

Алгоритм CROP для ускорения сходимости итерационной процедуры решения уравнений релятивистского метода связанных кластеров

А. С. Румянцев¹, А.В. Олейниченко^{1,2}, А.В. Титов¹, А.В. Зайцевский^{1,3}

¹НИЦ «Курчатовский институт» – ПИЯФ, Гатчина

²Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)

³МГУ имени М.В. Ломоносова, Москва

Теоретический потенциал исследования материалов с лантаноидами и актиноидами, как правило, ограничивается теорией функционала плотности и нерелятивистскими подходами для описания периодических структур. Перечисленные методы в большинстве случаев не позволяют получать надежных результатов, так как волновые функции для соединений f-элементов часто имеют ярко выраженный многоконфигурационный характер, а для спектра состояний характерна высокая плотность низколежащих электронных состояний. Релятивистские методы связанных кластеров для многомерного модельного пространства (MR-CC) позволяют решить эту проблему.

Данная работа посвящена реализации вычислительных алгоритмов, позволяющих улучшить сходимость итерационных процедур решения амплитудных уравнений метода связанных кластеров.

На сегодняшний день для ускорения сходимости итерационной процедуры широко используется алгоритм DIIS. Однако при рассмотрении моделей с высокой вычислительной сложностью, в частности, явно учитывающих вклады трехкратных возбуждений, данный алгоритм требует большого объема оперативной памяти для хранения значений амплитуд на предыдущих итерациях. Для решения данной проблемы в работе [1, 2] был предложен алгоритм CROP. В рамках этого подхода итеративное подпространство может быть сведено к трехмерному без потери скорости сходимости относительно DIIS. Метод CROP был реализован в пакете программ EXP-T [3]. Продемонстрировано, что метод CCSD с использованием DIIS и CROP обладает одинаковой скоростью сходимости, при этом для алгоритма CROP хранилось значения амплитуд с трех последних итераций по сравнению с десятью для DIIS. Тесты проводились для молекул H₂O и AsO⁺, графики изображены на рис. 1 и рис. 2 соответственно.

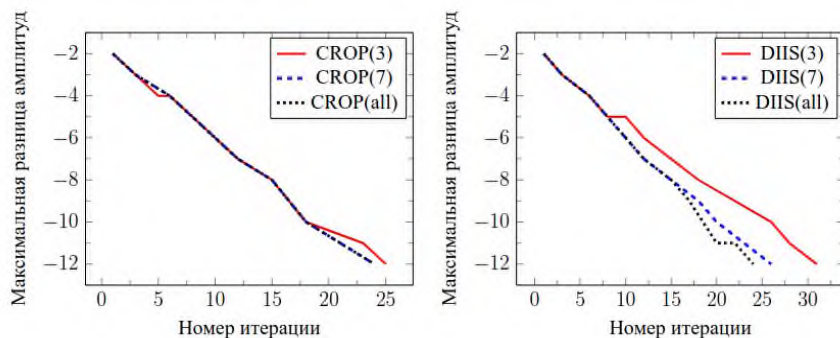


Рис. 1. Сходимость CCSDT с CROP и DIIS для H₂O (логарифмический масштаб по оси y)

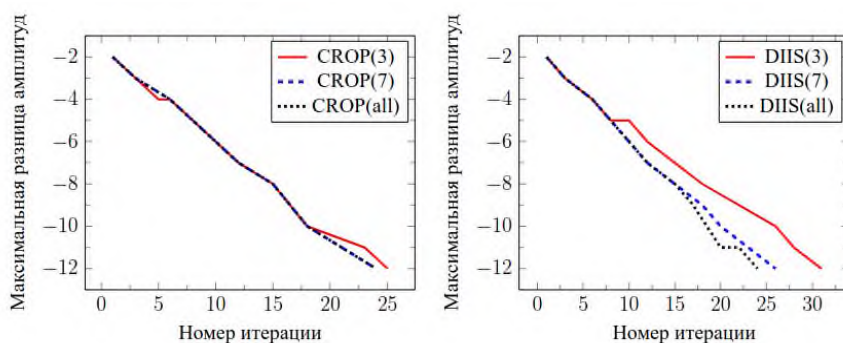


Рис. 2. Сходимость CCSD с CROP и DIIS для AsO⁺ (логарифмический масштаб по оси y)

Из графиков видно, что для достижения максимального ускорения сходимости для алгоритма CROP необходимо хранить последних итераций в несколько раз меньше, чем для алгоритма DIIS.

Исследование выполнено за счет гранта Российского научного фонда (проект № 19-72-10019).

Литература

1. *Ziolkowski M.* [et al.]. An efficient algorithm for solving nonlinear equations with a minimal number of trial vectors: Applications to atomic-orbital based coupled cluster theory// *J. Chem. Phys.* 2008. V. 128(20): 204105.
2. *Ettenhuber P., Jørgensen P.* Discarding information from previous iterations in an optimal way to solve the coupled cluster amplitude equations// *J. Chem. Theory Comput.* 2015. V. 11. P. 1518–1524.
3. *Oleynichenko A.V., Zaitsevskii A.V., Eliav E.* Towards High Performance Relativistic Electronic Structure Modelling: The EXP-T Program Package// *Commun. Comput. Inf. Sci.* 2020. V. 1331. P. 375–386.