

課題名(タイトル):

メモリ分割並列化された時間依存密度汎関数理論計算プログラムの開発

利用者氏名:

○神谷宗明

理研における所属研究室名:

計算科学研究センター量子系分子科学研究チーム

### 1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

超分子や生体分子のような数千から数万の原子で構成される大規模分子の化学反応性と電子物性の第一原理量子化学計算による予測は、創薬とナノ材料設計において重要な役割を果たす。例えば、タンパク質の光機能の理解においては、タンパク質に含まれる色素自体の光機能性のみならず、多くの場合、色素の励起状態と周囲のアミノ酸との間の分子間相互作用も重要となる。したがって、これらの大きな分子の励起状態を高精度で計算することができるアルゴリズムが求められている。

時間依存密度汎関数理論 (TDDFT) は、その妥当なコストと比較的高い精度のために励起状態を計算するための一般的な方法論になりつつある。この方法では繰り返しアルゴリズムを使えば基底状態の計算と同等のスケールで励起状態等の計算ができるが、分子サイズの増大に従って、これらの配列のメモリ使用量は基底関数の数の二乗で飛躍的に増加する。そのため、数万原子にも及ぶ大規模な分子系の励起状態を計算するためには、これらの配列のメモリ分割化が必要不可欠である。

そこで、本研究では大規模分子の励起電子状態計算を超並列コンピュータで実行することを目的として、メモリ分割並列化された時間依存密度汎関数理論 (TDDFT) 計算プログラムの開発を行った。

本プログラムはポスト京重点課題 5 “太陽光エネルギー変換”の一環として研究を行った。

### 2. 具体的な利用内容、計算方法

本研究では AO 表現の TDDFT 方程式を導出し、AO 表現の X,Y に対して trial vector を張り、繰り返し法で解くプログラムの実装を行った。繰り返し法のアルゴリズムは KAIN[1]を使った。AO 表現のそれぞれの行列は gauss 基底関数をつかっていることにより大規模系に

おいては疎なので、

本研究では超並列疎行列ライブラリー NTPoly[2]を使うことにより、行列要素の分散を行いつつ疎行列の数々の演算を行った。これらの実装は量子化学パッケージ NTChem に実装した。

### 3. 結果

開発したコードの性能を図るため、太陽電池材料である P3HT の計算を行った。計算は HOKUSAI の超並列演算システム (BWMP) 32 ノードを用いて、計算を行った。この計算では一ノードあたり 1MPI プロセス、4 スレッドのハイブリッド並列を用いた。系のサイズを大きくして計算時間と比較を行った結果、線形ではないが低いスケールを示した。その結果として、11310 原子系に対して、TDDFT の繰り返し計算の 1 iteration の計算をすることができた。

### 4. 今後の計画・展望

今後は繰り返し計算を行うことで、これらの分子の励起スペクトルや励起エネルギーを求める予定である。また、プログラムを改良することにより、さらなる高速化を目指す。

### 5. 参考文献

- [1] R.J Harrison. *J. Comput. Chem.* **25**, 328 (2004).  
 [2] W. Dawson and T. Nakajima, *Comput. Phys. Comm.* **225**, 154 (2018)