

計算機実験

固体・液体における大型計算の現状と問題点

金沢大・理 樋渡保秋

§ 1. はじめに

計算機の発達により、解析的に解けない問題（ほとんどの場合がそうである）に対しても近似なしに計算が実行できるようになり、種々の分野で計算機が活用されるようになってきた。多粒子系の粒子間相互作用をきめ、このモデル物質の物性を計算機によって厳密に求める。これを計算機実験（Computer Experiment）、あるいは計算機シミュレーション（Computer Simulation）という。これは又別の立場から、Computer Modeling of Matterといっても良い。この方法は、計算される系の粒子（分子、原子）数が有限であることを除けば、与えられた相互作用の系に対して全く近似のない結果を与えるので、近似理論の良否を調べることもできる。又計算機実験で得られた結果が、しばしば常識的な予想と異なり、これらが物理現象の本質をさぐる手掛りを与える事にもなる訳である。

計算機実験は、研究手段として、理論、実験的アプローチに加えて、いわば第3の手段として考えられてきている。これらの異った研究手段は互に相補的に重要な役割を果たしてきた事はいう迄もない。

さて、計算機実験の利点を要約すると以下のようなになる。

(1)与えられた相互作用をもつモデル物質の物性的諸性質が正確に分る。従ってこれらの結果と実験とを直接比較することから、現実の物質の相互作用に関する知見を得ることができる。

(2)従来の近似理論では扱えないような、系のミクロな性質に関する繊細な情報が得られる。例えばある物理量に対して相互作用のどの部分が主として効いているかなど。

(3)(1)と関連して、近似理論の検討、ひいてはその改良の手助けとなる。

(4)現実の物質に不可避な欠陥、不純物、余分な相互作用を除去したいわば理想的な条件下での物質の性質を知り得る。

(5)実験室では行えないような高温、高圧等の極限状態の物性を知り得る、などである。この他にも、計算機実験は実験に比して価格がはるかに低い等といった事などもあげられよう。

計算機は、 10^8 倍程度の倍率をもった顕微鏡の特性と、時間の進みを 10^{-13} 程度にゆっくりさせるスローモーションカメラの特性とを合わせて持つ高精能の装置であるといっても良く、計算機実験は、この文明の利器を最大に利用しているものの一つであろう。計算機実験の歴史は、

電子計算機の発展と共に歩んできた事はいう迄もなからう。電子計算機の歴史は、素子の開発段階に応じて、第1世代(1951~1960, 真空管), 第2世代(1960~1965, トランジスタ), 第3世代(1965~1971, IC), 第3.5世代(1971~現在, LSI)という風に分けられ、現在は既に第4世代(VLSI)の入口の時代にさしかかっているともいわれている。計算機実験は既に第1世代の始め頃から現われ、古典液体論の研究が精力的に行われてきた。古典液体論の研究は、古くはVan der Waalsの理論に始まり、Kirkwoodを中心とする理論的研究が行われたが、いずれも密度の低い領域でしか適用されないものであり、固-液相転移等を正しく取り扱う事は出来なかった。これらは、液体の問題のむづかしさを物語っているものである。計算機実験による古典液体論の研究は、Metropolis, Rosenbluth(1953, 1954)によるモンテカルロ法による剛体球系の状態方程式の計算に始まり、Alder, Wainwright(1957), およびWood, Jacobson(1957)らによる剛体球系の分子動力学、モンテカルロ計算を継ぎ、今日に至る迄多くの計算が行われてきた。これらの結果として、短距離斥力形の分子間相互作用の系の固・液相転移の性質が解明されるに至った。一方Fermiら(1955)は1次元の非線型格子の分子動力学による計算機実験を行い、今日のソリトン研究の足場を築いた。これらの計算機実験の結果は、常識的な予想と全く違う新しい現象を発見し、その後の物理学の発展に大きく寄与したことは特筆すべきであろう。尚ここでは問題を古典液体及び関連する分野に限定し、ソリトンの研究には触れない。又連続体モデルでないものも対象外とした。

§ 2. 分子動力学法とモンテカルロ法

多粒子系の運動状態を計算機によってシミュレートする方法は、各粒子の運動方程式を積分して時間発展を求めていく「分子動力学(Molecular Dynamics)法」と乱数を用いて粒子配置が平衡統計力学で要請される分布(カノニカル分布など)に従うように行う「モンテカルロ(Monte Carlo)法」とがある。モンテカルロ法によって求められるものは、平衡状態の性質に限られ、一方分子動力学法では、平衡状態の量ばかりでなく、拡散係数など輸送係数、時間を含む相関関数など非平衡状態の物性迄も扱う事ができる。これらの計算方法の概略を以下のべよう。

2・1 分子動力学法とは

粒子間相互作用が中心力2体ポテンシャル $\phi(r)$ で与えられる同一粒子(N 個)から成る古典系を考える。系の全ポテンシャルエネルギーを Φ とすると、周期境界条件を考慮し、又、 N 個の粒子は1辺が L の立方体にあるとして(実箱),

樋渡保秋

$$\Phi = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N \sum_{\vec{n}} \phi(\eta_{i,j} \vec{n}) \quad (2.1)$$

$$(j \neq i \text{ if } \vec{n} = \mathbf{0})$$

$$\eta_{i,j} \vec{n} = |\vec{r}_i - L \vec{n} - \vec{r}_j| \quad (2.2)$$

とかくことができる。ここで \vec{n} は実箱の周期性をあらわす ($\vec{n} = \vec{0}$ が実箱)。

従って、 i 番目の粒子に働く力 \vec{F}_i は、

$$\vec{F}_i = - \sum_{j=1}^N \nabla_i \phi(\eta_{i,j} \vec{n}) \quad (2.3)$$

$$(j \neq i \text{ if } \vec{n} = \mathbf{0})$$

で与えられる。但し $\nabla_i = \frac{\partial}{\partial x_i} \vec{i} + \frac{\partial}{\partial y_i} \vec{j} + \frac{\partial}{\partial z_i} \vec{k}$ ($\vec{i}, \vec{j}, \vec{k}$ は x, y, z 方向の単位ベクトル)。

位相空間における粒子の軌跡はニュートンの運動方程式を解いて得られる。

時刻 t における粒子の座標を $\vec{r}_i(t)$ ($i = 1, 2, \dots, N$)、速度を $\vec{v}_i(t)$ としよう。時刻 t_+ ($\equiv t + \Delta t$)、 t_- ($t - \Delta t$) における粒子の座標 $\vec{r}_i(t_{\pm})$ は、これを $t = t$ のまわりでテーラー展開して、それぞれ (Δt) の 2 次迄とると、

$$\vec{r}_i(t_{\pm}) = \vec{r}_i(t) \pm \frac{d\vec{r}_i(t)}{dt} \Delta t + \frac{1}{2} \frac{d^2\vec{r}_i(t)}{dt^2} (\Delta t)^2 \quad (2.4)$$

となる。従って、両式の和と差を作り、

$$\vec{r}_i(t_+) + \vec{r}_i(t_-) = 2\vec{r}_i(t) + \frac{d^2\vec{r}_i(t)}{dt^2} (\Delta t)^2, \quad (2.5)$$

$$\vec{r}_i(t_+) - \vec{r}_i(t_-) = 2 \frac{d\vec{r}_i(t)}{dt} (\Delta t) \quad (2.6)$$

を得る。 $\frac{d\vec{r}_i(t)}{dt} = \vec{v}_i(t)$, $\frac{d^2\vec{r}_i(t)}{dt^2} = \frac{\vec{F}_i(t)}{m} \equiv \vec{a}_i(t)$ であるから、上式から、

$$\vec{r}_i(t_+) = 2\vec{r}_i(t) - \vec{r}_i(t_-) + \vec{a}_i(t) (\Delta t)^2 \quad (2.7)$$

$$\vec{v}_i(t) = [\vec{r}_i(t_+) - \vec{r}_i(t_-)] / (2\Delta t) \quad (2.8)$$

を得る。(2.7) 式から、時刻 $t + \Delta t$ における粒子の座標は、それ以前の時刻 t 、および $t - \Delta t$ の座標によって完全に決まることが分る。尚、加速度 $\vec{a}_i(t)$ は $\vec{r}_i(t)$ ($i = 1, 2, \dots, N$) の関数である事に注意したい。従って、初期値 $\{\vec{r}_i(0)\}$ 、および $\{\vec{v}_i(0)\}$ を与えれば、(2.7)

(2.8) 式より、任意の時刻 $t = n(\Delta t)$ ($n = 1, 2, \dots$) の座標と速度が求まる。尚初期条件と

して $\sum_{i=1}^N m \vec{v}_i(0) = 0$ ととる。体系の温度 T は

$$T = \frac{1}{3Nk_B} \sum_{i=1}^N m |\vec{v}_i|^2 \quad (2.9)$$

を用いて求められる。通常のシミュレーションではマイクロカノニカルな体系がとられ、このとき、系の体積 V 、粒子数 N 、全運動量 $\sum_{i=1}^N m \vec{v}_i$ 、全エネルギーが保存する。

明らかに L は $N^{1/3}$ に比例する。1辺が L の立方体のシミュレーションから得られる正しい情報は相関距離がおおよそ $L/2$ 位迄のところに限られる。従って N を大きくするとより多くの情報が得られる事は明らかである。又 N を大きくすると統計精度も増す。しかしながら、(2.1) ~ (2.3) 式から分るように、相互作用の計算に必要な時間は、単純なやり方だと N^2 に比例して長くなる。短距離相互作用の場合、 N が大きい計算では、時間 (cpu) を短くする為 bookkeeping 法という方法がとられる。これを用いると、 N が増えても cpu が N^2 に比例して長くなるということはない。勿論 N^1 以上の割合で長くなることはいう迄でなからう。

差分式 (2.7)、(2.8) 式にある時間メッシュ Δt は、小さい程よい精度の結果が得られるが、物理時間が短くなるので、全エネルギーの保存がどの精度で成り立つかを見極めて適当な大きさにとる事になる。

2・2 モンテカルロ法とは

モンテカルロ法の計算は平衡状態の物理量 (熱力学量) に限定されるが、次のような長所もっている。

- (1) 粒子に働く力の計算を必要としないので、ニュートンの運動方程式のようなものを必要としない。従って力学法則が未定義な問題のシミュレーションも可能となる。
- (2) カノニカル集団 (温度が一定) のシミュレーションが容易に行える。
- (3) 多体力等複雑な相互作用の系にも比較的容易に拡張できる。

さて、カノニカル集団 (体積 V 、粒子数 N 、温度 T) のモンテカルロ法について簡単にのべよう。 N 粒子をそれぞれ $\vec{r}^N = (\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_N)$ という位置にみつける確率を $P(\vec{r}^N, V, T)$ とすると、

$$P(\vec{r}^N, V, T) = \exp(-\beta\Phi) / N! Q_N \quad (2.10)$$

$$Q_N = \frac{1}{N!} \int_V d\vec{r}^N \exp(-\beta\Phi) \quad (2.11)$$

である。但し $\beta = 1/k_B T$ 。従って、物理量 $F(\vec{r}^N)$ の平均値は、

$$\langle F \rangle = \int_V d\vec{r}^N F(\vec{r}^N) P(\vec{r}^N, V, T) \quad (2.12)$$

で与えられる。(2.10) ~ (2.12) 式はいずれも厳密な式である。(2.12) 式をモンテカルロ法

を用いて計算する方法を以下に簡単にのべよう。

時刻 t における系の状態を $\vec{r}^N(t)$ と記する。 N 個の粒子の 1 つ (例えば j 番目の粒子) を選び \vec{r}_j からランダムに $\Delta\vec{r}_j$ だけ変位させ、この状態を $\vec{r}'^N(t) = (\vec{r}_1, \vec{r}_2, \dots, \vec{r}_j + \Delta\vec{r}_j, \dots, \vec{r}_N)$ と記す。 $\vec{r}^N(t) \rightarrow \vec{r}'^N$ に伴うポテンシャルエネルギーの変化量を $\Delta E = E(\{\vec{r}'^N\}) - E(\{\vec{r}^N\})$ とし、(1)もし $\Delta E < 0$ であれば $\vec{r}'^N(t)$ を次のステップ (時刻) の状態 $\vec{r}^N(t+1)$ として採用する。(2)もし $\Delta E > 0$ であれば、 $p = \exp(-\beta\Delta E)$ を計算し、一様乱数 ζ ($0 \leq \zeta \leq 1$) と比較し、 $p > \zeta$ なら(1)と同じであるが、 $p < \zeta$ なら $\vec{r}'^N(t)$ は採用せず、元の状態 $\vec{r}^N(t)$ を $\vec{r}^N(t+1)$ として採用する。この操作をくり返していく事から、 $\vec{r}^N(0), \vec{r}^N(1), \dots, \vec{r}^N(n) \dots$ の鎖 (マルコフ鎖) が得られる。モンテカルロ法の計算では、時間のユニットが定まらない。ここでは便宜上 $t = 0, 1, 2, \dots, n, \dots$ とした。(2.12) 式の値はステップについての平均値でおきかえ、

$$\langle F \rangle = \sum_{i=m}^n F(\vec{r}^N(i)) / (n - m + 1) \quad (2.13)$$

から求める。尚 n, m は適当なステップで、 $n > m$ とする。ランダムな変位 $\Delta\vec{r}_j$ は出来るだけ微少な変位をとる事が望ましい (連続体モデル)。例えば $\Delta\vec{r}_j = \delta(1 - 2\xi)$ ととる。尚 $\xi = (\xi_1, \xi_2, \xi_3)$ で ξ_i ($i = 1, 2, 3$) は一様乱数、 δ は正の定数であって、変位の最大巾を与える。

§ 3. 国内・外における大型計算の現状

計算機実験は有限な粒子系について計算する訳であるから、統計上の理由や、表面 (周期境界条件) の影響をできる限り小さくするには、粒子数を大きくとる事が望ましい。一方、粒子数を大きくすれば当然計算時間 (cpu) が長くなり、コストがかかる。利用出来る計算機資源に限られていて、1つの研究テーマに可能なcpuは最大数+時間~100時間程度に制約されているのが現状であろう。このような事情を考慮して、効率的な計算機使用を考えなければならない。シミュレーションの1ステップに要するcpu (秒) と何ステップ計算するかが重要な因子となる。前者の値を m 秒、後者の値を n ステップとすると、今仮りに、利用できる計算機のcpuが最大~30時間だと仮定すれば、この計算機資源を用いて可能なシミュレーションの回数は、

$$\frac{30 \times 3600 \text{ sec}}{n \times m \text{ sec}} \quad (\text{回}) \quad (3.1)$$

となる。温度、圧力 (又は密度) を変えた時の物性の変化を調べる研究では、この値は少なくとも10回位は要するので、 $n \times m \sim 10^4$ という値となる。従って、 $n = 10,000$ ステップととれ

ば、 $m \sim 1$ (sec)ということになるし、 $n = 5,000$ ステップととれば、 $m \sim 2$ (sec)という事になろう。これらは、現在の計算機事情を考慮した場合の大型計算の実際上の制約の目安を与えるものである。

限られた計算機資源で、 n を大きくするか、それとも m (従って粒子数 N)を大きくするか、大きく分けてこの2通りのやり方がある。前者は、時間相関等の計算に向いている反面、体系が小さい理由により、位置の長距離相関の計算や、体系内部に生ずる大きなゆらぎの考察には不利である。 m (従って N)を大きくとった場合の事情はこれと相補的な関係にある。つまり、時間相関等の計算には不利だが、長距離位置相関等の計算に向いているといえよう。

問題は、 n と m の両方を大きくしなければならない場合である。相転移近傍、相平衡 (二相共存) 等の問題がこれにあてはまる。相転移近傍では一般にゆらぎが大きくなる。又時間変化が複雑で、相平衡を得るのに、転移点から離れた場合に比べて非常に長い時間かかる。従って、粒子数 N をかなり大きくとり、長時間計算を余儀なくされる事になる。他の問題は、クーロン相互作用のような長距離相互作用の場合である。この場合、計算時間は短距離相互作用に比してかなり長くなる。従って、イオン系の計算機実験では粒子数をさ程大きくする事は出来ない。

表1に、最近行われた計算機実験で、大型計算といえるもの (目安として $n \cdot m \geq 10^4$)をあげた。勿論これが全てという訳でない。他にも、例えばJ.P. Hansen (仏) のグループによる一成分・二成分プラズマの分子動力学による計算等がある。彼等の計算では、 $N = 250$ の粒子

Table 1

Table I. Large scale computations in statistical physics since 1975, in which n (steps in single run) $\cdot m$ (CPU in seconds per step) $\geq 10^4$.

Ref.no.	Subject	Model	Computer	Nation	Year	Notes
(1)	Melting & Boiling	Coulombic		UK	1975	$N=1024,6400$; 2-D KCl
(2)	Lambda transition	Coulombic	IBM370/195	UK,USA	1975	$N=10000$; 2-D classical electrons; $m=6.7$
(3)	Solid-liquid interface	Soft core		UK	1978	$N=1920$;
(4)	Solid-liquid interface	Soft core	M200	JAP	1981	$N=1600$; $n=7800$; $m=2.1$
(5)	Melting & Glass transformation	Coulombic	IBM360/195	UK	1978	$N=512$; $m=1.2$; KCl
(6)	Glass transition	Soft core	IBM370/165	UK	1979	$N=4000$;
(7)	Melting	LJ, SC		NL,UK	1980	$N=2688,3200$; 2-D
(8)	α -AgI	Coulombic		USA	1978	$N=256$
(9)	Superionic CaF_2	Coulombic	M190,M200	JAP	1980	$N=96,324$;
(10)	Superionic SrCl_2	Coulombic		UK	1979	$N=324$;
(11)	α -AgI	Coulombic	M200	JAP	1981 1982	$N=108,256$; $n=5000$; $m=5.46$

Remarks: N =number of particles

系で $10^4 \sim 10^5$ ステップの計算が行われている(文献12参照)。表1では、主として固-液相転移、超イオン導電体の分子動力学の文献を中心にあげた。

(1), (2), (5)のクーロン系の計算は、いわゆる particle - particle / particle - Mesh法といわれる計算法を用い、荷電子場におけるポアソンの方程式を数値的に解く方法によっている。一方、(8)~(11)のクーロン系では、Ewald法による計算法を用いている。前者の方法は、空間を細かいグリッド(点)の集合として考え、各点の静電ポテンシャルをポアソンの方程式を用いて計算するが、この方法ではグリッドの細かさによって結果の精度が決まり、計算機の主記憶(メモリー)の大きさの制約から、粒子数を大きくした場合の3次元の計算は今の所行われていない。(2)の10,000粒子系は、筆者の知る限り最も大きい粒子系である。この分子動力学から、定積比熱 C_V の臨界指数 α を求めている。よく知られているように、 α は $C_V \sim |\epsilon|^{-\alpha}$; $\epsilon \equiv (T - T_t) / T_t$ で定義され、 λ -転移点 T_t における臨界現象をあらわす基本量の一つである。これ位粒子数が大きいと、表面(周期境界条件)の影響がかなり小さくなり、domainの大きさや、構造等もはっきりする。又2体分布関数 $g(\eta)$ の η のかなり大きい所迄の情報を得ることができ、これをフーリエ変換して得られる $S(k)$ の k の小さい所もかなり精度良く求まる。図1に計算結果の一例を示す。尚 $T_t = 3.1\text{K}$ である。 T_t に近づくにつれ、微結晶domainの大きさがだんだん小さくなっていくのが分る。

(3), (4)はソフトコアモデルの固相-液相共存(界面)の計算である。これらは、相平衡点を直接分子動力学法で求める事を試みたものである。従来は、固相、液相のギブス自由エネルギーを別々に計算し、これらを等置する事から相平衡点を求めていた。このような間接的な方法ではなく、直接相平衡点を求めると共に、固・液界面の物性を

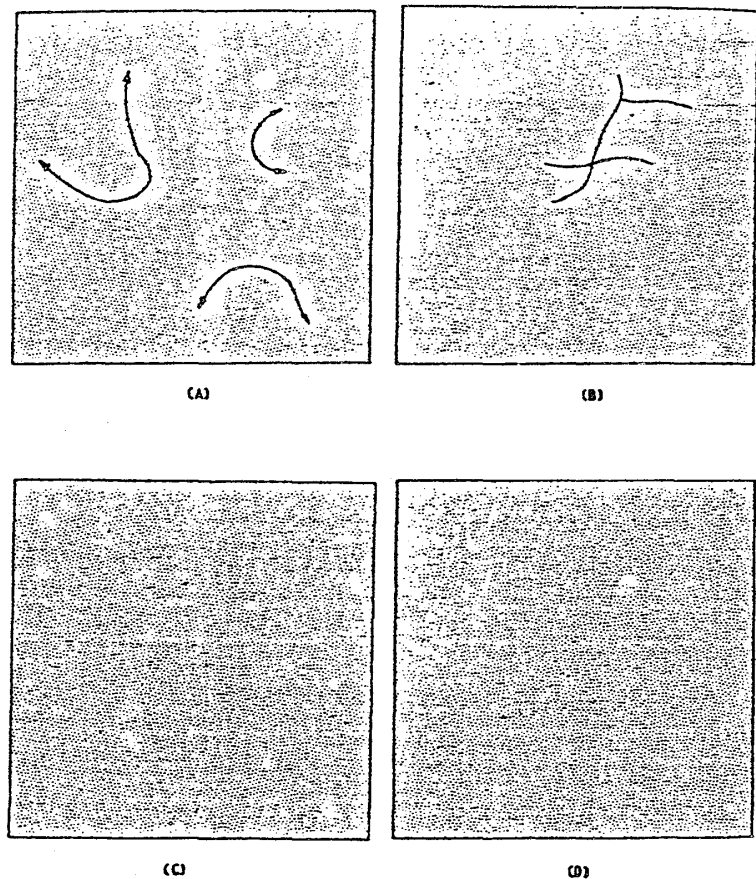


Fig. 1 Loss of long-range structure when passing through the lambda transition. Density: 10^{19} electrons/cm³. The full curves trace out some of the domain boundaries. (A): 0.65 K; (B) 1.90 K; (C) 2.81 K; (D) 3.30 K.

Fig. 1

知る方法としてこれらの研究は重要である。更に(4)では、平衡温度から少し下げた時に界面がどう移動していくか、つまり結晶化速度に関する考察も行っている。図2に、平衡温度における密度プロファイルを示す。これらの実験から、二相共存の分子動力学が一応可能となった。

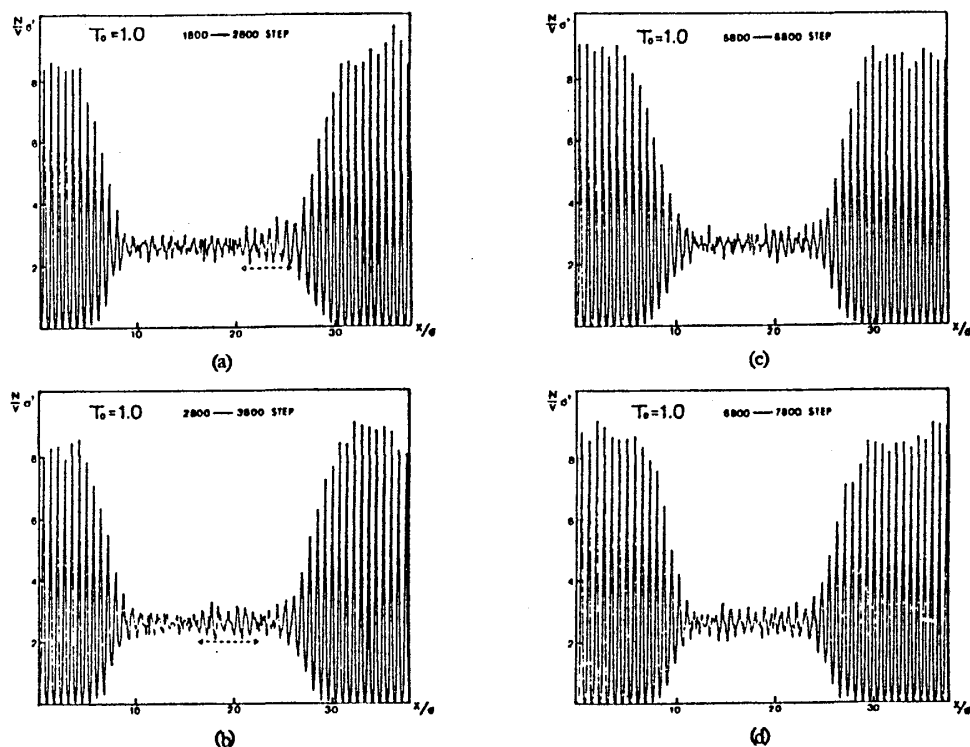


Fig. 2 Density profiles are shown for the run $T_0=1.0$. Time intervals over which averages were taken are (a) 1802-2800, (b) 2802-3800, (c) 5802-6800 and (d) 6802-7800 time steps.

Fig. 2

Table II

Time step	ρ_s^*	ρ_l^*	P_s	P_L
1800~2800	1.212	1.151	23.239	22.737
2800~3800	1.210	1.150	23.153	22.417
3800~4800	1.197	1.147	22.292	22.310
4800~5800	1.199	1.149	22.397	22.216
5800~6800	1.217	1.144	22.635	21.673
6800~7800	1.216	1.152	22.521	22.244

ref. no.	ρ_s^*	ρ_l^*	\bar{P}	r_c
(13)	1.194 ± 0.008	1.150 ± 0.008	22.6 ± 0.5	1.5σ
(14)	1.194 ± 0.003	1.151 ± 0.003	22.6 ± 0.2	1.5σ
(3)	1.190 ± 0.005	1.157 ± 0.008	22.8 ± 0.6	1.5σ
(15)	1.217	1.173	24.21	4.0σ
(4)	4800~7800	1.211	1.148	S: 22.518
				L: 22.044
(4)	1800~7800	1.2085	1.149	S: 22.706
				L: 22.266

Remarks: Soft core potential $\phi(r) = \epsilon(\sigma/r)^{12}$; $\rho^* = \rho(\epsilon/k_B T)^{1/4}$,
 ρ being number density in unit of σ^3 ; \bar{P} is reduced pressure;
 suffixes S and L denote solid- and liquid-phases, respectively;
 r_c being the interaction range.

しかし、界面がやや不安定であったり、相平衡点の値の精度にも若干問題が残っている。(表2参照)。(4)の分子動力学は粒子数 $N = 1600$ について、平衡温度については、7800ステップの計算が行われている。これだけに必要なcpuは約5時間である(FACOM M-200)。このような実験では、平衡状態を得るのにかなり長いステップの計算が必要である。

(6)は、過冷液体-非晶固体間のいわゆるガラス転移を考察したもので、 $N = 4000$ というかなり大きな粒子数を用いている。この実験で、ソフトコアモデルのガラス転移近傍での比熱の異常性が初めて求められた。小数粒子系($N = 256$)の実験からは比熱の異常性をみつける事は困難であった。比熱はエネルギーのゆらぎに関連した量であり、系の大きさに敏感な量であると考えられる。粒子数を大きくした場合の長所の1つとして、熱力学量の値が比較的小数のステップの粒子配置を用いて(平均値)も精度良い値が得られるので、緩和過程(ガラスは非平衡状態)を問題にするのに都合が良い。

(7)は、(3)、(4)と関連した問題があるが、2次元の融解を扱ったものである。Lennard-Jones(L-J)系の融解・凝固を $N = 2688$ の粒子数を用いて分子動力学を行っている。この実験から、2次元L-J系の固相-液相相平衡(共存)が得られていて、等温曲線(圧力 vs. 密度)の折れ曲がりが見られている(図3参照)。いわゆるVan der Waalsループ(S字型曲線)は存在しないと結論している。これは2次元系の特殊性と考えられるが、注目すべき事に、小数粒子系の実験の結果ではS字型曲線がおこる。従ってこのような結論は粒子数を大きくして初めて得られる貴重な結果である。図3にもあるように、相平衡状態では平衡に達するのにかなり長い時間要することが分る。これは、(4)の所でも触れたように、ゆらぎの成長の問題と関連し、物理現象として興味のある事である。3次元で同じような分子動力学を行うには、単純に粒子数を2次元の場合の3/2乗倍して見積るとおよそ14万

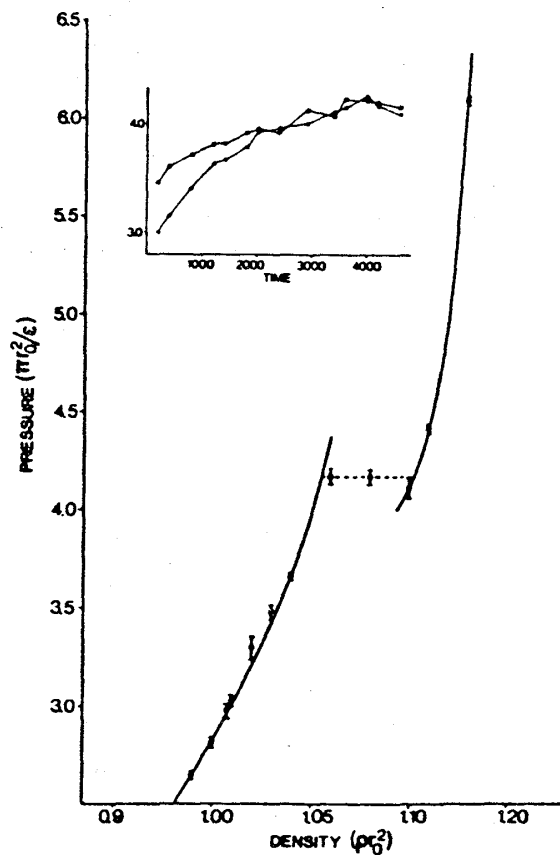


FIG. 3. Molecular dynamics results for the equilibrium pressure of the 2-D Lennard-Jones model along the isotherm $T = 0.8 \epsilon/k$; the inset shows the nonequilibrium pressure as a function of the number of MD time steps for the two points $\rho r_0^2 = 1.06$ (solid circles) and 1.08 (open circles) which rest on the two-phase coexistence tie line following instantaneous expansion from $\rho r_0^2 = 1.08$ and 1.10 , respectively.

Fig. 3

個となる。これでは現在の最高速度計算機を用いても実施は極めて困難であろう。しかしながら、この数年内に、我が国の計算機事情も、ベクタープロセッサ機能を中心に処理能力がかなり向上する事が期待されているので、近い内にこうした粒子系の大型計算も可能となるかも知れない。

(8)~(11)はいわゆる超イオン導電体といわれる、ある種のイオン結晶に関する計算機実験である。(9)はモンテカルロ法による計算で、これ以外は全て分子動力学法による計算である。これらの計算では、クーロンエネルギーの計算はEwald法を用いている。Ewaldの方法を用いると、クーロンエネルギーは次のようにかくことができる。

$$V^c = V_1^c + V_2^c + V_3^c \quad , \quad (3.2)$$

$$V_1^c = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N z_i z_j \sum_{\vec{n}} \frac{\text{erfc}(\alpha \eta_{i,j} \vec{n})}{\eta_{i,j} \vec{n}} \quad , \quad (3.3)$$

($j \neq i$ if $\vec{n} = 0$)

$$V_2^c = - \sum_{i=1}^N z_i^2 \alpha \pi^{-1/2} \quad , \quad (3.4)$$

$$V_3^c = \frac{1}{2\pi L} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N z_i z_j \sum_{\vec{h} \neq 0} \frac{\exp\left(-\frac{\pi^2 |\vec{h}|^2}{\alpha^2 L^2}\right)}{|\vec{h}|^2} \times \cos\left(\frac{2\pi}{L} \vec{h} \cdot \vec{r}_{ij}\right) \quad . \quad (3.5)$$

$\eta_{i,j} \vec{n}$ は (2.2) 式で与えられる。 z は電荷の大きさをあらわす。 $\frac{2\pi}{L} \vec{h}$ は逆格子ベクトルをあらわす。計算機実験では、実箱 ($\vec{n} = 0$ に相当) が単位胞に相当する。(3.3)~(3.5) 式のパラメーター α は、Ewald法で導入されたパラメーターで、長さの逆数の次元をもつので、 αL をパラメーターと考えた方が便利である。この αL のとり方によって、(3.3) 式の $\sum_{\vec{n}}$ と (3.5) 式の $\sum_{\vec{h}}$ の収束の仕方が異ってくる。全体として最も計算時間が短くてすむように適当なパラメーターの値を定める。よく用いられる方法は (3.3) の \vec{n} は各 (i, j) の組について1つですみ ($\vec{n} = 0$ を含めて)、(3.5) の \vec{h} の和はかなり大きい所、例えば $|\vec{h}| \simeq 30$ 、迄とる事が可能となるように αL の値を設定する。(3.5) の \vec{h} の和の値は、系を網目格子に分割し、この網目格子点の可能な全ての相対座標 \vec{r}_{ij} についてあらかじめ計算し表にしておく事が多い。ポテンシャルエネルギーの計算は、この場合、粒子数の2乗に比例した演算を要し、この点が短距離相互作用と異なる。粒子数が少し大きくなるとcpuが非常に長くなる。従って同じcpuを使った場合、クーロン系のシミュレーションでは短距離相互作用のシミュレーションの場合に比べてかなり小さい粒子数をとらざるを得ないことになる。(8)~(11)の超イオン導電体の研究は典型的

樋渡保秋

な物質についての計算機実験の実例である。これらの実験により、伝導イオンの分布、拡散係数等基礎物性が求められ、イオン伝導（拡散）の機構もかなり明確にされてきた次第である。特に伝導イオンの連動したジャンプ運動の存在が明確になった事は注目に値する。図4に、この運動の様子を示す（文献11）。

分子間相互作用と物性の相互関連は重要な問題であるので、今後の問題として喚起したい。

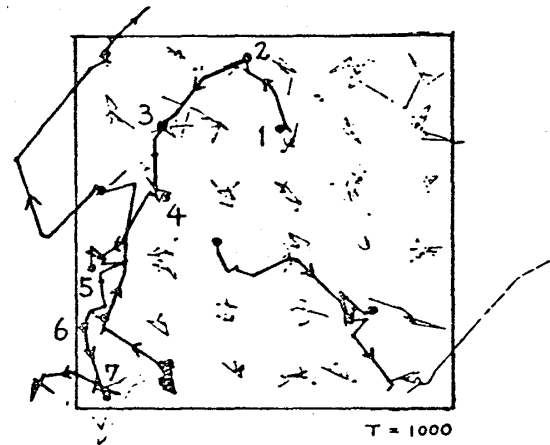


Fig.4. Correlated jumps of Ag ions: 1→2→3→4→5→6→7 etc.

Fig. 4

§ 4. 今後の問題

計算機実験の最大の魅力は、何といても厳密な解が得られ、ミクロな分子レベルの正確な情報が得られる事である。この長所を生かし、純理論的研究、実験的研究と相補的な新しい研究手段として今世紀半ば頃から発展してきた比較的新しい学問研究のアプローチといえよう。この基本的な構図（理論、実験、計算機実験の3本の柱）はこれから増々確立されてゆくものと思われる。

計算機は過去4半世紀の間に驚異的な性能の発展をとげてきた。これは、主としてハードウェア（計算機素子等）技術の向上による所が大きい。今後は、ハードウェア技術の向上はもとより、ソフトウェア技術の強力な進展が期待されているし、又そうなってほしい。最近の高速計算機の方向として、ベクタープロセッサ機能をもった超高速計算機（いわゆるスーパーコンピュータ）が注目されている。例えば、Cray 1（パイプライン方式ベクタープロセッサ計算機、米国、1976年）は、演算速度が最高 $80(\times 2)$ MFLOPS（MFLOPSとは1秒間に浮動小数点演算を100万回行う単位をいう）、平均で約30 MFLOPSである。この速度は、実に、世界最初の計数型真空管コンピュータ ENIAC（1945）の約16000倍の速さに相当するし、現在の京都大学大型計算機センターで稼動している FACOM M-200型大型計算機と比較しても、平均速度で約7倍の速さである。我が国でも、東京大学大型計算機センターでは、1983年秋に国産初のスーパーコンピュータ（日立）の導入を計画している。これによると、最大速度は上記 Cray-1 の2倍程度の演算速度を目標としており、主記憶（メモリ）の大きさも大巾に増やされるようである。京都大学でもスーパーコンピュータの導入計画があると聞いているので、今後2～3年の間に、我々の計算機環境もかなり変化するものと思われる。

ベクタープロセッサには色々の制約があって、計算速度はかなりプログラムの書き方に依存したものとなるようで、ベクトル処理の機能を最大に発揮するためのプログラムの工夫が重要になってこよう。これ等は、今後の大型計算の一つの方向を示唆している。最高速度の実現は大きな研究課題であるが、近い将来スーパーコンピュータの最高速度はM-200(H)の100倍程度の規模になろう。これは、我が国の計算機の過去20年間の高速化に匹敵するものである。スーパーコンピュータの出現により、コンピュータ物性も新しい時代を迎える事が大いに期待される。

計算機実験は、ここでのべた分野以外にも勿論色々応用する事ができる。例えば、開放系(非線型—非平衡)の分子動力学、モンテカルロ計算等があげられよう。量子系のモンテカルロ計算はグリーン関数の方法を用いて、基底状態($T=0$)の厳密解の計算がいくつか行われている。例として、粒子数 $N=64$ 、L-J系の基底状態の計算(CDC 6600を用いて、約30時間のcpuを必要)がある。量子系のシミュレーション(有限温度を含め)はこれからの重要な研究課題である。

最後に、計算機ユーザーの立場から2,3触れておきたい。計算機実験を行うには、大型計算機(高速、メモリーサイズが大きい)の長時間のcpuを必要とする事はこれ迄のべて来た通りである。現在、我々は主として名古屋大学プラズマ研究所のFACOM M-200機を用いて計算を行っている。他に、京都大学大型計算機センターの同型機をも用いている。前者は、毎年、上田教授(京大・工)を代表者とする研究グループが共同研究として計算機の利用申請を行い、幸いここ数年続いて利用が認められているものである。プラズマ研究所の場合は、承認されたcpuの範囲内で負担金なしで利用出来るので、大型計算のほとんどはこの計算機を用いて行っているのが実状で、これに負う所は誠に大きいといわねばならない。この計算機の利用が今後も引継いで可能になる事を希望しているが、その保障は必ずしもない。計算機利用が年々増え、プラズマ固有の計算機利用が増えていく現状から推測すれば、統計力学関係の研究に計算機利用の配分が少くとも今迄以上になることを望むのは非常に困難である事は十分予測される。

一方、東大センター、京大センターを始めとする全国共同利用大型計算機の方は、使用時間に比例した負担金が課せられ、我々のような大型計算では、この料金が非常に高額になり、十分な予算がないと出来ない。又1-job当りの時間制限があり、長時間計算が行いづらい難点がある。しかし、既に、本大学(金沢大学)と京大センターとの間には専用回線が結ばれていて、更に七大学大型計算機センターはネットワークで結ばれているので、この点では、利用のし易さはプラズマ研究所に比べて格段に良いので、可能な限り大型計算機センターを使用して

いる。

これらの問題点の他に、今後の問題点として、次の点を指適しておきたい。計算機実験で得られたデータ（各時刻における粒子の座標、速度等）は、以後の解析に用いる為、保存しておく必要があるが、この量は通常何十MB（メガバイト）にも達する。計算中は、これらのデータは磁気ディスク（補助記憶装置）に格納できるが、使用が許される磁気ディスクの容量にきつい制約がある現在、計算終了後は磁気テープに移す事が余儀なくされる現状である。遠隔地から投入したJOB（Remote Entry JOB）の場合、回線のデータ転送速度が十分でない為、ホストコンピュータの磁気ディスクに蓄えられたこれら大量のデータを端末計算機に移送する事は実際上不可能であるので、わざわざ出向いて（出張して）データを磁気テープに移す事を実行している。今後、計算機補助記憶装置がもっと利用し易くなる事を期待する。同時に、光通信を軸とした新しい通信技術の開発に力を注ぎ、回線速度の著しい向上を進められる事を期待する。

以上、計算機ユーザーの立場から、現状の問題点のいくつかを指適した。これらの問題はソフトの面とハードの面の両方があり、技術的に可能なもの、今後の技術開発に待たなければならないものも含まれている事を断っておきたい。

分子動力学、モンテカルロ計算のプログラム、並びにデータの公開の問題については触れることが出来なかったが、これらは近い将来考えていかなければならない問題である。

References

- 1) R. W. Hockney and S. P. Goel, "Phase transition of two-dimensional potassium chloride", Computer Science Department, Reading University, UK, Chem. Phys. Letters **35** (1975), 500.
- 2) R. W. Hockney[†] and T. R. Brown^{††}, "A lambda transition in a classical electron film", [†]Computer Science Department, Reading University, UK and ^{††}Bell Laboratories, USA, J. Phys. C: Solid State Physics, **8** (1975), 1813.
- 3) J. N. Cape and L. V. Woodcock, "Molecular dynamics calculation of phase coexistence properties: the soft-sphere melting transition", Department of Physical Chemistry, Cambridge University, UK, Chem Phys. Letters **59** (1978), 271.
- 4) A. Ueda[†], J. Takada[†] and Y. Hiwatari^{††}, "Molecular dynamics studies of solid-liquid interface of soft-core model", [†]Department of Applied Mathematics and Physics, Kyoto University and ^{††}Department of Physics, Kanazawa University, J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981), 307.
- 5) M. Amini and R. W. Hockney, "Computer Simulation of melting and glass Formation in a potassium chloride micro-crystal", Computer Science Department, Reading University, UK,

- J. Non-Crystalline Solids **31** (1979), 447.
- 6) J. N. Cape[†] and L. V. Woodcock^{††}, “Glass transition in a soft-sphere model”, [†]Department of Physical Chemistry, University of Cambridge, UK and ^{††}Physical Chemistry Laboratory, University of Amsterdam, The NL, J. Chem. Phys. **72** (1979), 976.
 - 7) F. van Swol[†], L. V. Woodcock[†], and J. N. Cape^{††}, “Melting in two dimensions: determination of phase transition boundaries”, [†]Laboratory for Physical Chemistry, University of Amsterdam, The NL, and ^{††}Department of Physical Chemistry, Cambridge University, UK, J. Chem. Phys. **73** (1980), 913.
 - 8) P. Vashishta and A. Rahman, “Ionic motion in α -AgI”, Argonne National Laboratory, Argonne, USA, Phys. Rev. Letters **40** (1978), 1337.
 - 9) Y. Hiwatari[†] and A. Ueda^{††}, “Monte carlo simulations of superionic CaF₂”, [†]Department of Physics, Kanazawa University and ^{††}Department of applied Mathematics and Physics, Kyoto University, J. Phys. Soc. Jpn. **49** (1980), 2129.
 - 10) M. J. Gillan[†] and M. Dixon^{††}, “Molecular dynamics simulation of fast-ion conduction in SrCl₂: I. Self-diffusion”, [†]Theoretical Physics Division, AERE, Harwell, UK and ^{††}Theoretical Physics Department, University of Oxford, UK, J. Phys. C: Solid State Physics **13** (1980), 1901.
 - 11) A. Fukumoto[†], A. Ueda[†] and Y. Hiwatari^{††}, “Molecular dynamics study of ionic motion in α -AgI”, [†]Department of applied Mathematics and Physics, Kyoto University and ^{††}Department of Physics, Kanazawa University, Solid State Ionics 3/4 (1981), 116; J. Phys. Soc. Jpn. (Submitted).
 - 12) J. P. Hansen[†], I. R. McDonald^{††} and E. L. Pollock^{†††} “Statistical mechanics of dense ionized matter. III. Dynamical properties of the classical one-component plasma”, [†]Laboratoire de Theorie des Liquides, Universite de Paris VI, France, ^{††}Department of Chemistry, Royal Holloway College, UK, and ^{†††}Department of Physics and Materials Research Laboratory, University of Illinois, USA, Phys. Rev. **11A** (1975), 1025.
 J. P. Hansen[†] and I. R. McDonald^{††}, “Microscopic simulation of a strongly coupled hydrogen plasma”, [†]Laboratoire de Physique Theorique des Liquides, Universite Pierre et Marie Curie, France, and ^{††}Department of Physical Chemistry, University of Cambridge, UK, Phys. Rev. **23A** (1981), 2041.
 - 13) W. G. Hoover, M. Ross, K. W. Johnson, D. Henderson, J. A. Barker and B. C. Brown, J. Chem. Phys. **52** (1970), 4931.
 - 14) J. P. Hansen, Phys. Rev. **A2** (1970), 221.
 - 15) H. Ogura, H. Matsuda, T. Ogawa, N. Ogita and A. Ueda, Prog. Theor. Phys. **58** (1977), 419.