

## 1E01

### 次世代 FMO 法のための相関計算プログラムの開発

(立教大・理<sup>1</sup>, JST-CREST<sup>2</sup>, 東大・生産研<sup>3</sup>, 国立衛研<sup>4</sup>, NEC ソフト<sup>5</sup>, みずほ情報総研<sup>6</sup>, 神戸大院・工<sup>7</sup>) ○望月祐志<sup>1,2,3</sup>, 中野達也<sup>2,3,4</sup>, 山下勝美<sup>5</sup>, 沖山佳生<sup>3</sup>, 福澤薫<sup>6</sup>, 田中成典<sup>2,7</sup>

**【序】** フラグメント分子軌道(FMO)法は、巨大分子系のための量子化学計算フレームワークとして 10 年程前に北浦らにより先ず基本の HF 近似で提案された[1,2]。その後、各種の相関・励起状態計算が並列処理で利用出来るようになっており、生化学的に重要な実タンパク質の解析事例も多数報告されている[3,4]。実用性の目安となる計算速度としては、私たちが 100% 自主開発している FMO プログラム ABINIT-MPX の場合、922 残基のインフルエンザ HA 抗原-抗体システムの 1 構造の FMO-MP2/6-31G\*ジョブ[5]が 128 コアの Xeon(2.66 GHz)クラスターでは 2.2 日で完了出来るレベルにある。また 6-31G 基底でのタイミングだが、旧地球シミュレータ 4096 プロセッサを用いて同対象を 53.4 分で処理出来る超並列実行性(理論性能比 11.5%)も確認している[6]。しかし、タンパク質では揺動構造の統計的な考慮は本質的であり、水和の自由エネルギーの算定なども意識すれば、多数のサンプルをより高速に処理する必要があることは明白で、DF/RI/CD などの因子分解系の積分近似[7-10]の導入は不可避である。他方、相関法も電子対間の相互作用を精確に取込めるクラスター展開[11]に代表される高次理論としたり、応用対象系を広げるために開殻参照や多配置参照への拡張[12]も図っていかなくてはならない。私たちは、これらの要素を軸とする“次世代の FMO 計算”の具現化に向けての準備を始めている。この要旨では、関連するトピックを紹介したい。

**【CD の導入】** ここ数年、MOLCAS のグループは CD の研究開発を積極的に展開しており、最新の MOLCAS7 での一番のアピールポイントともなっている[10,13]。CD のメリットは、補助関数を特別に導入しなくて済むこと、また正確な値への精度制御が直截であること、また微分計算への対応も容易であることなどが挙げられ、私たちは CDAM(Cholesky Decomposition with Adaptive Metric)として ABINIT-MPX への導入を進めている[14,15]。実装では、AO 積からの Cholesky 基底のセットアップ、クーロン計量に関する擬似 3 中心積分の生成、いわゆる B 行列の BLAS を用いた演算が要所となっている。通常の MP2 計算では(pq,rs)→(ia,jb)の積分変換がコストを決するため、私たちのものも含め「如何に積分変換を高効率に行うか」がエンジン開発の主課題であるが、CD や RI では  $B_{pq} \rightarrow B_{ia}^1$  と変換(I は Cholesky 基底の添字)する演算等を DGEMM 処理[16]出来るためにシンプルに高速化可能である。CDAM で AO 積総数に対する I の残存率は制御閾値  $10^{-3}$  の場合は高々数%で、通常の MP2 計算に対する加速は 8-10 倍となる(RI でも同様である[17])。一方、HF についてはクーロン項と交換項で処理が異なるが、SCF 反復計算としては相対的には MP2 よりもコストが大きくなってしまっており、収束性を改善する工夫を今後図っていかなくてはならない。MP2 エネルギー微分[18]も FMO 条件で実装済み[19]だが、将来的には CDAM によって、微分計算までのトータルで 10 倍の加速を確保したいと考えている。CDAM についてより詳しくは、本討論会 1P128 の要旨とポスター発表をご参照いただきたい。

**【高次 MP と CC の実装】** GAMESS ベースの FMO 高次相関計算は既に CCSD(T)レベル[11,20]で実現されている[21]。しかし、私たちはこれまでの ABINIT-MPX への種々の計算法の実装と同様、コードの拡張性と超並列/BLAS 実行[6]への適用性を重視する観点からフルスクラッチの開発

を行っている。プロトタイプでは既に、CCSD(T)をはじめQCISD(T)[22]やMP4(SDTQ)[23]あるいはCEPA[24]までを、Scuseriaらのスピン適合型の定式化[25]を基にして済ませているが、並列化した本実装としては先ず2電子励起限定のCCDエンジンを開発した。もちろん、より近似的なCEPA-1(D)やMP4(DQ)も計算出来る。2電子振幅ベクトルの反復最適化中、(ac,bd)積分の処理はFock様技法(EEO)[26]によってAO積分から直に行う。また、他の分子積分に関するテンソル型縮約計算は(ほぼ)全てDGEMM化してある。下表は、Xeon(3.4 GHz)による6-31G\*\*基底を使ったGly<sub>8</sub>のFMO計算のMPI並列実行でのタイミングデータ(時間は秒)である: AOの総数は625。

	MP2	MP4(DQ)	CEPA-1(D)	CCD
4 cores	876.0	4804.4	19458.2	22302.6
8 cores	466.1 (x1.88)	2491.4 (x1.93)	10176.0 (x1.91)	11588.5 (x1.92)

MP2に比べるとMP4(DQ)のコストは6倍、CEPA-1(D)では22倍、CCDでは25倍となっており、CCDについては形式的なN依存性比である「非反復N<sup>5</sup>対反復N<sup>6</sup>」よりもずっと低コストで済んでいるのはFMOスキームの恩恵である。Gly間の相互作用エネルギー解析では、MP2レベルに比べて高次相関を考慮した場合には相関補正の過大評価が是正されるが、簡便なSCS-MP2修正[27]でも好ましい結果が得られることを付記しておく。本要旨執筆時点では、1電子励起の部分とDIIS外挿[28]を追加で本実装する作業を始めており、この秋にはFMO-CCSDやFMO-MP4(SDQ)がABINIT-MPXで利用出来るようになる。並列化についてはMPIとOpenMPの混成使用も試み、多コア・大メモリ・SSDスクラッチなどの計算機環境の向上を前提としつつ、非反復N<sup>7</sup>コストの(T)補正の本実装についても遅滞なく行っていきたい。他方、Cu<sup>+2</sup>やNOなどを含む開殻系の計算対象[12]についてもGAMESSのUHF/ROHF実装[29]に習ってSCFエンジンの独自開発を進めており、将来的には開殻系と同様にMP2からCCSD(T)までをカバー出来ればと考えている。また、CYP等を扱うにはCASSCFとMRPTの実装も今後の重要課題である。

**【謝辞】** 本研究は、JST-CRESTプロジェクト「フラグメント分子軌道法による生体分子計算システムの開発」、科研費・特定領域「実在系の分子理論」、立教大学「未来分子研究」プロジェクトからの支援を受けている。また、FMOコミュニティの中でご教示・ご議論いただいている北浦先生とFedorov博士に謝意を表わしたい。

**【文献】** [1] 北浦ら, CPL 312 (1999) 319. [2] 北浦ら, CPL 313 (1999) 701. [3] Fedorovら, JPC A111 (2007) 6904. [4] Fedorov&北浦 編集, “The Fragment Molecular Orbital Method”, CRC press (2009). [5] 竹松ら, JPC B113 (2009) 4991. [6] 望月ら, CPL 457 (2008) 396. [7] Dunlapら, JCP 71 (1979) 3396. [8] Vahtrasら, CPL 213 (1993) 514. [9] Beebeら, IJQC 12 (1977) 683. [10] Pedersenら, TCA 印刷中. [11] Bartlettら, RMP 79 (2007) 291. [12] Fedorovら, JCP 122 (2005) 054108. [13] Acuilanteら, JCC 印刷中. [14] 沖山ら, ICQC2009/C98. [15] 沖山ら, CPL 投稿準備中. [16] Hättig, NIC Series 31 (2006) 245. [17] 石川ら, CPL 472 (2009) 195. [18] Frischら, CPL 166 (1990) 275. [19] 望月ら, CPL 投稿準備中. [20] Raghavachariら, CPL 157 (1989) 479. [21] Fedorovら, JCP 123 (2005) 134103. [22] Popleら, JCP 87 (1987) 5968. [23] Popleら, IJQC-symp 22 (1988) 377. [24] Ahlrichs, CPC 17 (1979) 31. [25] Scuseriaら, JCP 89 (1988) 7382. [26] Taylor, IJQC 31 (1987) 521. [27] Grimme, JCP 118 (2003) 9095. [28] Pulay, CPL 73 (1980) 393. [29] Schmidtら, JCC 14 (1993) 1347.