

直鎖高分子の並列分子動力学法シミュレーション

林 亮子[†] 堀 口 進[†]

分子動力学法を用いて直鎖高分子のシミュレーションを行うためには、単原子分子で用いるような N 体間相互作用の計算と、直鎖に沿った相互作用の計算の両方を効率良く行う必要がある。これまで行われた直鎖高分子の並列シミュレーションでは、主にシミュレーション空間を分割してプロセッサ要素に割り当てるドメイン分割法が用いられてきた。しかし長い直鎖分子を扱う場合には、ドメイン分割法では直鎖に沿った相互作用の計算時間が増加し、 N 体間相互作用と同程度の計算時間が必要になる。このときに処理時間を消費しているのは連続するモノマーを検索する部分である。本研究ではドメイン分割法で連続するモノマーの検索コストを削減する方法を提案し、実装して処理性能を検討する。

Parallel Molecular Dynamics Simulations of Polymers

RYOKO HAYASHI[†] and SUSUMU HORIGUCHI[†]

This paper addresses parallel molecular dynamics simulations of polymers. Polymer simulations requires multi-particle interactions as well as N-body interactions. Here we have implemented parallel polymer simulations based on domain decomposition method on a parallel computer, T3E. It is seen that multi-particle interactions makes parallel simulation slow. Thus we propose chain-distributed domain decomposition method which assigns connected pieces of monomers to PEs. The chain-distributed domain decomposition method improves parallel simulation time by achieving the quick search for connected monomer.

1. はじめに

分子動力学法¹⁾ (MD) は、物理や化学、材料設計の分野で重要性を増しているコンピュータ・シミュレーションの手法である。計算機の高速度化にともなって MD は種々の分子を扱うことが可能となり、電気的に中性な単原子分子だけでなく、水分子や生体高分子のシミュレーションも行われている。特に並列計算機の発達によって、蛋白質のような巨大分子まで扱うことが期待されている²⁾。本論文では、古くから理論的に扱われて材料としても重要な、3次元空間中の直鎖高分子を扱う超並列 MD シミュレーションについて報告する。

短距離相互作用のはたらく単原子分子を扱う MD の並列化に際して、Tamayo ら³⁾ は3種類の並列化手法を実装、比較し、計算する空間を分割してプロセッサ要素 (PE) に割り当てるドメイン分割法 (DDM) が有効であることを示した。Beazley と Lomdahl⁴⁾ は 1024 PE の超並列計算機上で、DDM を用いて 6.7×10^7 分子

を計算している。林と堀口⁵⁾ はメッセージ通信型並列計算機上での DDM においてドメインの形状を検討し、超並列計算機を用いた大規模シミュレーションでは立方体のドメインを3次元トラス結合網に割り当てる方法が最適であることを示した。

直鎖高分子は巨大分子と単原子分子の中間的なモデルと見なすことができるが、この直鎖高分子を扱う MD の並列化に関する研究が近年注目されている。直鎖分子は、長い分子ほどシミュレーションに際して多くの分子を扱う必要があるため、計算量の増加が大きな問題である。そこで計算量を小さくするために、Rigby-Roe モデル⁶⁾ のように、分子間の相互作用には短距離相互作用を使用する 경우가多い。直鎖分子を扱う MD の並列化に関する研究においても、そのほとんどは短距離相互作用を使用する。

Esselink ら⁷⁾ は直鎖に沿った相互作用を計算する手続きを DDM に組みこむ方法を示し、50 モノマーを結合した 200 分子の直鎖分子シミュレーションを行った。Brown ら⁸⁾ は DDM を用いて 100 モノマーを結合した 640 分子の直鎖分子シミュレーションを行った。これらの研究では、モノマー間の結合関係を考慮せずに PE に割り当てるため、各モノマーのポリマー中で

[†] 北陸先端科学技術大学院大学情報科学研究科
School of Information Science, Japan Advanced Institute of Science and Technology, Hokuriku

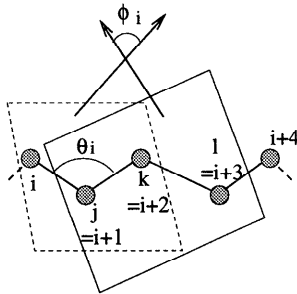


図1 Rigby-Roe モデルの概要
Fig. 1 Rigby-Roe model.

の位置を参照して、結合関係の表を作成する必要がある。しかし、これらの研究では相互作用の計算量やPE数の拡張性について十分に検討されていない。林と堀口⁹⁾はDDMと分子分割法(CD)を用いた直鎖分子の並列MDシミュレーションを実装し、使用PE数、分子の数、分子の長さを変化させた処理時間を比較した。その結果、使用PE数および分子の数の増加に対してDDMがCDよりも高い性能を得られることを示した。一方で、DDMはCDよりも鎖相互作用に大きな計算時間を要することを指摘した。

本論文では、直鎖高分子を扱うためにモノマーの結合関係を考慮したDDMを提案する。さらに、直鎖分子の並列MDを並列計算機T3E¹⁰⁾上に実装し、有効性について議論する。本論文の構成は以下のとおりである。2章では本論文で用いた直鎖分子モデルを示す。3章では直鎖分子のMDを並列化する手法について述べる。4章では並列MDシミュレーションを並列計算機T3E上に実装した結果を示し、実行時間について議論する。5章はまとめである。

2. 直鎖分子モデル

直鎖分子はモノマーが直線状に連なった高分子である。本研究では、直鎖分子としてRigby-Roeモデル⁶⁾を用いる。これは、アルカンに適用するモデルであり、CH₂およびCH₃を表す球体のモノマーがばねで結合されたものである。Rigby-Roeモデルの概要を図1に示す。相互作用は以下に示す4つの相互作用の総和である。

(1) 2体力(C-C結合ポテンシャル)

$$E_{b,i} = \frac{1}{2} k_b (l_i - l_0)^2. \quad (1)$$

l_i はモノマー i とモノマー j 間の結合の長さであり、 l_0 は安定な結合の長さである。

(2) 3体力(C-C-C結合角ポテンシャル)

$$E_{\theta,i} = \frac{1}{2} k_{\theta} (\cos \theta_i - \cos \theta_0)^2. \quad (2)$$

θ_i はモノマー i, j, k のなす結合角であり、 θ_0 は安定な結合角である。

(3) 4体力(ねじれポテンシャル)

$$E_{\phi,i} = k_{\phi} \sum_{n=0}^5 a_n \cos^n \phi_i. \quad (3)$$

ϕ_i はモノマー i, j, k, l のなすねじれの角度である。 ϕ_i は2面角で、図1中のモノマーの番号付けに従って次式のように定義する。

$$\phi_i = \cos^{-1} \frac{(\mathbf{r}_{ij} \times \mathbf{r}_{kj}) \cdot (\mathbf{r}_{kj} \times \mathbf{r}_{lk})}{|\mathbf{r}_{ij} \times \mathbf{r}_{kj}| \cdot |\mathbf{r}_{kj} \times \mathbf{r}_{lk}|}. \quad (4)$$

(4) N体力(Lennard-Jones型ポテンシャル)

$$E_{Nbody,in} = 4\epsilon \left[\left(\frac{r^*}{r_{in}} \right)^{12} - \left(\frac{r^*}{r_{in}} \right)^6 \right], \quad (5)$$

$$r_{in} \leq r_c, \quad (5)$$

$$E_{Nbody,in} = 0.0, \quad r_{in} > r_c. \quad (6)$$

r_{in} はモノマー i とモノマー n の距離であり、別の分子に属するモノマーの組合せと同一分子に属するうちで3つ以上のモノマーを隔てたモノマーの組合せ(図1中の i と $i+4$ 以降のモノマーの組合せ)に適用する。Rigbyら⁶⁾がこのモデルを提案した際は $r_c = 1.5r^*$ (r^* はモノマーの直径)を使用していた。Esselinkら⁷⁾はN体力の切断距離に $r_c = 2.5r^*$ を使用している。Brownら⁸⁾は $r_c = 2^{1/6}r^* \simeq 1.12r^*$ を使用している。ここでは $r_c = 1.5r^*$ を使用する。

相互作用の表式中の各パラメータには文献6)の数値を用いる。主要なパラメータの数値を表1にあげ

表1 Rigby-Roeモデルのパラメータ(抜粋)

Table 1 Important parameters used in simulation.

	無次元化量	絶対量
l_0	0.4	0.152 nm
k_b	10^4	$3.46 \times 10^7 \text{ J nm}^{-2} \text{ mol}^{-1}$
$\cos \theta_0$	-0.3333	-0.3333
k_{θ}	10^3	$5 \times 10^5 \text{ J mol}^{-1}$
k_{ϕ}	18	9000 J mol^{-1}
a_0	1	1
a_1	1.3100	1.3100
a_2	-1.4140	-1.4140
a_3	-0.3297	-0.3297
a_4	2.8280	2.8280
a_5	-3.3943	-3.3943
Δt	0.005	$1.01 \times 10^{-14} \text{ second}$

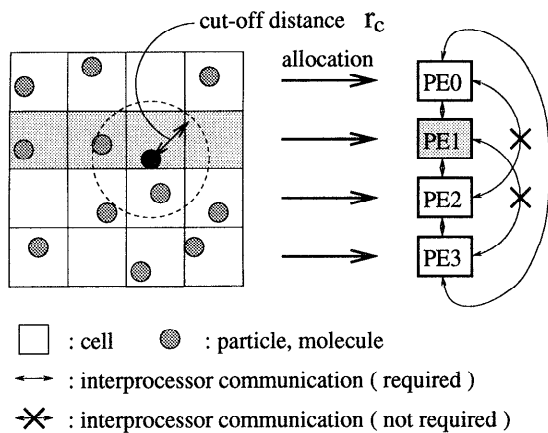


図2 ドメイン分割法の概要
Fig. 2 Domain decomposition method.

る。以後上記(1), (2), (3)をあわせて鎖相互作用と称する。 N モノマーを扱う MD シミュレーションでは、鎖相互作用の計算複雑度は $O(N)$ である。 N 体力の計算複雑度は、DDM を使用するときは $O(N)$ である⁵⁾。

3. 並列化手法

3.1 分子分割法

CD は、分子の存在する位置を考慮せず、直鎖分子を同数ずつ PE に割り当てる手法である。今回行った実装では、 N 体力を計算する際に全 PE 間でデータを交換する。CD では、鎖相互作用は PE に割り当てたモノマーの位置データのみによって計算できる。そのため鎖相互作用の計算について最適な並列化手法である。しかし、 N 体力の計算では、すべての組合せのモノマー間距離を計算するので、計算複雑度は $O(N^2)$ である。そのために、モノマー数が大きくなると、 N 体力の計算が処理時間を増大させる⁹⁾。本論文では、主に鎖相互作用の計算時間を評価するため CD の結果を用いる。

3.2 ドメイン分割法

DDM は、シミュレーションを行う空間を分割して PE に割り当てる並列化手法である。2次元 MD シミュレーションを例として、DDM の概要を図2に示す。DDM では、計算する空間を N 体力の力の切断距離 r_c 程度の大きさを持つ正方形 (3次元 MD シミュレーションでは立方体) の「セル」に分割し、複数のセルを空間的にまとめてドメインを構成する。このとき、ドメイン相互の近傍関係が、ドメインを割り当てた PE 相互の近傍関係になる。モノマー間の相互作用

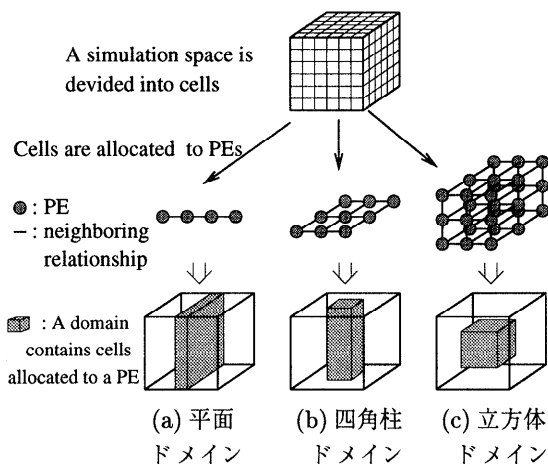


図3 3次元 MD シミュレーションの3種類のドメイン形状
Fig. 3 Three domain shapes in 3-dimensional MD simulation.

を計算する際に PE 間でモノマーのデータを交換するが、DDM では、各 PE は近傍関係にある PE とのみ通信すればよく、交換するのはドメイン表面のセルに属するデータのみである。そのため DDM は、モノマー間距離の計算を削減することができ、 N 体力を効率良く計算することができる。

3次元のシミュレーションでは、図3に示すように3種類のドメイン形状が可能である。本論文では、シミュレーションの規模⁵⁾と近傍関係の簡単さを考慮して、図3(b)に示した四角柱ドメインを使用する。これは、3次元立方体のシミュレーション空間を2つの次元で分割し、仮想的な2次元トーラス結合網に割り当てるものである。ここでは四角柱ドメインの長軸方向での断面は正方形とし、使用 PE 数は整数の2乗個に限るものとする。

DDM を用いたときは、厳密には PE ごとの計算負荷および実行時間は一定ではない。各タイムステップの終わりに、物理量を計算する目的で全 PE 間で同期をとることから、1タイムステップの実行時間は相互作用計算の実行時間の最大値に依存する。そのため、本論文で用いる実行時間の数値は、使用 PE 中での最大の実行時間である。さらに、計算負荷の不均衡が計算時間に及ぼす影響を小さくするため、ガラス転移点よりも高温に相当する物理条件を使用する。

DDM で直鎖分子の並列 MD シミュレーションを行う場合、一般には複数の PE が同一分子に属するモノマーを持つ。そのため鎖相互作用を計算する際に、連続するモノマーを探す必要がある。ただし2体力のパラメータを参照すると、連続する2つのモノマー間距

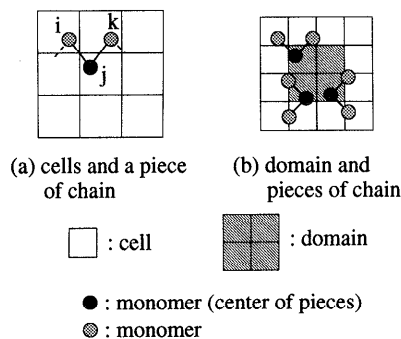


図4 鎖片割当てドメイン分割法の概要

Fig. 4 Chain-distributed domain decomposition method which assigns connected pieces of monomers to PEs.

離は、事実上力の切断距離を越えないことが分かる。すなわち、各モノマーと直接結合するモノマーは、近傍セル中に必ず存在する。そのため、直鎖分子のMDシミュレーションにおいても、DDMを使用することができる。

本論文ではBrownら⁸⁾の方法に従って、連続するモノマーを探索するための分子のデータとして、分子の番号と、分子内の順番を加えた。各PEは自分の持つ分子の番号リストをつくり、分子の位置データを交換するPE間通信の際に、近傍ドメイン中の全モノマーのうち自分の持つ分子に属するデータを取得する。各PEは、自分の持つモノマーが図1および式(1)~式(3)中の*i*番目に相当する場合のみ、鎖相互作用を計算する。鎖相互作用の計算では、各モノマーに連結したモノマーを検索して一覧表をつくり、必要なデータを参照する。

3.3 鎖片割当てドメイン分割法

DDMの問題点は、連続するモノマーの検索コストが大きいことである。検索コストを削減するため、本論文では連続するモノマーをまとめた鎖片割当てドメイン分割法(CDDDM)を提案する。CDDDMの概要を図4に示す。直鎖分子を*m*モノマーごとに区切って鎖片とし、鎖片の中心にあたる $\lfloor m/2 \rfloor + 1$ 番目のモノマーが所属するセルを、その鎖片が所属するセルとする。図4(a)では鎖片の長さは3モノマーであり、モノマー*j*が存在するセルに、モノマー*i*, *j*, *k*は所属する。Esselinkは、4体力をなすモノマーが力の切断距離大の球体中に存在することを示した⁷⁾。この結果をふまえて本論文では鎖片の長さを4モノマーとした。

図4(a)中でモノマー*i*とモノマー*j*が位置するセルが異なるように、CDDDMでは、所属するセルか

らはみ出すモノマーが存在する。そのため、各セルに実際に位置するモノマーの表を作成し、N体力計算の際に参照する必要がある。また、PEの担当する空間という観点からは、図4(b)に示すように各PEは各ドメインの周囲に1セル分ずつの範囲に存在するモノマーを持つ可能性がある。そのため、相互作用計算を目的としたデータ交換時に、本来他PEに所属するセル中のモノマーのデータを、そのセルを持つPEおよび相互作用計算に必要とするPEに送る必要がある。四角柱ドメインの底面の大きさが4セル以上であるとき、各PEが持つドメイン外のモノマーを必要とするPEは必ず近傍PEであり、通信回数はDDMと同じである。各セルに実際に位置するモノマーの表を作成する必要があるため、CDDDMでは本来所属するべきセルの番号を各モノマーに付随したデータとする。

4. 性能評価

4.1 並列計算機環境

本論文では、128PEの並列計算機T3E¹⁰⁾上に実装を行った。T3EはPEにDECchip 21164 (300 MHz, 600 MFLOPS, 1200 MIPS)を使用した分散メモリ型並列計算機である。DECchip 21164はそれぞれ8KBのデータキャッシュと命令キャッシュ、および96KBの2次キャッシュを持つ。結合網は3次元トーラス型であり、通信性能はノードあたり実効2.8 GB/secondである。実装には、FORTRAN90にメッセージ通信ライブラリMPI (Message-Passing Interface)を併用し、MIMD型処理を行った。本論文で用いる実行時間は、MPIのMPLWTIME関数を使用して計測した。

4.2 鎖相互作用計算の実行時間

最初にCD, DDM, およびCDDDMを用いた鎖相互作用計算の実行時間を比較する。図5に3つの並列化手法による1分子あたりの鎖相互作用計算の実行時間(図5中のChain force)およびモノマー検索の実行時間(鎖相互作用計算の実行時間の内数, 図5中のSearch)を示す。CDはモノマー検索を要しないので、鎖相互作用計算の実行時間のみを示す。これらの数値は全モノマー数を固定し、分子の長さを変化させて得た実行時間を分子の数で割ったものである。いずれの量も、実行時間は分子の長さに対して線形である。

CDでは、連結したモノマーのデータは配列に連続して格納されるため、鎖相互作用計算の実行時間は最適化された数値と考えられる。DDMにおける鎖相互作用計算のみの実行時間は、図5中のChain forceとSearchの差に相当し、CDと同程度である。しかし、

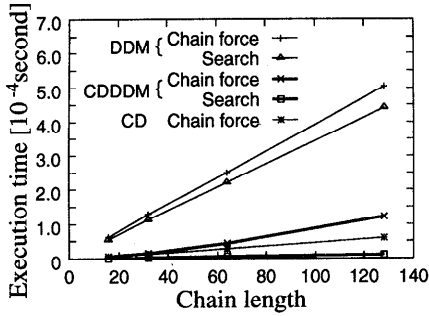


図5 分子分割法, ドメイン分割法, および鎖片割当てドメイン分割法を用いた1分子あたりの鎖相互作用計算の実行時間 (全モノマー数 32768, 16 PE 使用, 無次元化温度 4.0, 密度 0.256)

Fig. 5 Execution time of chain force per chain comparing chain distribution method, domain decomposition method, and chain-distributed domain decomposition method.

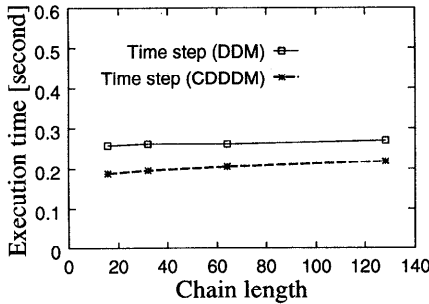


図6 ドメイン分割法と鎖片割当てドメイン分割法の分子の長さを変化させた1タイムステップの実行時間 (全モノマー数 32768, 16 PE 使用, 無次元化温度 4.0, 密度 0.256)

Fig. 6 Execution time of 1 time step comparing chain-distributed domain decomposition method and domain decomposition method.

鎖相互作用計算全体の実行時間はモノマー検索の実行時間に大きく依存し, モノマー検索の実行時間は分子の長さの増加にともなって大きく増大する. そのため, DDM で長い直鎖分子を扱うときは鎖相互作用計算の実行時間が大きく増大する. それに対して CD-DDM では, モノマー検索の実行時間を非常に小さくできるため, 鎖相互作用計算の実行時間を大きく削減することができる.

4.3 1タイムステップの実行時間

分子の長さを変化させたときの1タイムステップの実行時間を, CDDDM と DDM で比較する. モノマー数を固定し, 分子の長さを変化させた1タイムステップの実行時間を図6に示した. CDDDM と DDM のどちらも分子の長さには依存せず, モノマー数が一定ならば実行時間はほとんど一定である. CDDDM は,

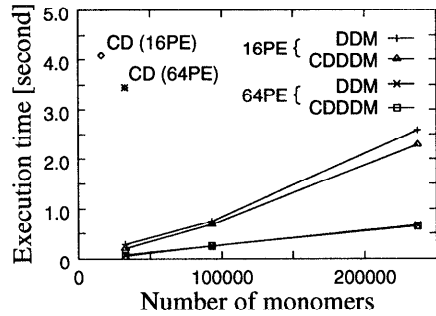


図7 分子分割法, ドメイン分割法, および鎖片割当てドメイン分割法を用いた1タイムステップの実行時間 (1分子 64モノマー, 無次元化温度 4.0, 密度 0.256)

Fig. 7 Execution time of 1 time step comparing chain distribution method, domain decomposition method, and chain-distributed domain decomposition method.

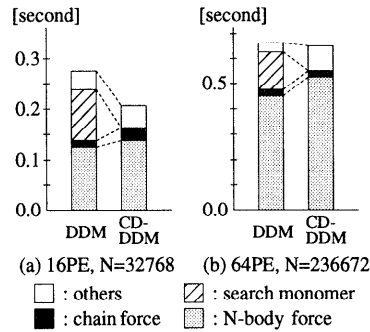


図8 鎖片割当てドメイン分割法とドメイン分割法を用いた1タイムステップの実行時間の内訳 (1分子 64モノマー, 無次元化温度 4.0, 密度 0.256)

Fig. 8 Detail of execution time of 1 time step comparing chain-distributed domain decomposition method and domain decomposition method.

DDM の計算時間を 20%程度削減することができた.

次に, 分子の長さを固定して全モノマー数を変化させ, 16 PE を使用した場合と 64 PE を使用した場合の1タイムステップの実行時間を図7に示す. CD は, 全モノマー数が1万個程度で DDM および CDDDM よりも実行時間が非常に大きくなり, この程度の数のモノマーを扱うシミュレーションには適さない. DDM と CDDDM はどちらも, モノマー数の増加に対しては線形程度の実行時間増加であり, 64 PE を使用した場合は 16 PE を使用した場合の 1/3~1/4 程度に実行時間を削減できる. DDM と CDDDM を比較すると, 16 PE を使用した場合には CDDDM は実行時間を削減できるが, 64 PE を使用した場合はほとんど同様の実行時間である.

DDM と CDDDM の実行時間の内訳の概要を図 8 に示す。図 8(a) は 16 PE を使用した場合、図 8(b) は 64 PE を使用した場合の内訳である。図 8 中の量は次のとおりである。

N-body force N 体力計算の実行時間

chain force 鎖相互作用の計算のみの実行時間

search monomer モノマー検索の実行時間

others その他の処理の実行時間

図 8(a) によると、CDDDM はモノマー検索の実行時間を削減することにより、全体の実行時間を削減している。ただし、鎖相互作用計算の実行時間と N 体力計算の実行時間はわずかに増加している。これは、データ参照の連続性が失われたためと考えられる。図 8(b) によると、64 PE を使用した場合に CDDDM が実行時間を削減できなかった理由は、CDDDM の N 体力計算の実行時間が増加してモノマー検索の実行時間削減の効果を打ち消したためであることが分かる。

5. おわりに

本論文では、直鎖分子を扱う並列 MD シミュレーションを実装し、実行時間を比較した。ドメイン分割法を用いた直鎖高分子の並列 MD シミュレーションでは、N 体力を効率良く計算する手法だけではなく、鎖相互作用を効率良く計算する手法を組み合わせる必要がある。本論文では、鎖片を単位とする PE への割当てをドメイン分割法に組み合わせた鎖片割当てドメイン分割法を提案し、処理効率を検討した。その結果、鎖片割当てドメイン分割法は鎖相互作用を効率良く計算できることが分かった。しかし鎖片割当てドメイン分割法は、N 体力の処理時間が増加する欠点がある。

今回用いた力の切断距離は単原子分子の場合に比べて小さいものであり、材料科学の実用上は力の切断距離を大きくする必要がある。このとき、N 体力計算の実行時間が増加すると同時に、鎖片に属するモノマー数を大きくすることができると予想される。また、鎖片を利用して効率良く N 体力計算を行うことが課題である。今後は力の切断距離と鎖片の長さの関係、鎖片の長さを実行時間の関係について考察する予定である。

謝辞 本研究の一部は文部省科学研究費補助金によって行われた。

参 考 文 献

- 1) D.W. ヘールマン (小澤 哲, 篠嶋 妥訳): シミュレーション物理学, シュプリンガー・フェアラーク東京 (1990).
- 2) Sato, H., et al.: Parallelization of AMBER

Molecular Dynamics Program for the AP1000 Highly Parallel Computer, *Proc. Scalable High Performance Computing Conference SHPPC-92*, pp.113-120 (1992).

- 3) Tamayo, P., Mesirov, J.P. and Boghosian, B.M.: Parallel Approaches to Short Range Molecular Dynamics Simulations, *Proc. Supercomputing 91*, pp.462-470 (1991).
- 4) Beazley, D.M. and Lomdahl, P.S.: Message-passing multi-cell molecular dynamics on the Connection Machine 5, *Parallel Computing*, Vol.20, pp.173-195 (1994).
- 5) Hayashi, R. and Horiguchi, S.: Domain Decomposition Scheme for Parallel Molecular Dynamics Simulation, *Proc. HPC Asia '97*, pp.595-600 (1997).
- 6) Rigby, D. and Roe, R.J.: Molecular dynamics simulation of polymer liquid and glass. I. Glass transition, *Journal of Chemical Physics*, Vol.87, No.12, pp.7285-7292 (1987).
- 7) Esselink, K. and Hilbers, P.A.J.: Efficient Parallel Implementation of Molecular Dynamics on a Toroidal Network. Part II. Multi-particle Potentials, *Journal of Computational Physics*, Vol.106, pp.108-114 (1993).
- 8) Brown, D., Clarke, J.H.R., Okuda, M. and Yamazaki, T.: A domain decomposition parallel processing algorithm for molecular dynamics simulations of polymers, *Computer Physics Communications*, Vol.83, pp.1-13 (1994).
- 9) 林 亮子, 堀口 進: 直鎖高分子の並列分子動力学法シミュレーション, 情報処理学会研究報告 97-HPC-66, Vol.97, No.37, pp.13-18 (1997).
- 10) Cray Research: CRAY T3E Fortran Optimization Guide (1996).

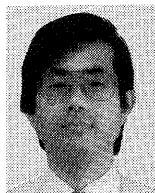
(平成 9 年 11 月 4 日受付)

(平成 10 年 4 月 3 日採録)



林 亮子 (正会員)

1993 年東北大学理学部物理学科卒業。1998 年北陸先端科学技術大学院大学情報科学研究科博士後期課程修了。1998 年 4 月より北陸先端科学技術大学院大学情報科学研究科助手。博士 (情報科学)。物理シミュレーションの並列化手法の研究に従事。IEEE 会員。

**堀口 進 (正会員)**

昭和 27 年生. 昭和 51 年東北大学工学部通信工学科卒業. 昭和 56 年東北大学大学院工学研究科博士課程修了. 昭和 56 年東北大学工学部助手, 昭和 61 年 6 月～昭和 62 年 7 月米国 IBM ワトソン研究所客員研究員として並列計算アルゴリズムの研究に従事. 昭和 64 年東北大学工学部助教授. 平成 3 年北陸先端科学技術大学院大学情報科学研究科教授, 現在に至る. この間, 並列処理, 超並列システム, ウェーハ規模集積システム, 並列アルゴリズム, マルチメディア統合システムに関する研究を行う. 昭和 64～平成 7 年 IEEE 学会 WSI 国際会議組織委員会委員. 平成 4～7 年同国際会議アジア地域議長. IEEE シニア, 電子情報通信学会各会員.
