

Параллельный алгоритм глобальной оптимизации кластеров Морса, базирующийся на методе Стронгина

А.Н. Коварцев¹, Д.А. Попова-Коварцева¹

¹Самарский национальный исследовательский университет им. академика С.П. Королева, Московское шоссе 34А, Самара, Россия, 443086

Аннотация. В статье предлагается новый эвристический метод глобальной оптимизации кластеров Морса. Алгоритм базируется на использовании известного метода многоэкстремальной оптимизации функции одной переменной Р.Г. Стронгина. Предлагаемый подход к параметризации задачи структурной оптимизации кластеров Морса, использование метода Р.Г. Стронгина, позволило произвести существенную редукцию исходной многомерной задачи глобальной оптимизации кластеров Морса к задаче однопараметрической оптимизации. Что существенно снижает алгоритмическую сложность решаемой задачи и организацию параллельных вычислений.

1. Введение

Информация о структурном устройстве атомных кластеров имеет большое значение в различных областях человеческой деятельности, например, при моделировании металлов, изучении проблемы сворачивания белка, расчёте электронных и динамических характеристик наноматериалов, создании новых источников света и во многих других областях. Основной задачей данного направления является обнаружение геометрической структуры атомного кластера (конформации кластера), которая соответствует минимуму энергии взаимодействия входящих в него атомов.

В более простом случае химическая связь между атомами не учитывается. Для кластеров Морса рассматриваются только парные взаимодействия атомов, которые описываются потенциальной функцией:

$$v(r_{ij}) = e^{\rho(1-r_{ij})} (e^{\rho(1-r_{ij})} - 2), \quad (1)$$

где r_{ij} - расстояние между атомами i и j ; ρ - параметр, расширяющий или сужающий потенциальную «яму» парных взаимодействий атомов в кластере Морса [5]. Обычно ρ принадлежит диапазону от 3 до 14.

Энергию взаимодействия всех атомов кластера можно вычислить как сумму энергий парных взаимодействий

$$v(X) = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^m \sum_{\substack{j=1 \\ (i \neq j)}}^m v(r_{ij}), \quad (2)$$

где $X = (x_1, \dots, x_m)'$, $x_i \in R^3$ - координаты центров атомов кластера.

На рисунке 1 показаны графики потенциальной функции Морса. Как видно из рисунка, функция зависит от расстояния между парами атомов и не является выпуклой. Как показали исследования [5], функция (2), полученная при суммировании вклада энергий парных взаимодействий, представляет собой невыпуклую мультимодальную функцию пространственных координат m атомов. Таким образом, проблема поиска оптимальных конформаций атомных кластеров сводится к задаче глобальной оптимизации (ГО) потенциальной функции (2).

К сожалению, прямые методы глобальной оптимизации, дающие точное решение задачи оптимизации, способны находить решение для функций с числом 20 – 30 переменных [3], в то время как в задачах ГО атомных кластеров участвует более 900 оптимизируемых переменных.

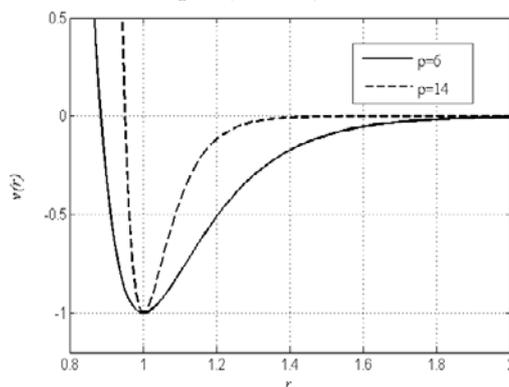


Рисунок 1. Потенциал Морса парного взаимодействия.

Приходится разрабатывать эвристические алгоритмы оптимизации, использующие разнообразную дополнительную информацию об объекте исследования [4].

Первые методы оптимизации кластерных структур основывались на использовании геометрических свойств известных атомных кластеров [5, 23]. Например, для кластеров Морса было замечено, что расположение атомов в оптимальных конформациях тяготеет к симметричной сферической форме [6], что привело к созданию **геометрически обоснованных** методов глобальной оптимизации кластеров Морса. К этой идее впоследствии не раз возвращались [7-10]. Так в работе [7], в качестве ядер начальных конформаций кластеров, использовались икосаэдрические, додекаэдрические или гранецентрированные кубические структуры.

Ещё большую группу методов оптимизации кластеров образуют **локально-стохастические** методы, использующие идею метода «basin-hopping» [5]. Основу этих методов составляет представление о том, что для потенциальной функции (2) локальные экстремумы собираются в ограниченном количестве так называемых «бассейнов». В каждом из «бассейнов» «воронки» локальных минимумов расположены настолько близко друг к другу, что за счет случайных возмущений координат атомов кластера возможен постепенный переход от локальных экстремумов к глобальному. Эта идея многократно совершенствовалась [11-14], что в конечном итоге позволило найти глобальные эвристики для кластеров больших размеров [13].

И, наконец, следует упомянуть группу **популяционных алгоритмов** глобальной оптимизации [15-17], которые в отдельных случаях значительно повысили эффективность эвристических алгоритмов ГО атомных кластеров Морса.

2. Генетический алгоритм глобальной оптимизации, основанный на методе Стронгина

2.1. Икосаэдрическая нерешётчатая упаковка

Практически все известные методы ГО атомных кластеров используют технику локальной оптимизации кластера из положения, близкого к оптимальному решению, поскольку сложность алгоритмов локальной оптимизации имеет полиномиальный характер. Давно было замечено [2, 21, 23], что икосаэдрические структуры или близкие к ним являются хорошим начальным

приближением для поиска глобального минимума потенциальной энергии кластера методами локальной оптимизации. Основываясь на этих данных в работе [24] предложен простой и надёжный метод формирования оптимальных икосаэдрических структур атомных кластеров Морса практически произвольных размеров для магических чисел $m=55, 147, 309, 561, 817, 923, 1415$ и т.д. В свою очередь, рекордные конформации, построенные для магических чисел, являются полезными ориентирами для формирования кластеров промежуточных размеров. Они могут быть построены либо «наращиванием» предшествующего полного икосаэдра, либо «разборкой» последующего. При этом конформации атомов в значительной степени деформируются и здесь необходимо использовать другие эвристики.

Анализ кластерных структур из базы данных Кембриджского университета [19] и её расширения [20] для $\rho \geq 6$ с числом атомов $12 < m < 250$ показал, что представленные атомные структуры с глобально-оптимальным потенциалом энергии при $\rho=6$ в подавляющем большинстве случаев имеют икосаэдрическую структуру. В то же время, при $\rho=14$, преобладают додекаэдрические и икосаэдрические структуры, хотя нередко встречаются гранецентрированные решетки и плотноупакованные конфигурации (close-packed) [19, 20].

Одним из важных результатов, выявленных в ходе анализа атомных кластеров Морса с глобально-оптимальным потенциалом энергии, является тот факт, что кластеры можно развернуть вдоль оси z таким образом, что их атомы будут образовывать «нечеткую» слоистую структуру. Под «нечетким» слоем в данном случае понимается расположение группы атомов (шаров) таким образом, чтобы их центры находились не на плоскости, а в достаточно «тонком» слое $z_j \pm \Delta z_j$.

Второе важное наблюдение заключается в том, что в проекции на плоскость xOy все выделенные слои в оптимальных кластерах образуют икосаэдрическую нерешётчатую упаковку. Назовём её икосаэдрической сеткой (см. рисунок 2).

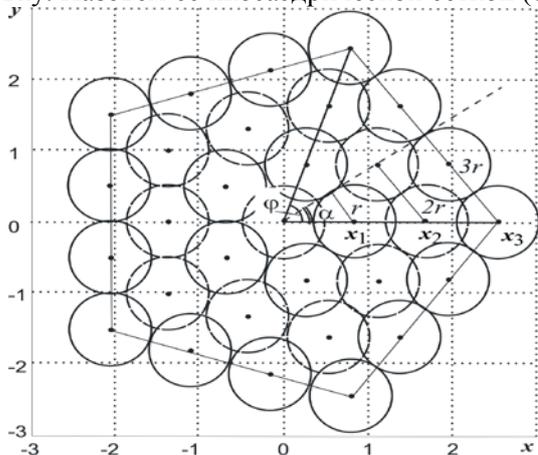


Рисунок 2. Проекция на плоскость икосаэдрической нерешётчатой упаковки шаров.

2.2. Формирование икосаэдрической пространственной сетки

Построить икосаэдрическую сетку достаточно просто.

В центре упаковки располагается шар радиуса r (в нашем случае $r=0,5$). Плоскость делится лучами, исходящими из начала координат, на 5 равных частей. Угол между лучами равен $\varphi = 2\pi/5$. Пусть $\alpha = \varphi/2 = \pi/5$. Далее будем располагать центры шаров по линиям правильных пятиугольников вокруг центрального шара. Причем для первого пятиугольника в каждом секторе размещается две половинки шаров (фактически один целый шар), для второго пятиугольника в каждом секторе – 4 половинки шаров (2 целых) и т.д. В этом случае координаты шаров, расположенных на оси Ox ($y = 0$), для каждого из пятиугольников несложно вычислить по формуле

$$x_k = kr / \sin \alpha = kr / \sin(\pi/5), \tag{3}$$

где k – номер пятиугольника.

Координаты остальных шаров можно найти из геометрических соображений. Если центральный шар условно считать нулевым «пятиугольником», а каждый слой формировать объединением из пятиугольных конфигураций с только четными или нечетными номерами. Располагая слои в пространстве друг над другом, можно получить икосаэдрическую нерешётчатую упаковку шаров. При этом чётные и нечётные слои почти наполовину «входят» друг в друга так, что нечётные слои находятся внутри чётных. В работе [24] подробно описан метод построения икосаэдрической нерешётчатой упаковки шаров.

2.3. Генетический алгоритм глобальной оптимизации

Большинство конформаций атомных кластеров размеров между магическими числами получаются в результате деформации симметрических фигур (правильных икосаэдров). В тоже время, сами атомы всегда располагаются в узлах икосаэдрической сетки. Следовательно, глобально оптимальную структуру можно искать, заранее зная места расположения атомов.

Пусть $X_{set} = \{X_1, X_2, \dots, X_M\}$, $X_i = (x_i, y_i, z_i)$ - икосаэдрическая сетка потенциальных мест расположения атомов оптимизируемой конформации размера $m < M$. Введем битовый вектор размера M : $S = (s_1, s_2, \dots, s_M)$ для кодирования мест расположения атомов оптимизируемого кластера. Очевидно, что

$$\sum_{i=1}^M s_i = m \tag{4}$$

Тогда можно поставить задачу структурной геометрической оптимизации

$$F(S) \rightarrow \max_S, \tag{5}$$

$$\sum_{i=1}^M s_i = m,$$

где $F(S)$ - критерий оптимизации.

Задачу структурной оптимизации (5) преобразуем в задачу параметрической оптимизации, используя стандартный метод кодирования информации принятый в генетических алгоритмах. Для этого каждой строке S поставим в соответствие параметр:

$$x = \sum_{i=1}^M s_i 2^{(M-i)} \tag{6}$$

В результате получаем задачу одномерной параметрической оптимизации:

$$F(x) \rightarrow \max_x, \tag{7}$$

$$x \in [a, b],$$

$$\sum_{i=1}^M s_i = m.$$

Для её решения будем использовать метод характеристики Р.Г. Стронгина [25]. Не вдаваясь в подробности описания метода Р.Г. Стронгина (детали описания метода Метод Р.Г.Стронгина реализует глобальную оптимизацию непрерывных, гладких функций одной переменной. При этом область поиска $[a, b]$ итерационно разбивается на частичные полуинтервалы точками $x_0 = a, x_1, x_2, \dots, x_L = b$. Для каждого полуинтервала $[x_i, x_{i+1})$ вычисляется характеристическая функция $R(i)$. В результате, на каждом очередном шаге, выбирается полуинтервал с максимальным значением характеристики $R(i)$. Он-то и подвергается дальнейшему делению. Уникальным свойством метода является тот факт, что величина характеристической функции для каждого интервала пропорциональна апостериорной вероятности принадлежности ему глобального оптимума.

Использование метода Р.Г.Стронгина позволяет произвести существенную редукцию исходной многомерной задачи ГО кластеров Морса (2) к задаче однопараметрической оптимизации (6). В исходной постановке задачи оптимизации число параметров

пропорционально $3m$, при $m > 20$, а, в настоящее время, ищутся оптимальные конформации для $m > 300$. Это существенно большие размерности задач ГО.

Однако не все так просто. В задаче (7) параметр x не является непрерывной переменной, а в силу ограничения $\sum_{i=1}^M s_i = m$ изменяется дискретно. Кроме того, целевая функция $F(x)$ не является даже непрерывной функцией. В тоже время, как показали эксперименты, метод Р.Г.Стронгина достаточно быстро находит перспективные области поиска глобального экстремума функции $F(x)$, а следовательно и удачные начальные конформации атомных кластеров Морса. Этим мы и воспользуемся.

2.4. Критерий структурной оптимизации

Для поиска начальной рациональной структурной конформации атомного кластера Морса целевая функция (2) мало пригодна. В данном случае более подходящими являются критерии, оценивающие структурные связи атомов исходящие из геометрии кластера.

Пусть

$$\chi_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{если } s_i = 1 \ \& \ r_{ij} < 1.4 \\ 0 & \text{иначе} \end{cases} \tag{8}$$

Введем

$$F(x) = 2 \sum_{i=1}^M \sum_{j=i+1}^M \chi_{ij} \tag{9}$$

Если на узлах икосаэдрической сетки X_{set} построить граф, соединяя дугами вершины для которых $s_i = 1 \ \& \ r_{ij} < 1.4$, то критерий (9) равен сумме степеней вершин графа. Замечено, что глобально оптимальные конформации кластеров принимают максимальное значение по критерию (9).

Параметр x , при выполнении условия (4), принимает дискретный набор значений $\{\tilde{x}_1, \tilde{x}_2, \dots, \tilde{x}_N\}$. При реализации метода Р.Г.Стронгина для произвольных $x \in [\tilde{x}_i, \tilde{x}_{i+1}]$ целевую функцию восполним с помощью линейной интерполяции $F(x) = \frac{F(\tilde{x}_{i+1}) - F(\tilde{x}_i)}{\tilde{x}_{i+1} - \tilde{x}_i} (x - \tilde{x}_i)$.

2.5. Параллельный алгоритм глобальной оптимизации

Для рассматриваемой задачи (7) метод Р.Г.Стронгина неспособен найти глобальный экстремум в силу перечисленных выше особенностей решаемой задачи. В тоже время он легко распараллеливается. Причем распараллеливание служит не столько целям повышения производительности алгоритма, сколько повышению эффективности поиска.

Метод Р.Г.Стронгина быстро обнаруживает структурные конфигурации кластеров, претендующих на глобальную оптимальность. Дело в том, что в первую очередь при оптимизации фиксируются старшие биты вектора S (старшие разряды переменной x). Для обеспечения результата поиска оптимизацию необходимо производить с очень высокой точностью. Фактически подгоняя под результат младшие разряды оптимизируемой переменной, что равносильно полному перебору и крайне не эффективно. Если исходный

отрезок разбить на L частей $[a, b] = \bigcup_{i=1}^L [c_i, c_{i+1}]$, то можно параллельно на L процессорах искать глобальный оптимум, собирая в отдельное множество всех «чемпионов» от каждого частичного отрезка поиска $X_I = \{X_I^1, X_I^2, \dots, X_I^L\}$, $X_I^j = \{\hat{x}_{j_1}^I, \dots, \hat{x}_{j_L}^I\}$, $\hat{x}_{j_k}^I$ - квазиоптимальные конформации в первой фазе оптимизации на j -м отрезке $\hat{x}_j^I \in [c_j, c_{j+1}]$.

При этом в зависимости от точности оптимизации в каждом из претендентов $\hat{x}_{j_k}^I$ можно зафиксировать первые m_1 единичных битов строки S и удалить нулевые биты, стоящие левее

m_1 -го единичного бита в числе $\hat{x}_{j_k}^I$. Очевидно, что в дальнейшем уточнении оптимальной конформации кластера эти биты использоваться не будут. Таким образом, мы можем уменьшить размер битовой строки на $m_1 + n_0$ единиц. Здесь n_0 - количество удаляемых нулевых бит.

На втором этапе рассматриваются аналогичные задачи, но для урезанной битовой строки $S_1 = (s_1, s_2, \dots, s_{M-m_1-n_0})$ и меньшего размера представления оптимизируемой переменной (4).

Процесс повторяется до тех пор, пока не станет возможным произвести полный перебор сокращенных битовых векторов. В итоге мы имеем множество начальных приближений оптимальных конформаций $X^* = \{\hat{x}_{j_1}^*, \dots, \hat{x}_{j_k}^*\}$.

На последнем этапе можно организовать параллельную локальную оптимизацию, полученных начальных приближений из X^* . Лучший результат и будет определять оптимальный кластер заданного размера.

3. Вычислительные эксперименты

Работоспособность предлагаемого метода глобальной оптимизации атомных кластеров Морса для наиболее сложного случая $\rho = 14$ была апробирована первоначально на простых примерах формирования конформаций с числом атомов $m=15, 16, \dots, 20$. Интересно, что кроме глобально-оптимальных конформаций даже в этих простых случаях были обнаружены локально-оптимальные конформации, не зарегистрированные в известных базах данных Кембриджского университета [19] и её расширении [20]. В таблице 1 приведены полученные результаты. Серым цветом отмечены вновь найденные конформации кластеров Морса.

Таблица 1. Энергетические уровни оптимальных кластеров Морса $\rho = 14$.

<i>N</i>	RHO	<i>N</i>	RHO
15C	-44.806437	17E	-52.822588
15-1	-44.8062	17-1	-52.7959
15D	-44.087741	17F	-52.100584
15B	-44.086633	17D	-51.837537
16C	48.814517	17C	-51.440588
16-1	-48.8143	17B	-51.329559
16-2	-48.7878		
16D	-48.094020		
16B	-47.831957		

4. Заключение

В данной работе представлен новый метод оптимизации кластеров Морса, основанный на оригинальной редукции задачи глобальной оптимизации функций многих переменных к задаче многоэкстремальной оптимизации функции одной переменной. Предлагаемый метод во многом использует идеи генетических алгоритмов. В первую очередь это относится к используемому методу кодирования информации и сведению задачи структурной оптимизации к задаче параметрической оптимизации. Однако, вместо использования традиционных генетических операций типа мутации, кроссовера и т.д., в предлагаемом подходе используется метод глобальной оптимизации функций одной переменной Р.Г.Стронгина. Что позволило существенно снизить алгоритмическую сложность решаемой задачи.

В тоже время, эффективность метода можно существенно повысить, если включить в него наблюдаемые закономерности эволюции глобально-оптимальных конформаций кластеров Морса выявленные на основе информации из известных баз данных.

5. Благодарности

Работа выполнена при государственной поддержке Министерства образования и науки РФ, а также гранта РФФИ №16-41-630637.

6. Литература

- [1] Гусев, А.И. Наноматериалы, наноструктуры, нанотех-нологии / А.И. Гусев. – М.: Физматлит, 2007. – 416 с.
- [2] Столярчук, М.В. Квантово-химическое моделирование молекулярных кластеров в программе ADF: Учебное пособие по выполнению лабораторного практикума / М.В. Столярчук, И.А. Дёмичев, А.И. Сидоров. – СПб: Университет ИТМО, 2015. – 43 с.
- [3] Коварцев, А.Н. К вопросу об эффективности параллельных алгоритмов глобальной оптимизации функций многих переменных / А.Н. Коварцев, Д.А. Попова-Коварцева // Компьютерная оптика. – 2011. – Т. 35, № 2. – С. 256-261.
- [4] Heiles, S. Global optimization of clusters using electronic structure methods / S. Heiles, R.L. Johnston // Quantum Chemistry. – 2013. – Vol. 113(18). – P. 2091-2109.
- [5] Doye, J.P.K. Structural consequences of the range of the interatomic potential: a menagerie of clusters Unabridged version of this paper: html, postscript, gzipped postscript / J.P.K. Doye, D.J. Wales // J. Chem. Soc., Faraday Trans. – 1997. – Vol. 93. – P. 4233-4244.
- [6] Ren, L. Structural prediction of $(Au_{20})_N$ ($N=2-40$) clusters and their building-up principle / L. Ren, L. Cheng // Computational and Theoretical Chemistry. – 2012. – Vol. 984. – P. 142-147.
- [7] Cheng, L. Funnel hopping: searching the cluster potential energy surface over the funnels / L. Cheng, Y. Feng, J. Yang, J. Yang // Journal of Chemical Physics. – 2009. – Vol. 130(21). – P. 214112.
- [8] Shao, N. Probing the structural evolution of medium-sized gold clusters: Au_n^- ($n = 27-35$) / N. Shao, W. Huang, Y. Gao, L.M. Wang, X. Li, L.S. Wang, X.C. Zeng // Journal of the American Chemical Society. – 2010. – Vol.132(18). – P.6596-6605.
- [9] Lourenço, N. DACCO: A Discrete Ant Colony Algorithm to Cluster Geometry Optimization / N. Lourenço, F.B. Pereira // “GECCO’12” Genetic and Evolutionary Computation Conference, Philadelphia, USA, 2012. – P. 41-48.
- [10] Коварцев, А.Н. Эволюционный детерминированный алгоритм глобальной оптимизации атомных кластеров Морса / А.Н. Коварцев // Компьютерная оптика. – 2015. – Т. 39, № 2. – С. 234-240.
- [11] Посыпкин, М.А. Методы и распределенная программная инфраструктура для численного решения задачи поиска молекулярных кластеров с минимальной энергией / М.А. Посыпкин // Параллельные вычислительные технологии (ПаВТ’2009): Труды международной научной конференции (Нижний Новгород, 30 марта – 3 апреля 2009 г.). – 2009. – С. 269-280.
- [12] Oakley, M.T. Symmetrisation schemes for global optimisation of atomic clusters / M.T. Oakley, R.L. Johnson, D.J. Wales // Physical Chemistry Chemical Physics. – 2013. –Vol. 15(11). – P. 3965-3976.
- [13] Wu, X. A dynamic lattice searching method with rotation operation for optimization of large clusters / X. Wu, W. Cai, X. Shao // Chemical Physics. – 2009. – Vol. 363(1-3). – P. 72-77.
- [14] Locatelli, M. Global Optimization: Theory, Algorithms and Applications / M. Locatelli, F. Schoen. – SIAM, 2013. – 433 p.
- [15] Locatelli, M. Local search based heuristics for global optimization: Atomic clusters and beyond / M. Locatelli, F. Schoen // European Journal of Operational Research. – 2012. – Vol. 222(1). – P. 1-9.
- [16] Dugan, N. Genetic Algorithms in Application to the Geometry Optimization of Nanoparticles / N. Dugan, S. Erkoç // Algorithms. – 2009. – Vol. 2(1). –P. 410-428.
- [17] Larsson, H.R. Global optimization of parameters in the reactive force field ReaxFF for SiOH / H.R. Larsson, A.C.T. van Duin, B. Hartke // J. Comput. Chem. – 2013. – Vol. 34(25). –P. 2178-2189.

- [18] Hales, T.C. A proof of the Kepler conjecture / T.C. Hales // *Annals of Mathematics*. – 2005. – Vol. 162(3). – P.1065-1185.
- [19] Table of the global minima of Morse clusters for N 81 – 240 [Electronic resource]. URL <http://staff.ustc.edu.cn/~clj/morse/table.html>. (07.10.2016).
- [20] The Cambridge Cluster Database [Electronic resource]. URL: <http://www-wales.ch.cam.ac.uk/CCD.html> (07.10.2016).
- [21] Pullan, W. Unbiased Geometry Optimisation of Morse Atomic Clusters / W. Pullan // *WCCI 2010 IEEE World Congress on Computational Intelligence*. – Barcelona, Spain, 2010. – P. 4496-4502.
- [22] Кондрашов, В.Е. MATLAB как система программирования научно-технических расчётов / В.Е. Кондрашов, С.Б. Королёв. – М.: Мир, 2002. – 350 с.
- [23] Берри, Р.С. Конкуренция кубической гранецентрированной и икосаэдральной кластерных структур / Р.С. Берри, Б.М. Смирнов, А.Ю. Стрижев // *Журнал экспериментальной и теоретической физики*. – 1997. – Т. 112, №3(9). – С. 1082-1090.
- [24] Коварцев, А.Н. Геометрически обоснованный метод формирования атомных кластеров Морса больших размеров / А.Н. Коварцев // *Компьютерная оптика*. – 2018. (в печати).
- [25] Стронгин, Р.Г. Поиск глобального оптимума / Р.Г. Стронгин. – М: Знание, 1990. – 240 с.

Parallel Algorithm of Morse clusters Global Optimization based on the Strongin method

A.N. Kovartsev¹, D.A. Popova-Kovartseva¹

¹Samara National Research University, Moskovskoe Shosse 34A, Samara, Russia, 443086

Abstract. This article presents a new heuristic method for the global optimization of Morse clusters. The algorithm uses multiextremal optimization of a function of one variable, a known method developed by R. G. Strongin. The proposed approach to parametrizing the problem of structural optimization of Morse clusters makes it possible to reduce notably the initial multidimensional problem of Morse cluster global optimization toward a problem of one-parameter optimization. This significantly reduces the algorithmic complexity of the problem and organization of parallel calculations.

Keywords: Atomic and molecular physics, global optimization, parallel computing.