

二成分相対論的時間依存密度汎関数理論に基づく

励起状態超並列計算プログラムの開発

○河東田 道夫¹, 中嶋 隆人¹¹理研 AICS

mkatouda@riken.jp

【序】最近の有機 EL や色素増感太陽電池などの光機能分子材料の研究開発では、重原子を含む錯体を用いた材料を用い、スピン-軌道相互作用によるスピン禁制励起を促がす分子設計指針が注目されている。これらのスピン禁制励起機構を理論計算より解明し、より高効率な材料設計指針を提案するためには、スピン軌道相互作用を考慮した二成分相対論的時間依存密度汎関数理論(SO-TDDFT)に基づく大規模分子の励起状態計算手法の開発が重要な課題となっている。本研究では、大規模分子の SO-TDDFT 計算を「京」などのマルチコア超並列クラスタシステムで高速・高並列に行うことを目的として、これらの計算システムで推奨されている MPI/OpenMP ハイブリッド並列アルゴリズムを分子科学計算プログラム NTCHEM [1, 2] へ実装した。本発表では並列アルゴリズムおよび実装の詳細の詳細、並列性能評価のための「京」でのテスト計算結果を紹介する。

【並列実装】SO-TDDFT 計算では、Fock 様行列計算が最大の計算律速区間であり、Davidson 型のアルゴリズムによる固有値計算が第 2 の律速区間となる。そこで、これらの律速区間を中心に MPI/OpenMP 並列化による性能高度化を行った。フォック様行列計算の MPI/OpenMP 並列化は非相対論 DFT 計算の MPI/OpenMP 並列化と同様のアルゴリズムを採用して行った。Davidson 型の固有値計算の MPI/OpenMP 並列化では、試行ベクトルと残渣ベクトルをアップデートする処理においてこれらのベクトルデータを各ノードに分散して保持し、ノード毎の処理を MPI 並列化、ノード内の処理を OpenMP 並列化する実装を行った。さらに、相互作用行列計算および、拡張した試行ベクトルの修正 Gram-Schmidt 直交化の処理について、ブロック化されたデータの行列-行列積演算を BLAS ライブラリのレベル 3 の ZGEMM を用いて行うことにより高速化・OpenMP 並列化する実装を行った。

【結果】表 1 に色素増感太陽電池用有機色素 DX1[3,4]の SO-TDDFT 励起状態計算を「京」で実行した際の計算時間と高速化率を示す。「京」192 ノードを用いた計算の高速化率を 192 倍とした場合、768 ノードを用いた計算では 380 倍の加速を達成しており、比較的小規模な DX1 分子の場合でもノード数の増加に対して良好な並列性能を達成することが確認された。また、768 ノードを用いた場合の計算時間は 130 分であり、有機光機能材料の光吸収過程の検討といった応用計算へも十分適用可能な計算時間内であった。発表当日には、より大きな分子のテスト計算結果を紹介する。

表 1. 「京」での MPI/OpenMP ハイブリッド並列 SO-TDDFT 計算の計算時間と高速化率 (色素増感太陽電池用色素 DX1 PBE1PBE/Sapporo2012, 63 原子, 731 原子軌道, 励起エネルギー解 50)

ノード数	CPU コア数	計算時間[分]	高速化率
192	1536	257	192.0
384	3072	175	281.5
768	6144	130	380.0
1536	12288	124	398.4

[参考文献] [1] NTCHEM2013, http://labs.aics.riken.jp/nakajimat_top/ntchem_j.html [2] T. Nakajima, M. Katouda, M. Kamiya, and Y. Nakatsuka, Int. J. Quant. Chem. 115, 3 (2015) [3] T. Kinoshita, J. T. Dy, S. Uchida, T. Kubo, and H. Segawa, Nature Photonics 7, 535 (2013) [4] Y. Imamura, M. Kamiya, and T. Nakajima, Chem. Phys. Lett. 635, 152–156 (2015).