TSUBAME 共同利用 令和6年度 学術利用 成果報告書

利用課題名 間並列アルゴリズムを用いた物理シミュレーション 英文: Simulation of Physical Processes using time-space parallelization

善甫 康成

Yasunari Zempo

法政大学 情報科学部

Computer and Information Sciences http://cis.k.hosei.ac.jp

物理シミュレーションは大規模となり計算コストもかかる。大規模計算の例として OLED の解析で用いられる実時間 TDDFT 法により、光学スペクトルを求める手法について、従来の Fourier 変換(FT)を用いる方法から、情報科学の 発展により研究が進んでいる最新の時系列データの取り扱い手法である動的モード分解(Dynamic Mode Decomposition)を用いたスペクトル解析手法について検討した。FT の総時間に依存する解像度の制約を受 けず、短い時間であっても効率よく高い精度でスペクトルが求められることが分かった。

Physical simulations are large-scale and computationally expensive. As an example of large-scale computation, the optical spectrum is obtained by the real-time TDDFT method used in the analysis of OLEDs, using dynamic mode decomposition, which is the latest method for handling time series data that has been studied by the development of information science, instead of the conventional Fourier transform (FT) method. It was found that the method is not limited by the resolution that depends on the total time like FT, and spectra can be obtained efficiently and accurately even in a short time-series data.

Keywords: Real-time TDDFT, OLED, FT, Dynamic mode decomposition

背景と目的

大規模な物理シミュレーション物理シミュレーションに は様々な離出の課題がある。もちろん非常に多くの計 算点(格子点)が必要となるので、大きな計算コストがか かる。解析領域のデータが大きくなるので、データアク セス時間が問題となり、並列化の際データ通信は計算 より長い時間がかかる。この大きな課題に対して、我々 は時空間並列アルゴリズムを検討してきた。利用課題の 一番の目的は、超並列 GPU コンピュータ用の新しい時 空間局所化アルゴリズムの開発することである。特に、 実時間の時間依存密度汎関数法(Time-Dependent Density Functional Theory: TDDFT)に適用した。これを 用いた解析を行っている。

実時間 TDDFT は分子の光学スペクトルを求める優れ た計算手法である[1]。特に線形応答を用いて実時間・ 実空間で時間発展の Kohn-Sham 方程式を解く方法を 我々は用いてきた[2,3]。この手法では第一原理計算か ら時系列データを求め、それから光学スペクトルを得る という二つの大きな部分から構成されている。この二つ がそろって本来の効果が得られる。前者の第一原理計 算は最近の大型計算機を駆使することで、大幅な手法 の改善が見られ高速化されている。我々も並列化手法 を駆使することでかなりの性能の改善を見た。一方、後 者の時系列データからスペクトルを求める部分、つま り時間空間から周波数空間についての変換部分に ついては伝統的にそのまま Fourier 変換(FT)を用い るという手法が用いられている。情報科学の発展によ り得られている最新の時系列データ処理の技術が全 く生かし切れていないというのが現状である。そこで 我々は、情報分野において発展してきた最新の時系 列データの取り取り扱い手法を用いることで、TDDFT のさらなる効率化を検討した。

短時間の時系列データからスペクトルを効率的に 求めるために我々は特異値分解(SVD)を使用する手 法を提案している。特異スペクトル解析(Singular Spectrum Analysis: SSA)を用いた手法では時系列デ ータから主要な振動成分を分離し、単純な振動とし て解析することができる[4]。動的モード分解 (Dynamic Mode Decomposition: DMD)では固有直 交分解を用いることで時系列データから固有の振動 モードを求められる[5]。この手法は、特に流体解析 で用いられてきた手法である。また固有モードの時間 発展により、FT や SSA より高精度のスペクトル解析が 可能である。今回はこの DMD に着目し、実時間 TDDFT から得られる時系列データに関して、複数の 分子で従来の手法と比較した結果を報告する。

概要

我々が用いる実時間 TDDFT では、分子の励起状 態を計算するために時間依存の Kohn-Sham 方程式 (KS)を解く。

$$i\frac{\partial}{\partial t}\psi_{j}(\mathbf{r},t) = H\psi_{j}(\mathbf{r},t)$$

$$H = -\frac{1}{2}\nabla^{2} + V_{ion}^{ps}(\mathbf{r}) + V_{H}(\mathbf{r},t)$$

$$+ V_{XC}[\rho(\mathbf{r},t)] + V_{ext}(\mathbf{r},t)$$
(1)

ここで、 ψ_j は*j*番目の電子の波動関数、ハミルトニアン V_{ion}^{ps} はイオンの擬ポテンシャル、 V_H はハートリーポテ ンシャル、 V_{xc} は交換相関ポテンシャルである。ハミル トニアン Hは KS ハミルトニアン H_{KS} に摂動 V_{ext} が加 わった形となっている。ここでは初めに通常の DFT 法 により定常状態を求め、次に外部ポテンシャル V_{ext} を 系に加えることで系の線形応答を実時間で追跡する。

摂動 $V_{ext}(t)$ は非常に弱い電場 E(t)として t = 0で ξ 方向に $V_{ext}(t) = -E(t)\xi$ の形で加えられる。こ の応答として双極子モーメント $\mu_{\xi}(t)$ が生じる。分極 率 $\alpha_{\xi}(\omega)$ は $V_{ext}(t) = -k\xi\delta(t)$ に対する線形応答を 時間発展させたものである。そのため $\alpha_{\xi}(\omega)$ は $\mu_{\xi}(t)$ の FT から求められる。

$$\alpha_{\xi} = \frac{1}{k} \int dt \, e^{i\omega t} \mu_{\xi}(t) \tag{2}$$

ここで、kは波数で ξ 方向の外部摂動を表している。 全分極率は $\alpha = (\alpha_x + \alpha_y + \alpha_z)/3$ として各方向へ の平均として求める。また全振動子強度は、 $S(\omega) = \frac{2\omega}{\pi} \operatorname{Im} \alpha(\omega)$ と求められる。

一方、双極子モーメントの時間発展 $\mu_{\xi}(t)$ は時間 ステップ Δt で総点数 Nとして総時間 $T = N\Delta t$ まで数 値的に求める。 スペクトル $S(\omega)$ の解像度は O(1/T) である。そのためデータ数が不十分である場合はス ペクトルの解像度は低くなる。また FT のこの時間に 関する制限から、周波数に関して格子ができてしまう という課題がある。これによりスペクトルリークが生じ、 強度についても変化してしまうことになる。

この報告ではこの制限に対処するため、時系列デ ータ $\mu_{\xi}(t)$ に対して DMD を適用した。DMD は流体解 析に頻繁に用いられ、場所と時間的な変化を得るた めの手法である。実時間 TDDFT の時系列データの 場合は 1 変数の DMD となる。初めに時系列データ $F = (f_1, f_2, ... f_N)$ から自己相関を取り入れた $\tau \times n$ の トラジェクトリー行列 X を作成する。

$$X = \begin{pmatrix} f_1 & f_2 & \cdots & f_n \\ f_2 & f_3 & \cdots & f_{n+1} \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ f_{\tau} & f_{\tau+1} & \cdots & f_N \end{pmatrix} = (\mathbf{x}_1, \mathbf{x}_2, \dots, \mathbf{x}_n),$$

$$\begin{cases} X_0 = (x_1, x_2, \dots, x_{n-1}) \\ X_1 = (x_2, x_3, \dots, x_n) \end{cases}$$
(3)

ここで、 $\tau = N/2, n = N - \tau + 1$ である。トラジェクトリ 一行列を $X_0(x_0, x_1, ..., x_{n-1})$ および Δt だけ時間発 展をさせた $X_1(x_1, x_2, ..., x_n)$ の2つに分割し、行列が 持っている情報を最大限生かすため窓幅は最大値 $\tau = N/2$ を用いる。(図 1 参照)



図 1. トラジェクトリ—行列 X を時間変化の方向が明 確となるように式(3)に従い X, X'の 2 つに分け、この 間の回帰を取ることにより、基本振動を抽出する。

この 2 つの行列の回帰 $X_1 = AX_0$ を行列 Aで表す。これは時間が離散的となっているときの状態方程式となっている。

行列 Aは Xの疑似逆行列 X⁺を用いて、A = X'X⁺と表す。Aには総ての振動モードに関する情報 が含まれているので、A $\phi = \phi$ Aとして固有モードを見 つければよい。ただ主要なものを取り出すため、Xは SVD で分解し低ランク近似 $X = U_r \Sigma_r V_r^T \epsilon$ 施し、この 左直交行列 $U_r \epsilon$ 用いて、Aのランクを下げると同時に Δt だけ進んだ行列 $X' \epsilon$ 用いて $\tilde{A} = U_r^* A U_r =$ $U_r X' V_r \Sigma^{-1} \epsilon$ 表し、この \tilde{A} について $\tilde{A}W = W A \epsilon$ して、 効率良く固有モードを見つける。

そうすると、基本的な振動モード(DMD モード)は $\phi = X' V_r \Sigma^{-1} W$ で表せ、そのモードの周波数は $\Omega = \log \lambda_d / \Delta t$ となり、その振幅は $b = \phi^{\dagger} x_1$ となる。連続 系および離散系時間での状態方程式との関係から、 連続系でも離散系で \tilde{A} を対角化する行列 U_r を用 いることが可能である。離散系から求めた固有値 Ω で 表されている。つまり離散的なデータ($k\Delta t$)から連続 な時間(t)での解 $f(t) = \phi e^{\Omega t} b$ を求めることができる。 ここが DMD の大きな特徴である。従来の FT を用い る場合と比較して、DMD から得られるモードの周波 数はデータ数によらず分解能が高いという長所があ る。



図 2. 5000 ステップのデータから得られたスペクト ル。FT で求めた振動子強度(実線)と DMD で求め た各モードの振動子強度(赤)の比較。なおグリッド (破線)は FT の分解能を示す。

結果および考察

DMD から求めた振動子強度を FT から求めたもの と比較した。図 2 はエチレンの TDDFT 計算から得ら れた双極子モーメントに対して手法を適用した結果 である。なお、時間ステップ $\Delta t = 0.002[1/eV]$ として 5000 ステップまで計算した。FT と比較して DMD で は分解能の影響を受けずにピーク位置が求められて いる。5000 ステップのデータから FT で得られるスペ クトルの分解能 $\Delta \omega = 2\pi/10$ [eV]であり、データ数の 制限を受ける。このため分解能を超えるエネルギー ではスペクトルの漏れがあることがわかる。

一方、DMD ではこの制約がないので、同じデータ 数でも高い精度のスペクトルを得ることができる。その ため DMD を用いることで TDDFT の計算時間の効率



図 3. C2H4 のスペクトル。5000 ステップのデータか ら得られた DMD によるスペクトル(赤)と、20000 ス テップから FT によって得られたスペクトル(青)。

化が期待できる。

図 3 では、この 5000 ステップのデータから得られ た時系列データµ(t)を用いて 0-30eV の領域につ いて DMD で解析したスペクトルを赤で示し、また 20000 ステップの時系列データµ(t)を用いて FT を 行った結果を青で示した。非常に少ない時系列デー タでも、DMD ではスペクトルが高精度で求められてい ることがわかる。

まとめ、今後の課題

実時間の TDDFT から得られる時系列データ $\mu(t)$ に ついて時間空間から周波数空間についての変換に DMD を用いると、FT に比べかなり少ないデータ量で効 率的に精度よくスペクトルを求めることができる。また FT で課題である総時間 T に起因した解像度の制約がなく スペクトルを求めることが可能である。これは離散的な データ($k\Delta t$)から連続な時間(t)での解 $f(t) = \phi e^{\Omega t} b$ を求めることができることによる。これが DMD の大きな特徴である。従来の FT を用いる場合と比較 して、DMD から得られるモードの周波数はデータ数 によらず分解能が高いという長所がある。 今後、ここで得られた SVD を用いる手法を発展さ せ更に効率的なスペクトル計算法へ仕上げていく予 定である。

参考文献

- [1] E. Runge, E. K. U. Gross, *Phys. Rev. Lett.* **52**, pp.997-1000 (1984).
- [2] K. Yabana, G. F. Bertsch, *Phys. Rev.* B**54**, pp.4484-4487 (1996).
- [3] Y. Zempo, N. Akino, M. Ishida, M. Ishitobi, Y. Kurita, *J. Phys.: Condens. Matter* **20**, 064231 (2008), and the references therein.
- [4] 谷直樹, 狩野覚, 善甫康成, J. Comput. Chem. Jpn. 23, pp. 68-70 (2024)
- [5] Steven L. Brunton, J. Nathan Kutz, "Data-Driven Science and Engineering: Machine Learning, Dynamical Systems, and Control", Ch1 and Ch2, Cambridge University Press, 2022, 2nd ed.