

# ВЫСОКОПРОИЗВОДИТЕЛЬНЫЙ ПРОГРАММНЫЙ КОМПЛЕКС ДЛЯ ИССЛЕДОВАНИЯ ПСЕВДОСИММЕТРИИ КРИСТАЛЛОВ И АТОМНЫХ КЛАСТЕРОВ

И.Н. Лозгачев, Н.В. Сомов

Синтезирование материалов с заранее известным набором физических свойств требует выяснения взаимосвязи между атомной структурой, химическим составом и физическими свойствами кристалла. Квантово-механический подход к решению этой задачи приводит к большим вычислительным затратам, поэтому исследователи прибегают к поиску общих структурных характеристик, влияющих на физические свойства кристаллов. Одной из таких характеристик является симметрия.

Инвариантность атомной структуры кристалла относительно одной из 230-ти пространственных групп симметрии называется Федоровской симметрией [1]. Однако в некоторых кристаллах большая часть электронной плотности кристалла инвариантна относительно надгруппы группы симметрии, описывающей кристалл в целом. Данное свойство кристалла называют псевдосимметрией, а кристалл псевдосимметричным [2,3]. Псевдосимметрия влияет на многие физические свойства кристаллов: генерация второй оптической гармоники, пьезоэффект, пироэффект, сегнетоэлектрический эффект и др. [4-6].

Вычисление степени инвариантности электронной плотности кристалла требует существенных вычислительных затрат. Для эффективного решения этой задачи необходимо применение параллельных вычислений. В данной работе предложен параллельный алгоритм расчета степени инвариантности электронной плотности кристалла или атомного кластера. Приведены результаты тестирования высокопроизводительного программного комплекса для исследования псевдосимметрических особенностей атомных кластеров и кристаллов, реализующего предложенный параллельный алгоритм.

Степень инвариантности электронной плотности кристалла определяется функционалом, предложенным в [3]

$$\eta_{\hat{q}}[\rho(\vec{r})] = \frac{\int_V \rho(\vec{r}) \rho(\hat{q}\vec{r}) dV}{\int_V \rho^2(\vec{r}) dV} \quad (1)$$

где  $\rho(\vec{r})$  – функция электронной плотности кристалла,  $\hat{q}$  – оператор псевдосимметричного преобразования. Функционал (1) может принимать значения в диапазоне от 0 до 1. Если  $\eta_{\hat{q}}[\rho(\vec{r})]$  близко к нулю, значит электронная плотность кристалла асимметрична относительно  $\hat{q}$ , если  $\hat{q}$  является собственным оператором группы симметрии кристалла, то  $\eta_{\hat{q}}[\rho(\vec{r})] = 1$ . Вычисление функционала (1) удобно проводить в обратном пространстве [7]

$$\eta_{\hat{q}}[\rho(\vec{r})] = \frac{\sum_{\vec{H}} F(\vec{H}) F(-q^T \vec{H}) \exp(-2\pi i(\vec{H}, \vec{t}))}{\sum_{\vec{H}} |F(\vec{H})|} \quad (2)$$

где  $F(\vec{H})$  – структурная амплитуда,  $\vec{H}$  – вектор обратной решетки,  $q^T$  – транспонированная матрица обобщенного поворота оператора  $\hat{q}$ ,  $\vec{t}$  – трансляционная компонента оператора  $\hat{q}$ . Структурная амплитуда определяется следующим выражением

$$F(\vec{H}) = \sum_{j=1}^N f_j(\vec{H}) O_j T_j \exp(2\pi i(\vec{H}, \vec{r}_j)) \quad (3)$$

где  $N$  – количество атомов,  $f_j(\vec{H})$  – атомный фактор,  $O_j$  – величина заселенности кристаллографической позиции,  $T_j$  – фактор Дебая-Валера,  $\vec{r}_j$  – вектор координат атома. Чем шире диапазон суммирования по вектору обратной решетки  $\vec{H}$ , тем с большей точностью рассчитывается электронная плотность кристалла. На практике было установлено, что оптимальным является диапазон индексов вектора обратной решетки  $|\vec{H}| = 2.0 \text{ \AA}^{-1}$ .

Вычисление функционала (1) является ресурсоемкой задачей, требующей эффективной реализации, и зависит от количества атомов и объема элементарной ячейки кристалла. Расчет включает в себя несколько этапов:

- построение регулярной сетки на основе вектора обратной решетки  $\vec{H}$  и вычисление (3) в каждом узле;
- построение G-карты в каждом узле сетки, вычисляя  $G(\vec{H}) = F(\vec{H})F(-q^T \vec{H})$ ;
- вычисление функционала (2) по G-карте.

Параллельная реализация каждого из этапов дает хорошее ускорение, поскольку вычисление значений регулярной сетки можно выполнять независимо друг от друга. Для этого каждому из параллельных потоков выделяется свой набор узлов сетки, в которых необходимо произвести вычисления, выполняя описанные выше действия. На последнем этапе используется редукция для суммирования функционала (2) по G-карте. Разработка параллельных алгоритмов осуществлена как для выполнения на центральном процессоре с несколькими ядрами, используя технологию OpenMP, так и для графического ускорителя. Чтобы достичь максимальную переносимость программы и иметь возможность запуска на различных конфигурациях вычислительных систем, используется стандарт OpenCL.

На рис. 1 представлен график зависимости времени вычисления функционала (2) от количества атомов и объема элементарной ячейки. Серия расчетов производилась на модельных кристаллах, в которых количество атомов и объем были изменены вручную. В качестве тестовой конфигурации использовался вычислительный кластер ННГУ, состоящий из 16-ти узлов по 2 четырехядерных CPU Intel Xeon L5630 2.13 ГГц, 24 Гб RAM, NVidia Tesla M2050. Из графиков видно, что использование графического ускорителя дает значительный прирост производительности.

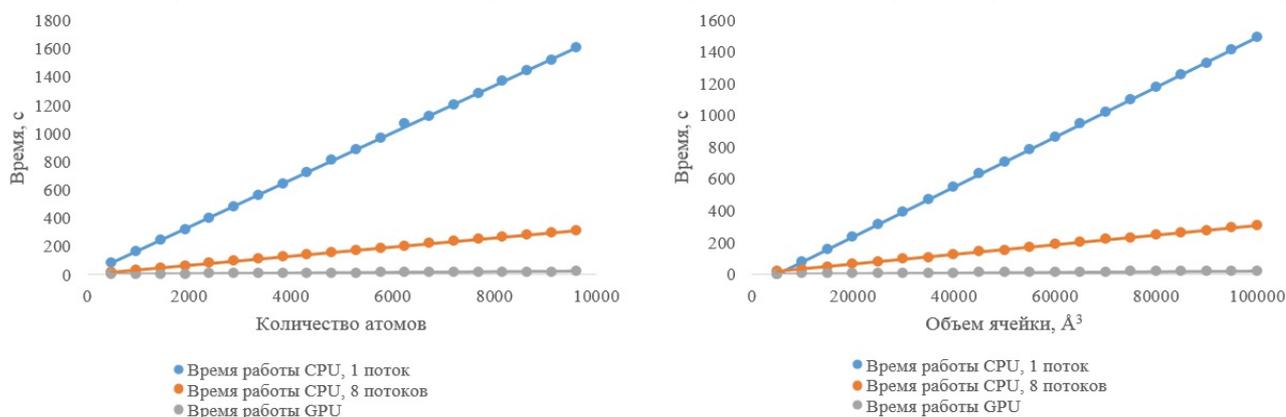


Рис. 1. Время работы различных реализаций алгоритма в зависимости от количества атомов и объема ячейки

На основе описанного подхода реализованы следующие методы исследования атомных структур:

- определение степени инвариантности функции электронной плотности кристалла;
- расчет карты степени инвариантности функции электронной плотности кристалла (на основе заданной матрицы обобщенного поворота рассчитывается функционал (1) в регулярной трехмерной сетке, задающей различные значения вектора  $\vec{t}$ );
- поиск локальных максимумов функционала (1) (поиск вектора  $\vec{t}$ , при котором функционал (1) имеет локальный экстремум);
- вычисление атомных смещений [3];

При исследовании симметричных особенностей кристаллов разупорядоченных твердых растворов возникает задача построения атомного кластера кристалла, полученного в результате моделирования набора элементарных ячеек. Атомный кластер кристалла представляет собой параллелепипед со сторонами  $aN_x$ ,  $bN_y$  и  $cN_z$ , где  $a$ ,  $b$  и  $c$  – параметры элементарной ячейки исходного кристалла,  $N_x$ ,  $N_y$  и  $N_z$  – число элементарных ячеек исходного кристалла, образующих атомный кластер в соответствующем направлении.

Наибольший интерес в настоящее время представляют атомные кластеры разупорядоченных кристаллов, имеющих одну или несколько позиций, в которых атомы с некоторой вероятностью могут заменять друг друга. Доля вероятности характеризуется заселенностью атома, заданной в модели исходного кристалла. Разупорядоченность влияет на многие физические свойства, в частности на оптические [8].

Для исследования разупорядоченных атомных кластеров реализован набор алгоритмов, позволяющих вычислять степень инвариантности функции электронной плотности атомного кластера, варьируя размер кластера по всем направлениям, заселенность разупорядоченных позиций и количество повторных вычислений. При моделировании кластера разупорядоченная позиция заселяется методом Монте-Карло [7]. Каждый из алгоритмов представляет собой набор независимых экспериментов, отличающихся друг от друга варьируемыми параметрами. Распараллеливание данных алгоритмов реализовано для вычислительных систем с разделенной памятью, используя технологию MPI, где каждый из параллельных процессов выполняет свой набор экспериментов.

На основе предложенных параллельных алгоритмов реализован программный комплекс, позволяющий исследовать псевдосимметрию атомных структур кристаллов и атомных кластеров. Метод вычисления степени инвариантности функции электронной плотности имеет параллельные реализации для центрального процессора и графического ускорителя. Для исследования разупорядоченных атомных кластеров реализован ряд параллельных алгоритмов количественной оценки псевдосимметрии кристалла, варьируя размер атомного кластера и заселенность разупорядоченных позиций.

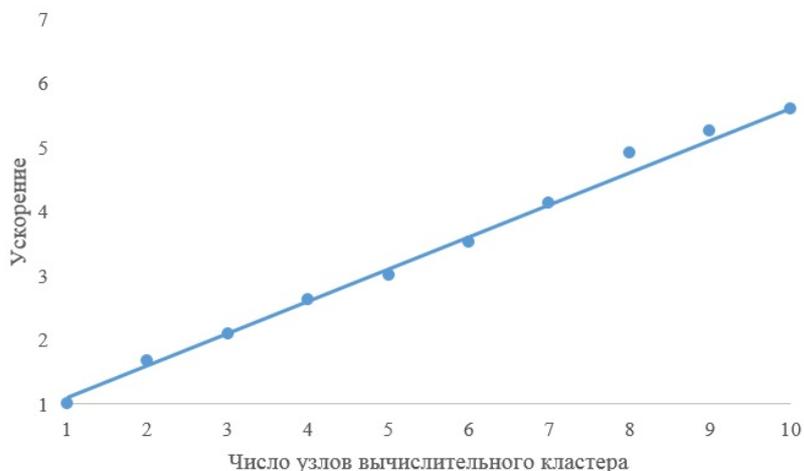


Рис. 2. Ускорение алгоритма исследования псевдосимметрии атомных кластеров

На рис. 2 показано ускорение алгоритма исследования псевдосимметрии атомных кластеров. В качестве объекта исследования был взят атомный кластер, построенный на основе элементарной ячейки кристалла  $K(\text{Ti}, \text{Zr})\text{OPO}_4$  (ICSD-№ 66570) [9]. Эксперимент представлял собой построение атомных кластеров размеров от  $1 \times 1 \times 1$  до  $4 \times 4 \times 4$  с изменением заселенности атомов титана и циркония от 0.05 до 0.95 с шагом 0.05 (с каждым шагом заселенность циркония росла, в то время как заселенность титана падала) и количеством повторов 5. Из графика видно приемлемое ускорение (на 10 узлах кластера составляет приблизительно 5.5 раз). Недостаточная эффективность может быть объяснена использованием алгоритма First Fit Decreasing для распределения задач между узлами вычислительного кластера [10].

В дальнейшем планируется расширить набор алгоритмов исследования псевдосимметрии. Возможно, также, создание WEB-портала, позволяющего любому исследователю удаленно использовать созданный программный комплекс для проведения собственных экспериментов.

#### ЛИТЕРАТУРА:

1. Чупрунов Е.В., Хохлов А.Ф., Фаддеев М.А. Кристаллография: Учебник для вузов. М.: Изд. Физико-математической литературы. 2000. 496 с.
2. Сомов Н.В., Чупрунов Е.В. Трансляционная и инверсионная псевдосимметрия атомных структур кристаллов органических и элементоорганических соединений // Кристаллография. 2009. № 4. С. 581-587.
3. Чупрунов Е.В. Федоровская псевдосимметрия кристаллов. Обзор // Кристаллография. 2007. №. 1. С. 5-16.
4. Ivanov V.A., Faddeev M.A., Chuprunov E.V. Pseudosymmetry and some characteristics of pyroelectric properties of crystals // Crystallography Reports. 2000. V. 45. № 5. P. 839.
5. Katkova M.R., Nosov S.S., Chuprunov E.V. Pseudosymmetry and ferroelectric phase transitions in the KTP structure type // Crystallography Reports. 2000. V. 45. № 4. P. 647.
6. Abrahams S.C., Kurtz S.K., Jamieson P.B. Atomic Displacement Relationship to Curie Temperature and Spontaneous Polarization in Displacive Ferroelectric // Phys. Review. 1968. V. 172, № 2. P. 551-553.
7. Сомов Н.В. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физико-математических наук. Нижний Новгород. 2011.
8. Малов А.В., Марьчев М.О., Рябочкина П.А. и др. Спектроскопические и структурные свойства кристаллов кальций-ниобий-галлиевого граната, активированных ионами  $\text{Er}^{3+}$  // Вестник Нижегородского университета им. Н.И. Лобачевского, серия Физика твердого тела. 2008. № 6. С. 46–52.
9. Hansen N.K., Protas J. Marnier G. The Electron-Density Distribution in  $\text{KTiOPO}_4$  // Acta Crystallographica. 1991. V. 47. P. 660-672.
10. Feitelson D., Rudolph L. Job Scheduling Strategies for Parallel Processing // Lecture notes in computer science. 2005. V. 3834. 283 p.