

Achieving the maximum performance of the resolution of the identity approximation in the Hartree-Fock method

Iu. V. Kashpurovich A. V. Oleynichenko V. V. Stegailov

Joint Institute for High Temperatures
Moscow Institute of Physics and Technology
Petersburg Nuclear Physics Institute - "Kurchatov Institute"
Higher School of Economics
kashpurovich.iuv@phystech.edu
oleynichenko_av@pnpi.nrcki.ru

Parallel Computational Technologies 2025
8 April, 2025

$$\hat{H}_e(r_1, \dots, r_N) \psi(x_1, \dots, x_N) = E_e(R_1, \dots, R_K) \psi(x_1, \dots, x_N) \quad (1)$$

$$\psi_m(x_1, \dots, x_N) \approx \Phi_{0_m}(x_1, \dots, x_N) = \frac{1}{\sqrt{N!}} \begin{vmatrix} \varphi_1(x_1) & \dots & \varphi_1(x_N) \\ \vdots & & \vdots \\ \varphi_N(x_1) & \dots & \varphi_N(x_N) \end{vmatrix} \quad (2)$$

$$\hat{F}[\varphi_1, \dots, \varphi_N] \varphi_i(x) = \varepsilon_i \varphi_i(x) \quad \varphi_i(r) = \sum_{\mu=1}^{N_{AO}} C_{\mu i} \chi_{\mu}(r) \quad F_{\mu\nu} = H_{\mu\nu} + 2J_{\mu\nu} - K_{\mu\nu} \quad (3)$$

$$D_{\mu\nu} = \sum_{i=1}^{N_{occ}} C_{i\mu} C_{i\nu}; \quad J_{\mu\nu} = \sum_{\rho,\sigma} D_{\rho\sigma}(\mu\nu|\rho\sigma), \quad K_{\mu\nu} = \sum_{\rho,\sigma} D_{\rho\sigma}(\mu\sigma|\rho\nu) \quad (4)$$

Приближение разложения единицы

$$(\mu\nu|\rho\sigma) = \int \frac{\chi_\mu(\mathbf{r}_1)\chi_\nu(\mathbf{r}_1)\chi_\rho(\mathbf{r}_2)\chi_\sigma(\mathbf{r}_2)}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} d\mathbf{r}_1 d\mathbf{r}_2, \quad (5)$$

$$J_{\mu\nu} = \sum_{\rho,\sigma}^{N_{AO} N_{aux}} D_{\rho\sigma}(\mu\nu|B)(V^{-1})_{BC}(\rho\sigma|C) \quad K_{\mu\nu} = \sum_{\rho,\sigma}^{N_{AO} N_{aux}} D_{\rho\sigma}(\mu\sigma|B)(V^{-1})_{BC}(\rho\nu|C) \quad (6)$$

$$(\widetilde{\mu\nu|P}) = \sum_B A_{PB}^T(\mu\nu|B)(\widetilde{V}^{-1/2})_{PP}, \quad (7)$$

4c2e

- ① $O(N_{AO}^4)$
- ② $N_{AO} \sim 10^3$: memory ~ 7.5 ТБ

3c2e

- ① $O(N_{AO}^2 N_{aux}) + O(N_{occ} N_{AO}^2 N_{aux}) + O(N_{occ} N_{AO} N_{aux}^2)$
 $O(N_{AO}^2 N_{aux}) + O(N_{occ} N_{AO}^2 N_{aux})$
- ② $N_{AO} \sim 10^3, N_{aux} \sim 3 - 5 \times N_{AO}$: memory ~ 40 ГБ



Vahtras, O., Almlöf, J., Feyereisen, M. (1993)
Integral approximations for LCAO-SCF calculations
Chem. Phys. Lett. 213(5 – 6), 514 – 518.

$$D_B = \sum_{\rho, \sigma} D_{\rho\sigma}(\rho\sigma|C) \quad \tilde{D}_B = \sum_C (V^{-1})_{BC} D_B \quad J_{\mu\nu} = \sum_B (\mu\nu|B) \tilde{D}_B \quad (8)$$

$$\tilde{D}_P = \sum_{\rho, \sigma} D_{\rho\sigma}(\widetilde{\rho\sigma|P}) \quad J_{\mu\nu} = \sum_P (\widetilde{\rho\sigma|P}) \tilde{D}_P \quad (9)$$

111	112	...	11 N_{AO}	...	1 N_{AO} 1	1 N_{AO} 2	...	1 N_{AO} N_{AO}
211	212	...	21 N_{AO}	...	2 N_{AO} 1	2 N_{AO} 2	...	2 N_{AO} N_{AO}
⋮	⋮	⋱	⋮	⋱	⋮	⋮	⋱	⋮
N_{aux} 11	N_{aux} 12	...	N_{aux} 1 N_{AO}	...	N_{aux} N_{AO} 1	N_{aux} N_{AO} 2	...	N_{aux} N_{AO} N_{AO}

Рис.: Одно из представлений RI-тензора

Дизайн алгоритма: RI-K

$$D_{\mu\nu} = \sum_i C_{i\mu} C_{i\nu} \quad \widetilde{(i\mu|P)} = \sum_{\sigma} C_{i\sigma} \widetilde{(\sigma\mu|P)} \quad \widetilde{(i\mu|P)} \longrightarrow \widetilde{(\mu i|P)} \quad K_{\mu\nu} = \sum_{i,P} \widetilde{(\mu i|P)} \widetilde{(\nu i|P)}$$



Рис.: Первый шаг схемы и row-major представление RI-тензора

Дизайн алгоритма: RI-K

$$\widetilde{(\mathbf{i}\mu|\mathbf{P})} = \sum_{\sigma} C_{\mathbf{i}\sigma} \widetilde{(\sigma\mu|\mathbf{P})} \quad \widetilde{(\mathbf{i}\mu|\mathbf{P})} \longrightarrow \widetilde{(\mu\mathbf{i}|\mathbf{P})} \quad K_{\mu\nu} = \sum_{\mathbf{i}, \mathbf{P}} \widetilde{(\mu\mathbf{i}|\mathbf{P})} \widetilde{(\nu\mathbf{i}|\mathbf{P})}$$

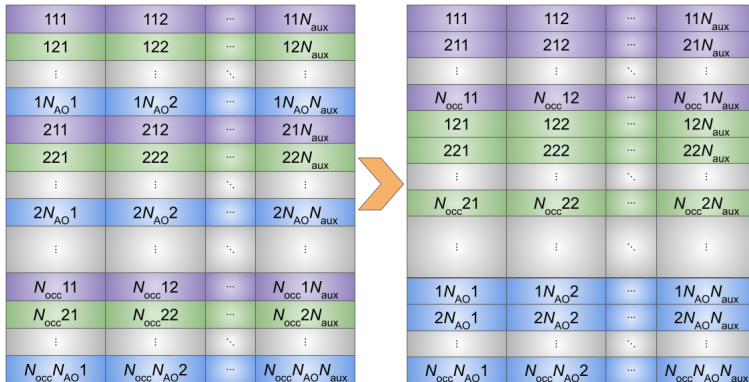


Рис.: Второй шаг схемы для row-major представления $\widetilde{(\mathbf{i}\mu|\mathbf{P})}$

$$D_{\mu\nu} = \sum_i C_{i\mu} C_{i\nu} \quad \widetilde{(\mu i|P)} = \sum_{\sigma} C_{i\sigma} \widetilde{(\mu \sigma|P)} \quad K_{\mu\nu} = \sum_{i,P} \widetilde{(\mu i|P)} \widetilde{(\nu i|P)}$$

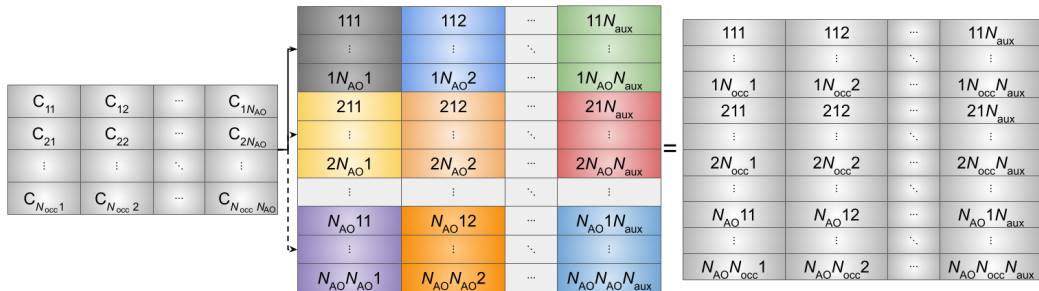


Рис.: Первый шаг схемы и row-major представление RI-тензора

Дизайн алгоритма: RI-K

$$D_{\mu\nu} = \sum_i C_{i\mu} C_{i\nu} \quad \widetilde{(\mu i|P)} = \sum_{\sigma} C_{i\sigma} \widetilde{(\mu\sigma|P)} \quad K_{\mu\nu} = \sum_{i,P} \widetilde{(\mu i|P)} \widetilde{(\nu i|P)}$$

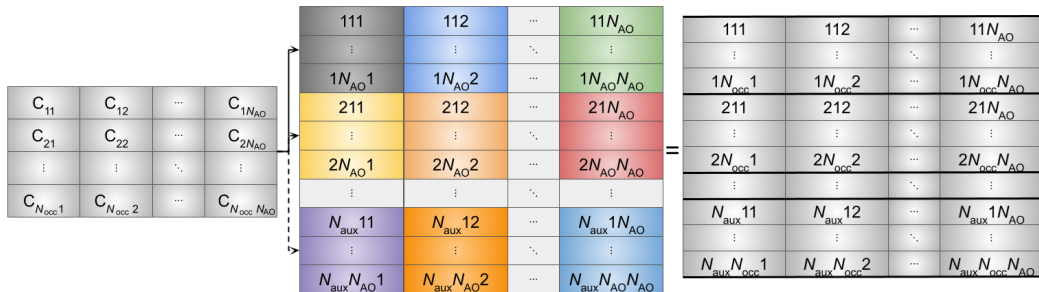


Рис.: Первый шаг схемы и col-major представление RI-тензора



Huang, H., Sherill, C.D., Chow, E. (2020)

Techniques for high-performance construction of Fock matrices

J. Chem. Phys. 152(2), 024122.

Дизайн алгоритма: перестановочная симметрия RI-тензора

111	112	...	$11N_{\text{aux}}$
121	122	...	$12N_{\text{aux}}$
...	...	...	...
$1N_{\text{AO}}1$	$1N_{\text{AO}}2$	...	$1N_{\text{AO}}N_{\text{aux}}$
211	212	...	$21N_{\text{aux}}$
221	222	...	$22N_{\text{aux}}$
...	...	...	...
$2N_{\text{AO}}1$	$2N_{\text{AO}}2$	...	$2N_{\text{AO}}N_{\text{aux}}$
311	312	...	$31N_{\text{aux}}$
321	322	...	$32N_{\text{aux}}$
...	...	...	...

111	112	...	$11N_{\text{AO}}$
121	122	...	$12N_{\text{AO}}$
...	...	...	...
$1N_{\text{AO}}1$	$1N_{\text{AO}}2$	...	$1N_{\text{AO}}N_{\text{AO}}$
211	212	...	$21N_{\text{AO}}$
221	222	...	$22N_{\text{AO}}$
...	...	...	...
$2N_{\text{AO}}1$	$2N_{\text{AO}}2$	...	$2N_{\text{AO}}N_{\text{AO}}$
...	...	...	...

211	111	112	...	$11(N_{\text{AO}}-1)$	$11N_{\text{AO}}$
221	222	122	...	$12(N_{\text{AO}}-1)$	$12N_{\text{AO}}$
231	232	233	...	$13(N_{\text{AO}}-1)$	$13N_{\text{AO}}$
...	...	...	...	...	...
$2N_{\text{AO}}1$	$2N_{\text{AO}}2$	$2N_{\text{AO}}3$	...	$2N_{\text{AO}}N_{\text{AO}}$	$1N_{\text{AO}}N_{\text{AO}}$
411	311	312	...	$31(N_{\text{AO}}-1)$	$31N_{\text{AO}}$
421	422	322	...	$32(N_{\text{AO}}-1)$	$32N_{\text{AO}}$
431	432	433	...	$33(N_{\text{AO}}-1)$	$33N_{\text{AO}}$
...	...	...	...	...	...
$4N_{\text{AO}}1$	$4N_{\text{AO}}2$	$4N_{\text{AO}}3$	...	$4N_{\text{AO}}N_{\text{AO}}$	$3N_{\text{AO}}N_{\text{AO}}$
...	...	...	...	...	...

Рис.: Исследуемые упорядоченные представления RI-тензора



Früchtl, H. A. et al (1997)

An implementation of RI-SCF on parallel computers

Int. J. Quantum Chem. 64(1), 63 – 69.

Дизайн алгоритма: перестановочная симметрия RI-тензора

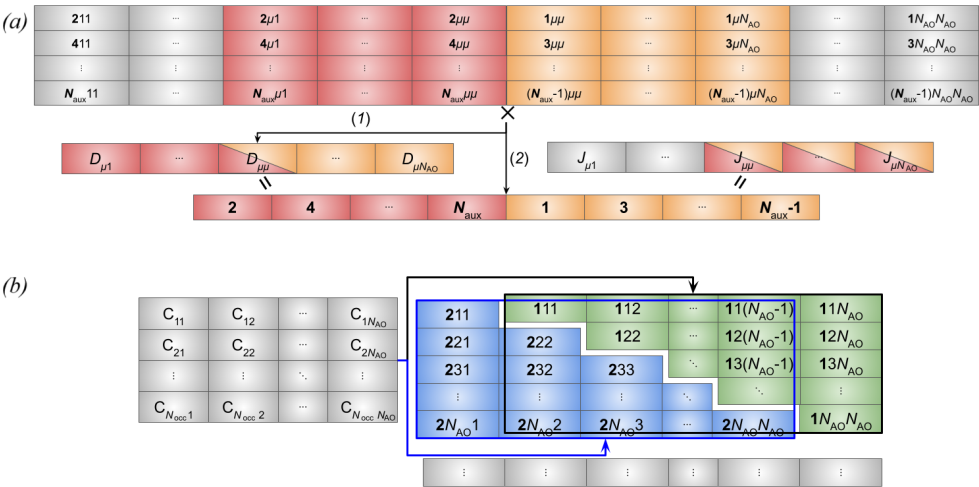


Рис.: Модифицирование (a) RI-J и (b) RI-K алгоритмов

Тестирование: распределение времени исполнения

Basis

- 1 AO: def2-TZVP
- 2 AUX: def2-TZVP-RIFIT

Computational Node

AMD EPYC 7302 16-core CPU

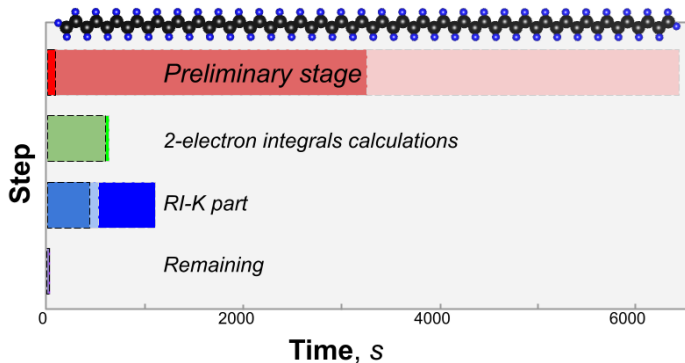
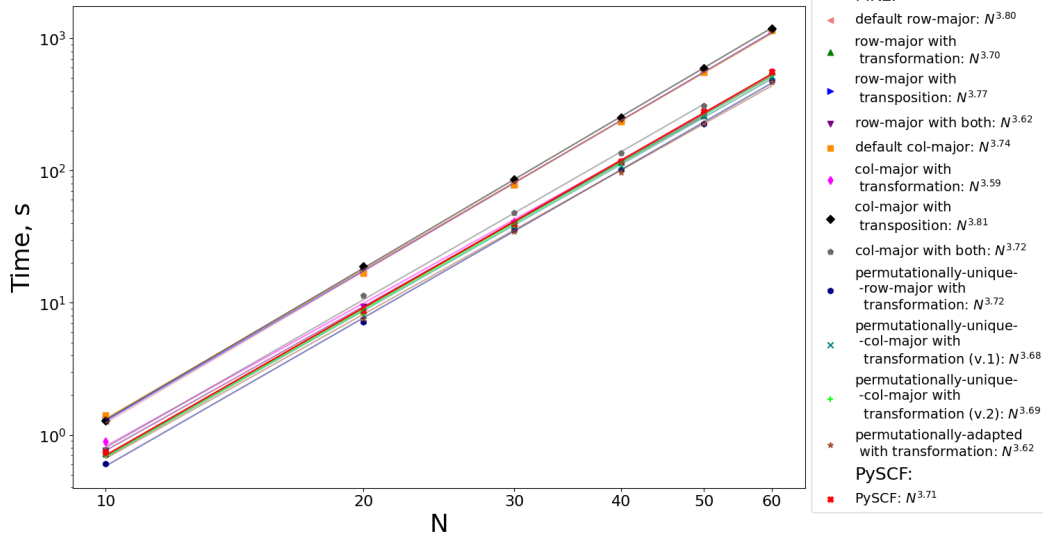
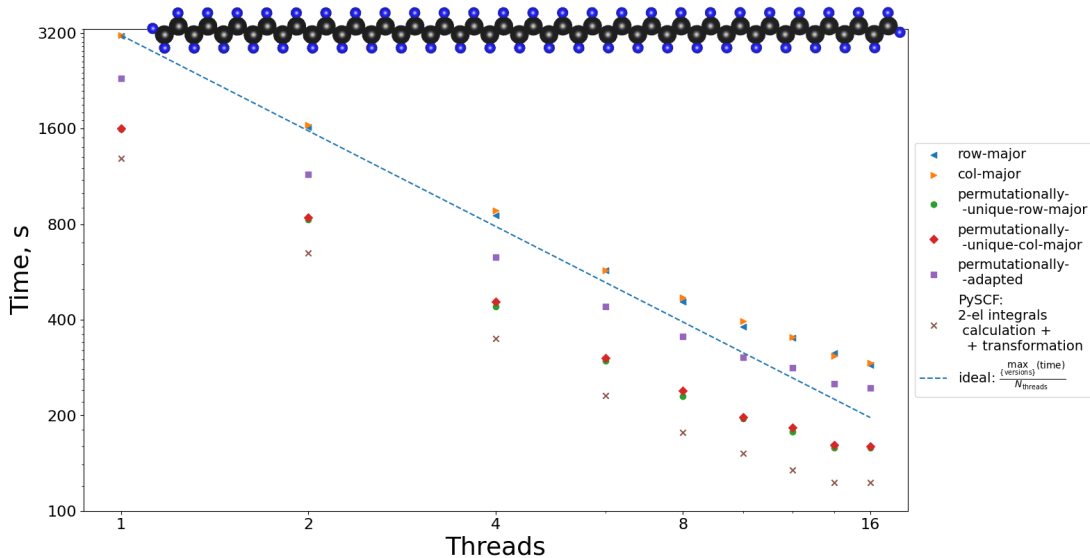


Рис.: Распределение времени исполнения этапов алгоритма метода Хартри-Фока (три однопоточные версии)

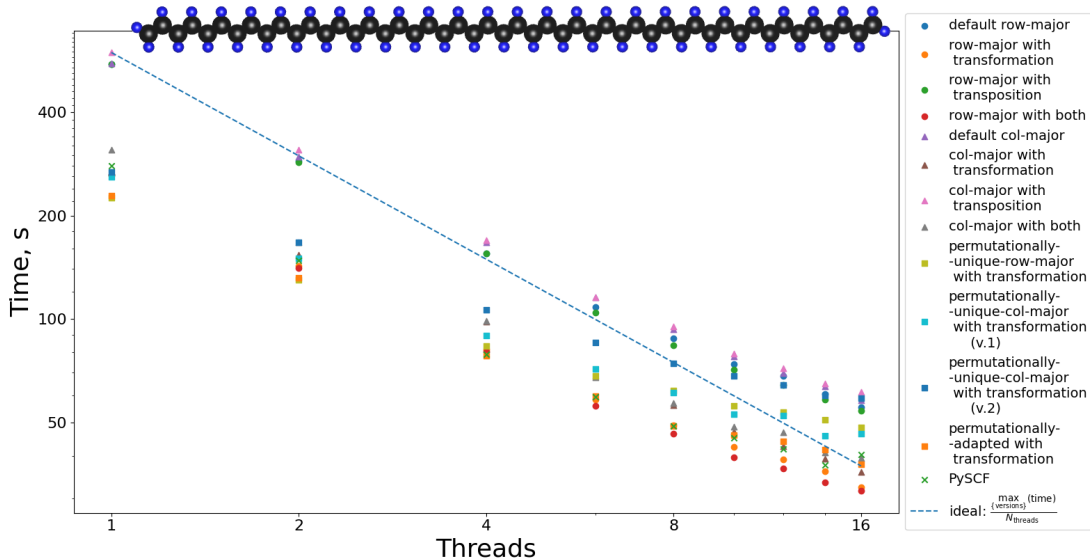
Тестирование: асимптотическая сложность ($C_{10}H_{12}-C_{60}H_{62}$)



Тестирование: масштабируемость предварительного преобразования



Тестирование: масштабируемость итерации алгоритма метода RHF



Прекрасная реальность:

- ① Разработано несколько схем параллельного исполнения алгоритма метода Хартри-Фока
- ② Установлено влияние различных макетов памяти на скорость алгоритма
- ③ Предложен и реализован эффективный способ учёта перестановочной симметрии

Светлое будущее:

- ① Более эффективное кэширование матричных вычислений
- ② NUMA-aware MPI/OpenMP алгоритм
- ③ Учёт разреженности RI-тензора
- ④ Создание performance-portable кода