3E10　第一原理分子動力学計算の階層的並列化

（原子力機構 [1]，分子研 [2]）○志賀 基之 [1]，ルイスバラガン セルジオ [1,2]，石村 和也 [2]

Hierarchical parallelization of ab initio molecular dynamics

(Japan Atomic Energy Agency[1], Institute for Molecular Science[2])
Motoyuki Shiga[1], Ruiz-Barragán Sergio[1,2], Kazuya Ishimura[2]

【序】超並列計算機の登場により，その性能を最大限に発揮できる計算手法や計算アルゴリズムが求められている．なかでも，並列計算に向いているものとして，同じ系の異なる分子構造についてポテンシャル計算を同時に行う分子シミュレーション法が挙げられる．

1. 量子統計力学: 経路積分法[1]など.
2. 統計サンプリング: レプリカ交換法[2]など.
3. 非断熱動力学:　surface hopping 法[3]など.
4. 反応経路: Onsager-Machlup 法[4], 遷移経路サンプリング法[5], ストリング法[6]など.
5. 自由エネルギー: 拘束 MD 法[7]，multiple walker メタダイナミクス法[8]など.

このように，分子シミュレーション法は目的に応じて多岐にわたるが，経験ポテンシャルやモデルポテンシャルのもとで確立されてきたものが多い．しかし，今後の計算機能力向上を見据えれば，一部は，第一原理電子状態計算を基盤としたものに置き換わることが期待される．その際に解決すべき技術的課題は，すでに並列化された第一原理計算コードについて，レプリカ並列をも同時に行うことである．そこで，本研究では「レプリカ」と「電子状態」について階層的並列計算手法を確立し，拡張性を考慮した設計のもとでインタフェース・プログラム“PIMD”の開発に取り組む（経路積分法の例を図１に示す）.

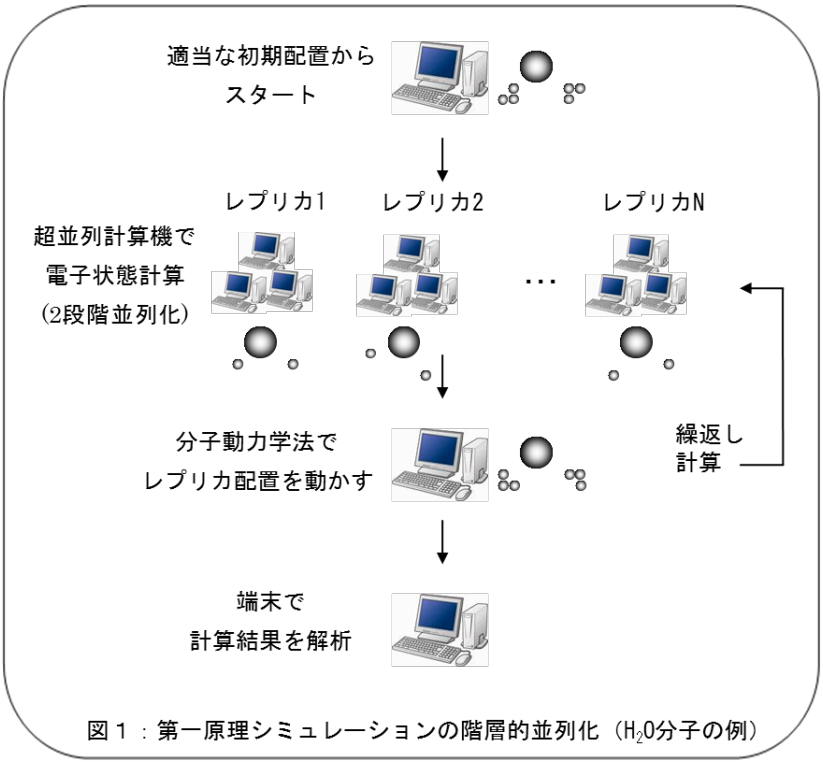

図１：第一原理シミュレーションの階層的並列化（H_2O分子の例）

【方法】PIMD コードは，以下のシミュレーション法とポテンシャルの組み合わせを備える．

A. シミュレーション法

- 古典分子動力学（ミクロカノニカル，カノニカル，定圧，応力一定アンサンブル）
- 経路積分法，（経路積分 MD 法，リングポリマーMD 法，セントロイド MD 法）
- レプリカ交換法（ハイブリッドモンテカルロ法）
- 非断熱 surface hopping 法，Ehrenfest 平均場法
- ストリング法
- 拘束 MD 法
- メタダイナミクス法
- 構造最適化，基準振動解析，フォノン計算

B. ポテンシャル

- 古典力場（非分極モデルのみ）
- 半経験的手法：MOPAC, DFTB（インターフェイスのみ）
- 密度汎関数法：VASP（インターフェイスのみ）
- 分子軌道法：SMASH, GAUSSIAN, GAMESS, TURBOMOLE, MOLPRO（インターフェイスのみ）
- ハイブリッド法：ONIOM 法，QM/MM 法（上記の組み合わせのみ）

なお，このコードは今年度中に無償ソース公開の予定である．

【結果】図 2 は PIMD コードと電子状態計算コード SMASH [9]の組み合わせを用いて，水クラスターについて，試行計算を行った結果である．系のサイズが大きくなればなるほど，分子動力学計算の実行に必要な CPU 数が増えるが，並列化効率は良くなる様子が見て取れる．

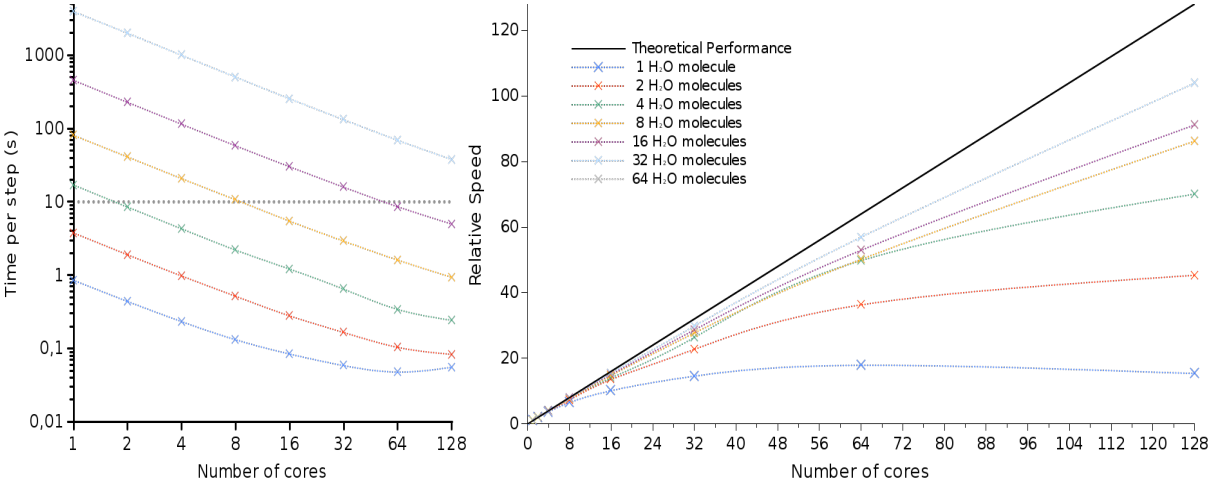

図 2：分子動力学計算における（左）ステップあたりの実時間（右）並列化効率のプロセス数依存性．

[1] D. Chandler, P. G. Wolynes, 74, 4078 (1981). [2] Y. Sugita, Y. Okamoto, Chem. Phys. Lett. 314, 141 (1999). [3] J. C. Tully, J. Chem. Phys. 93, 1061 (1990). [4] H. Fujisaki, M. Shiga, A. Kidera, J. Chem. Phys. 132, 134101 (2010). [5] C. Dellago, P. G. Bolhuis, F. S. Csajka, D. Chandler, 108, 1964 (1998). [6] W. E, W. Ren, E. Vanden-Eijnden, Phys. Rev. B, 66, 052301 (2002). [7] E. Carter, G. Ciccotti, J. T. Hynes, R. Kapral, Chem. Phys. Lett. 156, 472 (1989). [8] A. Laio, Proc. Nat. Acad. Sci. USA, 99, 12562 (2002). [9] K. Ishimura, http://smash-qc.sourceforge.net.