

ナノサイズ分子の構造最適化超並列計算プログラム開発

(分子研) ○石村 和也

Program development of geometry optimization calculations for nano-sized molecules

(IMS) ○Kazuya Ishimura

【序】京コンピュータを始めとするスーパーコンピュータは消費電力、発熱等の問題から、ノード数、コア数を増やすことで性能向上を図っており、その数は今も増え続けている。この傾向は研究室レベルの計算機システムでも同様である。現在、そしてこれからの計算機の性能を引き出して利用するためには、並列性能・実効性能の高いアルゴリズム及びプログラムが重要となる。そこで、2012年よりオープンソースの量子化学超並列計算プログラムの開発を進めており、今年度秋ごろに公開を目指して準備を進めている。様々な系へ適用する場合、構造最適化計算は不可欠であることから、本研究では Hartree-Fock、DFT エネルギー1次微分計算の MPI/OpenMP ハイブリッド並列アルゴリズムの開発とその実装を行った。さらに、構造最適化サイクル数削減のため、Redundant coordinate、Rational Functional Optimization 法の導入も行った。

【方法】これまでに開発した MPI/OpenMP ハイブリッド並列 Hartree-Fock エネルギー計算アルゴリズム[1]を基に、エネルギー1次微分計算アルゴリズムを開発した。計算コストが最も大きい2電子積分項の微分計算アルゴリズムを図1に示す。4重ループの最外ループを OpenMP でノード内並列し、第3ループを MPI ランクを用いてノード間並列することで、均等な計算負荷分散を図りつつ、分散のためのコストを大幅に削減した。4重ループ終了後に、ノード内は reduction により、ノード間は mpi_allreduce により微分値を集めている。DFT の数値積分計算では、図2のように原子、動径、角度の3重ループの最外ループを OpenMP で、最内ループを MPI ランクでノード内、ノード間それぞれ計算負荷分散を行った。

2電子積分項を微分すると軌道角運動量と係数の異なる2電子積分項になるため、エネルギー計算で用いている2電子積分項計算ルーチンを再利用することでプログラム開発を効率的に行った。2電子積分ルーチンは、全ての入出力データ(座標、基底関数、積分値)を引数で受け渡しする構造で、ライブラリ化されているため、適切な軌道角運動量と係数を引数で渡せば、必要な積分値を得ることができる。

Redundant coordinate の導入により初期ヘシアンを力場パラメータから作成し、Rational Functional Optimization 法の導入により確実にエネルギーが下がるように構造を変化させることで、効率的な構造最適化計算が実行できるようにした。

```

!$OMP parallel do reduction(+:gradient)
do μ=n, 1, -1 <--- OpenMP による振り分け
  do ν=1, μ
    μν=μ*(μ+1)/2+ν
    λstart=mod(μν+mpi_rank,nproc)+1
    do λ=λstart, μ ,nproc <---MPI ランクに
      do σ=1, λ          よる振り分け
        2 電子積分項(μν|λσ)微分計算+
        gradient 行列に足し込み
      enddo
    enddo
  enddo
enddo
call mpi_allreduce(gradient)

```

図 1 2 電子積分項の微分並列計算アルゴリズム

```

!$OMP parallel do reduction(+:gradient)
do iatom=1, natom <--- OpenMP
  do irad= 1,nrad
    icount= icount+1
    istart= mod(icount+mpi_rank,nproc)+1
    do iangle= istart,nangle <--- MPI
      DFT 微分項計算+
      gradient 行列に足しこみ
    enddo
  enddo
enddo
call mpi_allreduce(gradient)

```

図 2 DFT 項の微分計算アルゴリズム

【結果】京コンピュータ(2.0GHz, 8 コア/ノード)を用いて、 $C_{150}H_{30}$ (cc-pVDZ, 2250 基底)の B3LYP エネルギー 1 次微分計算時間を測定した。表 1 の通り、1、2 電子積分項の微分計算ともに 1 万 CPU コア以上でも非常に高い並列加速率を示した。Redundant coordinate と Rational Functional Optimization 法の導入で、表 2 のように Cartesian 座標と初期ヘシアンに単位行列を用いた場合に比べて大幅に構造最適化サイクル数は削減した。これら一連の実装により、巨大分子の構造最適化計算を並列化効率良く実行することが可能になった。

表 1 DFT エネルギー 1 次微分計算時間(秒)と並列加速率(カッコ内)

CPU コア数	1024	2048	4096	8192	16384
1 電子積分項	60.0	30.2	15.4	7.9	4.2
(DFT 項を含む)	(1024.0)	(2034.4)	(3989.6)	(7777.2)	(14628.6)
2 電子積分項	342.0	171.1	85.8	42.9	21.3
	(1024.0)	(2046.8)	(4081.7)	(8163.4)	(16441.7)
微分計算全体	402.0	201.3	101.2	50.8	25.5
	(1024.0)	(2044.9)	(4067.7)	(8103.3)	(16143.1)

表 2 構造最適化計算サイクル数 (B3LYP/cc-pVDZ、初期構造 HF/STO-3G)

	Cartesian	Redundant
Luciferin ($C_{11}H_8N_2O_3S_2$)	63	11
Taxol ($C_{47}H_{51}NO_{14}$)	203	40

[1] K. Ishimura, K. Kuramoto, Y. Ikuta, S. Hyodo, J Chem. Theory Comput. 6, 1075 (2010).