

液态金属原子大系统凝固过程模拟的 并行算法研究*

董科军 刘让苏** 郑采星 刘海蓉 彭平 卢小勇

湖南大学应用物理系,长沙 410082

胡庆丰 何新芳

国防科技大学,长沙 410073

摘要 对原来只适用于在微机上对由 500~1000 个液态金属原子组成的小系统的凝固过程进行分子动力学模拟研究的串行计算程序作了分析,并进一步将其改造成为可以在 YH-3M 型巨型机上对由 50000~100000 个原子组成的大系统的凝固过程进行分子动力学模拟研究的并行计算程序. 使模拟研究的系统可容纳的原子数扩大 100 倍以上,因而其模拟研究的结果更接近于真实情况.

关键词 计算机模拟 分子动力学 并行算法 液态金属 凝固

在材料微观结构的研究中,由于实验条件的限制,往往难以得到我们所需要的结果,例如,对液态或非晶态结构的短程有序,就难以用 X 射线衍射反映出其确切的微观结构;对由液态金属急冷到非晶态的凝固过程中,其微观结构的瞬时变化就无法用仪器观测到,等等. 然而,随着计算机技术的飞速发展,用计算机模拟研究的方法,却往往能够比较方便地得到这些结果,因而它已日益成为材料微观结构研究的一种重要手段. 计算机模拟有多种方法,其中分子动力学方法(MD)比较适合于液态及非晶态金属动态凝固过程的研究,我们在 90 年代初就开始进行这方面的研究. 当这种方法在中型机或微机上进行时,由于其内存和运算速度的限制,模拟研究只能限于 500~1000 个金属原子的小系统. 因而模拟得到的结果虽然也能揭示一些微观结构的特征和规律,但却与实际的大系统情况有较大的差异. 如果能够在巨型计算机上对更大量的原子系统进行模拟研究,其结果必然会更接近于实际,从而对生产实践将会更有实际指导意义. 然而在巨型计算机上进行大型模拟计算必须采用并行计算才能充分发挥巨型计算机的优势. 因此,本文在原有研究工作的基础上^[1~5],尝试对原有分子动力学模拟计算程序进行并行化处理,使所研究的系统的原子数达到 50000~100000 个,从而实现使模拟研究所得的结果与真实情况更为接近的目标.

1 算法分析

分子动力学是求解相互作用粒子体系的经典运动方程的理论. 只要知道所研究系统中原

2000-02-18 收稿,2000-04-26 收修改稿

* 国家自然科学基金资助项目(批准号: 59871016)

** 联系人

子的初始位置及速度,以及原子间的相互作用势 $V^{[6,7]}$,就可以计算出每个原子所受的力,从而计算出每个原子以后的运动,得到原子的新位置及速度. 只要一步步地跟踪计算下去,就可以模拟出系统中原子运动的情况,得到系统瞬时的微观结构组态,并可由此计算出该原子系统的热力学统计性质.

在分子动力学模拟中,用计算机对粒子体系的经典运动方程求解时,主要是由 VERLET 算法实现的^[8,9]. 由于 VERLET 算法比较成熟,且应用较广,并且我们已由此得到了许多少量原子(500~1000个)系统的模拟结果,因此,本文在考虑并行算法时,主要是在原算法的基础上加入并行部分,而不是完全从并行的角度重新设计算法,要求所得到的结果(50000个原子系统的)能与以前的结果有可比性. 在 VERLET 算法中,如果已知 t 时刻及前一步 $t-dt$ 时刻原子的坐标 $r(t)$ 和加速度 $a(t)$,则在 $t+dt$ 时刻,将有

$$r(t+dt) = 2r(t) - r(t-dt) + dt^2 a(t). \quad (1)$$

速度可以不计算,但若估算动能,则速度可由下式得到

$$v(t) = [r(t+dt) - r(t-dt)]/(2dt), \quad (2)$$

其中加速度 a 的计算即是原子受力 f 的计算. 计算 f 采用双体作用势近似,即第 i 个原子受到的力为

$$f_i = \sum f_{ji}(t), \quad i \neq j, \quad (3)$$

其中 $f_{ji}(t)$ 是第 j 个原子对第 i 个原子的作用力.

由上式容易看出,从理论上来说,其中 f 的计算量是与原子数的平方成正比,而其他量的计算量一般是与原子数成正比,因而 f 的计算将占用计算中的大部分时间,并且比例将随原子数的增加而增加. 所以当原子数很大,如达到 50000 个时,计算耗时是难以接受的,这就限制了我们可以模拟的原子总数.

在单机的串行算法中,采用了一种牺牲空间而换取时间的作法,即在 t 时刻记录下每个原子周围 RCUT 距离内的原子(超过此距离的原子则认为对其影响可忽略,即其双体势将趋近于常数),由近邻原子表数组记录,而这些原子简称为近邻原子. 如果在下一步 $t+dt$ 时,各原子的位移均未超过某一限定值,则认为各原子周围的近邻原子仍是 t 时刻记录的那些近邻原子,此时程序调用 F2 计算各原子的受力;若上述情况不满足,则某一原子受力的计算需要考虑其他所有原子,此时程序将调用子程序 F1 来计算力,同时各原子周围的近邻原子发生变化,而要求更新近邻原子表数组. 由于与某个原子的距离在 RCUT 内的原子数一般不会随整个系统原子数的增加而发生较大的变化,因此, F2 的实际计算量将与系统的原子总数成正比. 而 F1 要求计算两两原子之间的作用力,其计算量将会与系统的原子总数的平方成正比,如表 1 所示.

表 1 原算法的计算每一个循环步耗时 (单位:s)

系统的原子个数	500	1000	2000	5000	50000 (预测值)
子程序 F1	0.43	1.536	5.583	32.90	3000
子程序 F2	0.264	0.605	1.2012	3.115	31

采用这种策略将节省计算时间,但必须记录下每个原子周围 RCUT 内的原子情况(比较多时会达到 500~600 个),一般是定义一个很大的数组 $list(NS, 600)$ 来记录近邻原子,其中 NS

是模拟系统的原子个数. 这个数组将会占用很大的内存, 在原子总数很大的情况下, 单机的内存将难以满足需求, 我们可以算一下当 $NS = 50000$ 时, 光是该数组就需要内存 $50000 * 600 * 4 / 1024 / 1024 = 114.44$ M 字节. 若还考虑其余的内存需要, 单机的内存已经难以满足要求, 就要完全靠 F1 来计算力. 但是, 我们看到, 当 $NS = 50000$ 时, 完全用 F1 计算, 耗时是很难接受的.

因此, 为了实现 50000 个原子系统的模拟计算, 我们必须利用巨型计算机作并行模拟计算. 基于对原来串行算法分析, 本文采用了以下的并行算法^[10]:

将计算力的部分程序作并行化计算处理, 如图 1 所示. 采用 MASTER-SLAVE 方式, 将所有原子的数据按原子编号平均分到各 SLAVE 结点机, 包括每个原子的坐标、近邻原子表数组 (即某原子周围 RCUT 范围内的原子列表) 等数据. 例如整个系统有 50000 个原子, 分到 50 台处理机上, 则 1~1000 号原子分到 1 号机上, 而 1001~2000 号原子分到 2 号机上, 如此类推. 当主程序要计算力时, 将所有原子的当前坐标广播到各个处理机, 然后由各个处理机同时计算其所属范围内的原子的受力, 如前例, 即由 1 号机计算 1~1000 号

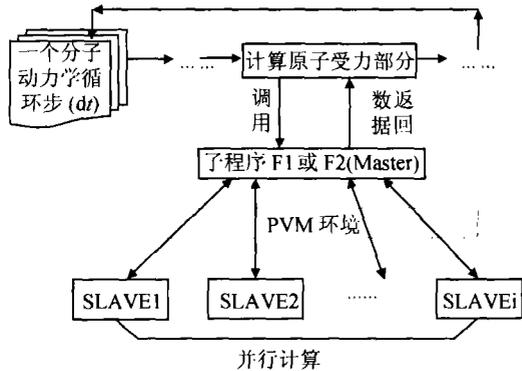


图 1 并行处理示意图

原子的受力, 由 2 号机计算 1001~2000 号原子的受力, 等等. 各个 SLAVE 计算完以后, 再将结果 (即各原子的受力) 发回到 MASTER, 由主程序继续下一步. 当计算力时, 各个处理机同时计算, 大大提高了速度. 并且, 庞大的近邻原子表数组将分开存放在各 SLAVE 处理机中, 即使有所变化, 也只由各 SLAVE 机完成, 而与 MASTER 无关了, 这样, 大系统的模拟计算就不会因为内存不够和运算速度不高而受到限制了.

采用上述并行算法有以下几个优点

(1) 未对原算法进行本质性修改, 只是加入了并行部分, 所得结果与原来一致, 便于检验和比较计算结果. (2) 采用 MASTER-SLAVE 方式, 简洁明了, 易于维护, 可随时调整并行机数量. (3) 较好地解决了内存问题, 将大系统模拟所需要的大量内存分开到各个并行机中, 只要并行机的数量以及单机的内存和速度允许, 可使模拟计算的原子数上百倍、甚至上千倍地提高.

上述算法的理论加速比是 $R1 * C/2$, C 是 SLAVE 机数, $R1$ 是一个系数, 指计算力的部分在整个计算中所占的比例, 当原子总数很大时, $R1$ 一般在 90% 以上. 另外再除 2 是因为, 单机计算时, 两原子之间的相互作用力是相对的, 只须计算一次, 而并行计算时, 由于分开计算, 将会重复计算一次.

2 算法实现

经过并行处理后的程序在我国自行研制 YH-3M 巨型机上运行稳定, 采用 MASTER-SLAVE 方式的 PVM 编程实现, MASTER 将在 YH-3M 的前端工作站上运行, 而 SLAVE 将分给 YH-3M 的各个处理机. 将原单机程序中计算力的部分-子程序 F1, F2 中的依次计算各个原子受力的部分 (为主要部分) 作并行化处理, 转化成 SLAVE 程序. 每次计算力时, 主程序调用子程序 F1 或

F2, 而子程序再依情况将所需要的数据传给各个 SLAVE. 各个 SLAVE 收到数据后即开始这一轮计算, 结束后将结果回转给 MASTER, 然后处于等待状态中, 直到下一轮计算力的部分开始. MASTER 依次接收各个 SLAVE 的数据, 然后继续下一轮, 直到整个计算结束.

目前我们模拟计算 50000 原子的系统, 使用了 YH-3M 的 50 个处理机同时并行计算. 采用这样的并行算法, 每个循环步的实际耗时已接近于预计耗时的 1/50 (约为 600 s), 这样的模拟计算耗时已经是接受的了.

3 计算结果及其分析

我们采用 Wang 等的扩展非局域模型赝势理论中的双体有效势函数^[6,7]

$$V(r) = \frac{Z_{\text{eff}}^2}{r} \left[1 - \frac{2}{\pi} \int_0^{\infty} F(q) \frac{\text{sing}(qr)}{q} dq \right], \quad (4)$$

对含 50000 个 Al 原子的系统进行了模拟计算. 在 943 K 时 (略高于 Al 的熔点 933 K), 将这 50000 个原子置于一个立方盒 (MD BOX) 内, 初始坐标随机获得, 然后整个系统弛豫运行 2000 步, 获得 943K 时的平衡状态, 并统计此时的双体相关分布函数、键型、原子团等. 然后以 4×10^{12} K/s 的速度使系统冷却到低温. 其间每隔一段温度 (一般为 50K 左右), 就记录一次当时的系统状态, 包括原子的坐标、速度、能量等, 然后依此统计出每个温度下的双体相关分布函数、键型指数、原子团等. 结果分析如下:

(1) 双体相关分布函数

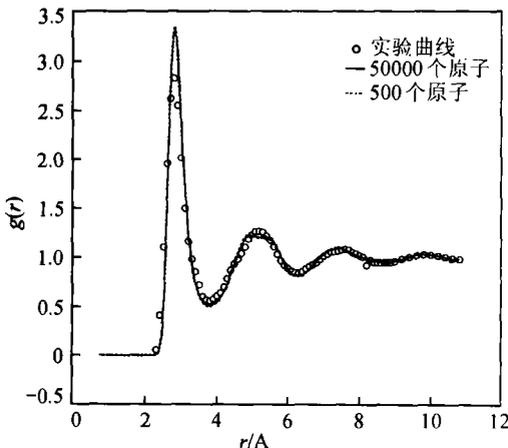


图 2 液态金属 Al 在 943 K 时的 $g(r)$ 曲线

该系统的双体相关分布函数曲线, 如图 2 所示. 由图可以看出: 由 50000 个原子大系统模拟所得的曲线与实验曲线符合较好, 而且与由 500 个原子小系统所得的结果相差甚微. 这是由于 $g(r)$ 是一个统计平均的结果所致, 它把系统在微观上的差别给平均丢了. 从这里可以看到, 如果仅仅是为获得系统的双体分布函数, 则 500 个原子系统的模拟也就够了. 但是对那些微观结构的重要差别, 仅仅靠这样的宏观统计值是不够的, 必须作进一步的深入研究.

(2) 键型指数分析

采用 Honeycutt - Andersen (HA) 键型指数分析法^[11], 是目前对非晶态、液态金属等无序系统的微观结构进行分析研究的一种重要方法. 表 2 所列出的是几种键型在系统的总成键数中所占的百分比随温度而变化的情况.

如果把表 2 中的模拟结果与文献^[12]表 1 中对 500 个原子的小系统所作的模拟结果相比较, 可以清楚地看到: 两者的键型变化趋势基本相同, 但具体的数据却有比较明显的差别. 这正好说明周期性边界效应对模拟研究结果的影响不容忽视. 例如, 其中 1551 键型的大幅度上升表现最为明显, 在本文 50000 个原子的大系统中, 由 943K 时的 16.95% 增至 300K 时的 29.60%; 而在文献^[12]表 1 中所述 500 个原子的小系统中, 却是由 943K 时的 16.6% 增至

300K时的26.0%。两者在初始(943K)时相差甚微,仅为0.35%,而到300K时却相差高达3.60%。由此可见,本文由50000个原子大系统所得的结果,由于前面所说的周期性边界条件影响已经大为减少,将比由500个原子的小系统的结果更加接近于实际情况。

表2 各种 H-A 键型成键数随温度的变化情况

(单位:%)

温度/K	键型									
	1201	1211	1311	1321	1421	1422	1431	1551	1541	1661
943	1.320	1.292	6.677	6.675	3.470	6.906	21.475	16.950	15.888	5.027
883	1.250	1.171	6.439	6.432	3.174	6.637	21.470	18.191	16.062	5.220
833	1.141	1.117	6.084	6.259	3.074	6.549	21.305	19.107	16.072	5.267
780	1.083	1.022	5.658	5.976	2.997	6.259	21.423	20.351	16.373	5.459
730	0.951	0.939	5.361	5.704	2.900	6.074	21.096	21.535	16.404	5.656
675	0.828	0.841	4.957	5.463	2.768	5.944	20.977	22.647	16.756	5.810
625	0.768	0.839	4.705	5.338	2.735	5.746	20.999	23.908	16.772	5.864
550	0.774	0.813	4.647	5.199	2.627	5.657	21.094	25.069	16.841	5.858
500	0.750	0.823	4.557	5.147	2.576	5.597	20.997	26.041	16.851	5.736
400	0.700	0.788	4.334	5.103	2.343	5.350	20.644	28.358	16.762	5.607
300	0.723	0.951	4.167	5.198	2.188	5.204	20.657	29.596	16.752	5.542
小结	减少	显著增加	增加	增加						

(3) 原子团分析

在液态和非晶态中,短程有序的直接反映就是系统中存在大量的原子团结构,我们对50000个原子系统中的原子团也进行了分析。其中在急冷过程中变化最大、数量最多的原子团是二十面体结构。如图3所示,二十面体的个数基本上呈直线上升,但在550 K时,发生了异常的弯折现象,而根据实验,550~500 K正是玻璃转变温度 T_g 所在的范围。这证明二十面体的变化在相变点处有明显的反映。至于相变发生期间,二十面体的具体情况还有待进一步的研究。

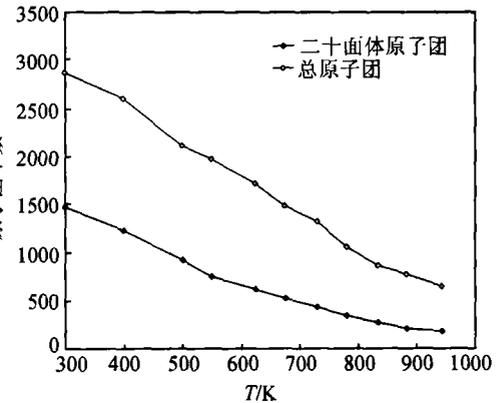


图3 二十面体原子团与总原子团数随温度的变化关系

(4) 可视化分析

① 模拟系统的二维截面图。利用计算机图形学,可以作出二维截面图如图4(a)和(b)所示。

整体上来看,原子的排列杂乱无章,反映了其长程无序。但在某些局部,我们可以看到非常明显的规律性,有的地方有二十面体的反映,有些地方甚至出现了类似晶体的排列情况;而有的地方有明显的“空洞”。而对于500个原子的二维截面图,则看不出模拟系统的全貌特征,因为其信息量是不够的。

② 50000个原子系统中的团簇(Cluster)结构。团簇是目前研究较多的一个问题,它是研究系统亚微观结构及转变过程的一个重要环节。在实验上,通常用特殊方法制备金属团簇以供研究。而在我们模拟的50000个原子大系统中,可以找到大量由多个原子团(主要是二十面

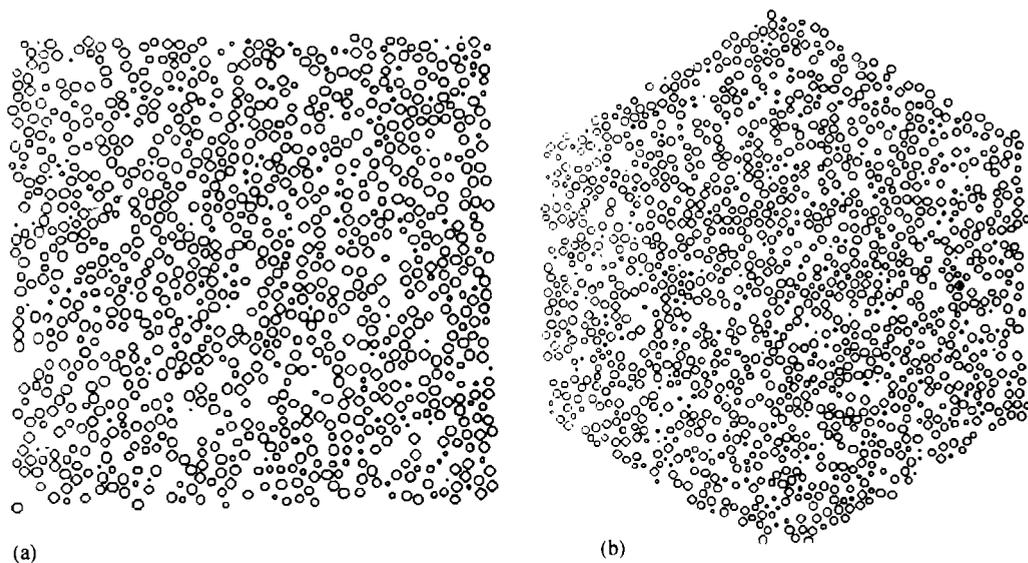


图 4 二维截面图

(a) 883 K 时的(100)面视图; (b) 883 K 时(111)面视图

体)组合起来的大团簇结构,这种结构在 500 个原子系统中比较少见. 下面图 5 和图 6 分别是由 3 个二十面体结合起来的团簇和由 6 个原子团结合起来的大团簇. 这一结果告诉我们,在实际的宏观材料中,的确有可能存在结构较好、较大的团簇结构(虽然目前实验上还难以确切的观察到).

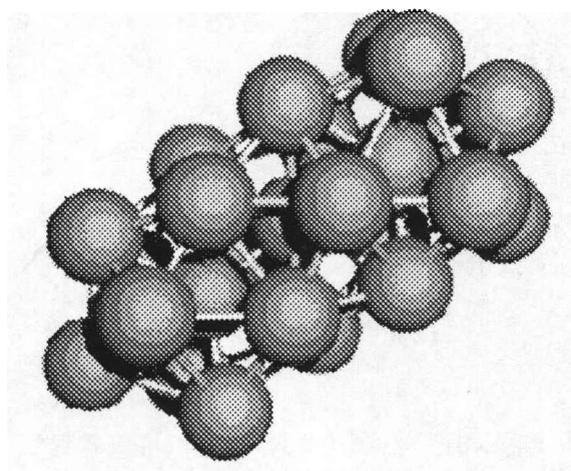


图 5 由三个二十面体组成的团簇

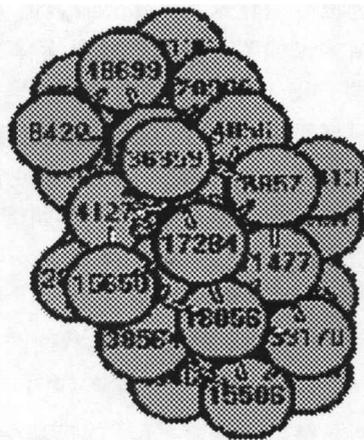


图 6 由六个原子团组成的大团簇

4 结论

本文在对原有分子动力学模拟计算程序进行深入分析的基础上,实现了并行化处理,使所研究系统的原子数可达 5000 ~ 10000 个. 并利用这种并行算法,已经成功地对 50000 个 Al 原

子的大系统进行了分子动力学模拟研究,并取得了比较满意的与真实情况更为接近的结果。我们认为,如果能从并行算法的角度重新而彻底地改造 VERLET 算法,再采用更高性能的并行巨型机,将会使可计算的原子总数进一步成十倍、甚至成百倍地增加,从而使模拟的结果更接近材料的实际情况。

参 考 文 献

- 1 Liu R S, et al., Subpeaks of structure factors for rapidly quenched metals, *Phys Rev B*, 1992, 45(1): 451
- 2 Liu R S, et al., Anomalies in the structure factor for some rapidly quenched metals, *Phys Rev B*, 1992, 46(18): 12001
- 3 Liu R S, et al., A simulation study on the transition feature of the microstructure in the forming processes of amorphous metals, *Chinese Science Bulletin*, 1995, 17: 1429
- 4 Li J Y, et al., Microstructural transitions during the rapid cooling process of liquid metal Al. *J Mater Sci Technol*, 1998, 14: 461
- 5 Liu R S, et al., The high-temperature properties of microstructure transitions in liquid metal Al. *Mater Sci Eng*, 1999, B57: 214
- 6 Wang S, et al., Structure and electrical resistivities of liquid binary alloys, *J Phys F*, 1980, 10: 2717
- 7 Li D H, et al., Variational calculation of Helmholtz free energies with applications to the sp-type liquid metals. *J Phys F*, 1986, 18: 309
- 8 Allen M D. *Computer Simulation of Liquids*. Oxford: Clarendon Press. 1987
- 9 Verlet L. Computer 'experiments' on classical fluids. *Phys Rev*, 1967, 159: 98
- 10 卢宇彤, 等. PVM3.x 用户指南和参考手册. 长沙: 国防科学技术大学, 1994
- 11 Honeycutt J D, et al., Molecular-dynamics study of melting and freezing of small Lennard-Jones clusters. *J Phys Chem*, 1987, 91: 4950
- 12 刘让苏, 等. 液态金属急冷过程中微观结构转变的研究. *原子与分子物理学报*, 1995, 12(1): 16