

## 実空間グリッドによる電子密度汎関数法の超並列化とその評価

(東北大学) ○高橋英明\*, 三木雄詩, 森田明弘

Development and assessment of the massively-parallel  
density functional theory using real-space grids

(Tohoku Univ.) ○Hideaki Takahashi, Yuji Miki, Akihiro Morita

【はじめに】 近年の電子状態計算や分子シミュレーションの急速な発展は、計算機の進歩に負うところが大きい。最新の計算機の速度向上は CPU 単体の高速化よりも、むしろ通信機器で接続された CPU の集積度の増大によっており、これは、「京」コンピュータをはじめとする多くのスパコンに共通する設計指針となっている。こうしたコンピュータは並列計算機とよばれ、分散メモリ上でタスクを並列処理することにより計算を高速化する。並列計算機は、現在、研究室から計算機センターに至るまで、高速演算サーバーの主流になっている。通常、並列計算では、CPU 間の情報通信は、並列用のライブラリを介してユーザーによって能動的に制御される。高速化の成否は並列化効率に支配されるので、計算の手段としてどのような方法論やアルゴリズムを採用するかということは大規模計算の実行においては決定的に重要である。従って、電子状態計算の方法論は、並列計算機のアーキテクチャに適合するように設計するのが望ましい。本研究では、Kohn-Sham の密度汎関数法 (KS-DFT) による電子状態計算の並列化を考える。

高い並列化効率を実現するための要諦は、CPU 間の通信量を可能な限り小さくすることにある。KS-DFT 法では、電子間の交換や相関エネルギーを実空間上の局所、及び準局所なポテンシャルで記述するので、実空間を分割する並列化によって高い並列化効率が見込めると期待される。本研究では、実空間グリッドによる KS-DFT 法とその並列化[1]を概説し、LCAO 基底による計算結果と比較することによりその性能を評価する。また、超並列化 QM/MM シミュレーションによる自由エネルギー計算の現状を紹介する。

【方法論】 KS-DFT の基礎方程式は、1 電子波動関数とその固有値をそれぞれ、 $\varphi_i$ ,  $\epsilon_i$  とすると、

$$\left( -\frac{1}{2} \nabla_i^2 + v_H[n] + v_{\text{ext}} + v_{xc}[n] \right) \varphi_i = \epsilon_i \varphi_i \quad (1)$$

で与えられる。式(1)の左辺の括弧内は左から順に、電子の運動エネルギー、Hartree ポテンシャル、外部ポテンシャル、及び電子の交換相関ポテンシャルを表す。また、式(1)において、演算子  $v_H$  と  $v_{xc}$  の電子密度  $n$  の依存性を明示した。我々の実空間 KS-DFT では、運動エネルギー演算子は典型的に 4 次の差分法で表示する。また、 $v_H$  は Poisson 方程式を数値的に解くことによって構築する。Poisson 方程式において、 $v_H$  のラプラシアンは運動エネルギーと同様、4 次の差分表示を用いる。原子・分子の計算において、外部ポテンシャル  $v_{\text{ext}}$  の主要項は原子核の引力ポテンシャルである。我々は、これらをノルム保存の分離型擬ポテンシャル  $v_{\text{ext}}^{\text{ps}}$  によって記述している。このポテンシャルは、長距離的な局所項と短距離で減衰する非局所項からなり、実空間表示においても擬ポテンシャルの非局所性は空間の狭い領域に限られる。また、コア付近での擬ポテンシャルの急激な変化を再現するために、2 重グリッド法を採用している。式(1)左辺の括弧内の最後の項

$v_{xc}$  の扱いは LCAO 法の場合と同じであり、GGA 汎関数を使用したとしても、 $\nabla n$  を考慮するだけでよい。このように、式(1)の左辺の演算子の多くが局所あるいは準局所的であることが分かる。これは、実空間表示による KS の有効ハミルトニアンの実行列が対角優勢になることを表しており、空間分割による並列化によって通信コストが低減できる。

実空間における空間分割のスキームを図 1 に示す。分割後のサブセル内のデータにおいて、通信に関わるのは他のサブセルに接する部分の波動関数や電子密度の値のみである。また、これらの通信はローカルに行われるので、大規模系においても通信量は線形に増大するのみである。また、各サブセル上の計算は OpenMP や Openacc によってスレッド並列することも可能である。

**【計算の詳細】** 氷の構造を持つ  $N$  個の水分子のクラスター ( $\text{H}_2\text{O}$ ) $_N$  について、それらの電子状態計算を MPI 並列による実空間 KS-DFT によって実行し、計算時間を計測した。また、それをスレッド並列による Gaussian09(G09)の計算時間と比較した。計算には、ノード当たり 16 コアを有する Intel Xeon (E5-2650) 4 ノード(総コア数 = 64 コア)からなる並列計算機を使用した。ただし、G09 では、1 ノード(16 コア)での計算時間を実測し、その速度が線形に増大するものと仮定して 64 コアでの時間を推定した。実空間 DFT の実空間セルは立方体とし、 $x$ ,  $y$ , 及び  $z$  軸方向にそれぞれ、120 あるいは 140 個のグリッドを等間隔に配置した。グリッド幅は、典型的に 0.152 Å とした。また、BLYP を交換相関汎関数として用いた。この設定での実空間 KS-DFT は、LCAO 基底の aug-cc-pVDZ や aug-cc-pVTZ とほぼ同等の計算精度を実現するので、G09 では aug-cc-pVDZ 基底を用いた。リファレンスとして、京コンピュータの 512 ノードを駆動する計算も実行した。

**【結果と考察】** 図 2 に  $N=11\sim 61$  の水クラスターについて、KS-DFT の SCF 1 ステップ当たりの平均の経過時間をプロットした。これらのサイズの系では軌道の直交化にかかる時間の割合が小さいために、実空間 DFT の計算時間は水クラスターのサイズに対してほぼ線形に増大する。これに対して、LCAO 計算では、実空間法と比較して計算時間が顕著に増大する。今回の計測では、LCAO 計算は共有メモリー上のスレッド並列で行われたので、並列化に伴う通信コストは発生しない。従って、原子基底の 4 中心 2 電子積分に付随する処理が LCAO 計算のコスト増大の主要因と考えられる。電子密度を別途、基底関数で展開する手法を用いれば、この状況は緩和されるだろう。また、今回の実空間 DFT の京コンピュータへの実装では、実効性能は低いものの、極めて高速な計算が可能になることが分かった。現在、超並列化 QM/MM シミュレーションが稼働しており、反応自由エネルギー変化の計算が可能になっている。

[1] H. Takahashi et al, *Advances in Quantum Chemistry*, **59**, 283-351 (2010).

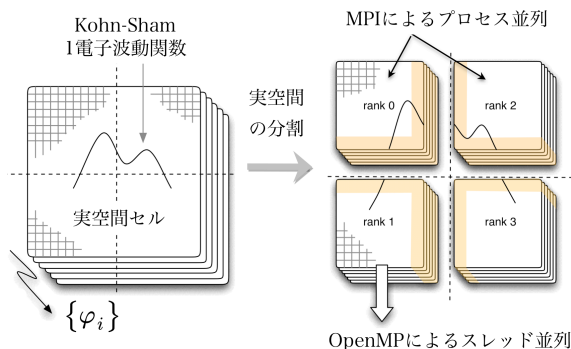


図 1 実空間セルの空間分割

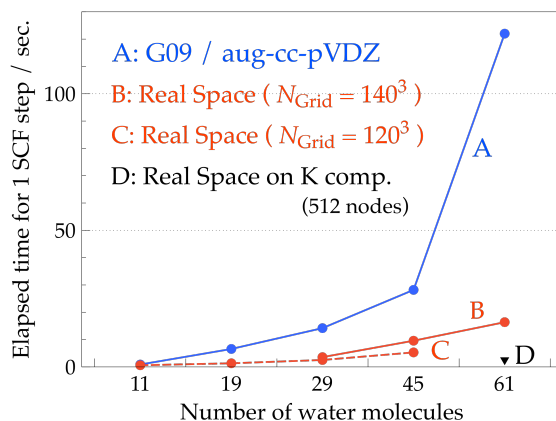


図 2 SCF 1 ステップ当たりの平均の経過時間