

## PC クラスタによる大規模分子軌道計算 (2) —Fock 行列並列生成に適した 2 電子積分計算アルゴリズム—

(NEC ソフト、NEC 基礎研\*) ○坂倉耕太、山口直人、山本純一、中田一人、高田俊和\*

### 【序】

エネルギー表式に現れる各種の積分を数学的に厳密に取り扱う非経験的分子軌道法は、分子の化学的性質の予測や、化学反応のメカニズムの理論的解明に極めて有力な手段であることは、これまでの多くの計算が示している。しかしながら、計算すべき 2 電子積分の数が用いる基底関数の 3 乗に比例して増加するため、膨大な演算が必要となり多大の計算時間を要する結果となっている。これが、非経験的分子軌道法の大規模分子への適応を妨げてきた主要因であるが 2 電子積分の独立性を活用した PC クラスタによる並列処理が定着するにつれて、生体分子などの大規模分子計算が行われ始めている。

Hartree-Fock 計算では 2 電子積分を計算し Fock 行列を生成する部分が、最も計算時間を要しており、全計算時間の 90% 以上を占めている。大規模計算の実現には、この部分の並列化による高速化が必須であり、Fock 行列の並列生成に適した積分パッケージの開発が強く望まれている。特に Fock 行列自体が PC クラスタの分散メモリに格納できない場合、従来の Integral Driven とは異なる Fock Matrix Element Driven に基づく積分計算アルゴリズムの開発が急務である。今回、この機能を実現するため Adams 等による Cold-Prism 方式[1]をベースに、並列化と高速処理に適した 2 電子積分の計算アルゴリズムを開発し、プログラムへの実装を行った。本講演では、その計算アルゴリズムとベンチマークの結果について報告する。

### 【実装手法と結果】

本研究では、Fock 行列及び密度行列が一括して PC クラスタの分散メモリ上に格納できない場合について、Fock 行列の分散並列生成と対角化に対応できる 2 電子積分計算パッケージの開発を中心課題として行っている。即ち、PC に搭載されるメモリサイズや Fock 行列と密度行列の分割方法などによって必要な 2 電子積分が異なるので、任意の積分タイプと分割方法に対応できる積分パッケージの開発が主たる目標である。この要求を満たすための 2 電子積分計算プログラムの機能として、

- (1) 任意の軌道範囲(rs|tu)に対して独立した計算が可能なこと。
- (2) 各計算パラメータが総軌道数に依存しないこと。
- (3) 軌道範囲に対応した積分のカットオフが可能なこと。

が挙げられる。

我々は、これまで OS モデル[2]による積分アルゴリズムを用いてきたが、今回、積分演算数を更に減少させるために Cold-Prism 方式を採用した。高速化のためには、

最も計算負荷の高い展開項の内側での計算をできるだけ外側のループで計算することが望ましい[3, 4]。今回の開発では Cold-Prism 方式の Kernels の係数である  $\eta$  を一部展開項の外側で計算するように改良した。それにより約 20% の高速化に成功した。また、大規模分子の計算を前提としているため、積分計算に必要な座標や軌道指数などに関するパラメータを PC のメモリ容量を越える場合があるので、前もって計算・保存しておくことができない。従って、指定された軌道範囲についてのみ計算パラメータを用意する必要があり、この点についても独自の改良を行った。今回用いた Prism 方式による漸化式を以下に示す。

$$\begin{aligned}
 & a'_{b'p'} (a + 1_i b | cd)_{c'd'q'}^m = \\
 & (B_i - A_i) \left\{ a^{(b'+1)(p'+1)} (ab | cd)_{c'd'q'}^m + (a'+1)b^{(p'+2)} (ab | cd)_{c'd'q'}^{m+1} \right\} + \\
 & (C_i - D_i)_{a'b'(p'+1)} (ab | cd)_{(c'+1)d'(q'+1)}^{m+1} + \\
 & (D_i - B_i)_{a'b'(p'+1)} (ab | cd)_{c'd'q'}^{m+1} + \\
 & a_i \left\{ a^{b'(p'+1)} (a - 1_i b | cd)_{c'd'q'}^m - a^{b'(p'+2)} (a - 1_i b | cd)_{c'd'q'}^{m+1} \right\} + \\
 & b_i \left\{ a^{b'(p'+1)} (ab - 1_i | cd)_{c'd'q'}^m - a^{b'(p'+2)} (ab - 1_i | cd)_{c'd'q'}^{m+1} \right\} + \\
 & c_{ia'b'(p'+1)} (ab | c - 1_i d)_{c'd'(q'+1)}^{m+1} + \\
 & d_{ia'b'(p'+1)} (ab | cd - 1_i)_{c'd'(q'+1)}^{m+1}
 \end{aligned}$$

軌道角運動量 5 以下 ((dp|pp)、(dp|ds)、(fp|ps) など) については、この方式を用いているが高軌道角運動量の積分については、プログラム開発の効率化を考慮して、一般的な展開法の採用を検討している。これらの詳細な計算アルゴリズムと並列化効率などベンチマークの結果について当日報告する。

### 【今後の予定】

今回紹介した方式を用いて 1 万軌道を越える大規模 Hartree-Fock 計算に対応できる g 軌道までの 2 電子積分の計算プログラムの開発を行う。更に、分子の安定化構造や振動解析を行うのに必要な 2 電子積分の原子核の座標による 1 次微分、2 次微分パッケージを開発する予定である。その演算数は 2 次微分では 1 次微分の 12 倍、通常積分の 144 倍程の増加する。そのため、更なる高速アルゴリズム、積分カットオフ機能をもった高速積分ルーチンを開発して行きたいと考えている。

### 【参考文献】

1. T. R. Adams, R. D. Adamson and P. M. W. Gill, J. Chem. Phys. **107**, 1 (1997)
2. S. Obara and A. Saika, J. Chem. Phys., **84**, 3963 (1986)
3. M. Head-Gordon and J. A. Pople, J. Chem. Phys. **89**, 5777 (1988)
4. U. R. M. Kim and Y. S. Lee, J. Comp. Chem. **14**, 1, (1993)