

## 時間依存密度汎関数法による発光材料解析技術の開発とその応用

善甫, 康成 / ZEMPO, Yasunari

---

(雑誌名 / Journal or Publication Title)

科学研究費助成事業 研究成果報告書

(開始ページ / Start Page)

1

(終了ページ / End Page)

4

(発行年 / Year)

2016-06

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 3 日現在

機関番号：32675

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25390158

研究課題名(和文) 時間依存密度汎関数法による発光材料解析技術の開発とその応用

研究課題名(英文) Development of computational techniques for optical materials and its applications using time dependent density functional method

研究代表者

善甫 康成 (ZEMPO, Yasunari)

法政大学・情報科学部・教授

研究者番号：60557859

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：空間・実時間での時間依存密度汎関数法の能力を最大限に引き出し、有機材料の特徴を生かした発光材料開発のシミュレーションを可能とすることを目的に、実時間・実空間のTDDFTの京をはじめとする大型計算機で計算技術の開発を行った。地球シミュレータで実績のあるMPI並列化技術を基盤としたMPI+OpenMPハイブリッド技術をベースに、計算機アーキテクチャに合わせた実装を行い最適化した。その結果、計算時間比にして37%の改善を見ることができた。また時間発展を行うための手法の改良を進めると同時に、時系列データの処理技術の開発や、他のプログラムとの連携が取れるようにすることで、実用的な技術に仕上がった。

研究成果の概要(英文)：We have developed a highly-parallelized simulation program, which is based on the real-time real-space Time Dependent Density Functional Theory. To maximize its potential, it is expected especially to simulate optical properties in the development of organic materials. The practical instrumentation was done in K-computer and other large scale machines. Started with a well-tested MPI parallel technique on Earth Simulator, we have thoroughly advanced a MPI and OpenMP hybrid technique in the development, and performed the instrumentation and optimization of the code, designed for the architecture of the machine. We have successively demonstrated a 37% improvement in calculation time comparison with the original. Together with technical improvement of the time evolution, the processing of time-series of data and interactive usages with other programs are taken in account. The code is now well-organized in practical use.

研究分野：計算材料科学

キーワード：時間依存密度汎関数法 実時間実空間 大規模並列化 MPI-OpenMPハイブリッド MPI通信の隠蔽技術  
時系列データ処理 有機光学材料 実用化技術

1. 研究開始当初の背景

- (1) 実時間・実空間の密度汎関数法(TDDFT)は、材料の発光吸収といった光学的な特徴を解析するのに優れた方法であり、また直観的な理解が得やすいという特徴を持っている。しかし有機材料の特徴が出てくるサイズまでの解析はほとんど行われておらず限定的なサイズでの計算までであり、この手法の持つ能力を実務に役立つレベルまで最大限に引き出すことが望まれていた。
- (2) 並列化の手法としても、地球シミュレータ(ES)のような均一な構造であれば MPI による並列化によってある程度のサイズの解析が可能である。しかし京をはじめとした最近の先端的なマシンでは、MPI のみによる単純な並列化に加えマシンの構造の特徴を捉えた並列化が必要であった。
- (3) TDDFT の手法の面でも、時間発展実時間での時間発展では、ステップ数  $N$  とステップ幅  $\Delta t$  の積  $T = N\Delta t$  を或る程度大きくとらないと、満足いくスペクトルの解像度を得ることができないなど、時間発展技術と時系列データの処理が大きな課題であった。

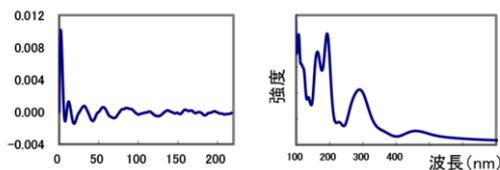


図1. 実空間・実時間の TDDFT では双極子モーメントの時間発展結果(左)をフーリエ変換することでスペクトル(右)を得る。

2. 研究の目的

- (1) 実空間・実時間での TDDFT の能力を最大限に引き出すための大規模並列計算を、「京」をはじめとする最近の超大型計算機で用いられる高度な並列化手法を基に、通信量が障害にならないよう効率的に実装を行う。
- (2) これにより、これまで現象解明などの点で限定的にしか実現できていなかった有機材料の特徴を生かした発光材料開発のシミュレーションを可能とする。
- (3) 更に、得られた技術を用い、京を利用している産業界からの協力によるフィードバックを得つつ材料の開発の現場での応用を効率よく展開することであった。

3. 研究の方法

- (1) 小規模なサイズで基礎的なアイデアを試すと同時に、大型機での並列化を実施する。時間発展を効率的に扱えるプログラムの設計を行う。また得られた時系列データを有効に利用できる技術等を開発する。
- (2) 大型機での並列化技術を生かした実装を行う。ベースとして用いる並列化技術は ES での MPI 技術を用いる。これに京などの大型計算機での最適化を行い、アーキテクチャに合致した並列化を進める。フィードバック

を行いつつ、実時間・実空間の TDDFT 解析における並列化技術の確立を目指す。  
 (3) 京などの大型計算機での実務解析の実施を行い、実際に利用できるレベルであるかを確認する。

4. 研究成果

(1) 大型計算機での並列化技術

基本とするのは ES での実績のある MPI 並列化技術である。ES ではメモリーバンド幅(B/F)が 8 であり、ノード内とノード外で大きな差はなく、均一な MPI で十分並列化の効果があつた。しかし京では BF は 0.5 であり、単純に高度な並列化効率を得ることはできない。

ES での実績ある MPI 並列化技術を基に OpenMP を加えた MPI+OpenMP ハイブリッド技術を用いた(図2参照)。これに以下に示す①~⑤の処理を行うことで、計算時間比にして 37%の改善を見ることができた。

① ゼロクリアの除去

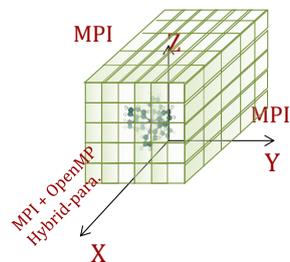


図2. 並列化に用いた分割と並列化技術。

変数をゼロクリアすることでは Fortran90 等では簡単にできてしまうが、データ処理量として 1GB を超えることが多々ある。

② 不要なコピーの排除

実時間の TDDFT 計算において時間発展は重要な要素であるが、この時間発展でも一時データをメモリー上へ退避し、時間ステップ毎に再度呼出す処理があり、これらも B/F の低い大型計算機では、非常に多くの負荷がかかっている。実行速度を低下させる原因となる。

③ 計算機アーキテクチャに合わせた MPI rank mapping の利用

京ではノード間の接続に特徴がある 6D メッシュトラスが用いられている。これに合わせて我々の TDDFT 計算の並列化は MPI\_rank も 3D に合わせ開発初期には 3D として XYZ の分割を用いていたが、MPI rank mapping では ZYX の順が効果があることが判明した。

④ アーキテクチャに合わせたソフトウェアの最適化

京の CPU の特徴として SECTOR キャッシュがあげられる。キャッシュ領域を分割し、通常のキャッシュと、保存しておく部分に分けて用いることで頻りにキャッシュメモリーを書換えが起こらないようにする機能である。

### ⑤ MPI 通信の隠蔽

並列計算の効率を上げるうえで MPI 通信の隠蔽は必須である。特に MPI rank 間の通信に MPI\_send と MPI\_receive の演算が行われる間に別の同様な演算が行える可能性が多々ある。MPI 動作を確認する演算である MPI\_test を行うと実際にこの動作が実行されることが判明した。

以上の結果をまとめたのが図 3 である。サンプルとして用いたのは、高分子有機 LED 材料の中で青色発光のベース材料であるフルオレンの 40 量体である。図 3 (a) では 128 ノードでの結果を基準として性能比を比較した。320 ノードまで直線的に性能が伸びていくことが分かる。1 ノードあたり 8 コアであるので、2560 コアを用いた計算でストロングスケーリングが可能である。これを超えると解析サイズに合わせた並列化でウィークスケーリングとなる。図 3 (b) では、ベースとなる実行時間と各処理による効果が見える。すべて I/O に掛かった時間を除いて比較している。

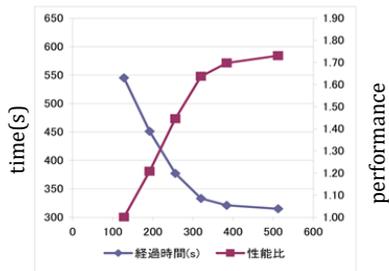


図3(a). 128 ノードでの計算時間に対する性能比(■)と計測に用いたプログラムの実行時間(◆)

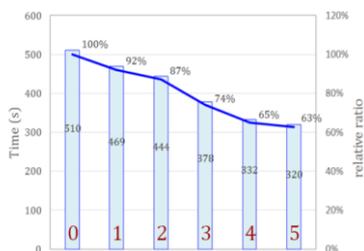


図3(b). サンプルプログラムの実行時間と各処理による効果を表している。数字が①～⑤に対応。

### (2) スペクトル解析での技術の開発

時間発展を行うための手法の改良を進めると同時に、時系列データの処理技術としてフーリエ変換の代替として最大エントロピー法 (MEM) を用いることによる解析手法の開発と導入を行った。更にこの手法の改良によって効率的に解析できる技術を開発した。

発光などギャップ付近の電子状態が重要であるが、スペクトル解析を行うためには比較的多くの時間  $T$  が必要である。しかし時系列データを多数繰り返して利用することで実質的に長い時系列データを多く得ることにより、特に低エネルギー側でのスペクトル情報の収集に非常に有効であるということを見出した。もちろん人工的な周期による副

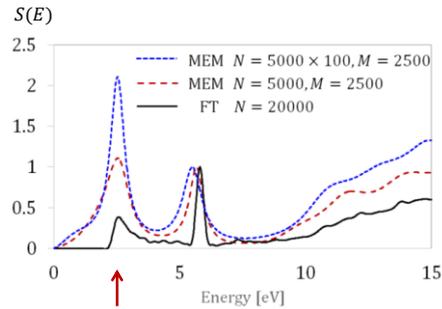


図4. フーリエ変換とMEMでのスペクトルの違い。実線は20000点の時系列データを用いたもの。長破線はそのうちの5000点のデータを使いMEMによるスペクトル。短破線は更に同じデータを100回繰返し、↑で示したピークに合わせた位相も導入した結果である。

作用が発生するが、これは探索するスペクトル領域に対応した位相を導入する技術により回避できることが分かった。その結果、発光や吸収に関わる低エネルギー側のスペクトルの探索が正確かつ的確に行えるようになった。(図 4 参照)

### (3) 実務計算における成果

実務遂行上発生する大型計算での課題を洗い出した。また実務からのフィードバックを得て、プログラム開発の修正や改良に繋げることができた。他のプログラムとの連携を取るため、上記同様に初期値として他の簡便なプログラムから得られた電荷密度を取り入れる改良を行った。

これらの改良により計算可能なサイズは40量体程度となり、実質的な高分子としての特徴が出るサイズになったといえる。発光にかかわるポーラロンが大きさがフルオレンで6~10量体と言われていることから実用的な解析が可能となった(図 5 参照)。

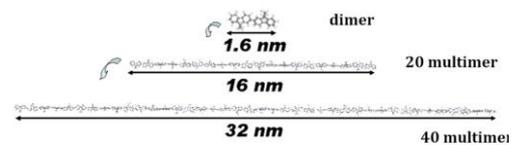


図5. 計算が可能となったフルオレンのサイズ。

更に大きな解析系での計算が可能で他の簡便なプログラムを用い概要を計算し、詳細な解析が必要な箇所を特定し、我々のプログラムで高精度の計算を行うという連携計算が可能となっている。この結果、実用的な計算にも用いられている(引用文献①、雑誌論文④)。今後、更にこの研究の成果が生かせるものと思われる。

### <引用文献>

① 石田 雅也、栗田 靖之、中園 明子、「計算科学を用いた材料の機能予測と設計」住友化学 2015 I, 25-37 (2015)

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線) 主要なもののみ掲載した。

[雑誌論文] (計 8 件)

① Yasunari Zempo, Masaya Ishida, Eiji Tomiyama, Hideki Yamamoto, “Real-Time and Real-Space Program Tuned in K-Computer”, J. Phys: Conf. Seri. **640**, 012066 (2015), doi:10.1088/1742-6596/640/1/012066, 査読有

② Mitsuki Toogoshi, Satoru Kano, Yasunari Zempo, “Maximum Entropy Method for Optical Spectrum Analysis of Real-Time TDDFT”, J. Phys: Conf. Seri. **640**, 012069 (2015), doi:10.1088/1742-6596/640/1/012069, 査読有

③ 田中 志歩、遠越 光輝、善甫 康成、「実空間実時間の TDDFT による 11-cis 型レチナールの光吸収スペクトルの解析」, Journal of Computer Chemistry, Japan, 14, 203-205 (2015), 日本コンピュータ化学会 2015 秋季年会精選論文特集号, doi:10.2477/jccj.2015-0075, 査読有

④ Nobuhiko Akino and Yasunari Zempo, “Optical Properties of Polymers by TDDFT”, MRS Advances, available on CJO2016, 1-5, doi:10.1557/adv.2015.58, 査読有

[学会発表] (計 18 件)

① Y. Zempo, N. Akino, M. Ishida, E. Tomiyama, and H. Yamamoto, “Real-Space Real-Time TDDFT calculations tuned for K-computer”, Tunisia-Japan Symposium on Science, Society and Technology TJASSST, February 23-25, 2015, University of Tsukuba, Tsukuba, Japan

② 遠越 光輝、狩野 覚、善甫 康成、「最大エントロピー法を用いた実空間実時間の TDDFT 法による光学スペクトル解析」、日本応用数理学会 2015 年度年会、2015 年 09 月 09 日～2015 年 09 月 11 日、金沢大学 (石川県・金沢市)

③ 田中 志歩、遠越 光輝、善甫 康成、「実空間実時間の TDDFT によるレチナールの光吸収スペクトルの解析」、日本コンピュータ化学会、2015 年 10 月 30 日～2015 年 11 月 01 日、函館市地域交流まちづくりセンター (北海道・函館市)

④ 遠越 光輝、狩野 覚、善甫 康成、「時系列データの繰返しと位相導入による最大エントロピー法の改良と発光吸収スペクトル解析」、日本コンピュータ化学会、2015 年 10 月 30 日～2015 年 11 月 01 日、函館市地域交流まちづくりセンター (北海道・函館市)

⑤ Y. Zempo, N. Akino, M. Ishida, E. Tomiyama, H. Yamamoto, “Real-Time and Real-Space Calculations Tuned for K-Computer.” The 9<sup>th</sup> General Meeting of ACCMS-VO, December 20, 2014, Okinawa, Japan

⑥ M. Toogoshi, S. S. Kano, Y. Zempo, “The Maximum Entropy Method Technique Improved for Spectrum Analysis,” The 9<sup>th</sup> General Meeting of ACCMS-VO, December 21, 2014, Okinawa, Japan

⑦ Yasunari Zempo, Masaya Ishida, Eiji Tomiyama, Hideki Yamamoto, “Real-Time and Real-Space Program Tuned in K-Computer,” Conference on Computational Physics (CCP2014), August 13, 2014, Boston, USA

⑧ Mitsuki Toogoshi, Satoru Kano, Yasunari Zempo, “Maximum Entropy Method for Optical Spectrum Analysis of Real-Time TDDFT,” Conference on Computational Physics (CCP2014), August 12, 2014, Boston, USA

⑨ M. Toogoshi, M. Kato, S. S. Kano and Y. Zempo, “Optical Spectrum Analysis of TDDFT by Maximum Entropy Method,” Conference on Computational Physics (CCP2013), August 22, 2013, Moscow, Russia

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

[その他] なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

善甫 康成 (ZEMPO, Yasunari)  
法政大学・情報科学部・教授  
研究者番号: 6 0 5 5 7 8 5 9

### (2) 研究分担者

狩野 覚 (KANO, Satoru S.)  
法政大学・情報科学部・教授  
研究者番号: 3 0 1 0 7 7 0 0

### (3) 連携研究者 なし

### (4) 研究協力者

石田 雅也 (ISHIDA, Masaya)  
住友化学 先端材料開発研究所 主席研究員  
秋野 喜彦 (AKINO, Nobuhiko)  
住友化学 先端材料開発研究所 上席研究員