

GRRM 法の新展開:一般最適化 GOPT と超並列 NeoGRRM の開発

(豊田理研) 大野 公一

[序] 特定の化学式で表される原子集団について、どのような化学種が可能であるか、それらはどのように相互変換するか、各化学種はどのように分解するか(逆向きに、どのように過不足なく合成されるか)は、化学の基本問題である。この問題は、量子化学計算で求められるポテンシャル表面を解析し、平衡構造(EQ)、遷移構造(TS)、及び、各 TS から始まる固有反応座標(IRC)を求めれば、原理的には、すべて解決できるはずである。しかし、Jensen が 1999 年にその著書において指摘していたように、ポテンシャル表面上の TS をすべて求めることは、3~4変数を超えると不可能であるとされていた[1]。幸い、この定説?は、超球面探索アルゴリズム(SHS)に基づく GRRM 法によって崩壊し、その後、多数の系について、反応経路の自動探索を行うことができるようになった[2-4]。

本講演では、SHS の着想が誕生した 2002 年から丁度 10 年が経過したことを記念し、SHS を一般化した一般最適化プログラム GOPT の発展性について述べるとともに、GRRM 法の新たな展開へむけて開発中の超並列 NeoGRRM について報告する。

[一般最適化 GOPT] 超球面探索法 SHS[2]は、多原子系のポテンシャル表面上の平衡点 EQ から遷移構造 TS へ向けて、ポテンシャルの非調和下方歪み(ADD)をガイドラインとして、反応経路に沿って登坂する方法である。多原子系においては、平衡点 EQ で基準座標解析を行い、得られた基準座標をその固有値の平方根でスケールした座標を用いることで、最小固有値の基準座標に偏らず、全方位を均等に扱って ADD を検出している。一般最適化 GOPT では、多原子系のような基準座標という概念が適用できないが、多変数の一価関数の極小点における2次微分行列 Hessian の固有値と固有ベクトルを用いることで、SHS 法と同様に、多変数の曲面上で、平衡点から1次鞍点へ向けての自動探索を実現している。鞍点に到達したあとは、IRC 追跡同様の手法でその先の EQ もしくは解離構造(DC)へ到達し、新しい EQ が得られたらその周りの SHS 探索を繰り返すことで、global な最適化を進めることができる。GOPT は、部分構造を凍結した原子集団が多数集まった超構造の最適化に有効な手法であり、分子集団からなる分子結晶の構造予測にも適している。また、化学構造の最適化だけでなく、多数のパラメータを含むスペクトル解析モデルの最適化や、科学的事象に限らず、様々な問題を記述するモデルの最適化にも適用できる。

[超並列 NeoGRRM] 1つの EQ からその周囲の SHS 探索を開始し、次世代の EQ について、1つの EQ 周りの SHS 探索を直列的に順次繰り返すことで、全面的な探索を行う方式でプログラム化され、GRRM1.22 として利用されている。しかし、多数のコアを保有する計算機では、EQ の周囲の SHS 探索を同時に複数行うことで全面探索を効率化することができる。GRRM11 では、同一ノード内の複数のコアを使用して、GRRM 法の並列化を行っており、多数の平衡構造や遷移構造を自動探索することに威力を発揮している。超並列 NeoGRRM は、ノードの壁を破って、GRRM の自動探索を行うものであり、GRRM11 では、実質的に 64 コア程度での並列化にとどまっていたものを、何千、何万コアといった、超大規模計算システムにも適合する手法である。

[1] F. Jensen, Introduction to Computational Chemistry, Wiley, 1999.

[2] K. Ohno and S. Maeda, Chem. Phys. Lett. 384, 277 (2004).

[3] S. Maeda and K. Ohno, J. Phys. Chem. A 109, 5742 (2005).

[4] K. Ohno and S. Maeda, J. Phys. Chem. A 110, 8933 (2006).