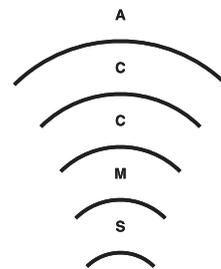


京都大学学術情報メディアセンター

Academic Center for Computing and Media Studies, Kyoto University

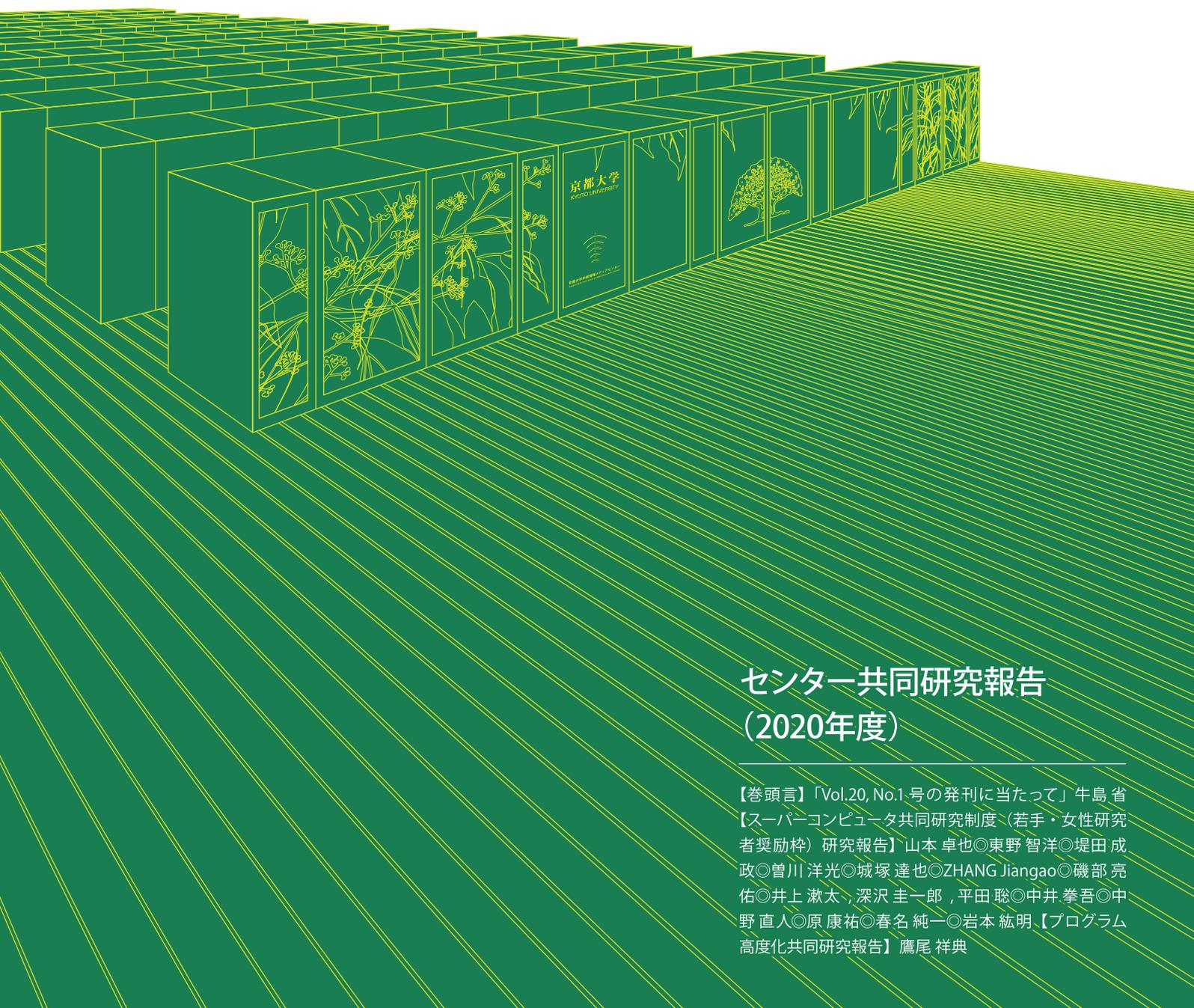


広報

全国共同利用版

Vol.20, No.1 2021

ISSN 1347-3581



センター共同研究報告 (2020年度)

【巻頭言】「Vol.20, No.1号の発刊に当たって」牛島省
【スーパーコンピュータ共同研究制度（若手・女性研究者奨励枠）研究報告】山本 卓也◎東野 智洋◎堤田 成政◎曾川 洋光◎城塚 達也◎ZHANG Jiagao◎磯部 亮佑◎井上 漱太、深沢 圭一郎、平田 聡◎中井 拳吾◎中野 直人◎原 康祐◎春名 純一◎岩本 紘明【プログラム高度化共同研究報告】鷹尾 祥典

Vol.20, No.1 号の発刊に当たって

京都大学学術情報メディアセンター 牛島 省

本号では、京都大学学術情報メディアセンターにおいて実施された2020年度の共同研究報告について特集いたします。2020年度は、13件の「若手・女性研究者奨励枠」と1件の「プログラム高度化共同研究」による共同研究が実施されました。

学術情報メディアセンターでは、スーパーコンピュータ共同研究制度として、「若手・女性研究者奨励枠」、「大規模計算支援枠」、「プログラム高度化共同研究」という3種類の研究支援事業を実施しています。課題募集は年度開始前後に行われます。また、年度途中で追加募集が実施される場合があります。応募された課題の採否は、スーパーコンピュータ共同研究企画委員会にて審査されます。本共同研究制度への応募方法や申込み時期等の詳細につきましては、<http://www.iimc.kyoto-u.ac.jp/ja/services/comp/support/kyodo/>をご参照下さい。

上記の共同研究制度のうち、「若手・女性研究者奨励枠」の応募資格は、(1)40歳未満の若手研究者(学生を含む、性別は問わない)、あるいは、(2)女性研究者(年齢は問わない)、とされています。この「若手・女性研究者奨励枠」では、スーパーコンピュータを利用することで学術的にインパクトがある成果を創出できる課題に対して、計算機利用負担金の全額または一部を本センターが負担しています。さらに、「若手・女性研究者奨励枠」は、JHPCN(学際大規模情報基盤共同利用・共同研究拠点)の活動の一環と位置づけられており、優れた課題は、JHPCNの萌芽型共同研究へ推薦されます。推薦された課題は、JHPCNシンポジウムにてポスター発表を行うことが可能となるなどの特典がありますので、是非この共同研究制度をご活用ください。

本号に掲載された13件の「若手・女性研究者奨励枠」の研究成果報告では、複雑流体および流体構造連成問題、リモートセンシングによる環境モニタリング、ウマの群れの個体間の力学モデル計算、各種の分子動力学計算、量子化学計算、第一原理計算などに加え、データ駆動型予測モデルや機械学習に関する課題など多様な研究が行われ、全国7大学の若手・女性研究者の研究をサポートいたしました。なお、JHPCNの萌芽型共同研究には6件の課題が採択されました。

「大規模計算支援枠」は、タイプAでは128ノード×2週間、タイプBでは64ノード×2週間までの計算資源・期間をご利用頂くことが可能な共同研究制度で、利用負担金は本センターが全額負担するものです。2020年度は応募がありませんでしたが、大規模計算の実施を希望される方はご検討ください。

また、「プログラム高度化共同研究」では、京都大学のスーパーコンピュータをグループコースまたは専用クラスタコースでご利用の研究者(JHPCNおよびHPCIにて京都大学のスーパーコンピュータを利用する研究者も含む)を対象に、プログラムの制御構造・データ構造の改良による性能チューニングや並列化手法の改良、問題分割・負荷分散方式などの改良による大規模計算プログラムの高度化・高性能化などを支援しています。2020年度は、「高周波加熱と磁気ノズルを利用した無電極プラズマ推進機の2次元軸対称プラズマ粒子計算」という課題のプログラム高度化支援を行いました。この共同研究では、スレッド並列化とそれに伴う解法の変更を行い、当該ルーチンに対して、約18倍(18スレッド使用時)の性能向上を実現しました。同時に、他のルーチンに対しても細部に配慮したスレッド並列化を行いました。

今後も皆様の研究、教育にご活用いただけるようにセンター教職員も尽力していきますので、ご利用・ご支援のほど、よろしくお願い申し上げます。

機械攪拌中浮遊油膜巻き込みメカニズムの解明

山本 卓也

東北大学大学院工学研究科金属フロンティア工学専攻

1 緒言

循環型社会構築が叫ばれている中、リサイクルの優等生として知られているアルミニウムが再注目されている。リサイクル時には不純物元素を分離する必要があるが、一部の元素は溶融アルミニウム中へ溶融塩を機械的に攪拌しながら吹き込み、不純物を溶融塩中へと移行し、分離する。この処理では溶融金属-溶融塩界面における物質移動が重要となるが、吹き込まれた溶融塩は一度溶融金属表面へと浮上した後、再度巻き込まれ、物質移動が促進される[1]。このため、浮上した溶融塩の巻き込み機構を解明することが重要となる。

機械攪拌中の浮遊した油相巻き込みメカニズムに関してはこれまで研究がほとんどない。例えば、気液の2相流における機械攪拌では、Kulkarni and Patwardhan によって界面における乱流強度と巻き込みに関係性がある[2]とされ、著者らは表面渦形成が巻き込みに寄与する[3]と報告している。しかしながら油膜巻き込みまでを対象としたものはなく、そのメカニズムは明らかでない。

本研究では、数値解析を利用して機械攪拌中の浮遊した油膜巻き込みメカニズムを解明することとした。

2 数値解析手法

対象として、内径 192 mm の円筒容器に 320 mm まで水を満たし、その上に 20 mm の 1 cSt のシリコンオイル層を配置した。円筒容器中心に翼端直径 60 mm の 4 枚パドル翼を配置した。回転数を 25 rpm 毎に変更し、油膜巻き込みメカニズムを解明した。

支配方程式として Navier-Stokes 式、連続式を用

いた。本系においては気液液三相流を計算する必要がある。そこで、混相流モデルとして代数的に界面再構築を行う多相 Volume of Fluids (VOF)法を利用することとした。このモデルでは体積分率 α の保存方程式を複数解くことで界面位置を決定する。

$$\frac{\partial \alpha_k}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_i} (\bar{u}_i \alpha_k) + \nabla \cdot (\bar{u}_r \alpha_k (1 - \alpha_k)) = 0 \quad (1)$$

ここで、 t は時間、 u は速度、 x は座標、 u_r は相対速度である。流体率 α は以下のように定義される。

$$\alpha_k = \begin{cases} 0 & \text{Other phase} \\ 0 < \alpha < 1 & \text{Interface} \\ 1 & \text{Phase } k \end{cases} \quad (2)$$

また、相対速度 u_r は界面を代数的に再構築するために、圧縮項としてモデル化[4]した。表面張力モデルとして CSF モデル[5]を導入し、界面曲率計算時に Laplace Filter [6]を導入した。

Sliding grid を利用して攪拌翼を直接回転させ、Arbitrary Mesh Interface 境界条件を回転、非回転領域界面に利用した。Large Eddy Simulation を利用し、サブグリッドスケールモデルには 1 方程式渦粘性モデルを利用した。境界条件としては、攪拌槽上部は自由流入出条件とし、それ以外は壁面条件であるとした。流れを発達させるために、15 秒間の計算を行い、その後評価を行った。

3 結果と考察

回転数を上昇するに従い、油膜振動が大きくなり、175 rpm の際に巻き込みが生じた。また、この巻き込み条件は実験と同様であった。巻き込み発生時の現象を詳細に解明するため、175 rpm における液面変動を調査する。Figure 1 に油水界面、油空気界面の高さ分布を示す。ここで、界面位置

は体積分率が 0.5 の位置を示す。油水界面形状は大きく変形するものの、油空気界面形状はほとんど変形しない。

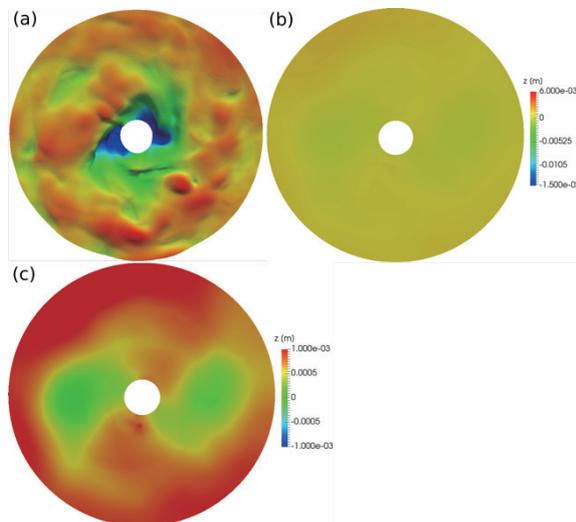


Fig. 1 Snapshot of height distribution at (a) the oil-water interface, (b) the water-air interface and (c) the water-air interface with a different color contour.

Figure 2 に油水界面形状の時間変化を示す。カラーコンターは高さを表す。攪拌翼によって生じた回転流によって皺状の界面変形が生じ、油領域が伸張され、最終的に断片化される。つまり、この皺状の変形が巻き込みの起点となる。

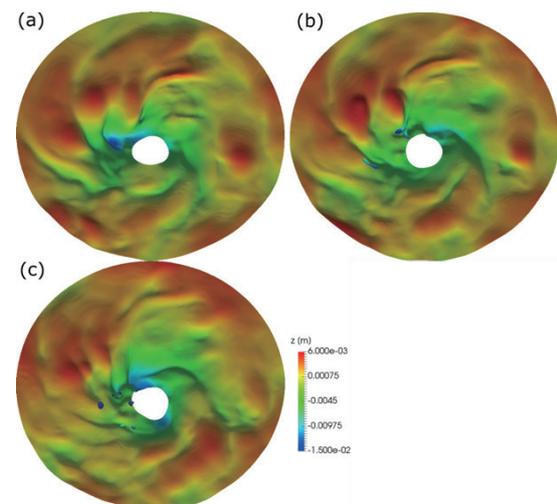


Fig. 2 Time variation of height distribution at the oil-water interface during the oil layer entrainment. Time interval of each picture is 0.1 sec.

この皺状の変形が生じた理由を明らかにするた

め、皺状変形の生じている油水界面付近の速度分布を Fig. 3 に示す。凹み部付近では衝突する下降流が発生し、その剪断力によって油膜が変形したため、最終的に断片化されたと考えられる。

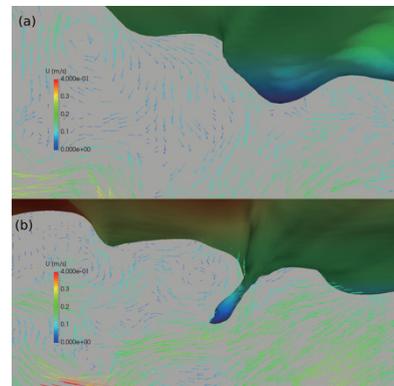


Fig. 3 Velocity vectors near the water-oil interface (a) before and (b) at the moment of oil layer entrainment.

4 結言

攪拌操作中の浮遊した油膜巻き込みメカニズムを数値解析によって解明した。水中沈み込み流れによって皺状に油水界面が変形し、その変形度が大きくなることにより断片化し、巻き込みが生じることがわかった。

謝辞

本研究制度(若手・女性研究者奨励枠)を活用させて頂いたことを、この場を借りて厚く御礼申し上げます。

参考文献

- [1] T. Yamamoto *et al.*, Metall. Mater. Trans. B, (in press).
- [2] A. L. Kulkarni, A. W. Patwardhan, Chem. Eng. Res. Des. **92** (2014) 1227-1248.
- [3] T. Yamamoto *et al.*, Chem. Eng. J. **367** (2019) 25-36.
- [4] H. Rusche, Ph.D. Thesis of Imperial Collage of Science, Technology and Medicine, London (2002).
- [5] J. U. Brackbill *et al.*, J. Comput. Phys. **100** (1992) 335-354.
- [6] D. A. Hoang *et al.*, Comput. Fluids **86** (2013) 28-36.

高効率有機系太陽電池の実現に向けた光機能性分子の構造と

電子物性の相関説明

東野 智洋

京都大学大学院工学研究科 分子工学専攻

1 緒言

ポルフィリンは400–450 nmにSoret帯と呼ばれる強い吸収と550–600 nmにQ帯と呼ばれる中程度の吸収をもち、増感色素として有望である。近年では、 π 共役系の拡張やプッシュ-プル構造の導入による光捕集能や電子移動特性の向上の結果、レドックス対としてヨウ素レドックス対、コバルトレドックス錯体と組み合わせることで10%を超える変換効率が達成されるようになってきている。近年になり、色素増感太陽電池において銅レドックス錯体を用いて1Vを超える開放端電圧が達成され、大きな注目を集めているが^[1]、現在、ポルフィリン色素と銅レドックス錯体を組み合わせて、高い光電変換効率を実現するには至っていない^[2]。これは、銅レドックス錯体からポルフィリン色素への電子移動効率が悪いためであると考えられる。そのため、電子移動が効率的に起こるよう、十分な酸化還元電位差を確保

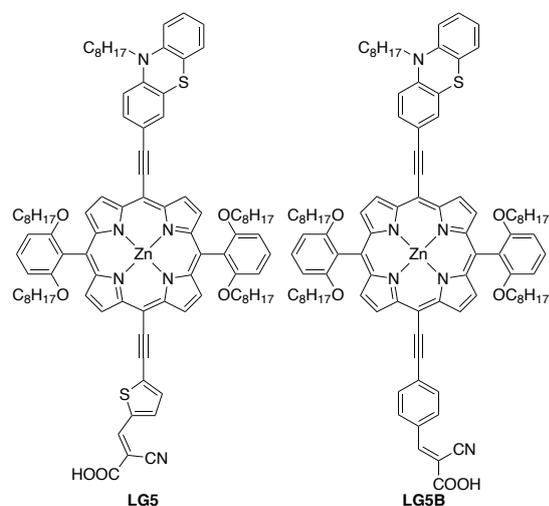


Figure 1. Molecular structures of porphyrin dyes.

したポルフィリン色素を設計・合成することで、ポルフィリン色素でも銅レドックス錯体の利点である高い開放端電圧を実現し、高い光電変換効率が達成できると考えた。そこで本研究では、HOMOの準位を調節したポルフィリン色素LG5およびLG5Bを設計・合成した (Figure 1) ^[3]。

2 結果と考察

2.1 ポルフィリン色素の物性と太陽電池性能評価

ポルフィリン色素 LG5, LG5B と銅レドックス錯体として[Cu(dmp)₂]^{1+/2+}, [Cu(tmby)₂]^{1+/2+} (Figure 2) を用いた色素増感太陽電池セル性能の評価を行った。[Cu(dmp)₂]^{1+/2+}を用いた場合、色素として LG5 と LG5B を用いたセルでの光電変換効率はそれぞれ 3.03% と 3.98%であった。一方、[Cu(tmby)₂]^{1+/2+}を用いた場合には LG5 と LG5B を用いたセルでの光電変換効率はそれぞれ 4.36% と 5.07%となり、[Cu(dmp)₂]^{1+/2+}を用いた場合よりも高い値となった。これまでのポルフィリン色素と銅レドックス錯体を組み合わせた色素増感太陽電池における光電変換効率の最高値は 3.7%^[2]であり、[Cu(tmby)₂]^{1+/2+}と LG5B を用いることで、ポルフィリン色素と銅レドックス錯体を組み合わせた場合の太陽電池性能の最高値を更新した。

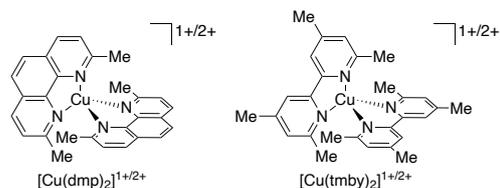


Figure 2. Copper(I/II) redox shuttles.

銅レドックス錯体 $[\text{Cu}(\text{dmp})_2]^{1+2+}$, $[\text{Cu}(\text{tmby})_2]^{1+2+}$ の酸化還元電位はそれぞれ 0.96 V, 0.94 V vs NHE である一方で、ポルフィリン色素 **LG5**, **LG5B** の酸化電位はそれぞれ 1.00 V, 1.01 V vs NHE であることから、銅レドックス錯体からポルフィリン色素への電子移動におけるドライビングフォースは、銅レドックス錯体として $[\text{Cu}(\text{tmby})_2]^{1+2+}$ を用いた場合に大きくなることがわかった。さらに、**LG5** よりも **LG5B** を用いた場合にドライビングフォースが大きくなることがわかった。また実際に、ドライビングフォースが大きいほど電子移動が効率的に起こるようになることで太陽電池性能が向上した結果、 $[\text{Cu}(\text{tmby})_2]^{1+2+}$ と **LG5B** を用いた場合に最も高い太陽電池性能を示すことを明らかにした。

したがって、HOMO の準位を調節して十分な酸化還元電位差を確保できるポルフィリン色素を設計・合成することで、さらなるエネルギー変換効率の向上が実現できると期待できる。

2.2 理論計算

ポルフィリン色素の最安定化構造およびそのフロンティア軌道の電子構造について知見を得るために、Gaussian09 プログラムを用いて密度汎関数法 (DFT) による理論計算を行った (B3LYP/6-31G(d))。ポルフィリン色素 **LG5**, **LG5B** の HOMO の準位はそれぞれ -4.77 eV, -4.73 eV であり、**LG5B** を用いた場合に電子移動のドライビングフォースが大きくなることが支持された。また、ポルフィリン色素 **LG5B** の構造は、**LG5** とほぼ同じであるが、分子全体での曲がった構造が抑えられていることがわかった。分子が曲がった構造を取っていると、酸化チタン表面に色素が接近しやすくなり、酸化チタンからの逆電子移動が起こりやすいため、曲がった構造を抑えることで、逆電子移動を抑制できたと考えられる。また、色素 **LG5B** のシアノアクリル酸部分における HOMO の軌道分布は、色素 **LG5** のシアノアクリル酸部分における HOMO の軌道分布よりも小さくなっていった。吸着基として働くシアノアクリル酸部分の HOMO の軌道分布が小さいと、酸化チタンからの逆電子移動が起こりにくくなり、太陽電池性能の低下を抑制できることが知られている。これらの要因により、**LG5B** を用いた場合に太陽

電池性能の向上に繋がったと考えられる。このように、本計算結果は実験結果の理論的解釈の一助となった点で意義がある。

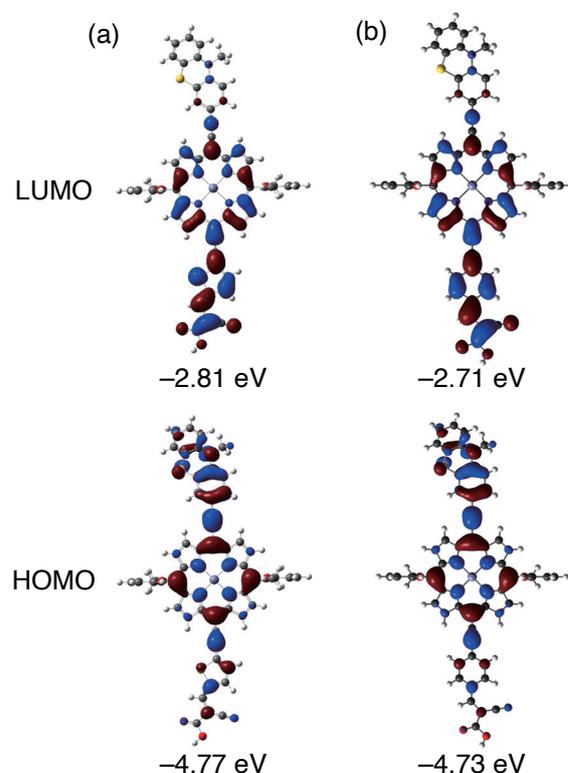


Figure 3. Selected Kohn–Sham orbitals for (a) **LG5** and (b) **LG5B** obtained by DFT calculations with the B3LYP/6-31G(d) level. To simplify the calculations, octyl and octyloxy groups on the *meso*-aryl groups were replaced with methyl and methoxy groups, respectively.

3 参考文献

- [1] Y. Saygili, M. Söderberg, N. Pellet, F. Giordano, Y. Cao, A. B. Muñoz-García, S. M. Zakeeruddin, N. Vlachopoulos, M. Pavone, G. Boschloo, L. Kavan, J.-E. Moser, M. Grätzel, A. Hagfeldt, M. Freitag, *J. Am. Chem. Soc.* **2016**, *138*, 15087.
- [2] A. Colombo, G. Di Carlo, C. Dragonetti, M. Magni, A. Orbelli, M. Birolì, M. Pizzotti, D. Roberto, F. Tessore, E. Benazzi, C. A. Bignozzi, L. Casarin, S. Caramori, *Inorg. Chem.* **2017**, *56*, 14189.
- [3] T. Higashino, H. Iiyama, I. Nishimura, H. Imahori, *Chem. Lett.* **2020**, *49*, 936.

時系列リモートセンシングデータによる全球陸域統合環境モニタリング

堤田 成政

埼玉大学大学院理工学研究科

1 はじめに

人工衛星による地球観測が 1980 年代から活発化し、これまでに膨大な衛星観測データが蓄積されてきた。それに伴い、断片的に撮影されてきたデータを経時的に、かつ全球的にくまなく利用可能とする観測データの整備が進められてきた。本研究では、そのような大規模な時系列リモートセンシングデータをもちい、気候変動や人為的改変の陸域への影響を明らかにし、気候変動予測や緩和策のための科学的知見を提供することを目的とする。具体的には、過去 37 年における森林増加／減少、農地拡大、砂漠化といったグローバルに起こる土地被覆のダイナミクスを、リモートセンシングデータおよび既存土地被覆プロダクトを統合的に分析し明らかにする。全球レベルで過去の陸域観測から蓄積された AVHRR CDR (Vermote et al., 2019) の日次データ (空間解像度約 5km) をもちいて、1982-2018 における土地被覆変動のダイナミクスをモデル化する。使用データは米国の NOAA より無償提供されているプロダクトを使用するが、データ量が膨大であり通常のワークステーションでの処理には限界がある。そのためスーパーコンピュータを利用し研究を実施する。

2 手法

過去 37 年間の土地被覆変動をモデル化するにあたり、土地被覆の地上参照データを収集することが必須である。ここでは DISCover (1992-1993, 空間解像度 1km) (Loveland et al., 2000), GLC2000 (2000, 空間解像度 1km) (Bartholome

et al., 2005), GlobCover (2005, 空間解像度 300m) (Arino et al., 2007) の過去の土地被覆データに着目し、9 つの分類クラス (1. Evergreen/Deciduous Needleleaf Trees; 2. Evergreen/Deciduous Broadleaf Trees; 3. Mixed/Other Trees; 4. Shrubs; 5. Herbaceous Vegetation; 6. Cultivated and Managed Vegetation; 7. Non (Sparse) Vegetation; 8. Snow/Ice, and 9. Water-related) において AVHRR CDR データと同様の空間解像度に再集計し、均一な土地被覆を示したピクセルを地上参照データとした。AVHRR CDR は、観測バンドを 6 つ有した全球をカバーする日次データであり、これを一年毎の平均、標準誤差を算出しまとめた。

これらのデータを一年ごとに XGBoost classification に適用した。しかしながらこの方法のみでは、作成された一年ごとに独立した土地被覆分類図が有する分類誤差や誤分類により時間軸上で正しく土地被覆ダイナミクスを表現することができない (Post classification comparison problem)。そのため、一年ごとの分類確率に着目し、これを時系列データとしてピクセルごとに多項ロジスティック回帰を適用し、土地被覆変動をモデル化した。

3 結果

1 年毎の土地被覆分類図を作成した (図 1)。均一な地域内での分類精度は平均で約 96% となった。対象とした 37 年間では「Evergreen/Deciduous Needleleaf Trees」, 「Cultivated and Managed Vegetation」, 「Non (Sparse) Vegetation」が増加した一方で、その他

の土地被覆は減少傾向を示した (図 2). 地域レベルでみると, サブサハラの地域で「Non (Sparse) Vegetation」から「Herbaceous Vegetation」へ, またブラジル南東部では「Evergreen/Deciduous Broadleaf Trees」から「Cultivated and Managed Vegetation」への土地被覆変化が顕著であった.

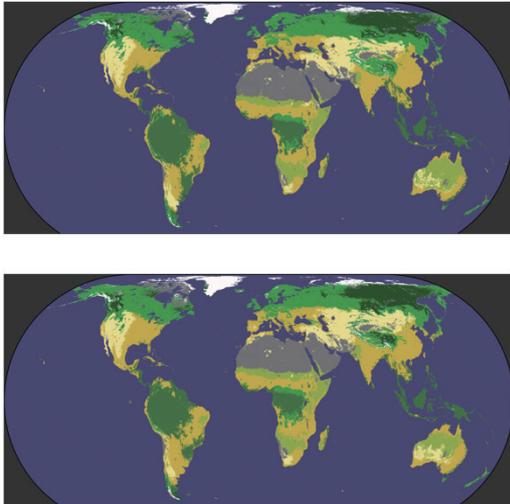


図 1 : 土地被覆図ダイナミクスの例 (1985, 2015 年)

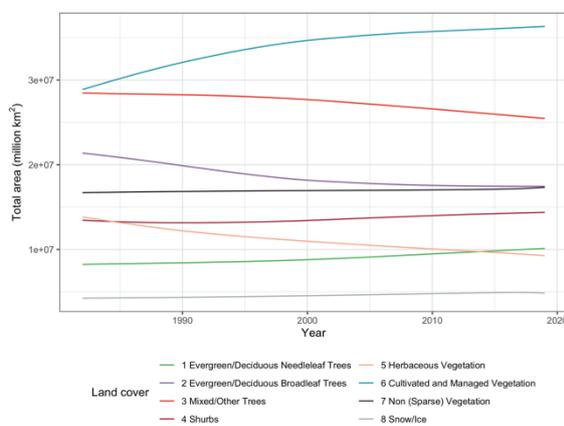


図 2 : 各土地被覆分類クラスの総面積推移

4 おわりに

本研究では, 1982~2018 年の土地被覆変動を地球観測データをもとにしてモデル化を試みた. 全体的な傾向の把握には成功した一方で, 細かな課題として, (i) 時空間土地被覆参照データの収集方法の再検討, (ii) 類似の土地被覆分類プロダクトとの比較, (iii) 分類結果の不確実性 (mixed pixel

problem) があげられる. 今後はこれらの課題を中心に引き続き研究をすすめ, 論文化をすすめた

5 謝辞

本研究では, 京都大学学術情報メディアセンターの共同研究制度 (若手奨励枠) を活用させていただきました.

6 参考文献

- [1] Arino, O., Gross, D., Ranera, F., Bourg, L., Leroy, M., Bicheron, P., ... Weber, J.-L. (2007). GlobCover: ESA service for Global Land Cover from MERIS. In I. 2007 (Ed.), Geoscience and remote sensing symposium, 2007 (pp. 2412–2415). IEEE.
- [2] Bartholome, E., & Belward, A. S. (2005). GLC2000: A new approach to global land cover mapping from Earth observation data. *International Journal of Remote Sensing*, 26(9), 1959–1977.
- [3] Eric Vermote, Chris Justice, Ivan Csiszar, Jeff Eidenshink, Ranga Myneni, Frederic Baret, Ed Masuoka, Robert Wolfe, Martin Claverie and NOAA CDR Program (2019): NOAA Climate Data Record (CDR) of AVHRR Surface Reflectance, Version 5. NOAA National Centers for Environmental Information.
- [4] Hansen, M. C., DeFries, R. S., Townshend, J. R., & Sohlberg, R. (2000). Global land cover classification at 1 km spatial resolution using a classification tree approach. *International Journal of Remote Sensing*, 21(6-7), 1331–1364.
- [5] Loveland, T. R., Reed, B. C., Brown, J. F., Ohlen, D. O., Zhu, Z., Yang, L., & Merchant, J. W. (2000). Development of a global land cover characteristics database and IGBP DISCover from 1 km AVHRR data. *International Journal of Remote Sensing*, 21(6-7), 1303–1330.

自己集合性 1,3,5-Tri(benzimidazolyl)benzene 誘導体の構造解析

曾川 洋光

関西大学化学生命工学部

1 緒言

超分子は水素結合や π - π 相互作用等の非共有結合性の分子間相互作用を駆動力として集合構造を形成する。とりわけ C_3 対称性を有する π 共役化合物は、分子が規則正しく捻れながら柱状にスタックした超分子構造を形成する。例えば Meijer らは側鎖に不斉炭素を有する C_3 対称 benzene-1,3,5-tricarboxamide 誘導体が、溶液中・固体状態のいずれにおいてもキラルな集合体を形成することを報告している¹⁾。一方、ベンズイミダゾール誘導体は蛍光性の複素環化合物であり、薬剤徐放システムの構成成分等として注目されている²⁾。筆者らは、アミノ酸由来の不斉源を導入した C_3 対称 1,3,5-tri(benzimidazolyl)benzene (TBIB) 誘導体 (**1**) が、非極性溶媒中においてキラルな集合体を形成することを実験的に明らかとしている (図 1)³⁾。本研究では、**1** の集合体が溶液中で形成する集合体構造について、計算化学的手法により知見を得ることを目的とした。

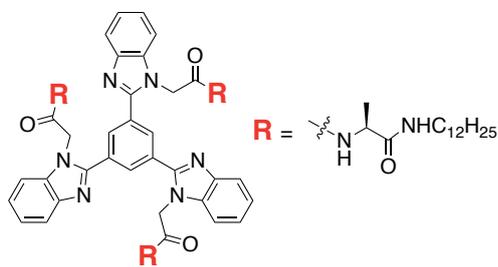


Figure 1. Chemical structure of **1**

2 実験

まず **1** の単量体に対して Gaussian 16 を利用し、DFT 法を用いた構造最適化および TD-DFT 法によ

るスペクトルシミュレーションを行なった。また、その集合体構造に関する知見を得るため、**1** の八量体構造に対しても構造最適化を検討した。いずれの計算も ONIOM 法を利用した。長鎖アルキル基は Law layer とし、力場には UFF を選択した。それ以外の構造を High layer とし、汎関数および基底関数にはそれぞれ ω B97X-D, 6-31G(d,p)を使用した。

3 結果・考察

図 2 に **1** の CHCl_3 中および $\text{CHCl}_3/\text{MeOH}$ 混合溶媒中で測定した CD および UV-vis スペクトルを示す。その他の測定結果と併せ、**1** は MeOH の添加に伴い、 CHCl_3 中で形成していた集合体構造が崩壊し、単量体として存在することが示唆されている。図 3 には **1** の単量体の最適化構造を示す。**1** はコア部分に近い位置に存在するアミド結合間が分子内水素結合を形成した構造を安定に取ることが示唆された。またスペクトルシミュレーションの結果、**1** は単量体で 250 nm 付近に π - π^* に由来する吸収を示し、CD シグナルは MeOH を添加した際に観測されるものと近い形状を示した (図 4)。このことから **1** は極性溶媒の添加に伴い、単量体として存在することが計算科学的にも立証された。続いて集合体構造に関する知見を得るため **1** の八量体の構造最適化を行なった。図 5 に構造最適化途中の構造を示す。初期構造としては、**1** を一般的な π スタッキング間距離である 3.5 間隔で配置し、左巻きに各ユニット間で 45° の捻れを持たせた。計算プログラムは継続的に進行しているものの、構造最適化は完了しておらず、現在までのところ **1** の集合構造を予測するには至らなかった。

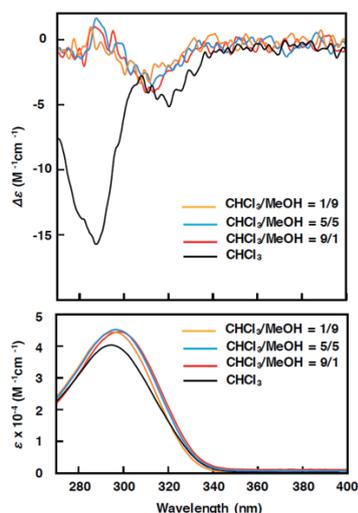


Figure 2. CD and UV-vis absorption spectra of **1** measured in CHCl₃/MeOH ($c = 0.02$ mM) at 20 °C.

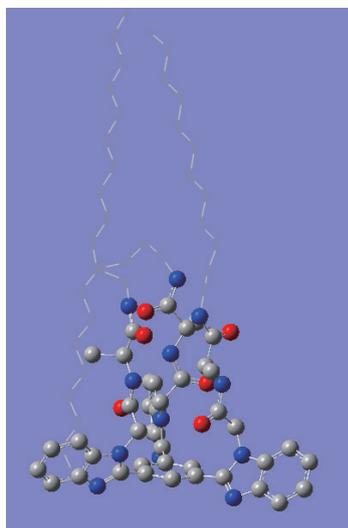


Figure 3. Optimized structure of **1**.

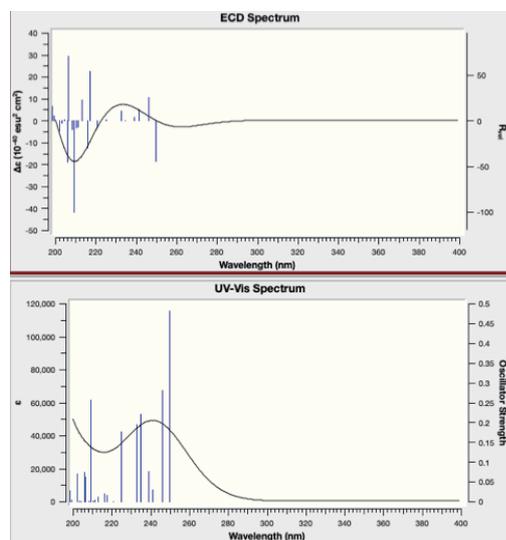


Figure 4. Simulated CD and UV-vis spectra of **1**.

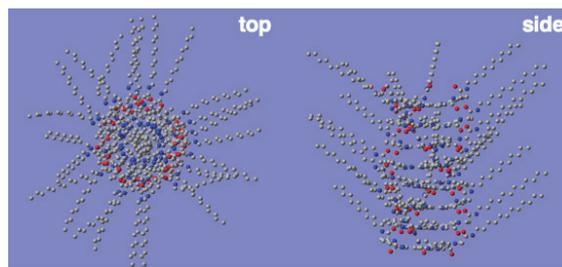


Figure 5. Chemical structure of 8-mer of **1**. Note that this structure is in the middle optimization.

4 まとめと今後の展望

本研究では、**1**の超分子集合構造に関する情報を得るため、その単量体の構造最適化およびスペクトルシミュレーションを実施した。その結果、MeOHといった極性溶媒の添加時に、**1**が単量体構造で存在していることが計算科学的にも示唆された。今後の展望とし、その集合構造に関する構造最適化およびスペクトルシミュレーションの結果が得られることで、この事実はより明確に示されると考えられる。これまで**1**の八量体を用いて超分子集合体における各種計算を実施していたが、分子数も多く、計算が収束するのに多大な時間を要していた。そこで、計算コストを抑えるため、分子数を減らした四量体モデルに対し、各種計算を実施し、その集合構造に関する情報收拾を継続して行う予定である。

5 謝辞

本共同研究制度(若手奨励枠)を活用させて頂きましたことを、この場を借りて感謝致します。

6 引用文献

1. C. Kullkarni, E. W. Meijer, A. R. A. Palmans, *Acc. Chem. Res.* **50**, 1928–1936 (2017).
2. H. Meng, M. Xue, T. Xia, Y.-L. Zhao, F. Tamanoi, J. F. Stoddart, I. Zink, A. E. Nel, *J. Am. Chem. Soc.* **132**, 12690–12697 (2010).
3. T. Mizukoshi, H. Sogawa, F. Sanda, *Polym. Prepr. Jpn.* **70**(2), 3Pd024 (2021).

界面分光の分子動力学シミュレーション

城塚 達也

茨城大学工学部物質科学工学科

1 はじめに

埋もれた界面における電荷移動などの化学反応は生体機能や触媒反応など様々な分野で重要である。近年分光などの実験技術の向上により、その分子レベルでの反応メカニズムが明らかになってきた。理論計算の高精度化が求められている。しかし、実験を解析できる高精度な計算手法は発展途上である。そこで本研究では、**Constrained DFT (CDFT)法**などを用いて界面構造・ダイナミクスを解析する。特に、本研究では酸化チタン界面などにおける構造やダイナミクスを調べる。最終的に、第一原理分子動力学 (MD) シミュレーションを用いて固液界面をシミュレーションし、界面分光の1つである和周波発生 (SFG) 分光法を解析する。

2 手法

まず、CDFT法をケイ酸水溶液におけるプロトン移動に応用し、電荷移動反応のシミュレーション手法を構築した。これまでのシミュレーションでは化学反応を記述する反応座標は結合長などの構造を用いることが多かった。配位数はそのシンプルさ・扱いやすさから幅広い計算プログラムパッケージで利用可能であるため、多くの計算例がある。しかし、配位数には次の2つの問題があるため、電荷移動の反応座標には適していない：1. パラメーター依存性。2. 電荷移動 (溶媒和座標) が良く記述できない: エネルギー差 (溶媒和座標) では分離できる生成物前後の構造が配位数では記述できない。

そこで、本研究では **Constrained density**

functional theory (CDFT)法を用いてドナーとアクセプターのエネルギー差を反応座標に採用する。[1, 2] この座標は分子の形状に依存しないため、固液界面などの不均一な系でのプロトン移動をシミュレーションするための一般的な手法を開発することができた。プログラムパッケージは **cp2k** を用いて、ケイ酸の脱プロトン化反応をシミュレーションした。自由エネルギー曲面の計算では自由エネルギー摂動法を使用した。

続いて、酸化チタン光触媒におけるポーラロン移動に CDFT 法を応用した。特に、**Low-pressure chemical vapor deposition** による実験との共同研究により、(112) 面が特に高い反応性を示すことが分かったため、この界面でのホールの安定性を調べる。[3] ホールが局在する酸素原子に CDFT 法を用いて正電荷を局在させた。シミュレーションには **anatase** 表面を用いる。**Generalized gradient approximation (GGA)** に基づく汎関数では局在したホールは安定化しないため、本研究では CDFT 法と **Hartree-Fock** 交換エネルギーを 10.5% 混合した **hybrid** 汎関数を用いる。

3 結果

ケイ酸の脱プロトン化反応をシミュレーション (**Fig. 1 top**) では、自由エネルギー摂動法を用いて計算されたケイ酸の脱プロトン化の自由エネルギー変化は **13.9 kcal/mol** となり実験値の **13.5 kcal/mol** と良い一致を示した。CDFT 法により高精度に反応自由エネルギー曲面を計算することがわかった。一方で、3点近似やガウス近似を用いると自由エネルギー変化はそれぞれ **12.4 kcal/mol** と **40.3 kcal/mol** となりより正確

な自由エネルギー摂動法による結果と異なる。よって、化学精度 (約 1 kcal/mol) が求められる計算の場合、近似的手法ではなく自由エネルギー摂動法を用いる必要があるとわかった。

アナターゼ型酸化チタン界面での計算 (Fig. 1 bottom) では、ヒドロキシ基がない場合ではアナターゼ型酸化チタン表面でホールは安定に局在化しないのに対し、ヒドロキシ基がある場合ではヒドロキシ基にホールが安定に局在することがわかった。これにより、アナターゼ型酸化チタン表面ではヒドロキシ基にホールが流れ、光触媒による酸化反応が進行すると考えられる。加えて、アナターゼ型酸化チタンでは(101)面が熱力学的に安定であるが、(112)や(001)表面の方がより安定にホールをトラップすることが判明した。この結果は(112)面における実験で見られた高い反応性を支持している。(001)表面での反応性はよくわかっていたが、(112)面の報告例は少ないため、今後の酸化チタンを使った光触媒材料開発にとって有益な知見である。

4 おわりに

界面での脱プロトン化をシミュレーションするための CDFT 分子動力学シミュレーションを応用し、自由エネルギー摂動法により高精度な自由エネルギー曲面を計算する手法を構築した。今後は、酸化チタン・水界面での水分子の役割や異なる界面における反応性の違いなどを解析する予定である。以上で計算した界面について、現在界面分光スペクトルの計算法の構築をしている。申請者の先行研究[4-6]をさらに拡張し、分光スペクトルからわかる界面構造と光触媒反応メカニズムを議論する予定である。

謝辞

本研究では、京都大学学術情報メディアセンターの共同研究制度 (若手奨励枠) を活用させていただきました。

参考文献

- [1] T. Joutsuka and K. Ando, *J. Phys. Chem. B*, 124 (38), 8323–8330, 2020.
 [2] T. Joutsuka and K. Ando, *Chem. Lett.*, 50

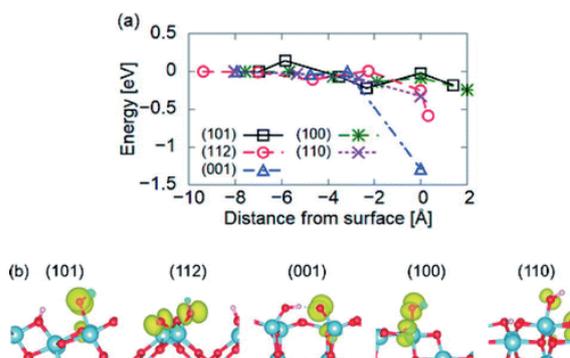
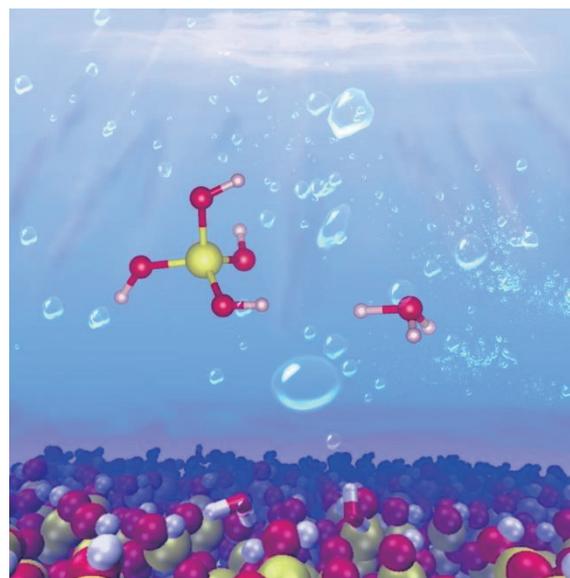


Figure 1. (Top) Aqueous silicic acid. (Bottom) Hole trapping energy at the anatase surfaces.

(7), 1325–1328, 2021.

[3] T. Joutsuka, H. Yoshinari, and S. Yamauchi, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, 94 (1), 106–111, 2021.

[4] S. K. Reddy, R. Thiriaux, B. A. W. Rudd, L. Lin, T. Adel, T. Joutsuka, F. M. Geiger, H. C. Allen, A. Morita, and F. Paesani, *Chem*, 4 (7), 1629–1644, 2018.

[5] T. Joutsuka, T. Hirano, M. Sprik, and A. Morita, *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 20 (5), 3040–3053, 2018.

[6] T. Joutsuka and A. Morita, *J. Phys. Chem. C*, 122 (21), 11407–11413, 2018.

Numerical simulation of thermal-solutal Marangoni convection in a shallow rectangular model with mutually perpendicular temperature and concentration gradients

ZHANG Jiangaο

Graduate School of Engineering Science, Osaka University

1 Introduction

Marangoni convection usually takes place in a liquid layer with the free surface due to the variation of free surface tension, which is driven by temperature and/or concentration gradients. This convection has been of interest for researchers due to its rich dynamical features and also for its widely existence in nature and industrial processes, such as oceanography, droplets, thin-film coatings, and crystal growth.

Numerous fruitful research findings on Marangoni convection have been reported in recent years [1-3]. However, all these studies considered only the cases of mutually parallel thermal and concentration gradients in a rectangular cavity. To the best of our knowledge, the case of mutually perpendicular gradients has not been considered yet. It would be an interesting phenomenon to investigate since it occurs in some processes such as painting and drying. In this work, we perform a series of three-dimensional numerical simulations to study thermal-solutal Marangoni convection in a shallow rectangular cavity under the effect of mutually perpendicular thermal and concentration gradients to shed further light on flow characteristics and pattern transitions.

2 Numerical method

In the simulation model we consider a cavity filled with a fluid as shown in Fig.1. The top boundary is the free surface while the other boundaries are the cavity walls. The Cartesian coordinate system is adopted. The length, width, and depth of the cavity are L , L and $0.1L$, respectively. A high and low temperature values, T_h and T_l , are set at the left and right boundaries, and the concentration values of C_h and C_l are prescribed at the back and front boundaries.

The conservation of mass, momentum, energy, and mass transfer are adopted as the governing equations of the fluid flow. In this study, the computations have been performed for the fluid with $Pr=0.01$ and $Sc=1$.

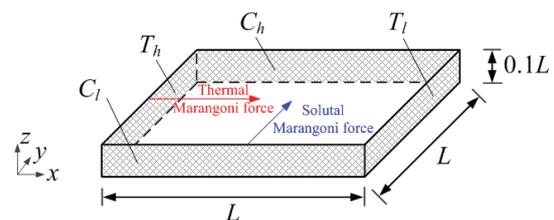


Fig. 1 Numerical simulation domain. The red and blue arrows respectively indicate the directions of thermal and solutal Marangoni flows.

3 Results and discussion

When the solutal Marangoni number exceeds the critical Marangoni value, the thermal-solutal

Marangoni flow bifurcates to an oscillatory flow. Figure 2 shows the time dependencies of temperature, concentration and longitudinal velocity at the sampling point (A) at $(x, y, z) = (0.5, 0.5, 0.1)$ when $Ma_T = 1 \times 10^4$ and $Ma_C = 3 \times 10^4$. The velocity oscillation, V_y , due to the inertial effect of the fluid flow always delays, and there is a phase difference between temperature, concentration, and velocity. Their coupling results in the hydrothermal wave (HTW) and hydrosolutal wave (HSW) instability on the free surface [4].

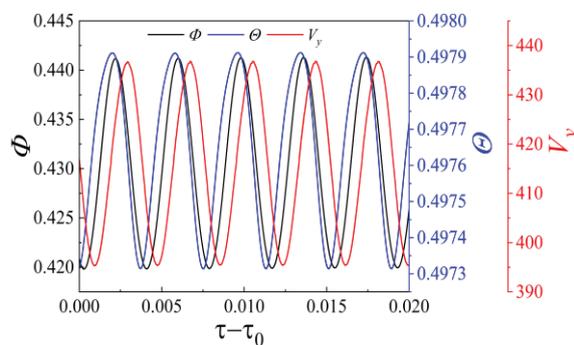


Fig. 2 Time variation of the velocity, temperature, and concentration values at point A at $Ma_T = 1 \times 10^4$ and $Ma_C = 3 \times 10^4$.

It is noteworthy that the flow undergoes a backward transition from the oscillatory flow to a chaotic one at around $Ma_T \approx 5 \times 10^4$, then to an oscillatory pattern again when Ma_T is around 3×10^4 . As demonstrated in Fig. 3, the longitudinal velocity V_y at the sampling point is quasi-periodic for $Ma_C = 6 \times 10^4$, but the flow velocity fluctuates irregularly in time when $Ma_C = 5 \times 10^4$. Although, as the solutal Marangoni number increases, the temporal complexity of the flow reduces from the chaotic pattern to the secondary oscillatory flow, the spatial flow pattern changes from two vortices to five coherent vortices shown in Fig. 4. As a result, the overall complexity of the flow increases, and the backward transition from chaotic to oscillation is reasonable.

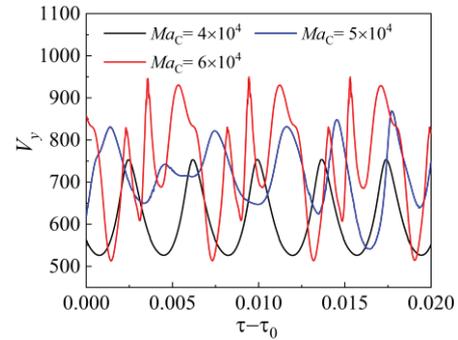


Fig. 3 Time dependencies of the velocity V_y with various solutal Marangoni numbers Ma_C at point A.

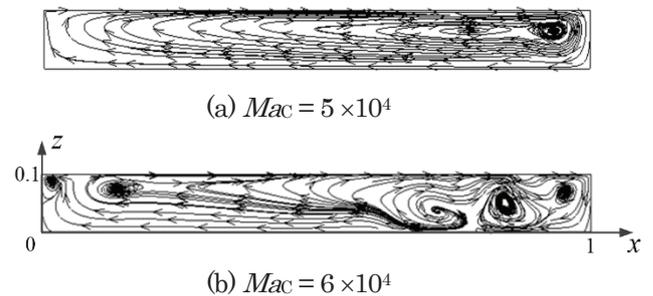


Fig. 4 Streamlines at the mid-y plane ($y = 0.5$) when $Ma_T = 3 \times 10^4$.

4 Conclusion

Generally, the flow pattern changes from a steady flow, oscillatory flow, and to a chaotic state with the increase of solutal Marangoni effect for each Ma_T . In addition, the phase lag is observed for oscillatory flow. Also, a backward transition from chaotic to oscillation is encountered at $Ma_T = 3 \times 10^4$.

5 Reference

- [1] T. Bergman, *Phys. fluids*, **29** (1986) 2103.
- [2] Z.-W. Chen, et al., *Phys. fluids*, **22** (2010) 034106.
- [3] J.-M. Zhan, et al., *Phys. Rev. E*, **82**, (2010) 066305.
- [4] M. K. Smith, *Phys. fluids*, **29** (1986) 3182.

浮遊培養法による iPS 細胞作製技術の最適化を目的とした流動解析

磯部亮佑

大阪大学基礎工学研究科物質創成専攻化学工学領域

1 緒言

人工多能性幹 (iPS) 細胞は、際限のない自己複製能と多分化能を有することから再生医療への応用が期待されており、実用化に向け大口径容器を用いた浮遊培養法による iPS 細胞大量作製技術の構築が求められている。しかし、細胞に作用するせん断応力の増大や、細胞凝集塊の沈殿、培養液内物質の不均一な濃度分布などが要因となり、iPS 細胞の死滅が引き起こされてしまうため、攪拌操作の最適化は必須である[1]。

回転翼を用いた最も一般的な攪拌槽では、翼近傍の局所的なせん断応力が問題となるのに対し、培養槽を円軌道上に揺動する振とう攪拌では容器底面中心部に凝集塊が堆積してしまう[2]。本研究では、せん断応力の制御が比較的容易な振とう攪拌に焦点を当て、凝集塊の浮遊を達成する最適な操作条件の検討を数値解析によって行う。数値解析は、コスト及び評価の定量性の観点から有用である。本稿では、培養液内の細胞塊挙動の数値解析結果の妥当性を検証する。

2 数値解析手法

解析領域は、内径 280 mm、高さ 150 mm の円筒容器とし、この容器が半径 25 mm の円軌道上を一方向に角速度 ω rpm で揺動される。初期条件では、容器は静止しており、高さ 32.5 mm までを水、その他の領域を空気で満たされているものとする。また、細胞凝集塊は球状固形粒子として近似され、計算開始時においては容器底面上に均一に配置されているものとする。

支配方程式は連続式と Navier-Stokes 方程式である。解析には計算コスト削減のため realizable $k-\varepsilon$ 乱流モデルを用いた。気液界面の計算には

VOF 法を適用した。粒子の挙動解析には、個々の粒子に対して以下に示す Newton の運動方程式を適用した。

$$m_p \frac{d\mathbf{v}_p}{dt} = \mathbf{F}_d + \mathbf{F}_g + \mathbf{F}_l + \mathbf{F}_{vm} - m_p \mathbf{a}_c \quad (1)$$

ここで、 m_p は粒子の質量、 \mathbf{v}_p は粒子の速度、 t は時間、 \mathbf{a}_c は容器の遠心加速度である。式(1)の右辺はそれぞれ粒子に作用する力をモデル化したもので、 \mathbf{F}_d は流体抗力、 \mathbf{F}_g は粒子に作用する正味の重力、 \mathbf{F}_l は揚力、 \mathbf{F}_{vm} は仮想質量力を表している。本解析モデルは回転座標系であり、容器の揺動により流体及び粒子に作用する遠心力は、各方程式に外力項として加えることで考慮されている。粒子間の衝突及び粒子が流動に及ぼす影響を考慮せず、粒子と壁は完全弾性衝突すると仮定した。粒子数は 3 万個、粒子径は 0.175 mm、粒子の比重は 1.08 とした。

流体に対する各支配方程式の離散化には有限体積法を用いた。時間の離散化手法として 1 次精度 Euler 陰解法、空間の離散化手法として 2 次精度中心差分法、速度圧力連成手法として PIMPLE アルゴリズムを利用し、オープンソースの流体解析ソフトウェアである OpenFOAM を用いて解いた。計算格子数は約 260 万であった。流体解析コードの信頼性は、気液界面形状及び速度分布を実験結果と比較することで確認した[3]。

粒子挙動解析の再現性の検証は、実験映像との定性的な比較によって行った。粒子を円筒容器の底面上に均一に配置し、静置させた状態から円軌道上を一方向かつ一定速度で容器を 30 秒間揺動する。実験の初期条件や操作条件、流体及び粒子の物性を数値解析と同等とし、流動と粒子の挙動を容器の上面と側面の 2 方向から撮影した。

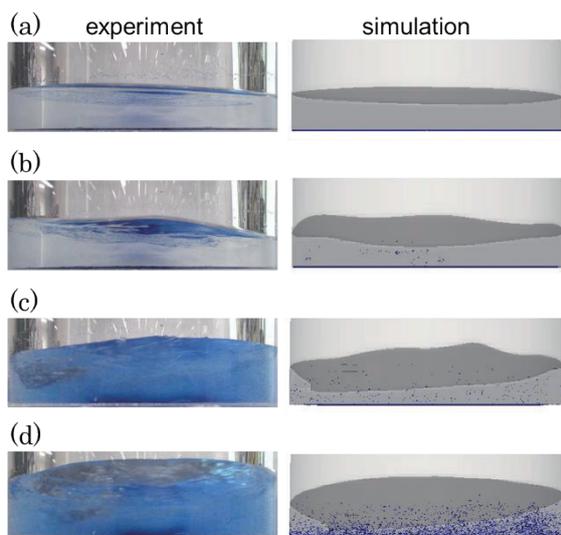


Fig. 1 The behavior of particles (blue dots) in the vessel after 30 seconds: (a) at $\omega = 30$ rpm, (b) 40 rpm, (c) 50 rpm, and (d) 60 rpm.

3 結果と考察

攪拌開始 30 秒後の側面からの槽内可視化図を Fig. 1 に示す。実験と数値解析、双方において角速度が 50 rpm 以上で一定量の粒子が浮遊することを確認できる。しかし、数値解析では浮遊する粒子の量が過小評価されているように見受けられる。したがって現在の解析モデルでは、ある操作条件に対して粒子が浮遊するかどうかの傾向をつかむことは可能であるが、正確な浮遊率を算出することはできないと考えられる。

攪拌開始 30 秒後の容器上面図を Fig. 2 に示す。実験結果から、沈殿した粒子が容器中心部でリングを形成するように分布している。これは数値シミュレーションにおいても正確に再現されている。粒子が底面でリング状に分布するメカニズムを明らかにするために、容器底面近傍における液相の鉛直速度分布を可視化したものを Fig. 3 に示す。容器側面付近では上昇流が、中心部では下降流が形成されており、その間には鉛直方向速度が 0 となる領域が存在する。つまり、液相の対流によって中心部まで運ばれた粒子は、下降流によって沈降したのち粒子に鉛直方向の力が作用しない領域まで運ばれ、そこに停滞する。その結果粒子はリング状に凝集していくと考えられる。

上記結果をまとめると、粒子に作用する水平方向の力は正確にモデリングされているが、鉛直方

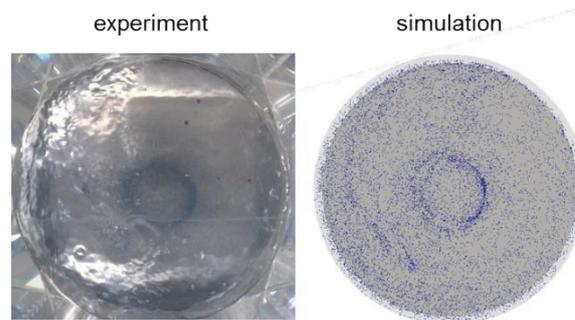


Fig. 2 The distribution of particles (blue dots) in the vessel after 30 seconds at $\omega = 60$ rpm.

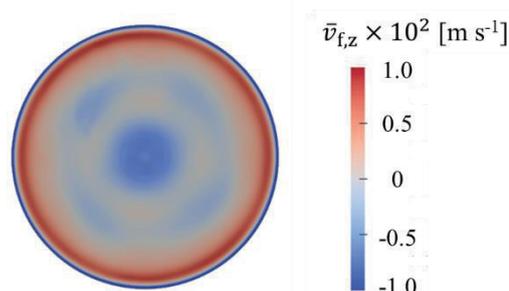


Fig. 3 The distribution of the vertical velocity field near the bottom surface ($z = 0.01$ m).

向の力が過小評価されている。粒子に作用する水平方向の力とその寄与の大きさは、各項のオーダーから $F_d \gg F_l \approx F_{vm}$ である。一方で鉛直方向の力については、 $F_d \approx F_l > F_g \gg F_{vm}$ である。したがって、揚力項 F_l のモデル定数の最適化が必要であると考えられる。

4 結言

振とう攪拌槽内の粒子の挙動を解析する数値モデルを開発し、その再現性を検証した。容器底面における粒子の分布は正確に再現されていたが、粒子の浮遊量が過小評価されており、揚力項のモデル定数の最適化が必要であることが分かった。

参考文献

- [1] L. Adamo *et al.*, *Nature*, **459**, 1131-1137 (2009).
- [2] T. Yamamoto *et al.*, *Chem. Eng. Jpn.*, **51**, 423-430 (2018).
- [3] M. Yano *et al.*, *ASEAN J. Chem. Eng.*, **1**, 73-81 (2017).

数値シミュレーションを用いたウマの個体間に働く力の推定

井上漱太^{1,2}、深沢圭一郎³、平田聡²

1: 名古屋大学環境学研究所

2: 京都大学野生動物研究センター

3: 京都大学学術情報メディアセンター

1 はじめに

動物が群れはなぜその集合を保っていられるのだろうか。高速で動く鳥や魚の群れから大集団を形成するヌーの群れまで、群れの糸乱れぬ動きは古くから研究者の興味をひいてきた。近年、計測・解析技術の急速な発展によって、集団を形成する個体を高精度で追跡することが可能になってきた。それにより、実際の計測値から行動ルールを推定し、数値シミュレーションを用いて、集団のふるまいを可能にするメカニズムの解明を目指す研究が高まりを見せている。Couzin らは Attraction、Alignment、Repulsion という 3 種類の力を他個体との距離に合わせて作用させることで、動物の群れにおけるさまざまな群れのふるまいが説明できると提唱した[1]。これにより、個体が集団全体を検知できないような巨大な群れにおいても、ごく近傍の個体とのみ相互作用することで、群れの全体のふるまいが形成されることが理論的に提示された。その後、魚類の群れにおいて、個体の加速度を定量的に計測することにより、この理論の有効性がすでに検証されている[2]。

この分野の根底にある一つの大きな疑問は、種間で共通する個体間の相互作用ルールの存在である。現状では、多くの研究が魚類や鳥類を対象にしており、陸上性の哺乳類の群れにおける研究は少ない[3]。特に体サイズの大きな哺乳類の群れを対象にして個体の動きや群れ内での相対位置を定量的に捉えた研究は限られている。そこで、本研究ではポルトガルのアルガ山に生息する野生のウマの群れを対象に個体間距離を調節している力の推定を目指した。

一般的にウマは極めて社会性の高い動物と考え

られている。野生環境下において、ウマの個体群はハレム群とバチェラー群に分けられ、ハレム群は有蹄類としては珍しく恒常的な群れ構成を維持する。群れのまとまりが安定して観察できることから個体間に働く力を推定するには、非常に適した動物だと言える。本研究では Attraction と Repulsion の相互作用を、距離を変数にもつ関数によってモデル化し、シミュレーションをおこない、野外観察によって得られたデータの再現を目指した。

2 野外観察

野外観察におけるデータ収集は 2016 年 6 月および 2017 年 5-7 月にポルトガルのアルガ山でおこなわれた。合計 3 群を終日追跡し、ドローン(Phantom 3・Mavic Pro)により画像データを収集した。それぞれの群れの個体数は 7-8 頭だった。画像は 30 分ごとに高度 25-80m 程度で撮影され、一枚の画像が群れの構成個体全てを含むように高度を調節した。ウマの群れは採食・移動・休息という 3 種類の状態に大別することができ、本研究では採食場面のみを解析した。それぞれの群れに関して、合計 60 枚程度の画像を解析に使用した。個体の首の付け根と尾の基部の midpoint に相当する点を個体の座標として、個体間距離の計測に使用した。

3 ウマの個体間に働く力の数値シミュレーション

力の数値シミュレーションのために、一個体の周囲に重力のように”場”を導入し、距離が遠いと Attraction として、距離が近いと Repulsion として

働く力を以下のように定めた。

$$F = -\frac{a(r - r_a)}{(r - r_a)^2 + d} - b$$

この関数において r は個体間の距離をあらわし、その他のパラメータは関数形を制御する。ここで $F = 0$ となるような r を求めることで Attraction と Repulsion の境界値を算出できる。本研究では、各群れの個体数と同数の点を 2 次元平面上にランダムに配置した状態から、 F を個体間に作用させ、一定ステップ後に点間の距離を測定した。これを観察で得られた画像の枚数分繰り返した。そして、測定された個体間距離の分布と野外観察により得られた分布の残差平方和(RMSE)を算出し、 a 、 b 、 c 、 d 、 r_a の最適パラメータセットを探索した。合計で各群れにつき 1171800 通りのモデルを試した。

4 相互作用モデル

ある個体の力の作用範囲を定めるモデルはいくつかあるが、本研究ではメトリック距離およびトポロジカル距離を使用した。メトリック距離においては、個体は周囲 R_m 内に存在する他個体全てとインタラクションを持つ。トポロジカル距離においては、距離の近い順に N_t 個体とインタラクションを持つ。本研究では $3 \leq R_m \leq 10$ 、 $2 \leq N_t \leq 5$ 、とした。

5 結果

ウマの群れにおける任意の 2 個体の距離を最もよく説明するモデルは、トポロジカル距離を 3 に持つものだった (Figure 1)。また、Attraction と Repulsion は 3.5-4 BL 以内で逆転すると推定された (Figure 2)。

6 考察

これまで大きな体サイズ動物の群れにおける局所的行動ルールの解明に試みた研究は限られていた。本研究では、ドローン技術を用いた高精度計測とスーパーコンピュータを用いたシミュレーションによって、ウマの個体間の距離を調節している

インタラクションの推定をおこなった。その結果、ウマにおいても、近傍の個体との局所的な相互作用によって距離を調節していることが示唆された。さらにメトリック距離よりもトポロジカル距離を支持した点はムクドリの群れの先行研究と合致した。この結果は、群れサイズにかかわらず局所的な相互作用で群れのふるまいが説明できる可能性を提示しており、群れサイズの小さな動物種という観点からも興味深い知見を提供している。

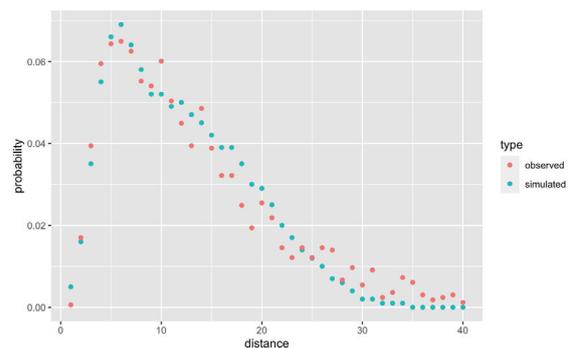


Figure 1: 実際に観察されたウマの群れにおける個体間距離分布およびシミュレーションによって再現された個体間距離分布

縦軸は頻度を表し、横軸は距離(胴長、Body Length (BL))。ピーク位置、頻度の増大・減衰の傾向も再現できている。

6 参考文献

- [1] ID. Couzin, et al. "Collective memory and spatial sorting in animal groups." *Journal of theoretical biology* 218.1 (2002): 1-11.
- [2] JE. Herbert-Read et al. "Inferring the rules of interaction of shoaling fish." *PNAS* 108.46 (2011): 18726-18731.
- [3] S. Inoue, et al. "Spatial positioning of individuals in a group of feral horses: a case study using drone technology." *Mammal Research* 64.2 (2019): 249-259.

ローレンツ方程式に対する機械学習によるモデリング

中井 拳吾*

*東京海洋大学 学術研究院 流通情報工学部門

本稿は小林 幹氏 (立正大学経済学部), 齊木 吉隆氏, 堤 夏輝氏 (一橋大学経営管理研究科) との共同研究 [4] に基づくものである.

1 はじめに.

機械学習は物理学の様々な分野で注目されている. 近年, 機械学習の一種で, リカーレントネットワークをもったりサーバーコンピューティング [1, 5] が時系列やリャプノフ指数などの予測において有効であることが報告されている. 我々はこの機械学習手法を流体のエネルギー変数に適用し, 時間発展の予想等を成功させている [2, 3].

一方で, 単に時系列を予測できるだけではその現象のモデルを構成したと言うには不十分である. そこで, 本研究では力学系構造の観点から, 学習により得た時間発展モデルがもとの力学系構造をどの程度再現できるかを明らかにする.

2 リサーバーコンピューティング.

$d\phi/dt = \mathbf{f}(\phi)$ で表される力学系の変数, $\mathbf{u} = \mathbf{h}_1(\phi) \in \mathbb{R}^M$ と $\mathbf{s} = \mathbf{h}_2(\phi) \in \mathbb{R}^P$ について考える. ある時刻まで (学習時間と呼ぶ) の入力変数 \mathbf{u} , 出力変数 \mathbf{s} の時系列は既知とする. \mathbf{s} の時系列を予測する時刻において, 時系列データ \mathbf{u} は未知とする. 物理的な知見を用いずに学習時間のデータセット $\{\mathbf{u}, \mathbf{s}\}$ のみからモデルを構築する.

リサーバーコンピューティングの特徴の一つはニューラルネットワークの構造自体を学習しないため圧倒的に計算量が少なく済み, 代わりにニューラルネットワークの次元を大きくしている点である (詳細は [4]). このことによりダイナミクスが複雑なふるまいを示すとしても, それが決定論的である場合にはこの種の学習方法が有効である.

3 モデルの設定と結果.

3.1 設定.

ローレンツ方程式 $\dot{x} = -10x + 10y, \dot{y} = -xz + rx - y, \dot{z} = xy - 8z/3$ について考える. この方程式系はカオス性がある. 本研究ではパラメータ r として 28 (もしくは 60) として得られる時系列を扱う. $r = 60$ 付近では力学系は非双曲的であり, パラメータの微小な変化により力学系の構造が大きく変化する一方で, $r = 28$ 付近では力学系は双曲的で構造安定であり, そのような構造変化は起こらないことが知られている.

ローレンツ方程式の時間により得られた時系列データを $\{\mathbf{u}, \mathbf{s}\}$ としてリサーバーコンピューティングにより学習させて得られた時間発展モデルが, 元の力学系構造をどの程度再現するかを解析する. 特に本誌では不動点や周期軌道といった不変集合に注目する.

3.2 結果.

機械学習モデルの解析-不動点. ローレンツ方程式には $(x, y, z) = (0, 0, 0)$ に加えて, 他に 2 つの不動点 (図 1 の \times のところ) がある. 学習により得た時間発展モデルの不動点も \times の近傍にあり, そこでの固有値も近似できていることを確認した (表 1).

また, 図 1 の右図の “actual trajectory” は学習時間の時系列をすべて含んでいる. このことから学習によって構成したモデルは学習に用いた時系列データには含まれない不動点をも再現することがわかった. このことは機械学習分野における通説である「外部領域の予測困難である」ということからは一見想像し難い結果であるが, 背後に存する力学系構造の学習に成功したことによって不動点が再現できたものと考えられる.

	L_{res}	R_{res}	O_{res}	L_{actual}	R_{actual}	O_{actual}
x^*	-8.47	8.50	0.04	-8.49	8.49	0.00
y^*	-8.47	8.50	0.02	-8.49	8.49	0.00
z^*	27.04	27.01	0.54	27.00	27.00	0.00

表 1: **Coordinates at each of the three unstable fixed points.** L_{res} , R_{res} , and O_{res} are fixed points of the data-driven model, whereas L_{actual} , R_{actual} , and O_{actual} are fixed points of the actual Lorenz system with $r = 28$. The coordinates (x^*, y^*, z^*) are close to those of the corresponding fixed point of the actual Lorenz system.

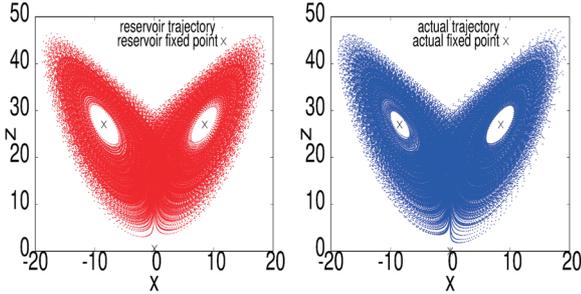


図 1: **Fixed points.** The three fixed points (x^*, y^*, z^*) of the data-driven model (left) and the corresponding unstable fixed points of the actual Lorenz system (right) are plotted together with the trajectory points.

機械学習モデルの解析-周期軌道. ローレンツ方程式の 50 個の短い周期軌道に対して, 機械学習モデルがうまく近似できていることを確認した. 特に, 50 個の中で最も近似性能が悪かったものを図 2 に書き出した. この図から最も近似性能が悪いものでもよく近似できていることが見て取れる.

4 まとめ.

決定論的な時系列から機械学習力学系モデルを構築し, それが時系列の背後にあるどのような力学系構造まで再現しうるかを明らかにした. 本研究では, 不動点, 周期点のような力学系の不変集合といった各種力学系的性質が再現しうることを示した. 結果は, 論文 [4] としてまとめて査読付き国際誌に投稿した.

なお, 論文 [4] はプレプリントアーカイブにもアップロードしている.

5 謝辞

中井は, 学長裁量経費-大学改革・機能強化等推進事業-の助成を受けている. また, 本研究でおこなっ

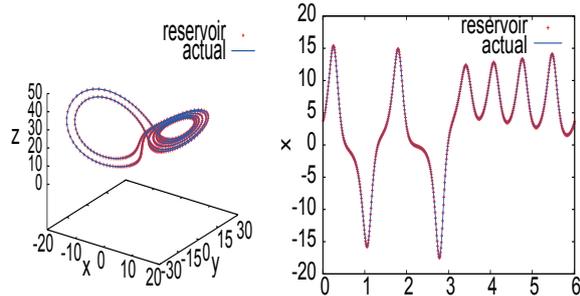


図 2: **A periodic orbit-like trajectory.** A periodic orbit-like trajectory obtained from the data-driven model is plotted together with the corresponding unstable periodic orbit (period $T_p = 5.9973192969$) of the actual Lorenz system with $r = 28$ (left), and their time developments of the x variable (right).

た計算の一部は京都大学のスーパーコンピュータ共同研究制度 (若手・女性奨励枠) に基づく. ここに感謝の意を表す.

参考文献

- [1] H. Jaeger, and H. Haas, *Science*, 304, (2004), pp. 78-80.
- [2] K. Nakai, and Y. Saiki, *Physical Review E* 98, (2018), 023111:1-6.
- [3] K. Nakai, and Y. Saiki, *Discrete and Continuous Dynamical Systems Series S*, (2020), doi: 10.3934/dcdss.2020352.
- [4] M. Kobayashi, K. Nakai, Y. Saiki, and N. Tsutsumi, *Dynamical system analysis of a data-driven model constructed by reservoir computing*, arxiv 2102.13475.
- [5] Z. Lu, J. Pathak, B. Hunt, M. Girvan, R. Brockett, and E. Ott, *Chaos*, 27, (2017), pp. 041102. pp. 391-403.

力学系と代数幾何の理論に基づく データ駆動的スパースモデリング

中野 直人 *

*京都大学国際高等教育院附属データ科学イノベーション教育研究センター

1 背景

統計的時系列解析はさまざまな回帰タスクで利用されており、データ駆動的な予測モデルの構築法は近年脚光を浴びている。時系列データの過去の振る舞いを利用するために遅延座標埋め込みを用いる。

手法の有効性の検証にカオス時系列を題材にする。カオスには、僅かな値のずれが予測値の大きな乖離を生む初期値鋭敏性に代表されるように本質的に時系列予測が難しい。これはたとえ正しいモデル方程式で計算したとしても生じる問題点である。そのため、カオス時系列に対するデータ駆動モデリングの評価には予測値の推定精度だけでなくカオス力学系としての構造の再現性も検証する必要がある。

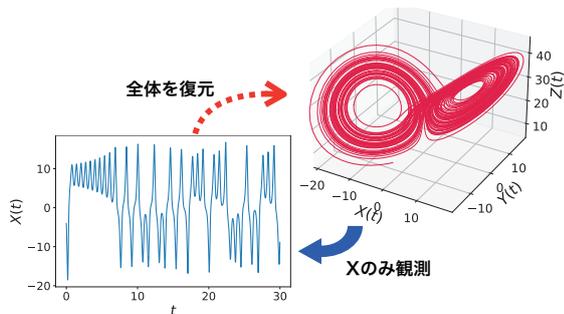


図 1: Lorenz 方程式の数値解. 左上の (x, y, z) の 3 変数の系から右下の x 変数のみを観測。

2 データ

ここではカオス時系列の代表例である Lorenz 方程式 [1] の数値解を用いる。Lorenz 方程式は (x, y, z) の 3 変数の方程式で記述されるが (図 1 左上), 観測可能な変数は x だけとする (図 1 右下)。観測が

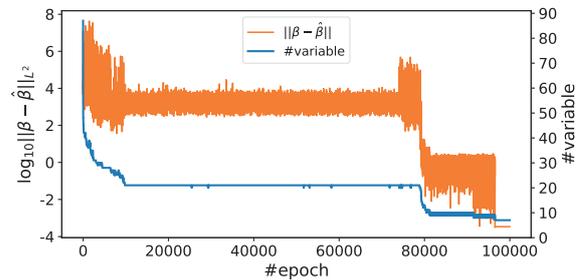


図 2: 変数選択の結果: 横軸はエポック数, 青線は変数の数 (右縦軸), 橙線は回帰係数の残差二乗ノルムの常用対数 (左縦軸)。

部分的な状況で、観測データから観測変数の予測モデルを立て、さらに全体の力学の推定を行う。

3 手法

観測変数 x の履歴からその力学の状態を推定する。Takens の埋め込み定理 [2] 等の既存研究により、力学の再構成の数学的正当性は担保されている。それを踏まえ、遅延座標の多変数冪級数回帰モデルをデータ駆動的に構成する。必要な回帰変数は未知のため、冪級数の次数を十分高く取って多くの変数を用意し、スパース推定によって変数選択を行う。

代数幾何に理論に基づく変数消去理論では観測変数の力学モデルは一般には遅延座標の有理式となるため、必ずしも多変数多項式回帰が使えるとは限らない。Lasso (もしくは Least-Angle Regression) によるスパースモデリングでは必ずしも必要な変数が選択できるとは限らないし、逐次に変数を除去しても目的のモデルが得られない可能性がある。ここでは、スパース推定による逐次変数除去と遺伝的アル

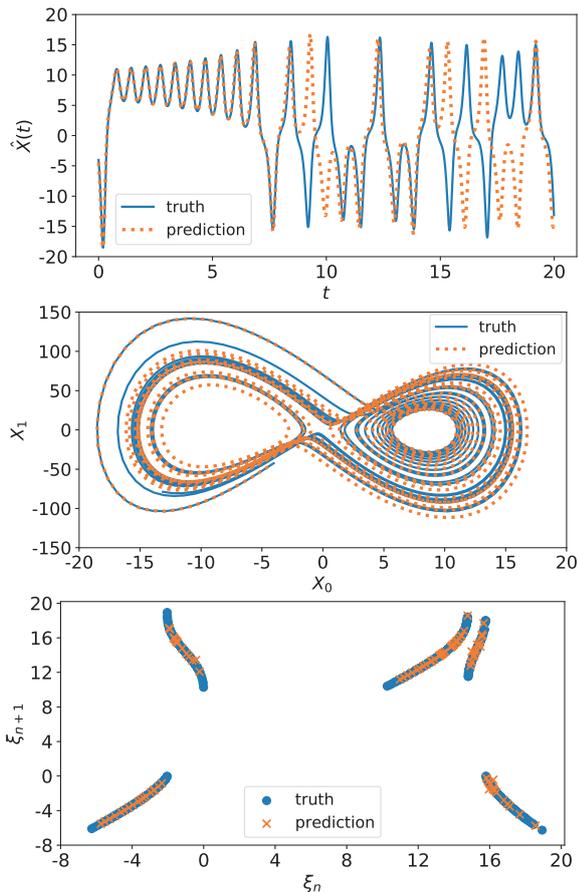


図 3: x 変数の回帰モデルによる予測結果の (上) 時系列, (中) (X_0, X_1) -平面での軌道. 青実線は真値, 橙点線は予測値. (下) x 成分の return map.

ゴリズムを合わせた方法により, 回帰モデルを構成した. スパース推定には多くの反復回数が必要とする上に, パラメータ探索のアンサンブル数を多く確保する必要がある, スーパーコンピュータによる並列計算が威力を発揮する.

4 結果

変数選択の結果を図 2 に示す. 変数選択により, 学習初期で変数の数はすぐに 21 まで下がるが, その後学習は停滞する. この問題では真のモデル係数がわかっているため, 真の回帰係数との残差二乗ノルムを評価することができる. 図 2 下から, 一定のゆらぎが減ることなく持続されていることがわかり, 回帰係数がフィッティングの局所最適解付近にあるか, もしくは評価関数の勾配消失が起きていることがわかる. そのため, 学習効率を上げるにはパラメータ探

索のためのアンサンブル数を増やす必要がある. 約 79000 エポックで再度学習は進むが, また別の局所最適解にトラップされている. 約 97000 エポックで 7 変数まで除去されたところで回帰係数の残差二乗ノルムのゆらぎがなくなり, 学習が完了した.

ここで構成したモデルによる予測値を図 3 に示す. 予測初期では解軌道に沿った精度の良い予測値が得られた. 時間が経つにつれて予測値は真値を離れるが (図 3 上), これはカオス性が原因のため, pathwise の予測精度ではなく, 力学系の構造再現度の評価が必要となる. 図 3 中では (X_0, X_1) -平面の散布図であり, アトラクタの再構成は成功していると言える. さらに, 時系列の極大値のみをサンプリングする return plot (図 3 下) が真値のそれに含まれている. これらにより, 系自体をデータ駆動的に再構成できており, 提案手法の有効性を実証した.

5 結言

ここでは時系列データからデータ駆動的に予測モデルを構成する方法を検証した. これはカオス時系列に対しても有効であり, 力学系の再構成が可能である. より複雑で高次の時系列データに対しては, さらに多変数高次のモデルを構成する必要がある. 今後はそのような問題に対して, 強化学習や分散学習を用いたアルゴリズムの改良を計画している.

謝辞

本研究は京都大学スーパーコンピュータ共同研究制度 (若手・女性奨励枠) の活用によるものである. また, 本研究は宮路智行氏 (京都大学理学研究科准教授) と石塚裕大氏 (九州大学マス・フォア・インダストリ研究所助教) との共同研究を含み, 科学研究費基盤研究 (C)(20K03747) の助成を受けた. ここに関係各位に対して感謝の意を表す.

参考文献

- [1] Lorenz, Deterministic Nonperiodic Flow, *J. Atmos. Sci.*, **20**, (1963).
- [2] Takens F. Detecting strange attractors in turbulence. *Lecture Notes in Mathematics*, vol 898. Springer (1981).

第一原理計算による BaSi₂ 太陽電池の接合パートナー探索

原 康祐

山梨大学大学院総合研究部附属クリスタル科学研究センター

1 はじめに

太陽電池は近年急速に普及し、電力の低炭素化に貢献してきた。今後は、水電解による水素製造の電源や自動車などのモビリティの電源などとしてさらに用途が拡大し、社会の脱炭素化に寄与していくと考えられる。そのためには、さらに高効率で安価な太陽電池が求められる。

BaSi₂ は太陽電池の活性層として優れた物性に期待が集まる新材料である。特に、光吸収係数が Si より数十倍高いため、薄膜(~2 μm)で十分に太陽光を吸収でき低コスト化が見込める。これまでに、BaSi₂ を正孔輸送層(HTL)と電子輸送層(ETL)で挟んだ三層構造とすることで、理論限界効率(33%)を示す太陽電池のデバイスシミュレーションに成功している [1]。また、HTL、ETLに求められるバンドエネルギー準位の条件を解明した。すなわち、この条件を満たす BaSi₂ の接合パートナー(HTL、ETL)材料を見出すことで、高効率で安価な BaSi₂ 太陽電池を設計できる。

バンドアラインメント以外にも、BaSi₂ との化学反応性、格子整合も接合パートナーとしての重要な条件である。そこで、本研究では、まず計算材料データベースにある膨大な材料の中から、化学反応性と格子整合を主要な条件としてスクリーニングを行い、次に、スーパーコンピュータを利用した第一原理計算によりバンドエネルギー準位を計算し、有望な材料を探索した。

2 方法

まず、計算材料データベース Materials Project において、バンドギャップが 0.5 eV 以上で資源豊

富な元素から成る二・三元系化合物を洗い出した。不安定な物質を除外するため、energy above hull は 0.1 eV 未満とした。また、歪みを見積もるため、弾性定数を含むデータに絞った。そして、Interface Reactions App [2] により計算生成エネルギーから反応のエネルギー変化を計算し、BaSi₂ と化学反応しない物質に絞り込んだ。次に、二次元格子面積を評価指標として用いる Zur と McGill の方法 [3] により、格子整合しない物質を除外した。その上で文献調査を行い、空気中で不安定な物質や合成困難な準安定物質を除外した。また、CBM、VBM の実験値が報告されている場合はそれを採用した。

以上のスクリーニングを経て絞り込まれた候補物質に対して、網羅的に第一原理計算を行い伝導帯(CBM)、価電子帯準位(VBM)を求めた。京都大学スーパーコンピュータのシステム B において、QUANTUM ESPRESSO コードを用いた密度汎関数法計算を行った。PBEsol 汎関数を用いた GGA 近似によるスラブモデル計算と HSE ハイブリッド汎関数を用いたバルクのバンドギャップ計算を組み合わせて、CBM、VBM を求めた。

3 結果と考察

化学反応性によるスクリーニングの結果、二元系化合物候補数は 560 から 99 へ、三元系化合物候補数は 1270 から 82 へ減少した。さらに格子整合しない物質を除外することで、二・三元系化合物候補数はそれぞれ 81、75 となった。さらに、不安定・準安定物質を除外し、信頼性の高い計算が困難な希土類元素を含む物質を除外するなどして、最終的に 18 の二元系化合物と 36 の三元系化

合物に対して、第一原理計算を行った。

図1に一例としてBaSのスラブモデルに対する静電ポテンシャルの計算結果を示す。静電ポテンシャルは原子のある位置で低下する空間分布を示す。これを三次元的に平均してスラブ内部の平均静電ポテンシャルを求めるとともに、真空準位との差 ΔV を決定した。バルク計算で求めた静電ポテンシャルやバンドエネルギー準位と組み合わせることで、真空準位を基準としたCBM、VBMを決定した。

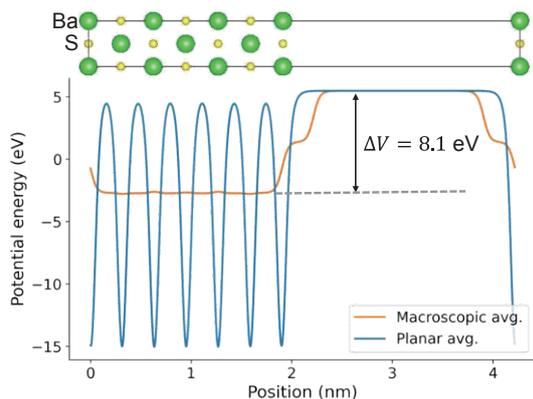


図1 BaS スラブモデルにおける静電ポテンシャルの空間分布。

第一原理計算で得られたCBMとVBMをデバイスシミュレーションで得られたバンドアラインメントの条件に照らして、有望な接合パートナー材料を絞り込んだ。図2に、HTL、ETLの最終候補材料のバンドエネルギー準位を示す。HTL候補材料 $\text{Ca}_4\text{P}_2\text{O}$ 、 $\text{Ca}_4\text{Sb}_2\text{O}$ 、 BaMg_2P_2 、 Na_3AlP_2 、BaSは BaSi_2 と同程度のVBM準位を持ち、 BaSi_2 から正孔が移動しやすいことが分かる。なお、BaS以外はバンドギャップが比較的小さいため、裏面に用いた方が吸収損失を抑えた太陽電池を設計できる。一方、ETL候補材料6H-、4H-SiCは BaSi_2 と同程度のCBM準位を持ち、 BaSi_2 から電子が移動しやすい。これらの物質はいずれもこれまで BaSi_2 とのヘテロ接合に検討されてこなかったものであるが、化学的に安定で格子整合し、高い発電効率を示すヘテロ接合形成が期待できる。

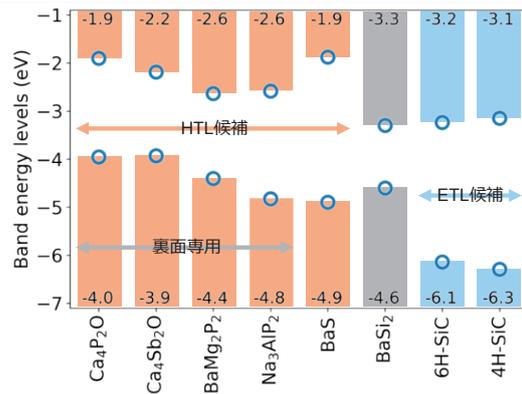


図2 HTL、ETL 最終候補材料のバンドエネルギー準位。 BaSi_2 のデータは実験値 [4]。

4 まとめ

計算材料データベースの膨大なデータの中から、化学反応性や格子整合を中心としたスクリーニングと、スーパーコンピュータを用いた網羅的なバンドエネルギー準位計算により、 BaSi_2 太陽電池に最適なHTL、ETLの候補材料を見出すことに成功した。

5 謝辞

本研究の一部はスーパーコンピュータ共同研究制度(若手・女性奨励枠)により京都大学学術情報メディアセンターのスーパーコンピュータを利用して実施した。

6 参考文献

- [1] K. O. Hara, PVSEC-30, OP-T6-699, Jeju, Korea, November 8, 2020.
- [2] W. D. Richards, *et al.*, *Chem. Mater.* **28**, 266 (2015).
- [3] A. Zur and T. C. McGill, *J. Appl. Phys.* **55**, 378 (1984).
- [4] T. Suemasu, *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* **45**, L519 (2006).

統計物理学模型との対応を利用した機械学習手法の性能評価

春名純一*

*京都大学大学院理学研究科物理学・宇宙物理学専攻

1 はじめに

人工ニューラルネットワークの1つである再帰的ニューラルネットワーク (RNN) は豊かな動力学的特性を持ち [1], 特に過去の履歴に関わらず同じ入力の下で内部ノード状態の任意の軌道が収束するという共通入力同期現象を起こすことが知られている. これらの特徴から RNN はリアルタイムでの情報処理へ応用されており, そのような枠組みの1つとしてリザーバ計算機 (RC) がある. ここ数十年計算性能の向上や動作原理の解明のために RC は多くの拡張がなされてきたが, RC の計算性能を最適化するための設計指針やそもそも RC がうまく機能する理由について, 今のところ十分な理解は得られておらず, RC 自体の普遍的な記述が必要とされている.

そこで(ここでは紙面の都合上詳細を省くが,) 我々はまず経路積分表示での生成関数の方法 [2-4] を用いて, 系の大きさ (RC のノード数) を無限に大きくした極限での RC の動力学の普遍性を理論的に明らかにした. 特に結合定数の任意の分布関数はいくつかの普遍類に分類され, 同じ類に属するネットワークは同じ動力学を示す. そしてこの普遍類の議論の検証のために, 外部入力がない場合にリザーバ状態の分布の相図の数値計算を行った.

2 セットアップ

RC では以下の (離散化された) 時間発展方程式を考える.

$$r_i(t+1) = -(1-\alpha)r_i(t) + \alpha \left(\sum_{i=j}^N J_{ij} \tanh(r_i) + \sum_{j=1}^{N_{\text{in}}} W_{ij}^{\text{in}} x_j + b_j \right) \quad (1)$$

$r_i(t)$ は N 成分実数ベクトル, α は学習率と呼ばれる実数, J_{ij} は $N \times N$ 行列, b_i はバイアスと呼ばれる N 成分実ベクトル, W^{in} は $N \times N_{\text{in}}$ 行列, $x_i(t)$ は入力時系列で N_{in} 成分実ベクトルである.

我々の普遍類の議論から, その具体例として結合行列 J_{ij} を正規分布と一様分布からサンプリングしたときにリザーバ計算機が同じ動力学を示すことが予言される. これを確認するために入力なし ($x_i(t) = 0, b_i = 0$) の場合に十分時間が経過した後のリザーバ状態 r_i の相図を数値的に計算した.

具体的には $r_i(t=0)$ を $[0, 1]$ の一様分布からランダムに与え, その初期値を用いて式 (1) を $t=0$ から $t=3000$ まで計算し, そして $r_i(t=3000)$ の i に関する平均 μ と分散 σ^2 を求めた. このとき結合行列 J_{ij} は与えられた J_0 と J に対し, 平均が J_0/N , 分散が J^2/N になるようにパラメータを調節した正規分布と一様分布からサンプリングした. その上で J_0/J と $1/J$ をそれぞれ $[0.1, 2.0]$ まで 0.02 刻みで変化させたときの μ と σ^2 についてカラーマップを計算した. また相図の一点 ($J_0/J, 1/J$) に対して, J_0 と J を固定し $r_i(t=0)$ について 10 アンサンブル計算を行った上で, そこで得られた μ と σ^2 10 個ずつの平均 (アンサンブル平均) をカラーマップに表示した. ここで相図の一点の色は RGB 形式にて

$$[R, G, B] = \left[1 - \frac{\mu - \min(\mu)}{\max(\mu) - \min(\mu)}, 1 - 0.5 \frac{\mu - \min(\mu)}{\max(\mu) - \min(\mu)} + 0.5 \frac{\sigma^2 - \min(\sigma^2)}{\max(\sigma^2) - \min(\sigma^2)}, 1 - \frac{\sigma^2 - \min(\sigma^2)}{\max(\sigma^2) - \min(\sigma^2)} \right] \quad (2)$$

により指定した. \max, \min は J_0 と J を変化させたときの最大と最小を表す.

なお N と α については $N = 1000, \alpha = 0.2$ とした.

3 リザーバー状態相図

数値計算の結果、正規分布の場合の相図(カラーマップ)が図1、一様分布の場合の相図が図2として得られた。これらを比較すると正規分布と一様分布の相図はほぼ同じ振る舞いをする事が観察される。これより我々の普遍性の議論が正しいことの支持が得られた。さらにこの相図は Sherrington-Kirkpatrick 模型という統計物理学模型における相図とほぼ一致していることを強調しておきたい。これは RC と統計物理学模型が関連しているという我々の予想を強く支持するものである。

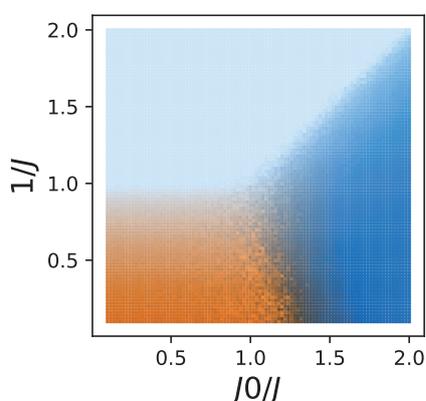


図 1: 結合定数を正規分布からサンプルした場合の相図 ($N = 1000, 10$ アンサンブル)

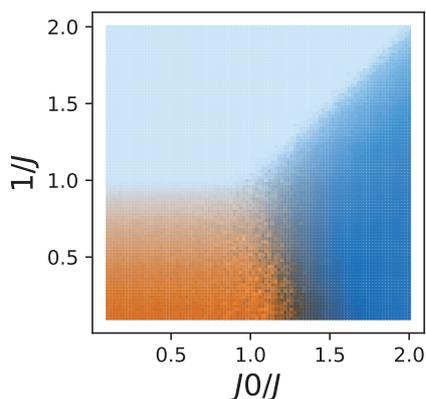


図 2: 結合定数を一様分布からサンプルした場合の相図 ($N = 1000, 10$ アンサンブル).

4 結論

大規模計算によって RNN の状態分布および学習誤差の相図の作成を行った。まずリザーバー状態分布について、我々はこれが統計物理学模型における相図とほぼ一致するという結果を得た。これは RC と統計物理学模型が関連しているという我々の予想を強く支持するものである。

今後の展望について、今回の入力なしでのリザーバー状態相図とは別に、(これも紙面の都合上省略したが、)ある時刻までの Lorentz 方程式系の X 座標を入力としたときに、その後の Lorentz 方程式系の X, Y, Z 座標を予測させるという時系列予測タスクを RC を用いて実行した。その学習誤差の相図を計算した結果、統計物理学模型の相図において相転移が起こるパラメータ付近において、学習誤差が少なくなるという示唆を得た。今後はこのような入力ありの情報処理タスクにおける RC と統計物理学模型との関連について、普遍類を議論する際に用いた経路積分表示での生成関数の方法から探っていくつもりである。

参考文献

- [1] H. Sompolinsky, A. Crisanti, and H. J. Sommers, Phys. Rev. Lett. 61, 259 (1988).
- [2] P. C. Martin, E. D. Siggia, and H. A. Rose, Phys. Rev. A 8, 423 (1973).
- [3] C. De Dominicis and L. Peliti, Phys. Rev. B 18, 353 (1978).
- [4] H. K. Janssen, Zeitschrift für Physik B Condensed Matter 23, 377 (1976)

遷移金属による協奏的結合組み換えを利用した効率的分子変換

岩本 紘明

大阪大学大学院工学研究科

1 イントロダクション

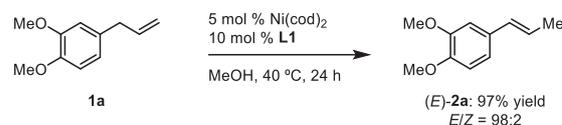
遷移金属触媒による分子変換反応は、医薬品合成や液晶パネルや OLED などの機能性材料合成において非常に重要な役割を担っている。その反応設計は一般に、目的の反応中間体を推定することで行われ、しばしば、分光学的な測定や単離操作によってそれらの中間体錯体の単離および同定が行われてきた。このように、多くの遷移金属触媒を用いた新規反応開発では、観測可能な中間体を想定して、その反応設計を行うことが一般的であった。一方で、反応速度や選択性を支配的に決定する重要な反応要素である遷移状態を考慮して反応設計が行われることはほとんどない。これは、それぞれの基質、反応中間体および生成物の間を結ぶ遷移状態はその観測は非常に困難であるためである。そこで、スーパーコンピュータを利用して量子化学計算を行い、遷移状態構造の網羅的な探索をすることで、遷移状態構造に基づいた新規反応設計を行い、新たな反応機構の探索および開発を目指した。実際には、低原子価ニッケル触媒によるアルケンの異性化反応と、有機ボロン酸試薬とアルコールを用いたアルケンのヒドロホウ素化について研究を行った。その結果、ニッケル(0)中心に配位する基質間の酸化的水素原子移動を経由する新たな反応経路を見出した。¹

2 結果と考察

紙面の都合上、実験による反応条件については割愛するが、我々は実験から新たにニッケル(0)触媒を用いたアルケンの異性化反応 (Scheme 1a) および、アリールボロン酸とアルコールを用いたアルケンの異性化と続くヒドロアリール化反応を新たに開発した (Scheme 1b)。本反応は、カルボ

キシル基やヒドロキシ基のような反応性置換基を有する基質に対しても適用可能であった。

(a) Nickel(0)-catalyzed *E*-selective alkene isomerization



(b) Nickel(0)-catalyzed tandem isomerization/hydroarylation



Scheme 1. ニッケル(0)触媒によるアルケンの異性化および連続的ヒドロアリール化反応

次に、新たに開発した上記の反応のメカニズムについて研究を行った。実験的な機構解明研究より、アルケンの異性化反応においてベンジル位の水素原子は主に生成物のアリル位に移動していることが分かった。そこで、本反応は基質の炭素-水素結合がニッケル(0)触媒に対して酸化的付加し、 π -アリルニッケルヒドリド(II)種が生成し、還元的脱離が進行することで異性化生成物が得られる経路が想定される。実際にこの反応機構は DFT 計算により妥当な活性化エネルギーの範囲内で得ることができている (Figure 1a)。一方で、更なる実験的アプローチから、分子間においても水素原子の移動が進行していることが示唆される結果が得られた。そこで、更なる DFT 計算を用いた検討を行うことで、ニッケル中心に対して配位したアルケン基質の間での酸化的水素原子移動を経由する反応機構が得られた (Figure 1b)。ここで、この反応機構の活性化ギブスエネルギー (ΔG^\ddagger) は前者のものよりも不利であったが、エンタルピー (ΔH^\ddagger) 的な観点からは、後者の反応

機構の方が有利であることが示唆された。これは、後者の反応機構において、ニッケルに対して2分子の基質が配位することでエントロピー的に不利になっているためであると考えられる。しかし、実際の反応系では、ニッケル触媒に対して基質のアルケンは大過剰量存在しているため、エンタルピー的に有利であるこの反応機構も妥当なものであると考えられる。

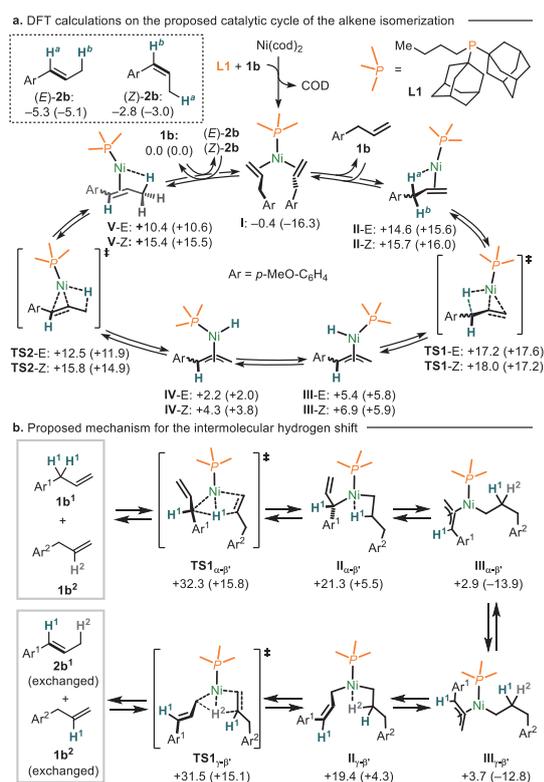


Figure 1. ニッケル(0)触媒によるアルケンの異性化反応の想定反応機構 $[\Delta G(\Delta H)$ (kcal/mol)]. 計算レベル: ω B97X-D/def2-TZVPP// ω B97X-D/def2-SVP/IEF-PCM(MeOH)

続いて、ニッケル触媒によるヒドロアリール化反応の反応機構研究を行った。まず、実験的なアプローチから、本反応を重水素化メタノール中で行うと、生成物に重水素が取り込まれた生成物が得られた。ここで、メタノールがニッケル(0)触媒に対して酸化的付加し、ニッケルヒドリド(II)種が形成されている可能性が考えられる。しかし、実験的、計算的手法を用いても、メタノールの酸化的付加を支持する結果は得られなかった。次に、先の重水素化メタノール中での反応において、回収した化合物が重水素化されていることを確認した。これは、ヒドロアリール化が進行していなく

ても基質が重水素化していることが想定される。しかし、アリールボロン酸非存在下では、このようなアルケンの重水素化は進行しなかった。従って、アリールボロン酸が基質の重水素化に大きな役割を担っていることが示唆された。そこで、更なる計算を行った結果、ボロン酸がルイス酸としてメタノールを活性化し、ニッケル(0)中心に配位した電子豊富なアルケンをもプロトン化する、「協奏的プロトメタル化」を経由する妥当な触媒サイクルが示された (Figure 2)。^{2,3}

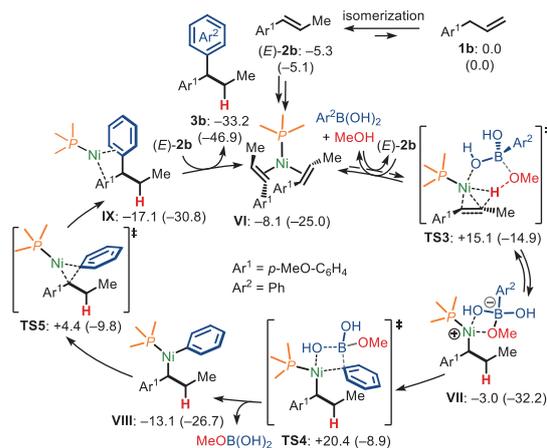


Figure 2. ニッケル(0)触媒によるアルケンの異性化反応の想定反応機構 $[\Delta G(\Delta H)$ (kcal/mol)].

3 結論

本研究において、量子化学計算と実験的アプローチを駆使することで、ニッケル(0)錯体が関与する、協奏的結合組換えを経由する新たな反応の開発と、反応機構の提唱を行うことに成功した。今後、このような遷移金属触媒の新たな反応性を量子化学計算により見出し、その理論を用いたより効率的かつ複雑な新反応の開発が活発化していくことが期待される。

4 引用

- 1) Iwamoto, H.; Tsuruta, T.; Ogoshi, S. *ACS Catal.* **2021**, *11*, 6741.
- 2) Li, Z.-Q.; Fu, Y.; Deng, R.; Tran, V. T.; Gao, Y.; Liu, P.; Engle, K. M. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2020**, *59*, 23306.
- 3) Marcum, J. S.; Taylor, T. R.; Meek, S. J. *Angew. Chem., Int. Ed.* **2020**, *59*, 14070.

高周波加熱と磁気ノズルを利用した無電極プラズマ推進機の

2次元軸対称プラズマ粒子計算

鷹尾 祥典

横浜国立大学 大学院 工学研究院 システムの創生部門

1 はじめに

近年、軌道間大量物資輸送を見据えた大電力電気推進機の研究開発が盛んであり、中でも高周波加熱と磁気ノズルを利用した無電極プラズマ推進機が注目を集めている。同推進機では、高周波加熱で生成されたプラズマが磁気ノズルを介して下流へ輸送されることで軸方向運動量が発生し、磁気ノズルからプラズマが離脱することで推力を得る。この機構においては、プラズマの生成に高周波加熱を、その加速に磁気ノズルを利用することで寿命につながる電極を排除し、長時間運転が期待される [1]。

しかし、現状の推進性能は従来の代表的な電気推進であるイオンスラスタやホールスラスタと比較して低く、さらなる性能向上に向けた研究が実験と数値解析の双方から行われている。その結果、プラズマ源中における放電室側壁への運動量損失の影響 [2]、磁気ノズル中における電子反磁性効果による推力発生 [3]、プラズマによる磁気ノズル伸長に伴う離脱現象等が示唆されている [4]。

著者の数値解析においても、推進剤ガスの電離に伴う枯渇が推進性能に影響する過程を再現することに成功しているが、プラズマ源内部の計算に留まっている [5,6]。プラズマ生成から加速までの過程は独立ではないため、磁気ノズル中での加速機構まで解析するには計算領域をさらに下流まで広げて、プラズマ源から加速領域までまとめて解く必要がある。流体モデルでは可能であるが、希薄気体であるため粒子計算を用いた手法が望ましい。しかし、多数の粒子を解析する必要がある都合、計算時間の短縮が課題である。

現状、1つの条件当たり十分な時間平均を取って統計的に信頼できる解析結果を得るためには、1ヵ月程度計算を続ける必要があり、多くの条件に応じた結果を得て、工学的に有益な解析を行うためには計算の高速化が不可欠である。

2 数値計算手法

図1に本研究が対象とする無電極プラズマ推進機の計算領域を示す。計算領域は半径0.5 cm、長さ3 cmの円筒型誘電体管に、半径1 cm、長さ3 cmの下流領域を加えたものである。なお、実験と同じサイズを粒子計算で解析するのは計算時間の都合現実的ではないため、ここではスケールを約1/6にしている。スラスタは円筒型誘電体管とバックプレート、高周波加熱用アンテナコイル、磁気ノズル用ソレノイドコイルで構成されている。高周波コイルとソレノイドコイルの中心はそれぞれ $z = 1.5 \text{ cm}$ と $z = 2.4 \text{ cm}$ である。

図2にプログラムのフローチャートを示す。本計算では、推進剤ガスの中性粒子に対してはDirect Simulation Monte Carlo (DSMC) 法、荷電粒子に対しては静電 Particle-in-Cell/Monte Carlo collisions (PIC/MCCs) 法を用いて計算を行った。

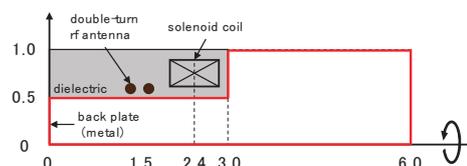


図1. 無電極プラズマ推進機を対象とした計算領域

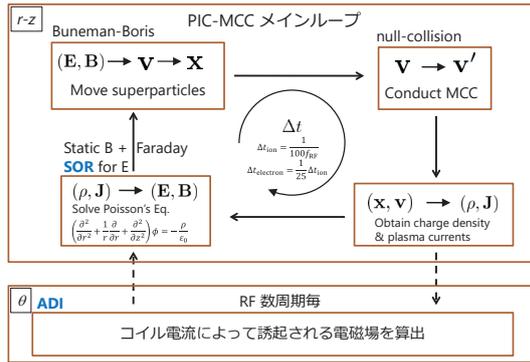


図2. 計算フローチャート

予めプラズマ放電部の中性粒子分布を DSMC 法により求めてあり、その分布を荷電粒子との衝突に利用する。また、ソレノイドコイルの磁場 B_{ex} も予め求めたものを入力として利用する。

まず初期条件に応じたイオンおよび電子を計算領域に与え、2 次元計算セルの四隅での電荷を積算する。その電荷を利用してポアソン方程式を SOR 法で解くことによりプラズマが生成する静電場を算出する。なお、プラズマ源の両端を金属壁で封止した系の場合は高速フーリエ変換を利用した解法を利用していたが [5,6]、開放系として磁気ノズル領域を含めて解く図1の構造においては、この手法は利用できない。計算領域拡大に加えて、ポアソン方程式を SOR で解いているところが計算時間を要する理由の一つである。

荷電粒子による静電場に加えて、高周波の電磁場も解析に加える必要がある。高周波加熱は軸対称を仮定することで周方向のみ高周波電場が存在するとし、静電 PIC とは別にコイルの電磁場方程式を解く事で周方向高周波電場の大きさ E_{θ} を求める。この高周波電場の算出には周方向プラズマ電流の寄与も考慮している。求める解は定常解のため、この E_{θ} は毎回解かず、数 10 周期毎に更新することで計算時間を抑えている。高周波電場の時間変化は $\cos(\omega t)$ で表現し、電場と磁場のローレンツ力から粒子の速度、位置更新を行う。

速度更新には Buneman-Boris 法を用いる。その後、null-collision 法による荷電粒子と先に求めた分布を持つ背景中性ガス粒子との衝突判定を行い、各種衝突反応（弾性、励起、電離）に応じた粒子の速度ベクトルを更新する。その後はこれらを定常状態になるまで繰り返す。なお、イオン（ここでは Xe または Ar）は電子と比べて圧倒的に重い

ため、電子数 10 ステップ毎にイオンの更新を行うことで計算時間を少し抑えている。

入力パラメータの一つにプラズマに吸収される電力があり、運動方程式を解く前後における粒子のエネルギー差からプラズマ吸収電力を求める。この値が入力で設定した値とずれる場合は高周波コイル電流の大きさを変化させて、設定値と同じ吸収電力になるように繰り返し計算を行う。

計算領域は格子幅 0.1 mm の正方形セルで分割するため計算格子数としては 60,000 となる。プラズマ密度が高いプラズマ源においてセル当たりにおける粒子数が 100 個程度になるようにしており、全超粒子数としてはイオン、電子それぞれ約 150 万個である。

プログラム高度化共同研究前に行っていた並列化は静電 PIC において電荷密度の計算、超粒子の移動、衝突のみに MPI 並列を適用していた。先述の通り、ポアソン方程式を SOR 法で解くところがボトルネックとなっており、4 プロセス並列で 1.7 倍程度の速度向上に留まっていた。

3 プログラム高度化内容と性能評価

プロファイル計測の結果、MPI (4 並列) ではポアソン方程式のサブルーチンが 6 割以上の計算時間を占める主要ホットスポットとなり、Single Core 計算においてもポアソン方程式が 36% と最も計算時間を占めていた。Single Core 計算においては、さらに荷電粒子の電荷を存在するセルの四隅に面積比で電荷の割り付けを行うサブルーチン、および、個々の荷電粒子の運動方程式を解くサブルーチンがそれぞれ約 22% を占め、これらも主要なホットスポットになっていた。

2 次元軸対称 PIC 計算においてしばしば問題となるのは円筒中心軸上における特異点の問題である。この付近では円環状のセル体積が小さくなる都合、超粒子も少なくなり数値ノイズが大きくなる。ポアソン方程式を解く際にも中心軸上でノイマン条件 $\partial\phi/\partial r = 0$ と微分形を用いて解くと、中心軸でポテンシャルが発散しやすい傾向があったため、ポアソン方程式を積分形にして解いている [7]。その都合、図 3 が示すように中心軸とそれ以外とで係数の数が異なる形となり、SOR 法で

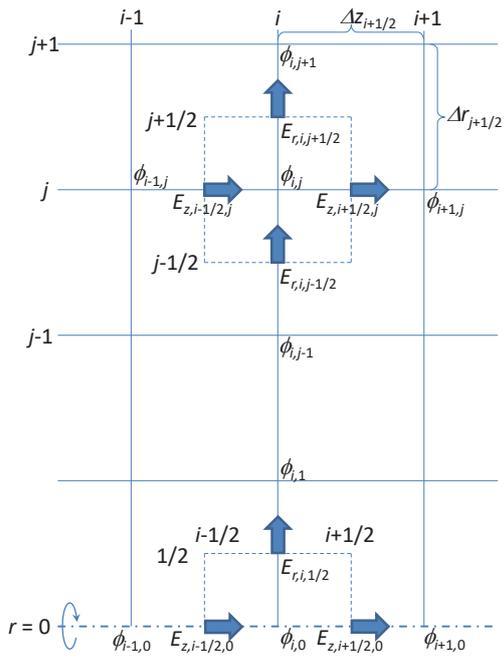


図 3. ポアソン方程式を解く際の係数配置

解く際にも if 文を利用した場合分けを行っていた。さらに、図 1 の計算領域が示すようにプラズマ源側と磁気ノズル側とでは半径方向のサイズが異なるため、この境界を境に交互に SOR 法を利用することでプラズマが存在する領域のポテンシャルを求めていた。

上記の問題に対して、高度化においては、中心軸上のインデックスから径方向にマイナス 1 にした範囲から係数配列を作成することで、中心軸上の取り扱いで利用していた if 文を削除し、また、従来ポアソン方程式を解いていなかった誘電体内部領域にはマスク配列（誘電体領域では値が全て 1）を作成することにより z 軸方向に分割せず解けるようにした上で、前回の高同度化と同様 [8]、SOR に Red-Black 法を適用することでスレッド並列が可能となるようにした。

その結果、36 スレッド並列において、Single Core 計算に対して約 22 倍の性能向上が得られたが、72 スレッド並列においては、7 倍程度に留まった。これは、セル数が 60,000 (100×600) と格子規模が小さいことが原因と考えられる。なお、ポアソン方程式のサブルーチンに対する高度化だけでは、プログラム全体の速度向上は 36 スレッド並列で約 1.7 倍弱となり、先述の電荷割り付け、および、粒子の運動方程式を解くサブルーチンの高度化も必要となることが分かる。

次に、電荷をセル四隅へ割り付ける部分に対しては、計算領域が z 軸方向に長いことから、この方向に対して領域分割を利用した粒子ソーティングのスレッド並列化を行った。この領域分割、および、その分割された領域における粒子の情報（粒子位置、粒子番号）を把握するため、新たに領域分割のためのサブルーチンの作成が必要となる。サブルーチンの追加が必要となるため、そのための計算時間が別途必要となるが、粒子に働く電磁場を求める際に、近距離に位置する粒子情報を局所化して計算を行うことで効率化が期待できる。

その結果、電荷の割り付けサブルーチンにおいて、4 スレッド並列までは新しいサブルーチンの追加に伴い計算時間が増える結果となるが、その後はスレッド並列数とともに減少し、72 スレッド並列において、Single Core 計算に対してイオン側は 3.5 倍、電子側は 4.7 倍の速度向上が得られた。なお、この部分のスレッド並列化だけでは、プログラム全体の速度向上は 72 スレッド並列で 1.13 倍となった。

前回、3 次元の PIC 計算に対する高度化支援の際には、 x, y, z 軸のどの方向もセル数が少ないため領域分割ではなく atomic 指示文による粒子番号方向のスレッド並列化を行っていた [8]。今回も同様に atomic 指示文による粒子番号方向のスレッド並列化を行ったものの、配列へのアクセスが間接参照となる都合データ競合を避ける同期処理が必要となり、16 スレッド並列化まではむしろ遅くなり、72 スレッド並列化にしても領域分割より遅い 2.7 倍に留まった（電子側）。

粒子の運動方程式に関しては、粒子毎に完全に独立な処理を行うため、粒子番号方向にスレッド並列化するだけで済む。その他の部分に関しても可能な範囲はスレッド並列化を行った。

全てのスレッド並列化を組み合わせさせた結果、プログラム全体を対象に、Single Core 計算に対して、72 スレッド並列で約 8.8 倍の速度向上が得られるに至った。

最後に、Single Core 計算結果と 72 スレッド並列化後の計算結果とを比較すると、イオン、電子の各超粒子数の差は 0.007% 以下であり、その密度分布に関してほとんど変化が見られないことから、物理現象の再現は問題ないと考えられる（図 4）。

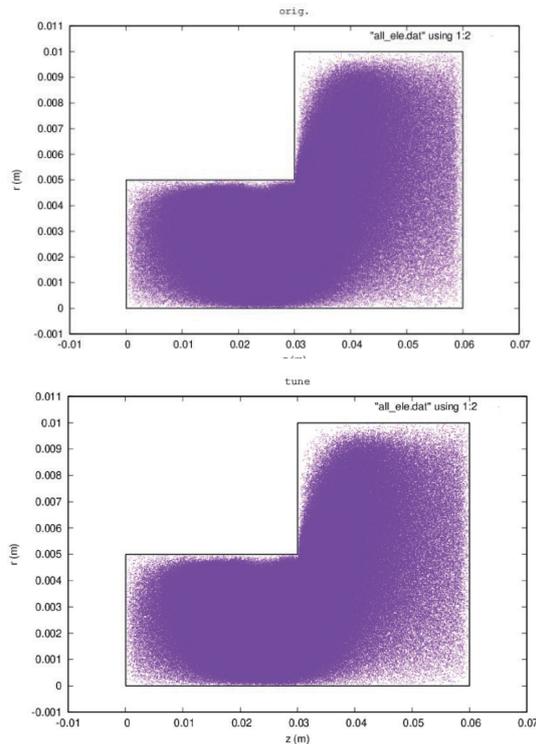


図4. 高度化後の計算結果の比較: 電子位置分布
(上) Single Core、(下) 72 スレッド並列化

謝辞

プログラム高度化の実施にあたって、HPEの原山卓也様には大変ご尽力いただきました。本研究の一部はJSPS 科研費 JP19H00663 の助成を受け、京都大学生存圏研究所「先端電波科学計算機実験装置(A-KDK)」を利用して実施されました。

参考文献

- [1] K. Takahashi, “Helicon-type radiofrequency plasma thrusters and magnetic plasma nozzles,” *Rev. Mod. Plasma Phys.*, vol. 3, no. 1, p. 3, May 2019, doi: 10.1007/s41614-019-0024-2.
- [2] K. Takahashi, A. Chiba, A. Komuro, and A.

Ando, “Axial Momentum Lost to a Lateral Wall of a Helicon Plasma Source,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 114, no. 19, p. 195001, May 2015, doi: 10.1103/PhysRevLett.114.195001.

[3] K. Takahashi, A. Chiba, A. Komuro, and A. Ando, “Experimental identification of an azimuthal current in a magnetic nozzle of a radiofrequency plasma thruster,” *Plasma Sources Sci. Technol.*, vol. 25, no. 5, p. 055011, Aug. 2016, doi: 10.1088/0963-0252/25/5/055011.

[4] K. Takahashi and A. Ando, “Laboratory Observation of a Plasma-Flow-State Transition from Diverging to Stretching a Magnetic Nozzle,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 118, no. 22, p. 225002, Jun. 2017, doi: 10.1103/PhysRevLett.118.225002.

[5] Y. Takao and K. Takahashi, “Numerical validation of axial plasma momentum lost to a lateral wall induced by neutral depletion,” *Phys. Plasmas*, vol. 22, no. 11, p. 113509, Nov. 2015, doi: 10.1063/1.4935903.

[6] K. Takase, K. Takahashi, and Y. Takao, “Effects of neutral distribution and external magnetic field on plasma momentum in electrodeless plasma thrusters,” *Phys. Plasmas*, vol. 25, no. 2, p. 023507, Feb. 2018, doi: 10.1063/1.5015937.

[7] Y. Takao, K. Eriguchi, and K. Ono, “Effect of capacitive coupling in a miniature inductively coupled plasma source,” *J. Appl. Phys.*, vol. 112, no. 9, pp. 093306-093306–10, Nov. 2012, doi: 10.1063/1.4764333.

[8] 京都大学学術情報メディアセンター広報・全国共同利用版, vol. 17, no. 1, p. 56, および, vol. 19, no. 1, p. 38.

システム A 運転状況 (2020 年 10 月 ~ 2021 年 3 月)

1) 保守作業に伴うサービス休止およびシステムダウン障害発生状況

保守作業に伴うサービス休止

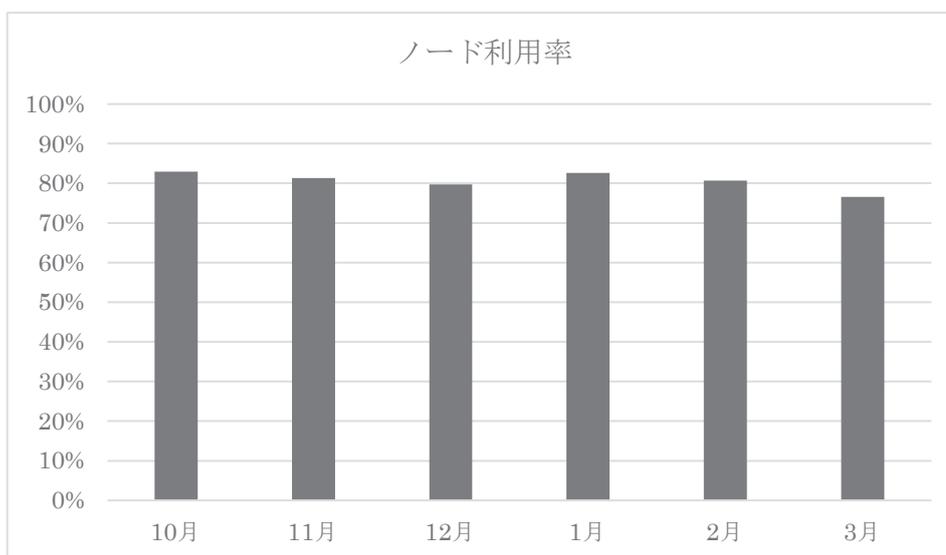
保守開始日時	サービス再開日時	保守時間[h]
2020/12/03 9:00	2020/12/03 15:00	6.00
2021/03/30 9:00	2021/03/31 24:00	39.00

システムダウン障害発生状況

障害発生日時	サービス再開日時	ダウン時間[h]
2020/11/24 15:50	2020/11/24 17:30	1.67

2) サービス状況

	サービス時間[h]	ジョブ					
		処理件数	経過時間[h]	占有時間[h]	CPU時間[h]	平均稼動ノード数	ノード利用率
10月	744.00	36,391	280,800	73,602,266	63,133,578	1797.8	82.9 %
11月	718.33	47,339	173,363	70,243,563	60,906,805	1798.9	81.3 %
12月	738.00	76,190	201,505	72,920,594	60,489,416	1797.1	79.7 %
1月	744.00	42,597	218,829	73,047,018	56,610,942	1797.4	82.6 %
2月	672.00	17,906	166,908	68,173,227	52,913,724	1795.3	80.7 %
3月	705.00	29,514	146,413	71,123,663	58,774,065	1798.0	76.6 %
計	4,321.33	249,937	1,187,818	429,110,331	352,828,530	1797.4	80.6 %



- 占有時間 = 合計(経過時間×占有コア数)
- 平均稼動ノード数 = 電源 ON 状態のノード数の月平均 (10 分間隔のサンプリングデータより算出)
- ノード利用率 = 稼動ノードに対するジョブが実行されているノードの割合

システム B 運転状況 (2020 年 10 月 ~ 2021 年 3 月)

1) 保守作業に伴うサービス休止およびシステムダウン障害発生状況

保守作業に伴うサービス休止

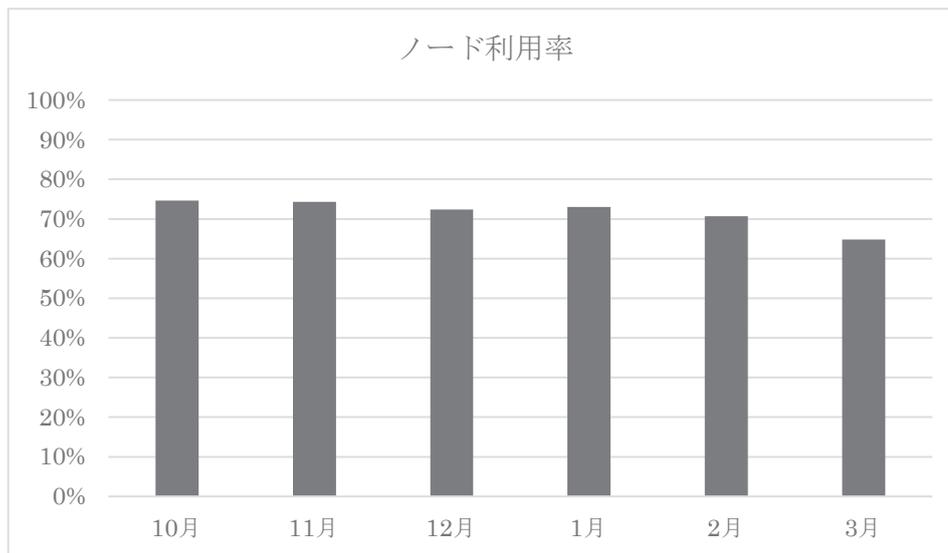
保守開始日時	サービス再開日時	保守時間[h]
2020/12/03 9:00	2020/12/03 15:00	6.00
2021/03/30 9:00	2021/03/31 24:00	39.00

システムダウン障害発生状況

障害発生日時	サービス再開日時	ダウン時間[h]
2020/11/09 21:10	2020/11/09 22:00	0.83
2020/11/24 15:50	2020/11/24 17:30	1.67

2) サービス状況

	サービス時間[h]	ジョブ					
		処理件数	経過時間[h]	占有時間[h]	CPU時間[h]	平均稼動ノード数	ノード利用率
10月	744.00	222,070	693,231	15,263,364	13,041,149	814.0	74.6 %
11月	717.50	788,567	908,743	14,693,556	12,131,818	813.5	74.3 %
12月	738.00	612,345	650,970	15,191,328	13,646,160	813.3	72.4 %
1月	744.00	307,577	923,854	15,094,859	13,270,262	813.9	73.0 %
2月	672.00	706,945	709,188	13,594,802	11,409,663	814.0	70.7 %
3月	705.00	144,222	618,943	14,305,595	12,861,305	769.0	64.8 %
計	4320.50	2,781,726	4,504,929	88,143,504	76,360,357	806.3	71.6 %



- 占有時間 = 合計(経過時間×占有コア数)
- 平均稼動ノード数 = 電源 ON 状態のノード数の月平均 (10 分間隔のサンプリングデータより算出)
- ノード利用率 = 稼動ノードに対するジョブが実行されているノードの割合

システム C 運転状況 (2020 年 10 月 ~ 2021 年 3 月)

1) 保守作業に伴うサービス休止およびシステムダウン障害発生状況

保守作業に伴うサービス休止

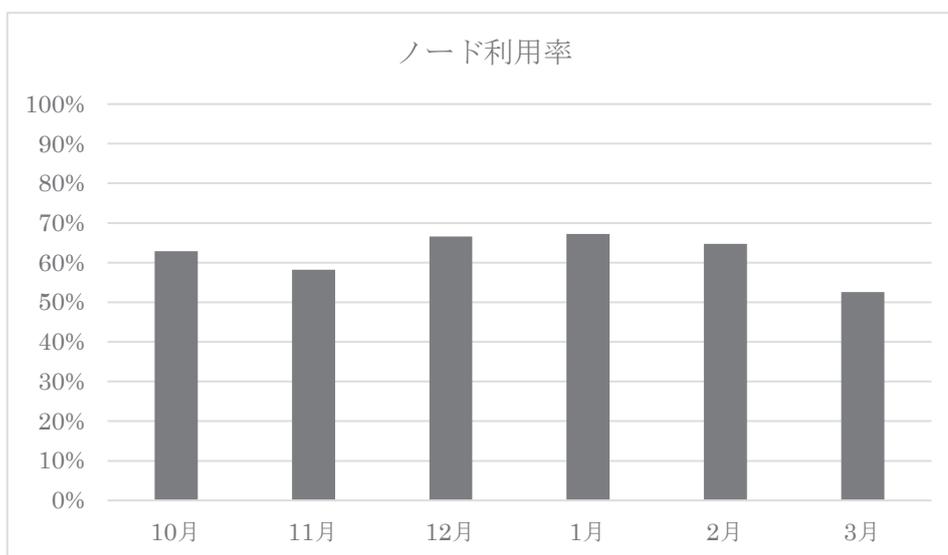
保守開始日時	サービス再開日時	保守時間[h]
2020/12/03 9:00	2020/12/03 15:00	6.00
2021/03/30 9:00	2021/03/31 24:00	39.00

システムダウン障害発生状況

障害発生日時	サービス再開日時	ダウン時間[h]
2020/11/24 15:50	2020/11/24 17:30	1.67

2) サービス状況

	サービス時間[h]	ジョブ					
		処理件数	経過時間[h]	占有時間[h]	CPU時間[h]	平均稼働ノード数	ノード利用率
10月	744.00	3,330	45,562	325,896	228,342	16.0	62.9 %
11月	718.33	2,951	40,456	317,425	218,092	16.0	58.2 %
12月	738.00	2,937	19,737	337,052	260,977	15.8	66.6 %
1月	744.00	2,237	21,233	421,207	277,710	15.9	67.2 %
2月	672.00	1,872	16,951	349,750	239,366	16.0	64.7 %
3月	705.00	1,520	17,289	306,261	184,830	15.4	52.6 %
計	4,321.33	14,847	161,228	2,057,591	1,409,317	15.9	62.0 %



- 占有時間 = 合計(経過時間×占有コア数)
- 平均稼働ノード数 = 電源 ON 状態のノード数の月平均 (10 分間隔のサンプリングデータより算出)
- ノード利用率 = 稼働ノードに対するジョブが実行されているノードの割合

別表1 スーパーコンピュータシステム

			利用負担額	提供サービス								
コース	タイプ	セット		システム	バッチ	システム資源	経過時間 (時間)	ストレージ (TB)	無料 利用者数			
エントリ	-	基本	12,600 円/年	B	共有	最大1ノード相当((36コア、128GBメモリ)×1)	1	0.2	-			
パーソナル	タイプA	基本	100,000 円/年	A	共有	最大4ノード相当((68コア、16+96GBメモリ)×4)	168	3.0	-			
	タイプB	基本	100,000 円/年	B	共有	最大4ノード相当((36コア、128GBメモリ)×4)		3.0				
	タイプC	基本	100,000 円/年	C	共有	最大1ノード相当((72コア、3072GBメモリ)×1)		3.0				
グループ	タイプA1	最小	200,000 円/年	A	優先	4ノード((68コア、16+96GBメモリ)×4)	336	24.0	8			
		追加単位	100,000 円/年			2ノード((68コア、16+96GBメモリ)×2)		12.0	4			
	タイプA2	最小	240,000 円/年		準優先	8ノード((68コア、16+96GBメモリ)×8)		28.8	16			
		追加単位	60,000 円/年			2ノード((68コア、16+96GBメモリ)×2)		7.2	4			
	タイプA3	最小	600,000 円/年		占有	8ノード((68コア、16+96GBメモリ)×8)		48.0	16			
		追加単位	300,000 円/年			4ノード((68コア、16+96GBメモリ)×4)		24.0	8			
	タイプB1	最小	210,000 円/年	B	優先	4ノード((36コア、128GBメモリ)×4)		168	24.0	8		
		追加単位	105,000 円/年			2ノード((36コア、128GBメモリ)×2)			12.0	4		
	タイプB2	最小	252,000 円/年		準優先	8ノード((36コア、128GBメモリ)×8)			28.8	16		
		追加単位	63,000 円/年			2ノード((36コア、128GBメモリ)×2)			7.2	4		
	タイプB3	最小	630,000 円/年		占有	8ノード((36コア、128GBメモリ)×8)			48.0	16		
		追加単位	315,000 円/年			4ノード((36コア、128GBメモリ)×4)			24.0	8		
	タイプC1	最小	130,000 円/年	C	優先	1ノード((72コア、3072GBメモリ)×1)			336	24.0	8	
		追加単位	130,000 円/年			1ノード((72コア、3072GBメモリ)×1)				24.0	8	
	タイプC2	最小	156,000 円/年		準優先	2ノード((72コア、3072GBメモリ)×2)				28.8	16	
追加単位		78,000 円/年	1ノード((72コア、3072GBメモリ)×1)			14.4	8					
大規模ジョブ	タイプA	最小	20,000 円/週(7日)		A	占有	8ノード((68コア、16+96GBメモリ)×8)			168	-	-
		追加単位	10,000 円/週(7日)				4ノード((68コア、16+96GBメモリ)×4)					
	タイプB	最小	21,000 円/週(7日)	B	占有	8ノード((36コア、128GBメモリ)×8)						
		追加単位	10,500 円/週(7日)			4ノード((36コア、128GBメモリ)×4)						
	タイプC	最小	13,000 円/週(7日)	C	占有	2ノード((72コア、3072GBメモリ)×2)						
		追加単位	6,500 円/週(7日)			1ノード((72コア、3072GBメモリ)×1)						
専用クラス	-	最小	630,000 円/年	B	-	8ノード((36コア、128GBメモリ)×8)	-	48.0		16		
		追加単位	315,000 円/年			4ノード((36コア、128GBメモリ)×4)	-	24.0		8		
ストレージ容量追加			10,000 円/年	ストレージ容量10TBの追加につき								
ライセンスサービス			20,000 円/年	可視化ソフト(AVS,ENVI/IDL)およびプリポストウェアの1ライセンスにつき								

備考

- 利用負担額は、年度単位で算定している。また、総額表示である。パーソナルコース、グループコース又は専用クラスコースを、年度途中から利用を開始する場合及び年度途中で利用を終了する場合の利用負担額は、上記表中の利用負担額を12で除した後、利用月数を乗じて算出するものとし、100円未満に端数が出た場合は、10円単位を四捨五入するものとする。
なお、月途中から利用を開始する場合及び月途中で利用を終了する場合は、それぞれ1月の利用とする。
- 大型計算機システムの全ての利用者は、上記表のサービスの他、次のサービスを受けることができる。
 - 大判プリンタサービス
 - その他、大型計算機システムが提供するサービス、機器の利用
- 上記表の大規模ジョブコース、ストレージ容量追加、ライセンスサービスの申請には、スーパーコンピュータシステムの利用者であることが必要である。
- 「共有」：当該カテゴリのユーザ間で一定の計算資源を共有するベストエフォートのスケジューリングを行う。
「準優先」：定常稼働状況において記載値(以上)の計算資源が確保されるように優先スケジューリングを行う。
また、稼働状況によらず記載値の1/4の計算資源が確保されることを保証する。
「優先」：定常稼働状況において記載値(以上)の計算資源が確保されるように優先スケジューリングを行う。
また、稼働状況によらず記載値の1/2の計算資源が確保されることを保証する。
「占有」：稼働状況によらず記載値の計算資源が確保されることを保証する。
- ストレージ容量はバックアップ領域(最大で総容量の1/2)を含む。
- グループコース及び専用クラスコースの利用者番号は利用者あたり年額5,000円を負担することで追加できる。
- 機関・部局定額制度
他機関又は学内における部局(『国立大学法人京都大学の組織に関する規程』第3章第2節から第11節で定める組織をいう。)の組織が、その組織単位でグループコースサービスを利用申請する場合の利用負担額は、別表1に規定する1.5倍の額とする。なお、利用負担額が年額150万円未満の場合は100人、年額150万円を超える場合は、150万円毎に100人までの利用者を認める。ストレージは、1.5倍の容量とする。
- スパコン連携サービス
学術情報メディアセンターのスーパーコンピュータシステムと密な連携により、学内における部局の組織が計算サーバ等を設置する場合、下記の負担額を支払うものとする。

冷却方式	利用負担額	利用負担額算定単位
水冷	9,800 円/月	水冷冷却方式の計算サーバ等の定格電力 1kWにつき
空冷	11,500 円/月	空冷冷却方式の計算サーバ等の定格電力 1kWにつき

別表2 アカデミッククラウドシステム

区 分	利用負担額	単 位
仮想サーバ ホスティングサービス	36,000円／年	1仮想サーバにつき

備考

1. 利用負担額は、総額表示である。
2. 上記表の仮想サーバホスティングサービスを利用するには、スーパーコンピュータシステムの利用者であること。
3. 1仮想サーバに割当ててるシステム資源は、CPU:2コア、メモリ:4GB、ディスク:100GBである。
4. 仮想サーバホスティングサービスにおいて、下記の負担額を支払うことによりCPU、メモリ、ディスクを増量することができる。

区 分	利用負担額	単 位
CPU増量	3,000円／年	2コアにつき(最大8コアまで)
メモリ増量	3,000円／年	4GBにつき(最大64GBまで)
ディスク増量	6,000円／年	100GBにつき(最大1,000GBまで)

5. 利用負担額は、当該年度(4月から翌年3月まで)の利用に対して年額として算定するが、年度途中から利用を開始する場合及び申請時において年度途中で利用を終了することが明らかな場合には月数に応じて減額する。

別表3 スーパーコンピュータシステム

システム	システム資源	経過時間 (時間)	ストレージ (TB)	無料 利用者数	利用負担額
A	8ノード(68コア、16+96GBメモリ)×8)	336	28.8	16	960,000 円/年
	12ノード(68コア、16+96GBメモリ)×12)	336	43.2	24	1,440,000 円/年
	16ノード(68コア、16+96GBメモリ)×16)	336	57.6	32	1,920,000 円/年
B	8ノード(36コア、128GBメモリ)×8)	336	28.8	16	1,008,000 円/年
	12ノード(36コア、128GBメモリ)×12)	336	43.2	24	1,512,000 円/年
	16ノード(36コア、128GBメモリ)×16)	336	57.6	32	2,016,000 円/年
C	2ノード(72コア、3072GBメモリ)×2)	336	28.8	16	624,000 円/年
	3ノード(72コア、3072GBメモリ)×3)	336	43.2	24	936,000 円/年
	4ノード(72コア、3072GBメモリ)×4)	336	57.6	32	1,248,000 円/年

備考

1. 利用負担額は、年度単位で算定している。また、総額表示である。パーソナルコース、グループコース又は専用クラスターコースを、年度途中から利用を開始する場合及び年度途中で利用を終了する場合の利用負担額は、上記表中の利用負担額を12で除した後、利用月数を乗じて算出するものとし、100円未満に端数が出た場合は、10円単位を四捨五入するものとする。
なお、月途中から利用を開始する場合及び月途中で利用を終了する場合は、それぞれ1月の利用とする。
2. ストレージ容量はバックアップ領域(最大で総容量の1/2)を含む。

全国共同利用版広報・Vol.19(2020)総目次

[巻頭言]

Vol. 19, No. 1 号の発刊にあたって	1-1
Vol. 19, No. 2 号の発刊にあたって	2-1

[スーパーコンピュータ共同研究制度（若手・女性研究者奨励枠）研究報告]

液体攪拌操作における翼端渦と多相分散の関係性の解明.....	1-2
界面の摩擦接触を考慮した損傷モデルによる鉄筋コンクリートの3次元破壊シミュレーション.....	1-4
高効率有機系太陽電池の実現に向けた光機能性分子の構造と電子物性の相関解明	1-6
時系列リモートセンシングデータによる全球陸域統合環境モニタリング	1-8
界面分光の分子動力学シミュレーション.....	1-10
水平基板上を濡れ広がる液膜と単一球形粒子との 相互作用による接触界線近傍流体の加速現象に関する数値解析	1-12
N 結合型糖鎖修飾によるタンパク質の機能制御の関連性	1-14
Numerical simulation of deepwater oil blowout- Crossflow and droplet size distribution	1-16
流体の一変数時系列データに対する機械学習によるモデルの構成	1-18
Numerical simulation of the transport phenomena occurring in the Bottom Seeded Solution Growth (BSSG) process of SiC.....	1-20
高プラントル数液柱温度差マランゴニ対流における 自由表面を介した熱損失の影響に関する数値解析.....	1-22
数値シミュレーションを用いたウマの個体間に働く力の推定.....	1-25
リモートセンシングなどの大規模環境データ解析による環境社会問題への応用、社会実装実験.....	1-27

[スーパーコンピュータ共同研究制度（大規模計算支援枠）研究報告]

メッシュ・チャンネル乱流の超高解像度 DNS.....	1-29
-----------------------------	------

[プログラム高度化共同研究報告]

水・熱移動を考慮した3次元剛体バネモデルによるコンクリート構造物の 長期変形・ひび割れ進展挙動および動的破壊挙動の高解像度シミュレーション	1-34
水を推進剤とした超小型マイクロ波放電式プラズマ源を対象とした3次元プラズマ粒子計算.....	1-38
巨大津波遡上時の木造家屋の瓦礫生成過程シミュレーションの高度化.....	1-42

[FX700 計算サーバ性能評価]

惑星磁気圏 MHD シミュレーションコードによる A64FX プロセッサ(FX700)の性能評価	2-3
--	-----

[JHPCN 研究紹介]

JHPCN が拓くビッグデータサイエンス：高速データ伝送技術	2-12
--------------------------------------	------

[サービスの記録・報告]

スーパーコンピュータシステムの稼働状況.....	1-46, 2-19
センター利用による研究成果（2019年度）	2-22

[資料]

大型計算機システム利用負担金 別表.....	1-50,2-28
全国共同利用版広報・Vol.18(2019)総目次.....	1-53
サービス利用のための資料一覧.....	1-55,2-31

[奥付]

奥付	1-56,2-32
----------	-----------

— サービス利用のための資料一覧 —

1. スーパーコンピュータシステム・ホスト一覧

- システム A : camphor.kudpc.kyoto-u.ac.jp
- システム B・C : laurel.kudpc.kyoto-u.ac.jp
 - システム B (SAS 利用時) : sas.kudpc.kyoto-u.ac.jp

※ ホストへの接続は SSH(Secure SHell) 鍵認証のみ、パスワード認証は不可

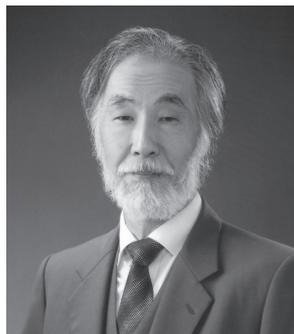
2. 問い合わせ先 & リンク集

- 情報環境機構のホームページ
<http://www.iimc.kyoto-u.ac.jp/>

- 学術情報メディアセンターのホームページ
<http://www.media.kyoto-u.ac.jp/>

- スーパーコンピュータシステムに関する問い合わせ先
 - 利用申請などに関する問い合わせ先
【情報環境支援センター】
E-mail : zenkoku-kyo@media.kyoto-u.ac.jp / Tel : 075-753-7424
URL: <http://www.iimc.kyoto-u.ac.jp/ja/services/comp/>

 - システムの利用など技術的な問い合わせ先
【スーパーコンピューティング掛】
E-mail : consult@kudpc.kyoto-u.ac.jp / Tel : 075-753-7426
URL: <http://www.iimc.kyoto-u.ac.jp/ja/services/comp/contact.html>



訃報

中島 浩 教授

中島浩先生は、2021年10月6日に逝去されました。享年65。先生は、1979年京都大学工学部情報工学科を卒業され、1981年同工学研究科情報工学専攻の修士課程を修了後、三菱電機(株)に入社されました。1991年京都大学博士(工学)を授与され、1992年京都大学工学部助教授に就任、1997年豊橋技術科学大学情報工学系教授に転出された後、2006年京都大学学術情報メディアセンター教授に就任されました。

この間、2010年より2014年まで京都大学学術情報メディアセンター長を務められ、同センターの管理運営に尽力、また、同期間京都大学教育研究評議会評議員を務められ、京都大学の管理運営に貢献されました。

先生は、並列計算機のアーキテクチャ、並列ソフトウェア技術に関する研究に従事され、最近では OhHelp と呼ばれる粒子シミュレーションにおける負荷均衡ライブラリを開発されました。この研究成果は、これまでに多くの粒子シミュレーションにおいて利用されており、そのシミュレーション結果の創出を加速しています。

京都大学学術情報メディアセンター全国共同利用版広報 Vol. 20, No. 1

2021年 10月 29日 発行

編集者 京都大学学術情報メディアセンター
全国共同利用版広報編集部会
発行者 〒606-8501 京都市左京区吉田本町
京都大学学術情報メディアセンター
Academic Center for Computing and Media Studies
Kyoto University
Tel. 075-753-7407
<http://www.media.kyoto-u.ac.jp/>
印刷所 〒616-8102 京都市右京区太秦森ヶ東町 21-10
株式会社エヌジーピー

広報編集部会

深沢 圭一郎 (部会長)
鳥生 大祐 (副部会長)
當山 達也
熊谷 真由美

表紙デザイン：中山 豊
(中山商店)

目次

【巻頭言】

- ・ Vol.20, No.1 号の発刊に当たって 牛島 省 1

【スーパーコンピュータ共同研究制度(若手・女性研究者奨励枠)研究報告】

- ・ 機械攪拌中浮遊油膜巻き込みメカニズムの解明 山本 卓也 2
- ・ 高効率有機系太陽電池の実現に向けた光機能性分子の構造と電子物性の相関解明 東野 智洋 4
- ・ 時系列リモートセンシングデータによる全球陸域統合環境モニタリング 堤田 成政 6
- ・ 自己集合性 1,3,5-Tri(benzoimidazolyl)benzene 誘導体の構造解析 曾川 洋光 8
- ・ 界面分光の分子動力学シミュレーション 城塚 達也 10
- ・ Numerical simulation of thermal-solutal Marangoni convection in a shallow rectangular model with mutually perpendicular temperature and concentration gradients ZHANG Jianguo 12
- ・ 浮遊培養法による iPS 細胞作製技術の最適化を目的とした流動解析 磯部 亮佑 14
- ・ 数値シミュレーションを用いたウマの個体間に働く力の推定 井上 漱太, 深沢 圭一郎, 平田 聡 16
- ・ ローレンツ方程式に対する機械学習によるモデリング 中井 拳吾 18
- ・ 力学系と代数幾何の理論に基づくデータ駆動的スパースモデリング 中野 直人 20
- ・ 第一原理計算による BaSi₂ 太陽電池の接合パートナー探索 原 康祐 22
- ・ 統計物理学模型との対応を利用した機械学習手法の性能評価 春名 純一 24
- ・ 遷移金属による協奏的結合組み換えを利用した効率的分子変換 岩本 紘明 26

【プログラム高度化共同研究報告】

- ・ 高周波加熱と磁気ノズルを利用した無電極プラズマ推進機の 2次元軸対称プラズマ粒子計算 鷹尾 祥典 28

【サービスの記録・報告】

- ・ スーパーコンピュータシステムの稼働状況 32

【資料】

- ・ 大型計算機システム利用負担金 別表 36
- ・ 全国共同利用版広報・Vol.19 (2020) 総目次 39
- ・ サービス利用のための資料一覧 41

【訃報】

- ・ 訃報 42