

Релятивистский метод связанных кластеров для модельных пространств с несколькими квазичастицами: на пути к эффективной реализации

А. В. Олейниченко
А. В. Зайцевский
С. В. Козлов
Э. Элиав

alexvoleynichenko (at) gmail.com

<http://www.qchem.pnpi.spb.ru>

ПИЯФ, 17 апреля 2019

31 мая 2017

Fock Space Coupled Cluster Code (FSCC):

Проект программного комплекса для высокоточных расчетов электронной структуры и спектров молекул соединений тяжелых элементов

- ✓ объединение и систематизация имеющихся кодов (GRECP, CC, ...)
- ✓ создание единообразного интерфейса к ним

11 апреля 2018

FSCC: программный комплекс для высокоточных расчетов электронной структуры и спектров молекул соединений тяжелых элементов: Текущие возможности и перспективы

- ✓ разработка и тестирование эффективных алгоритмов
- ✓ расчет моментов переходов в рамках FS-MRCC

- ✓ **переходим к высоким секторам** пространства Фока: теория
- ✓ совершенно **новая программа – EXP-T**

The background of the slide is a repeating pattern of light gray structural diagrams. These diagrams illustrate various types of structural members and their connections, including beams, columns, and joints. Some diagrams show forces (arrows) and moments (curved arrows) acting on the structures, while others show dashed lines indicating specific points or lines of interest. The diagrams are arranged in a grid-like fashion across the entire slide.

I. FSCC в высоких секторах: теория

Метод связанных кластеров в пространстве Фока (краткое напоминание)

SR-CC:

$$|\psi_0\rangle = e^T |\Phi_0\rangle$$

FS-MRCC:

$$|\psi_x\rangle = \{e^T\} \sum_I C_I |\Phi_I\rangle$$

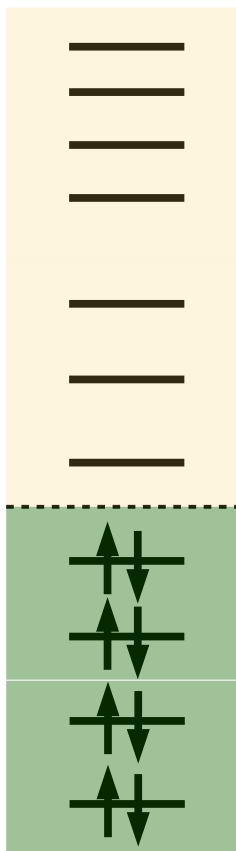
(немного усложненный)
волновой оператор

МОДЕЛЬНЫЙ ВЕКТОР
линейная комбинация
детерминантов

- ✓ размерно-согласованный метод
- ✓ идеально подходит для задач атомной и молекулярной спектроскопии
- ✗ структура модельного пространства полностью определяет круг доступных электронных состояний (область применимости)

Модельное пространство в методе FSCC

$$|\psi_x\rangle = \{e^T\} \sum_I C_I |\Phi_I\rangle$$

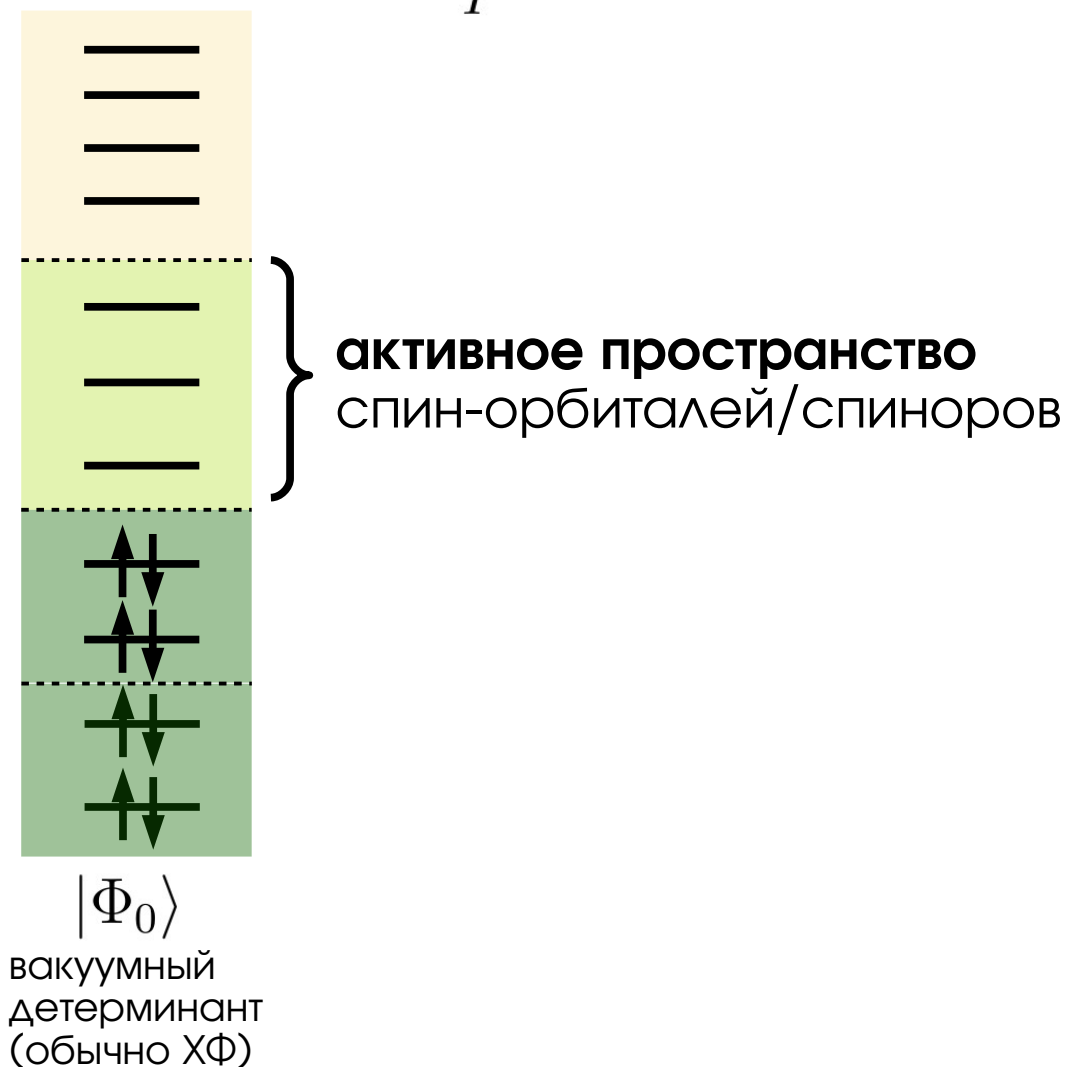


$|\Phi_0\rangle$

вакуумный
детерминант
(обычно ХФ)

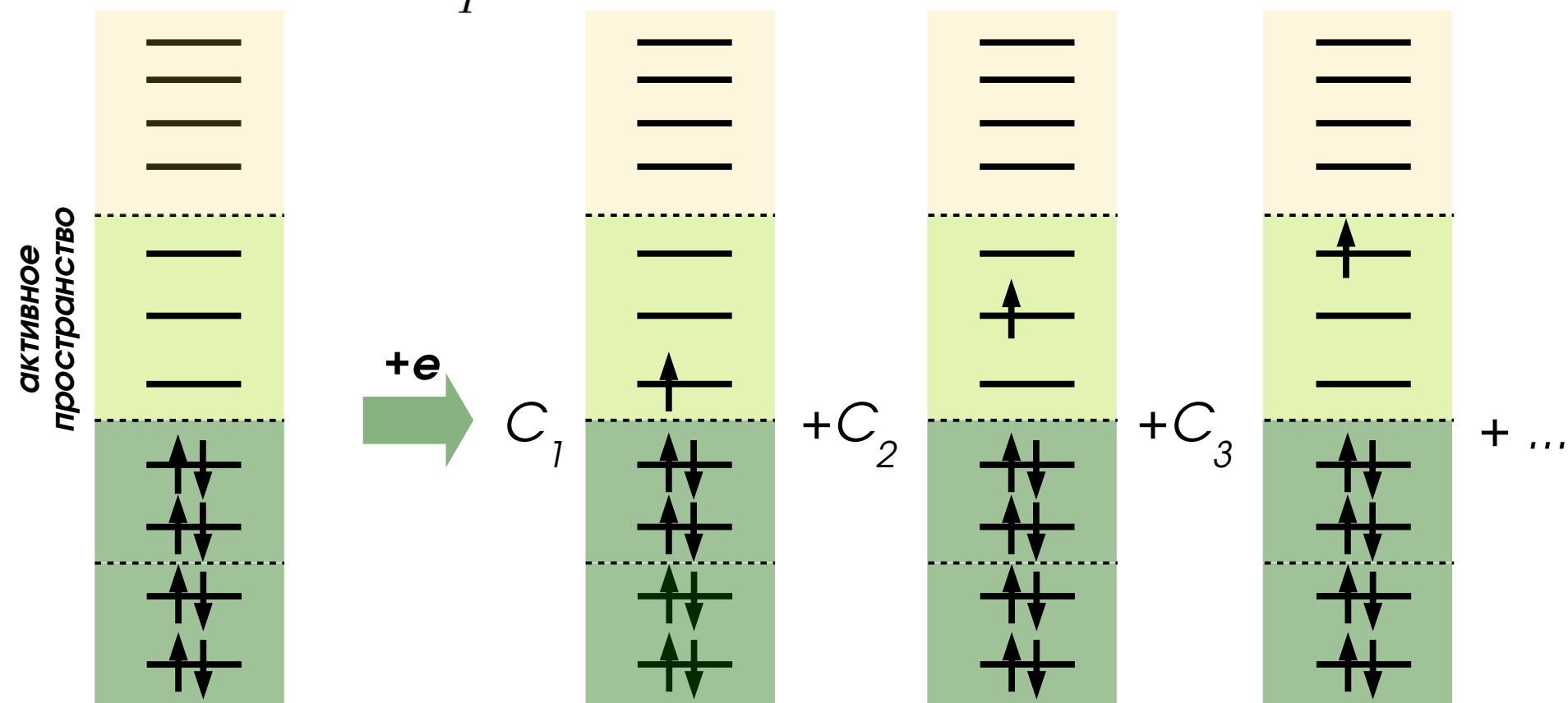
Модельное пространство в методе FSCC

$$|\psi_x\rangle = \{e^T\} \sum_I C_I |\Phi_I\rangle$$



Модельное пространство в методе FSCC

$$|\psi_x\rangle = \{e^T\} \sum_I C_I |\Phi_I\rangle$$



$|\Phi_0\rangle$

вакуумный
детерминант
(обычно ХФ)

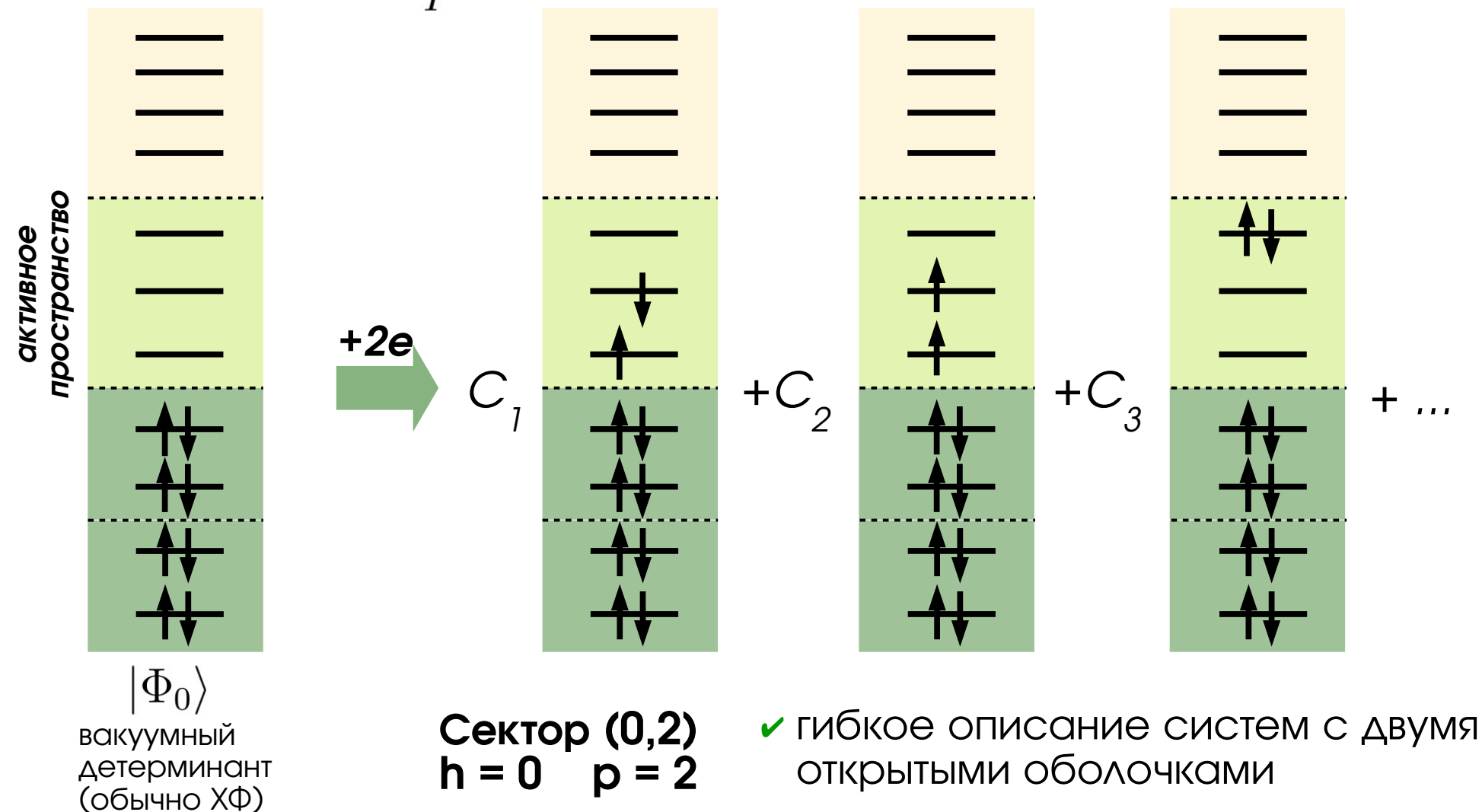
Сектор (0,1)
h = 0 p = 1

- ✓ сродство к электрону
- ✓ электронные состояния аниона

Sr⁺, Ba⁺, Ra⁺ (Sahoo et al, 2009);
RbAr (Medvedev et al, 2018); **CaF** (Isaev et al)

Модельное пространство в методе FSCC

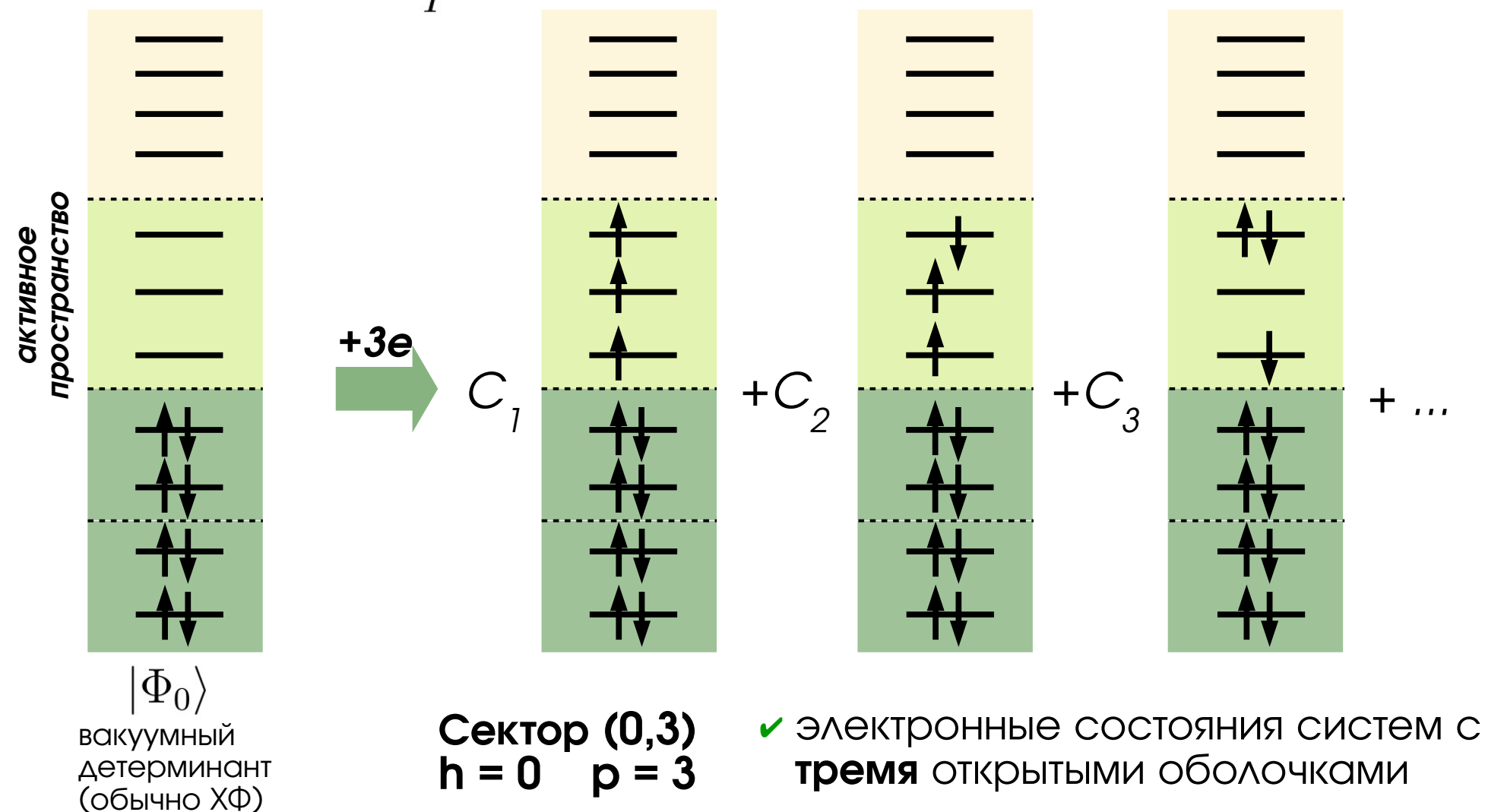
$$|\psi_x\rangle = \{e^T\} \sum_I C_I |\Phi_I\rangle$$



атомы **Hg, E112** (Eliav et al, 1995)
димеры **RbCs, Cs₂** (Zaitsevskii et al, 2017)

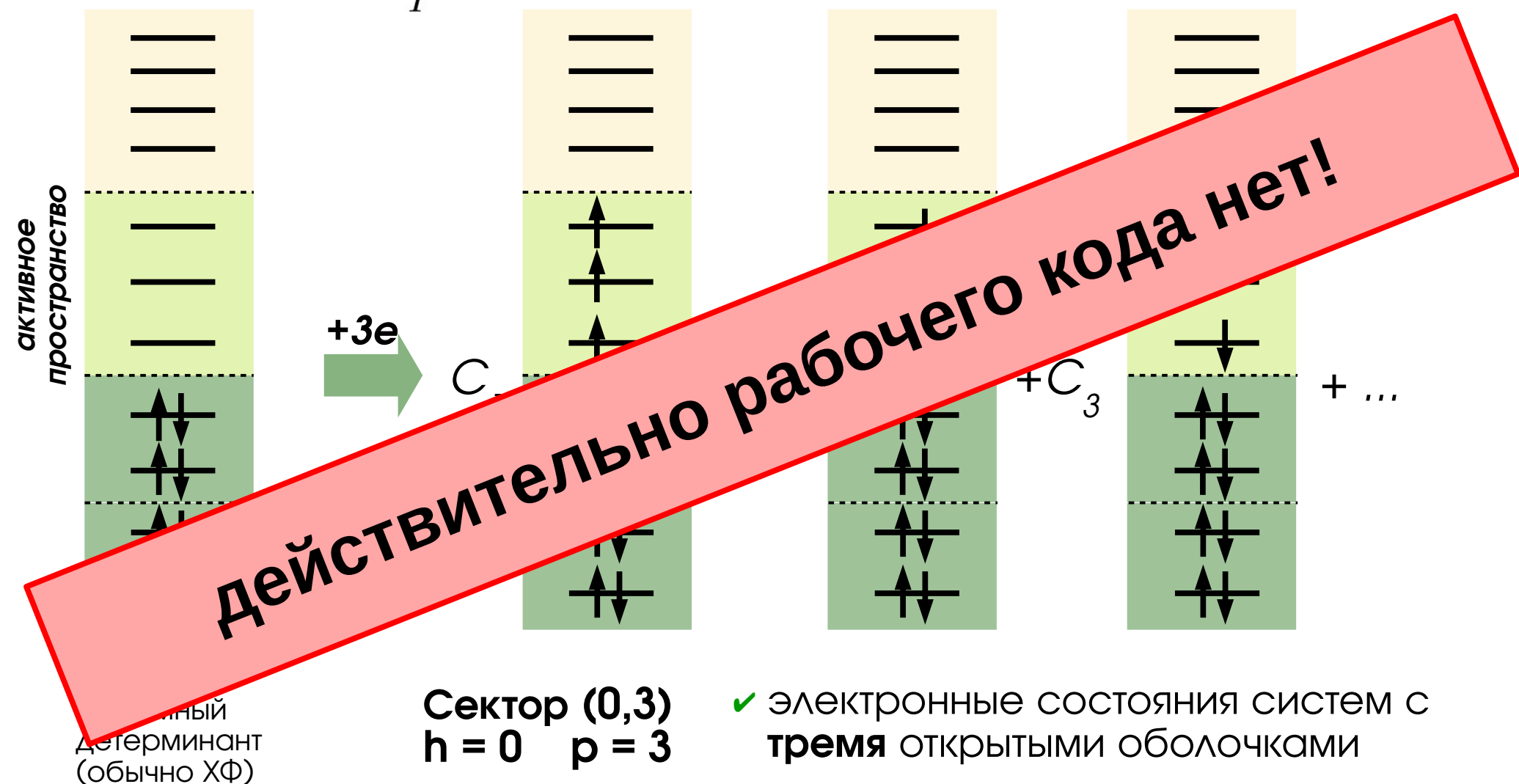
Модельное пространство в методе FSCC

$$|\psi_x\rangle = \{e^T\} \sum_I C_I |\Phi_I\rangle$$



Модельное пространство в методе FSCC

$$|\psi_x\rangle = \{e^T\} \sum_I C_I |\Phi_I\rangle$$



случайный
 детерминант
 (обычно ХФ)

Модельное пространство: высокие сектора

“Высокие сектора” – более двух квазичастиц над вакуумом Ферми

✓ Реализация FSCC для “высоких секторов” делает доступными ранее крайне трудные для прецизионного моделирования системы (несколько открытых оболочек)

(0,3) димеры щелочной – щелочноземельный металл (LiCa, RbSr, ...)

(0,3) димеры щелочной металл – иттербий (YbRb, YbCs, ...)

(0,3) соединения U(III), Np(IV)

(0,4) соединения Pu(IV)

(1,p) электронные состояния с *d*- или *f*-дыркой (характерно для Au, Yb)

+ атомные спектры всех *p*-элементов и большей части *d*- и *f*-элементов

+ первые предсказания в химии суперактинидов (E121 и далее)

Как сконструировать FSCC для высоких секторов?

Уравнения метода FSCC (напоминание)

Кластерный оператор T в секторе (h,p) :

$$T = \sum_{h,p} \sum_n T_n^{(h,p)} = T^{(0,0)} + T^{(0,1)} + T^{(1,0)} + T^{(1,1)} \dots$$

$$T^{(h,p)} = T_1^{(h,p)} + T_2^{(h,p)} + T_3^{(h,p)} + \dots$$

CCSD

CCSDT

все $T^{(h,p)}$ определены относительно общего вакуумного состояния

Эффективный гамильтониан:

матрица
размерности M^{h+p} ,
 M – число активных
спиноров



$$H_{eff}^{(h,p)} = P^{(h,p)} H \{ e^T \} P^{(h,p)}$$

проектор на
модельное
пространство



энергии нескольких электронных состояний

FSCC в высоких секторах: модель CCSD

В секторе (h,p) с $h+p = 3$ в рамках модели CCSD ($T = T_1 + T_2$) нельзя построить отвечающий сектору кластерный оператор $T^{(h,p)}$

- ✓ отсутствует $T^{(h,p)}$ → не нужно решать амплитудные уравнения (быстро!)
- ✓ эффективный гамильтониан строится из молекулярных интегралов и амплитуд из более низких секторов ($h+p < 3$) **неитеративно**:

$$H_{eff}^{(h,p)}(CCSD) = P^{(h,p)} H \{ e^{T_1 + T_2} \} P^{(h,p)}$$

- ✓ максимум 6 квазичастиц над вакуумом (открытых оболочек)

! ожидается понижение точности в ряду секторов:

$$(0,0) \sim (0,1) \sim (0,2) > (0,3) > (0,4) > (0,5) > (0,6)$$

! для высокой точности потребуются **большие модельные пространства**

FSCC в высоких секторах: модель CCSD+T(3)

Идея: попробуем оценить амплитуды операторов T_3 исходя из аргументов многочастичной теории возмущений

T_3 и их вклад $\Delta H_{eff}(T_3)$ оцениваются только один раз в конце расчета – используются “сошедшиеся” амплитуды T_1 и T_2

$$H_{eff} = H_{eff}(CCSD) + \Delta H_{eff}(T_3) \leftarrow [T_3, H_0] \approx VT_2$$

✓ **очень дешево!**

✓ учитываются только появляющиеся в третьем порядке ТВ вклады в H_{eff}

✓ могут быть построены (оценены) амплитуды T_3 в секторах (0,3) и (3,0)

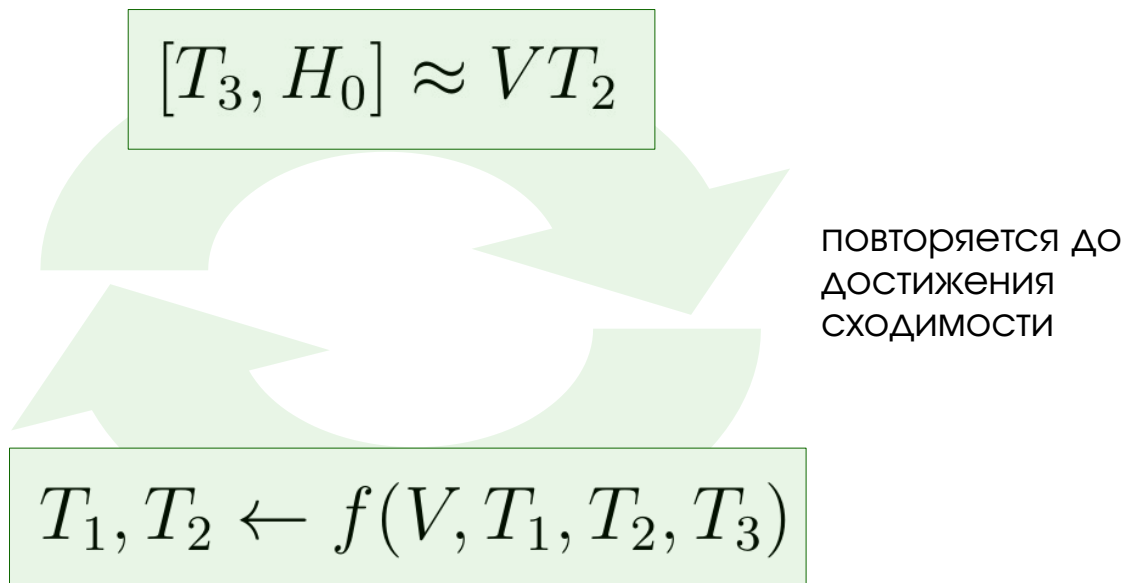
✓ модель аналогична обычному методу CCSD(T)

✗ не всегда предсказуемая точность (для сектора (1,0) см. Bernholdt, Bartlett, 1999)

FSCC в высоких секторах: модели CCSDT-n

Теперь амплитуды T_3 оцениваются на каждом шаге решения амплитудных уравнений и вносят вклад в уравнения на амплитуды T_1 и T_2

CCSDT-1:



- ✓ итеративное решение уравнений только в низких секторах
- ✓ вычислительная сложность ниже, чем у полного CCSDT
- ✓ реализовать не намного сложнее, чем CCSD+T(3)

CCSDT-2, CCSDT-3: в нетривиальных секторах не дешевле CCSDT

В модели CCSDT амплитуды T_3 определены для секторов с $h+p = 3$

✓ аналогично FS-CCSD:

$h+p \leq 3$ – решение амплитудных уравнений

$h+p > 3$ – неитеративное построение H_{eff}

✓ очень высокая точность

✓ до 10 квазичастиц над вакуумом (открытых оболочек)

! сложная программная реализация

✗ очень высокая вычислительная сложность (от $O(N^8)$)

→ могут помочь **только параллельные вычисления**

Сравнение моделей: асимптотическая сложность*

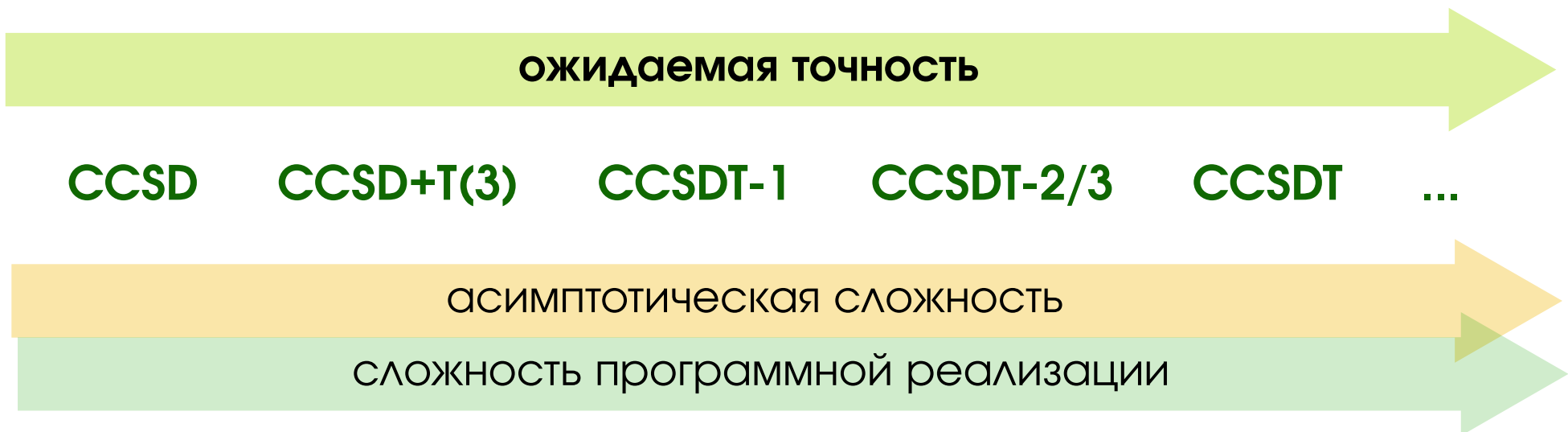
Сектор (h+p)	(0,0)	(1)	(2)	(3)	(4)	(5)	(6)
CCSD	N^6	A^1N^5	A^2N^4	A^6N^1	A^8N^1	$A^{10}N^1$	$A^{12}N^1$
+T(3)	N^7	A^1N^6	A^2N^5	A^6N^2	A^8N^1	–	–
CCSDT-1	N^7	A^1N^6	A^2N^5	A^6N^2	A^8N^1	$A^{10}N^1$	$A^{12}N^1$
CCSDT-2/3	N^7	A^1N^6	A^2N^5	A^3N^5	A^8N^2	$A^{10}N^1$	$A^{12}N^1$
CCSDT	N^8	A^1N^7	A^2N^6	A^3N^5	A^8N^2	$A^{10}N^1$	$A^{12}N^1$

итеративное решение уравнений
неитеративное построение H_{eff}

A – число валентных (активных) спиноров

N – размерность базиса одночастичных функций

Как правило, $A \ll N$



Как построить эффективную программу?

II. На пути к эффективной реализации

Новая программа EXP-T

Требования к новой программе:

- ✓ должна работать с любыми гамильтонианами (NR, DC(B), 2сЕСР, ...)
и точечными группами D_{2h} + подгруппы + $C_{\infty v}$ + $D_{\infty h}$
- ✓ CCSD: минимум 500 спиноров
- ✓ CCSDT: минимум 200 спиноров
- ✓ высокие сектора – хотя бы (0,3)
- ✓ модели до CCSDT включительно
- ✓ удобная сборка (stack)
- ✓ параллелизм

Новая программа EXP-T

Модели:

- ✓ CCSD
- ✓ CCSD+T(3)
- ✓ CCSDT-1,2,3
- ✓ CCSDT

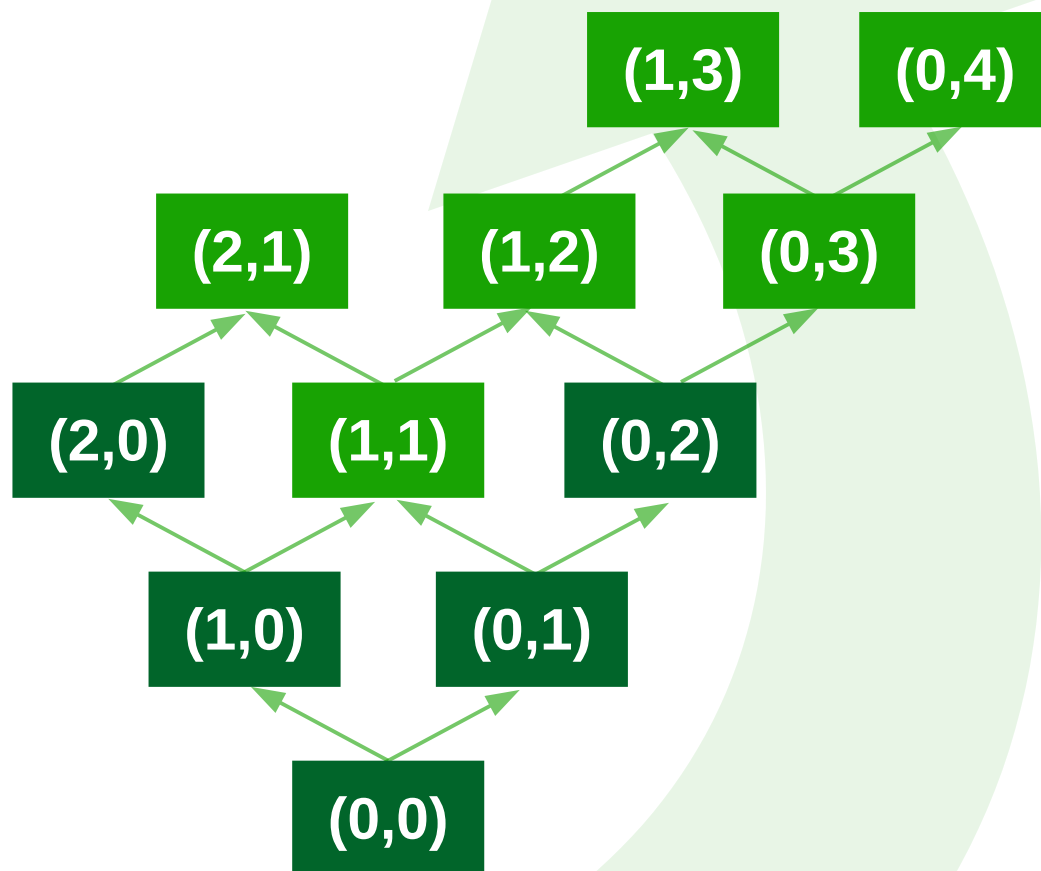
Интегралы:

- ✓ DIRAC*, OneProp
- ✓ любые гамильтонианы и симметрии

Параллелизация:

- ✓ OpenMP
- ✓ CUDA**

Сектора (h,p):
реализованные
планируемые



+ СДВИГИ ЗНАМЕНАТЕЛЕЙ (Zaitsevskii et al, PRA 2017)

L. Visscher et al. DIRAC, a relativistic ab initio electronic structure program, Release DIRAC17 (2017) (<http://diracprogram.org>)

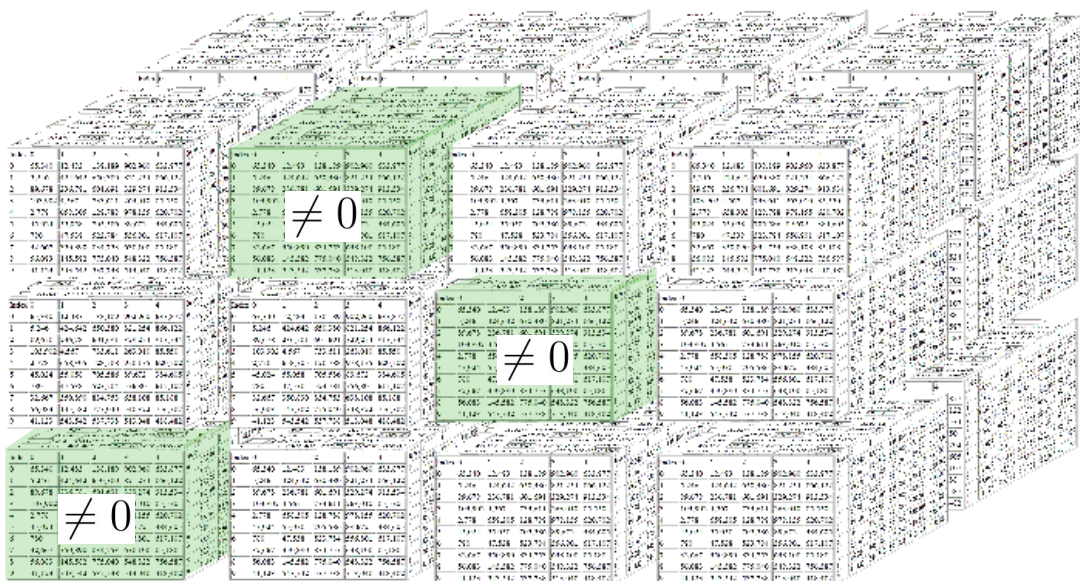
Новая программа EXP-T: алгоритмы

Ключ к эффективной реализации – использование симметрии

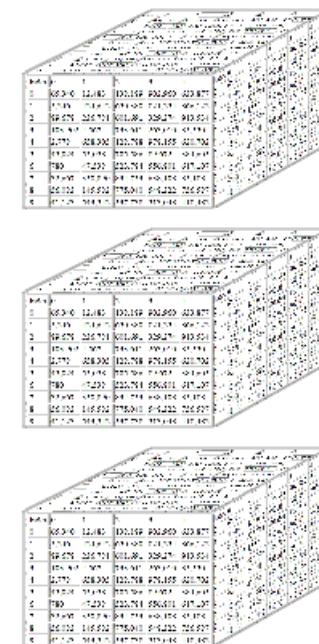
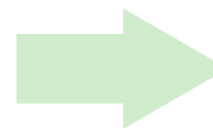
$$\Gamma_A \notin \Gamma_{\psi_i}^* \otimes \Gamma_{\psi_j}^* \otimes \dots \otimes \Gamma_{\hat{O}} \otimes \Gamma_{\psi_a} \otimes \Gamma_{\psi_b} \otimes \dots$$



$$\langle \psi_i \psi_j \dots | \hat{O} | \psi_a \psi_b \dots \rangle = 0$$



многомерный массив интегралов или амплитуд



ненулевые симм. блоки

(т.н. схема direct product decomposition, DPD)

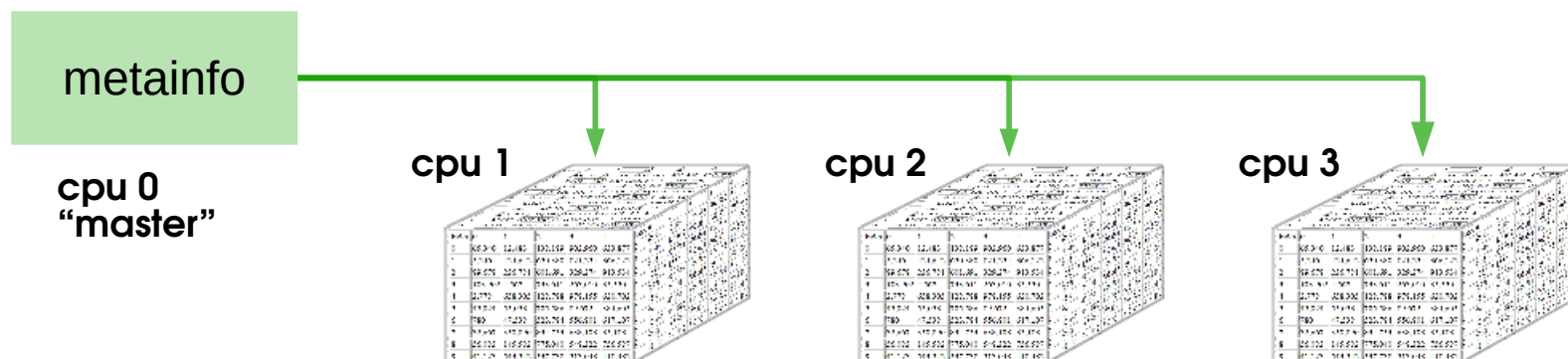
Новая программа EXP-T: алгоритмы

**многомерный массив
интегралов и их индексов**



**совокупность ненулевых блоков
интегралов без индексов**

- ✓ симм. блоки можно разбить на блоки еще меньшего размера – в зависимости от объема доступной оперативной памяти
- ✓ блоки легко хранить на разных узлах кластера (MPI)
→ возможно решение очень больших задач



Новая программа EXP-T: алгоритмы

Транспозиция многомерных массивов

- ✓ асимптотическая сложность: $O(N^4)$ (для модели CCSD)
- ✓ полная независимость по данным \rightarrow очень легко параллелизовать

Вычисление сверток диаграмм

- ✓ вычисление свертки = **матричное умножение**
- ✓ использована библиотека **LAPACK** (OpenBLAS, ...)
- ✓ нулевые симметричные блоки игнорируются
- ✓ огромный ресурс параллелизма!

EXP-T: реальная задача

KCs / $C_{\infty v}$
452 спинора

Сборка компиляторами Intel 19 + MKL v 2019.0.3, Intel(R) Xeon E5-2680v4, 1 поток

Intel® C++ Compiler 19.0; Intel(R) Math Kernel Library 19.0 Update 3 for Linux

время, сек

EXP-T v1.3.3

сортировка интегралов

16080

время на итерацию (0,0)

348

время на итерацию (0,1)

405

Но в EXP-T:

- вся арифметика комплексная
- не учитывается перестановочная симметрия (4x)
- не реализован DIIS и т.д.
- **есть OpenMP параллелизация!**

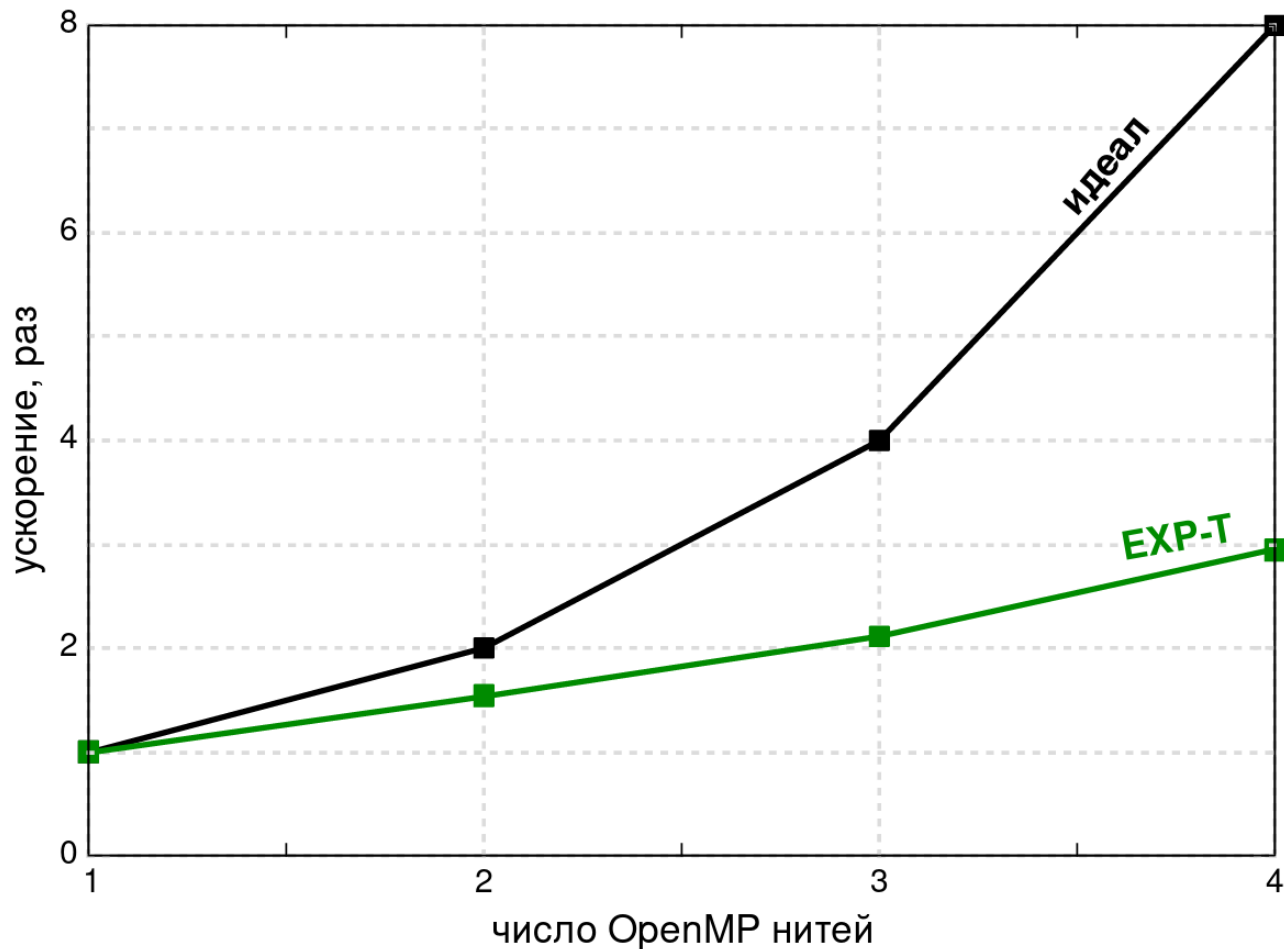
EXP-T + OpenMP

$KRb / C_{\infty v}$
362 спинора

Сборка компиляторами Intel 18 + MKL v 2018.0.1 *, Intel(R) Core(TM) i9-7900X

Время на итерацию в секторе (0,2)

OpenMP: сильная масштабируемость



Атом Rb

182 спинора

Сборка компиляторами Intel 19 + Intel MKL 2019.0.3*, AMD FX(TM)-8320 (8), 1 поток
GPU: NVIDIA(R) GeForce(R) GTX TITAN Black

время, сек

симметрия

EXP-T, seq

EXP-T/CUDA

$C_{\infty V}$

334

1189

C_s

3087

2300

C_1

9726

4825

Дальнейшие планы

- ✓ учет перестановочной симметрии амплитуд: CCSD 4x, CCSDT 36x
- ✓ модели CCSD+T(3), CCSDT-n, CCSDT во всех секторах
- ✓ сектора с тремя квазичастицами (код легко получить из SR-CCSDT)
- ✓ дальнейшие оптимизации OpenMP/CUDA параллелизма:
асинхронное чтение с диска / выгрузка на GPU
- ✓ регистрация ПО и сайт