

高次元アルゴリズムによる分子構造最適化の並列処理

4 Z B - 0 4

大田原 一成 下川 信祐 寺前 裕之
ATR 適応コミュニケーション研究所

古典力学のダイナミクスの手法に基づき最適解を計算する高次元アルゴリズムを, *ab initio* 分子軌道計算における分子構造の最適化手法として組み込んだ. これを PC クラスタ上で MPI として LAM を用いて二電子積分計算部の並列処理を行うことによって速度向上を試みた結果, 8CPU で速度向上比 5.3 倍, 並列化効率 66% が得られた.

1. はじめに

電子状態計算によって分子の局所安定構造を求める分子構造最適化では, 通常, Newton-Raphson 法, 最大傾斜法, 共役勾配法などの最適化手法が用いられるが, local-minimum を脱することができないため, 極小値に近い初期構造を与える必要がある. 一方, 大域的に local-minimum を脱しながら幾つもの極小値を求めるのに, モンテカルロ法や焼き鈍し法が適用できるが, エネルギーの高い不安定構造に計算時間の多くが掛かったり, 温度コントロールの困難さがある.

我々は, 極小値に近い初期構造を与えなくとも分子構造を最適化するために, 力学系のダイナミクスを利用した高次元アルゴリズム^{1,2}を用い, *ab initio* 分子軌道計算に組み込んだ³. 分子構造の最適化が高次元アルゴリズムによってポテンシャル面を効率良く探る事ができることを示し, 一つの極小値から出発しても別の極小値を求められることとして, 例えば, HNC 分子の安定点から出発して HCN 分子の安定構造を探索できること等を示してきた³.

このように大域的に極小値探索を行うためには, 繰り返し計算を必要とするが, 毎回の *ab initio* 分子軌道計算では, 計算時間の多くが二電子積分の計算に費やされることから, 二電子積分計算部分について並列処理を行い, 大きな基底関数を採用する系や分子の構成原子数が多い系でも, 分子構造を大域的に最適化できることとするため, PC クラスタを用いて並列処理を行った結果を報告する.

2. 分子構造最適化

系のエネルギーは式 (1) のハミルトニアンで与えた¹. ここで m は原子の質量, $q_{j\alpha}$, $p_{j\alpha}(\alpha=x, y, z)$ は j 番目の原子の位置座標とその共役変数. N は原子数, $V[q_{j\alpha}]$ はポテンシャルエネルギーで, *ab initio* 分子軌道計算で求めるエネルギーの期待値. このように系の全エネルギーは, 最適化のコスト関数であるポテンシャルエネルギー, 各原子の速度とエネルギー勾配法で計算される力で決めた運動エネルギーからなる.

続いて系の全エネルギーを保存しながら, 式 (2),(3) で与えられる運動方程式に従い, ヴェルレ法 (式 (4),(5)) で各原子を動かすことを繰り返すことで, 連続的な構造変化を生成した.

この連続的な運動を追跡し, ポテンシャルエネルギーの最小値を更新することで最適解とする. この時, 運動が混合性を持ち, 十分な時間で運動の追跡が出来るなら最適化ができる.

高次元アルゴリズムを用いた分子構造最適化のプログラムは HONDO5 を元にして作成した. 各分子の計算は RHF 法を用い, 基底関数として STO-3G および 6-31G** 基底を使用した. 運動の時間刻みは 0.05 原子単位 (a.u.) として並列処理による実行時間計測のために 100 ステップの運動を行った.

$$H[p_{j\alpha}, q_{j\alpha}] = \frac{1}{2} \sum_{k\beta}^N \left(\frac{p_{k\beta}^2}{m_j} \right) + V[q_{j\alpha}], \quad (1)$$

$$\dot{q}_{j\alpha} = \frac{\partial H}{\partial p_{j\alpha}} = \sum_{j\alpha} \frac{p_{j\alpha}}{m_j}, \quad (2)$$

$$\dot{p}_{j\alpha} = -\frac{\partial H}{\partial q_{j\alpha}} = -\frac{\partial V}{\partial q_{j\alpha}} = -f_{j\alpha}, \quad (3)$$

$$\mathbf{r}_i(t + \Delta t) = 2\mathbf{r}_i(t) - \mathbf{r}_i(t - \Delta t) + \ddot{\mathbf{r}}_i(t)\Delta t^2, \quad (4)$$

$$\mathbf{V}_i(t) = \left(\mathbf{r}_i(t + \Delta t) - \mathbf{r}_i(t - \Delta t) \right) / 2\Delta t. \quad (5)$$

¹Parallel Processing of Molecular Geometry Optimization using Hamiltonian Algorithm[†]
OHTAWARA, Kazushige (ohtawara@atr.co.jp), SHIMOGAWA, Shinsuke (simogawa@atr.co.jp), and
TERAMAE, Hiroyuki (teramae@atr.co.jp).
ATR Adaptive Communications Research Laboratories.
2-2-2 Hikaridai, Seika-cho, Soraku-gun, Kyoto 619-0288, Japan.

3. PC クラスターの構成と並列処理

表1に PC クラスターの構成を示す。オペレーティングシステムはFreeBSD 3.2-Releaseを使用し、並列計算を行うためのメッセージパッシングライブラリーは LAM(Local Area Multicomputer)ver.6.2 β を用い、FORTRAN コンパイラは g77 を使用した。

ab initio 分子軌道計算では、計算時間の多くが二電子積分の計算に費やされる。二電子積分数は基底関数の4乗に比例する。そのため、二電子積分の計算、二電子積分の核座標に関する微分の計算について並列処理化を行うと共に一電子積分の計算についても並列処理化を行った。

4. 結果と考察

Trifluoroethane(H_3C-CF_3)について、構造最適化過程での全エネルギー変化を図1に示す。5000回の繰り返し計算の中で、図中矢印で示す点が最小値となり最適化された核座標として記録する。運動のパラメータは幾つかあるが、各原子の1ステップでの移動量が分子振動程度の距離に対応するように運動エネルギーの初期値を調整し、この例では運動エネルギーの初期値に 0.1 a.u. を与えた。表1に挙げたPCクラスター構成で構造最適化のために行った5000回の繰り返し計算は16 CPUを用いて8514秒であった。

表1. PC クラスターの構成

CPU	:	Intel PentiumIII 450MHz
CPU 構成	:	8 筐体 16CPU (Dual CPU board)
Memory	:	256 MB / board
Network	:	100BaseT 8port switching hub

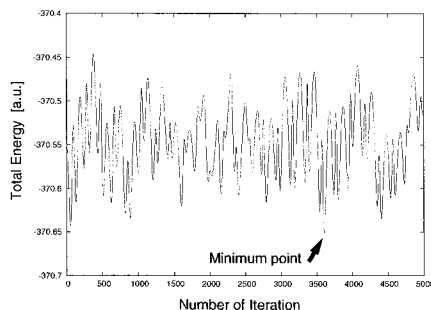


図1. 繰り返し計算における全エネルギーの変化

表2. Methanimine (6-31G**) の並列計算の速度比較

CPU 数	CPU 時間 [sec]	実行時間 [sec]	速度向上比	並列化効率
1	589.9	695.5		
2	347.3	429.3	1.620	0.810
4	204.2	275.4	2.525	0.631
8	132.0	200.4	3.471	0.434
16	158.2	238.6	2.915	0.182

表2,3にMethanimine($H=NC$)の6-31G**基底とTrifluoroethaneのSTO-3G基底の場合の並列計算において、CPU数に対するCPU占有時間および実経過時間を示す。CPU数の増加に伴い速度向上比は大きくなり、16CPU時に最大で速度は7.4倍になった。一方で16CPU時の並列化効率は50%を下回る結果となった。MethanimineではTrifluoroethaneに対して並列化効果が低いのは、原子数が少なく、2電子積分に関わる部分の計算量が少ないためと考えられる。また特に16CPU時に並列化効率が下がっているのは、同じ筐体に2つのCPUを持つ構成としたことで、ハードディスクやネットワークの入出力を共有していることに因ると考えられる。

表3. Trifluoroethane (STO-3G) の並列計算の速度比較

CPU 数	CPU 時間 [sec]	実行時間 [sec]	速度向上比	並列化効率
1	1251.2	1304.7		
2	732.1	780.3	1.672	0.836
4	378.9	411.0	3.175	0.796
8	198.7	247.0	5.283	0.660
16	134.9	175.5	7.433	0.465

参考文献

- 1) K. Shinjo and T. Sasada, "Hamiltonian Systems with Many Degrees of Freedom: Asymmetric Motion and Intensity of Motion in Phase Space", *Phys. Rev.* E54, pp. 4686-4700 (1996).
- 2) 斎藤, 新上, 種田, 大田原, 下川, 平田, 北川, 倉持, 恩田, 小松崎, 野口, "高次元アルゴリズムの原理と応用", *ATR Technical Report*. TR-AC-0049 (2000).
- 3) 寺前裕之, 大田原一成, "高次元アルゴリズムによる分子構造の最適化", 2001 分子構造総合討論会 (2001).