

「シミュレーション技術の革新と実用化基盤の構築」

平成 15 年度採択研究代表者

長嶋 雲兵

(産業技術総合研究所計算科学研究部門 総括研究員)

「グリッド技術を用いた大規模分子シミュレーションプログラムの開発」

1. 研究実施の概要

新規物質製造の低コスト化には、分子シミュレーション技術の高度化により、新規物質設計・製造や遺伝子治療の活性化ならびに医薬品開発において、開発時間の短縮や低コスト化等による収益率の向上が期待されている。そのため金属クラスターやタンパク質等の大規模分子系の現象を取り扱える系のサイズ拡大とパラメータの網羅的探索を可能とする分子シミュレーション環境の構築を目指し、グリッド技術を用いた大規模分子シミュレーションプログラムの開発を行う。具体的な開発項目は以下の5項目である。

- ① FMO 法の Grid 化と評価:GFMO の開発
- ② GFMO-MO の実装と評価:GFMO-MO の開発
- ③ 射影法による一般化固有値問題の解法:櫻井-杉浦法の開発
- ④ポテンシャル面探索分散処理システムの設計
- ⑤プロトンの波動性を考慮した方法(MC_MO 法)の FMO 法への導入

2. 研究実施内容

- ① FMO 法の Grid 化と評価:GFMO の開発

Fock 行列の生成は FMO-MO 計算において最も計算量の大きい部分である。これを効果的に Grid 化することで高速に計算する。

17年度は GridRPC の参照実装である Ninf-G を用いてグリッド環境下で動作する Fock 行列生成プログラムを作成し、量子化学の分野で広く利用されている分子軌道計算パッケージ GAMESS に実装した。プログラムはこれまで我々が行ってきた EHPC プロジェクトの成果物を Ninf-G(GridRPC/MPI hybrid)化し、将来的には EHPC システム(Fock 行列生成専用計算機システム)を組み込んだ実行も可能であるように設計した。

GAMESS には FMO-MO 法が実装されていないため、通常の SCF 計算で性能評価を行った。その結果、Fock 行列計算部分については Grid 環境下であっても負荷分散の良い実行が可能であった。一方で SCF における対角化が計算全体のボトルネックとなっていることが明らかとなった。

② GFMO-MO の実装と評価:GFMO-MO の開発

17年度は、20,000 軌道を越える大規模分子系に対する FMO-MO 計算を行い、その計算時間などの性能を評価した。その結果、FMO-MO 法のうち、FMO における密度行列を基にした Fock 行列計算は、並列化効率が非常に高く、大規模 PC クラスタを用いることで、計算を行うことができた。一方、生成した Fock 行列、および重なり行列を用いた一般化固有値問題求値は、Cholesky 分解、Householder 変換等を用いた従来法では 15,000 秒と多くの時間を費やした。したがって、櫻井-杉浦法のような並列性が高く、一部の固有値、固有ベクトルを求めるための解法が必要であることが示唆された。

また、STO-3G 基底関数を用いた Lysozyme 分子(129 アミノ酸残基、1,961 原子、6,005 関数)の従来法(Hartree-Fock 法)と FMO-MO 計算を行い、比較的大規模な系を用いた FMO-MO 法の精度検証を行った。その結果、FMO-MO 法が従来法による軌道エネルギー分布をよく再現していることが判った。また、FMO 法で得られる各モノマーとダイマーの軌道エネルギー分布は、従来法のものとは違うが、フロンティア軌道の位置の推定には十分な精度を持っていることも分かった。

さらに Lysozyme 分子に溶媒分子を加えた FMO-MO 計算を行い、大規模分子における溶媒効果について調べた。比較的小さなタンパク質である Lysozyme(129 アミノ酸残基、1,961 原子、STO-3G 基底関数にて 6,005 関数)が、10 Å の溶媒和層を取り込むと STO-3G 基底関数にて 20,758 関数と非常に大規模な計算となったが、FMO-MO 法を用いることにより計算が可能となった。その結果、溶媒分子がない状態においては、非常に疎であった HOMO および LUMO 近辺の軌道エネルギー準位が、溶媒和による安定化で非常に密になることが分かった。そのため、このような系においては、HOMO および LUMO のみではなく、HOMO および LUMO 近辺の複数の軌道が重要となることが示唆された。

③ 射影法による一般化固有値問題の解法:櫻井-杉浦法の開発

17年度は、広域ネットワークを介して PC クラスタを利用するグリッド環境において提案手法のスケラビリティを改善するために、グリッド RPC システムと MPI のハイブリッドアルゴリズムを提案した。これを Ninf-G と MPI を用いて実装して分子軌道計算で現れる問題に対して適用し、数値実験により高い並列効率が得られることを示した。また、Rayleigh-Ritz アルゴリズムを後処理として組み合わせることで方法の精度改善を行う方法を提案した。これにより、従来よりも幅広い範囲でのパラメータ選択が可能となった。

対角化計算では非線形逆問題として領域内部の固有値分布を推定するが、その逆問題の誤差評価や精度改善法についてもあわせて研究を行い、計算手法の開発を行った。ここで現れる大規模線形方程式の反復解法に対して、リスタートによって漸化式計算を安定化させる方法と対角シフトによる前処理法についてその効果を検討し、有効性を確認した。

④ポテンシャル面探索分散処理システムの設計

17年度は、ポテンシャル面探索の探索に必要な膨大なリソースを分散処理で解決するため、平成 16 年度の CoH に引き続いて、CoCN、FeCN などを取り上げて、問題点をあげてその解決を図った。分子シミュレーションの立場から、実験と同等またはそれ以上の精度を上げるためには 64 ビット

トCPUを持つノード間の協調的分散処理が必要であることが分かった。またデータ量が多いので、大容量バッファを有する高速なネットワークが必要であることがわかった。

⑤プロトンの波動性を考慮した方法(MC_MO 法)の FMO 法への導入:

17年度は、FMO-MC_MO 法のエネルギー、グラジエント計算の高速化のために、esp-aoc、esp-ptc、dimer-es の3種類の近似方法を開発した。種々の近似を用いた FMO-MC_MO 計算は、通常の FMO 計算の精度を十分に満足することが明らかとなった。また、FMO-MC_MO 計算で用いられるプロトン、デュートロンなどの原子核に対する基底関数の開発を行った。

3. 研究実施体制

「長嶋」グループ

①研究分担グループ長:長嶋 雲兵(産総研、総括研究員)

②研究項目:

- 1)FMO 法の Grid 化と評価:GFMO の開発
- 2)GFMO-MO の実装と評価:GFMO-MO の開発
- 3)ポテンシャル面探索分散処理システムの設計
- 4)プロトンの波動性を考慮した方法(MC_MO 法)の FMO 法への導入

「櫻井」グループ

①研究分担グループ長:櫻井 鉄也(筑波大学、教授)

②研究項目:射影法による一般化固有値問題の解法:櫻井-杉浦法の開発

4. 主な研究成果の発表

(1) 論文(原著論文)発表

- 稲富雄一, 小原繁, 長嶋雲兵,
2 電子積分計算プログラムの性能評価,
日本コンピュータ化学会 論文誌(Journal of Computer Chemistry, Japan), Vol. 4, No. 4,
pp.175-178, 2005.
- 稲富雄一, 佐々木徹, 長嶋雲兵,
Partially Direct SCF 法の性能評価,
日本コンピュータ化学会 論文誌(Journal of Computer Chemistry, Japan), Vol. 4, No. 4,
pp.189-196, 2005.
- 稲富雄一, 梅田宏明, 渡邊寿雄, 櫻井鉄也, 長嶋雲兵,
FMO-MO 法による大規模分子軌道計算,
情報処理学会論文誌:コンピューティングシステム, Vol. 46, No. SIG 7 (ACS 10), pp.
44-51, 2005.

- 稲富雄一, 梅田宏明, 渡邊寿雄, 櫻井鉄也, 長嶋雲兵,
FMO-MO 法における大規模分子軌道計算 ー解くべき固有値問題の特徴ー,
日本応用数学会論文誌、Vol. 15, No. 2, pp 169-179, 2005.
- 中村健太, 本田宏明, 梅田宏明, 小松晴信, 村上和彰,
分子軌道計算専用計算機用 LSI(ERIC)の開発,
日本コンピュータ化学会 論文誌(Journal of Computer Chemistry, Japan), Vol. 4, No. 4,
pp.155-164 , 2005.
- 梅田宏明, 稲富雄一, 本田宏明, 長嶋雲兵,
分子軌道計算専用計算機のためのフォック行列並列計算アルゴリズムの開発,
日本コンピュータ化学会 論文誌(Journal of Computer Chemistry, Japan), Vol. 4, No. 4,
pp.179-188, 2005.
- Takayoshi Ishimoto, Hiroaki Tokiwa, Hiroyuki Teramae, and Umpei Nagashima,
Theoretical study of intramolecular interaction energies during dynamics simulations of
oligopeptides by the fragment MO-Hamiltonian algorithm (FMO-HA) method, The Journal
of Chemical Physics, **122**, 094905, 2005.
- Takayoshi Ishimoto, Masanori Tachikawa, Hiroaki Tokiwa, and Umpei Nagashima,
Kinetic and geometrical isotope effects in hydrogen-atom transfer reaction, as calculated
by the multi-component molecular orbital method, Chemical Physics, **314**, 231, 2005.
- Takayoshi Ishimoto, Masanori Tachikawa, Hiroaki Tokiwa, and Umpei Nagashima,
Isotope Effect on Hydrogen (Deuterium)-Absorbing Pt Clusters Calculated Using the
Multi-Component Molecular Orbital Method, Journal of the Physical Society of Japan, **74**,
3112, 2005.
- Takayoshi Ishimoto, Masanori Tachikawa, and Umpei Nagashima,
A fragment molecular-orbital-multicomponent molecular-orbital method for analyzing H/D
isotope effects in large molecules, The Journal of Chemical Physics, **124**, 014112,
2006.
- Takayoshi Ishimoto, Masanori Tachikawa, and Umpei Nagashima,
Analysis of exponent values in Gaussian-type function for development of protonic and
deuteronic basis functions, International Journal of Quantum Chemistry, 1234, 2006.
- 櫻井鉄也, 多田野寛人, 早川賢太郎, 佐藤三久, 高橋大介, 長嶋雲兵, 稲富雄一, 梅田
宏明, 渡邊寿雄,
大規模固有値問題の master-worker 型並列解法,
情報処理学会 ACS 論文誌, Vol. 46, No. 10, pp. 1-8 , 2005.
- 多田野寛人, 櫻井鉄也,
Lanczos プロセスのリスタートによる CGS 法の安定化,
日本応用数学会論文誌, Vol. 15, No. 2, pp. 85-99 , 2005.

- 大濱潤二, 櫻井鉄也, 奈良高明,
双極子推定逆問題に対する直接解法の誤差評価,
日本応用数学会論文誌, Vol. 15, No. 3, pp. 483-494, 2005.
- 呂毅斌, 伊東拓, 伊藤祥司, 櫻井鉄也,
Pade 近似を用いた数値等角写像計算の Arnoldi 法による精度改善,
日本応用数学会論文誌, Vol. 15, No. 3, pp. 495-500, 2005.
- H. Tadano and T. Sakurai,
A method for avoiding breakdown in product- type iterative methods and its behavior for
Toeplitz linear systems,
Appl. Num. Anal. Comp. Math., Vol. 2, No. 2, pp. 254-261 (2005).
- Y. Lu, T. Itoh, S. Itoh, T. Sakurai,
Improving the accuracy of numerical conformal mapping by Pade approximation using the
Arnoldi method,
J. Inform. Comput. Sci., Vol. 2 No. 2, pp. 289-294 (2005).
- T. Sakurai, K. Hayakawa, M. Sato and D. Takahashi,
A parallel method for large sparse generalized eigenvalue problems by OmniRPC in a grid
environment,
Lecture Notes in Computer Science, No. 3732, pp. 1151-1158 (2005).
- T. Sakurai, Y. Kodaki, H. Umeda, Y. Inadomi, T. Watanabe and U. Nagashima,
A hybrid parallel method for large sparse eigenvalue problems on a grid computing
environment using Ninf-G/MPI,
Lecture Notes in Computer Science, No. 3743, pp. 338-345 (2006).
- Koki Tsukamoto, Toshio Watanabe, Umpei Nagashima and Yutaka Akiyama,
Hartree-Fock and density functional theory calculations for the reaction mechanism of
nitric oxide reductase cytochrome P450nor from Fusarium oxysporum,
Journal of Molecular Structure: THEOCHEM, Vol. 732, No. 1-3, pp 87-98, 2005.