

「シミュレーション技術の革新と実用化基盤の構築」研究領域 領域活動・評価報告書
—平成17年度終了研究課題—

研究総括 土居 範久

1. 研究領域の概要

本研究領域は、計算機科学と計算科学が連携することにより、シミュレーション技術を革新し、信頼性や使い易さも視野に入れて、実用化の基盤を築く研究を対象とするものです。

具体的には、物質、材料、生体などのミクロからマクロに至るさまざまな現象をシームレスに扱える新たなシミュレーション技術、分散したデータベースやソフトウェアをシステム化する技術、また、計算手法の飛躍的な発展の源となる革新的なアルゴリズムの研究や、基本ソフト、情報資源を取り扱いやすくするためのプラットフォームあるいは分野を越えて共通に利用できる標準パッケージの開発などが含まれます。

2. 研究課題・研究者名

別紙一覧表参照

3. 選考方針

選考の基本的な考えは下記の通り。

- 1) 選考は「シミュレーション技術の革新と実用化基盤の構築」領域に設けた領域アドバイザー8名と研究総括で行う。
- 2) 選考方法は、書類選考、面接選考及び総合選考とする。
 - ・書類選考においては1提案につき3名の領域アドバイザーが査読し評価する。
 - ・面接選考においては可能な限り多くの提案者から直接説明を受け、質疑応答を行う。
- 3) 10 年程度後に医療分野における高度治療や情報産業における精密製品設計等の「ものづくり」に役立つ次世代統合シミュレーション技術を確立するという戦略目標の達成に向けて貢献できる基盤整備として必要となる、基礎的・共通的な実用化の基盤を構築する研究を対象とする。

4. 選考の経緯

一応募課題につき領域アドバイザー3名が書類審査し、書類選考会議において面接選考の対象者を選考した。続いて、面接選考および総合選考により、採用候補者を選定した。

選 考	書類選考	面接選考	採用者
対象者数	38 名	15 名	8 名

5. 研究実施期間

平成14年11月～平成18年3月

6. 領域の活動状況

領域会議:7回

研究実施場所訪問:研究開始時に研究総括、技術参事が研究者を訪問。その後、研究計画策定時に適宜、研究者を訪問。

7. 評価の手続き

研究総括が各研究者から報告および自己評価を基に、アドバイザーの協力を得て行った。また、研究終了時に当領域が開催するシンポジウム(一般公開)等の参加者の意見を参考とした。

(評価の流れ)

平成 17 年 10 月	研究期間終了(1 名)
平成 18 年 3 月	研究期間終了(7 名)
平成 17 年 12 月	当領域の CREST チームと合同シンポジウムを開催
平成 18 年 3 月	研究報告書及び研究課題別評価提出
平成 18 年 3 月	研究総括による評価

8. 評価項目

- (1) 外部発表(論文、口頭発表等)、研究を通して得られた新しい知見などの研究成果
- (2) 得られた研究成果の科学技術への貢献

9. 研究結果

「シミュレーション技術の革新と実用化基盤の構築」領域では H14 年度採択研究としてマルチスケール・マルチフィジックスシミュレーション技術の研究開発(青木研究者、今田研究者、中嶋研究者、松本研究者、山本研究者、劉研究者)、革新的アルゴリズムの研究開発(中村研究者、室田研究者)を採択した。

本領域は、個人型研究とポスドク参加型研究のさきがけ研究と、さらに CREST 研究が加わった混合領域である。年 2 回開催される領域会議、年 1 回開催されるシンポジウムでは各種分野の研究者から様々な議論が交わされた。特にポスドク参加型では、それぞれ異なる専門分野を得意とする複数のポスドク研究者の参加により、幅のある研究推進ができ有益な研究成果を得たことが報告されている。各研究者の研究結果は以下である。

青木研究者は、規則系および不規則系巨大高分子の電子状態を、分子軌道法に基づく量子化学的な手法により、超効率的にしかも精度良く計算できる計算プログラムを完成させると共に、機能性高分子の量子化学的解析方法を組み込むことにより、より実用価値の高い「機能性高分子の分子設計統合システム」を構築した。

今田研究者は、新しく開発した経路積分繰り込み群法と従来の計算手法とをハイブリッド的に組み合わせた DFT-PIRG 法という方法によって、現実物質のハイブリッド型大規模計算が可能になるような第一原理計算手法としたシミュレーション技術を開発し、強相関物質での精度の高い計算手法を確立した。

中嶋研究者は、相対論的分子理論を展開することで、幅広い種類の元素を含む分子系を取り扱うことのできる理論化学を構築し、周期表のあらゆる元素から構成される大規模な分子系を高精度に計算することのできる分子理論プログラムを完成させた。

中村研究者は、大規模情報処理の基盤技術となる新しい特異値分解法を開発し、その高速性・高精度性を理論的かつ実験的に検証した。

松本研究者はコンピュータを用いた三次元実モデルの数値シミュレーションにより、共振をうまく利用して小さな力のアクチュエータ源で構造物を駆動させ、流体を大きく動かすことを可能にする共振制御解析手法の開発を行った。

室田研究者は、離散凸解析の理論を手掛りとして、連続系と離散系の最適化手法を開発し数学的取り扱いの統合を行い、従来、必要に迫られて実行してきた連続系と離散系を含む複合システムのシミュレーション技術の基礎を確立した。

山本研究者は、粒子と溶媒の界面に滑らかなプロファイル(Smoothed Profile)を用いて連続的に取り扱うという手法を用いたハイブリッド型分子動力学(MD)シミュレーションの方法を提唱し、マルチスケールの階層性をもつソフトマターのシミュレーションを可能とした。その結果、世界で初めて液晶溶媒に対する多粒子分散系のシミュレーションに成功した。

劉研究者は、生物の羽ばたき飛行を厳密な幾何学、運動学及び力学のモデルに基づき、静止飛行、前進飛行及び急旋回のような自由飛行を計算機の中に再現できる力学シミュレータの構築を行った。

10. 評価者

研究総括 土居 範久 中央大学理工学部情報工学科 教授

領域アドバイザー氏名(五十音順)

大蒔 和仁	産業技術総合研究所 研究コーディネーター
小柳 義夫	東京大学大学院情報理工学系研究科 教授
武市 正人	東京大学大学院情報理工学系研究科 教授
寺倉 清之	北海道大学創成科学研究機構 教授
東倉 洋一	情報・システム研究機構国立情報学研究所 教授
三浦 謙一	情報・システム研究機構国立情報学研究所 教授
宮原 秀夫	大阪大学 総長
矢川 元基	東洋大学工学部機械工学科 教授

(参考)

(1) 外部発表件数

	国 内	国 際	計
論 文	9	73	82
口 頭	123	83	206
その他	4	2	6
合 計	136	158	294

※平成 17 年 12 月現在

(2) 特許出願件数

国 内	国 際	計
6	3	9

(3) 受賞等

- ・中村 佳正
2006 年情報処理学会ハイパフォーマンズコンピューティングと計算科学シンポジウム (HPCS2006)
最優秀論文賞 受賞(H18.1)
- ・室田 一雄
第 21 回井上学術賞(H17.2)
- ・山本 量一
分子シミュレーション研究会学術賞(H14.12)

(4) 招待講演

国際 37 件
国内 16 件

別紙

「シミュレーション技術の革新と実用化基盤の構築」領域 研究課題名および研究者氏名

研究者氏名 (参加形態)	研 究 課 題 名 (研究実施場所)	現 職 (応募時所属)	研究費 (百万円)
青木 百合子 (ポスドク参加型) (兼任)	超効率的高分子物性機能計算システムの開発 (九州大学)	九州大学大学院総合理工学府 教授 (広島大学大学院理学研究科 助教授)	99
今田 正俊 (ポスドク参加型) (兼任)	相関電子系の新しい大規模計算アルゴリズム (東京大学)	東京大学物性研究所 教授 (同上)	90
中嶋 隆人 (個人型) (兼任)	相対論的分子理論プログラムの開発 (東京大学)	東京大学大学院工学系研究科 助教授 (同上 助手)	49
中村 佳正 (ポスドク参加型) (兼任)	特異値分解法の革新による実用化基盤の構築 (京都大学)	京都大学大学院情報学研究科 教授 (同上)	89
松本 純一 (個人型) (兼任)	マイクロ流体デバイス開発のための流体－構造連成共振現象逆解析 (産業技術総合研究所)	産業技術総合研究所先進製造プロセス研究部門 研究員 (同研究所計算科学研究部門 特別研究員)	44
室田 一雄 (個人型) (兼任)	離散・連続複合系の分散最適化シミュレーション (東京大学)	東京大学大学院情報理工学系研究科 教授 (同上)	30
山本 量一 (ポスドク参加型) (兼任)	ハイブリッド型分子動力学シミュレーションの開発 (京都大学)	京都大学大学院工学研究科 助教授 (同大学大学院理学研究科 講師)	76
劉 浩 (ポスドク参加型) (兼任)	生物型飛行の力学シミュレータの構築 (千葉大学)	千葉大学工学部電子機械工学科 教授 (理化学研究所情報環境室 前任研究員)	97

研究課題別評価

1 研究課題名： 超効率的な高分子物性機能計算システムの開発

2 研究者氏名： 青木百合子

研究員： Feng Long Gu (研究期間 H.15.3～H17.4,
H17.5～H18.3 (九州大学学術研究員・特任助教授))

研究員： Jacek Korchowiec (研究期間 H.15.10～H17.3)

研究員： Marcin Makowski (研究期間 H.17.3～H17.4,
H17.5～H18.2 (九州大学学術研究員・特任助手))

技術員： 折本裕一 (研究期間 H.15.10～H17.3,
H17.4～H18.3 (九州大学学術研究員))

3 研究のねらい：

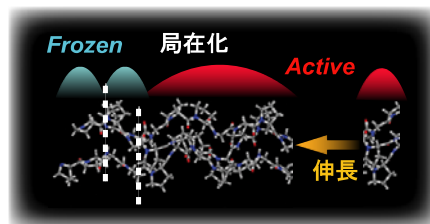
小さな分子に対して成功を遂げた量子化学計算は生体高分子等巨大系に対しては未だ無力である。規則系および不規則系巨大高分子の電子状態を、分子軌道法に基づく量子化学的な手法により、超効率的にしかも精度良く計算できる計算プログラムを完成させると共に、機能性高分子の量子化学的解析方法を組み込むことにより、より実用価値の高い「機能性高分子の分子設計統合システム」を構築する。

まず、高分子の重合反応をシミュレーションしながら効率よく超効率的に電子状態計算ができるよう、代表者らが初めて提唱した Elongation 法を複雑系に対しても適用可能となるよう完成させる。次に、原子・分子のレベルでの機能性高分子材料の分子設計および生体高分子における機能解明のために提出してきた導電性、磁性、非線形光学現象、協同現象に関する量子化学的機能・物性解析方法を発展させる。最後に実用化に向けて、これら機能・物性解析方法を Elongation 法と組み合わせる。本ソフトウェアによって、機能性高分子材料や生体材料の原子・分子レベルでの分子設計が可能となり、材料開発の大幅なコスト削減につながることを目指す。

4 研究成果：

4-1 Elongation 法の概要

Elongation 法とは、小さなオリゴマーを出発クラスターとして、高分子の重合反応を追跡するようにしてセグメントを順次付加させながら、高分子鎖の電子状態を求めていく方法である。本方法では、クラスター側の分子軌道を付加するセグメントから離れた局在化軌道(Frozen LMO)とセグメントに近い局在化軌道(Active LMO)に分け、セグメントは、Active LMO とのみ相互作用させる。よって、高分子鎖にセグメントを付加させる度に、高分子鎖側の反応末端と付加するセグメントの間の局所的な相互作用のみを取り扱うため、全系をまともに扱う従来の計算に比べて、極めて効率よく電子状態を求めることができる。また、Frozen LMO は、セグメントとの相互作用がある閾値以下になったら計算からはすすようにしているため、計算精度を落とすことなく、正確にかつ効率的に高分子鎖の電子状態を合成していくことができる。しかも遠距離クーロン相互作用は評価されているので、極めて高精度で計算できること、どのようなランダム系に対しても適用可能であることが特徴である。



例えばコラーゲン三重ヘリックス(右図)に適用したところ、全系に対する従来の計算方法との誤差は、 10^{-9} a.u./atom となり、ほぼ完全な一致を示した。全くランダムなシーケンスからなる高分子系に対しても、むしろ領域軌道が効率よく作成できるため、高精度のままさらなる高速演算が可能である。

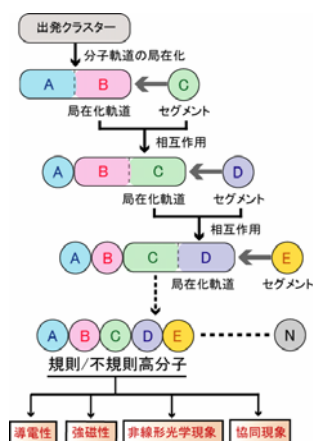
Number of added units	S/STO-3G	S/6-31G	T/STO-3G	T/6-31G
1	1.25×10^{-9}	6.87×10^{-9}	1.92×10^{-9}	19.91×10^{-9}
2	1.17×10^{-9}	10.34×10^{-9}	4.58×10^{-9}	11.42×10^{-9}
3	1.17×10^{-9}	24.39×10^{-9}	7.18×10^{-9}	18.97×10^{-9}
4	1.23×10^{-9}	28.24×10^{-9}	9.55×10^{-9}	34.77×10^{-9}
5	1.35×10^{-9}	47.70×10^{-9}	11.32×10^{-9}	45.12×10^{-9}

S: 一重ヘリックス T: 三重ヘリックス

本方法は、導電性、強磁性、非線形光学特性への機能設計に適用しているが、ここでは応用例として、非線形光学材料設計への応用についてのみ示す。

4-2 Elongation 法における方法論の開発の概要

Elongation 法の概念図は下図(左)であるが、本PRESTOプロジェクトの当初の計画は、下図(右)の表に示すように、半経験的(AM1, PM3, MNDO 法)および非経験的分子軌道法のレベルで制限 Hartree-Fock(RHF)法、非制限 Hartree-Fock (UHF)法、開殻系 Hartree-Fock(ROHF)法全てに対して本方法を確立することであり、通常の Elongation 法、AO-Cut 法の導入による Linear SCF Scaling 法、エネルギー勾配法による構造最適化法全ての組み込みは完了した。さらに、密度汎関数法、電子相関効果の導入について、引き続き展開させているところである。

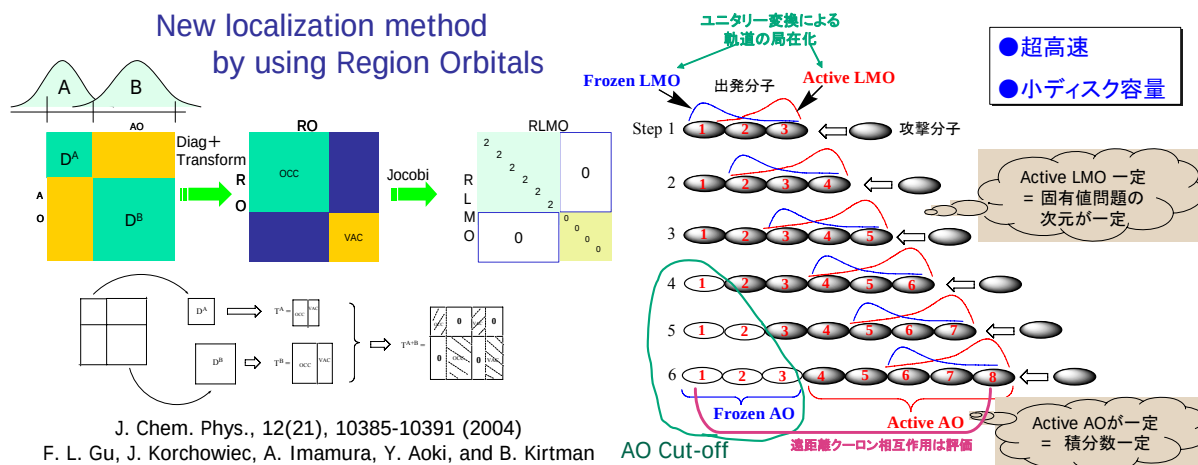


PRESTOの当初の計画は終了

Hamiltonian	通常	AO-Cut/ qfmm	OPT 構造最適化	電子相関効果	
				TD-HF	MP2
AM1, PM3, MNDO	○	○	○	○	○
HF-RHF	○	○	○	○	進行中
HF-UHF	○	○	○	○	進行中
HF-ROHF	○	○	○	○	進行中
DFT	○	進行中	○	○	○

本方法を始めるに当たっての、最大の難点は、それまで行っていた 2×2 法による局在化軌道の作成では基底関数が増えるにしたがって計算時間が膨大になることであった。如何に軌道を各領域にうまく局在させるかが、本計算方法を高精度に保つためのポイントとなる。本プロジェクトにおいて、下図左のように、A領域とB領域に分割した密度行列に対してそれぞれ対角化を行うことにより、極めて効率的にしかも Quality の高い領域軌道を作成できることを提案した。本方法をプログラム化し、ポリペプチド系や系全体が分極した Twitter-ion 系、 π 電子が非局在化した共役系などに適用した結果、極めて高精度で効率よく電子状態を伸長できることを確認した。

もうひとつの難点は、Frozen 領域軌道における基底関数を、如何にして2電子積分の演算から省くかであった。これについては、攻撃分子とFrozen AO 間に新たに生じる必要最低限のクーロン積分は評価するものの、それ以外の項と交換相互作用項は一度演算したものは保存しておき、全エネルギーの計算のときのみ再利用するという効率的な計算手法を導入した。

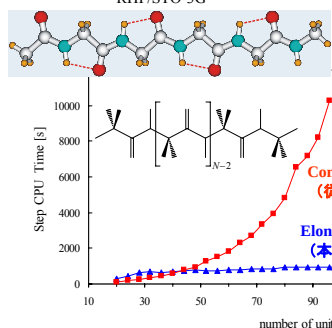


これにより、系を伸長させる過程での Linear SCF Scaling が達成できた。しかし、最後に全エネルギーを計算する段階で、全系のクーロンエネルギーを計算する必要があるため、この部分により、オーダー N からのずれが見られる。この部分を改善するために、遠距離クーロン相互作用の QFMM 法による評価方法を導入している。

本方法により、ポリグリシン巨大系に対して演算し、従来法と本方法での演算時間を比較した(下図左)。伸長過程については、閉殻系のまま重合することができる他、UHF法によりラジカル重合を計算機上で実現することも可能であり、この場合も下表(右)に示すように、誤差は 10^{-8} a.u./unit程度と非常に小さいことがわかる。これはスピン多重度を2重項のままで伸長したものであるが、一方、スピン多重度が系とともに増え続ける高スピン型の磁性高分子の計算も可能となっている。

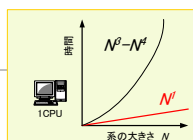
Elongation法の高速性 Polyglycine(～150残基)

C5 Conformer of PolyGlycine
Step Elongation CPU Time in SCF
RHF/STO-3G



超高速

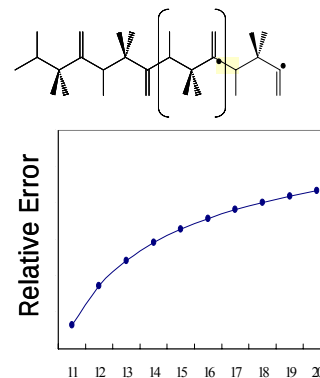
1CPUでオーダー N
...系の大きさ N の一次に
比例した計算時間



Radical polymerization reaction(UHF)

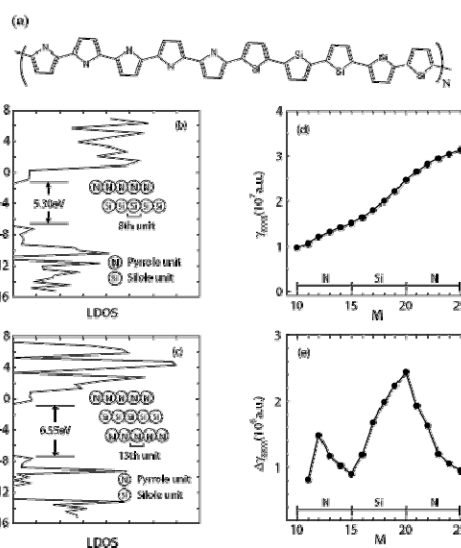
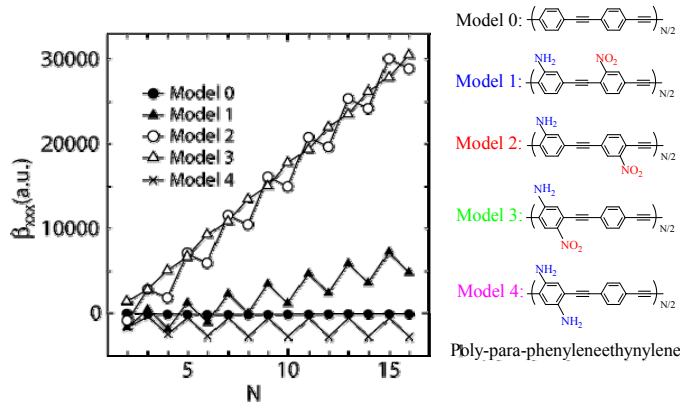
Error(a.u.)
～ 10^{-7} a.u.

POLYGLYCINE		
n	Elongation	Error
10	-271.933904961	0.000000000
11	-299.0780420906	0.000000021
12	-326.222495764	0.000000073
13	-353.366620515	0.000000164
14	-380.511427885	0.000000287
15	-407.655896318	0.000000442
16	-434.800267044	0.000000619
17	-461.944899487	0.000000812
18	-489.0893132462	0.000001023
19	-516.2337881982	0.000001251
20	-543.3782640470	0.000001494



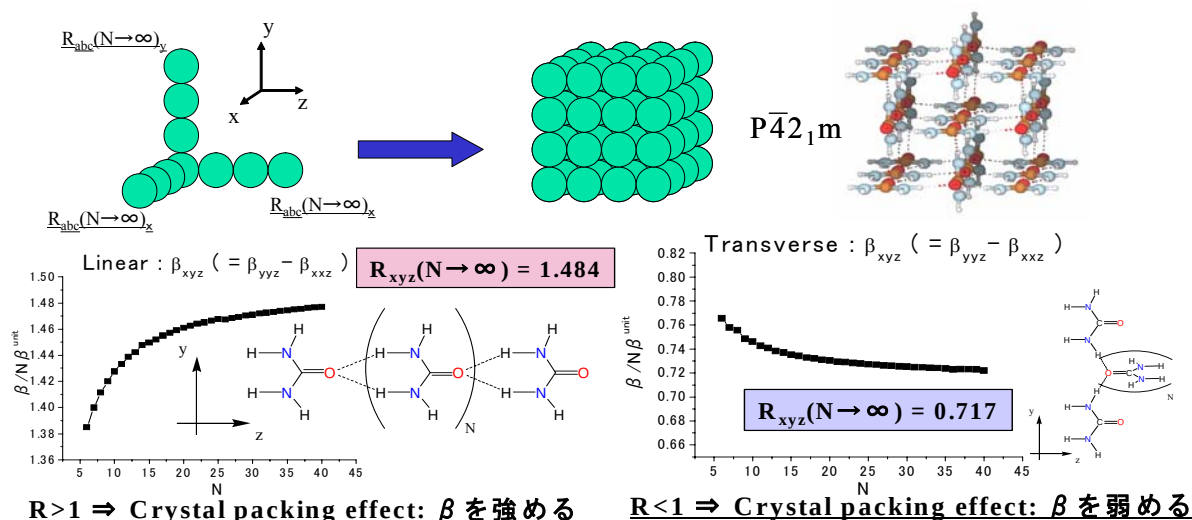
4-3 Elongation 法における非線形光学材料設計への応用

高分子の超分極率が超効率的に計算可能となるよう、Elongation 法にハミルトニアンに電場の効果を導入して全エネルギーの電場勾配を数値的に Finite Field 法によって見積もる Elongation-FF 法を開発し、その応用として、ポリパラフェニレン Push-Pull 置換体のほか、ポリパラフェニレンエチニレンの Push-Pull 置換体等に適用し、2次非線形感受率が、中心対称性が Broken した系においてユニット数とともに増大することを確認した。



また、量子井戸構造(Band gap が大小交互になっている構造)を持つことにより3次の非線形光学性が大きくなることが理論的に示されている。モデル分子として量子井戸構造を持つポリヘテロール(ピロールとシロールからなるブロックポリマー) に対して適用を行い、局所バンド構造と3次の超分極率 γ 、 $\Delta\gamma$ の関係を調べたところ、Band gap が小さい silole block-unit の付加により γ がより大きく増大することが示された(前頁下図右)。

一方、三次元結晶における非線形光学特性計算としてPOM結晶、MNA結晶、Urea結晶などに適用した。例として、Urea結晶の超分極率 β のElongation法による結果をMultiplicative schemeによってもとめた結果を示す。結晶軸x, y, z各方向に伸長させてCrystal packing ratio R_{abc} を計算する。ここで、 $R_{abc} = \beta_{abc} / N\beta_{abc}^{unit}$ 。以下に、Urea結晶におけるLinear方向とTransverse方向のpacking ratioから得られる β_{xyz} を実験値との比較で示す。



実験測定値との比較

$$R_{xyz}(N \rightarrow \infty) = R_{abc}(N \rightarrow \infty)_{linear} \times R_{abc}(N \rightarrow \infty)_{transverse}^2$$

$$= 1.484 \times 0.717^2 = 0.762$$

実験値 $-3.4 \times 10^{-9} \text{esu}$ (Halbout *et al.*¹⁾)

$$\beta_{xyz}^{eff} = -62.44 \text{ a.u.} \times 0.762 = -47.58 \text{ a.u.}$$

$$\chi_{xyz}^{(2)} = \mathcal{N} \times \beta_{xyz}^{eff} = 6.84 \times 10^{21} \text{cm}^{-3} \times -0.412 \times 10^{-30} \text{esu}$$

$$= -2.82 \times 10^{-9} \text{esu} \quad (1 \text{ a.u.} = 8.657 \times 10^{-33} \text{esu}) \quad \text{誤差 } -17.1\%$$

電子相関(MP2)による補正²

$$\chi_{xyz}^{(2)MP2} = \chi_{xyz}^{(2)HF} \times \frac{\beta_{xyz}^{MP2}}{\beta_{xyz}^{HF}} = -2.82 \times 10^{-9} \text{esu} \times \frac{-69.69}{-62.44} = -3.14 \times 10^{-9} \text{esu} \quad \text{誤差 } -7.6\%$$

¹ Halbout, J. M. *et al*, *Nonlinear Optical Properties of Organic Molecular and Crystals*; Vol. 1, p 385-404.

² Castet, F.; Champagne, B. *J. Phys. Chem. A* **2001**, *105*, 1366.

4-4 電子相関効果導入への扉

—Elongation 法の領域局在化スキームによる摂動論への展開

周波数 ω 依存の超分極率を得るために Coupled Perturbed Hartree-Fock 法による超分極率の計算アルゴリズムを領域軌道基底で開発し、Elongation 法に組み込んだ。局在化軌道ベースで Time-dependent Hartree-Fock 方程式を解く全く新しい理論的手法であり、本課題に限らず一般的に応用可能な方法であるため、今まで困難を極めていた巨大系への電子相関効果導入に新しい展開をもたらす方法と期待できる。次に、方法論の概略と、計算結果の一部を示す。

外場のない状態での領域局在化軌道の局在化スキームは、対称直交化後の直交 AO (OAO) を基底とした密度行列は、変換行列を X とすると $D^{(0)OAO} = XD^{(0)AO}X^\dagger$ で表される。

領域軌道の作成は 2 段階で行い、最初の段階は、領域 A に関する直交サブ密度行列 $D^{(0)OAO}$ (A) と領域 B に関する直交サブ密度行列 $D^{(0)OAO}$ (B) をそれぞれ対角化する。

$$T^{(0)A^\dagger} D^{(0)OAO}(A) T^{(0)A} = \lambda^{(0)A} \quad T^{(0)B^\dagger} D^{(0)OAO}(B) T^{(0)B} = \lambda^{(0)B}$$

次にそれぞれから得られた変換行列 $T^{(0)A}$, $T^{(0)B}$ より定義した T 行列 $T^{(0)} = T^{(0)A} \oplus T^{(0)B}$ から領域 (RO) 軌道基底の密度行列 $D^{(0)RO} = T^{(0)\dagger} D^{(0)OAO} T^{(0)}$ を作成する。ROs から CMOs への変換行列は $C_{RO}^{(0)CMO} = T^{(0)\dagger} X C_{AO}^{(0)CMO}$ となる。

次の段階では、可能な限り局在性を保つような形で $D^{(0)RO}$ の占有ブロックと非占有ブロック間をユニタリー変換し、得られる新しい領域局在化軌道(RLMO)基底の密度行列 $D^{(0)RLMO}$ の NON-ZERO 項のみが2なる対角行列となるようにする。その変換行列を $\zeta^{(0)}$ とすると、CMO と RLMO の関係は $C_{RLMO}^{(0)CMO} = \zeta^{(0)\dagger} T^{(0)\dagger} X C_{AO}^{(0)CMO}$ となり、元の AO 基底であらわすと、最終的な RLMOs は $C_{AO}^{(0)RLMO} = X^{-1} T^{(0)} \zeta^{(0)}$ で与えられる。

次に、時間依存の電場 $E(\omega, t)$ によって摂動を受けた系に対しては、まず、time-dependent Hartree-Fock 方程式を解くために、静電場のもとで摂動展開を行う。

$$D^{AO} = D^{(0)AO} + E D^{(1)AO} + E^2 D^{(2)AO} + \dots$$

$$T^A = T^{(0)A} + E T^{(1)A} + E^2 T^{(2)A} + \dots$$

$$\lambda^A = \lambda^{(0)A} + E \lambda^{(1)A} + E^2 \lambda^{(2)A} + \dots$$

$$\zeta = \zeta^{(0)} + E \zeta^{(1)} + E^2 \zeta^{(2)} + \dots$$

ここで $T^{(1)A}$ を $T^{(1)A} = T^{(0)A} \eta^{(1)A}$ と表現すると、 $\lambda^{(0)A} \eta^{(1)A} + g^{(1)A} + \eta^{(1)A^\dagger} \lambda^{(0)A} = \lambda^{(1)A}$ と書くことができる ($g^{(1)A} = T^{(0)A^\dagger} D^{(1)OAO}(A) T^{(0)A}$)。 $\eta^{(1)A}$ のブロック対角行列はゼロであるが、非ブロック対角行列は以下で与えられる。

$$\eta_{ij}^{(1)A} = \frac{g_{ij}^{(1)A}}{\lambda_j^{(0)A} - \lambda_i^{(0)A}}$$

$T^{(1)B}$ 行列も同様にして計算すると、 $T^{(1)}$ 行列は非摂動系と同様に $T^{(1)} = T^{(1)A} \oplus T^{(1)B}$ で与えられ、RO基底の一次密度行列は $D^{(1)RO} = T^{(0)\dagger} D^{(0)OAO} T^{(1)} + T^{(0)\dagger} D^{(1)OAO} T^{(0)} + T^{(1)\dagger} D^{(0)OAO} T^{(0)}$ となる。

Field-dependent RO密度行列を対角化し $\zeta^{(1)} = \zeta^{(0)} g^{(1)}$ および $q^{(1)} = \zeta^{(0)\dagger} D^{(1)RO} \zeta^{(0)}$ とおくと

$$g_{ij}^{(1)} = \frac{q_{ij}^{(1)}}{\phi_j^{(0)} - \phi_i^{(0)}}$$

で与えられる。ここで、固有値の差 $\phi_j^{(0)} - \phi_i^{(0)}$ は + or - 2である。最終的に、摂動系のRLMOは、AO基底で $C_{AO}^{(1)RLMO} = X^{-1} T^{(1)} \zeta^{(0)} + X^{-1} T^{(0)} \zeta^{(1)}$ によって与えられる。本方法は、既に簡単な系に適用して方法論的に間違いのないことを確認済みであり、摂動の高次項に対しても、周波数依存場に対しても共通する一般的な方法となると期待できる。

実際には以下の摂動系に対する Coupled Perturbed Hartree-Fock(CPHF)方程式を解く。

$$F^{(1)} C^{(0)} + F^{(0)} C^{(1)} = C^{(1)} \epsilon^{(0)} + C^{(0)} \epsilon^{(1)}$$

ここで、Fock 行列の摂動項は

$$\begin{aligned} & F^{(1) \text{LMO-AO}}(B+M) \\ &= C^{(0) \text{LMO-AO}}(B+M)^\dagger F^{(1) \text{AO}}(A+B+M) C^{(0) \text{LMO-A}}(B+M) \\ &+ C^{(1) \text{LMO-AO}}(B+M)^\dagger F^{(0) \text{AO}}(A+B+M) C^{(0) \text{LMO-A}}(B+M) \\ &+ C^{(0) \text{LMO-AO}}(B+M)^\dagger F^{(0) \text{AO}}(A+B+M) C^{(1) \text{LMO-A}}(B+M) \end{aligned}$$

で与えられる。

最終的に、Active Space に対して一次の密度行列を以下の式

$$D_{AO}^{(1)AO}(A+B+M) = D_{AO}^{(1)AO}(A) \oplus D_{AO}^{(1)AO}(B+M)$$

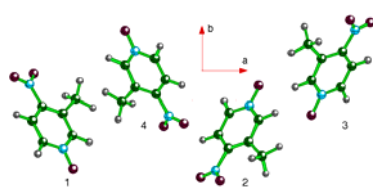
で得ることができ、これより分極率(α)が

$$\alpha = -\text{Tr}[H_{AO}^{AO}(A+B+M)D_{AO}^{(1)AO}(A+B+M)]$$

で与えられる。

これらの Time-dependent Hartree-Fock 法による定式化を Elongation 法に組み込み (ELG-TDHF)、H₂O クラスターに対してテスト計算を行い、従来のダイレクトに全系を扱う方法 (CVL-TDHF) とほぼ完全な一致を見ることができた。出発クラスターが 5 個のとき(下表左上)と 10 個のとき(下表左下)の、従来法による 6-31G 基底による α の比較表である。下図右には、PO M 結晶系における、それぞれの結晶軸に対する α について、Elongation 法による Finite-Field 法 (ELF-FF 法) と、Time-dependent Hartree-Fock 法 (ELG-TDHF) による比較を示すが、一致は極めて良好である。

HF/6-31G	α_{xx}	α_{yy}	α_{zy}	α_{zz}
CVL-TDHF	8.4590	32.3614	-5.6998	41.6113
ELG-TDHF (Nst=5)	8.4593	32.3616	-5.6980	41.6080



HF/6-31G	α_{xx}	α_{yy}	α_{zy}	α_{zz}
CVL-TDHF	15.5076	59.3705	-10.2997	78.0778
ELG-TDHF (Nst=10)	15.5076	59.3703	-10.2996	78.0774

	Method	α_{aa}	α_{bb}	α_{cc}
Along a axis	ELG-FF	974	1202	768
	ELG-TDHF	973	1202	768
Along b axis	ELG-FF	918	1336	718
	ELG-TDHF	918	1320	718
Along c axis	ELG-FF	929	1079	841
	ELG-TDHF	928	1079	835

5 自己評価:

当初の目標は、半経験的分子軌道法および非経験的分子軌道法の Hartree-Fock 法のレベルで Elongation 法を完成させることであったが、最大の難点であった効率的な領域分子軌道の作成において新しい方法を見出したことと、基底(AO)カットオフ法における技術的な問題が解決したことにより、予想より順調に開発が進行した。よってさらに踏み込んで、密度汎関数法のレベルでも開発を進めるとともに、post Hartree-Fock である電子相関効果の導入のための Time-dependent Hartree-Fock 法を組み込み、Coupled Perturbed Hartree-Fock 法による超分極率の計算が可能となった。本方法は Møller-Plesset 摂動法に対しても同様に適用できるため、Hartree-Fock レベルのみでなく、電子相関問題に踏み込むことができたのは大きな成果であった。

一方、階層的電子状態計算法に関しては、半経験的分子軌道法についてはすでに完成しており、非経験的分子軌道法レベルでも同様の手法でいつでも適用できる状態にあるものの、逐次的 Elongation 法を並列環境で開発を行ったため、階層的計算方法の重要性が薄れてしまった。方法論的な基盤は完成しているものの、並列計算機の威力をさらに発揮させるように、本方法を非経験的分子軌道法に組み込む時間的余裕がもてなかったのは残念である。その代わりに階層的方法をカバーする Generalized Elongation 法を考案できたことは、2次元3次元系。さらに複雑な生体高分子に向けて、本方法の適用性を広めることに役立つと期待している。

本方法の特徴として特筆すべき点は、非線形問題の取り扱いに必要な $10^{-6} \sim 10^{-10}$ (μ Hartree 以下) の超高精度を達成できたことである。当初において予想していた精度は 10^{-4} 程度であったが、方法論の改良を行うにつれて、それまで見えていなかった問題がひとつずつ解決し、徐々に計算精度が向上してきた。オーダーN法として提案されている計算方法の中で、本方法を上回る精度を与える方法は世界的に見ても他にないため、当初の目的を遥かに上回る成果となったといえる。ただし、プロジェクト遂行中は基礎方法論の構築に力を注ぐばかりで、なかなか応用に向けて手を広げる余裕はなかった。今後は実験家とタイアップすることにより2次元や3次元系を含む大規模系に向けた適用と新規機能性材料の設計に役立てていきたいと考えている。

6 研究総括の見解:

青木研究者は、タンパク質あるいは DNA のような生体高分子を含む巨大高分子系に対して、原子数の1次に比例した計算時間で効率よく、しかも計算精度を落とすことなく計算できる Elongation 法によるシミュレーション手法を開発した。また、本手法に半経験的、非経験的分子軌道計算、および密度汎関数法等に組み込むことで、その効率性と信頼度の向上を実証した。

本手法によって、従来の量子化学計算では取り扱うことのできなかった巨大系の電子状態が短時間で計算可能となり、様々な条件化における蛋白質構造と機能に関する分子レベルでの解明が可能となる。本研究成果により種々の生体高分子の機能や役割、生理活性現象のメカニズムを経験則ではなく、電子論に基づく一般論として明らかにすることができ、生体機能の学問的発展に大いに貢献できると期待される。

7 主な論文等:

論文 (27件)

1. Elongation Method with Cut-off Technique for Linear SCF Scaling
J. Korchowiec, F. L. Gu, A. Imamura, B. Kirtman, and Y. Aoki, Int. J. Quantum Chem., 102, 785-794, 2005.
2. Elongation Method at Restricted Open-Shell Hartree-Fock Level of Theory
J. Korchowiec, F. L. Gu, and Y. Aoki, Int. J. Quantum Chem., 105, 875-882, 2005.
3. Calculation of Static (Hyper)Polarizabilities for p-Conjugated Donor/Acceptor Molecules and Block Co-Polymers by the Elongation Finite-Field Method
S. Ohnishi, F. L. Gu, K. Naka, A. Imamura, B. Kirtman, and Y. Aoki, J. Phys. Chem. A, 108, 8478-8484, 2004.
4. A new localization scheme for the elongation method
F. L. Gu, Y. Aoki, J. Korchowiec, A. Imamura, and B. Kirtman, J. Chem. Phys., 121(21), 10385-10391, 2004.
5. Enhanced hyperpolarizability via electron correlations in donor-sigma-acceptor systems
Y. Orimoto and Y. Aoki, Phys. Rev. A, 68, 063808 1-6, 2003.

特許 (国内3件、内PCT出願1件)

1. 特開 2005-242563、科学技術振興機構、Y. Aoki, Y. Orimoto and A. Imamura
「分子軌道演算装置、該方法、該プログラム及び記録媒体」
2. 特願 2004-279278 (PCT/JP2005/016767)、科学技術振興機構、
Y. Aoki, F.-L. Gu, J. Korchowiec, A. Imamura
「エロンゲーション法の分子軌道演算装置、該方法、該プログラム及び記録媒体」
3. 特願 2004-279315 (PCT/JP2005/016767)、科学技術振興機構、
Y. Aoki, F.-L. Gu, J. Korchowiec, A. Imamura
「エロンゲーション法の分子軌道演算装置、該方法、該プログラム及び記録媒体」

著書 (1件)

1. Elongation Method for Polymers and its Application to Nonlinear Optics, in Atoms, Molecules and Clusters in Electric Fields: Theoretical Approaches to the Calculation of Electric Polarizabilities, edited by G. Maroulis, accepted for publication in 2005 by the Imperial College Press
Feng Long Gu, Akira Imamura, and Yuriko Aoki, Imperial College Press, 2006.

招待講演 (5件)

1. 高分子計算機科学研究会、東京、2002 年 12 月 「高分子の電子状態計算における効率的な方法の開発と機能設計」24-th Chinese Chemical Society Congress, Changsa(CHINA), 25 April 2004
2. "Development of RHF and UHF elongation methods and application to large polymer

systems”

3. International Conference of Computational Methods in Sciences and Engineering 2004, Athens(GREECE), November, 2004”Elongation Method at Semi-empirical and ab initio Levels for Large Systems”
4. 社団法人企業研究会 第18期 CAMM フォーラム4月例会本例会ーコンピュータによる材料開発・物質設計を考える会ー、東京、2005 年 4 月「機能性高分子設計のための理論的重合法システム」
5. 富士通計算化学セミナー、福岡、2005 年 4 月「巨大系の超効率的 ab initio 計算のための Elongation 法の開発と機能設計への応用」

研究課題別評価

1 研究課題名: 相関電子系の新しい大規模計算アルゴリズム

2 研究者氏名: 今田正俊

研究員: Igor Solovyeu (研究期間 H.15.4~H.17.3)

研究員: 今井 剛樹 (研究期間 H.15.4~H.16.10)

研究員: 大塚 雄一 (研究期間 H.16.11~H.18.1)

3 研究のねらい:

現実の物質中の電子が示す挙動をミクロなレベルから解明し、さまざまな物質の性質を第一原理的に予測できるような、信頼できる計算手法が開発できれば大きな波及効果が期待できる。基礎物理学上の新しい概念を発見し、未知の現象のメカニズムを解明することに貢献できる一方、次世代のエレクトロニクスの開発指針を得るうえでも役立つと期待できるからである。特に電子間のクーロン相互作用の効果が大きな、強相関電子系や強相関物質とよばれる物質群は、高温超伝導や巨大磁気抵抗などの目をみはるような未解明な現象によって、研究のフロンティアが次々に広がり、21世紀の物理学の基礎と応用にとって大きな魅力を提供しており、信頼のできる電子状態計算法が待ち望まれている。ところが、従来のすべての第一原理的な計算手法では、ある電子の挙動を計算するときに、他の電子は個々のふるまいをならしてしまっただ平均的な影響しか与えないとする近似を行ってきた。この近似は強相関電子系の物質群では定性的にも誤った結果を与えることが知られており、信頼できる計算手法は知られていなかった。

しかし、最近になって、本プロジェクト代表者を中心として、経路積分繰り込み群法と呼ばれる計算手法が開発され、強相関電子理論モデルにおいて新しい物質相の存在を理論的にはじめて見つけて予測するなど、基礎科学の観点で成果をあげてきた。

戦略的創造研究推進事業の我々のプロジェクトでは、新しく開発した経路積分繰り込み群法と従来の計算手法とをハイブリッド的に組み合わせた DFT-PIRG 法という方法によって、現実物質のハイブリッド型大規模計算が可能になるような第一原理計算手法とシミュレーション技術を開発し、強相関物質での精度の高い計算手法を手にすることが研究の目標である。

4 研究成果:

I. 要素計算手法の整備

このプロジェクトは強相関効果をバイアスのかからない形で考慮する数値計算アルゴリズムを開発応用するとともに現実物質の第一原理電子状態計算に組み込める形に持ってゆくことを目標としている。このためにまず経路積分繰り込み群計算と、密度汎関数法の計算をそれぞれルーチン化して行えるような計算コードの整備が行われた。

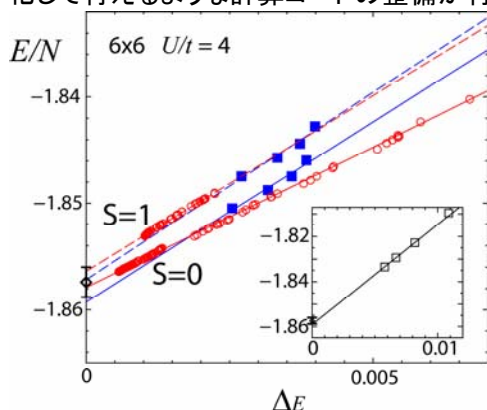


図1: ハバード模型と呼ばれる系で運動量とスピンの量子数射影により、エネルギー分散(横軸)を0に外挿して得られる基底状態のエネルギー精度が向上する。(インセットが量子数射影のない場合の外挿であり、青のデータ点が経路積分繰り込み群計算のあとに量子数射影を行ったもの、赤いデータ点は同時並行して射影したもの。また全スピン $S=1$ のような励起状態も求められることがわかる。

特に経路積分繰り込み群計算に対して、量子数射影法を組み込んで、計算精度を向上させるとともに、特定の量子数を持った状態の計算や、励起状態の計算が図1のように可能になった。当初の経路積分繰り込み群法は基底状態の計算のためのアルゴリズムであったが、運動量やス

ピンのような量子数を与えた上で最もエネルギーの低い状態を求めることによって励起状態の計算が可能になったわけである。このアルゴリズムを用いて、幾何学的フラストレーション効果のある系での新しい相である非磁性絶縁相がギャップのない量子スピン液体としての性質を持つことを解明した。遷移金属酸化物、有機物などに実験的に広く見られる未知の性質を解明したものと位置付けられる。

II. ダウンフォールディングの定式化

高エネルギー(フェルミ面から離れたエネルギーを指す)での密度汎関数法によるバンド計算の結果を用いて、高エネルギー自由度を消去して繰り込みながら、フェルミ面近くの低エネルギーの電子だけの自由度を残したときに得られる有効モデルの導出法を定式化した。定式化された具体的な計算の手続きを表わすと以下のようなステップで構成されている。

(1) 密度汎関数計算により、バンド計算を行う。

(2) フェルミ面から離れた高エネルギー側の電子自由度を消去して、フェルミ面近くの低エネルギー電子が満たすべき有効ハミルトニアンを導くために、運動エネルギーの繰り込みと相互作用の繰り込みを行う。

より具体的には、

(2-1) クーロン相互作用に対して、電子相関の強いバンドの遮蔽された動的クーロン相互作用の大きさを GW 近似や制限された局所密度近似によって求める。

(2-2) バンド構造に対して、GW 近似により波数に依存する自己エネルギーを求めて、バンド幅(運動エネルギー)に対する繰り込みを計算する。

(3) (2) で求めた遮蔽されたクーロン相互作用と繰り込まれたバンド構造を用いて、低エネルギーでの有効ハミルトニアンを導出する。

(4) この有効ハミルトニアンに対して、経路積分繰り込み群法、および相関射影法による計算を行い、ゆらぎの効果を正確に取り込み、低エネルギー部分での電子状態を明らかにするとともに、磁気相関、電荷相関、その他の物理量を計算する。

この計算プロセスを実現できれば、電子相関の強い系で、時間的空間的ゆらぎの効果も含めた精度の高い計算手法がはじめて実現することになる。

これらの4段階のうち、第 1 段階の手続きは要素としてはすでに存在していたが、このプロジェクトで初めて第 2-第4段階の手続きと統合的に全体のアルゴリズムの一部として組み込まれた。第 2 段階での遮蔽されたクーロン相互作用は、このプロジェクトでさらに新たに効率的な手法が開発された。これは制限された局所密度近似と GW 近似を組み合わせ、計算速度を速めた手法である。フェルミ面から遠く離れたバンドに対しては制限された局所密度近似によって計算の高速化を行い、中間的なエネルギー領域のバンドに対してはより詳細な制御が可能な GW 近似を採用する。

III. 現実の強相関物質の有効モデルの導出

低エネルギー有効モデルを導く定式化は実際に多くの遷移金属化合物の有効ハミルトニアンの導出に応用された。特にペロブスカイト型の遷移金属酸化物である LaTiO_3 , YTiO_3 , Sr_2VO_4 , SrVO_3 , YVO_3 などの多数の系で第一原理的な有効モデルを導くことに成功した。求められた遮蔽クーロン相互作用は数eVの範囲で振動数にあまり依存しない結果が得られ、この手法で有効ハミルトニアンが正しく求められることが示されている。またダウンフォールディングの過程で高エネルギー側(フェルミ面から離れた側)の自由度を消去して、フェルミ面に近い低エネルギーのバンドだけからなる有効モデルを構成するが、このような自由度の消去によっても、低エネルギー側のバンド構造がもととほぼ同じ形で再現されることが図2の水色と茶色のバンド構造の比較から読み取ることが出来る。これはダウンフォールディングによる自由度の消去によっても低エネルギーの有効モデルが正しく構成されることを意味している。

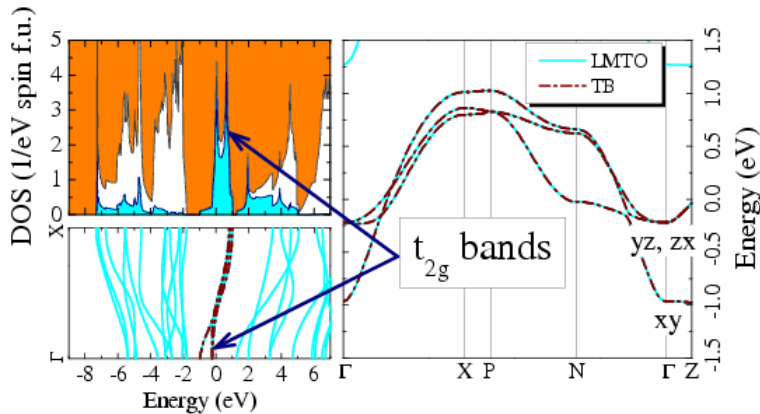


図2:

左図:LDAによる電子状態密度(上)とその分散(上図の青い部分が3d電子の寄与。白い部分がその他の電子の寄与。金属を予測する。

右図:LMTOによるバンド分散(水色の実線)とdownfoldして求められた少数バンドの分散(茶色の一点鎖線)

IV. 強相関物質への応用と、手法の有効性の実証

多くの遷移金属酸化物の中でも特にストロンチウム・バナジウム酸化物(Sr_2VO_4)はLMTO局所密度近似では図2のように良い金属を予測し、ハートレーフォック近似では強磁性絶縁体が予測されるが、実際の物性は金属絶縁体転移に極めて近い反強磁性的な絶縁体であり、いずれの予測とも合致しない。すなわち電子間相互作用の効果と強い量子ゆらぎの効果が顕著である。このことから、この物質は強相関電子系の電子状態計算の精度を試すベンチマークとなる物質であることがわかる。

我々は実際にこのプロジェクトで開発したDFT-PIRGの方法をこの物質に対して適用した。結果は、図3のように Sr_2VO_4 が反強磁性絶縁体と金属の相境界の近傍にあることを示しており、現実の物性と大変良い一致を示した。さらに、実験的には解明されていないスピン、軌道秩序についても図4のように予測が可能になった。

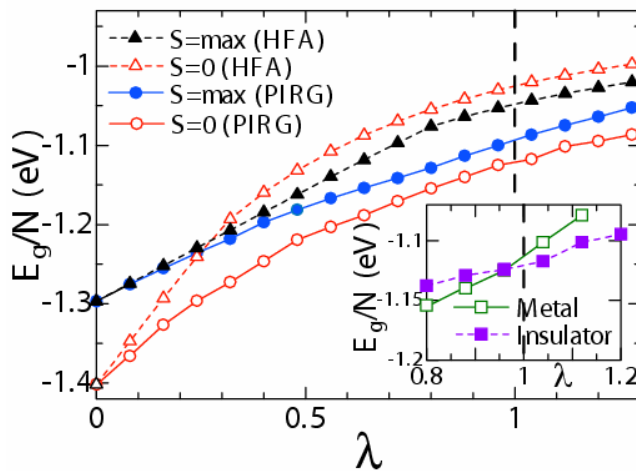


図3:

相互作用パラメータ λ を変えたときの基底エネルギー。(HFAはハートレーフォック近似、PIRGは今回の計算の経路積分繰り込み群法による結果) $S=0$ は反強磁性状態、 $S=\max$ は強磁性状態を表す。

PIRGによる真の基底状態が現実の相互作用値 $\lambda=1$ で金属への転移点に近い反強磁性絶縁体であることがわかる。

inset: 経路積分繰り込み群法での金属状態と絶縁体状態のエネルギーの比較

さらに YVO_3 や LaVO_3 の電子状態の計算もすすめ、従来の電子状態計算でギャップの大きさが正しく求められなかったのに対して、実験結果との定量的な比較に耐える精度の高い計算手法であることを実証した。特に YVO_3 は従来の局所密度近似では金属を予測するが、ハートレーフォック近似では3eV以上のギャップを持つ絶縁体であると予測されていた。今回の我々の計算結果での絶縁体ギャップの大きさは0.9eVであり、実験結果の1eV程度と定量的にも良い一致を示している。また磁気秩序と軌道秩序についても実験を正しく再現した。

強相関電子系の第一原理計算によって、絶縁体ギャップが定量的にも正しく求められるようになったのはこの手法が初めてである。このように、密度汎関数法と経路積分繰り込み群法を組み合わせた新たなアルゴリズムは、強い電子間相互作用の効果の大きな強相関電子系に有効な電子状態計算手法であることが実証されたと判断でき、電子相関の大きな物質群のための精度の高い第一原理電子状態計算法として汎用性が確立された。今後この手法を用いて、従来の手法

では困難の大きかった、強相関電子系の電子状態の解明のための幅広い研究展開が可能になった。

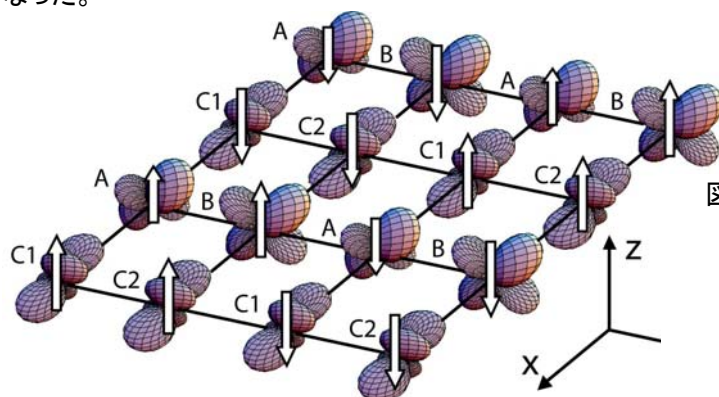


図4:
現実的な相互作用パラメタ $\lambda = 1$
のときに予測されるスピンと軌道
の秩序構造

以上、このプロジェクトの成果を要約すると、以下のようにまとめられる。

- (1) フェルミ面から離れたバンドの自由度消去によるダウンフォールディングの手法の確立
- (2) ダウンフォールディング手法を用いた遷移金属および遷移金属化合物の有効ハミルトニアン
の導出
- (3) ハイブリッド手法としての DFT-PIRG 法の確立
- (4) 現実の強相関電子系での DFT-PIRG 法の有効性の検証と電子状態の確定

5 自己評価:

最近独自に開発した経路積分繰り込み群法と従来の密度汎関数法に依拠した計算手法とをハイブリッド的に組み合わせた DFT-PIRG 法という方法を開発し、現実物質のハイブリッド型大規模計算が可能になるような第一原理計算手法とシミュレーション技術を開発し、強相関物質での精度の高い計算手法を手にするという当初の目標は実現された。特にハイブリッドとなる二つの手法をつなぐダウンフォールディングの定式化は、低エネルギー側の解法に何を採用するかには依らない一般的なものである。またこの手法を実際に応用して得られた強相関電子系の物性は、複雑なスピン軌道秩序の予測が可能であることや、絶縁体ギャップが正確に求められることなど、予想以上に精度が高いものであることが実証された。

これらの成果を得る上で、ポスドク研究員の参加は決定的に重要であった。ダウンフォールディングのプロセスの定式化と実行、および低エネルギー有効モデルの経路積分繰り込み群法による計算がポスドク研究員によって着実に遂行された。

これから手にした手法を用いて、多くの解決困難な強相関電子系の問題解決に取り組むことが出来ると考えている。ただし、低エネルギー部分の解法として採用している経路積分繰り込み群計算が、現在計算の全体の中での律速段階となっており、今後、広範な応用を広げるために、この部分のより効率的な計算手法の開発を進めていく必要がある。また、このプロジェクトは、物質の構造がすでに与えられているときに、その構造の電子状態を計算するためのものであった。しかし、計算の高速化が進み、京速計算機のように計算機の高速化も進んだ段階で、このプロジェクトで達成された手法を物質の構造最適化にもつなげて、真の第一原理手法を手にしていくことは将来に課せられた課題であろう。

6 研究総括の見解:

今田研究者は新しく開発した経路積分繰り込み群法と従来の計算手法とをハイブリッド的に組み合わせた DFT-PIRG 法という方法を開発し、強相関物質での精度の高いシミュレーション手法を確立した。本手法により、今までシミュレーションでは解析できなかった金属と絶縁体の境目にある強相関物質の電子状態を定量的に正しく証明した。さらにまだ実験的に分かっていない電子スピンと電子軌道の秩序状態を予測することに成功するなど大変高い研究成果が出たと評価できる。

7 主な論文等:

(1)論文発表

件数 11 件

1. T. Mizusaki, and M. Imada,
“Quantum-Number Projection in the Path-Integral Renormalization Group Method”
Phys. Rev. B 69, 125110 (2004).
2. F. Aryasetiawan, M. Imada, A. Georges, G. Kotliar, S. Biermann, A. I. Lichtenstein
“Frequency-dependent local interactions and low-energy effective models from electronic structure calculations”
Phys. Rev. B70, 195104 (2004)
3. I.V. Solov'yev and M. Imada
“Screening of Coulomb interactions in transition metals”
Phys. Rev. B71 045103 (2005)
4. K. Hanasaki and M. Imada
“Charge Ordered Insulator without Magnetic Order Studied by Correlator Projection Method”
J. Phys. Soc. Jpn. 74, 2769 (2005).
5. Y. Imai, I. Solov'yev, and M. Imada
“Electronic structure of strongly correlated systems emerging from combining path-integral renormalization group with the density-functional approach”
Phys. Rev. Lett. 95 176405 (2005).

(2) 特許

なし

(3) 受賞

なし

(4) 招待講演

10 件

1. M. Imada,
Path-Integral Renormalization Group Method,
International Conference on the Monte Carlo Method in the Physical Sciences Celebrating the 50th Anniversary of the Metropolis Algorithm, Los Alamos, USA, June 9-11, 2003.
2. M. Imada,
Competing Phases and Optical Properties
4th International Conference on Low Energy Electrodynamics in Solids
(LEES 04), July 18-23, 2004, Kloster Banz, Germany
3. 今田正俊、強相関電子系の第一原理シミュレーション手法の開発と電子状態予測
日本物理学会 2004 年秋季大会シンポジウム(領域4)「計算機ナノマテリアルデザイン・量子シミュレーション手法の開発と応用」2004 年 9 月 青森大学
4. M. Imada,
Electronic structure calculation with new tools for realistic correlated electron systems
Second International Workshop on Ordering Phenomena in Transition Metal Oxides
September 26-29, 2004, Wildbad Kreuth, Germany
5. M. Imada,
First-principles method for strongly correlated electrons: PIRG+CLDA-GW
NAREGI Workshop on Electronic Transport, Excitation and Correlation in Nanoscale, October 4-6, 2004, Sapporo

研究課題別評価

1 研究課題名: 相対論的分子理論プログラムの開発

2 研究者氏名: 中嶋 隆人

3 研究のねらい:

物質をナノレベルで制御することが求められる現在、新しい機能・特性の発現を目指して、科学者の取り扱う物質は周期表の幅広い種類の元素を含む大規模な分子系へと拡がりをみせている。例えば、それはナノテクノロジーの基盤となるナノマテリアルであり、あるいはバイオテクノロジーを担う生体分子等であって、現代あるいは次世代の産業や科学の基盤となる物質である。科学で取り扱う物質のこのような多様化・大規模化に伴い、理論化学においても科学的に興味のある多様な系を視野に入れる必要が出てくる。この世の中に存在する物質は、100 種類程度の元素から構成されているが、そのような幅広い種類の元素を含む分子系を同じ精度でかつ高精度に取り扱える分子理論が必要となる。非相対論的方程式に基づいた従来の理論は、重原子を含む系に対しては用いることができない。相対論的方程式に基づいた相対論的分子理論が必要不可欠になってくる。本プロジェクトの目的は、相対論的分子理論を展開することで、幅広い種類の元素を含む分子系を取り扱うことのできる理論化学を構築することである。そして、周期表のあらゆる元素から構成される大規模な分子系を高精度に計算することのできる分子理論プログラムを完成させる。そのために、理論自体のブレークスルーを達成すると共に、近年のコンピュータ技術の進歩を有効に駆使する。そして、従来の理論やプログラムと比べて 2 桁以上の性能の向上を目指す。

4 研究成果:

当初にあげた本プロジェクトの研究計画は、(1) 大規模重原子分子系に対する相対論的分子理論の開発、(2) 高精度計算のための相対論的電子相関理論の開発、(3) 相対論的ダイナミクスの手法の開発、(4) 相対論的分子軌道法プログラムの開発・公開、の 4 点である。それぞれに対し、具体的成果を以下にまとめる。

1. 大規模重原子分子系に対する相対論的分子理論の開発

これまでに相対論的分子理論に基づいて、幅広い種類の元素を含む分子系を取り扱うことのできる理論化学をわれわれは構築してきた。それでもなお、相対論的分子理論により重原子分子系を高精度に扱うのは、数原子分子系に限られる。そこで、本プロジェクトでは、扱える系をさらに拡張するため、重原子を含む大規模分子系に対する相対論的分子理論の開発を行った。大規模分子系を取り扱うための量子化学的手法は大きくわけて 2 種類に分類することができる。ひとつは「領域分割法」、もうひとつは「高速計算法」とよばれる方法である。「領域分割法」は異なったレベルの理論を分子系の異なった部分に適用する方法である。代表的な方法として、ONIOM 法や QM/MM 法があげられる。「高速計算法」は名前が示すとおり分子系全体に対して計算コストを減らして高速計算を実現する方法である。この方法は、Linear-scaling 法や Order- N 法ともよばれる。この方法では、高速で信頼性の高い計算はある仮定や近似のもとに実現される。ここでキーとなるのは、局所性や疎の性質になってくる。領域分割法と高速計算法は、全体と部分の関係にあって相互に関連していて、両者をうまく融合することで本当に大規模な分子系の計算が可能になる。以下に本プロジェクトで開発してきた大規模系相対論的分子理論をまとめる。

1.1. 相対論的 Pseudospectral 法の開発

計算コストの高い相対論的分子積分に対する高速計算法として、「相対論的 Pseudospectral (PS) 法」を開発した。PS 法はグリッド基底と解析的基底の混合基底を計算の基底として使用する方法である。この方法を用いると、相対論的分子積分の計算コストを大幅に減らすことが可能であり、大規模系の計算に対し、より効率的な計算が可能となる。PS 法では他の大規模系に対する近似計算法では計算困難な HF 交換の計算ができるので、ポスト HF 法や hybrid DFT に適用することができる。また、SCF 計算の大部分のステップに粗いグリッドを使うことで、大幅な高速化が可能

となる。本研究ではPS法を相対論的分子理論に適用できるように定式化し、実際にそのプログラムを開発した。相対論的PS法は、相対論的分子積分のうちLarge-Large成分とSmall-Small成分間の解析的積分を共通に利用することができるので、非相対論と比べてより効率的になる。これまでのいくつかの応用計算により、相対論的PS法は従来の解析的積分を用いる方法と比べ効率的で、重原子を含む大きな分子系の計算に有効な方法となることがわかった。この研究で計算された $\text{Re}_2(\text{CO})_{10}$ 分子は4成分相対論的分子理論で計算された分子のうち世界でもっとも大きな分子である。

1.2. 相対論的平面波補助基底法の開発

相対論的分子積分に対する高速計算法として、「相対論的平面波補助基底法」とよぶ方法も開発した。平面波補助基底法は、Coulombポテンシャルを計算するのに際し、全電子密度を価電子様電子密度 (Smooth成分) と内殻様電子密度 (Core成分) に分割し、Core部分に対しては局在化したGauss基底で表現した電子密度を用い、振幅の増減が緩やかなSmooth部分の電子密度を平面波基底で表現する。全電子密度の分割の仕方は任意性を伴うが、われわれは誤差予測に基づく新たな方法であるAdaptive Density Partitioning Technique (ADPT)を開発した。ADPTでは、精度を失うことなく多くの電子密度を平面波で表現することができ、Core成分の割合を減らすことが可能であり、高速な積分計算が実現できる。このADPTに基づく平面波補助基底法は容易に4成分相対論的分子理論に拡張することができる。その際、相対論的な局所性を利用することで非相対論の場合よりも効率的な計算が可能になる。相対論効果はHamilton演算子の一電子項が支配的で、二電子項に対する相対論的補正の寄与は小さい。相対論効果は「局所的」であって、系を構成するそれぞれの原子核上に波動関数を局在化させる近似が効果的であることを意味している。具体的にはSmall成分の基底関数から作られる電荷密度は原子核近傍に局在化しているとしてよい。この局所性を使うとSmall成分の基底関数から作られる電荷密度の大部分はADPTによりSmooth成分として取り扱うことができる。これにより、計算時間を要するSmall成分に対するGauss基底の解析的積分の大部分が不要になり、非相対論的分子理論の手軽さで4成分相対論計算を実現することができる。これまでの計算により、ADPTによりCore成分の数を制御することで、精度を損なうことなく従来よりも2倍から5倍の高速計算が相対論的平面波補助基底法では可能になることがわかっている。また、Small成分に関してはCore成分の数をより少なくしても、精度を保ちながら高速計算が実現できることもわかっている。

1.3. 大規模分子系に対する相対論的電子相関法の開発

上記のふたつの方法はSCFレベルの高速計算法であるが、SCFレベルを超えて電子相関を考慮する際の高速計算法として、局在化電子相関法を開発した。従来、非相対論レベルにおいて、幾つかの効率的なMP2計算の手法が開発されているが、それらには一長一短がある。開発した電子相関計算法ではそれらの手法の長所を伸ばしつつ、短所を補うことのできる新しいタイプのMP2摂動計算法であり、「RILL-MP2法」とよんでいる。RILL-MP2法では、空間的に局在化した軌道に基づいて電子相関を考慮する。局在化軌道を用いることで、短距離力である電子対相関を効率的に見積もることができる。また、補助基底を採用することでディスクやメモリ容量の計算機資源を減らし、大規模な分子の取扱いが可能となる。これまでの計算により、RILL-MP2法は通常のMP2法と比べ大規模な分子系に対して高速な計算が実現できることが実際にもわかっている。また、どんな大きさの分子系に対しても、得られる精度は一定で、精度を落とすことなく計算が実現できる。

1.4. 領域分割法「SPOT法」の開発と相対論的分子理論への適用

化学的に興味のある分子は、重原子を局所的に持つようなものが多い。例えば触媒作用を示す金属錯体や生体作用に影響を与える微量金属分子である。このような分子系の場合、重原子を含む領域は相対論的な方法で高精度に取り扱って、それ以外の領域を計算負荷の小さい非相対論的な方法で取り扱うことができれば、効率的に大規模な重原子分子系の理論計算が実現できる。このような領域分割法として、「SPOT法」とよぶ方法を開発した。この方法は、局所性を使って着目する領域のみを取り扱う方法である。それ以外の領域は環境場として着目領域に影響を与える。環境場は全体系のポテンシャルから環境場中にある部分系のポテンシャルを引いたものとして定義する。得られた環境場を着目領域にSpectral表現を用いて射影することで、環境場の

効果を着目領域に考慮する。Spectral表現を用いていることがSPOT (Spectral Operation for the Total system) の名前の由来である。通常の応用では、環境領域は低レベルの計算から決定し、着目領域は高レベルの計算を行うことで高速な計算が可能となる。この方法は以下のような特徴をもつ。(1) 異なる領域間で直交性を保つようにしているので、異なる理論レベルの方法を組み合わせることができる。(2) Spectral演算子が計算できれば、異なった領域間で異なった形の基底を使用することができる。(3) 環境場の効果を次々に繰り込んでいくことが可能なので、着目領域から離れた領域の環境を少しずつupdateしていくことができる。(4) 差分的に環境場を作るので、他の類似の方法では計算できない領域間に共有結合を持つような分子系にも適用できる。この場合、着目領域の末端のダングリングボンドを原子や小分子で置き換えることで計算する。(5) (4)のような分子系を計算できる方法としてエネルギー差分法であるONIOMという方法があるが、SPOT法はONIOMと異なり、環境場による電荷分布の再構築を表現できる。また、環境場中の波動関数を得ることができるので、エネルギー以外のproperty計算もできる。

SPOT 法では(1)の特徴のため、環境領域を非相対論的に取り扱って、着目領域を相対論的に取り扱うことができる。例えば、Al (111) 表面における CO の吸着エネルギーを計算した。着目領域に対して3次 Douglas-Kroll 法を用いて相対論効果を考慮し、それ以外の環境領域を非相対論的に取り扱った。得られた吸着エネルギーは -0.18eV で、実験値の -0.21eV との対応が非常によい。環境場を考慮しない計算では -0.40eV であり、環境場の影響が大きいことがわかる。

1.5. 効率的な相対論的近似理論の開発

Douglas-Kroll (DK) 法は、外場ポテンシャルを展開パラメータとして4成分 Dirac Hamilton 演算子に対し適当なユニタリ変換を繰返し施すことによって、Dirac 波動関数の large 成分と small 成分を分離する相対論的近似理論である。2次 DK 法は、自由粒子 Foldy-Wouthuysen 変換から得られた Hamilton 演算子に対し、ユニタリ変換を1度施すことにより得られ、従来から重原子分子系に適用されてきたが、この方法では高次の相対論効果を十分に考慮することができない。われわれはこの理論を拡張し、高次の相対論効果を考慮できるように高次 DK 法を開発・展開した。これまでの応用結果から、3次 DK (DK3) 法は2次 DK (DK2) 法に比べ高次のエネルギーの安定化を考慮することができて、優れたパフォーマンスを示すことが示されている。このDK変換の展開パラメータである外場ポテンシャルとしては従来、電子-核の相互作用を表す1電子ポテンシャルを用いてきたが、このアプローチでは電子-電子間相互作用を表現する2電子項に対するDK変換の効果をとり込むことができない。そこで、多電子系の相対論的 Hamilton 演算子に対する相対論的方程式である Dirac-Hartree-Fock (DHF) 方程式及び Dirac-Kohn-Sham (DKS) 方程式が1電子方程式であることに着目し、これらの一体ポテンシャルに対し DK 変換を施す方法を開発した。計算により、2電子項に対してDK3変換を施すことでDKSの結果との一致が非常によくなることがわかっていく。また、2電子項に対しては1次のDK変換の補正で十分満足いく結果が得られるという知見も得られた。2電子項に対する1次補正は容易に計算することができるので、この知見は、4成分相対論的分子理論と比べて、2成分相対論的分子理論により、精度を損なうことなく効率的な計算が可能であること意味していて、本研究により効率的な相対論的分子理論が完成した。

2. 高精度計算のための相対論的電子相関理論の開発

重原子分子系に対する高精度な計算を実現するためには、HFレベルを超えて電子相関を考慮する必要がある。以下に、本プロジェクトで開発した相対論的電子相関法を示す。

2.1. 相対論的密度汎関数理論の開発

相対論的な密度汎関数理論である Dirac-Kohn-Sham (DKS) 方程式を解くための基本的な定式化を行い、効率的な計算手法とプログラムの開発を行った。また、DKS 方程式に対して線形応答理論を適応した TD-RDFT 法の定式化とプログラム開発も行った。この方法では励起状態を基底状態の摂動として求めることが可能である。TD-RDFT の定式は終了しており、計算プログラムも局所密度近似の場合に関して完成している。プログラムは並列化により高速化されている。励起状態を高精度に表現するためには、局所密度近似では不十分であることがわかっており、今後は一般化勾配近似を TD-RDFT 法に取り入れていく予定である。

2.2. 相対論的電子相関理論のための積分変換の開発

電子相関計算の第一段階では、通常、原子軌道積分から分子軌道積分への積分変換のステップが必要となる。HF 計算に要する時間は基底関数の数の 4 乗のオーダーにスケールする一方、積分変換のステップは 5 乗のオーダーでスケールするため、計算負荷の高いステップとなる。そこで本プロジェクトでは、高速で効率のよい相対論的分子積分の積分変換のアルゴリズムとプログラムを開発した。具体的には 2 成分型ガウス spinor 基底を用いて、small 成分用の基底関数を従来の方法の約半分に減らすことで高速化を図っている。理論的には 2 成分型 spinor 基底の採用により従来の方法と比べ 4 倍の高速化が期待できる。実際にも、テスト計算から、他の相対論的プログラムに比較して今回開発した積分変換プログラムは 4 倍以上高速という結果が得られおり、以下に示す相対論的電子相関法と組み合わせることで、高速な相対論的電子相関計算が実現できるようになった。

2.3. 相対論的単参照電子相関法の開発

高精度な重原子分子系の計算を実現するために、相対論的単参照電子相関法の開発を行った。高次の電子相関法になるのにしたがって定式化やプログラム化が複雑になっていくが、TCE (Tensor Construction Engine) とよぶシンボル操作プログラムを用いて、定式とプログラムを自動生成することで実現した。TCE では、HF 配置に基づく単参照電子相関法のすべてを定式化・プログラム化することが可能であるので、本プロジェクトでは、相対論的配置間相互作用 (CI) 法、相対論的摂動法、相対論的クラスター展開 (CC) 法の開発を行った。TCE に基づいた DK3-CC 法により、5 種類の 3 原子水素化物の 1 重項-3 重項分裂を 0.02eV で、12 種類の 2 原子水素化物の分光学的定数を 0.002Å (結合長)、0.4% (振動数)、0.4kcal/mol (解離エネルギー) という高い精度で相対論計算が実現できることがわかった。

2.4. 相対論的多参照摂動法の開発

0 次の波動関数として HF 波動関数がふさわしい場合は、上記の単参照電子相関法は精度の高い結果を与えるが、いくつかのエネルギー状態が近接するような場合には、多配置波動関数を 0 次の波動関数として用いなければならない。そのような電子相関法として、相対論的多参照摂動法を開発した。この方法の特徴として、(1) 摂動法に基づいているので、計算が容易で、大きな分子系を定量的に取り扱える、(2) 化学反応を定量的に記述することが可能、(3) 開設系や励起状態を取り扱うことが可能、(4) 分子の解離状態や不安定な分子に適用することができる、などが挙げられる。現状ではプログラムの効率化が終了していないので、適用は小さな分子に限られているが、テスト計算の結果は、単配置摂動法では得ることのできない分子の解離状態を相対論的多参照摂動法ではきれいに表現することができる。今後は、プログラムを効率化することで、大規模な重原子分子の励起状態計算に実際に適用していく予定である。

3. 相対論的ダイナミクスの手法の開発

理論計算から物質設計や反応制御を行うためには、自由度が大きく複雑な系の分子計算やダイナミクス研究が必要になる。そのために、ab initio 電子状態計算から原子核に働く力をエネルギー微分法により求め、古典的分子動力学シミュレーションを行う ab initio ダイナミクス法の高速アルゴリズムを完成させ、そのプログラムを開発した。この方法は解離・生成を伴う化学反応や光励起による電子励起状態が関係する動力学に応用できる。例えば、本プロジェクト中に開発した ab initio ダイナミクス法を衝突反応 ($\text{CH}_3 + \text{C}_6\text{H}_6$)、光解離反応 ($\text{F} + \text{H}_2\text{O}$) などの化学反応に適用してきた。相対論的分子理論である RESC 法と 3 次 Douglas-Kroll 法に対する解析的エネルギー微分法の開発も終了しており、この相対論的微分法から原子核に働く力を計算することで、相対論的分子理論に基づいた ab initio ダイナミクス計算を実現できる。現在、この相対論的 ab initio ダイナミクス法による重原子分子系の化学反応の解明を計画中である。

4. 相対論的分子軌道法プログラムの開発・公開

これまでに述べた理論開発とプログラム開発をひとつにすることで、相対論的分子理論のプログラム「REL4D」を完成させ公開した。このプログラムの特徴は、あらゆる元素を含む大規模分子系を同じ精度で、かつ高精度に計算できる点にあり、従来の分子軌道法プログラムにはないものである。現在、「REL4D」はわれわれの研究室が開発している分子理論のプログラムパッケージ群

である「UTChem」の一部として無償公開している。このプログラムは、<http://utchem.qcl.t.u-tokyo.ac.jp/>からダウンロードして使用することができる。

5 自己評価:

本プロジェクトでは、相対論的分子理論を展開していくことで、プログラム・パッケージ「REL4D」を開発し、広く公開することを目指した。そのうえで、当初の目標に従って十分な研究が遂行でき、多くの成果をあげることができた。特に大規模分子系に対する相対論的分子理論の開発は、目標以上の成果が得られている。このプロジェクトで開発した「REL4D」プログラムは、相対論的分子理論の計算プログラムであるが、今後は非相対論や相対論といった枠組みを超えた分子理論プログラムへと育てていきたい。そして、物質科学、生命科学、情報科学の共通基盤となるソフトウェアとして、日本を代表する知的プロダクトにしていきたい。理論から実験や産業に対する知識のフィードバックを実現し、理論先導の科学を日本から世界に向けて発信していきたいと思う。

6 研究総括の見解:

科学で取り扱う物質の多様化に伴い、理論化学においても化学的に興味のある多様な系を視野に入れる必要が出てきた。中嶋研究者は相対論的分子理論を展開し、周期表のあらゆる元素から構成される大規模な分子系を高精度に計算することができる分子理論プログラムの開発を行った。独創的な各種の高速計算法、領域分割法によって構成される本研究成果プログラムにより、今まで実験値のみで計算が不可能であった重原子を含む大規模分子や重原子を局所的に持つ分子などのシミュレーションが可能になった。本研究が目指した相対論的分子理論の開発は、重元素を含む分子系の理論計算に新たな道を拓くことができたと高く評価する。

7 主な論文等:

(1) 論文

全 16 件

1. T. Nakajima and K. Hirao, "Extended Douglas-Kroll transformations applied to the relativistic many-electron Hamiltonian", *J. Chem. Phys.* **119**, 4105-4111 (2003).
2. S. Hirata, T. Yanai, W. A. de Jong, T. Nakajima and K. Hirao, "Third-order Douglas-Kroll relativistic coupled-cluster theory through connected single, double, triple, and quadruple substitutions: Applications to diatomic and triatomic hydrides" *J. Chem. Phys.* **120**, 3297-3310 (2004).
3. T. Nakajima and K. Hirao, "Pseudospectral approach to relativistic molecular theory", *J. Chem. Phys.* **121**, 3438-3445 (2004).
4. 中嶋隆人, "相対論的分子理論プログラムの開発", *化学工業*, **54**, 267-272 (2003).
5. T. Nakajima and K. Hirao, "Recent Development of Relativistic Molecular Theory", *Monatshefte für Chemie / Chemical Monthly*, **136**, 965-986 (2005).

(2) 学会発表 (本人発表分のみ)

全 6 件

1. 中嶋隆人, 平尾公彦, "相対論的多電子 Hamilton 演算子に対する Douglas-Kroll 変換", 分子構造総合討論会, 神戸, 2002 年 10 月.
2. 中嶋隆人, 平尾公彦, "相対論的 Pseudospectral 法の開発", 分子構造総合討論会, 京都, 2003 年 9 月.
3. 中嶋隆人, 平尾公彦, "大規模分子系に対する MP2 摂動法の開発", 分子構造総合討論会, 広島, 2004 年 9 月.
4. T. Nakajima, "Large-scale Relativistic Molecular Theory", Czech-Japan symposium, Prague, Sep. 2005.

中嶋隆人, 川本圭一, 倉重佑輝, 平尾公彦, "補助基底法を用いた大規模相対論的分子理論の開発", 分子構造総合討論会, 東京, 2005 年 9 月.

(3) 招待・依頼講演

全 9 件

1. T. Nakajima, "Relativistic Molecular Theory", The 10-th Korea-Japan Joint Symposium on Theoretical/Physical Chemistry, Pohang, Korea, January, 2003.
2. 中嶋隆人, "相対論的分子理論の最近の展開", 第4回スーパーコンピュータワークショップ, 岡崎コンファレンスセンター, 岡崎, 2004 年 3 月.
3. T. Nakajima, "Quantum Chemistry towards Large-Scale Calculations", 1st Asian Pacific Conference on Theoretical & Computational Chemistry, Okazaki, Japan, May, 2004.
4. T. Nakajima, "Relativistic Molecular Theory", 45th Sanibel Symposium, Georgia, March, 2005.
5. 中嶋隆人, "次世代分子理論の展開とその応用", 早稲田大学化学科博士学位賞授与式記念講演会, 早稲田大学, 2005 年 3 月.

研究課題別評価

1 研究課題名： 特異値分解法の革新による実用化基盤の構築

2 研究者氏名： 中村佳正

研究員： 峯崎征隆（研究期間 H.15.4 ～ H.16.5）

研究員： 高田雅美（研究期間 H.16.4 ～ H.18.3）

研究員： 岩崎雅史（研究期間 H.16.8 ～ H.18.3）

3 研究のねらい：

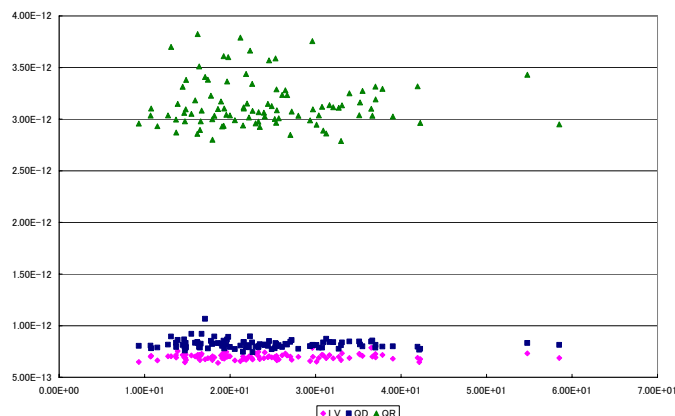
MATLAB、Mathematica など汎用ソフトウェアで使われる行列の特異値分解ルーチンは QRs 法に基づく LAPACK の DBDSQR である。QRs 法の計算量は $O(N^3)$ であり大規模行列では収束が遅く、一部の特異値・特異ベクトルのみを求めることも構造上困難である。本研究では、大規模情報処理の基盤技術となる新しい特異値分解法を開発し、その高速性、高精度性を理論的かつ実験的に検証する。具体的には、原点シフトの導入による特異値計算の高速化と高精度化、収束性の証明、収束次数の解明、誤差評価、前進後退の安定性の証明に加え、2重コレスキー分解による直交性に優れた特異ベクトルの高速計算法の研究を行う。さらに、一層の高速化を目指して特異値と特異ベクトルのそれぞれの並列計算法を開発する。また、大規模特異値分解のボトルネックを解消するため、新しい特異値分解法を実装した逐次型高速特異値分解ライブラリ群を構築し、特許化・ライセンス契約を経て公開するとともに、画像処理やデータ検索などその実用化研究を開始する。

4 研究成果：

[1] mdLVs アルゴリズムによる特異値計算ライブラリ DLVS の開発

3 年間のさきがけ研究における成果の第一は、収束性と数値安定性が保証された新しい特異値計算法である「mdLVs アルゴリズム」を開発したことである。さらに、mdLVs アルゴリズムを実装したライブラリ DLVS を構築し様々なチューニングを行った。原点シフトの大きさをジョンソン境界より小さくとれば、mdLVs アルゴリズムは、丸め誤差があっても、非常に高い相対精度をもって必ず特異値に収束することを数学的に証明している。収束次数は最高で 3 次である。以下は数値実験の一部である。

[1-1] 図は 1000 次上2重対角行列をランダムに 100 個生成し、横軸にその条件数の対数を、縦軸に計算された 1000 個の特異値の相対誤差の総和を、DLVS（ピンク）、DLASQ（青）、DBDSQR（緑）で色分けしたものである。DBDSQR（緑）は信頼性の高い Demmel-Kahan シフト付き QR（QRs）法を実装した LAPACK ルーチン、DLASQ（青）は dqds 法を実装した LAPACK ルーチンである。100 個の全てにおいて相対誤差の総和は「DLVS（ピンク）<DLASQ（青）<DBDSQR（緑）」となり、DLVS の高精度性が裏付けられる。特異値一個あたりの相対誤差はマシンイプシロン程度である。なお、テスト行列は、数式処理を用いた整数計算によりランダムな特異値をもつ上2重対角行列をテスト行列として誤差なしで生成しており実験の信頼性は高い。



図[1-1] 特異値の相対誤差の総和

[1-2] 計算時間(sec.)の比較は次の通りである。対象はランダムに生成した 10,000 次上2重対角行列 100 個である。DBDSQRと比べると十分に速く、DLASQ とほぼ同等の速度で特異値を計算できる。

表[1-2] 特異値計算の実行時間(sec.)

Pentium 4, GNU compiler 2.95.4			Itanium2, Intel Fortran compiler 8.0		
DBDSQR	DLASQ	DLVS	DBDSQR	DLASQ	DLVS
18.22	4.73	9.62	-----	6.82	6.32

[2] I-SVD アルゴリズムによる特異値分解ライブラリ DBDSLV の開発

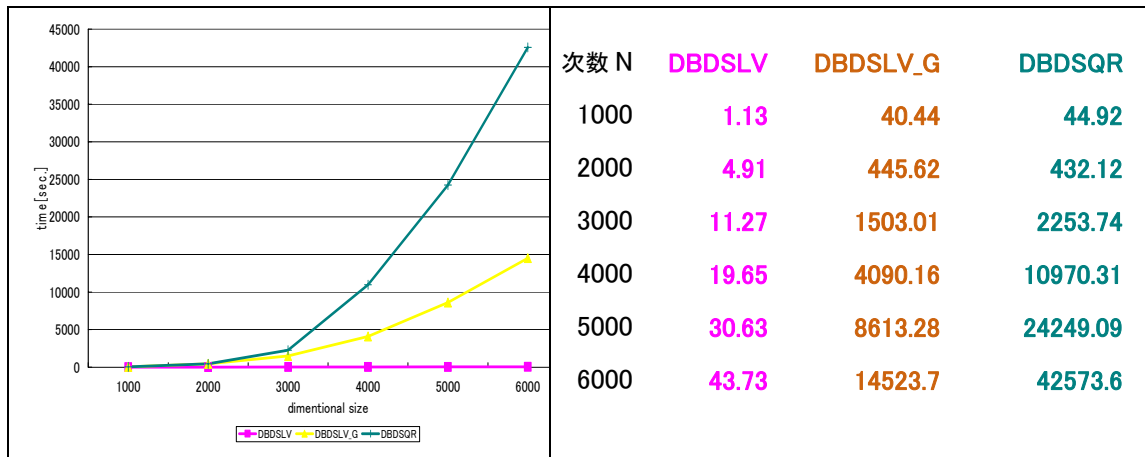
本研究の第二の成果は、高精度ツイスト分解法を開発し、与えられた行列とその特異値を用いて、特異ベクトルを $O(N^2)$ の計算量で高精度かつ十分な直交性をもって計算できるようになったことである。悪条件の行列の2重コレスキー分解の計算に 2 種類の dLV 型変換を組み合わせ使用し、その結果、高精度なツイスト分解が可能となった。高精度ツイスト分解の成功により、mdLVs アルゴリズムによる特異値計算を前段階とする新しい特異値分解法「I-SVD アルゴリズム」が定式化された。特異値計算部と特異ベクトル計算部の分離により QRs 型特異値分解法と比べてはるかに高速に特異値分解が完了する。高精度ツイスト分解によって、単純な逆反復法や最近アメリカで開発されている MRRR 法と比べて、より高精度で数値安定なベクトル計算が可能となる。本研究では、DLVS ルーチンの特異値計算部とし、新しいツイスト分解の特異ベクトル計算部で行う I-SVD アルゴリズムを実装したライブラリ DBDSLV を開発した。以下は DBDSLV の評価実験の一部である。

[2-1] 1,000 次元行列の特異値分解の結果が次表である。U は左特異ベクトル行列、V が右特異ベクトル行列、 Σ が特異行列、 T は転置、数値は誤差の 2 ノルムである。DBDSQR の特異ベクトルの直交性は良好であるが真値に対する誤差が大きい。一方、DBDSLV では特異ベクトルの直交性はやや劣るものの、真値に対する誤差は小さい。1 ノルム、 ∞ ノルムでは両者にはほとんど精度の差は現れない。また、特異ベクトルの直交性を重視して修正グラムシュミット法による再直交化を行うライブラリ DBDSLV_G を開発した。

表[2-1] 特異ベクトルと特異値分解の誤差の比較

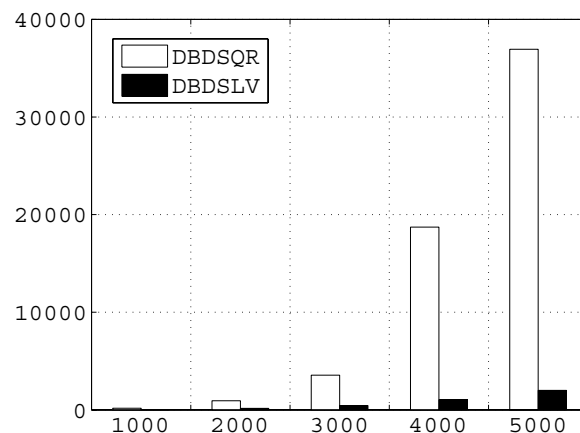
	DBDSLV	DBDSLV_G	DBDSQR
$V-V'$	4.23×10^{-9}	4.15×10^{-9}	1.02×10^{-7}
$U-U'$	4.14×10^{-9}	3.92×10^{-9}	1.02×10^{-7}
$V^T V - I$	3.24×10^{-10}	7.53×10^{-12}	8.31×10^{-11}
$U^T U - I$	3.15×10^{-10}	8.65×10^{-12}	8.28×10^{-11}
$B = U \Sigma V^T$	3.98×10^{-9}	6.21×10^{-11}	6.90×10^{-11}

[2-2] ランダムに生成した 1000 次から 6000 次上2重対角行列 100 個について、DBDSQR(青)、DBDSLV(ピンク)、DBDSLV_G(黄)ルーチンによる特異値分解の平均計算時間(sec.)を比較したのが次の図表である。例えば、4000 次では、DBDSQR が 3 時間かかるのに対して、DBDSLV では 20 秒である。DBDSLV の計算量が $O(N^2)$ であることと良好なスケラビリティをもつことが確認される。



図[2-2] 2重対角行列の特異値分解の実行時間(sec.)

[2-3] 与えられた密行列 A をハウスホルダー変換により上2重対角化(前処理)し、I-SVD アルゴリズムを実装した DBDSLV ルーチンにより上2重対角行列 B の特異値と特異ベクトルをすべて計算し、さらに行列を1次変換して元の行列 A の左右の特異ベクトルを計算する(後処理)ことで特異値分解が完了する。図は前処理・後処理まで含めた特異値分解の全工程について、現在の標準解法の DBDSQR(□)と DBDSLV(■)の実行時間の比較である。横軸は密行列の次数、縦軸は特異値分解完了までの総時間(sec.)である。DBDSLV ルーチンの優位性が顕著に現れている。全部の特異ベクトルが必要ではないとき、両者の差はもっと大きくなる。



図[2-3] 密行列の特異値分解の実行時間(sec.)

[3] I-SVD アルゴリズムの並列化について

本研究の成果の第三はI-SVD アルゴリズムの並列化である。I-SVD アルゴリズムの特異ベクトル計算部分(ツイスト分解と逆反復)は個々の特異値に対する特異ベクトルを独立に計算するため、並列実行は容易である。しかしながら、特異ベクトル計算部のみ並列化した I-SVD では、特異値計算部は高速の mdLVs アルゴリズムであるが、逐次的構造のため、この部分の並列実行が難しい。特異値計算部は全実行時間全体の約 3 割を占めるため、全体の並列化効率は低いものとなっていた。そこで、本研究では、分割統治型特異値分解法の特異値計算部のみ取り出して二分木を用いて並列実行し、特異値計算部の並列度を高めることに成功した。特異値は 25 次程度の小規模な対称 3 重対角行列に対するニュートン法を利用した固有値解法に帰着する。特異ベクトル部は I-SVD アルゴリズムにより並列計算する。

表は「並列 I-SVD アルゴリズム」による上重対角行列の特異値分解の並列化効率と計算時間である。現在の標準並列特異値分解ルーチンの PSTEQR (ScaLAPACK、アメリカ)と比べても十分な高速性をもつことがわかる。写真は本研究で購入した PC クラスタである。

表[3] 並列特異値分解の実行時間(sec.)と並列化効率

アルゴリズム・ルーチン	CPUの数	1	2	4	8	16
“並列I-SVD”	3000次SVD(sec)	5.78	2.96	1.50	0.83	0.49
	Speed up	1.00	1.95	3.85	6.96	11.84
	並列化効率	1.00	0.98	0.96	0.87	0.75
	7000次SVD(sec)	37.86	19.27	9.81	5.07	2.81
	Speed up	1.00	1.96	3.86	7.47	13.47
	並列化効率	1.00	0.98	0.96	0.93	0.84
ベクトル計算部のみ	3000次SVD(sec)	5.53	3.44	3.36	1.80	1.52
並列化したI-SVD	Speed up	1.00	1.61	2.34	3.07	3.64
並列化したI-SVD	並列化効率	1.00	0.80	0.59	0.38	0.23
PSTEQR (ScaLAPACK) (ScaLAPACK)	3000次SVD(sec)	867.98	433.61	173.44	66.78	34.71

5 自己評価:

本研究は、離散可積分系ロトカ・ボルテラ(dLV)方程式という従来にない方法による行列の特異値分解の実用化を目指して開始されたものである。新しい特異値分解法を開発し、その高速性、高精度性を理論的かつ実験的に検証するという目標はほぼ達成された。本研究で開発したのは次のアルゴリズムとライブラリ群である。(**)は現在チューニング中のライブラリである。

	アルゴリズム	ライブラリ名	特徴
特異値計算	mdLVs	DLVS	収束証明、数値安定性、高精度
特異値分解	I-SVD	DBDSLVS	高速 $O(N^2)$ 、高精度ベクトル
分割統治特異値分解	dDC	(DBDDDC)	集積した特異値分布で高速
並列特異値分解	Parallel dDC	(PDBDDDC)	高い並列化効率

本研究で開発したライブラリ DBDSLVS は LAPACK の DBDSQR に対して、速度で圧倒し、特異ベクトルの直交性を除いて、特異値、特異ベクトルの精度で勝り、収束証明など信頼性は同水準である。当初の LAPACK レベルでの逐次型ライブラリ開発という目標はほぼ実現されたといえる。現在は、計画を早めて、分割統治ライブラリと並列ライブラリの構築とチューニングを行っている。

また、これらのライブラリはいずれも容易に対称行列の固有値分解に転用可能である。収束証明はないものの現在、最速最高精度とされ 2006 年リリース予定の LAPACK 4.0 の対称3重対角行列の固有値分解ルーチンとして採用される dqds 法、MRRR 法に対しては、mdLVs 法、I-SVD 法は、逐次計算の速度はやや劣るものの、信頼性、固有値、固有ベクトルの精度と直交性、並列化効率で勝る。

以上の結果、従来、数日が必要とされた CT、MRI、PET 等、医療画像処理に現れる 10000 次の密行列の特異値分解が I-SVD 法により数時間に短縮されるなど、幅広い情報処理基盤が整備されたと考えられる。なお、当初、研究計画にあげた実用化研究の開始のうち、画像処理ソフトウェアの開発についてはウェブ画圧縮への高速特異値分解の応用という形で研究が進められ、成果が出始めており、医療画像処理と合わせて、いずれ学会発表・論文発表の予定である。しかし、データ検索ソフトウェアの開発には多くの人手が要ることがわかり、研究の規模を考慮して、他のテーマの研究を優先することとした。

本研究は、それぞれ、並列計算機システムの構築、ライブラリのプログラミング、収束証明など理論研究と持ち味の異なる3名のポスドク研究員を雇用して研究を進めた。目標が達成できた影には彼らの大きな貢献があった。うち1名は既に大学助手、1名は大学助手に内定しており、別の1名は発展研究(SORST)の主力メンバーとして今後とも貢献を期待している。この3年間に科研費への応募が可能になり、雇用期間が平成18年3月まで延長されるなど、3名とも誇りと意欲をもって研究に専念することができたようである。参加したポスドク研究員のキャリア形成に大いに役に立ったことも本研究の成果である。

領域会議では研究総括やアドバイザーから毎回、実に多くのご指導をいただいた。領域会議の発表後、直ちに質疑をまとめ、京都で待つメンバーに電子メールで送って即日検討させてきた。研究の節目でいただいた有益なご指導が次の目標の設定に役立ち、それを達成することで、本研究の成果につながったのだと思う。研究総括とアドバイザーの方々に深く感謝する。

6 研究総括の見解:

行列の特異値計算、特異値分解は様々な情報処理、情報検索の基礎となる重要な線形数値演算である。また、最近では、大規模な疎行列に限定した特異値を求めるために、新たな近似計算法が研究されてはいるものの、数値不安定性や精度悪化の問題が残り、その対処法は今のところ確立されていない。中村研究者は、これらの問題を解決するために、新しい特異値計算・特異値分解法の改良、実装、並列化等の研究開発を行った。本アルゴリズムは並列化が容易なので、計算の一層の高速化に顕著な効果が期待でき、時系列画像から対象物体の立体形状を求めるなど実用化の見通しが始まっており研究成果を高く評価できる。

7 主な論文等:

[1] 成果発表論文(5件以内)

[1-1] M. Iwasaki and Y. Nakamura, An application of the discrete Lotka-Volterra system with variable step-size to singular value computation, *Inverse Problems*, Vol. 20(2004), 553-563.

[1-2] 高田雅美, 岩崎雅史, 木村欣司, 中村佳正, 高精度特異値計算ルーチンの開発とその性能評価, *情報処理学会論文誌*, Vol. 46, No. SIG12(2005), 299-311.

[1-3] M. Takata, M. Iwasaki, K. Kimura and Y. Nakamura, An evaluation of singular value computation by the discrete Lotka-Volterra system, *Proceedings of The 2005 International Conference on Parallel and Distributed Processing Techniques and Applications*, Vol. II, pp. 410-416.

[1-4] 岩崎雅史, 中村佳正, 特異値計算アルゴリズム dLV の基本性質について, *日本応用数理学会論文誌*, Vol. 15, No. 3(2005), 287-306.

[1-5] 岩崎雅史, 阪野真也, 中村佳正, 実対称3重対角行列の高精度ツイスト分解とその特異値分解への応用, *日本応用数理学会論文誌*, Vol. 15, No. 3(2005), 461-481.

[2] 特許

[2-1] 発明者: 中村佳正, 岩崎雅史, 阪野真也

発明の名称: 行列の高速高精度特異値分解法, プログラムおよび装置

出願人: 科学技術振興機構

出願日: 特願 2004-166437 号(平成 16 年 6 月 3 日)

PCT 出願日: PCT/JP2005/10084(平成 17 年 6 月 1 日)(米国, カナダ, EP(英, 独, 仏))

[2-2] 発明者: 中村佳正, 菅田太朗, 岩崎雅史, 阪野真也, 高田雅美

発明の名称: 特異値分解装置、及び特異値分解方法

出願人: 国立大学法人京都大学

出願日: 特願 2005-351089 号(平成 17 年 12 月 5 日)

[3] 受賞

[3-1] 2006 年情報処理学会ハイパフォーマンスコンピューティングと計算科学シンポジウム (HPCS2006) 最優秀論文賞 受賞

論文題目: 分割統治法とツイスト分解法による新しい特異値分解アルゴリズム

著者: 菅田太朗, 高田雅美, 岩崎雅史, 中村佳正

[4] 招待講演等

[4-1] Y. Nakamura, I-SVD: A new singular value decomposition algorithm with a high relative accuracy, GAMM Workshop Applied and Numerical Linear Algebra, FernUniversität in Hagen, Germany, 平成 16 年 7 月 3 日.

[4-2] 中村佳正, 「可積分系から可積分アルゴリズムへー 一行列の特異値分解を中心としてー」, 平成 17 年 11 月 4 日, 応用数理学会秋の学校, 大阪大学サイバーメディアセンター.

研究課題別評価

1 研究課題名: マイクロ流体デバイス開発のための流体－構造連成共振現象逆解析

2 研究者氏名: 松本 純一

3 研究のねらい:

近年、微細加工技術の進歩により数 μm ～数 mm サイズのマイクロマシンの開発が盛んに行われ、その関連技術の発展は急速に進んでいる。マイクロマシンは、スケールが小さいことから、体内埋め込み用医療機器、高性能で小型な産業機器等の開発が可能となる機械技術として医療・産業界にとって重要である。

マイクロマシンの技術開発の中では、化学工学の分野を中心に、特にポンプ・バルブといったマイクロ流体デバイスの開発が関心を集めている。マイクロ流体デバイス内部の流体(液体)挙動は、通常スケールの流体挙動とは異なり、微小スケールの影響で粘性力が極端に卓越した独特な流れ現象となっている。粘性力の卓越した流れ場では、流れが遅く流体の挙動が緩やかであるため一般的に流体の運動効率は高くない。そこで、高効率かつ高性能なマイクロ流体デバイスを開発するための一つの考えとして、アクチュエータ(構造)部の小さな力を、いかに大きなエネルギーに変換して流体に作用させるかが重要なポイントとなる。その作用手段として、流体のもつ固有の振動数(流れの周期)と構造物のもつ固有の振動数(振動の周期)とが互いに干渉し合って大きな共振を起こす同期現象である、流体－構造連成の共振現象の利用が考えられる。

本さがけ研究では、コンピュータを用いた三次元実モデルの数値シミュレーションにより、共振をうまく利用して小さな力のアクチュエータ源で構造物を駆動させ、流体を大きく動かすことを可能にする共振制御解析手法の開発を目的としている。大きな共振振動の発生には、単に構造物の振動量を大きくするだけでは効果は見られないため、流体と構造物の持つ固有の振動数(固有値)を近い値となるようにコントロールしなければならない。共振振動などに代表される流体－構造連成問題特有の固有値に関する現象は非常に複雑であり、この現象をコンピュータ上に再現し、その計算結果を用いて逆解析を行う解析技術は難易度も高く、未解決の分野である。この複雑な固有値を制御することに着目し、共振制御解析を行い、大規模並列三次元解析にてその有効性を検証する。本研究は近い将来のマイクロ流体デバイスの高機能化、小型化に資する数値解析技術の開発を目標としている。

4 研究成果:

本研究を実現するためには、図1に示すように、三次元流体－構造強連成解析、三次元固有値解析、形状同定逆解析技術の開発および統合が必要となる。本研究のイメージは図2であり、JSTさがけ研究で行った研究成果は主に次の5つである。

- 1) 高精度かつ計算効率の優れた直交基底気泡関数要素数値解析方法
- 2) 並列版三次元流体－構造強連成解析プログラムの開発
- 3) 非定常問題での形状同定並列逆解析
- 4) 64プロセッサ(CPU)中規模計算機を使用した一億自由度以上の超大規模並列固有値解析
- 5) 並列版三次元流体－構造強連成逆解析システムの統合

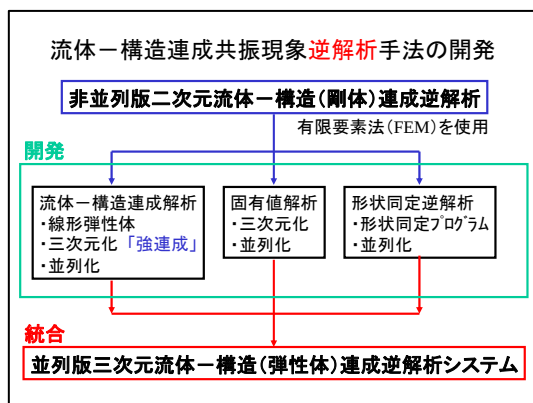


図1 共振現象逆解析手法の開発

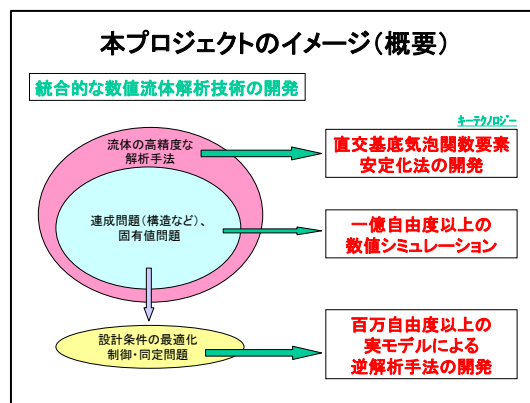


図2 本プロジェクトのイメージ

以下にJSTさきがけ研究で得られた5つの成果の説明を示す。

4. 1 高精度かつ計算効率の優れた直交基底気泡関数要素数値解析方法

時間微分項を含む偏微分方程式の数値解析方法では、時間方向の離散化手法として、陽解法と陰解法が用いられる。陽解法は、未知量を求めるために、疎な分布行列の逆行列を必要としない解法であり、陰解法は、疎な分布行列の逆行列を必要とする解法である。空間方向の数値離散手法の一つである有限要素法を使用して、時間方向の離散化に陽解法を適用する場合には、通常、疎な分布行列(整合質量行列)の各行の成分を足し合わせて(集中化させて)、対角項のみに成分をもたせた近似行列(集中質量行列)が使用される。集中質量行列を用いた場合には、行列の成分が対角項のみであるので、逆行列は各対角成分を逆数にした行列になり、数値解析上、近似なしの整合質量行列およびその逆行列を使用する場合に比べて、非常に少ない記憶容量、計算時間で解析を実行することができる。しかしながら、集中質量行列を使用した場合には、集中質量行列が元の質量行列と同一の行列ではなく近似行列となるために、得られた解析結果が整合質量行列の逆行列を使用した結果に比べて精度が悪く、解析結果の信頼性に問題があった。本研究では、有限要素法の一解法である気泡関数要素にて、各基底が直交する条件を導入し、整合質量行列を集中化せず、対角行列となる整合質量行列を開発した(直交基底気泡関数要素数値解析方法)。開発した解法は、整合質量行列の近似を行わずに、対角質量行列となっているため、集中質量行列を使用したときのような精度の劣化はなく、通常の整合質量行列を使用した場合と同等な精度を保ちつつ、集中質量行列と使用した場合と同じ、計算効率、少メモリ化を実現した解法である(図3参照)。

4. 2 並列版三次元流体－構造強連成解析プログラムの開発

流体－構造強連成問題を扱うにあたり、複雑な連成挙動を数値解析手法にて計算するためには、(1)精度が良く安定であり、(2)流体－構造連成の正確な相互作用を表現でき、(3)高効率な大規模解析への適用が可能な手法が必要となる。本研究では、上記の3つの条件を満たす解法として直交基底気泡関数要素安定化法を用いた強連成手法の開発を行った(図4参照)。直交基底気泡関数要素安定化法は、流速と圧力に対して上限下限条件を満たす要素(MINI 要素)を採用した混合補間型の手法であり、流速の近似関数に2レベル気泡関数(直交基底となる気泡関数)、重み関数に3レベル気泡関数(安定化作用制御項を導く気泡関数)を導入した定式化により数値不安定性を回避する方法である(1)。また、定式化が簡便であることから、強連成などの複雑な定式化に有効であり(2)、直交基底気泡関数要素は質量行列が対角行列となるので、質量行列の人為的な集中化(集中質量行列)を用いることなく分離型解法の採用ができ、整合圧力ポアソン方程式の解法にて、高精度を保ちながら計算効率の高い大規模並列解析を行うことが可能となった(3)。

4. 3 非定常問題での形状同定並列逆解析

従来の安定化手法に比べて定式化が極めて簡便な気泡関数要素安定化法を使用した非定常問題の形状同定並列逆解析プログラムを開発した。評価関数に流体力を用いた非圧縮 Navier-Stokes 方程式 (非定常非線形問題) の形状同定解析の適用を検討した。検証の問題として円柱周りの解析を取り上げ、レイノルズ数 0.1 (Stokes 流れとなる領域)、20 (カルマン渦の発生しない領域)、250 (カルマン渦が発生する領域) の 3 ケースの抗力の同定形状解析を行った。3 ケースいずれの場合にも目的とした抗力が得られる同定形状を解析できた (図4参照)。

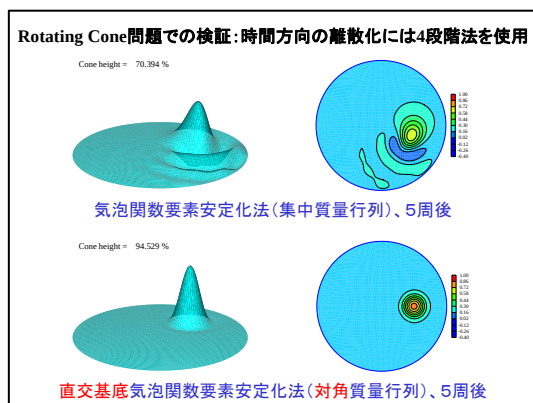


図3 直交基底気泡関数要素数値解析方法

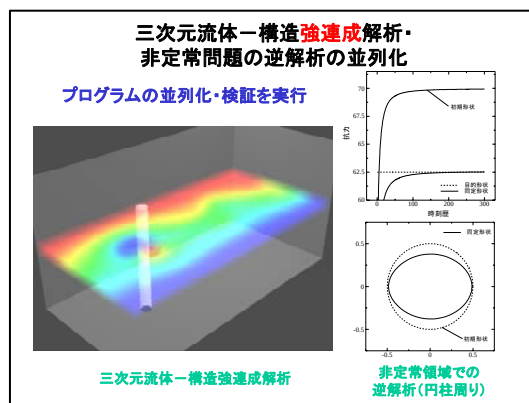


図4 流体-構造強連成解析と形状同定逆解析

4. 4 64 プロセッサ (CPU) 中規模計算機を使用した一億自由度以上の超大規模並列固有値解析

有限要素法に特化した超大規模固有値問題用に、Arnoldi 法を用いた並列ソルバーを提案した。Arnoldi 法は、非常に大きな行列を、絶対値の大きい固有値から順に m 個を含む m 元の行列 (上 Hessenberg 行列) に変換する方法である。有限要素解析での固有値問題は、振動解析・系の安定性解析がほとんどであり、そのときに必要な情報は、低次の振動モード・系の不安定モードの数～数十の固有値・固有ベクトルである。Arnoldi 法はスペクトル変換を適用することにより、知りたい部分の m 個の固有値をもった m 元の行列を作成するので、有限要素法での固有値解析に非常に適した方法である。Arnoldi 法アルゴリズムの並列化を有限要素法の特徴を活かした方法 (element by element 手法) を用いて行い、計算の高速化、省メモリ化を図った。実問題への解析例として、一億自由度を超える射出成形機固定盤の構造固有値解析を 64 プロセッサの中規模 PC クラスタを使用した分散メモリ型並列解析手法で行い提案手法の有効性を示した (図5参照)。

4. 5 並列版三次元流体-構造強連成逆解析システムの統合

4. 1～4. 4では、国内/PCT 特許出願を行った流体解析手法の新規的な解法 (直交基底気泡関数要素安定化法) を軸とし、1) 三次元流体-構造連成並列解析、2) 三次元構造固有値並列解析、3) 形状同定並列逆解析のプログラム開発を行った。これまでに開発してきた1)～3)のプログラムを統合し、図6の実現方法により共振制御流体-構造連成逆解析シンセシス技術の構築を試み、本プロジェクトの取り纏め成果とする。

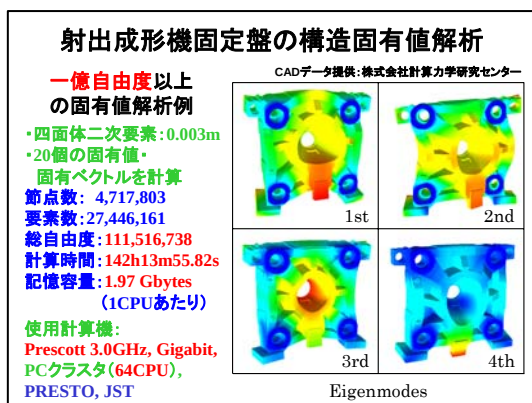


図5 一億自由度並列固有値解析

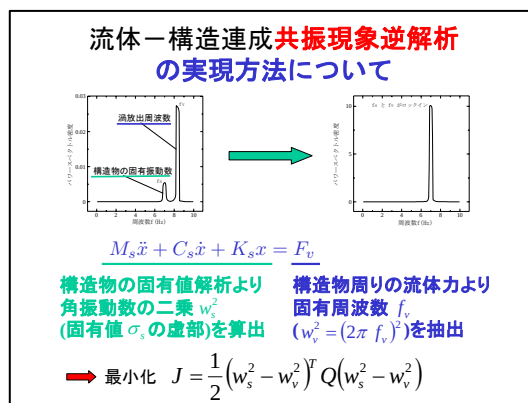


図6 実現方法について

5 自己評価:

流体—構造連成共振現象逆解析は、通常の流体—構造連成解析に比べて計算アルゴリズムが複雑になり、数十倍～数百倍の記憶容量・計算速度を必要とする。この事柄が、現在のところ、流体—構造連成問題の三次元逆解析がほとんど行われていない原因の一つとなっている。流体—構造連成共振現象逆解析を実現させるためには、多くの記憶容量と膨大な計算時間を必要とする超大規模解析が不可欠であり、32～64プロセッサ規模のPCクラスタの使用を前提とし、図2に示した計算規模を目標に本プロジェクトを遂行した。

これまでの研究で、高精度を保ちながら計算速度の高速化、少メモリ化を実現できる直交基底気泡関数要素数値解析方法(流体解析手法)を開発し、この解法を軸として、64プロセッサを使用したPCクラスタで、流体—構造連成問題では数千万自由度、固有値解析では一億自由度、逆解析では数百万自由度の計算を可能とするプログラム開発に成功し、計算規模の面では当初の目標を達成したと考えている。しかしながら、計算時間は、予想していた以上にかかり、数百万自由度の逆解析では、最低でも数週間の計算時間を要する結果となった。

三次元実モデルの流体—構造連成逆解析を手軽に行うには、現状では改良すべき点も残されているが、本研究の機会を与えて頂いたことに感謝するとともに、今後は、開発したプログラムをより現実的な計算時間で終了できる数値解析システムへと発展させ、高機能なマイクロ流体デバイス設計に役立つ実用的な逆解析シンセシス技術の開発を目指して研究を進めてゆきたい。

6 研究総括の見解:

マイクロ流体デバイスは医療・情報産業への応用が期待されている。松本研究者は、マイクロ流体デバイスの技術開発に応用するために、コンピュータを用いた三次元実モデルの数値シミュレーションにより、共振をうまく利用して小さな力のアクチュエータ源で構造物を駆動させ、流体を大きく動かすことを可能にする共振制御解析手法の確立を行った。複雑な連成挙動を数値解析手法にて計算するためには、精度がよく安定であり、流体—構造連成の正確な相互作用を表現でき、高効率な大規模解析への適用が可能な手法が必要となる。本研究では新しい流体解析方法である、直交基底気泡関数要素安定化方法を用いた強連成手法を開発し、高精度を保ちながら計算効率が高く、省メモリ化を実現した大規模並列解析を行ったことを高く評価する。

7 主な論文等:

論文(査読付き)

1. 松本純一: 安定化気泡関数有限要素法を用いた非圧縮粘性流れにおける形状同定解析, 応用力学論文集, 6, pp.267-274, 2003.
2. 松本純一: 気泡関数を用いた非圧縮性粘性流れ解析のための2レベル-3レベル有限要素法, 応用力学論文集, 7, pp.339-346, 2004.
3. 松本純一: Krylov 部分空間反復法を用いた Arnoldi 法による有限要素並列固有値解析, 日本応用数理学会論文誌, 15(2), pp.145-158, 2005.

4. Junichi Matsumoto: A Relationship between Stabilized FEM and Bubble Function Element Stabilization Method with Orthogonal Basis for Incompressible Flows, *Journal of Applied Mechanics, JSCE*, **8**, pp.233-242, 2005.

特許出願

1. 発明者: 松本純一

発明の名称: 直交基底気泡関数要素数値解析方法、直交基底気泡関数要素数値解析プログラムおよび直交基底気泡関数要素数値解析装置

出願人: 独立行政法人 科学技術振興機構、独立行政法人 産業技術総合研究所

出願日: 特願 2004-343213(平成 16 年 11 月 26 日:50 頁)

2. 発明者: 松本純一

発明の名称: 直交基底気泡関数要素数値解析方法、直交基底気泡関数要素数値解析プログラムおよび直交基底気泡関数要素数値解析装置

出願人: 独立行政法人 科学技術振興機構、独立行政法人 産業技術総合研究所

出願日: 特願 2005-071239(平成 17 年 3 月 14 日:79 頁)

特願 2004-343213 の国内優先権出願

3. 発明者: 松本純一

発明の名称: 直交基底気泡関数要素数値解析方法、直交基底気泡関数要素数値解析プログラムおよび直交基底気泡関数要素数値解析装置

出願人: 独立行政法人 科学技術振興機構、独立行政法人 産業技術総合研究所

出願日: PCT/JP2005/021727(平成 17 年 11 月 25 日:102 頁)

口頭発表(国際、国内)

1. 松本純一: 気泡関数要素安定化法による熱流体一構造強連成解析, 計算工学会講演会, **9**, pp.451-452, 2004.5.
2. Junichi Matsumoto: Shape Identification for Navier-Stokes Equations with Unsteady Flow Using Bubble Function Element Stabilization Method, *the Sixth World Congress on Computational Mechanics (WCCM VI) in conjunction with the Second Asian-Pacific Congress on Computational Mechanics*, Proceedings in CD-ROM, 2004.9.
3. 松本純一: Krylov 部分空間反復法を用いた Arnoldi 法による一億自由度並列固有値解析, 計算力学講演会(日本機械学会), **18**, pp.161-162, 2005.11.
4. 松本純一: 陽解法に基づいた直交基底気泡関数要素による有限要素解析, 計算力学講演会(日本機械学会), **18**, pp.167-168, 2005.11.
5. 松本純一: 直交基底気泡関数有限要素法による流体一構造強連成問題の形状同定, 数値流体力学シンポジウム, **19**, Proceedings in CD-ROM, 2005.12.

他に国際口頭発表3編、国内口頭発表16編

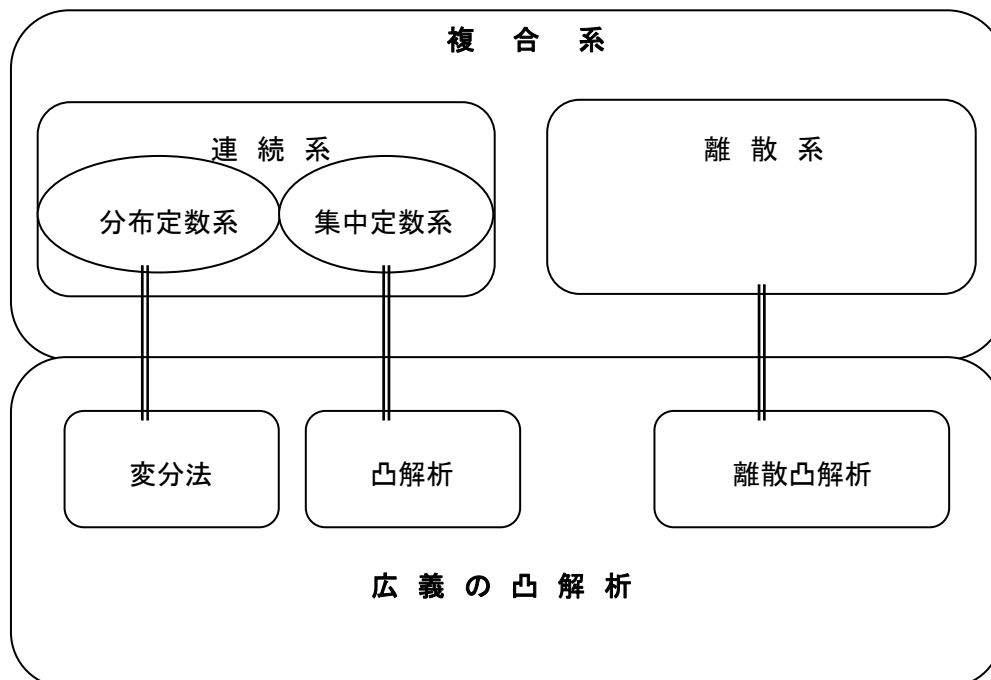
研究課題別評価

1 研究課題名： 離散・連続複合系の分散最適化シミュレーション

2 研究者氏名： 室田一雄

3 研究のねらい：

現実の多くのシステムは、偏微分方程式で記述される現象(連続系)と事象生起による状態の変化(離散系)を含む複合システムであり、そのシミュレーションは、従来、必要に迫られる形で実行されてきた。本研究においては、離散凸解析の理論を手掛りとして、連続系と離散系の数学的取り扱いの統合を目指している。また、同じ連続系でも、分布定数系(無限自由度系)と集中定数系(有限自由度系)とで、従来の最適化アルゴリズムには不必要な乖離が見られた。本研究は、凸解析の視点を積極的・意識的に用いることによって、分布定数系と集中定数系を包括する連続系、さらには、離散系をも包括する複合システムのシミュレーション技術の基礎を確立することを目指している。



4 研究成果：

最適化における離散と連続の統合に向けて、関数クラスの提案と整理、および最小化アルゴリズムの設計を中心に研究を行った。以下、3つの項目について具体的に記述する。

(a) 離散双対性に関わる最適化問題、とくに、 M 凸関数を目的関数に含む劣モジュラ流問題に対して、その解法とアルゴリズムについて理論的検討を行い、岩田・Fleischer・McCormick による劣モジュラ流問題の解法を拡張する形で、 M 凸関数を含む問題に対する弱多項式時間解法を開発した。この解法は、理論的には現在、もっとも高速なアルゴリズムとなっており、その概要を 2004 年 6 月に国際会議(International Conference on Integer Programming and Combinatorial Optimization)において報告するとともに国際学会誌に発表した(S. Iwata, S. Moriguchi and K. Murota: A capacity scaling algorithm for M -convex submodular flow, Mathematical Programming, 2005)。

M 凸劣モジュラ流問題とは、以下のように定義される最適化問題である。有向グラフ $G=(V,A)$ を考える。各枝の流量の下限と上限および、単位流量あたりの費用が与えられているとする。容

量の下制限制約を満たし、与えられた供給量と整合的なフローの中で総費用を最小にするものを求める問題を最小費用流問題という。最小費用流問題において、供給制約をフローの境界がある基多面体に属すべきであるという制約に置き換えることにより、劣モジュラ流問題に一般化される。劣モジュラ流問題はポテンシャル(双対変数)による最適性規準、負閉路による最適性規準、最適解の整数性、効率的なアルゴリズムの存在などの良い性質をもっており、扱いやすい組合せ最適化問題の代表となっている。さらに、フローの境界に対するコスト関数を目的関数に加えるという一般化を考えると、そのコスト関数がM凸関数ならば良い性質が保たれる。M凸関数を用いてこのように定義される問題をM凸劣モジュラ流問題と呼ぶ。

本研究で設計した新しいアルゴリズムの計算量は、ネットワークの点の個数を n 、最大容量を L 、最大費用を K 、M凸コスト関数の関数値計算に要する時間を F とするとき、 $O(F n^6 (\log L)^2 \log K)$ である。これは、一般のM凸劣モジュラ流問題に適用できるアルゴリズムであるが、一方で、M凸関数がスケーリングに関して閉じている場合のM凸劣モジュラ流問題に対して、既に開発されたアルゴリズムの計算量は $O(F n^4 \log L)$ であり、適用可能な範囲が限定されている代わりに高速になっている。状況に応じて、両者を使い分けるのがよい。

M凸劣モジュラ流問題の解法アルゴリズムの現状と本研究の位置づけは次表の通りである。

	劣モジュラ流	M凸劣モジュラ流
負閉路消去法	藤重(1978)	室田(1999)
最短路繰返し法	藤重(1978)	森口・室田(2002)
容量スケーリング法	岩田(1997)	森口・室田(2002)
	Fleischer-Iwata	岩田・森口・室田(2004)
	-McCormick(2002)	

(b) マルチモジュラ関数と、L凸関数の関係を解明した。待ち行列や在庫管理などの離散事象システムの解析において、マルチモジュラ関数の概念が提案され、その有用性が議論されていることが文献調査の結果、明らかとなった。その議論と応用については、Altman、Gaujal、Hordijk によるモノグラフ(2003 年)に詳細が記述されている。この概念は一種の劣モジュラ性を定式化したものであり、その意味において、離散凸解析におけるL凸関数に類似している。

本研究においては、マルチモジュラ関数とL凸関数の関係を理論的に調べ、両者が変数のユニモジュラ変換によって移り合う、等価な概念であることを明らかにした。その結果として、マルチモジュラ関数の文脈で得られた特徴付け定理はL凸関数に関する特徴付け定理へと翻訳される。また、逆に、L凸関数に関する局所最適性定理は、マルチモジュラ関数に関する局所最適性定理を与える。この考察の結果、Altman らの文献に述べられていた最適性規準が誤りであることを指摘し、それを如何なる形に修正すべきかを示した論文を国際学会誌に発表した(K. Murota: Note on multimodularity and L-convexity, Mathematics of Operations Research, 2005)。

L凸関数と等価な概念は、様々な分野において独立に(しかし、部分的に)研究されて来たことが明らかになっているが、上記の研究を含め、今までの研究によって明らかになった等価な概念は次表の通りである。

L凸関数 L#凸関数 劣モジュラ整凸関数 マルチモジュラ関数	Murota(1998) Fujishige – Murota(2000) Favati – Tardella(1990) Hajek(1985)
---	--

(c) M凸関数概念のジャンプシステム上の関数への一般化を行った。離散凸関数の重要な性質の一つとして、大域的な最適性が局所的な最適性によって特徴付けられるという性質がある。この性質は、最適化シミュレーションにおけるアルゴリズムの設計において利用できる便利な性質

である。

2004 年 6 月に開催された整数計画法と組合せ最適化に関する国際会議(International Conference on Integer Programming and Combinational Optimization)において、Apollonio と Sebo がグラフ因子に関する最適化問題を考察し、興味深い局所最適性規準を示した。

本研究においては、離散凸解析における中心的概念の一つである M 凸関数の概念を、ジャンプシステム上の関数にまで一般化することによって、Apollonio らの定理を離散凸解析の文脈に位置づけることに成功した。さらに、本研究による一般化の結果として、Apollonio らの考察した問題においてグラフの辺に重みが付与されている場合も取り扱えるようになった。

M 凸関数に関連する概念の一般化の歴史は次表のように要約される。

マトロイド	Whitney (1935)
ポリマトロイド	Edmonds (1965)
一般化ポリマトロイド	Frank, Tardos (1985)
付値マトロイド	Dress – Wenzel (1990)
基多面体上の M 凸関数	Murota (1996)
一般化ポリマトロイド上の M 凸関数	Murota – Shioura (1999)
ジャンプシステム上の M 凸関数	Murota (2004)

5 自己評価:

本研究における中心的なテーマは「離散と連続」であるが、凸解析の視点を軸として、離散と連続の最適化手法を開発し整理することには成功したと考えている。一方、当初の計画においては、「離散」の一つの形態として「分散システム」を含めていたが、この問題に対しては満足な成果が得られていない。新しい形のネットワーク理論が進展していることを鑑み、この課題には継続的に取り組みたいと考えている。

6 研究総括の見解:

現在使われている多くのシステムは、連続的に変化する現象によって組み立てられているシステム(連続系システム)と、独立的に変化する現象から成り立っているシステム(離散系システム)が混在する複合システムである。室田研究者は連続変数の最適化を行うための凸解析と、離散変数の最適化を行うためのマトロイド理論を融合した最適化方法、すなわち離散凸解析の理論を手掛かりとして、連続系と離散系の数学的取り扱いの統合手法を確立した。特に M 凸関数を含む問題に対する弱多項式時間解法やマルチモジュラ関数と L 凸関数の関係を解明した多数の重要な論文が発表されており、その成果を高く評価する。

7 主な論文等:

著書 1 件

- (1) K. Murota (2003): Discrete Convex Analysis, SIAM Monographs on Discrete Mathematics and Applications, Vol. 10, Society for Industrial and Applied Mathematics, Philadelphia, 2003.

論文5件(他14件)

- (1) K. Murota and A. Shioura(2004): Conjugacy relationship between M-convex and L-convex functions in continuous variables, Mathematical Programming, Vol.101, No.3, 415-433, 2004.
- (2) K. Murota, H. Saito, and R. Weismantel(2004): Optimality criteria for a class of nonlinear integer programs, Operations Research Letters, Vol. 32, No. 5, 468-472, 2004.
- (3) S. Iwata, S. Moriguchi and K. Murota(2005): A capacity scaling algorithm for M-convex submodular flow, Mathematical Programming, Vol.103, No.1, 181-202, 2005.
- (4) K. Murota(2005): Note on multimodularity and L-convexity, Mathematics of Operations

Research, Vol.30, No.3, 658–661, 2005.

- (5) T. Iimura, K. Murota and A. Tamura(2005): Discrete fixed point theorem reconsidered, Journal of Mathematical Economics, Vol. 41, No. 8, 1030–1036, 2005.

受賞1件

- (1)井上学術賞(2005)

招待講演4件

- (1) 室田一雄 (2004): 「離散凸解析への誘い」, 2004 年度日本数学会年会, 企画特別講演, 筑波大学, 2004 年 3 月 28 日～3 月 31 日, 総合講演・企画特別講演アブストラクト, pp. 99–109.
- (2) K. Murota (2005): Fundamentals in discrete convex analysis, at Dagstuhl Seminar, Computing and Markets, Schloss Dagstuhl, January 3–7, 2005.
- (3) K. Murota(2005): M-convex functions on jump systems: Generalization of minsquare factor problem, The 4th Japanese–Hungarian Symposium on Discrete Mathematics and Its Applications, Budapest, June 3–6, 2005, pp.217–223.
- (4) 室田一雄 (2005): 離散凸解析の基礎, 第 17 回 RAMP シンポジウム, 弘前, 2005 年 10 月 20 日～21 日, pp.65–76.

研究課題別評価

1 研究課題名: ハイブリッド型分子動力学シミュレーションの開発

2 研究者氏名: 山本量一

研究員: 名嘉山 祥也 (研究期間 H.15.6~H.17.10)

研究員: 金 鋼 (研究期間 H.15.4~H.18.3)

3 研究のねらい:

ソフトマターや複雑流体など、機能性材料として期待されている物質の多くは空間的にも時間的にも全くスケールの違う階層構造が混在している場合がほとんどであり、最先端のシミュレーションといえどもすべての階層を同じレベル(計算手法)で取り扱うことは現実問題として不可能である。例えばコロイド粒子や生体分子の溶液の場合、溶媒を構成する分子の大きさや運動の時間スケールがコロイド粒子や生体分子のそれらより何桁も小さく、シミュレーションのスケールを前者にあわせると意味のある結果を得るまでに世界最速のスーパーコンピュータを用いても天文学的な計算時間($\sim 10^{20}$ 年)が必要になる。逆にコロイドや生体分子にスケールをあわせると、今度は現実と乖離した仮想的なモデルを用いざるを得ず、実際の物質との対応が希薄になる。このようなマルチスケールの階層性こそがソフトマターのシミュレーションを困難にしている最大の要因となっており、この原理的問題を克服した新しいシミュレーション法の開発が望まれている。そこで我々はハイブリッド型分子動力学(MD)シミュレーションの方法を提唱し、さきがけ研究のプロジェクトとして開発を行った。特に、異なるスケールを持つ各自由度間の相互作用を正確に、かつコンピュータが扱いやすい形で表現することを目指した。

4 研究成果:

4-1. シミュレーションの概要

コロイドなど微粒子分散系のシミュレーションを行う場合、溶媒やイオンの自由度を何らかの形であらわに取り扱うか、それをあきらめて微粒子間の有効ポテンシャルに還元するかを選択がある。後者の場合、数値的には簡単であるがモデルの妥当性に問題が残る。前者がより正確なのは言うまでもないが、すべての自由度をミクロな粒子として取り扱うことは、残念ながら世界最速のスーパーコンピュータをもってしても実現不能である。

微粒子だけを粒子として、溶媒を連続体として扱うハイブリッドなモデル化がこのような場合に有効であり(図1)、前者の自由度を完全に消去するのではなく、連続体として粗視化したメソスケールの変数として取り扱う。この場合、微粒子と溶媒の相互作用を粒子界面での境界条件として与えると

数値計算の効率が悪く、多粒子分散系の数値計算が不可能となる。これまでもいくつかの解決策が提案されているが、我々は粒子と溶媒の界面に滑らかなプロファイル(Smoothed Profile)を用いて連続的に取り扱うという単純なアイディア(図2)でこの困難を回避できることを示し、世界で初めて液晶溶媒に対する多粒子分散系のシミュレーションに成功した[2,3]。我々の方法は適応の範囲が大変広く、水中の生体分子や界面が関与する問題、機能性材料開発、マイクロ流体デバイスやマイクロラボ等の諸問題への応用が可能である。このようなメソスケールの移動現象では

帯電した微粒子のシミュレーション

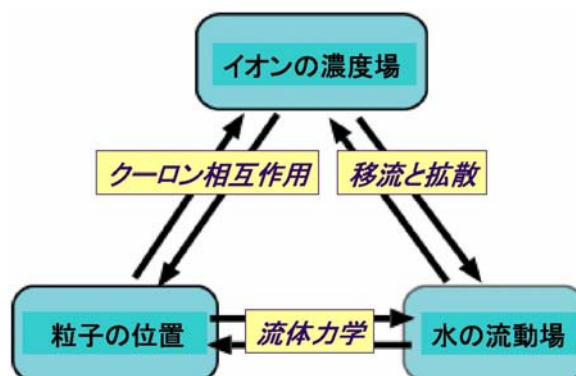
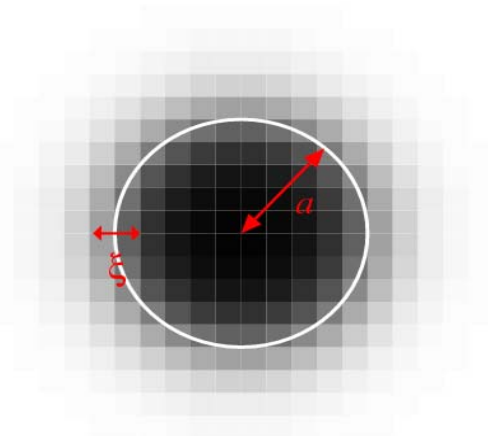


図1. ハイブリッド型シミュレーションの模式図。

荷電コロイド分散系の動的シミュレーションを行うには、「コロイド粒子の位置」「溶媒(水)の流動場」「対イオン濃度場」の3つの自由度をコンシステントに扱う必要がある。

流体のレイノルズ数が小さいために、いわゆる乱流の効果は無視することが可能である。逆に熱や物質の拡散の効果が大きくなり、イオンの分布や分子の配向など溶媒の内部自由度の影響も重要になる。多彩な現象が報告されているが理解は進んでおらず、シミュレーションによる解析が有効である。



$$\phi_i(\vec{x}) = \frac{1}{2} \left[\tanh \left(\frac{a - |\vec{x} - \vec{R}_i|}{\xi} \right) + 1 \right]$$

図2. 本来のソリッドな界面(白線)を有限の厚さ ξ をもつぼやけた界面 ϕ_i (グレイスケール)で置き換える。

4-2. 重力沈降シミュレーションの結果

各種溶媒に分散するコロイド粒子系への応用を行った。まずニュートン流体中に分散するコロイド粒子の挙動について、2次元のデモンストレーション結果を示す(図3)[3]。同様の状況下で3次元のシミュレーションも行っているが、粒子・流体間の相互作用における計算誤差は5%以内に抑えられていることを確認している。

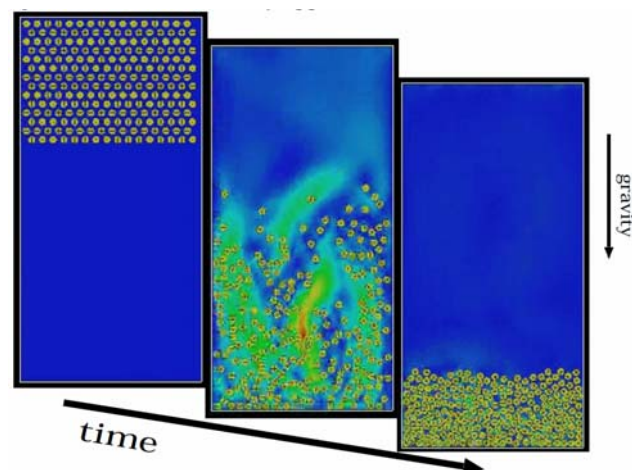


図3. 非圧縮ニュートン流体中を重力により沈降する粒子(黄丸)のダイナミクス。溶媒の流体力学効果によって渦が発生し、粒子の運動が大きく乱される。

4-3. 電気泳動シミュレーションの結果

次に電解質溶液中を電気泳動するコロイド粒子のシミュレーション結果を示す(図4)。このシミュレーションでは、コロイド粒子、対イオンの濃度場、溶媒の流動場の3つの自由度が、全てコンシステントに扱われており[4]、単純な状況を設定して理論的な解析結果と比較すると電気泳動速度に対する計算誤差は5%以内であることが確認されている。与える外部電場が弱いときには泳動速度も遅く、イオンはコロイド粒子の周りにほぼ等方的に分布しているが、外部電場が大きくなると泳動速度は早くなり、外部電場の効果と溶媒との摩擦の効果によりイオンの分布は彗星が尾を引くように非等方的になる。この効果によって、外部電場と電気泳動速度の関係に非線形性が生じる。

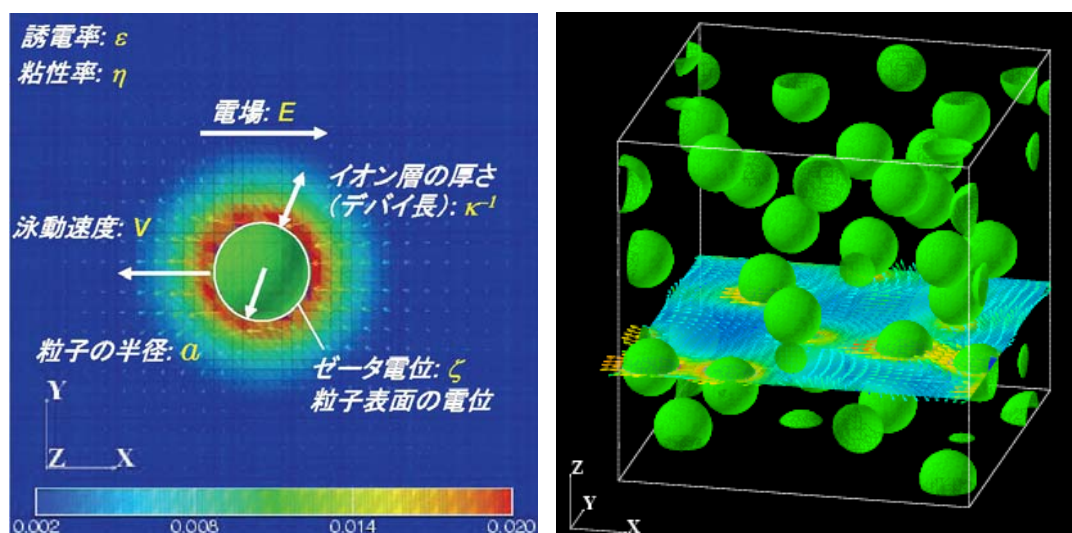


図4. 左: 電気泳動のシミュレーション。外部電場 E で右方向に速度 V で泳動したコロイド粒子周りの対イオンの分布をカラーマップで表示。外部電場、及び対イオンと溶媒との間に働く摩擦によってコロイド粒子周りのカウンターイオンの分布は非等方的になる。右: 多粒子の電気泳動。

参考文献:

- [1] R. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. 87, 075502 (2001)
- [2] R. Yamamoto, Y. Nakayama, and K. Kim, J. Phys.; Condens. Matt. 16, S1945 (2004).
- [3] Y. Nakayama and R. Yamamoto, Phys. Rev. E, 71 036707 (2005).
- [4] K. Kim and R. Yamamoto, Macromol. Theory Simul., 14, 278 (2005).

5 自己評価:

研究を開始して3年が経過して今年度が最終年度であるが、現時点までに3次元での現実的なシミュレータの開発を完了し、ソフトマター分野で革新的シミュレーション手法を開発するという当初の研究目的を100%達成することが出来たと考えている。具体的には、今回開発したハイブリッド型MD法によってこれまで超並列スーパーコンピュータを要したのと同等のシミュレーションがPC単体で実施可能になったこと、スーパーコンピュータでも実施が困難であった複雑流体分散系の直接シミュレーションが可能になったことの2点を強調したい。各種溶媒に分散するコロイド粒子への応用についてはすでに各種の系について応用・運用を開始している。数千個のコロイド粒子からなる大規模な3次元シミュレーションや、これまで解析が困難であったコロイド粒子の電気泳動の直接数値シミュレーションを実現している。

本研究はポスドク参加型ということで専門が異なる2名の若手研究者の参加を得たが、これはプロジェクトの遂行にあたって大変重要な効果をもたらした。プロジェクトが困難に直面した際に研究代表者個人では思い至らないような解決策の提案があり、議論を経てよりよい解決策へと到達

し、試行錯誤の末にプログラムへの最適な実装が行なわれた。代表者＋ポスドク2名というユニットのサイズは適切であったと感じている。

我々が開発したハイブリッド型 MD シミュレーションの方法は適応の範囲が大変広く、水中の生体分子や界面が関与する問題、ナノテクノロジーによる機能性材料開発、マイクロ流体デバイスやマイクロラボ等の諸問題への応用が可能である。今後のプログラムの拡張とより速い計算機の使用によって、本研究の成果を産業界へ波及させることが可能であると考えている。

6 研究総括の見解:

ソフトマターと呼ばれる物質や、それらの集合体(複雑流体)のような機能性材料として期待されている物質の多くは、全く異なる階層構造が混在しており、最先端のシミュレーション手法を用いても、全ての階層を同じレベル(計算手法)で取り扱うことは難題である。山本研究者は粒子と溶媒の界面に滑らかなプロファイルを用いて連続的に取り扱うという従来とは全く視点を変えたアイデアで、これまで解明できなかった多粒子分散系の数値計算における問題を解決し、世界で初めて液晶溶媒に対する多粒子分散系のシミュレーションに成功した。その結果、これまでは限られた人のみが使用可能な超並列スーパーコンピュータを用いて行っていたシミュレーションが、安価で高性能な PC 単体で実施できるようになり、ソフトマターを対象とした MD シミュレーションが一部の大学や研究所だけでなく、企業でも多くの人々が利用できるようになり、産業界の活性化と発展に貢献することを期待する。

7 主な論文等:

論文:	15報
特許:	0件
受賞:	1件
国際会議招待講演:	9件(うち1件は2006年4月予定)

論文

1. Kang Kim, Yasuya Nakayama and Ryoichi Yamamoto,
Simulating electro-hydrodynamics in charged colloidal dispersions: A smoothed profile method, AIP Conference Proceedings, in print.
2. Yasuya Nakayama, Kang Kim and Ryoichi Yamamoto,
Hydrodynamic effects in colloidal dispersions studied by a new efficient direct simulation, AIP Conference Proceedings, in print.
3. K. Kim and R. Yamamoto,
Efficient simulations of charged colloidal suspensions: A density functional approach, Macromol. Theory Simul. **14**, 278 (2005).
4. Y. Nakayama and R. Yamamoto,
Simulation Method to Resolve Hydrodynamic Interactions in Colloidal Dispersions, Phys. Rev. E. **71**, 036707 (2005).
5. R. Yamamoto, Y. Nakayama, and K. Kim,
A Method to Resolve Hydrodynamic Interactions in Colloidal Dispersions, Computer Physics Communications **169**, 301–304 (2005).
6. K. Kim, Y. Nakayama, and R. Yamamoto,
A Smoothed Profile Method for Simulating Charged Colloidal Dispersions, Computer Physics Communications **169**, 104–106 (2005).
7. R. Yamamoto, Y. Nakayama, and K. Kim,
A Smoothed Profile Method for Colloidal Dispersions, Proceedings of the 3rd International Conference ``Computational Modeling and Simulation of Materials'' (2004).
8. Y. Nakayama and R. Yamamoto,
Resolving the Hydrodynamic Interaction in Particle Suspensions, Proceedings of the 3rd

International Conference ``Computational Modeling and Simulation of Materials'' (2004).

9. K. Kim and R. Yamamoto,
Simulation Study of Charged Colloidal Particles in Electrolyte Solutions, Proceedings of the 3rd International Conference ``Computational Modeling and Simulation of Materials'' (2004).
10. R. Yamamoto,
Supercooled Liquids under Shear: Computational Approach, Computer Simulation Studies in Condensed Matter Physics XVII; Ed. D.P. Landau, S.P. Lewis, and H.B. Schuttler (Springer, Berlin, 2004).
11. K. Miyazaki, D.R. Reichman, and R. Yamamoto,
Supercooled Liquids under Shear: Theory and Simulation, Phys. Rev. E **70**, 011501 (2004).
12. R. Yamamoto, Y. Nakayama, and K. Kim,
A Smooth Interface Method for Simulating Liquid Crystal Colloidal Dispersions, J. Phys.: Condens. Matter **16**, S1945-S1955 (2004).
13. R. Yamamoto, K. Miyazaki, and D.R. Reichman,
Supercooled Liquids under Shear: Computational Approach, AIP Conference Proceedings **708**, 717-718 (2004).
14. K. Miyazaki, R. Yamamoto, and D.R. Reichman,
Supercooled Liquids under Shear: A Mode-Coupling Approach, AIP Conference Proceedings **708**, 635-638 (2004).
15. K. Kim and T. Munakata,
Glass transition of hard sphere systems—Molecular dynamics and density functional approaches, AIP Conference Proceedings **708**, 707-708 (2004).

受賞

1. 山本量一、「ソフトマターの分子動力学シミュレーション」、分子シミュレーション研究会学術賞 (2002年12月17日)

国際会議招待講演

1. R. Yamamoto,
“Strict Simulation of Motion of Colloidal Particles and Medium”
MRS 2006 Spring National Meeting
(April 17-21, 2006, San Francisco, USA)
2. R. Yamamoto,
“Smoothed profile method to simulate colloidal particles in complex fluids”
Pacifichem 2005,
(December 15-20, 2005, Honolulu, USA)
3. R. Yamamoto,
“Strict Simulations of Non-equilibrium Dynamics of Colloids”
The 14th Nisshin Engineering Particle Technology International Seminar (NEPTIS – 14) on Interactions of Colloidal Dispersions in Coating Process and Related Matters (December 4-6, 2005, Hakone, Japan)
4. R. Yamamoto
“Nonequilibrium dynamics of supercooled liquids”
Japan-France bilateral meeting on Recent advances in glassy physics
(September 26-29, 2005, Paris, France)
5. R. Yamamoto
“Strict and efficient simulation method for colloidal dispersions”
JST biorheo project 2nd Biorheo International Symposium 2005
(June 21-22, 2005, Tokyo, Japan)

6. Y. Nakayama,
"A Simulation Method to Resolve Hydrodynamic Interactions in Colloidal Dispersions"
The 1st International Workshop Hangzhou 2004 on Simulational Physics
(November 5–7, 2004, Hangzhou, China)
7. R. Yamamoto
"Supercooled Liquids under Shear: Computational Approach"
17th Annual Workshop on "Recent Developments in Computer Simulation Studies in Condensed Matter Physics"
(February 16 – 20, 2004, Athens, USA)
8. R. Yamamoto,
"A Smooth Interface Method for Simulating Particle Dispersions Interacting via Liquid–Crystal Solvents"
ESF Exploratory Workshop on Liquid Crystal Colloid Dispersions
(August 28–30, 2003, Bled, Slovenia)
9. R. Yamamoto,
"Slow Dynamics and Unusual Flow Behavior of Glassy Materials"
The 5th Annual Japanese–American Frontiers of Science (JAFoS), Co-organized by Japan Society for the Promotion of Science and U.S. National Academy of Sciences
(December 6–8, 2002, Irvine, USA)

研究課題別評価

1 研究課題名： 生物型飛行の力学シミュレータの構築

2 研究者氏名： 劉 浩

研究員： 稲田喜信（研究期間 H15.4.1 ～H17.3.31）

研究員： 王 浩（研究期間 H15.3.21～H17.10.31）

3 研究のねらい：

本研究は生物の羽ばたき飛行を厳密な幾何学、運動学及び力学のモデルに基づき、静止飛行、前進飛行及び急旋回のような自由飛行を計算機の中に再現できる力学シミュレータの構築を目指す。近年極限環境での応用が期待されているサイズ 15cm 以下の小型飛行体（MAV: Micro Air Vehicle）の研究開発が盛んに行われているため、生物学や力学、計算工学や生物模倣工学等を専攻とする多くの研究者が飛翔生物からその設計指針を見出そうと、昆虫や鳥の羽ばたき飛行の原理解明を急いでいる。しかしながら、これまで昆虫飛行メカニズムの研究は昆虫羽ばたきロボットを用い模型翼まわりの流れ場と模型翼に働く力を計測したりして行われている傾向にあるが、実際昆虫飛行とは本質的な違いがある。また生物飛行の特技とも言うべきである急旋回のようなアクロバットの自由飛行については殆ど研究されていないのが現状である。本研究では、生物の羽ばたき飛行の厳密な力学シミュレーションにより、生物の自由飛行をコンピュータの中に再現し、その力発生メカニズムと安定飛行のメカニズムを明らかにすることを最終目標としている。昆虫の形状及び内部構造データは、理化学研究所・情報基盤センターで開発された3次元内部構造顕微鏡装置を用いて高精度に自動的に取得する。昆虫の自由飛行運動は、双方向高速ビデオ撮影とレーザーによる光学的手法を用いて測定された羽の運動学モデルと第一原理に基づいた加減速と胴体姿勢を考慮したダイナミクスモデルを構築する。大規模なシミュレーションやデータ処理等は理化学研究所・情報基盤センターのスパコンを利用して行う。また、シミュレーション技術開発において、羽・胴体の複雑な幾何形状、羽の能動的羽ばたき運動や受動的な弾性変形、羽・胴体の姿勢、そして強い非定常渦流れを包括する大規模な連成問題への挑戦的な解法も目指す。このシミュレータにより、生物飛行に潜んでいる新しい力学現象や生物の自由飛行メカニズムを明らかにすると同時に、鳥や昆虫サイズの小型飛翔体のためのブレークスルーとなる設計指針の創出をも目指す。

4 研究成果：

さきがけの3年間の研究では、生物羽ばたき飛行の力学現象をより厳密に実現するために、生物の羽・胴体の幾何学モデリング・運動学モデリング・力学モデリングを基盤技術として研究・開発しながら、更に融合させた生物型飛行の力学シミュレータを構築することを最大な目標とした。本力学シミュレータは概ね予定通り完成できており、以下先ず関連の主な研究成果について、1)幾何学モデルの開発；2)運動学モデルの開発；3)力学モデルの開発の3項目に重点をおいて紹介する。

1)生物飛行の幾何学モデルの開発

生物の自由飛行を再現するため、羽・胴体の3次元形状だけでなく、慣性力や慣性モーメントの計算に必要な羽の厚みや翅脈分布などをも正確に計測できる手法を研究・開発してきた。便宜上昆虫(蛾)を対象に選んで飼育し理化学研究所・情報基盤センターの3次元内部構造顕微鏡装置を使用して蛾の羽・胴体及び内部構造のディジタイジング、2次元断層画像処理や自動輪郭抽出、リアリスティックな3次元幾何学形状モデリングや計算力学格子生成等の諸手法や技術を開発し更にルーチン化した幾何学モデル構築の工程を効率化したシステムを開発した(図1)。

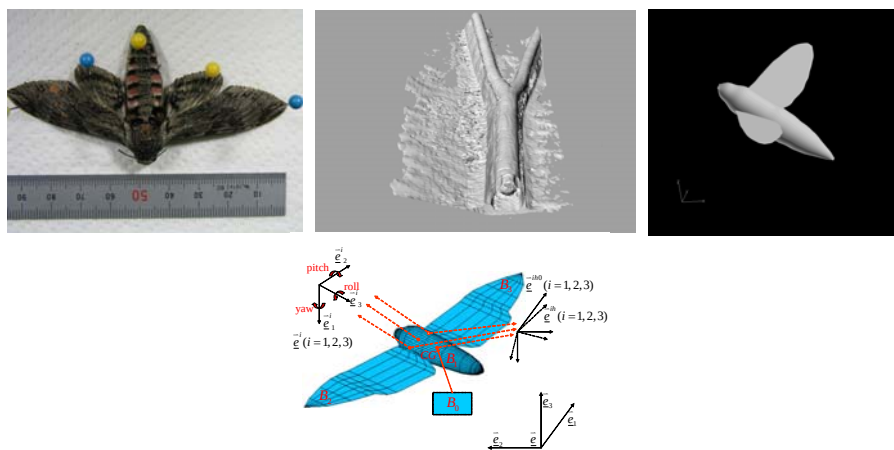


図1 蛾の形態、羽表面微細構造、計算力学格子及びダイナミクスモデル

2) 生物飛行の運動学モデルの開発

生物の運動学モデリングについては、昆虫や鳥の自由飛行時における羽ばたき運動や胴体の運動姿勢（ローリング、ピッチング、ヨーイング）を、第一原理に基づいたマルチボディ・ダイナミクス理論を用い運動量と角運動量の保存性を考慮した数値解析手法とプログラムを開発した。本手法の特徴は、昆虫や鳥の2枚羽と胴体を弾性変形可能なマルチボディとして取り扱えることにより、急旋回のような非対称な羽ばたき運動をする自由飛行を模擬することができる（図1）。

3) 生物飛行の力学モデルの開発

生物自由飛行時の羽の変形、胴体の姿勢や移動軌跡、非定常渦流れ等の相互作用を考慮した大規模な連成問題を取り扱う力学シミュレータを、マルチボディ・重合格子・有限体積法による流体解析ソルバーとダイナミクス解析ソルバーのカップリングにより構築し、生物自由飛行における流体力と慣性力の役割を定量的に評価できるシステムを開発した。数種類の昆虫（蛾、蠅、アザミウマ等）の羽・胴体マルチボディモデルを構築し、滑空飛行、静止飛行、前進飛行及び旋回飛行等に対して理化学研究所情報基盤センターのスパコンを利用し大規模な力学シミュレーションを行った（図2）。また昆虫羽の実形状を有し羽ばたきの3軸運動や胴体姿勢及び6分力計測を可能とする羽ばたきロボットを開発し、東京大学先端技術研究センターの大型風洞を用いた実測羽ばたき運動データによる実験を実施して本生物型の力学シミュレータの有効性を確かめた（図2）。

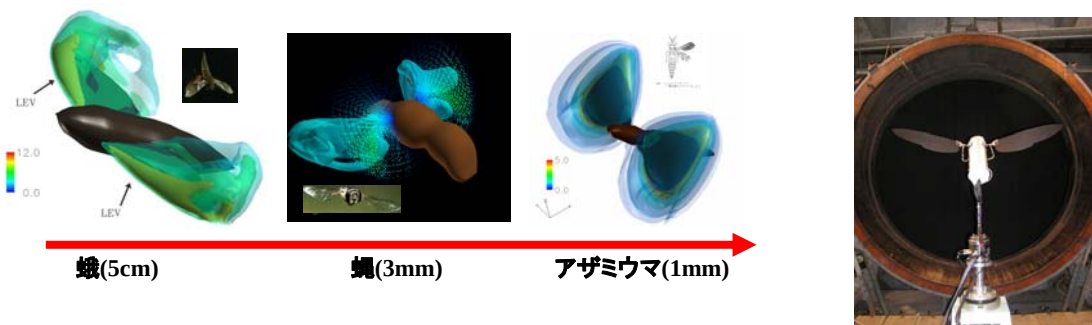


図2 蛾・蠅・アザミウマの静止飛行時の渦流れの様相と昆虫羽ばたきロボット

一方、これまで昆虫飛行の研究は昆虫羽の拡大模型を用いその周囲の流場と羽ばたく模型翼に働く力を計測・解析することに依存する所が多く、実際の昆虫飛行とは本質的な違いがあるため、昆虫自由飛行の研究が勿論のこと、静止飛行についても多くの謎が残されている。我々は本研究を通じて世界に先駆け生物の自由飛行を再現できる力学シミュレータ（図2）を構築したことによって、下記のように昆虫飛行における、ことに力発生のメカニズムに関して新しい知見や発見が得られた。

1) 昆虫飛行における非定常渦

サイズ5cm(蛾)から1mm(アザミウマ)に至る昆虫の羽ばたき飛行に対して高精細な胴体・羽モデルを用いた静止・前進飛行の力学シミュレーションを行い解析した結果、初めて羽ばたき翼間及び胴体との相互干渉を考慮した生物羽ばたき飛行における渦構造及び渦と力発生の相関を解明した。また昆虫は羽ばたき運動を利用し巧みに非定常渦(図2)を発生させ大きな揚力及び推力を発生できるメカニズムが大半昆虫サイズや形状に依存しないことを明らかにした。

2) 昆虫の羽ばたき飛行の限界

2枚羽の昆虫モデルを用いた静止・前進飛行の力学シミュレーションにより体長1mm 前後までは、羽・胴体の形態や羽ばたき運動とは関係なく、似たような力発生のメカニズムが働いていることと、1mm 以下となると力学的遷移領域が存在し、例えば1mm ぐらいの昆虫が膜翼にてすでに飛べなくなりその替わり毛翼が有効であることを明らかにした(図2)。

3) 羽ばたき飛行における空気力と慣性力

羽ばたき翼に見られる弾性変形や旋回時に発生する回転モーメント等が流体力によるものと考えられたが、本力学シミュレータを用いた解析では、昆虫飛行の世界ではサイズや運動等の諸条件によって慣性力と空気力が主役を争うことがあることを明らかにした。

4) 小型飛行体開発へのヒント

本力学シミュレータを利用した応用研究として、鳥や昆虫サイズの固定翼飛行体、回転翼を有するヘリ及び羽ばたき飛翔体の、それぞれの最適飛行の指針を見出すことを視野に入れながら大型昆虫(5cmの蛾)モデルを用いた羽ばたき翼と回転翼の空力性能の比較を施し、昆虫サイズにおいては羽ばたき翼がより優れた性能を有することを示唆する重要な結果を得た。

5 自己評価:

さがけ研究の3年間の研究では、昆虫や鳥の羽ばたき飛行を厳密な幾何学、運動学及び力学のモデルに基づき、静止飛行、前進飛行及び急旋回のような自由飛行を計算機の中に再現できる力学シミュレータの構築を最大な目標として研究開発を進めてきた。研究開始当時取り上げた問題点や数値目標などは、ほぼ計画通り解決、または完成できたと思う。本「生物型飛行の力学シミュレータの構築」のための新しい手法や基盤技術として、1)生物の内部構造や形状のディジタイジング、断層画像処理や形状輪郭抽出、3次元形状モデリングや計算力学用の格子生成を包括できる幾何学モデリングと、羽ばたき翼の能動的運動や受動的変形を一般化された数理モデルで再現できる運動学モデルを融合させ一体化した幾何学・運動学モデリングシステム; 2)羽ばたき翼と胴体の運動姿勢をマルチボディ・ダイナミクス理論による解析する新しい計算手法と、低レイノルズ数における特異な大規模渦流れを精度良く解析できる流体ソルバー、4枚又は多数羽を有する飛行体まで簡単に拡張できるマルチボディ・適合オーバーセット格子を基にした計算モデル、将来構造—流体解析を見込んだ羽・胴体の計算格子トポロジーや移動境界に伴う効率的に格子再生技術などを統合した流体力学モデルを連成させた統合力学モデリングシステムなどが完成できたことにより、更に計算システムのベクトル化や並列化などを行えば地球シミュレータを使用しより効率的に超大規模なシミュレーションを施す基盤ができていると思う。現在研究室レベルのワークステーションと理化学研究所情報基盤センターのソパコンを併用したシミュレーションにより特定の生物飛行に対して力発生原理に関わる現象解明を進めているが、今後例えば鳥から昆虫までの広範囲の生物飛行にわたり、飛翔生物の厳密な幾何学モデル、運動学モデル及び力学モデルと、静止飛行、前進飛行及び急旋回のような自由飛行における力学特性や安定飛行特性を統括できる、いわゆる生物飛行のバイオフィオマティクス・データベースの構築まで発展させていく研究を進めていきたい。これにより生物飛行に潜んでいる普遍的なメカニズムや最適原理の多様性乃至進化の過程などの、生物学や動物行動学、力学や工学などの幅広い分野において新しい知見や発見をできるのではないかと期待している。

近年盛んに行われている、サイズ15cm以下、総重量50g以下の小型無人飛翔体(MAV: Micro Air Vehicle; つい最近米国ではNAV: Nano Air Vehicleという超小型次世代飛翔体の構想が公表された)の研究では、ものづくりが先行しており、いわゆる低レイノルズ数領域($Re=10-10^4$)における空気力学や飛行制御の理論などが殆ど確立されていない。昆虫や鳥をも含めた小型飛翔体に関

する空力性能の研究では、大型飛行機の場合と相当異なり、強い非定常性を示す渦流れが如何に効率よく揚力を発生できるかと、外乱を受けたときの安定飛行を如何に実現できるか、という2つ大きな問題が存在しており、未だに解明されていないままである。とくに小型飛翔体の安定性・操縦性に関する研究は世界的に見ても殆ど例が無く、すでに確立されている高レイノルズ数領域 ($Re > 10^6$) におけるジャンボ機の空力理論やPID飛行制御と全く違う理論の構築が期待されている。さらに昆虫のような毎秒20回から数百回に至るまで高速羽ばたきする飛行になると、新しい理論体系やパラダイムを構築しない限り、解明が困難であろうと思われる。今後超小型飛翔体の“ダウンサイジングと共に低下する飛行安定性能や操縦性能”という大きな問題の解明及び設計指針の創出を目指して、生物羽ばたき飛行の安定性・操縦性の研究に本生物型飛行の力学シミュレータを適応し、昆虫型飛翔体の空力特性や安定飛行制御を定量的に評価できるプロトタイプモデルの構築及び新しいパラダイムや理論の体系化の研究をも積極的に進めていきたい。

本研究はポストドク型で2名の研究員をそれぞれおよそ3年間雇用し研究の推進を図った。本研究プロジェクトの関わる専門分野はシミュレーション以外にも生物学や工学などが数多く存在し他分野の研究者を入れたことにより幅のある(昆虫羽ばたきロボットや昆虫飼育など)研究ができたと思う。最後に3年間のさがけ研究による多大な支援に感謝するとともに、今後も本研究で築いた基盤を基に更に研究を発展させていきたいと考えている。

6 研究総括の見解:

劉研究者は生物の羽ばたき飛行を厳密な幾何学、運動学および力学のモデルに基づき、静止飛行、前進飛行および急旋回のような自由飛行をコンピュータの中に再現できるシミュレータを構築した。その結果、生物の羽ばたき飛行における力の発生メカニズムが明らかになり、特に昆虫飛行時の力の発生メカニズムに関わる前縁渦の効果、回転効果、および後流捕獲など、生物飛行に潜んでいるまったく斬新な力学現象や生物の自由飛行メカニズムの解明がはじめて可能となった。今後、鳥や昆虫サイズのマイクロ飛翔体の開発等に、画期的な設計方針を提供できることが大いに期待される。

7 主な論文等:

「ジャーナル論文」(代表的な5件)

- 1) H. Liu, Simulation-based biological fluid dynamics in animal locomotion, *ASME Applied Mechanics Reviews*, **58**, 269–282, 2005.
- 2) D. Viiaru, J. Tang, Y. S. Lian, H. Liu, and W. Shyy, Flapping and Flexible Wing Aerodynamics of Low Reynolds Number Flight Vehicles, *AIAA Paper 2006-0503*.
- 3) H. Wang, Y. Inada, and H. Liu, Dynamics and inertia forces in the maneuverability of insect flight, *JSME International, Series C Bioengineering*, **47**, 499–512, 2005.
- 4) H. Liu, Computational biological fluid dynamics: digitizing and visualizing swimming and flying, Special issue on Dynamics and Energetics of Animal Swimming and Flying, *Integrative and Comparative biology (American Zoologist)*, **42** (5), pp. 42–51, 2003.
- 5) H. Wang, L. J. Zeng, H. Liu, and C.Y. Jin, Measuring the body position, attitude and wing deformation of a free-flight dragonfly by combining a comb fringe pattern with sign points on the wing, *Journal of Experimental Biology*, **206**, 745–757, 2003.

「招待講演」(代表的な5件)

- 1) H. Liu, An integrated approach on free flight mechanisms in insects and birds, *Proc. Annual meeting of American Physical Society*, Chicago, USA, 2005.11.
- 2) H. Liu, Novel mechanisms in biological flight and applications to Micro Air Vehicle, *Proc. Smart Material System, JSME annual meeting*, Tokyo, 2005.9. (keynote)
- 3) H. Liu, Recent developments in computational biological fluid dynamics, *Proc. Annual Meeting of the Society for Experimental Biology*, Edinburgh, UK, 2004.4. (keynote)
- 4) H. Liu, Simulation-based biological fluid dynamics in fish swimming, *Proc. 7th International Conference on*

Vertebrate Morphology, Florida, USA, 2004.7.

5) H. Liu, Computational Biological Fluid Dynamics: towards the digitizing animal swimming and flying, *Proc. The Second International Symposium on Aqua Bio-Mechanisms (ISABMEC2003)*, 2003. (**keynote**)