

ПАРАЛЛЕЛЬНАЯ РЕАЛИЗАЦИЯ КАТАЛИТИЧЕСКОЙ РЕАКЦИИ ($\text{CO} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$) С ПОМОЩЬЮ АСИНХРОННОГО КЛЕТОЧНОГО АВТОМАТА¹

А.Е. Шарифулина

Представлена параллельная реализация асинхронного клеточного автомата, моделирующего классическую реакцию гетерогенного катализа - окисление монооксида углерода на поверхности платины. В каталитических реакциях в неравновесных условиях могут возникать различные критические явления (автоколебания, хаос, гистерезис). Помимо фундаментального интереса изучение механизма протекания каталитических процессов на металлах платиновой группы имеет важное практическое применение, связанное с использованием в каталитических преобразователях для очистки выхлопных газов. Сложное поведение нелинейных каталитических систем наиболее эффективно может быть описано с помощью асинхронного клеточного автомата, который еще называют кинетическим методом Монте-Карло. КА-моделирование реакций гетерогенного катализа требует решения задач больших размеров, поэтому необходимо использовать эффективные алгоритмы распараллеливания. Распараллеливание асинхронных КА сопряжено с определёнными трудностями, которых можно избежать, преобразовав асинхронный КА в блочно-синхронный.

Блочно-синхронный режим работы уменьшает стохастичность моделируемого процесса, поэтому необходимо проверить эквивалентность эволюций асинхронного и блочно-синхронного КА. Для этого проводится статистический анализ основных характеристик моделирования реакции окисления: бифуркационных диаграмм, функций распределения концентраций реагентов, математических ожиданий и дисперсий концентраций, полученных с помощью асинхронного и блочно-синхронного КА. Вычисленные характеристики свидетельствуют о совпадении эволюций асинхронного и блочно-синхронного КА. Кроме того, выполнено сравнение эволюций асинхронного и блочно-синхронного КА для моделей «ZGB» и «наивная диффузия». На основе полученных результатов делается вывод о приемлемой точности аппроксимации асинхронного режима блочно-синхронным для класса задач «реакция - диффузия». В статье представлены результаты распараллеливания блочно-синхронного КА и приведены оценки эффективности параллельной реализации.

Ключевые слова: асинхронный клеточный автомат, блочно-синхронный режим функционирования, каталитическая реакция окисления, параллельная реализация

Введение

Сегодня компьютерное моделирование является основным средством изучения явлений в физике, химии, биологии, экономике, социологии и многих других науках. Традиционные методы моделирования, основанные на решении дифференциальных уравнений, недостаточно эффективны для описания распределенных динамических систем таких как популяции животных, человеческие сообщества, химические и физические процессы на микро-уровне. Эти явления существенно нелинейны и диссипативны, обладают способностью к самоорганизации и самовоспроизведению. Решение сложных систем дифференциальных уравнений с частными производными, использующихся для описания таких явлений, сопряжено со значительными математическими трудностями. Кроме того, пространственно распределенные, неоднородные системы,

¹Статья рекомендована к публикации программным комитетом международной научной конференции «Параллельные вычислительные технологии 2012»

далекие от состояния равновесия, невозможно описать в терминах дифференциальных уравнений. Сложное поведение таких нелинейных динамических систем в большинстве случаев можно определить простыми локальными правилами, описывающими явления на микро-уровне. Такие представления явлений легко выражаются в терминах клеточных автоматов.

Клеточный автомат (КА) представляет собой множество связанных по входам и выходам одинаковых конечных автоматов (клеток) с простыми детерминированными или вероятностными правилами переходов, вычисляющими новые состояния в зависимости от значений соседних клеток [1, 2]. КА наиболее эффективны для моделирования фазовых и бифуркационных переходов, нелинейных систем, где важно учитывать флуктуации и коллективное поведение определяется локальным поведением составляющих ее элементов [3].

Одним из примеров таких систем являются реакции гетерогенного катализа, используемые сегодня во многих областях человеческой деятельности. Классической реакцией гетерогенного катализа является окисление монооксида углерода (СО) на металлах платиновой группы (Pt, Pd). Изучение механизма протекания каталитических процессов на Pt и Pd важно с точки зрения фундаментальной науки, так как особенностью этих реакций является возникновение в неравновесных условиях таких критических явлений, как множественность стационарных состояний, кинетические фазовые переходы, автоколебания, хаос, гистерезис [4]. Кроме того, окислительно-восстановительные реакции на металлах платиновой группы имеют важное практическое применение, т.к. они являются основой каталитических преобразователей, используемых для очистки выхлопных газов.

Динамика каталитических реакций определяется взаимодействием частиц на атомно-молекулярном уровне, влиянием процесса переноса вещества и температуры на скорость химического превращения. Асинхронный вероятностный клеточный автомат, известный еще как кинетический метод Монте – Карло, позволяет отобразить нелинейность каталитических процессов непосредственным образом, моделируя взаимодействие реальных атомов и молекул с помощью дискретных правил переходов.

Для изучения пространственно-временной динамики каталитических реакций необходимо моделировать взаимодействие большого количества молекул ($\approx 10^{20}$) в течение длительного периода времени ($\approx 10^{10}$ итераций). Следовательно, решение таких задач требует использования эффективных алгоритмов распараллеливания. Проблема эффективного распараллеливания асинхронных КА с вероятностными правилами переходов на сегодняшний день до конца не решена. В работах [5, 6] предложен метод достижения высокой эффективности распараллеливания путем аппроксимации асинхронного КА блочно-синхронным КА. Блочно-синхронный режим работы нарушает стохастичность моделируемого процесса, поэтому эквивалентность эволюций асинхронного и блочно-синхронного КА не может быть доказана в общем случае.

Целью работы является сравнение эволюций асинхронного и блочно-синхронного КА, моделирующего реакцию окисления СО на поверхности Pt₁₁₀, с помощью проведения вычислительных экспериментов; а также параллельная реализация блочно-синхронного КА и анализ эффективности распараллеливания.

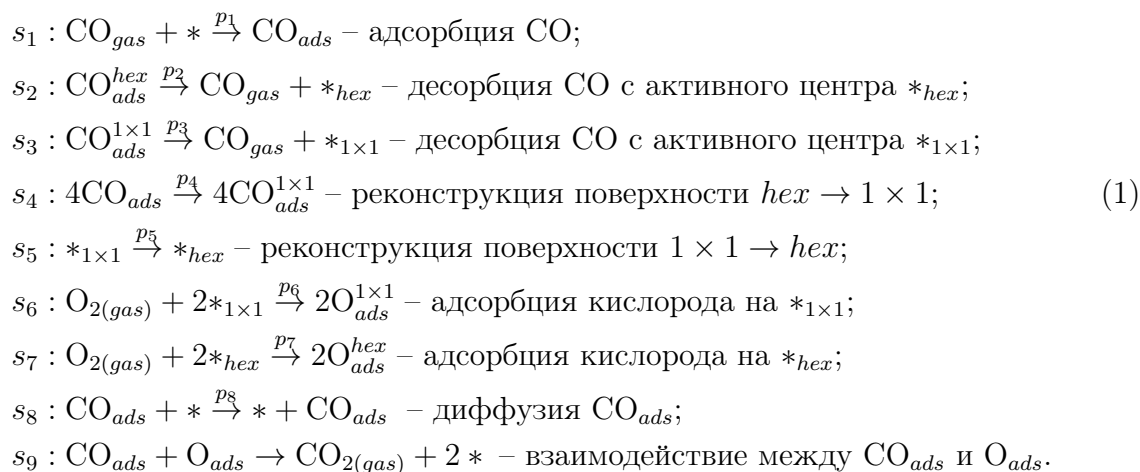
Во втором разделе статьи приведены уравнения реакции, описывающие каталитическое окисление СО на Pt₁₁₀, представлена клеточно-автоматная модель реакции

и результаты КА-моделирования. В третьем разделе описывается метод преобразования асинхронного режима работы КА в блочно-синхронный и проводится сравнительный анализ их эволюций. Четвертый раздел посвящен параллельной реализации блочно-синхронного КА, приводятся алгоритм и оценки эффективности распараллеливания.

1. Моделирование каталитической реакция окисления CO на поверхности платины

1.1. Описание механизма реакции

Экспериментальные и теоретические исследования, проведенные в [4, 7], показали, что в ходе реакции окисления происходит периодическая реконструкция структуры поверхности платины из гексагональной в кубическую ($hex \leftrightarrow 1 \times 1$). Реконструкция поверхности вызвана изменением каталитических свойств поверхности под воздействием адсорбированного CO. Детальный механизм реакции, учитывающий перестройку и изменение каталитических свойств поверхности, описан в [8]:



Символы $\langle\langle *_{hex} \rangle\rangle$ и $\langle\langle *_{1 \times 1} \rangle\rangle$ обозначают свободный активный центр поверхности с гексагональной и кубической структурой, соответственно. Символ $\langle\langle * \rangle\rangle$ – свободный активный центр с произвольной структурой hex или 1×1 . Активный центр, – это атом поверхности катализатора, на котором адсорбируются молекулы. На одном центре может адсорбироваться только одна молекула, и адсорбция на одном центре не влияет на возможность адсорбции на соседние.

Согласно алгоритму, предложенному в [8], активные центры поверхности катализатора выбираются случайным образом, для выбранного центра с вероятностью p_i выбирается одна из элементарных стадий s_i , $i = 1, \dots, 9$ приведенных выше (1). Вероятность выбора всех стадий, кроме s_9 , вычисляется по формуле:

$$p_i = \frac{k_i}{\sum_{l=1}^8 k_l}, \quad i = 1, \dots, 8, \tag{2}$$

где k_i – константа скорости i -й стадии, причем $k_8 = M_{diff} \cdot \sum_{l=1}^7 k_l$, где M_{diff} – параметр интенсивности диффузии. Стадия s_9 реализуется сразу же после выбора одной из

следующих стадий: s_1 – адсорбция CO, s_6 и s_7 – адсорбция O, s_8 – диффузия. Это связано с тем, что взаимодействие между молекулами CO_{ads} и O_{ads} , оказавшихся на соседних активных центрах, происходит мгновенно.

Известно, что в условиях, далеких от равновесных, реакция окисления CO на поверхности платиновых металлов может сопровождаться появлением таких критических явлений как автоколебания, подвижные волны, хаос. Колебательный характер реакции был обнаружен в вычислительных экспериментах [7, 8] с помощью метода Монте – Карло при следующем наборе констант скоростей элементарных стадий:

$$k_1 = 14,7, k_2 = 4, k_3 = 0,03, k_4 = 3, k_5 = 2, k_6 = 56, k_7 = 0,056, M_{diff} = 50. \quad (3)$$

Колебания концентраций реагентов обусловлены обратимым фазовым переходом поверхности платины из состояния hex в 1×1 , различная адсорбционная активность hex и 1×1 – поверхности является причиной периодической смены покрытий $CO_{ads} \leftrightarrow O_{ads}$.

1.2. Клеточно-автоматная модель реакции окисления CO

Механизм реакции, описанный в разделе 1.1, реализуется с помощью асинхронного КА. Поверхности катализатора соответствует клеточный массива, молекулы и атомы, участвующие в реакции, – это состояния клеток. Элементарные стадии s_i описываются вероятностными правилами переходов КА. Асинхронный режим работы соответствует случайному выбору активных центров поверхности катализатора.

Асинхронный клеточный автомат определяется тремя понятиями [9]: $\aleph_\alpha = \langle A, X, \Theta \rangle$,

A – это алфавит состояний клеток, X – множество имен клеток, Θ – локальный оператор, символ α обозначает асинхронный режим функционирования.

Алфавит состояний выбран в соответствии с реагентами, участвующими в реакции:

$$A = \{ *_{1 \times 1}, *_{hex}, CO_{ads}^{1 \times 1}, CO_{ads}^{hex}, O_{ads}^{1 \times 1}, O_{ads}^{hex} \}, \quad (4)$$

Символы $*_{1 \times 1}$ и $*_{hex}$ обозначают свободный активный центр поверхности с гексагональной и кубической структурой соответственно; $CO_{ads}^{1 \times 1}$, CO_{ads}^{hex} – это молекула монооксида углерода, адсорбированная на 1×1 и hex поверхности; $O_{ads}^{1 \times 1}$, O_{ads}^{hex} – молекула кислорода, адсорбированная на 1×1 и hex поверхности соответственно.

Множество имен $X = \{(i, j) : i = 1, \dots, M_i, j = 1, \dots, M_j\}$ определяется координатами клеток в дискретном пространстве, соответствующем поверхности катализатора. Клеткой называется пара $(u, (i, j))$, где $u \in A$ – это состояние клетки, $(i, j) \in X$ – имя клетки. На множестве имен вводятся именуемые функции $\varphi(i, j) : X \rightarrow X$, определяющие имена соседних клеток для клетки (i, j) . Конечное множество именуемых функций называется шаблоном соседства $T(i, j)$, ставящим в соответствие каждой клетке массива множество ее соседей [10].

В исследуемой модели используются следующие шаблоны соседства (рис. 1):

$$\begin{aligned} T_1(i, j) &= \{\varphi_0(i, j)\}, \\ T_5(i, j) &= \{\varphi_0(i, j), \varphi_1(i, j), \dots, \varphi_4(i, j)\}, \\ T_9(i, j) &= \{\varphi_0(i, j), \varphi_1(i, j), \dots, \varphi_8(i, j)\}, \\ T_{13}(i, j) &= \{\varphi_0(i, j), \varphi_1(i, j), \dots, \varphi_{12}(i, j)\}, \end{aligned} \quad (5)$$

где именуемые функции имеют следующий вид:

$$\begin{aligned} \{\varphi_0(i, j), \varphi_1(i, j), \dots, \varphi_{12}(i, j)\} &= \{(i, j), (i, j - 1), (i + 1, j), (i, j + 1), (i - 1, j), \\ &(i - 1, j - 1), (i + 1, j - 1), (i + 1, j + 1), (i - 1, j + 1), \\ &(i, j - 2), (i + 2, j), (i, j + 2), (i - 2, j)\} \end{aligned}$$

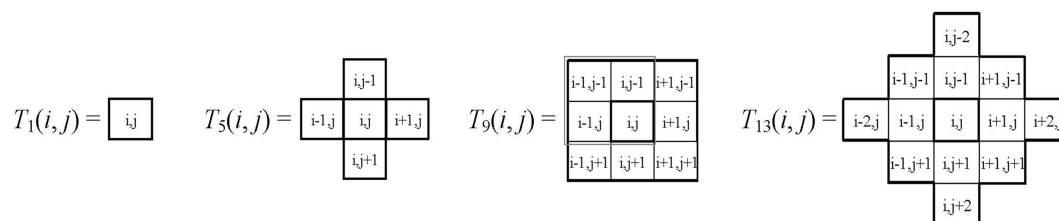


Рис. 1. Шаблоны соседства, используемые в КА-модели реакции окисления

Локальный оператор $\Theta(i, j)$ определяет правила изменения состояний клеток в соответствии с уравнениями реакции и является сложной композицией подстановок и их суперпозиций:

$$\Theta(i, j) = \{\theta_{(1,9)}, \theta_2, \theta_3, \theta_4, \theta_5, \theta_{(6,9)}, \theta_{(7,9)}, \theta_{(8,9)}\}. \quad (6)$$

где θ_l , $l \in \{2, 3, 4, 5\}$ – подстановки, соответствующие стадиям реакции окисления, а $\theta_{(l,9)} = \theta_9(\theta_l)$, $l \in \{1, 6, 7, 8\}$ – суперпозиции двух подстановок θ_l и θ_9 . Подстановки θ_l и суперпозиции $\theta_{(l,9)}$ выбираются с вероятностью p_l , вычисляемой по формуле (2).

В КА-модели реакции окисления каждой элементарной стадии s_l соответствует подстановка θ_l . Подстановки и суперпозиции изменяют состояние клеток в зависимости от состояний соседних клеток, принадлежащих соответствующему шаблону моделирования. Подстановки θ_l , $l \in 1, 2, 3, 5$ применяются к одной клетке, поэтому для них используется шаблон $T_1(i, j)$. Подстановка θ_4 применяется к блоку, состоящему из четырех соседних клеток, блок выбирается случайным образом по шаблону $T_9(i, j)$. Для применения остальных подстановок θ_l , $l \in 6, 7, 8, 9$ требуются состояния двух клеток: (i, j) и одной из четырех соседних клеток $\varphi_k(i, j)$, $k = 1, 2, 3, 4$. Соседняя для (i, j) клетка $\varphi_k(i, j)$ выбирается по шаблону $T_5(i, j)$ с вероятностью 0,25.

Суперпозиция подстановок $\theta_{(l,9)} = \theta_9(\theta_l)$, $l \in \{1, 6, 7, 8\}$ предполагает применение подстановки θ_9 к результату выполнения θ_l , $l = 1, 6, 7, 8$. Необходимость использования суперпозиции связана с особенностями реализации стадии s_9 . При применении суперпозиции $\theta_{(l,9)} = \theta_9(\theta_l)$, $l \in \{6, 7, 8\}$ сначала к клетке с именем (i, j) применяется подстановка θ_l , которая по шаблону $T_5(i, j)$ выбирает одну из четырех соседних клеток $\varphi_k(i, j)$, $k = 1, 2, 3, 4$. Сразу же после применения θ_l к выбранным клеткам (i, j) и $\varphi_k(i, j)$ применяется подстановка θ_9 , которая также по шаблону $T_5(i, j)$ выбирает одну

из четырех соседних клеток. В результате объединения шаблонов получаем, что при применении суперпозиции необходимо использовать шаблон $T_{13}(i, j) = \bigcup_{k=1}^4 T_5(\varphi_k(i, j))$. При применении суперпозиции $\theta_{(1,9)} = \theta_9(\theta_1)$ достаточно использования шаблона $T_5(i, j)$, т.к. подстановка θ_1 изменяет состояние одной клетки, и затем к этой же клетке применяется подстановка θ_9 , которая по шаблону $T_5(i, j)$ выбирает одну из четырех соседних клеток $\varphi_k(i, j)$.

Асинхронный режим функционирования КА предполагает, что локальный оператор $\Theta(i, j)$ применяется по очереди к случайно выбранным клеткам массива, сразу же изменяя их состояния. Далее асинхронный КА с определенными выше алфавитом A (4), множеством имен X и локальным оператором $\Theta(i, j)$ (6) будем обозначать символом « KA_α ».

Реагенты, адсорбированные на поверхности катализатора, постоянно диффундируют, тогда как остальные процессы (адсорбция, десорбция, реконструкция поверхности) происходят намного реже, поэтому константа скорости диффузии s_8 значительно выше, чем константы скорости остальных стадий. В КА-модели это реализуется с помощью увеличения вероятности выбора подстановки, моделирующей диффузию, в M_{diff} раз по сравнению с суммой вероятностей остальных подстановок. В соответствии с [7, 8] значение M_{diff} выбирается в диапазоне $50 \div 100$.

Время в КА-модели дискретно, весь процесс КА-моделирования разбивается на итерации. При моделировании реакции окисления итерация принимается равной $M_i \cdot M_j \cdot M_{diff}$ применениям локального оператора $\Theta(i, j)$ к случайно выбранным клеткам массива. За итерацию клеточный массив Ω переходит из одного глобального состояния $\Omega(t)$ в другое $\Omega(t + 1)$, где t – номер итерации. Последовательность $\sum(\Omega) = \Omega(0), \dots, \Omega(t), \Omega(t + 1), \dots, \Omega(t_{fin})$, полученная в результате итеративного функционирования КА, называется эволюцией, $\Omega(0)$ – исходное состояние клеточного массива, $\Omega(t)$ – состояние массива на t -й итерации, t_{fin} – число итераций [10].

1.3. Результаты КА-моделирования

Компьютерное моделирование реакции окисления с помощью последовательной реализации KA_α выполнялось на клеточном массиве размером $M_i \times M_j = 200 \times 200$ клеток с периодическими граничными условиями. Вероятности применения подстановок θ_l вычисляются по формуле (2) для констант скорости k_l (3): $p_1 = 3,61 \cdot 10^{-3}$, $p_2 = 9,83 \cdot 10^{-4}$, $p_3 = 7,37 \cdot 10^{-6}$, $p_4 = 7,37 \cdot 10^{-4}$, $p_5 = 4,92 \cdot 10^{-4}$, $p_6 = 1,38 \cdot 10^{-2}$, $p_7 = 1,38 \cdot 10^{-5}$, $p_8 = 9,80 \cdot 10^{-1}$ и $M_{diff} = 50$. В исходном состоянии все клетки массива находятся в состоянии $*_{hex}$.

В качестве характеристик КА-моделирования реакции окисления выбраны следующие величины:

- концентрации реагентов, адсорбированных на поверхности катализатора: $n(O_{ads}), n(CO_{ads})$;
- скорость образования CO_2 : $v(CO_2)$;
- доли поверхности с кубической и гексагональной структурой: $f(1 \times 1), f(hex)$.

Концентрация адсорбированных на поверхности катализатора веществ вычисляется после каждой итерации как отношение количества клеток (N), находящихся в со-

стоянии, соответствующем данному реагенту, к размеру клеточного массива ($M_i \cdot M_j$):

$$n(\text{CO}_{ads}) = \frac{N(\text{CO}_{ads}^{1 \times 1}) + N(\text{CO}_{ads}^{hex})}{M_i \cdot M_j}, \quad (7)$$

$$n(\text{O}_{ads}) = \frac{N(\text{O}_{ads}^{1 \times 1}) + N(\text{O}_{ads}^{hex})}{M_i \cdot M_j}. \quad (8)$$

Скорость образования CO_2 вычисляется как отношение числа применений подстановки θ_9 за итерацию к размеру клеточного массива:

$$v(\text{CO}_2) = \frac{N(\text{CO}_{ads} + \text{O}_{ads})}{M_i \cdot M_j}. \quad (9)$$

Доля 1×1 и hex поверхности вычисляется после каждой итерации по следующим формулам:

$$f(1 \times 1) = \frac{N(*_{1 \times 1}) + N(\text{CO}_{ads}^{1 \times 1}) + N(\text{O}_{ads}^{1 \times 1})}{M_i \cdot M_j}, \quad (10)$$

$$f(hex) = \frac{N(*_{hex}) + N(\text{CO}_{ads}^{hex}) + N(\text{O}_{ads}^{hex})}{M_i \cdot M_j}. \quad (11)$$

В результате КА-моделирования реакции окисления получены колебания концентраций реагентов $n(\text{O}_{ads})$, $n(\text{CO}_{ads})$, скорости образования CO_2 – $v(\text{CO}_2)$ и доли поверхности с кубической и гексагональной структурой $f(1 \times 1)$, $f(hex)$ (рис. 2).

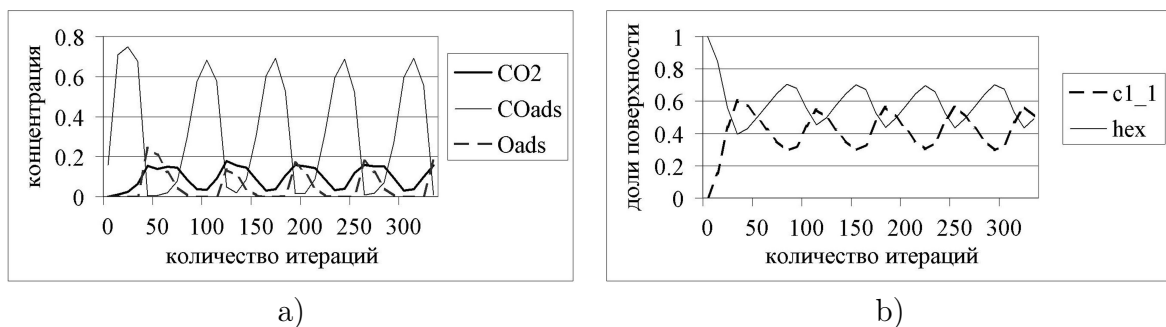


Рис. 2. Характер колебаний в реакции окисления CO на Pt : а) концентрация CO_{ads} , O_{ads} и скорость образования CO_2 б) доли 1×1 и hex поверхности

Колебания концентраций реагентов в реакции окисления CO наблюдаются только при определенных значениях констант скорости реакции. С помощью исследования эволюции KA_α построена бифуркационная диаграмма в пространстве констант скорости адсорбции кислорода $k_6 \in [0; 10^5]$ и монооксида углерода $k_1 \in [0; 200]$ (рис. 3). Точками обозначены значения, полученные в результате КА-моделирования, пунктирная линия построена с помощью линейной интерполяции.

В зависимости от значений констант k_6 и k_1 обнаружено наличие трех различных режимов протекания реакции:

- два равновесных состояния – поверхность катализатора покрывается $\text{CO}_{1 \times 1}$ (ниже границы 1) либо O_{hex} (выше границы 3);

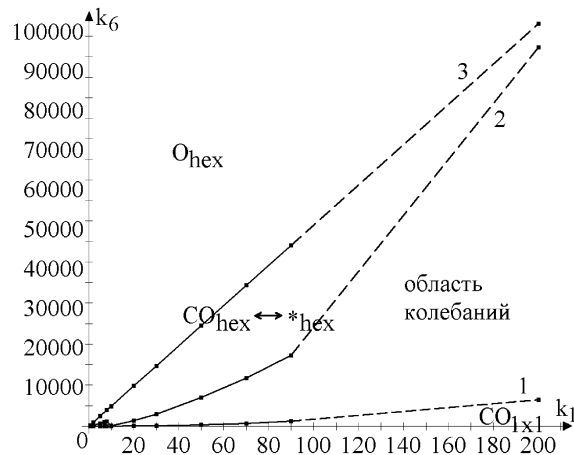


Рис. 3. Бифуркационная диаграмма реакции окисления CO на Pt

- режим колебаний концентраций реагентов и скорости образования CO_2 (область колебаний между кривыми 1 и 2);
- периодическая смена $\text{CO}_{ads}^{hex} \leftrightarrow *_{hex}$, при которой доля 1×1 поверхности мала, и адсорбция кислорода практически не происходит (область между кривыми 2 и 3).

2. Блочно-синхронный режим функционирования КА

2.1. Преобразование асинхронного КА в блочно-синхронный

Изучение пространственно-временной динамики реакции окисления CO требуют проведения вычислительных экспериментов с использованием клеточных массивов размером $M_i \times M_j = 8000 \times 8000$ клеток в течение 10^6 итераций. Решение таких задач на однопроцессорной машине займет несколько недель, поэтому необходимо использовать эффективные алгоритмы распараллеливания. Эффективное распараллеливание асинхронных КА является трудновыполнимой задачей, так как при асинхронном режиме межпроцессорный обмен данными приходится выполнять после изменения каждой граничной клетки. Поэтому асинхронный режим работы изменяется на блочно-синхронный, который вводит частичную синхронизацию режима функционирования, не нарушая при этом условия корректности, т.е. состояние клетки одновременно не могут изменить разные подстановки. Преобразование асинхронного КА $KA_\alpha = \langle A, X, \Theta \rangle$ в блочно-синхронный $KA_\beta = \langle A, X, \Theta \rangle$ выполняется следующим образом [5].

1. На множестве имен X определяется шаблон, называемый блоком $B(i, j)$. Для выполнения условия корректности блок должен включать в себя все шаблоны соседства (5):

$$T_1(i, j) \subset T_5(i, j) \subset T_9(i, j) \subset T_{13}(i, j) \subseteq B(i, j) \Rightarrow B(i, j) = T_{13}(i, j), \quad (12)$$

$$|B(i, j)| = 13.$$

Блок $B(i, j)$ определяет на множестве имен разбиение $\Pi = \{X_1, X_2, \dots, X_{13}\}$ такое, что для всех X_k , $k = 1, \dots, 13$, $|B(i, j)|$ выполняются соотношения (13):

$$|X_k| = \frac{|X|}{13}, \quad \bigcup_{(i,j) \in X_k} B(i, j) = X, \quad B(i, j) \cap B(g, h) = \emptyset, \quad (13)$$

$$(i, j), (g, h) \in X_k.$$

- Итерация разбивается на $|B(i, j)| = 13$ этапов. На каждом этапе локальный оператор $\Theta(i, j)$ применяется ко всем клеткам выбранного случайным образом множества X_k . Порядок выбора клеток внутри X_k не важен, т.к. условие (12) гарантирует, что локальный оператор применяется к разным блокам и шаблоны применения подстановок не пересекаются.

2.2. Сравнение асинхронного и блочно-синхронного режимов работы КА

При блочно-синхронном режиме работы на каждом этапе локальный оператор применяется только к клеткам из множества X_k , что существенно уменьшает стохастичность выбора клеток. Существуют классы задач, для которых эволюции асинхронного и блочно-синхронного КА не совпадают. Например, для КА со взвешенными шаблонами, вычисляющих новые состояния в зависимости от взвешенной суммы состояний соседних клеток, при асинхронном и блочно-синхронном режимах для различных последовательностей выбора клеток формируются совершенно разные устойчивые структуры (рис. 4).

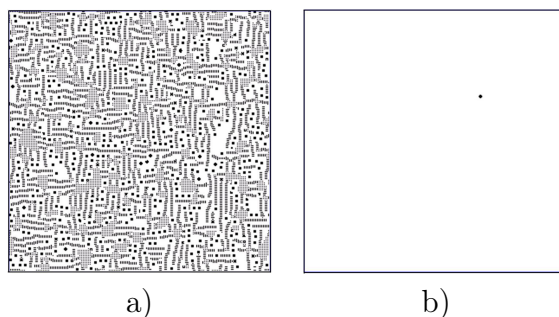


Рис. 4. Устойчивые состояния КА со взвешенными шаблонами при одинаковых начальных значениях и различных режимах функционирования: а) асинхронный режим; б) блочно-синхронный режим

В общем случае невозможно доказать эквивалентность эволюций асинхронного и блочно-синхронного КА, каждая задача требует проведения отдельного анализа результатов КА-моделирования. Вычислительные эксперименты для различных моделей класса «реакция – диффузия» подтверждают возможность использования блочно-синхронного преобразования для этого класса задач.

Например, значения скорости образования CO_2 , концентраций CO_{ads} и O_{ads} , полученные при реализации модели Ziff – Gulari – Varshad (ZGV) [11] с помощью асинхронного и блочно-синхронного КА, отличаются незначительно. На рис. 5а представлены изменения скорости образования CO_2 – $v(\text{CO}_2)$ при вероятности адсорбции CO равной 0,5. Уровень клеточно-автоматного шума для значений, получен-

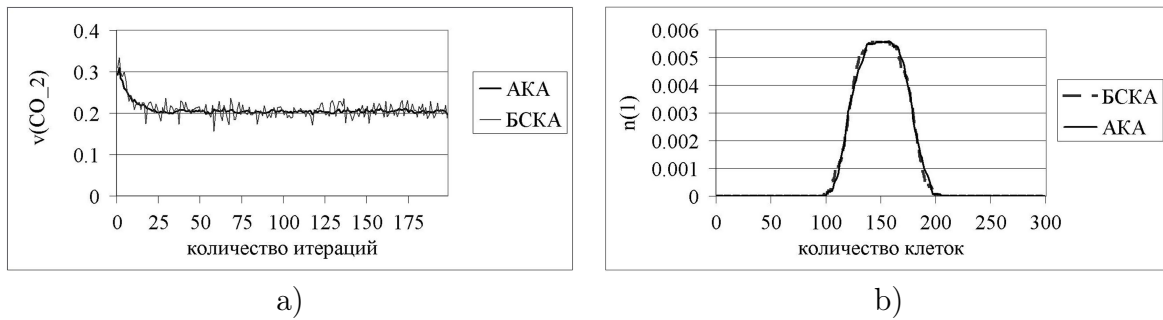


Рис. 5. Сравнение асинхронного и блочно-синхронного режимов при моделировании задач класса «реакция – диффузия»: а) скорость образования CO_2 в КА-модели ZGB; б) концентрация единиц в КА-модели диффузии

ных с помощью блочно-синхронного КА при $B(i, j) = T_9(i, j)$, находится в пределах допустимой величины и при увеличении размера блока уменьшается. Еще одним примером КА-модели, допускающей преобразование асинхронного режима в блочно-синхронный, является диффузия. При моделировании диффузии с помощью асинхронного и блочно-синхронного КА осредненные значения концентрации единиц $n(1)$ совпадают (рис. 5б).

Для проверки возможности применения блочно-синхронного преобразования в случае КА-моделирования реакции окисления CO на Pt (1), сравнивались результаты вычислительных экспериментов, выполненных при $M_i \times M_j = 200 \times 200$ клеток, $t_{fin} = 10^5$ итераций и для значений констант скорости (3). В качестве параметров сравнения выбраны следующие характеристики:

- распределение вероятностей $n(\text{O}_{ads})$, $n(\text{CO}_{ads})$, $v(\text{CO}_2)$, $f(1 \times 1)$, $f(hex)$ и периодов колебаний T ;
- математическое ожидание и дисперсия $n(\text{O}_{ads})$, $n(\text{CO}_{ads})$, $v(\text{CO}_2)$, $f(1 \times 1)$, $f(hex)$, T и доверительные интервалы для математического ожидания и дисперсии;
- бифуркационная диаграмма реакции окисления.

Анализ результатов моделирования показал, что значения распределений вероятностей $n(\text{O}_{ads})$, $n(\text{CO}_{ads})$, $v(\text{CO}_2)$, $f(1 \times 1)$, $f(hex)$, T полученные с помощью КА_α и КА_β , очень близки. На рис. 6 представлено распределение вероятностей $v(\text{CO}_2)$ и периодов колебаний. Среднеквадратичные разности распределений вероятностей этих характеристик для асинхронного и блочно-синхронного КА не превосходят 10^{-4} . Например, среднеквадратичные разности распределений вероятностей $v(\text{CO}_2)$ и периодов T составляют $E(v(\text{CO}_2)) = 5,9 \cdot 10^{-5}$ и $E(T) = 7,1 \cdot 10^{-5}$.

Математическое ожидание ($M\xi$), дисперсия ($D\xi$) и доверительные интервалы для математического ожидания $I_{M\xi}$ и дисперсии $I_{D\xi}$, вычисленные для скорости образования CO_2 и периодов колебаний, приведены в таблице 1. Доверительные интервалы рассчитывались с доверительной вероятностью $\gamma = 0,95$. Из таблицы видно, что значения числовых характеристик для концентраций адсорбированных реагентов, скорости образования CO_2 и доли 1×1 и hex поверхности, полученных в результате моделирования с помощью асинхронного и блочно-синхронного КА, отличаются незначительно.

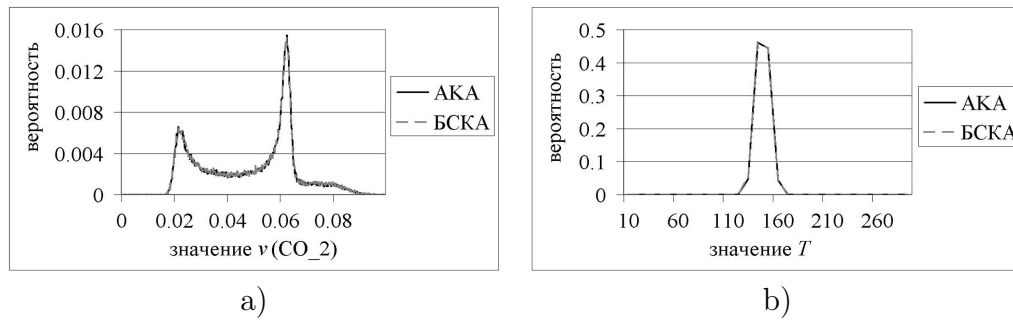


Рис. 6. Сравнение значений распределения вероятностей, вычисленных с помощью KA_α и KA_β : а) скорость образования CO_2 ; б) периоды колебаний

Бифуркационная диаграмма, построенная в результате анализа эволюции блочно-синхронного КА в пространстве констант скорости адсорбции кислорода k_6 и монооксида углерода k_1 , совпадает с диаграммой, вычисленной с помощью асинхронного КА (рис. 3). Это подтверждает, что KA_α и KA_β демонстрируют одинаковый характер поведения реакции окисления.

Таблица 1

Статистические характеристики $v(\text{CO}_2)$ и T , полученные с помощью KA_α и KA_β

Характеристики	$M\xi$	$D\xi$	$I_{M\xi}$	$I_{D\xi}$
$v(\text{CO}_2)_\alpha$	0,048841	0,000317	(0,048805; 0,048876)	(0,000316; 0,000318)
$v(\text{CO}_2)_\beta$	0,048826	0,000316	(0,048791; 0,048862)	(0,000315; 0,000317)
T_α	14,490580	0,461572	(14,485427; 14,495732)	(0,456621; 0,466523)
T_β	14,469609	0,538590	(14,464047; 14,475171)	(0,532817; 0,544363)

Полученные результаты свидетельствуют о совпадении эволюций асинхронного и блочно-синхронного КА.

3. Результаты распараллеливания блочно-синхронного КА

Распараллеливание блочно-синхронного КА заключается в разделении клеточного массива $\Omega(A, X)$ на домены $|Dom| = \frac{|X|}{n}$, которые распределяются между n процессами. Каждый процесс вычисляет новые значения клеток своего домена и пересылает граничные значения соседним процессам. Обмен граничными значениями выполняется в конце каждого этапа, т.к. условие (12) гарантирует, что при применении локального оператора $\Theta(i, j)$ к клеткам выбранного множества X_k не понадобятся значения состояний клеток, вычисленных на текущем этапе [5]. Объем пересылаемых данных составляет $2 \cdot P_{Dom}$ байт, где P_{Dom} – периметр домена.

Распараллеливание блочно-синхронного КА выполнялось на суперкомпьютере «МВС-100К» (МСЦ РАН) с использованием библиотеки MPI. При распараллеливании используется гибридная модель MPI+OpenMP. На каждом вычислительном узле запускается 4 MPI-процесса, в каждом из которых запускается по 2 потока. Для эффективного использования ресурсов вычислительного модуля потока явным образом

назначаются на ядра, объединенные общей кэш-памятью. Результаты распараллеливания клеточного массива размером $|X| = 8000 \times 8000$ клеток представлены в таблице 2. В качестве характеристик распараллеливания рассматриваются: T_n – время вычислений с использованием n процессов, $S(n) = \frac{T_1}{T_n}$ – ускорение и $Q(n) = \frac{T_1}{T_n \cdot n}$ – эффективность распараллеливания.

Таблица 2

Характеристики распараллеливания блочно-синхронного КА

n	1	4	16	32	64	128	256
T_n, s	867,15372	218,58	55,97	29,40	16,47	9,52	4,77
$S(n)$	1	3,97	15,49	29,49	52,64	91,12	181,92
$Q(n)$	1	0,99	0,97	0,92	0,82	0,72	0,71
$ Dom $	$2,56 \cdot 10^8$	$6,4 \cdot 10^7$	$1,6 \cdot 10^7$	$8 \cdot 10^6$	$4 \cdot 10^6$	$2 \cdot 10^6$	10^6

Данные приведенные в таблице показывают, что при использовании до 128 процессов эффективность $Q(n)$ выше 80%, при дальнейшем увеличении числа процессов эффективность распараллеливания падает. Это связано с возрастанием накладных расходов на обеспечение обмена данными между вычислительными узлами и недостаточной загрузкой ядер. Для достижения высокой эффективности размер домена $|Dom|$ должен превышать $2,04 \cdot 10^6$ клеток.

4. Заключение

В работе реализован асинхронный клеточный автомат, моделирующий реакцию окисления СО на поверхности Pt. Построенная КА-модель демонстрирует колебания скорости реакции, концентраций веществ, адсорбирующихся на поверхности катализатора, и долей 1×1 и *hex* поверхности. Колебания сопровождаются различными волновыми процессами на моделируемой поверхности.

Для достижения высокой эффективности распараллеливания выполнено преобразование асинхронного КА в блочно-синхронный. Для проверки эквивалентности эволюций KA_α и KA_β сравнивались значения распределения вероятностей концентраций и периодов колебаний, математическое ожидание и дисперсия распределения вероятностей, доверительные интервалы и бифуркационные диаграммы реакции окисления. Статистические характеристики, полученные в результате моделирования с помощью асинхронного и блочно-синхронного КА, отличаются незначительно, что свидетельствуют о применимости преобразования KA_α в KA_β для реакции окисления СО.

Выполнено распараллеливание блочно-синхронного КА, моделирующего реакцию окисления СО на Pt. Анализ характеристик распараллеливания при $|X| = 8000 \times 8000$ клеток показал, что для достижения высокой эффективности размер домена $|Dom|$ должен превышать $2,04 \cdot 10^6$ клеток.

Работа проводилась при финансовой поддержке 1) Междисциплинарного интеграционного проекта СО РАН № 47 (2012 год); 2) Гранта РФФИ 11-01-00567-а; 3) Программы Президиума РАН № 14-6 (2012 год).

Литература

1. Wolfram, S. New Kind of Science / S. Wolfram. - Wolfram Media, Inc. - 2002 / <http://www.wolframscience.com/>.
2. Тоффоли, Т. Машины клеточных автоматов / Т. Тоффоли, Н. Марголюс – М.: Мир, 1991. – 269 с.
3. Ванаг, В.К. Исследование пространственно распределенных динамических систем методами вероятностного клеточного автомата / В.К. Ванаг // Успехи физических наук. Обзоры актуальных проблем. – 1999. – Т. 169, № 5. – С. 481–505.
4. Imbihl, R. Oscillatory Kinetics in Heterogeneous Catalysis / Ronald Imbihl and Gerhard Ertl // Chemical Reviews. – 1995. – Vol. 95, № 3. – P. 697–733.
5. Bandman O. Parallel Simulation of Asynchronous Cellular Automata Evolution. / Bandman O. // Proceedings of ACRI-2006. In: Lecture Notes in Computer Science, Berlin: Springer. – 2007. –Vol. 4173. – P. 41–47.
6. Nedeia, S.V. Methods for parallel simulations of surface reactions / S.V. Nedeia, J.J. Lukkien, A.P.J. Jansen, P.A.J. Hilbers // arXiv:physics/0209017. – 2002. – Vol. 1.
7. Elokhin, V.I. Application of statistical lattice models to the analysis of oscillatory and autowave processes in the reaction of carbon monoxide oxidation over platinum and palladium surfaces / V.I. Elokhin, E.I. Latkin, A.V. Matveev, and V.V. Gorodetskii // Kinetics and Catalysis. – 2003. – Vol. 44, № 5. – P. 692–700.
8. Latkin, E.I. Monte Carlo model of oscillatory CO oxidation having regard to the change of catalytic properties due to the adsorbate-induced Pt(100) structural transformation / E.I. Latkin, V.I. Elokhin, V.V. Gorodetskii // Journal of Molecular Catalysis A: Chemical. – 2001. – Vol. 166. – P. 23–30.
9. Bandman O. Synchronous versus asynchronous cellular automata for simulating nanokinetics / Bandman O. // Bulletin of the Novosibirsk Computing Center, Comp. Science, Novosibirsk: NCC Publisher. – 2006. № 25. – P. 1–12.
10. Бандман, О.Л. Клеточно-автоматные модели пространственной динамики. / О.Л. Бандман // Системная информатика – Методы и модели современного программирования. – 2006. № 10. – С. 59–113.
11. Ziff, R.M. Kinetic phase transitions in irreversible surface-reaction model / R.M. Ziff, E. Gulari, Y. Bershad // Phys. Rev. Lett. – 1986. – Vol. 56, № 24. – P. 2553.

Шарифулина Анастасия Евгеньевна, аспирант, лаборатория «Параллельных алгоритмов и структур», Институт вычислительной математики и математической геофизики Сибирского отделения РАН, sharifulina@ssd.sccc.ru.

PARALLEL IMPLEMENTATION OF CATALYTIC REACTION ($\text{CO} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$) BY ASYNCHRONOUS CELLULAR AUTOMATA

A.E. Sharifulina, Institute of Computational Mathematics and Mathematical Geophysics SB RAS (Novosibirsk, Russian Federation)

Parallel implementation of cellular automata (CA) model of heterogeneous catalysis classical reaction, namely carbon monoxide oxidation (CO) reaction over platinum surface is presented. Catalytic reactions when being far from equilibrium may be accompanied by such critical phenomena as oscillations, kinetic phase transitions and chaos. Besides fundamental interest studying of basic kinetic laws of physicochemical processes on metals of platinum group has the important practical application. These reactions are used for environmental cleaning of exhaust from CO . The asynchronous cellular automata being sometimes referred to as Monte-Carlo method are the most suitable for describing of complex behavior of nonlinear catalytic systems. CA simulation of heterogeneous catalysis reactions requires to solve problems of very large size, therefore it is necessary to use efficient algorithms of parallelization. For the asynchronous CA of efficient parallel implementation is stiff problem. Therefore to solve this problem the asynchronous CA is transformed in block-synchronous CA.

The block-synchronous mode of CA operation decreases the stochasticity of the process. Therefore it is necessary to check, whether block-synchronous CA conserves asynchronous CA evolution. This is done by comparative analysis of simulation characteristics such as probability distribution of reagents concentrations mathematical expectation and dispersion of concentrations and bifurcation diagrams of oxidation reaction obtained by CA simulation with asynchronous and block-synchronous operation modes. Obtained characteristics coincidence of asynchronous and block-synchronous CA evolutions is shown. In addition, comparison asynchronous and block-synchronous CA evolutions for models “ZGB” and “naive diffusion” are performed. Consequently, conclusion about acceptable accuracy of approximation of asynchronous mode to block-synchronous one for the class “reaction – diffusion” models is made. Parallel implementation of block-synchronous CA algorithm results and estimations of its efficiency are presented.

Keywords: asynchronous cellular automata, block-synchronous mode, catalytic oxidation reaction, parallel implementation.

References

1. Wolfram S. New Kind of Science. Wolfram Media, Inc, 2002. URL: <http://www.wolframscience.com/>
2. Toffoli T. and Margolus N. Cellular Automata Machines: A New Environment for Modeling. Cambridge, MA: MIT Press, 1987, Weisstein, P. 200.
3. Vanag V.K. Issledovanie prostranstvenno raspredelennykh dinamicheskikh sistem metodami veroyatnostnogo kelotochnogo avtomata [Study of spatially extended dynamical systems using probabilistic cellular automata]. Phys.-Usp., 1999, No. 42. P. 413.
4. Imbihl R. and Ertl G. Oscillatory Kinetics in Heterogeneous Catalysis. Chemical Reviews, 1995, Vol. 95, No. 3, P. 697–733.
5. Bandman O. Parallel Simulation of Asynchronous Cellular Automata Evolution. Proceedings of ACRI-2006. In: Lecture Notes in Computer Science, Berlin: Springer, 2007, Vol. 4173, P. 41–47.
6. Nedeя S.V., Lukkien J.J., Jansen A.P.J., Hilbers P.A.J. Methods for parallel simulations of surface reactions /arXiv:physics/0209017, Vol. 1, 2002.
7. Elokhin V.I., Latkin E.I., Matveev A.V., and Gorodetskii V.V. Application of statistical lattice models to the analysis of oscillatory and autowave processes in the reaction of carbon monoxide oxidation over platinum and palladium surfaces. Kinetics and Catalysis, 2003, Vol. 44, No. 5, P. 692–700.

8. Latkin E.I., Elokhin V.I., Gorodetskii V.V. Monte Carlo model of oscillatory CO oxidation having regard to the change of catalytic properties due to the adsorbate-induced Pt(100) structural transformation. Journal of Molecular Catalysis A: Chemical. 2001, Vol. 166, P. 23–30.
9. Bandman O. Synchronous versus asynchronous cellular automata for simulating nanokinetics. Bull. Nov. Comp. Center, Comp. Science, Novosibirsk: NCC Publisher, 2006, No. 25, P. 1–12.
10. Bandman O.L. Kletochno-avtomatnye modeli prostranstvennoy dinamiki. [Cellular-Automata models of spatial Dynamics]. Systemnaya informatika - Metody i modeli sovremennogo programirovaniya, 2006, No. 10, P. 59–113.
11. Ziff R.M., Gulari E., Bershad Y. Kinetic phase transitions in irreversible surface-reaction model. Phys. Rev. Lett, 1986, Vol. 56, No. 24, P. 2553.

Поступила в редакцию 5 ноября 2012 г.