

演 題	LCIシステムの開発 - #1 積分変換と閉殻用求解モジュール	
発 表 者 (所 属)	望月祐志、*長嶋雲兵 (アドバンスソフト・東大生産研、*産総研グリッド研究センター)	
連 絡 先	153-8904 東京都目黒区駒場 4-6-1 東京大学 国際・産学共同研究センター (fullmoon@fsis.iis.u-tokyo.ac.jp)	
キ ー ワ ー ド	分子軌道計算、電子相関、積分変換、配置間相互作用	
開 発 意 図 適 用 分 野 期 待 効 果 特 徴 な ど	<ul style="list-style-type: none"> ・ 国産の汎用 Direct-CI システムの開発 ・ 代表化エネルギー表現、積分駆動型の処理 ・ 生体分子、金属錯体、表面系の取り扱い 	
環 境	適 応 機 種 名	PC から大型計算機まで (開発環境は、Pentium-3/RedHat)
	O S 名	Linux/Unix
	ソ ー ス 言 語	Fortran (Pentium 系環境では IFC でのコンパイルが望ましい)
	周 辺 機 器	
流 通 形 態 (右 の い ず れ か に を つ け て く だ さ い)	<ul style="list-style-type: none"> ・日本コンピュータ化学会の無償利用ソフトとする ・独自に頒布する ・ソフトハウス、出版社等から市販 ・ソフトの頒布は行なわない ○その他 	<p style="text-align: center;">具 体 的 方 法</p> 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)」の成果物として公開される予定
	<ul style="list-style-type: none"> ・未定 	

((はじめに)) 配置間相互作用(CI: configuration interaction)は、配置展開に基づいて系の多電子波動関数を記述する最も直截かつ柔軟なやり方である。多電子励起の不足による size-inconsistency の補正についても CPF(coupled pair functional)などの処方箋がある[1]。CI の求解では、ハミルトニアン行列 $\{ H_{IJ} \}$ と反復修正中の試行的 CI ベクトル $\{ T_I \}$ の積である ベクトルを繰り返し計算する必要があり、Conventional-CI 法では分子積分といわゆる結合係数の積和から一旦あらわに行列要素を作ってから解く。当然、利用可能なファイル容量が扱える問題規模を決め、 10^5 オーダーが上限となる。これに対し Direct-CI では、行列要素を構成する積分の寄与を ベクトルの中に直接取り込んでいく。ここで計算コストでは、添字を 4 つ持つ 2 電子積分の扱いが支配的であるのは言うまでもない。つまり、

$$I + B_{IJ}^{ij,kl} * g_{ij,kl} * T_J \quad (B \text{ は結合係数、} g \text{ は 2 電子積分})$$

を次々に計算していく処理である。MOLPRO[2]や COLUMBUS[3]など欧米の CI プログラムは Direct-CI 求解なので、 $10^6 \sim 10^7$ 次元の問題も容易に扱うことが出来る。ただ残念なことに、国産では汎用の Direct-CI プログラムはこれまでのところ開発されていない。

((LCI システムの構想)) LCI は、望月が提案した代表化エネルギー表現 (結合係数と分子積分の積和に関する処理方法) [4]に基づいて開発している汎用 Direct-CI システムである。基本的な考え方は、

- Slater 行列式ではなく CSF を CI 展開に使う (展開長の低減、スピンの汚染問題の抜本的回避)
- 様々な CI 波動関数を組み立てられる (分極型 CI、スピン関数の制限)
- エネルギー表現は粒子-空孔の定式化で代表化する (結合係数データの低減)
- 積分駆動型でベクトル生成を行う (無駄な演算の回避、将来の積分直接計算型への拡張可能性)
- size-inconsistency は CPF 等で是正 (ベクトル生成ルーチン群の CI との共用)
- 並列化を意識する (アルゴリズムレベルからの高効率の指向)

であるが、「自在に手を入れられる Direct-CI プログラムを確保する」ことも目的としては重要である。開発の最終段階では、他のプログラムが得手としていない中大型の分子の様々な CI 問題を 6-31G** に代表される SVP(split-valence plus polarization)程度の基底関数で扱えることを主に想定しており、具体的にはバイオテクノロジー関係で小ペプチドやポルフィリン等の生体機能分子、あるいはナノテクノロジー関係で遷移金属の複核錯体や表面吸着系を考えている。

((現状)) LCI の開発は現時点では第一段階にあり、モジュールとして開発が済んでいるのは積分変換のステップ、ならびに閉殻 HF 配置参照の CI/CPF 求解を行うプロトタイプである。基底関数積分と分子軌道係数は、GAMESS[5] からファイルを通じて得るようになってきている。開発作業は、Pentium-3(800MHz)/RedHat-Linux 上でいき、g77 でデバッグ後に IFC[6]でコンパイルして使用している。

積分変換は山本/長嶋のアルゴリズム[7]に基づいて演算数を最小化し、DAXPY と DDOT(BLAS[8])によって高速化を図っている。CPU 時間としては、6-31G**基底の水の 3 量体 (75 基底/69 軌道) の変換は上記マシン上で 23.5 秒、同 4 量体 (100 基底/92 軌道) では 78.1 秒といったところである。

閉殻 CI/CPF では、エネルギー表現を直にコーディングしている。計算コストとしては、内部軌道と外部軌道の添字を各二つ持つ $\{g_{ab,ij}, g_{ai,bj}, g_{aj,bi}\}$ に関する ij ab 型励起間の行列要素の処理が支配的なので、ここには DAXPY と DDOT を導入している。暫定的なタイミングデータではあるが、水の 2 量体 (6-31G**): 内部軌道数 8/外部軌道数 38 で 46,665 次元の CI が 8 回ベクトルを計算して 31.5 秒、アラニン分子 (6-31G 基底): 内部軌道数 18/外部軌道数 44 の 314,821 次元の CPF が 14 回の反復で 1193.3 秒で解ける。Pentium-4 マシンであれば、SSE2 パイプラインによりクロック数倍以上の速度向上が見込まれる。

((今後)) 先ず閉殻用の求解エンジンをリファイン/高速化しつつまとめる作業を行い、その後に汎用版の開発を進めていく。また、DALTON[9]など他のプログラムとのインターフェースも考えている。

((謝辞)) 本研究の一部は、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)」において実施されたものであり、関係各位に深謝する[10]。

((文献)) [1] *Lecture Notes in Quantum Chemistry I, II*, B. O. Roos ed., Springer-Verlag, Berlin (1992&1994). [2] MOLPRO, <http://www.molpro.net/> [3] COLUMBUS, <http://www.itc.univie.ac.at/~hans/Columbus/columbus.html> [4] Y. Mochizuki, N. Nishi, Y. Hirahara, T. Takada, *Theor. Chim. Acta*, 93, 211 (1996). [5] GAMESS, <http://www.msg.ameslab.gov/GAMESS/GAMESS.html> [6] IFC, <http://www.intel.com/software/products/compilers/flin/> [7] S. Yamamoto, U. Nagashima, T. Aoyama, H. Kashiwagi, *J. Comp. Chem.*, 9, 627. [8] BLAS, <http://www.netlib.org/blas/> [9] DALTON, <http://www.kjemi.uio.no/software/dalton/dalton.html> [10] FSIS, <http://www.fsis.iis.u-tokyo.ac.jp/>