

実空間差分法による大規模第一原理電子状態計算

岩田潤一, 白石賢二, 押山淳

筑波大学計算科学研究センター, 筑波大学数理物質科学研究科

iwata@comas.frsc.tsukuba.ac.jp

概要: 物性物理とは原子が多数寄り集まった系の多体問題の研究である。密度汎関数理論により現在数百原子系の電子の振る舞いを量子力学の第一原理に基づいて記述することが可能となっているが、世の中には多種多様な物質が存在し、より大規模な系を扱いたいという要求が常にある。本発表では実空間差分法による超並列計算機上での大規模第一原理計算手法の開発とその応用を紹介する。

1 はじめに

物性物理学の研究対象は原子核と電子からなる多体系である。電子は通常量子力学的に扱う必要があり、その運動は Schrödinger 方程式によって規定される。しかしながら N 体系の Schrödinger 方程式を直接数値的に解くことは N が非常に小さい場合を除いてほぼ不可能であり、実際には何らかの近似を導入する必要がある。

1964 年、Hohenberg-Kohn-Sham らによって「N 体系の Schrödinger 方程式の基底状態を求める問題を、N 本の 1 体系の Schrödinger 方程式を解く問題に焼き直す」という密度汎関数理論 (DFT) が提唱され、これにより $O(N^3)$ という比較的少ない計算コストで大規模系を扱う道が開かれた [1,2]。もちろん DFT においても実際の計算を行うにはある種の近似が必要であるが、現在広く用いられている局所密度近似および一般化密度勾配近似はその単純さに比して非常に定量性のある結果を与えることが知られており、これによって多体系の電子状態を、経験的なパラメータ等を一切使用せずに求める、第一原理計算と呼ばれる物性研究の手法が確立した。現在では物性物理学のみならず量子化学、材料科学、分子生物学などにおいても第一原理計算による物性予測は高い信頼性を持って受け入れられるようになっている。

近年、ナノサイエンスという言葉が大きく取り沙汰されるようになり、物性物理においてもナノ構造 原子数にして数千~数万個あるいはそれ以上という系 が注目されるようになってきている。またバイオサイエンスの分野においてもタンパク質その他の巨大分子が興味の対象であり、やはり数千~数万原子オーダーの系を扱う必要が出てくる。このような超大規模系を第一原理計算で扱う

ためには従来の計算手法を、テラフロップス、ペタフロップス、・・・と今後益々進歩して行くであろう計算機の能力をフル活用する形でコーディングを行っていくことが重要と考えられる。本発表では、今後の計算機の発展において必須のアーキテクチャと考えられる超並列計算機上での実空間差分法による第一原理計算手法の開発とその応用について紹介する。

2 実空間差分法

DFT に基づく第一原理計算は、数学的には Kohn-Sham 方程式と呼ばれる 3 次元偏微分方程式の固有値問題の解を固有値の小さいものから順に N 個求めるという問題である。

$$\left[-\frac{1}{2}\nabla^2 + v[\rho](\mathbf{r}) + \hat{v}_{NL} \right] \phi_n(\mathbf{r}) = \varepsilon_n \phi_n(\mathbf{r}) \quad (1)$$

ここで

$$\rho(\mathbf{r}) = \sum_{n=1}^N |\phi_n(\mathbf{r})|^2 \quad (2)$$

は電子密度と呼ばれるものである。(1)式の左辺の演算子 (ハミルトニアン) が電子密度に依存しているため通常の固有値問題と異なり、(1)式はハミルトニアンと固有ベクトル (波動関数) が自己無撞着となるように解かなければならない。ハミルトニアン第 3 項目は非局所擬ポテンシャルと呼ばれるもので、波動関数への作用は

$$\hat{v}_{NL} \phi_n(\mathbf{r}) = \sum_{k=1}^{N_k} v_k(\mathbf{r}) \int_{|\mathbf{r}'| \leq R_c} d\mathbf{r}' v_k^*(\mathbf{r}') \phi_n(\mathbf{r}') \quad (3)$$

となる [3,4]。

従来、物性の第一原理計算では固体のような周期構造を扱う関係で平面波基底を用いるのが一般的であった。しかし近年では周期的でない系を扱

う場合も多く、また平面波基底を用いる場合ハミルトニアン演算に高速フーリエ変換(FFT)が必要となり、並列化した場合に非常に多くの全対全通信を行うことになるので、並列化の効率という面で不利となる。そこで我々は(1)周期系、孤立系など様々な境界条件に柔軟に対応できる、(2)FFTの必要がなく並列性に優れている、という2つの長所を併せ持つ実空間差分第一原理計算法[5]に着目しコード開発を進めている。

実空間法では(1)式を3次元格子上で離散化し、波動関数は各格子点上の値で表現する。ラプラシアンは高次差分で近似し、通常4次~6次(9点~13点)公式を用いる。並列化は空間格子をノード数分の小領域に分割することで行う。必要なノード間通信は、主に差分および非局所擬ポテンシャルの演算のための隣接通信と総和演算のための通信である。また部分対角化(後述)ルーチンにおいてScalpackの実対称行列(またはエルミート行列)対角化ルーチンを使用している。プログラム言語にはFortran90を使用し、並列化はMPIを用いて行っている。

3 実際の計算とパフォーマンス

実空間法による第一原理計算の流れは次のようになる。まず適当な初期密度を与えてハミルトニアンを作り、(1)式に従って共役勾配法(CG)あるいは最小残差法(RMM)により波動関数の最適化を行う。ただしハミルトニアンと波動関数が自己無撞着となるように解を求める必要があるため、CGの反復は4~5回程度で強制的に打ち切る。その後Gram-Schmidt法によりN本の波動関数の規格直交化を行い、さらにN本のベクトルだけで張られる空間内でハミルトニアンの対角化を行う(部分対角化)。このようにして“少しだけ”更新された波動関数で電子密度を作り直し、ハミルトニアンを作り直し、再びCGに戻り、この過程を自己無撞着解に到達するまで繰り返す。この反復計算を「自己無撞着なポテンシャル場を求める」という意味でSCF(Self-Consistent Field)計算と呼ぶ。

表1はSi原子4096個からなるバルク固体のDFT計算のSCF反復1ステップにかかる時間を示したものである。収束解を得るまでにこの反復を約50回程度繰り返すことになる。計算規模は格子点数884736点、求める波動関数の本数は8196本である。計算は筑波大学計算科学研究センターPACS-CS(LV Xeon EM64T 2.8GHz)256ノード

表1

	Time (sec.)	MFLOPS/node
部分対角化	1046	4000
Gram-Schmidt	178.8	2600
CG	350	70
TOTAL	1661	1300

を用いて行った。DFT全体の計算量は部分対角化およびGram-Schmidt直交化の $O(N^3)$ でスケールされるが、これらのルーチンとともに大部分の演算がBLAS3レベルの行列×行列積の形で処理できるため非常に高い演算性能を引き出すことができ、実際これらの部分の計算時間は $O(N^2)$ のCGと大差ない程度に納まっている。

4 まとめ

実空間法による超並列計算機上での物性第一原理計算コードの開発を行い、現在様々なテスト計算を経て、具体的な物性物理の問題への応用を始めている。DFT計算の演算量は $O(N^3)$ でスケールされるが、その最も計算の重い部分は、最も計算機のパフォーマンスを引き出せる演算(BLAS3)で処理できるため、並列化およびBLAS3を使う等、計算機能力をフル活用するコーディングにより、当初想像されていたよりも遥かに巨大な系に対する第一原理計算の適用可能性が見えてきた。ペタフロップス級の計算機が完成すれば数万原子からなる超大規模系の物性予測が可能になると思われる。

参考文献

- [1] P. Hohenberg and W. Kohn, 「Inhomogeneous Electron Gas」, Phys. Rev. **136**, B864, (1964).
- [2] W. Kohn and L. J. Sham, 「Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects」, Phys. Rev. **140**, A1133, (1965).
- [3] N. Troullier and J. L. Martins, 「Efficient pseudopotentials for plane-wave calculations」, Phys. Rev. B **43**, 1993, (1991).
- [4] L. Kleinman and D. M. Bylander, 「Efficacious Form for Model Pseudopotentials」, Phys. Rev. Lett. **48**, 1425, (1982).
- [5] J. R. Chelikowsky, *et al.*, 「Higher-order finite-difference pseudopotential method」, Phys. Rev. B **50**, 11355, (1994).