

УДК: 004.94

Реализация и применение параллельного алгоритма глобального поиска минимума к задаче оптимизации параметров молекулярно-динамического потенциала ReaxFF

К. С. Шефов^а, М. М. Степанова^б

Санкт-Петербургский государственный университет,
Россия, 199034, г. Санкт-Петербург, Университетская наб., д. 7-9

E-mail: ^а k.s.shefov@gmail.com, ^б mstep@mms.nw.ru

Получено 30 сентября 2014 г.

Молекулярно-динамические методы, использующие силовое поле ReaxFF, позволяют получать достаточно хорошие результаты при моделировании больших многокомпонентных химически-реактивных систем. Здесь представлены алгоритм поиска оптимальных параметров силового поля ReaxFF для произвольных химических систем, а также его реализация. Метод основан на способе многомерного поиска глобального минимума, предложенном Р. Г. Стронгиным. Алгоритм хорошо масштабируемый и хорошо подходит для работы на параллельных вычислительных кластерах.

Ключевые слова: численное моделирование, молекулярная динамика, потенциал взаимодействия, химически-реактивные системы, реактивное силовое поле, оптимизация параметров, параллельный алгоритм, поиск глобального экстремума

An implementation of a parallel global minimum search algorithm with an application to the ReaxFF molecular dynamic force field parameters optimization

K. S. Shefov^а, M. M. Stepanova^б

Saint Petersburg State University, 7-9 University nab., St. Petersburg, 199034, Russia

Molecular dynamic methods that use ReaxFF force field allow one to obtain sufficiently good results in simulating large multicomponent chemically reactive systems. Here is represented an algorithm of searching optimal parameters of molecular-dynamic force field ReaxFF for arbitrary chemical systems and its implementation. The method is based on the multidimensional technique of global minimum search suggested by R.G. Strongin. It has good scalability useful for running on distributed parallel computers.

Keywords: numerical simulation, molecular dynamics, reactive force field, chemically reactive systems, parameter optimization, parallel algorithm, absolute extremum search

Citation: *Computer Research and Modeling*, 2015, vol. 7, no. 3, pp. 745–752 (Russian).

1. Введение

ReaxFF (Reactive Force Field) [Duin et al., 2001; Nomura et al., 2008] является силовым полем, позволяющим моделировать химические реакции методом молекулярной динамики. Для того чтобы получать адекватные результаты при моделировании химически взаимодействующих систем при помощи ReaxFF, необходимо подобрать набор параметров, от которых зависит данное силовое поле и которые определяются конкретным классом моделируемых систем, например гидриды металлов или углеводороды. Этот процесс является достаточно трудоемким и состоит в предварительном выборе целевой функции, которая зависит от параметров ReaxFF и определяет их оптимальность с последующим поиском минимума этой функции. Целевая функция представляет собой сумму квадратов разностей неких характеристик соединений, входящих в конкретный класс, рассчитанных методами квантовой химии (или взятых из эксперимента) и вычисленных с помощью ReaxFF. Набор характеристик, полученных методами квантовой химии или взятых из эксперимента, называется оптимизирующим набором, а соединения, которым принадлежат характеристики, — моделями оптимизирующего набора. Авторами уже был реализован алгоритм оптимизации параметров на основе метода однопараметрического поиска [Шефов, Степанова, 2014]. Однако этот метод, наряду с достоинствами, такими, как отсутствие требования непрерывности целевой функции и возможность включения в оптимизирующий набор широкого спектра данных, обладает и рядом недостатков. К недостаткам можно отнести следующие факторы: сходимость метода однопараметрического поиска гарантируется лишь в локальный, а не в абсолютный минимум; сложность параллельной реализации метода; очень долгое ожидание сходимости алгоритма, если не известна примерная область расположения минимума. Кроме того, для получения характеристик требуется оптимизация геометрии моделей оптимизирующего набора, причем необходимо выбрать методы, которые гарантированно оптимизируют геометрию в локальный минимум, а не в седловую точку, что замедляет расчет. В данной работе предлагается альтернативный метод, основанный на алгоритме глобального поиска (АГП) Стронгина [Стронгин, 2009]. Он позволяет быстро локализовать область минимума функции, гарантирует сходимость в абсолютный минимум на заданной области определения целевой функции, и алгоритм прост в распараллеливании. АГП успешно применяется для решения многоэкстремальных задач в различных областях, однако для поиска параметров молекулярно-динамического силового поля данный алгоритм используется впервые.

2. Алгоритм глобального поиска

Алгоритм глобального поиска (АГП) позволяет находить абсолютный минимум функции на отрезке и основан на вероятностном подходе.

На основе набора известных значений функции в точках отрезка ищется интервал между соседними точками, на котором абсолютный минимум наиболее вероятен. На этом интервале берется точка, соответствующая математическому ожиданию положения минимума, вычисляется значение функции в ней. Точка добавляется в список известных значений, и происходит переход к следующей итерации. Алгоритм останавливается, когда расстояние между точками отрезка последовательных итераций становится меньше заданного критерия.

Единственным требованием, которому должна удовлетворять целевая функция $g(x)$, — это выполнение обобщенного условия Липшица на всем интервале поиска:

$$|g(x_1) - g(x_2)| \leq K \rho(x_1, x_2), \quad (1)$$

где x_1 и x_2 — любые числа из интервала поиска, K — константа, а ρ — метрика, $\rho(x_1, x_2) = f(|x_1 - x_2|)$, и функция f имеет обратную себе f^{-1} .

Опишем шаги алгоритма [Стронгин, 2009]. Рассмотрим функцию $g(x)$ на отрезке $[a, b]$ вещественной оси. Обозначим $z_i = g(x_i)$ значения целевой функции в точках x_i отрезка $[a, b]$.

В начале алгоритма положим $x_0 = a$, $x_1 = b$ и вычислим значения функции $g(a)$ и $g(b)$ в этих точках. Процедура $k + 1$ итерации состоит в следующем. Пусть x_i и z_i для $i = 0, 1, \dots, k$ нам уже известны из предыдущих k итераций.

1. Перенумеровать точки x_i , $i = 0, 1, \dots, k$, в порядке возрастания значений $a = x_0 < \dots < x_k = b$.

2. Оценить максимальное абсолютное значение относительной первой разности:

$$M = \max_{1 \leq i \leq k} \frac{|z_i - z_{i-1}|}{\rho_i},$$

где $\rho_i = \rho(x_{i-1}, x_i) = f(x_{i-1} - x_i)$, $0 \leq i \leq k$.

3. Положить

$$m = \begin{cases} 1, & M = 0, \\ rM, & M > 0, \end{cases} \quad (2)$$

где $r > 1$ есть заданный коэффициент, параметр алгоритма, который определяется из предположений о коэффициенте K в условии Липшица (1).

4. Для каждого интервала (x_{i-1}, x_i) , $0 \leq i \leq k$, вычислить величину

$$R(i) = m\rho_i + \frac{(z_i - z_{i-1})^2}{m\rho_i} - 2(z_i + z_{i-1}),$$

которая называется характеристикой интервала и определяет вероятность нахождения глобального минимума на этом интервале. Чем она больше, тем больше вероятность.

5. Определить интервал (x_{t-1}, x_t) , которому соответствует максимальная характеристика $R(t) = \max_{1 \leq i \leq k} R(i)$. Если максимальная характеристика соответствует нескольким интервалам, то в качестве t выбирается минимальное число.

6. Положить

$$x_{k+1} = \frac{x_{t-1} + x_t}{2} - \frac{\text{sign}(z_t - z_{t-1})}{2r} f^{-1} \left\{ \frac{r|z_t - z_{t-1}|}{m} \right\}. \quad (3)$$

Алгоритм останавливается, когда

$$\rho_t \leq \varepsilon \text{ или } x_t - x_{t-1} \leq f^{-1}(\varepsilon), \quad (4)$$

где ε — заданное число. Число ε определяет точность приближения к минимуму.

Алгоритм глобального поиска гарантированно сходится к абсолютному минимуму функции на отрезке, если на некоторой его итерации выполняется условие $m > 4K$, где K — константа из обобщенного условия Липшица (1), а m — число из формулы (2).

3. Обобщение АГП на многомерный случай

Функция многих переменных может быть приведена к функции одной переменной при помощи разверток типа кривой Пеано [Стронгин, 2009]. Многомерная область определения (гиперкуб) переводится в отрезок вещественной оси. Подобласти отображаются в одномерные интервалы. В зависимости от степени разбиения m число подобластей, на которые делится исходная область, различно, оно составляет $2^{N(m+1)}$, где N — размерность отображаемой области.

Таким образом, можно, выбрав параметр разбиения m , отобразить точку в центре каждой подобласти (сетку на гиперкубе) в точку в центре каждого интервала на отрезке (сетку на отрезке). Такое отображение будет взаимно однозначным. Вид пеаноподобной кривой для $m = 3$ приведен на рис. 1а [Стронгин, 2009]. Многомерная целевая функция, таким образом, будет

определена на одномерной сетке. Однако у такого отображения есть ряд недостатков, поскольку при потребности в увеличении параметра разбиения m (уменьшении шага сетки) придется начинать алгоритм глобального поиска сначала, поскольку новые узлы сетки уже не будут совпадать со старыми. Избежать этого можно, воспользовавшись так называемой неинъективной разверткой, когда в качестве узлов сетки на гиперкубе берутся не центры подобластей, а их вершины. Пример такой развертки ($N = 2$, $m = 3$) показан на рис. 1б [Стронгин, 2009]. Кривая пробегает гиперкуб по точкам с номерами по возрастанию. Это отображение не взаимно однозначное, как и идеальная кривая Пеано ($m = \infty$), каждая точка гиперкуба может иметь до 2^N прообразов на отрезке. Также при увеличении m алгоритм глобального поиска можно будет продолжить с использованием уже имеющихся точек.

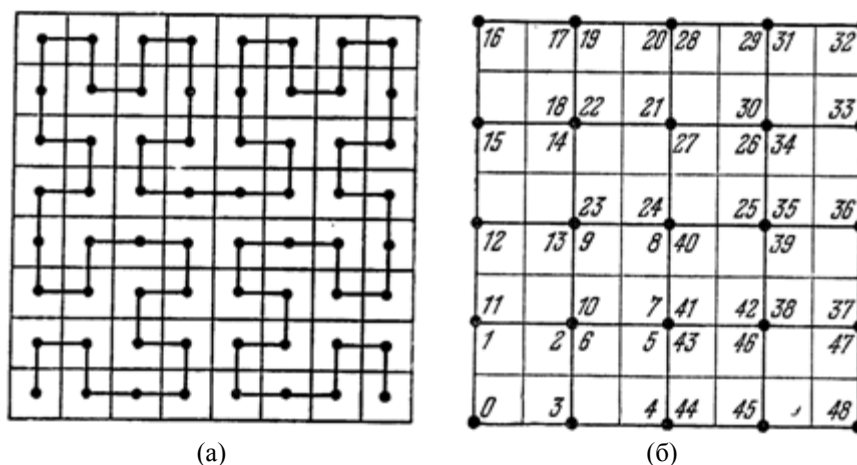


Рис. 1. Вид пеаноподобных кривых для двумерия при $m = 3$

В данной работе используется многомерный вариант АГП с неинъективной разверткой. Метрика ρ в формуле (1) выглядит следующим образом: $\rho(x_1, x_2) = f(|x_1 - x_2|) = \sqrt[m]{|x_1 - x_2|}$. Поиск минимума проводится на конечной сетке на прямоугольном параллелепипеде размерности N (число оптимизируемых параметров ReaxFF), который отображается на отрезок $[0, 1]$. Число точек сетки определяется параметром разбиения m и равно $2^{(m+1)N} - 2^{mN}$. Поскольку неинъективная развертка не является взаимно однозначным отображением, точка параллелепипеда размерности N может иметь до 2^N прообразов на отрезке, у всех прообразов будет одинаковое значение целевой функции. Стандартный вариант АГП дополняется вычислением прообразов, и точка x_{k+1} , получаемая на каждой итерации по формуле (3), заменяется ближайшей к ней точкой сетки и другими прообразами соответствующей ей точки параллелепипеда. В данном случае минимум может быть найден лишь с точностью до шага сетки. Остановка вычислений происходит, когда точка отрезка, полученная на очередном шаге алгоритма, уже была получена на каком-либо из предыдущих шагов, либо, если ε больше шага сетки, остановка определяется из условия (4).

4. Параллельный вариант АГП

Для распараллеливания алгоритма глобального поиска используется метод вращающихся разверток [Стронгин, Гергель, Баркалов, 2009]. Каждый параллельный процесс оперирует со своей разверткой, повернутой относительно основной на углы $\pm \frac{\pi}{2}$ относительно какой-либо пары направлений. Всего таких поворотов можно сделать $N(N-1)$ для N -мерной области определения функции. Таким образом, всего программа использует $N(N-1) + 1$ процессов, каждый из которых выполняет АГП и на каждой итерации сообщает свой результат всем остальным

процессам. Параллельный алгоритм ускоряет сходимость и компенсирует последствия потери информации о близости точек параллелепипеда при использовании развертки.

Опишем алгоритм по шагам. Точки области определения исходной многомерной функции (прямоугольного параллелепипеда) обозначим Y_i , значения целевой функции в них обозначим Z_i , а точки отрезка $[0, 1]$, на который отображается параллелепипед, обозначим X_i .

Для инициализации алгоритма для каждого процесса вычислим $X_0 = 0$, $X_1 = 1$, X_2 , — псевдослучайное число на отрезке $[0, 1]$. В качестве альтернативной инициализации предусмотрено чтение готового списка пар X_i, Z_i из файла. Теперь рассмотрим итерации. Пусть уже имеем точки X_i , $0 \leq i \leq k$, на $[0, 1]$ и Z_i , $0 \leq i \leq k-1$, из предыдущих k итераций. Очередная итерация состоит из следующих шагов (для каждого процесса они одинаковые).

1. Отобразим точку X_k отрезка при помощи обратной неинъективной развертки на точку параллелепипеда Y_k . Поскольку для каждого процесса развертки будут разные (повернутые), то Y_k в большинстве случаев будут различными для разных процессов.

2. Проведем обмен Y_k со всеми остальными процессами. После этого каждый процесс будет знать точки Y_k всех остальных процессов.

3. При совпадении Y_k у разных процессов Y_k для процесса с наименьшим порядковым номером будет оставлен неизменным, а для остальных процессов с совпавшими Y_k новое значение Y_k получается из генератора псевдослучайных чисел. Это необходимо, чтобы не вычислять значения функции для одинаковых Y_k и рационально использовать ресурсы.

4. Для Y_k получаем значение целевой функции Z_k . Этот шаг самый трудоемкий.

5. Проведем обмен Y_k и Z_k со всеми остальными процессами. После этого каждый процесс будет знать точки Y_k всех остальных процессов и значения целевой функции Z_k в них.

6. Из Y_k получаем прообразы $X_{k,i}$. Прообразов может быть до 2^N , где N — размерность параллелепипеда. Всем прообразам соответствует одинаковое значение Z_k .

7. Добавим пары $X_{k,i}$ и Z_k в список. Список представляет собой одновременно связный список и красно-черное дерево, что делает быстрым как поиск в нем по значению $X_{k,i}$, так и прогон от начала до конца по всем элементам, причем узлы связного списка будут всегда упорядочены по возрастанию $X_{k,i}$. Каждые 100 итераций проводится сохранение списка в файл на случай непредвиденной остановки или же с целью продолжить расчет в более тонкой сеткой.

8. Используя АГП, описанный в разделе 2, находим X_{k+1} — очередную итерацию.

9. Проверяем, есть ли X_{k+1} уже в списке, если есть, ставим флаг завершения F_p , $1 \leq p \leq P$, в значение «истина», $P = (N-1)N + 1$ — число процессов в системе. Если X_{k+1} нет в списке, но $|X_{k+1} - X_k| < \varepsilon^N$, где ε — число из условия (4), то флаг завершения F_p также ставится в значение «истина». Обмениваемся флагами с остальными процессами. Если флаги завершения каждого из всех процессов находятся в значении «истина», то алгоритм останавливается, если нет, то происходит переход к следующей итерации.

Если алгоритм остановлен, каждый процесс ищет X_{\min} с минимальным Z_i (Z_{\min}) и находит соответствующий ему Y_{\min} . Пара Y_{\min} и Z_{\min} будет результатом работы алгоритма. У всех процессов набор пар Y_k и Z_k будет одинаковым, а значит, минимум тоже будет одинаковым. Таким образом, результатом работы алгоритма будет абсолютный минимум целевой функции Y_{\min} и Z_{\min} с точностью до шага сетки либо с точностью до ε из условия (4).

5. Конкретная реализация параллельного многомерного АГП в случае поиска параметров МД силового поля ReaxFF

При оптимизации параметров ReaxFF методом однопараметрического поиска [Шефов, Степанова, 2014] в качестве целевой функции использовалась функция ошибки в виде:

$$\text{Error} = \sum_{i=1}^n \left[(x_i^{\text{QC/Lit}} - x_i^{\text{ReaxFF}}(p_1, p_2, \dots, p_N)) / \sigma_i \right]^2, \quad (5)$$

Эта сумма представляет собой отклонение расчетов ReaxFF от данных оптимизирующего набора. $x_i^{QC/Lit}$ и x_i^{ReaxFF} — микроскопические характеристики моделей оптимизирующего набора, рассчитанные соответственно с помощью методов квантовой химии и методов молекулярной динамики с потенциалом ReaxFF, а именно длины химических связей, валентные углы, эффективные заряды атомов, энергии атомизации и теплоты образования моделей, зависимости энергии кристаллов на ячейку от объема ячейки. σ_i — весовые коэффициенты, имеющие размерность x_i , которые выбираются исходя из ожидаемой разности квантовых расчетов и ReaxFF в конце оптимизации. x_i^{ReaxFF} зависят от параметров потенциала p_1, p_2, \dots, p_N .

Однако функцию (5) нельзя использовать как целевую для АГП, поскольку она не удовлетворяет условию Липшица (1). Характеристики x_i^{ReaxFF} являются результатами процедуры оптимизации поля ReaxFF по координатам атомов при фиксированных параметрах p_1, p_2, \dots, p_N , следовательно, возможны скачки. Поэтому для АГП в качестве целевой мы используем другую функцию:

$$\text{Error} = \sum_{k=1}^L \sigma_k |U_k^{QC} - U_k^{ReaxFF}| + \sum_{k=1}^L \sigma_{L+k} \sqrt{\sum_{a=1}^A \sum_{i=1}^3 (F_{kai}^{QC} - F_{kai}^{ReaxFF})^2} \quad (6)$$

Здесь U_k — потенциальные энергии моделей оптимизирующего набора, F_{kai} — компоненты сил, действующих на атомы каждой модели, L — число моделей оптимизирующего набора, A — число атомов в моделях, σ — весовые множители. Индексы QC и ReaxFF означают, что характеристики были получены соответственно методами квантовой химии и молекулярной динамики с ReaxFF. U_k^{ReaxFF} и F_{kai}^{ReaxFF} зависят от параметров ReaxFF, причем, как следует из явных формул ReaxFF [Nomura et al., 2008], эта зависимость имеет непрерывную первую производную. На этом основании можно утверждать, что функция (6) удовлетворяет условию Липшица (1).

Для вычисления целевой функции вида (6) оптимизация геометрии моделей не проводится, в отличие от функции (5) модели берутся статические, положения атомов в них всегда фиксированы. Это избавляет от необходимости проводить оптимизацию потенциала по координатам атомов, однако взамен добавляет необходимость в наборе статических конфигураций каждой оптимизирующей модели около ее положения равновесия, полученного методами квантовой химии (деформированные в различных направлениях молекулы).

Достоинствами метода глобального поиска являются гарантированная сходимость в абсолютный минимум на заданной сетке, простота параллельной реализации, отсутствие необходимости оптимизации геометрии моделей на каждой итерации. К недостаткам АГП можно отнести то, что ресурсоемкость растет экспоненциально с ростом числа одновременно оптимизируемых параметров ReaxFF.

6. Выбор параметров, наиболее сильно влияющих на целевую функцию

Экспоненциальный рост сложности алгоритма с ростом числа параметров потенциала вынуждает отказаться от одновременного поиска сразу по всем возможным параметрам. Возникает необходимость выбора тех из них, которые наиболее сильно влияют на целевую функцию. Выполнив поиск сначала по более важным параметрам, можно потом провести его по менее важным и т. д. В качестве критерия важности берется величина коэффициентов корреляции изменения слагаемых целевой функции (6) и изменения параметров ReaxFF при случайной выборке вектора параметров в заданных пределах.

В данной работе была создана и используется программа, которая выстраивает параметры по убыванию максимальной величины корреляции изменения конкретного параметра и изменения конкретного слагаемого в формуле целевой функции. В дальнейшем поиск методом АГП

выполняется по полученным группам, при необходимости можно сделать пересортировку и повторить проход по списку.

7. Реализация АГП для поиска параметров ReaxFF. Проверка работоспособности

В этом разделе приводятся результаты тестирования программы оптимизации параметров в последовательной и параллельной реализации при разном числе параметров и сравнение времени выполнения. Параллельный алгоритм глобального поиска для параметров ReaxFF реализован на языке C++ под ОС Linux. Для обмена сообщениями используется стандарт MPI (Message Passing Interface), в качестве реализации MPI используется библиотека MPICH2 версии 1.4.1p1. В качестве реализации потенциала ReaxFF используется молекулярно-динамический пакет LAMMPS [Пакет LAMMPS], собранный в качестве библиотеки. Программа выполнялась на узлах кластера с конфигурацией Intel Xeon 3 GHz 64 bit, 4 ядра, HTT, LAN 1 Gb/s, Scientific Linux 5.

В таблице 1 представлено сравнение времени работы программы при последовательном и параллельном запусках, при $N = 2$ и $N = 6$ оптимизируемых параметрах. $P = N(N - 1) + 1$ — число процессов в параллельном варианте. Под последовательным запуском программы здесь понимается запуск многомерного АГП на одном процессоре с одной разверткой (см. раздел 3). Под параллельным запуском понимается запуск параллельной программы на нескольких процессорах, для $N = 2$ это будут 3 процесса и один узел кластера, для $N = 6$ это будут 31 процесс и 4 узла кластера. В качестве оптимизируемых параметров были взяты параметры, наиболее сильно влияющие на целевую функцию, полученные программой, описанной в разделе 6. Параметр алгоритма r во всех случаях был положен равным 4. Параметр разбиения для разверток m был взят равным 3 (9 точек сетки на параметр).

Таблица 1. Сравнение времени работы программы при последовательном и параллельном запусках

	Послед. АГП 2 параметра	Парал. АГП 2 параметра $P = 3$ процесса 1 узел кластера	Послед. АГП 6 параметров	Парал. АГП 6 параметров $P = 31$ процесс 4 узла кластера
Среднее время одной итерации (T)	10,2 с	11,1 с	12,5 с	40 с
Среднее время вычисления целевой функции в одной точке (T/P)	10,2 с	3,6 с	12,5 с	1,3 с
Время сходимости алгоритма	4 ч	1,6 ч	240 ч	27 ч
Число итераций для сходимости	1413	528	69600	2400

Как видно из таблицы 1, при оптимизации двух параметров ускорение параллельной версии программы в сравнении с последовательной составило 2,5 раза, а при оптимизации шести параметров — почти 9 раз. Более того, параллельный вариант сходится быстрее и по числу итераций, поскольку на каждой итерации в параллельном варианте получается в среднем в P раз больше пар точка отрезка — значение функции, чем в последовательном.

Была также проведена проверка правильности выдаваемого алгоритмом результата для случая двух параметров ($N = 2$) путем расчета значения функции во всех 65536 точках сетки.

Результат алгоритма совпал с минимальным значением функции на сетке. Для $N = 6$ ввиду большого числа узлов сетки (около 16 миллионов) такая проверка не делалась.

Еще одной характеристикой производительности алгоритма является выигрыш во времени по сравнению с вычислением функции во всех точках сетки. Параллельный алгоритм при $N = 2$ выдал результат, вычислив значение функции только в 4 тысячах узлах сетки из 65 тысяч, что означает выигрыш в 16 раз. Параллельный алгоритм при $N = 6$ выдал результат по 3,5 млн точек из 16 млн, то есть выигрыш составил 4,6 раза.

Заключение

В данной работе реализован параллельный многомерный алгоритм глобального поиска Стронгина применительно к оптимизации параметров МД потенциала ReaxFF. Также разработан и реализован алгоритм упорядочивания параметров потенциала по степени влияния на целевую функцию на основе корреляции, который позволяет выбирать для оптимизации наиболее критичные параметры. Параллельная версия программы дает заметное ускорение в сравнении с последовательной версией, что было проверено запуском алгоритма на узлах вычислительного кластера. АГП позволяет за приемлемое время локализовать абсолютный минимум сложной многопараметрической целевой функции, после чего можно продолжить оптимизацию либо другим алгоритмом, либо тем же АГП. Таким образом, применение АГП значительно улучшает эффективность поиска параметров потенциала по сравнению с однопараметрическим поиском.

Список литературы

Пакет LAMMPS. URL: <http://lammps.sandia.gov> (дата обращения: 20.09.2014).

Стронгин Р. Г., Гергель В. П., Баркалов К. А. Изв. вузов. Приборостроение. — 2009. — Т. 52, № 10.

Стронгин Р. Г. Численные методы в многоэкстремальных задачах, — М.: Наука, 1978.

Шефов К. С., Степанова М. М. Реализация алгоритма оптимизации параметров молекулярно-динамического потенциала ReaxFF // Программные продукты и системы. — 2014, № 2(106). — С. 141–145.

Duin Van A. C. T., Dasgupta S., Lorant F., Goddard W. A. III ReaxFF: a reactive force field for hydrocarbons // Journ. of Physical Chemistry A. — 2001. — Vol. 105. — P. 9396–9409.

Nomura K., Kalia R. K., Nakano A., Vashishta P. A scala-ble parallel algorithm for large-scale reactive force-field molecular dynamics simulations // Computer Physics Communications. — 2008. — Vol. 178. — P. 73–87.