

ОЦЕНКА ВЫЧИСЛИТЕЛЬНЫХ ЗАТРАТ КВАНТОВОХИМИЧЕСКИХ ПРИБЛИЖЕНИЙ, РЕАЛИЗОВАННЫХ В ПАКЕТЕ ПРОГРАММ «ПРИРОДА»

Панкратьев Е. Ю.

Институт нефтехимии и катализа РАН, г.Уфа

paneyu@gmail.com

Собраны и проанализированы служебные данные квантовохимических расчётов, проведённых в программе ПРИРОДА 06, и путём аппроксимации получены оценочные выражения зависимостей вычислительных затрат от размера базиса волновой функции молекулярной системы для различных квантовохимических приближений. Полученные зависимости могут быть использованы для прогнозирования требований к оперативной и дисковой памяти вновь проводимых расчётов с целью экономии вычислительных ресурсов

Квантовохимический пакет «ПРИРОДА» [1] хорошо зарекомендовал себя для исследования сложных молекулярных систем методом функционала плотности (DFT), а также методом теории возмущений Мёллера-Плессета второго порядка (MP2) [2]. Используемый в программе метод ускорения [3, 4] предоставляет возможность проводить расчёт больших металлокомплексных систем со сравнительно низкими вычислительными затратами. Программа «ПРИРОДА», как и большинство квантовохимических пакетов, до окончания расчёта не информирует пользователя о необходимых ресурсах, а в случае их нехватки происходит прекращение выполнения программы и расчёты во многих случаях требуется производить заново. В связи с этим актуальной задачей является разработка методики оценки требуемых вычислительных ресурсов для решаемых пользователем квантовохимических задач.

Вычислительные затраты квантовохимического расчёта не зависят от особенностей химического строения молекулярной системы, а определяются лишь размером базиса электронной структуры и методом расчёта. Так, известно, что вычислительные затраты классических алгоритмов теории функционала плотности (DFT) $\sim O(N^3)$, а теории возмущений Мёллера-Плессета второго порядка (MP2) $\sim O(N^5)$, где N – размер электронной структуры (количество базисных функций, с помощью которых задают волновую функцию молекулы).

С помощью ранее разработанной программы [5, 6] были собраны и проанализированы служебные данные квантовохимических расчётов в различных приближениях, реализованных в пакетах программ «ПРИРОДА 06», «ПРИРОДА 07» и путём аппроксимации получены оценочные выражения зависимости вычислительных затрат от размера основного базиса волновой функции молекулярной системы. В качестве объектов исследования были выбраны различные цирконийорганические и алюминийорганические комплексы, алкены, фуллерены C₆₀ (в базисе 3 ζ молекула C₆₀ задаётся 1500 гауссовыми примитивами), C₇₀ и их производные.

1. Вычислительные затраты теории функционала плотности.

Изучены зависимости вычислительных затрат реализованного в квантовохимическом пакете «ПРИРОДА 06» алгоритма теории функционала плотности при решении задач расчёта энергии, оптимизации структуры, релаксированном сканировании и сканировании по координате реакции (I, 515 вычислительных экспериментов), решении колебательной задачи (II, 530) и расчёте химических сдвигов ядерного магнитного резонанса (III, 63) с использованием приближения RVE/3 ζ от размера основного базиса электронной структуры (рис. 1 – 3).

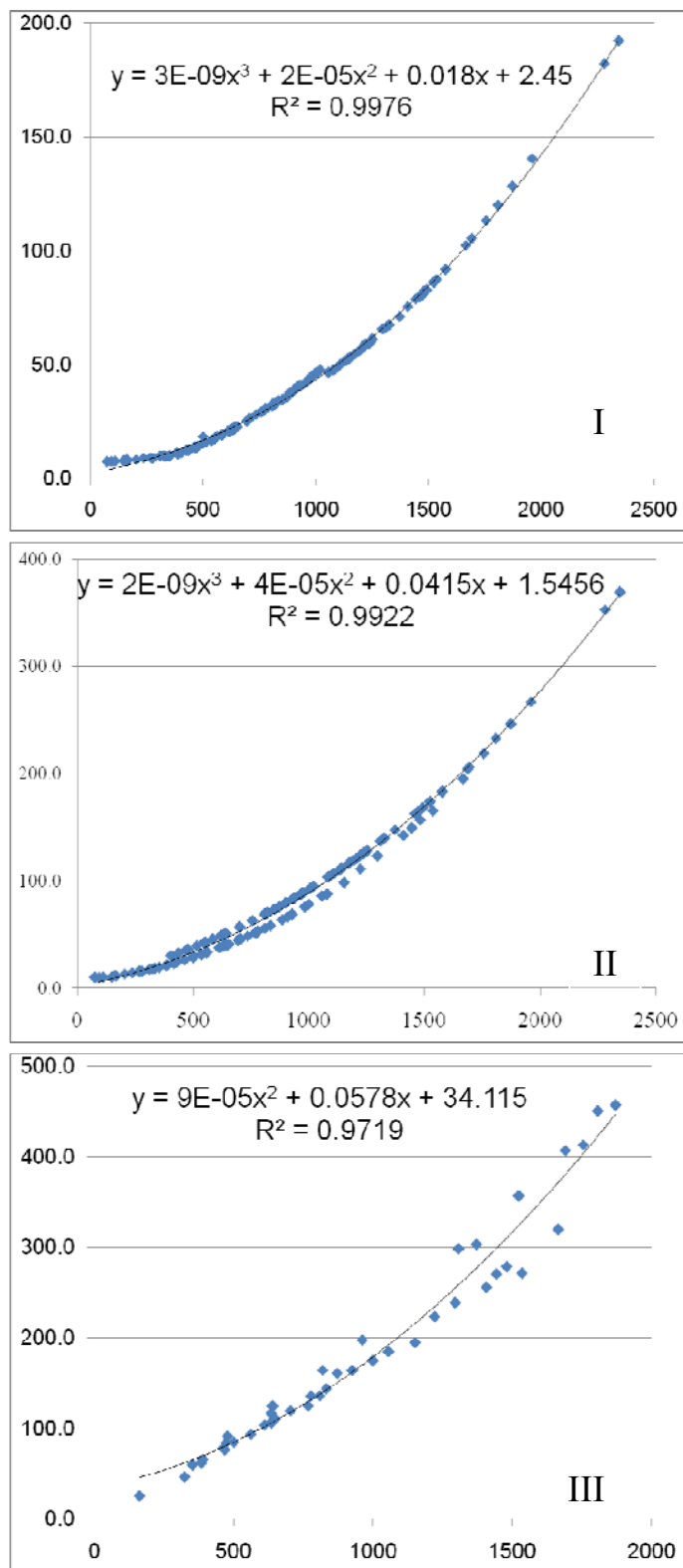


Рис.1. Зависимость суммарных затрат оперативной памяти (Мб) при решении различных задач с использованием квантовохимического приближения PBE/3 ζ от размера основного базиса электронной структуры

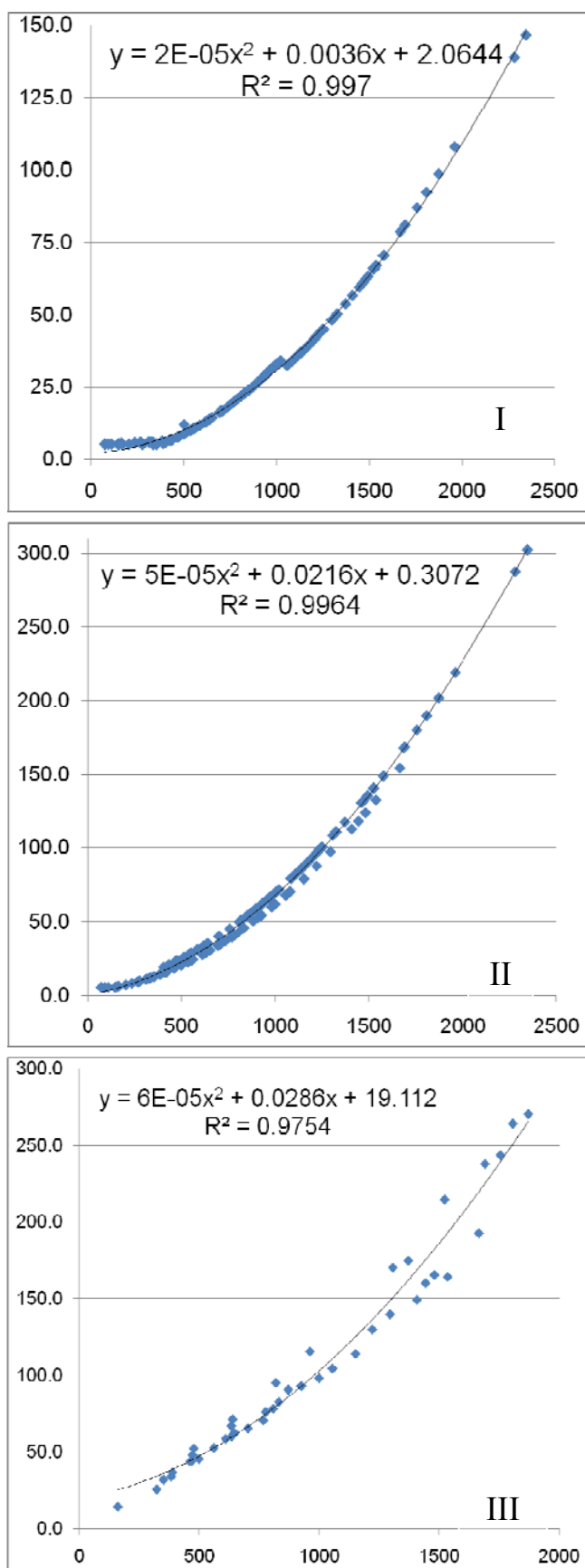


Рис.2. Зависимость затрат оперативной памяти (Мб) на управляющем узле при решении различных задач с использованием квантовохимического приближения РВЕ/3 ζ от размера основного базиса электронной структуры

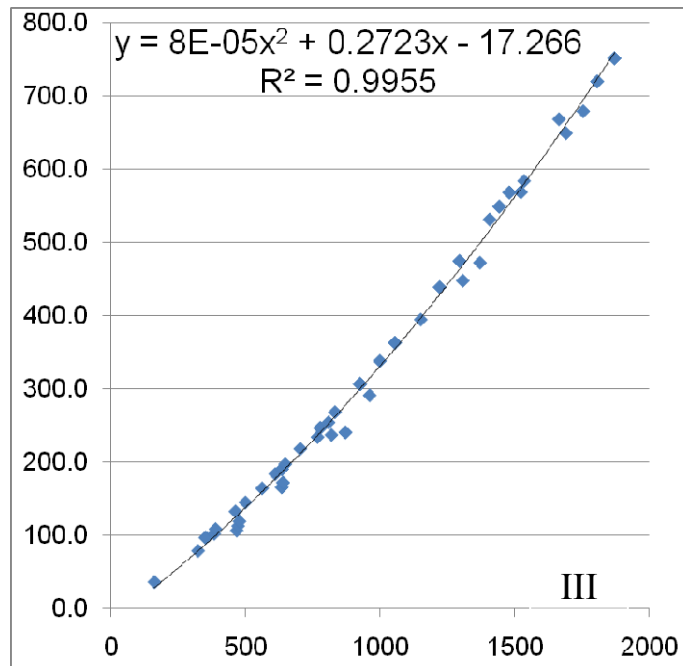
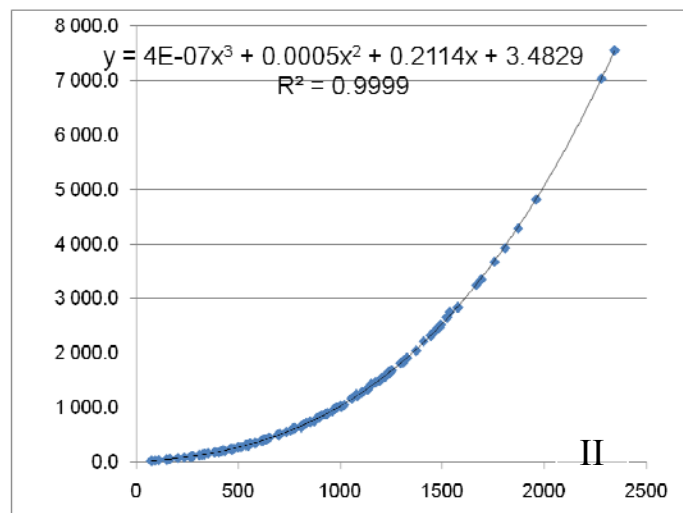
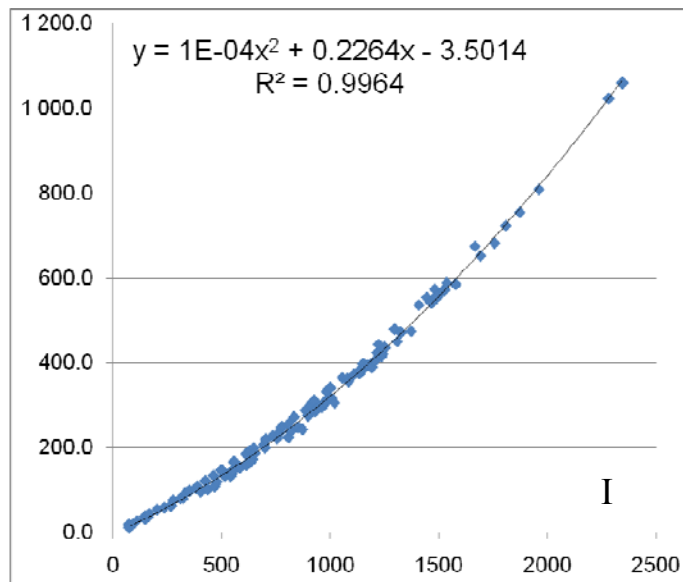
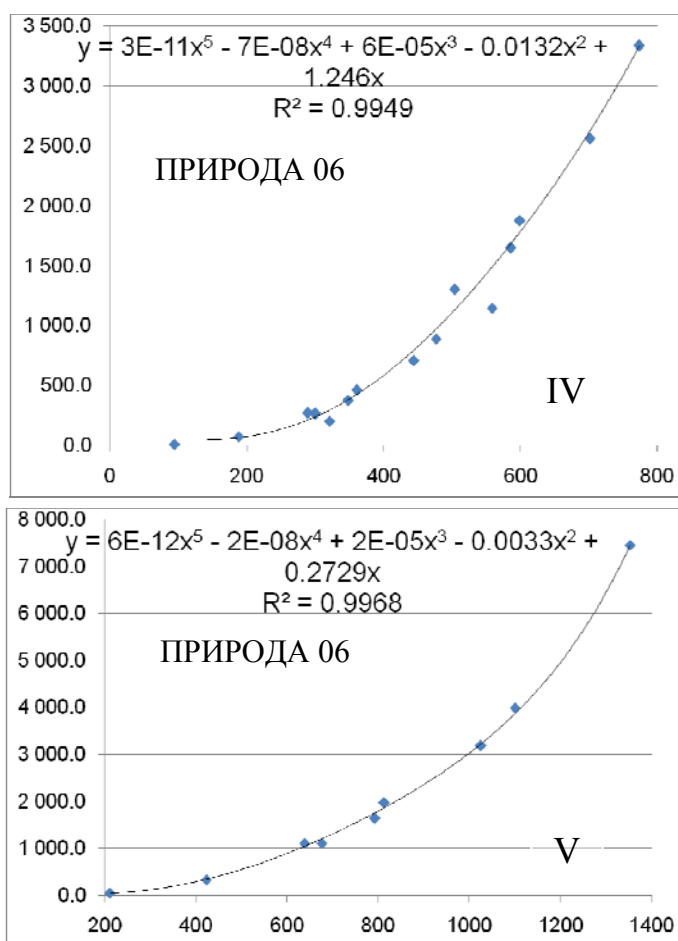


Рис.3. Зависимость суммарных затрат дисковой памяти (Мб) при решении различных задач с использованием квантовохимического приближения РВЕ/3 ζ от размера основного базиса электронной структуры

Из рисунков 1 – 3 видно, что для задач I и II вычислительные затраты очень хорошо коррелируют с базисом электронной структуры, а следовательно, по размеру электронной структуры можно предсказать требуемые для проведения расчёта вычислительные ресурсы. Неплохая корреляция наблюдается также и для задачи III.

2. Вычислительные затраты теории возмущения Мёллера-Плессета второго порядка.

Изучены зависимости вычислительных затрат реализации теории Мёллера-Плессета второго порядка при решении задач расчёта энергии, оптимизации структуры при использовании алгоритма конвенционального SCF и приближений RI-MP2/Λ1 (IV, 69 и 55 вычислительных экспериментов, проведённых с использованием пакетов программ «ПРИРОДА 06» и «ПРИРОДА 07» соответственно) и RI-MP2/Λ2 (V, 31 и 84) с учётом релятивистских поправок от размера базиса электронной структуры (рис. 4 – 6).



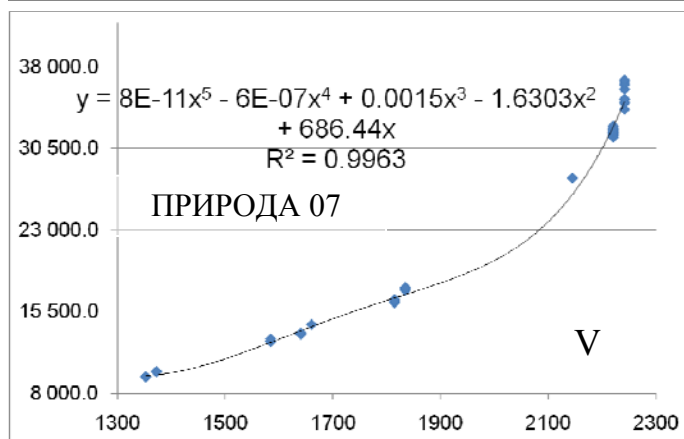
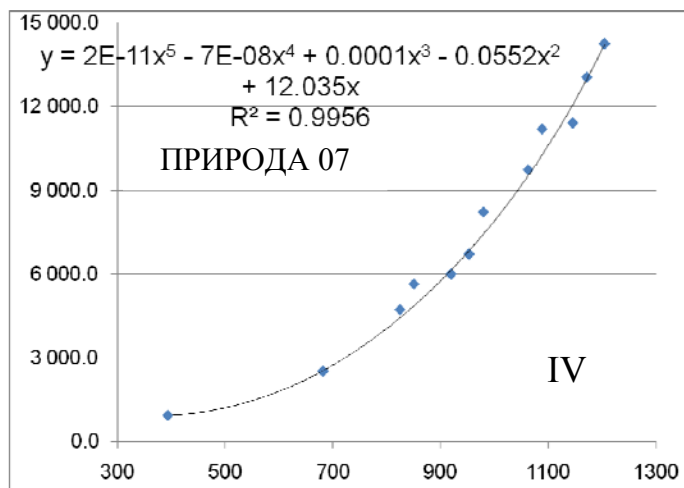
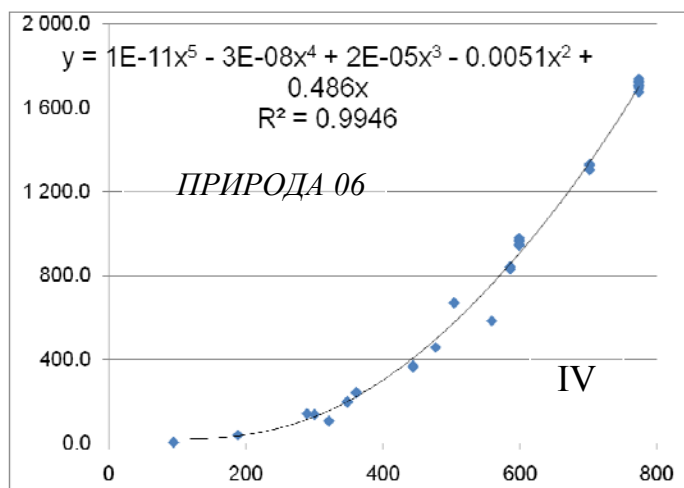


Рис. 4. Зависимость суммарных затрат оперативной памяти (Мб) при решении различных задач с использованием квантовохимических приближений RI-MP2/A1 и RI-MP2/A2 (с учётом релятивистских поправок, конвенциональный SCF) от размера основного базиса электронной структуры



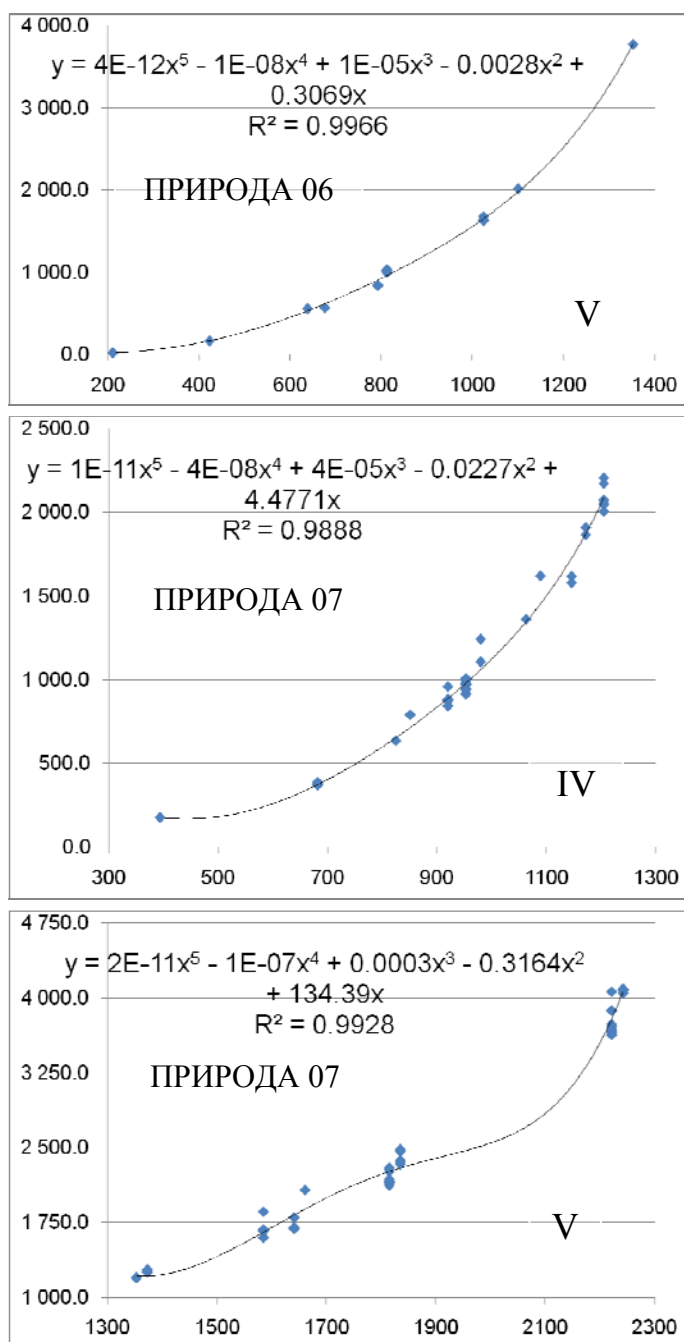


Рис.5. Зависимость затрат оперативной памяти (Мб) на управляющем узле при решении различных задач с использованием квантовохимических приближений RI-MP2/Λ1 и RI-MP2/Λ2 (с учётом релятивистских поправок, конвенциональный SCF) от размера основного базиса электронной структуры

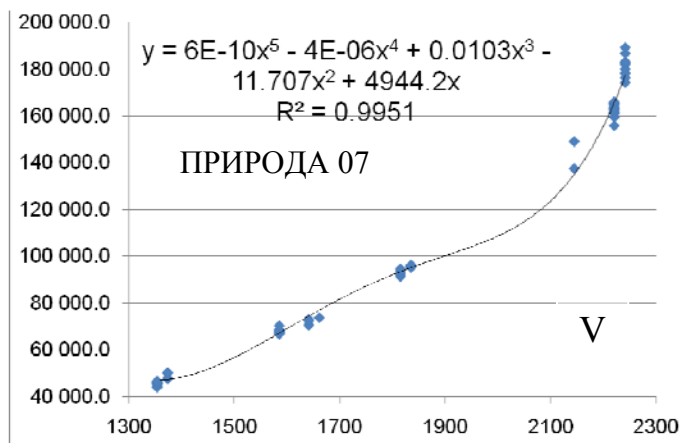
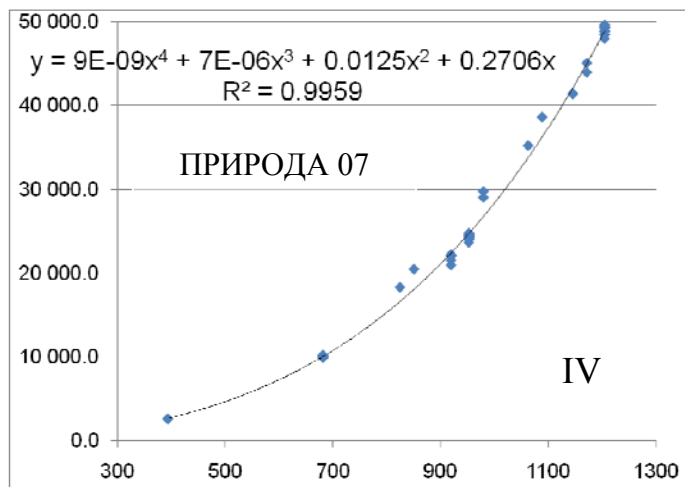
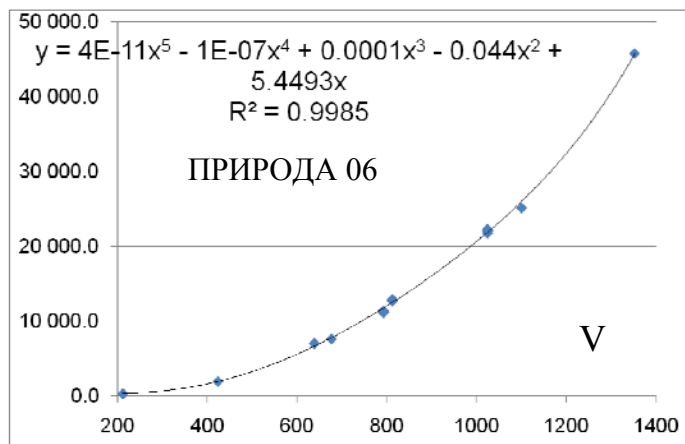
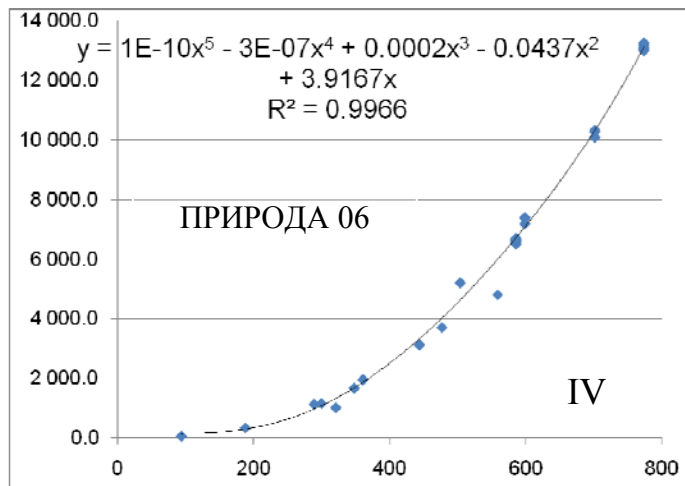


Рис.6. Зависимость суммарных затрат дисковой памяти (Мб) при решении различных задач с использованием квантовохимических приближений RI-MP2/А1 и RI-MP2/А2 (с учётом релятивистских поправок, конвенциональный SCF) от размера основного базиса электронной структуры

Из рисунков 5 – 6 видно, что для задач IV и V, как и в случае теории функционала плотности (рис. 1 – 3), вычислительные затраты коррелируют с базисом электронной структуры, однако заметно хуже. Вычислительные затраты различных версий квантовохимического пакета «ПРИРОДА» несколько различаются.

Выводы:

Собраны и проанализированы служебные данные расчётов в различных квантовохимических приближениях, реализованных в пакете программ "ПРИРОДА", и путём аппроксимации получены оценочные выражения зависимости вычислительных затрат от размера основного базиса волновой функции различных молекулярных систем.

Подтверждено, что вычислительные затраты квантовохимических приближений реализованных в пакете программ "ПРИРОДА" не зависят от особенностей химического строения молекулярной системы, а определяются лишь размером базиса электронной структуры и методом расчёта.

Разработана методика оценки вычислительных ресурсов, требуемых для решения квантовохимических задач с помощью пакета программ «ПРИРОДА».

Литература

1. *Лайков Д.Н., Устынюк Ю.А.* // Система квантово-химических программ «ПРИРОДА-04». Новые возможности исследования молекулярных систем с применением параллельных вычислений. - Изв. РАН, сер. хим. 2004. Т. 3. С. 804-810.
2. *Панкратьев Е.Ю., Тюмкина Т.В., Хурсан С.Л., Губайдуллин И.М.* // Применение суперкомпьютеров в исследовании механизмов реакций металлокомплексного катализа. Параллельные вычислительные технологии (ПаВТ'2009): Труды международной научной конференции, - Челябинск: Изд. ЮУрГУ, 2009, С. 631-638.
3. *Laikov D.N.* // Fast evaluation of density functional exchange-correlation terms using the expansion of the electron density in auxiliary basis sets. - Chem. Phys. Lett. 1997. V. 281. P. 151-156.
4. *Лайков Д.Н.* // Развитие экономного подхода к расчёту молекул методом функционала плотности и его применение к решению сложных химических задач. - Дисс. ... к.х.н., Москва, МГУ, 2000, 102 с.
5. *Панкратьев Е. Ю.* // Программа для сбора и анализа служебных данных работы квантово-химического пакета «ПРИРОДА». // Высокопроизводительные параллельные вычисления на кластерных системах (ВПВКС'2009): Сборник материалов девятой международной конференции-семинара (Владимир, 2 – 3 ноября 2009 г.), - Владимир: Изд. ВГУ, 2009, С. 302-306.
6. <http://nwrr.ru/projects/util4qchem.html>