

(アドバンスソフト¹・東大生産研²・国立衛生研³・産総研⁴)
望月祐志^{1,2}, 中野達也³, 小池上繁¹, 甘利真司², 北浦和夫⁴

【はじめに】

これまで私達のグループでは、フラグメント分子軌道(FMO)法[1]に従い、効率の高い並列処理によって、タンパク質や核酸等の巨大生体分子の実時間計算を可能とする ABINIT-MP コード[2]を HF、HF-gradient(MD)レベルで開発してきている。生体系では水素結合や van der Waals 相互作用が重要であり、その記述には電子相関を考慮した扱いが本質的であるが、密度汎関数法は必ずしも適しておらず、配置展開に基づく Post-HF 法の中では MP2 がコスト的には最初の選択となる。そこで私達は、相関エネルギーと電子密度の計算がファイルレスで行える並列 MP2 アルゴリズム[3]を開発し、FMO-MP2 エンジンとして ABINIT-MP に組込んだ。

【MP2 アルゴリズムと実装】

MP2 の積分変換アルゴリズムは、望月らによって汎用 CI 用に提案されたレシピ[4]を翻案したもので、(1)多重閾値判断による実効演算数の低減、(2)最深部の DAXPY/DDOT 処理、(3)通信量の最小化、が図られている[3]。基底関数積分(pq,rs)の利用は、In-Core と Direct の扱いが出来る(もちろん、前者の方が高速)。MP2 の積分処理ループの構造を下にスケッチするが、(pq,rs)から MP2 エネルギーの計算に必要な(ia,jb)積分への変換は、 i についてブロック化した後、 s について並列化される。つまり、 b に関しては“部分変換”されたリストがワーカー内に作られるので、all-reduce (バリア同期)が必要となる。

```

Loop over [i]    Given block [parallelizable when needed]
  Loop over [s] [to be parallelized for worker processes]
    Loop over r
      Generate (pq,r[s]) list [canonical relation for pq]
      Do first (1/4) transformation of p [i] [screening & DAXPY]
      Do second (2/4) transformation of q a [DDOT]
      Do third (3/4) “partial transformation” of r j [screening & DAXPY]
    End of loop over r
    Do fourth (4/4) “partial transformation” for [s] b [screening & DAXPY]
  End of loop over [s] [“all-reduce” operation must be done for ([i]a,jb)]
  Calculate partial MP2 energy
End of loop over i

```

FMO では、フラグメント毎に独立に並列処理される。従って、FMO-MP2 計算は実際には 2 階層の並列化となっている。実装には MPI の標準ルーチンのみを使っているので、並列専用機から PC クラスタまで幅広いプラットフォームで実行出来る。

MP2 は非変分なので、電子密度の計算では CPHF を解いて $i a$ の応答要素を求める必要があるが、本エンジンではヘッシアンの近似により反復無しで評価しており、積分は(ia,bc)と(ia,jk)が追加が必要となる。なお、この密度を使う MP2-gradient も近々に実装する予定である。

もう一つの特徴は、Dijkstra らによる部分再規格化 MP2 エネルギー [5] を実装していることである。入力された分子構造に残存する歪みなどが原因で系に近接縮退性 (=HF の単一配置性の低下) が現われる場合、MP2 は相関エネルギーを過剰評価する傾向があるが、部分再規格化によってこれを低減することが可能である。通常の MP2 エネルギーと再規格化されたエネルギーを比較すれば、近接縮退性に関する“リトマス試験”として使える。

【FMO-MP2 のベンチマークテスト】

ABINIT-MP/FMO-MP2 エンジンを、32 台の Dual Xeon(3.06GHz)機を GigaEthernet で繋いだ PC クラスタ上で、6-31G 基底を用いてベンチマークテストしてみたところ、“十分に高速”であることが確かめられた [6]。水分子 1,024 個の水素結合クラスター(水 1 個 = 1 フラグメントで設定、3,072 原子、総関数 13,312)では、ターンアラウンド時間は 5.7 分である。水 1 分子あたりの平均の水素結合エネルギーとしては、HF の 19kcal/mol に対して MP2 では 23kcal/mol が得られ、精度的にもリーズナブルである。酸素原子の Mulliken 電荷は、HF の -0.91 から MP2 では -0.83 に減少し、相関の導入により系のイオン性が緩和されることを示している。タンパク質では、下図に示す、99 残基のサブユニット二つから成る HIV-1 プロテアーゼとその阻害剤であるロピナビル (青色部分) との錯体 (3,225 原子、総関数 17,423) の場合、僅か 14.3 時間で MP2 エネルギーが得られる。ビオチンとストレプトアビジンの錯体 (1,784 原子、総関数 10,019) では、MP2 エネルギーが 8.5 時間で、MP2 密度まで計算しても 19 時間で済む。

【CIS 計算】

今回の MP2 用積分変換アルゴリズムは、1 電子励起状態を探索する Direct CIS エンジンに容易に翻案・転用出来る。CIS でのベクトルの計算では、 (ia,jb) と (ij,ab) の積分リストが必要になるが、文献 [4] に従って $3/4$ 変換された (ia,js) と (ij,as) の寄与を直接加算する処理が並列実行される。CIS は、光合成系のクロロフィルダイマー (近傍) あるいは視物質のロドプシンなど、タンパク質に埋め込まれた“興味ある領域”のみに適用し、周囲は HF で止める。現在、こうした階層性を持った FMO スキームへの拡張を含め、ABINIT-MP へ CIS 機能を実装しているところである。さらに、Head-Gordon らによって提案された CIS(D) による相関補正 [7] の組込みも計画しており、CIS 振幅と 2 電子積分との縮約計算も並列ファイルレスに行えるようなアルゴリズムを現在検討している。

【謝辞】

本研究は、文部科学省 IT プログラム『戦略的基盤ソフトウェアの開発(FSIS)』プロジェクト (<http://www.fsis.iis.u-tokyo.ac.jp/>) の支援によって行われている。

【参考文献】

- [1] Kitaura et al. Chem.Phys.Lett. 313 (1999) 701
- [2] Nakano et al. Chem.Phys.Lett. 351 (2002) 475
- [3] Mochizuki et al. Theor.Chem.Acc., in press
- [4] Mochizuki et al. Theor.Chim.Acta 93 (1996) 211
- [5] Dykstra et al. Intern.J.Quant.Chem. 78 (2000) 226
- [6] Mochizuki et al., submitted for publication
- [7] Head-Gordon et al. Chem.Phys.Lett. 219 (1994) 21

