dioxide. First, the structure-optimized energy was calculated for each zeolite composition, and then the energy of carbon dioxide in zeolite structure was calculated. As a result, the calculated CO₂ adsorption energy of chabazite zeolite was confirmed to be in good agreement with the experimental value. This shows that the DFT calculation can calculate the CO₂ adsorption energy for zeolite with non-parameters.

Keywords: DFT calculation, CO₂ adsorbent, zeolite

背景と目的

カーボンニュートラルの実現には、省エネルギーな CO₂ 分離回収技術が必要である。分離回収プロセスで使用される CO₂ 分離材料は、CO₂ 分離回収プロセスの省エネルギー性能に大きな影響を及ぼす。ここでは、CO₂ 分離材料としてゼオライトに注目する。ゼオライトは、直径が 1 ナノメートル未満の細孔を有する結晶性無機材料であり、その CO₂ 吸着性能は細孔容積と組成によって決定される。細孔容積は骨格構造に依存し、組成は骨格内のアルミニウム含有量や対カチオンによって変化することが知られている。本研究では、第一原理計算に基づく DFT 計算 (RSDFT) を利用して、ゼオライト中の Al やカチオンの安定位置の特定、CO₂ 吸着エネルギーの算出を行う。本研究により、DFT 計算によって、ゼオライトの構造及び組成が CO₂ との相互材用に及ぼす影響を解明できれば、固体 CO₂ 吸着材

料の設計指針を確立でき、吸着材開発の加速化を期待している。

概要

本研究では、TSUBAME を利用して第一原理計算に基づく DFT 計算 (RSDFT) を実行できる環境を整えた。数種のゼオライトについて、アルミニウム含有量を変えた際の最も安定な構造とそのエネルギー CO₂ をゼオライト骨格内に配置したときのエネルギーを計算し、その差から吸着エネルギーを算出した。この結果、0.38 nm の細孔をもつチャバザイト型ゼオライトの CO₂ 吸着エネルギーが実験値と良好に一致することを示した。

結果および考察

はじめに、8 員環をもつチャバザイト型ゼオライトにつ

いて、アルミニウム(Al)原子とナトリウムイオンの安定位置を決定した。図 1 は、チャバザイト型ゼオライトの骨格構造を示す。チャバザイト型ゼオライトのユニットセルの組成は $\text{Na}_x\text{Al}_x\text{Si}_{36-x}\text{O}_{72}$ とし、Al 原子数 $x=1, 2$ (Si/Al 比=35, 17) で計算した。Si/Al 比=35 (ユニットセル内の Al 原子 1 個) のチャバザイト型ゼオライトについて、Al 原子を二重 6 員環と 4 員環の交点に配置したとき、ナトリウムイオンが 4 員環より 6 員環近傍にある方が -0.53 eV 安定であった。Al 原子とナトリウムイオンの距離に着目すると、ナトリウムイオンを 4 員環近傍に配置した場合、距離に近いほど構造最適化エネルギーは低くなり、安定であることが分かった。一方、ナトリウムイオンを二重 6 員環近傍に配置した場合、Al 原子とナトリウムイオンの距離が構造最適化エネルギーに有意な差を与えなかった。以後、二重 6 員環近傍にナトリウムイオンを配置した場合について考える。

Si/Al 比=17 (ユニットセル内の Al 原子 2 個) のとき、ナトリウムイオンが 6 員環近傍かつ各イオンが最も離れた位置にあるとき、もっともエネルギーが低くなった。

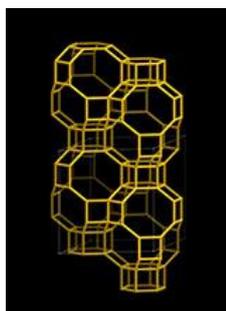


図 1 チャバザイト型ゼオライトの構造^[1]

次に、チャバザイト型ゼオライトに対する CO_2 の吸着エネルギーを算出した。式(1)に、 CO_2 の吸着エネルギーつまり、吸着熱 ΔH_{ads} と DFT 計算から得られるエネルギーの関係を示す。

$$\Delta H_{\text{ads}} = E_{\text{zeolite}+\text{CO}_2} - (E_{\text{zeolite}} + E_{\text{CO}_2}) \quad \dots(1)$$

ここで、 E_{zeolite} は構造最適化したゼオライト構造のエネルギー、 $E_{\text{zeolite}+\text{CO}_2}$ は CO_2 を配置して構造最適化したゼオライト構造のエネルギー、 E_{CO_2} は CO_2 分子がもつエネルギーを表す。

Si/Al 比=35 (ユニットセル内の Al 原子 1 個) のとき、Al 原子とナトリウムイオンの位置が CO_2 吸着熱に与え

る影響を検討した (表 1)。このとき、 CO_2 は二重 6 員環に対して垂直に配置して計算した。表 1 より、二重 6 員環の上面にナトリウムイオンが存在する場合 (A,B)、ナトリウムイオンが二重 6 員環内にある場合 (C) と比較して CO_2 吸着エネルギーは高いことが分かった。ここで、実験値の CO_2 吸着熱は 37.4 kJ mol^{-1} だったことから、現実のチャバザイト型ゼオライト膜中のナトリウムイオンは A や B の構造に近い可能性があると推察した。

表 1 Al 原子と Na イオンの位置が CO_2 吸着エネルギーに与える影響 (Si/Al 比=35, 黄: Na イオン, 赤: Al)

	A	B	C
二重6員環近傍の Al 原子と Na イオン			
CO_2 吸着エネルギー [kJ mol^{-1}]	37.4	41.4	21.6

次に、Si/Al 比の異なるチャバザイト型ゼオライトについて CO_2 の吸着熱を DFT 計算により求めたところ Si/Al=3~ ∞ において実験結果とよく一致することが明確になった。

まとめ、今後の課題

DFT 計算を利用することで、力学パラメータ無しで、チャバザイト型ゼオライトに関する CO_2 吸着エネルギーおよび拡散係数を算出できるようになった。今後、吸着等温線を描画するため、圧力依存性と温度依存性を表現することが課題である。

Reference

- [1] Ch. Baerlocher and L.B. McCusker, Database of Zeolite Structures:
<http://www.iza-structure.org/databases/>

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 臨床情報統合データベースの機械学習解析
 英文: Machine Learning for Integrated Database of Clinical Information

利用課題責任者 浅井 聡
 Satoshi Asai

所属 日本大学 医学部 生体機能医学系 薬理学分野
 Department of Pharmacology, School of Medicine, Nihon University
<https://nu-pharmacology.com>

本課題は医療データベースから生活習慣病に関する知見を抽出するためにノンパラメトリックベイズ法の効率的な大規模アルゴリズムを実装することを目的とする。特にノンパラメトリックベイズ法においてスパース性と潜在変数を扱えるモンテカルロアルゴリズムを構築し、データの背後にある潜在的医学生物学的メカニズムを抽出しつつこれに最も影響を与えるリスク要因を明らかにしようとする。この目的で、申請者のグループが開発した新奇な手法を GPU アクセラレーターを利用して大規模データベースに適用可能にする。本年度は既存のアルゴリズムを GPU にオフロードし高速化することに成功し、これを改変することで提案法のコードを開発した。

We aim at extracting information about biophysiological mechanisms and key factors for the onset and progression of metabolic diseases from a large volume of electric medical records. For this purpose, we develop an efficient, sparse nonparametric Bayesian algorithm with latent variables based on Monte-Carlo sampling. In the fiscal year 2021, we succeeded to develop a code that drastically accelerates a conventional algorithm by using GPU accelerators, and then, we developed a code for our new method by modifying this code.

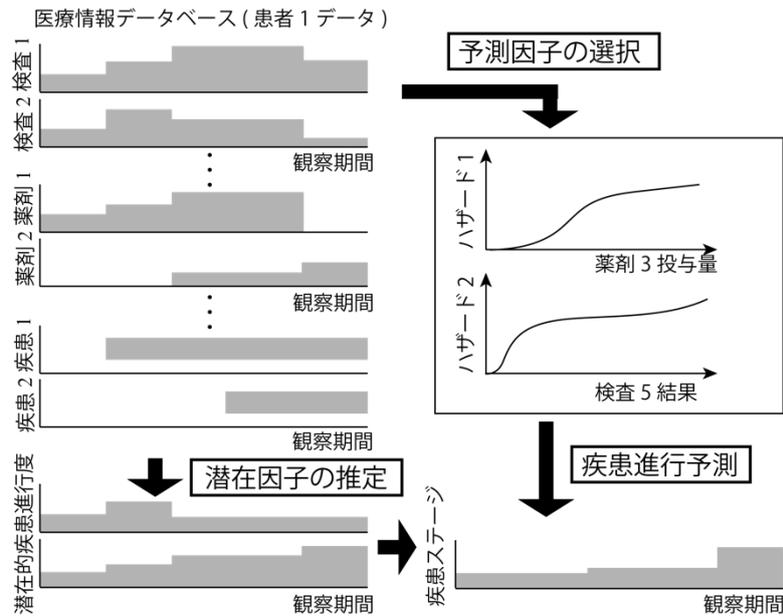
Keywords: electric medical record, nonparametric Bayes, Monte-Carlo algorithm, GPU computing, metabolic diseases

背景と目的

近年、電子カルテデータなどを含む大規模な医療データベースから薬剤の効果・疾患リスクなどの医学的知見を機械学習・人工知能技術を用いて抽出する試みが注目を集めている。実際に、世界各国の大学病院や地域中核病院の電子カルテデータを用いた解析が行われはじめており[1,2]、さらに適切な倫理的な枠組みのもと、電子カルテデータに患者から採取した遺伝・生化学的測定データを組み合わせ、これを患者個別医療に役立てようとする試みがはじまっている。

しかしながら、近年の機械学習・人工知能技術の発展にもかかわらず、上記のような大規模医療データから有益な医学的知見を抽出するためには解決すべき技術的課題が複数存在する。例えば、医療データベースの解析では薬剤投与・検査値推移・疾患発症など数千以上の予測変数から疾患進行を予測しようとするが、実際に疾患進行に影響する変数は少数であり、変数選択を効率的に行う必要がある。また臨床医が判断する重症度のような潜在変数の情報をアルゴリズムによっ

て推定できることも必要だ。これらを変数間の非線形関係も考慮しながら行うことは、潜在変数付きノンパラメトリックベイズモデルでスパースな変数選択を行う問題に帰着される(次ページ図参照)。上記のような潜在変数付きのノンパラメトリックベイズの枠組みにおいて、医療データベースのような大規模データ上でスパースかつ効率的な推定に成功した研究はまだ存在しない。先行研究のほとんどで潜在変数のモデリングは巧妙に避けられている。実際、医療データに限らずノンパラメトリックベイズモデルにおける潜在変数の推定やスパース変数選択は、機械学習一般の問題として依然として困難な問題の一つであり、効率的な解法が模索されている[3]。申請者のグループは、下にも述べるように、この問題を解決しうる新奇なアルゴリズムと一定の理論的保証を得たので、本課題において TSUBAME を利用した大規模実装を行いこの手法の有用性を示そうとする。本年度はこの実装に一定の進展があったので報告する。



図： 医療情報データベースに基づく疾患進行予測と予測因子・潜在因子の推定

概要

上記「背景と目的」に述べたように、大規模医療データベースから医学的知見を引き出すには潜在変数付きのノンパラメトリックベイズモデルにおいて効率的な変数のスパース選択を可能にする必要がある。申請者のグループではこれを可能にするモンテカルロアルゴリズムを設計し、その理論的性能保証を得た。そこで実際に大規模医療データベースに適用するための大規模実装を開発し、その性能を実証しようとする。特にTSUBAMEの複数GPU環境を利用することで大規模データでも現実的な時間内に推論が可能であることを示し、さらにアルゴリズム面でも従来法との比較において提案手法の優位性を示す。その後、倫理委員会の承認を経た上で実際の匿名化データにアルゴリズムを適用し医学的有用性を示す。

結果および考察

提案法を実装する準備として、非ベイズの設定におけるマルチカーネル学習の従来法をTSUBAME3.0上で大規模実装し、動作確認を得た。電子カルテデータで想定される百万サンプル×数百～数千予測変数での計算をC++とOpenaccにより、全てGPUにオフロードすることで高速計算が

可能となった。この従来法の実装は申請者らの提案法との比較において役立つとともに、この実装の改変によって提案法を実装していくための実験コードとして役立つと期待される。実際、この結果から申請者らは提案法の場合の大規模実装の見通しを得るとともに、実装されたコードを改変しながら提案法のコードの開発も進めることができた。

まとめ、今後の課題

TSUBAMEでの課題に取り組み始めて4ヶ月であり課題解決にさらに時間を要するが、もう数ヶ月で提案法の実装が完了する見通しである。完了後はベンチマーク用データを用いてアルゴリズムの性能を従来法と比較し、提案法の有用性を示し論文発表する。また、倫理委員会の承認を経て実際の医療データにアルゴリズムを適用していく。

参考文献

- [1]S. Lee and H.-S. Kim J Lipid, Atheroscler. (2021) 10(3):282-290
- [2]M. Chowdhury et al., Front. Psychiatry (2021) 738466
- [3]M. Gönen, Proceedings of ICML (2012)

TSUBAME 共同利用 令和3年度 学術利用 成果報告書

CFD 解析を用いた卓球ボールの空力特性の計算
Calculation of aerodynamic characteristics of table tennis ball using CFD analysis

伊藤建一
Kenichi Ito

新潟工科大学
Niigata Institute of Technology
<https://www.niit.ac.jp/>

申請者は、有限要素法ソフト COMSOL を用いて、卓球ボール周りの流れを CFD 解析することにより、高精度に空力特性計算したいと考えている。本申請では、TSUBAME の実行環境整備及びアプリケーションの利用可能性について調査を行なった。その結果、COMSOL の遠隔実行を成功させ、さらに実行速度がどの程度改善されるか確認した。

The applicant would like to calculate the aerodynamic characteristics of a table tennis ball with high accuracy by CFD analysis of the flow around the ball using the finite element method software COMSOL. In this application, we investigated the execution environment of TSUBAME and the possibility of using the application. As a result, we succeeded in remotely executing COMSOL, and also confirmed how much the execution speed could be improved.

Keywords: table tennis, aerodynamic, CFD, COMSOL

背景と目的

卓球ボールは小型軽量であり、ラケットに貼付されているゴム製のラバーによってボールに回転をかけやすいため、ボールに働く空気力の影響によって飛翔する軌道が大きく変化するという特徴がある。卓球の競技力向上には、空気力の影響によってどのように軌道が変化するかを把握しておくことが求められる。

申請者は、CFD 解析によって求められた空力特性に物理運動特性を考慮した飛翔軌道シミュレーターの開発を試みている。本研究では、有限要素法ソフト COMSOL を用いて、卓球ボール周りの流れを CFD 解析することにより、高精度に空力特性計算する予定である。この CFD 解析にはマシンパワーが必要な計算を多くのパターンで実行する必要がある。本申請では、TSUBAME の実行環境整備及びアプリケーションの利用可能性について調査を行ない、以下の成果を得た。

1. 研究室のパソコンで COMSOL ライセンスサーバーを起動し、TSUBAME 上にインストールされた COMSOL を遠隔から実行することに成功した。

2. 研究室で作成した COMSOL の流体サンプルモデルを用いて複数のノードで実行し、実行速度がどの程度改善されるか確認した。

概要

TSUBAME の利用開始日は令和 4 年 1 月 28 日であり、利用可能期間は 2 か月程度であった。また、申請者は TSUBAME のようなスパコンは未経験であったので、今回の申請の主目的は、TSUBAME 上での COMSOL の実行環境整備であった。なお、COMSOL ライセンスはトライアルのため有効期間が 1 か月であった。この期間内で、申請者は上記目的を達成することができた。

また、計算ノード数を増やすことによる計算時間の改善についても 2 種類のモデル(モデル A とモデル B)を用いて簡易的に確認した。モデル A は、研究室のパソコン(CPU:Core i7-7820X 3.6GHz)で 802 秒と短時間で計算が終了するもので、TSUBAME のノード数を 1, 4, 6, 8, 16 に変更して計算時間を確認した。モデル B は、研究室のパソコンで 1376 分と比較的長時間で計算が終了するもので、TSUBAME のノード数を 1, 4, 8,

10, 12, 16 に変更して計算時間を確認した(ただし, ノード数 16 ではエラーにより計算が終了しなかった.).

結果および考察

図 1 と図 2 に各モデルの計算時間を示す. どちらのモデルにおいても, 計算ノード数 8 個の時に最も計算時間が短くなった. 計算時間は, 計算ノード 1 個と比較して, それぞれ約 42%と約 29%まで減少した. また, 研究室のパソコンと比較すると, それぞれ約 31%と約 15%まで減少した. なお, 計算結果は, 計算ノードを増やしてもほぼ同じであった.

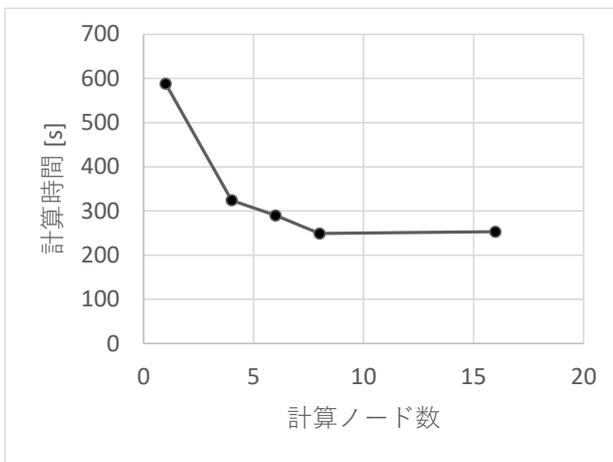


図 1 モデル A の計算時間

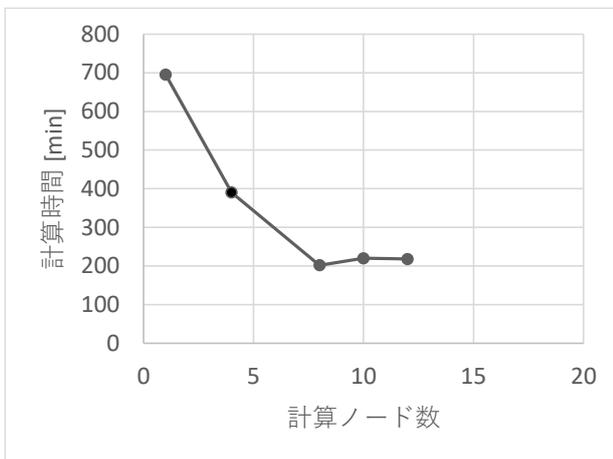


図 2 モデル B の計算時間

まとめ、今後の課題

今年度の利用期間は 2 か月と短かったため, 当初から COMSOL の実行環境整備及びアプリケーションの利用可能性の調査を目的とした. 来年度以降は, 今年度の成果にもとづいて, 実際に COMSOL を用いて空力特性を計算したいと考えている.

東京工業大学 TSUBAME 共同利用 令和3年度利用終了課題 利用成果報告書集

発行 : 令和5年 5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。