

GPUによるOrbital-Free第一原理分子動力学法の高 速化

メタデータ	言語: Japanese 出版者: 明治大学情報基盤本部 公開日: 2012-09-27 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 青木, 優, 伴野, 秀和, 圓谷, 和雄 メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/10291/13446

GPUによるOrbital-Free第一原理分子動力学法の高速度化
Acceleration of Orbital-Free *Ab initio* Molecular Dynamics Method
with Graphics Processing Unit GPU

青木優^{a),*}, 伴野秀和^{b)}, 圓谷和雄^{c)}
Masaru AOKI^{a),*}, Hidekazu TOMONO^{b)}, Kazuo TSUMURAYA^{c)}

Received : July 31, 2009 Accepted : September 23, 2009

Synopsis: Computational material design requires efficient algorithms and high-speed computers for calculating and predicting material properties. The orbital-free *ab initio* molecular dynamics (OF-AIMD) method, which is a tool for calculating and designing material properties, is an $O(N)$ method and is suitable for calculating the electronic structure of the large-scaled systems. The stagnation in the development of CPU devices with high mobility of electron carriers has driven both the development of parallel computing and the production of CPU devices with finer spaced wiring. We, for the first time, propose another method to accelerate the computation using Graphics Processing Unit (GPU). The implementation of a Fast Fourier Transform library (CUFFT) that uses GPU, into our in-house OF-AIMD code, reduces the computation time to half of that of the CPU.

Keywords : first principles method, density functional, GPU, CUDA, CUFFT

I. 序論

近年、密度汎関数理論 (Density Functional Theory: DFT) に基づいた第一原理計算による研究手法は、その理論だけでなく計算手法や計算機の進歩と共に、物性研究において益々その地位を確立しつつある。それを裏付けるのが、DFT (Hohenberg & Kohn, 1964; Kohn & Sham, 1965) を考案した W.Kohn の 1998 年ノーベル化学賞受賞である。1964 年に DFT が登場した当時は、現在に比べて計算機も遅く興味のある複雑な系を扱うことは不可能であった。しかし、その後数十年の間に計算機は急速に進歩を遂げ、現在では表面科学あるいはナノ・テクノロジーなどの大きな系を扱う分野におい

ても、その有用性が認められた。それが W.Kohn のノーベル化学賞受賞に繋がった。

昔から多電子系の問題を高精度で解くことは物理学の重要な課題の一つであるが、DFT が登場する以前には、それはごくわずかな場合を除いては困難であった。なぜならば、多電子系の Schrödinger 方程式を Hartree-Fock 法 (Szabo & Ostlund, 1982) で解く際には、基底関数の数の 4 乗に比例して演算回数が増えるため、固体や液体などの大規模系を扱うことが非常に困難だからである。しかし W. Kohn 等が提案した DFT によって計算機による大規模系研究への扉が開かれた。この理論で

^{a)}静岡産業大学経営学部 School of Management, Shizuoka Sangyo University, Iwata, Shizuoka 438-0043, Japan

^{b)}明治大学大学院理工学研究科機械工学専攻 Department of Science and Technology, Meiji University, Kawasaki, Kanagawa 214-8571, Japan

^{c)}明治大学理工学部機械情報工学科 School of Science and technology, Meiji University, Kawasaki, Kanagawa 214-8571, Japan

* maoki[at mark]ssu.ac.jp

は、系の全エネルギーを電子密度の汎関数として表すことによって Hartree-Fock 法よりも演算回数を減らすことができるため、近年、研究者達に広く受け入れられている。またこの理論では、多電子系の Schrödinger 方程式を Kohn-Sham (KS) 方程式 (Kohn & Sham, 1965) と呼ばれる 1 粒子 Schrödinger 方程式に置き換えて、有効ポテンシャルと電子密度がセルフ・コンシステントになるように非線形最適化問題を解く。KS 方程式の解き方には、LCAO (Linear Combination of Atomic Orbital) 法 (Sambe & Felton)、FLAPW (Full potential Linear Augmented Plane Wave) 法 (Krakauer, Posternak, & Freeman, 1979; Wimmer, Krakauer, Weinert, & Freeman, 1981; Weinert, Wimmer, & Freeman, 1982)、LMTO 法 (Linear Muffin-Tin Orbital) (Andersen, 1975; Skriver, 1984; Methfessel, Rodriguez & Andersen, 1989)、擬ポテンシャル法 (Ihm, Zunger & Cohen, 1979) などの様々な方法が考案されており、対象に応じて様々な手法を選ぶことができる。われわれも、LMTO 法を用いて金属ガラスの研究 (Aoki, Ohnishi, Odaka, & Tsumuraya, 1991) を行なっている。しかし、これらの方法では KS 方程式を解く際に基底関数を導入して固有値問題を解くため行列の対角化が必要となる。計算機で行列の対角化を行なうには、基底関数の数を M とすると、メモリは M^2 に比例した容量が必要であり、演算は M^3 に比例した回数が必要である。基底関数の数 M は原子数に比例して増加するので、大規模系の研究には更に新しい計算手法の開発が必要であった。

そのような問題を解決したのが、Car と Parrinello (Car & Parrinello, 1985; Remler & Madden, 1990) による第一原理分子動力学 (Ab initio Molecular Dynamics: AIMD) 法 (通称、Car-Parrinello 法) である。この方法では電子の質量は原子核の質量に比べて著しく軽いので Born-Oppenheimer (BO) 近似を用いて電子系と原子核系を分離する。電子系に対しては KS 方程式を適用して系の全エネルギーを求める。原子系に対しては、第一原理的に求められる原子にはたらく力を用いてニュートン方程式を解き、分子動力学シミュレーション

をおこなう。ここまでは他の方法も同じであるが、Car-Parrinello 法では KS 方程式を解く際に行列の対角化を行わず、電子の質量を仮想的に大きく設定し、動力学的に固有ベクトルを求める。また、分子動力学シミュレーションと電子状態の最適化を同じ時間スケールで行なうことが可能である。これにより少容量メモリの計算機でも第一原理計算が行なわれるようになり、それまでは実験から得られたパラメータを用いた経験的分子動力学法が主流であったが、現在では AIMD 法がそれにとって変わりつつある。しかし、AIMD 法で大規模系をシミュレートするためには、多くの計算時間が必要になるため、更なる計算手法や計算機の進歩が不可欠であった。

そのような状況下で、Pearson 等 (Pearson, Smargiassi, & Madden, 1993) によって Orbital-Free AIMD (OF-AIMD) 法が開発され、さらに大きな系を扱うことが可能となった。この方法では、Car-Parrinello 法と同様に BO 近似を用いている。電子の波動関数を用いることなく電子系の全エネルギーを電子密度の汎関数として直接表現するところが異なっているだけで、大まかな計算手順は同じである。電子の運動エネルギーの汎関数型には未だ改良の余地があり、これが精度を左右してしまうが、電子密度のみで全エネルギーを表すことは、DFT が本来目指していた方法と言える。また、同法は計算時間と計算機のメモリ容量を格段に節約できるので、金属ガラス (Aoki & Tsumuraya, 1996; Aoki & Tsumuraya, 1997)、金属液体 (Foley, Smargiassi, & Madden, 1994)、格子欠陥 (Smargiassi & Madden, 1995: I, ; Smargiassi & Madden, 1995: II)、金属クラスター (Shah, Nehete, & Kanhere, 1994; Nehete, Shah, & Kanhere, 1996) などの大規模系へ応用されている。

これまで同法を用いた多くの研究は単純金属に限られてきた。その理由は、電子の運動エネルギー汎関数が軽金属に適した理論から構築されているからである。しかし、最近われわれは同法が共有結合系へ適用可能であることを発見した (青木, 2007: I)。同法が共有結合物質に適用可能であれば、ナノ・

テクノロジー研究等の重要なツールとなる。われわれは前研究(青木,2007:I)において、結晶シリコンの安定な格子定数と電子密度分布をCar-Parrinello法と同法の両方で求め、同法が共有結合物質の物性を再現できるかどうか評価した。またその際、電子の運動エネルギー汎関数をThomas-Fermi-von Weizsäcker (TFvW)汎関数(Thomas, 1927; Fermi, 1927; Fermi, 1928; Weizsäcker, 1935)とPerrot汎関数(Perrot, 1993)の両方について比較した。その結果、結晶シリコンの全エネルギーと格子定数、及び電子密度分布に関して、Perrot汎関数を用いた同法は、Car-Parrinello法と同程度の精度で結晶シリコンに適用できることがわかった。他方、TFvW汎関数は結晶シリコンの物性評価には適用できないことがわかった。

OF-AIMD法の精度を左右するのは、運動エネルギー汎関数以外にもう一つある。それは、擬ポテンシャルである。同法では波動関数を導入しない為、非局所擬ポテンシャルを導入できない。そのため局所擬ポテンシャルを用いているが、精度の高いものが殆ど無い。例えば、シリコンの擬ポテンシャルは、以前はAppelbaum & Hamann (1973)による経験的局所擬ポテンシャル(A-H局所擬ポテンシャル)が用いられていたが、精度が低いため、現在ではBachelet, Hamann, & Schlüter (1982)が開発した第一原理擬ポテンシャルを始め、様々な第一原理擬ポテンシャル(Vanderbilt, 1990; Troullier & Martins, 1991)が用いられている。しかし、これらの第一原理擬ポテンシャルは全て非局所的な擬ポテンシャルであるため、OF-AIMD法に用いることは不可能である。そこで、われわれは第一原理的にシリコンの局所擬ポテンシャルを開発し、結晶シリコンの全エネルギー、及び格子定数について評価を行なった(青木, 2007:II)。その結果われわれの開発した局所擬ポテンシャルは、これまでのA-H局所擬ポテンシャルよりも結晶シリコンの高精度で静的物性を再現し、物性研究に有効であることがわかった。

第一原理計算の発展には、計算手法だけでなく計算機の進歩も大変重要である。これまで高電子移動度の半導体デバイスの開発が

停滞していたため計算機単体の性能向上は、半導体の微細加工技術により、デバイス中の配線を短くすることにより進められてきた。ところが、近いうちにこの技術は原子レベルにまで到達して限界に達するため、同加工技術による計算機の性能向上は見込めなくなる。それを予測して、PCクラスタ等の並列計算技術が発展した。しかし、これも電力量の問題からPCの台数には限界がある。

この問題を解決するのが、GPU(Graphics Processing Unit)コンピューティングである。近年、NVIDIA社が、画像処理専用に開発したGPUの汎用向けであるGPGPU(General-Purpose Graphics Processing Unit)(Harris,2002)と、そのインターフェースであるCUDA(Compute Unified Device Architecture)(NVIDIA)を開発し、GPUが数値計算に用いられるようになってきた。CUDAには、高速フーリエ変換ライブラリ(CUFFT)、行列演算ライブラリ(CUBLAS)等が実装されており、これらを用いたGPU上での数値計算が可能である。そこで本研究では、CUFFTを用いることによってOF-AIMD計算が、どの程度高速化されるかを評価する。

II. Orbital-Free 第一原理分子動力学法

密度汎関数法の本質は、系の基底状態の全エネルギーを電子密度の汎関数として表現することである。そのような意味ではKS方程式を解いて電子の運動エネルギーを求めるのではなく、電子密度のみの汎関数として直接表現できれば良いわけである。実際にそのような汎関数はいくつか考案されており、詳しくは後述する。このように系の全エネルギーを電子密度の汎関数として直接表現するDFTをOrbital-Free DFT(OF-DFT)という。

1. 運動方程式

M.Pearson等はCar-Parrinello法を応用し、OF-DFTに基づいて、系の全エネルギーの最小化と各原子位置の時間発展を同時に求めるOrbital-Free AIMD法を開発した(Pearson, Smargiassi, & Madden, 1993)。

この方法では系のラグランジアン L を次のように表す。

$$L = \frac{1}{2} \mu \int d\vec{r} |\dot{\rho}(\vec{r})|^2 + \frac{1}{2} \sum_i M_i \left| \dot{\vec{R}}_i \right|^2 - E_{tot}[\rho(\vec{r}), \{\vec{R}_i\}] - E_{II} + A[\int \rho(\vec{r}) d\vec{r} - N_e] \quad (1)$$

ここで、 $\rho(\vec{r})$: 電子密度、 μ : 電子の仮想的な質量、 M_i : 原子核の質量、 \vec{R}_i : イオンの位置、 E_{tot} : 電子系の全エネルギー、 E_{II} : イオン間の静電エネルギー、 A : ラグランジュ未定定数、 N_e : 電子数である。また、ドットは時間に関する微分をあらわす。この L から次の運動方程式 :

$$\begin{cases} \mu \ddot{\rho}(\vec{r}) = -\frac{\delta E_{tot}}{\delta \rho(\vec{r})} + A \\ M_i \ddot{\vec{R}}_i = -\frac{\delta E_{tot}}{\delta \vec{R}_i} - \frac{\delta E_{II}}{\delta \vec{R}_i} \end{cases} \quad (2)$$

を得る。ここで電子系の全エネルギーは、

$$E_{tot}[\rho] = T[\rho] + E_{ee}[\rho] + E_{xc}[\rho] + E_{ext}[\rho] \quad (3)$$

と書ける。この T は電子の運動エネルギーであり、本研究では、Perrot 汎関数を用いている。また、 E_{ee} : 電子間の静電エネルギー、 E_{xc} : 電子の交換相関エネルギー、 E_{ext} : 電子と外場の相互作用エネルギーである。

2. 電子の運動エネルギー

M. Pearson 等は、(3)式における電子の運動エネルギー T に Perrot 汎関数 (Perrot, 1993)

$$T_P[\rho] = T_{TFvW}[\rho] - T_{lin}[\rho] + T_{HK}[\rho] \quad (4)$$

を用いている。ここで、 $T_{TFvW}[\rho]$ は Thomas-Fermi-von Weizsäcker (TFvW) 汎関数 (Thomas, 1927; Fermi, 1927; Fermi, 1928; Weizsäcker, 1935)、 $T_{lin}[\rho]$ は線形化された TFvW エネルギー汎関数、 $T_{HK}[\rho]$ は Hohenberg 等 (Hohenberg & Kohn, 1964) によって得られた運動エネルギー汎関数であり、(4)式第 1 項の $T_{TFvW}[\rho]$ は次のように表される。

$$T_{TFvW}[\rho] = T_{TF}[\rho] + T_{vW}[\rho] \quad (5)$$

$$T_{TF}[\rho] = C_{TF} \int_{cell} \rho(\vec{r})^{\frac{5}{3}} d\vec{r}, \quad C_{TF} = \frac{3}{10} (3\pi^2)^{\frac{2}{3}} \quad (6)$$

$$T_{vW}[\rho] = \frac{1}{8} \int_{cell} \frac{|\nabla \rho(\vec{r})|^2}{\rho(\vec{r})} d\vec{r} \quad (7)$$

である。ここで逆格子ベクトル \vec{G} をつかって電子密度を次のようにフーリエ級数で表す。

$$\rho(\vec{r}) = \sum_G \rho_G \exp(i\vec{G} \cdot \vec{r}) \quad (8)$$

すると、 $T_{TFvW}[\rho]$ はフーリエ空間で

$$T_{TFvW}[\rho] = \Omega \sum_G \rho_G^* t_{TFvW}(\vec{G}) \quad (9)$$

と表される。この Ω はスーパーセルの体積、 ρ_G^* は ρ_G の複素共役、 $t_{TFvW}(\vec{G})$ は TFvW エネルギー密度汎関数 :

$$t_{TFvW}(\vec{r}) \equiv C_{TF} \rho(\vec{r})^{2/3} + \frac{1}{8} \frac{|\nabla \rho(\vec{r})|^2}{\rho(\vec{r})^2} \quad (10)$$

のフーリエ係数である。また(4)式第 2 項の $T_{lin}[\rho]$ は、

$$T_{lin}[\rho] = T_{TFvW}[\bar{\rho}] + \frac{\Omega}{2} \sum_G \rho_G^* \rho_G K_{TFvW}(\vec{G}) \quad (11)$$

$$K_{TFvW}(\vec{G}) = -\frac{1}{\chi_{TFvW}(\vec{G})} \quad (12)$$

$$\chi_{TFvW}(G) = -\frac{k_F}{\pi^2} \frac{1}{1+3\eta^2} \quad (13)$$

と表される。この $\bar{\rho}$ は平均電子密度、 $\eta = G/2k_F$ であり、 k_F はフェルミ波数ベクトルである。

最後に(4)式第 3 項の $T_{HK}[\rho]$ は、

$$T_{HK}[\rho] = T_{TF}[\bar{\rho}] + \frac{\Omega}{2} \sum_G \rho_G^* \rho_G K_0(\vec{G}) \quad (14)$$

$$K_0(\vec{G}) = -\frac{1}{\chi_0}, \quad (15)$$

$$\chi_0 = -\frac{k_F}{\pi^2} \left(\frac{1}{2} + \frac{1-\eta^2}{4\eta} \ln \left| \frac{1+\eta}{1-\eta} \right| \right)$$

と表される。ここでは応答関数として Lindhard 関数 χ_0 を用いている。

したがって(4)式はフーリエ空間において、

$$T_P[\rho] = \Omega \sum_G \rho_G^* t_{TFvW}(\vec{G}) + \frac{\Omega}{2} \sum_G K_P(G) \rho_G^* \rho_G \quad (16)$$

$$K_P(G) = -\left(\frac{1}{\chi_0} - \frac{1}{\chi_{TFvW}} \right) \quad (17)$$

と表される。 $T_{TFvW}[\rho]$ による第一原理計算では、金属結合における Friedel 振動を再現しないという欠点がある。他方 $T_{HK}[\rho]$ は Friedel 振動を再現するが、負の電子密度を与えるという欠点がある。しかし $T_P[\rho]$ は常に正の電子

密度を与え、Friedel振動も再現可能であることがわかっている。またこの汎関数は全ての G 成分に対して正確に線形応答し、さらにAIMD法の計算ステップ幅を古典的分子動力学法のそれと同程度に大きくとれるという利点もわかっている。M.Pearson等は現実の系に適用できるかどうか確かめるためナトリウム結晶とアルミニウム結晶に対する格子定数、体積弾性率、空孔形成エネルギーなどを計算し、これらの計算結果が実験値と良く一致することを確かめている。

3. 運動方程式のフーリエ表現

フーリエ空間では、(3)式の各エネルギーは

$$T_P = \Omega \sum_G \rho_G^* t_{TFvW}(\vec{G}) + \frac{\Omega}{2} \sum_G K_P(\vec{G}) \rho_G^* \rho_G \quad (18)$$

$$E_{ee} = \frac{\Omega}{2} \sum_{G \neq 0} \frac{4\pi}{G^2} \rho_G \rho_G^* \quad (19)$$

$$E_{xc} = \Omega \sum_G \rho_G^* \varepsilon_{xc}(\vec{G}) \quad (20)$$

$$E_{ext} = \Omega \sum_{G \neq 0} \rho_G^* V_{ps}(\vec{G}) + N^{ion} \alpha_1 Z_v, \quad (21)$$

$$\alpha_1 = \frac{1}{\Omega} \int \left[V_{ps}^{atom}(\vec{r}) + \frac{Z_v}{r} \right] d\vec{r}$$

$$V_{ps}(\vec{G}) = S(\vec{G}) V_{ps}^{atom}(\vec{G}), \quad (22)$$

$$S(\vec{G}) = \frac{1}{N^{ion}} \sum_i \exp(-i\vec{G} \cdot \vec{R}_i)$$

と表される。ここで、 $\varepsilon_{xc}(\vec{G})$ は交換相関エネルギー密度 $\varepsilon_{xc}[\rho(\vec{r})]$ のフーリエ係数である。そして $V_{ps}^{atom}(\vec{r})$ は局所擬ポテンシャルであり、 $V_{ps}^{atom}(\vec{G})$ はそのフーリエ係数である。また $V_{ps}(\vec{G})$ は全てのイオンについての $V_{ps}^{atom}(\vec{r})$ を重ね合わせたポテンシャル $V_{ps}(\vec{r})$ のフーリエ係数、 Z_v は1原子当たりの価電子数、 N^{ion} はスーパーセル中のイオンの数、 $S(\vec{G})$ は構造因子である。系の電荷は中性なので、電子間の静電エネルギーとイオン間の静電エネルギーにおける $G=0$ の2つの正の発散項は、電子-イオン間の静電エネルギーにおける $G=0$ の負の発散項と相殺するようになっており、そのために(21)式の第2項が付加されている。

以上のことから、電子系の運動方程式は、フーリエ空間では次のように表される。

$$\begin{aligned} \mu \ddot{\rho}_G &= - \frac{\delta E_{tot}}{\delta \rho_G} \\ &= - \frac{\delta T_{TFvW}}{\delta \rho_G} - K_P(\vec{G}) \rho_G - \frac{4\pi}{G^2} \rho_G - V_{xc}(\vec{G}) - V_{ps}(\vec{G}) \end{aligned} \quad (23)$$

この第1項は次の汎関数微分のフーリエ係数

$$\frac{\delta T_{TFvW}}{\delta \rho(\vec{r})} = \frac{5}{3} C_{TF} \rho(\vec{r})^{2/3} + \frac{1}{8} \frac{|\nabla \rho(\vec{r})|^2}{\rho(\vec{r})^2} - \frac{1}{4} \frac{\nabla^2 \rho(\vec{r})}{\rho(\vec{r})} \quad (24)$$

であり、 $V_{xc}(\vec{G})$ は交換相関ポテンシャル $V_{xc}(\vec{r})$ のフーリエ係数である。また(23)式を解く際には、有限温度の場合はVerletの蛙飛び法(Verlet, 1967)を用い、絶対零度の場合には最急降下法(Press, Teukolsky, Vetterling, & Flannery, 1992)などが用いられる。また、前処理(Pearson, Smargiassi, & Madden, 1993)を行って逆格子ベクトル \vec{G} に依存した電子の仮想質量 μ_G を用いると、電子密度の収束を速めることができる。

次にイオン系の運動方程式は、フーリエ空間では

$$\begin{aligned} M_i \ddot{\vec{R}}_i &= - \frac{\partial E_{tot}}{\partial \vec{R}_i} - \frac{\partial E_{II}}{\partial \vec{R}_i} \\ &= - \frac{\partial}{\partial \vec{R}_i} \int V_{ps}(\vec{r}) \rho(\vec{r}) d\vec{r} - \frac{\partial E_{II}}{\partial \vec{R}_i} \\ &= i \sum_G \rho_G^* V_{ps}(\vec{G}) \exp(-i\vec{G} \cdot \vec{R}_i) - \frac{\partial E_{II}}{\partial \vec{R}_i} \end{aligned} \quad (25)$$

と表される。この運動方程式を解く際にも電子系と同様、Verletの蛙飛び法、または最急降下法などが用いられる。

III. CUFFTの速度評価

本研究ではGPU上で動作するCUFFTをOF-AIMDコードに実装することにより、OF-AIMD計算がどの程度高速化されるかを評価するわけであるが、その前に、CUFFTの速度評価を行なう。比較の対象としては、CPU上で動作する最速のFFTライブラリであるFFTW(Frigo & Johnson, 2009)を用いる。

評価方法は、CUFFTとFFTWに於いて、FFTの順変換と逆変換を1回ずつおこなう時間を計測する。また、これを1次元(1D)と3次元(3D)の場合について比較する。

図1に1D-CUFFTと1D-FFTWの計算時間の比較を示す。単精度計算である

FFTW(SP) と倍精度計算である FFTW(DP) の計算時間差は小さく、 $\text{Log}_2 N=23$ の時に最大で約 10% だけ FFTW(SP) の計算時間が短くなっている。他方 CUFFT(SP) は、FFT のメッシュ数 N の増加と共に、FFTW(SP) よりも時間が短縮されている。CUFFT(SP) は、FFTW(SP) に比べ、 $\text{Log}_2 N=23$ の時に最大で約 11 倍の速度である。

図 2 に 3D-CUFFT と 3D-FFTW の計算時間の比較を示す。FFTW(SP) と FFTW(DP) の計算時間差は小さく、 $\text{Log}_2 N=24$ の時に最大で、約 20% だけ FFTW(SP) の計算時間が短くなっている。他方、FFT のメッシュ数 N の増加と共に CUFFT(SP) は、FFTW(SP) よりも時間が短縮されている。CUFFT(SP) は、FFTW(SP) に比べ、 $\text{Log}_2 N=24$ の時に最大で、約 13 倍の速度である。

以上のことから、CUFFT(SP) は、次元に関らず、FFT のメッシュ数 N の増加と共に FFTW(SP) よりも 10 倍以上高速であることがわかる。

IV. GPU による OF-AIMD 法の高速化

OF-AIMD 法が GPU によってどれだけ加速されるかを評価する為、OF-AIMD コードの FFT 部分を CUFFT(SP) で計算する場合と FFTW(SP) で計算する場合の計算時間を比較する。このとき OF-AIMD コードに於いて、FFT 以外のコードは全て倍精度とする。また、計算精度の評価のため FFTW(DP) を用いた計算も行なう。以下、FFT 以外の OF-AIMD コードが倍精度で CUFFT が単精度の場合を OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP)、FFT 以外の OF-AIMD コードが倍精度で FFTW が単精度の場合を OF-AIMD(DP)+FFTW(SP)、FFT 以外の OF-AIMD コードが倍精度で FFTW も倍精度の場合を OF-AIMD(DP)+FFTW(DP) と表す。

計算対象となる系は、結晶 Na (BCC 構造) であり、スーパーセル内の原子数が、2, 16, 128, 1024, 6750 個の 5 つの場合について評価する。ただし、格子定数は、全て 4.225 \AA とする。また、擬ポテンシャルには Topp-Hopfield 擬ポテンシャル、交換相関エネルギー汎関数には Perdew-

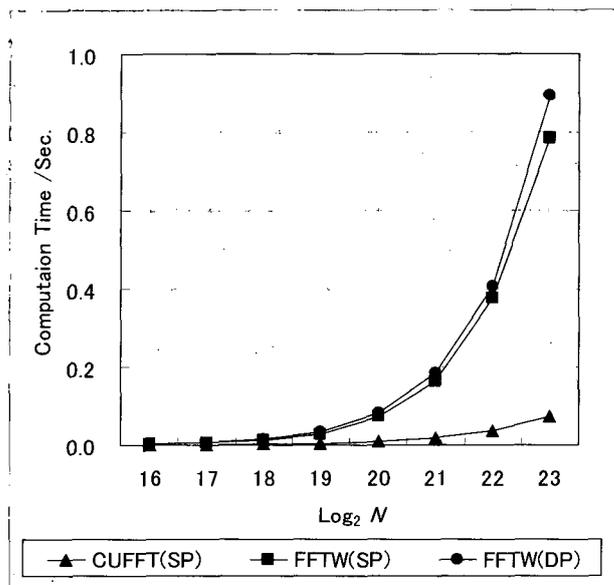


図 1. 1D-CUFFT と 1D-FFTW の計算時間の比較。横軸は FFT のメッシュ数 N の底を 2 として対数をとった値を示し、縦軸は FFT の計算時間を示す。SP は単精度計算、DP は倍精度計算を表す。

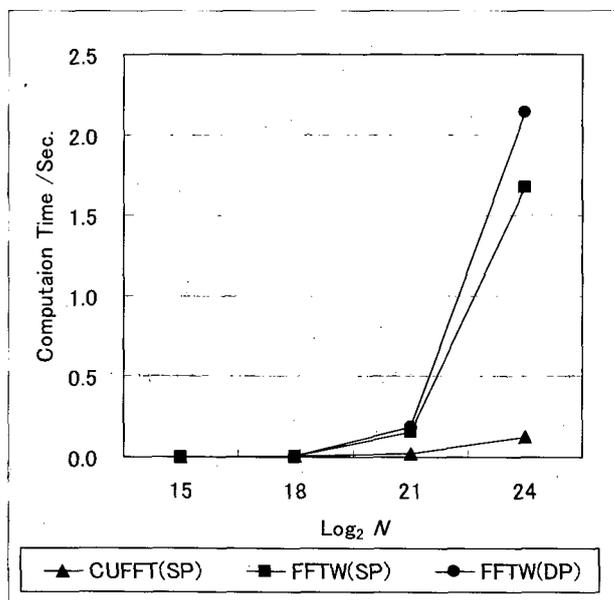


図 2. 3D-CUFFT と 3D-FFTW の計算時間の比較。横軸は FFT の全メッシュ数 N の底を 2 として対数をとった値を示し、縦軸は FFT の計算時間を示す。SP は単精度計算、DP は倍精度計算を表す。

Zunger 交換相関エネルギー汎関数を用い、エネルギーカットオフ E_{cut} は 11(Ry)とする。FFT のメッシュ数 N は、表 1 に示すように、システムサイズが大きくなるに伴い基底関数の数が増加する為、増加する。最適化は、最急降下法で 500 ステップおこなう。1ステップ当たりの FFT 呼び出し回数は 10 回であり、500 ステップで合計 5000 回である。また、今回用いる計算機のスペックは、Mother Board: Intel X58 chipset、CPU: Core i7 Quad 920 (2.66 GHz) Main Memory: DDR3- 1066 3GB、GPU: GeForce GTX285 1GB である。

CUFFT は単精度であるため、それを用いて求められる結果の精度を評価する必要がある。そこで OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP)、OF-AIMD(DP)+FFTW(SP)、OF-AIMD(DP)+FFTW(DP) の 3 種類のコードで系の全エネルギーと原子間力の精度を求め、評価を行なった。

表 2 に示すように、全エネルギーは、スーパーセル内の原子数が 2,16,128,1024,6750 個の 5 つの系について求めた。その結果全エネルギーは全ての系に対し 7 桁一致した。OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP) 計算における OF-AIMD(DP)+FFTW(DP) 計算に対する最大相対誤差は 6750 個の場合で $3.9 \times 10^{-6} \%$ 、OF-AIMD(DP)+FFTW(SP) 計算に於ける最大相対誤差は、同様に 6750 個の場合で $4.5 \times 10^{-6} \%$ であった。

原子間力は、図 3 に示すように原点にある原子 1 個を体心方向 (白矢印の方向)

表 1. スーパーセル内の原子数、基底関数の数^{※1}、FFT の全メッシュ数の関係

原子数	基底関数の数	FFT の全メッシュ数
2	305	4,096 (=2 ¹²)
16	2,517	32,768 (=2 ¹⁵)
128	20,005	262,144 (=2 ¹⁸)
1,024	160,467	2,097,152 (=2 ²¹)
6,750	1,283,951	16,777,216 (=2 ²⁴)

※ 1 : $E_{cut}=11(\text{Ry})$ での基底関数の数

に 0.005 \AA (最近近接原子間距離の 0.136650951287485%) だけ変位させた時に、その原子にはたらく力 (ハッチングした矢印) の大きさを求めた (表 3)。その結果、原子間力は全ての系に対して少なくとも 4 桁一致した。OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP) 計算に於ける最大相対誤差は、6750 個の場合で $1.4 \times 10^{-3} \%$ 、OF-AIMD(DP)+FFTW(SP) 計算に於ける最大相対誤差は、1024 個の場合で $6.1 \times 10^{-4} \%$ であった。

以上の結果から、OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP) 計算と OF-AIMD(DP)+FFTW(SP) 計算は、FFT が単精度であるにも拘わらず、十分な精度を保っていることがわかる。

図 4 に OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP) と OF-AIMD(DP)+FFTW(SP) に於ける計算時間のシステムサイズ依存性を示す。FFT の全メッシュ数が増加するに伴い (システムサイズが大きくなるに伴い)、OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP) の計算時間は OF-AIMD(DP)+FFTW(SP) と比較して短縮されている: $\text{Log}_2 N = 24$ の場合、OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP) は、OF-AIMD(DP)+FFTW(SP) の約 2.2 倍の計算速度まで高速化している。

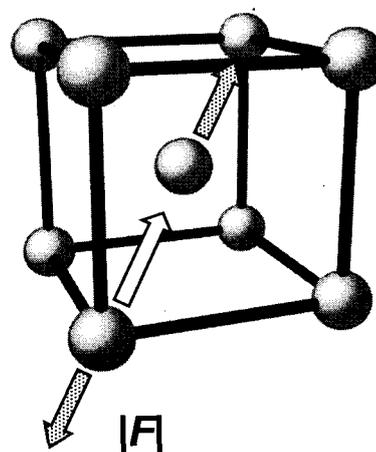


図 3. 原子間力の精度の評価方法。原点にある原子 1 個を体心方向 (白矢印の方向) に 0.005 \AA (最近近接原子間距離の 0.136650951287485%) だけ変位させた時に、その原子にはたらく力 (ハッチングした矢印) の大きさを求め、評価する。

表 2 . 全エネルギー (Ry) の精度比較

Num. of Atoms	$\text{Log}_2 N$	OF-AIMD(DP) +CUFFT(SP)	OF-AIMD(DP) +FFTW(SP)	OF-AIMD(DP) +FFTW(DP)
2	12	-9.0148000E-01	-9.0148001E-01	-9.0147998E-01
16	15	-7.2118400E+00	-7.2118401E+00	-7.2118399E+00
128	18	-5.7694744E+01	-5.7694745E+01	-5.7694744E+01
1024	21	-4.6155866E+02	-4.6155865E+02	-4.6155865E+02
6750	24	-3.0371337E+03	-3.0371336E+03	-3.0371338E+03

表 3 . 原子間力 (Ry/a.u.) の精度比較

Num. of Atoms	$\text{Log}_2 N$	OF-AIMD(DP) +CUFFT(SP)	OF-AIMD(DP) +FFTW(SP)	OF-AIMD(DP) +FFTW(DP)
2	12	1.2095098E-04	1.2095129E-04	1.2095137E-04
16	15	1.3369771E-04	1.3369803E-04	1.3369797E-04
128	18	1.3375509E-04	1.3375539E-04	1.3375532E-04
1024	21	1.3484978E-04	1.3485014E-04	1.3485097E-04
6750	24	1.1066171E-04	1.1066068E-04	1.1066021E-04

図 5 は、OF-AIMD(DP)+FFTW(SP)の全計算時間に於ける FFT 計算時間の占める割合を示す。FFTW(SP)の計算時間の占める割合は、システムサイズが大きくなるにしたがって、 $\text{Log}_2 N = 21$ までは増加しているが、それ以上のサイズでは約 58% に留まっている。つまり、FFT 計算時間の割合が、最大で 6 割近くを占めている。

図 6 は、OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP)の全計算時間における FFT 計算時間、および CPU-GPU データ転送時間の占める割合を示す。CPU-GPU データ転送時間は、GPU 計算を行なう際に必ず付加される時間である。そこで、このデータ転送時間と CUFFT(SP)の計算時間の合計を CUFFT(SP)に要する時間と定義する。図 6 に於いて、システムサイズが大きくなるにしたがって、CUFFT(SP)に要する時間の割合は減少しており、 $\text{Log}_2 N = 24$ ではわずか 7.8% である。ちなみに、FFT 計算時間の占める割合は 1.2%、CPU-GPU データ転送時間の占める割合は 6.6% である。このことから、CUFFT(SP)は大規模系に対して有効であることがわかる。

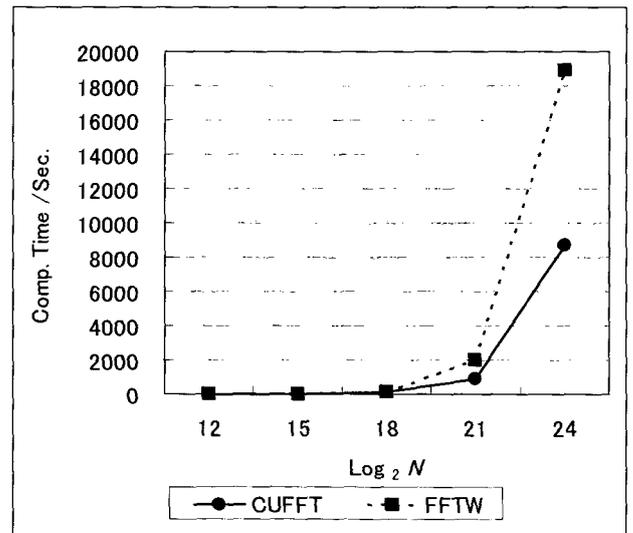


図 4 . OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP) (黒丸) と OF-AIMD(DP)+FFTW(SP) (黒四角) に於ける計算時間のシステムサイズ依存性。 N は、FFT の全メッシュ数である。

V. 結論

本研究では、GPU 上で FFT 計算を行なう CUFFT を用いて、OF-AIMD 計算がどの程度まで高速化されるか、またその計算精度について、評価を行なった。

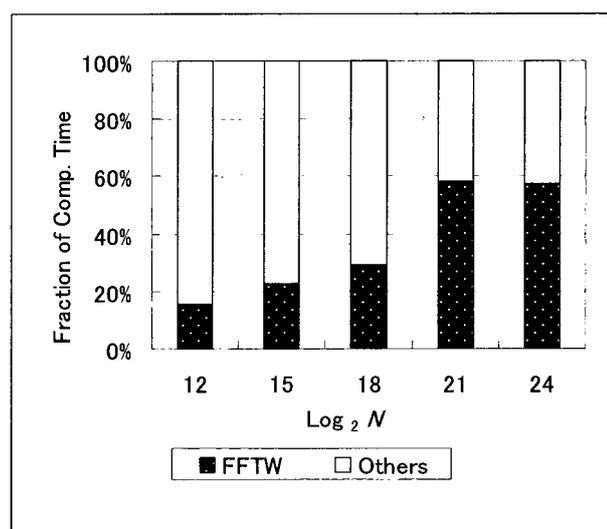


図5. OF-AIMD(DP)+FFTW(SP)の全計算時間に於けるFFT計算時間の占める割合。

計算精度に関しては、現在利用できるCUFFTは単精度計算であるが、それでも総合的に検定した結果、CUFFTを用いたOF-AIMD計算は、物性を研究する上で十分な計算精度を保っていることが分かった。

計算速度の高速化に関しては、CUFFTを用いたOF-AIMD計算は、FFTWを用いた場合に比べて、最大で約2.2倍の速度まで高速化されることが分かった。また、FFTWはシステムサイズが大きくなるにしたがってその効力を落とすが、CUFFTは逆にその効力を発揮する。ゆえに、GPUは十分な計算の精度を保ったままで、OF-AIMD計算を高速化可能である。

謝辞

本研究を行なうに当たり、明治大学情報基盤本部の大型計算機samba00を利用させて頂きました。ここに感謝の意を表します。

【参考文献】

- Andersen, O.K. (1975) Linear methods in band theory, *Phys.Rev. B* 12, 3060-3083.
 Aoki, M., Ohnishi, S., Odaka, H., and Tsumuraya, K. (1991) The most localized linear muffin-tin orbital study for electronic structures of amorphous metals, *Computer Aided*

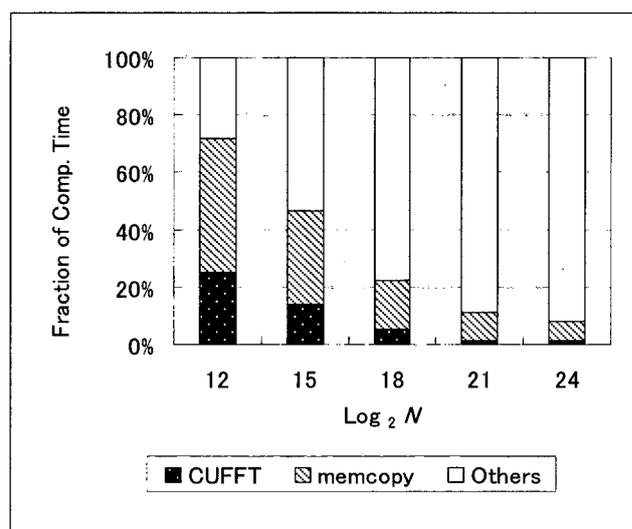


図6. OF-AIMD(DP)+CUFFT(SP)の全計算時間に於けるFFT計算時間、及びCPU-GPUデータ転送時間の占める割合。

Innovation of New Materials, Amsterdam, North-Holland, 245-248.

- Aoki, M.I. and Tsumuraya, K. (1996) Ab initio molecular dynamics studies on volume stability of Voronoi polyhedra under pressures in a metal glass, *J.Chem.Phys.* 104, 6719-6723.
 Aoki, M.I. and Tsumuraya, K. (1997) Ab initio molecular-dynamics study of pressure-induced glass-to-crystal transitions in the sodium system, *Phys. Rev. B* 56, 2962-2968.
 青木優 (2007, I) 「Orbital-Free 第一原理分子動力学法における電子の運動エネルギー汎関数の評価」『環境と経営』静岡産業大学, 13 (1) :65-76.
 青木優 (2007, II) 「シリコンの第1原理局所擬ポテンシャルの開発」『環境と経営』静岡産業大学, 13(2):1-12.
 Appelbaum, J.A. and Hamann, D.R. (1973) Self-Consistent Pseudopotential for Si, *Phys.Rev. B* 8, 1777-1780.
 Bachelet, G.B., Hamann, D.R., and Schlüter, M. (1982) Pseudopotentials that work: From H to Pu, *Phys.Rev. B* 26, 4199-4228.
 Car, R. and Parrinello, M. (1985) Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory, *Phys. Rev.Lett.* 55, 2471-2474.
 Dreizler, R.M. and Gross, E.K.U. (1990) *Density Functional Theory*, Berlin, Springer-Verlag.
 Fermi, E. (1927) Un metodo statistico per la determinazione di alcune proprietà dell'atome, *Rend. Accad. Naz. Lincei* 6, 602-607.

- Fermi, E. (1928) Eine statistische Methode zur Bestimmung einiger Eigenschaften des Atoms und ihre Anwendung auf die Theorie des periodischen Systems der Elemente, *Z.Phys.* 48, 73-79.
- Foley, M., Smargiassi, E. and Madden, P.A. (1994) The dynamic structure of liquid sodium from ab initio simulation, *J.Phys.Condens.Matter*, 6, 5231-5241.
- Frigo, M. and Johnson, S.G., fftw@fftw.org FFTW, <http://www.fftw.org/> (accessed July 27, 2009).
- Harris, M., harrism@cs.unc.edu GPGPU.org, 2002, <http://www.gpgpu.org/> (accessed July 27, 2009).
- Harrison, W.A. (1980) *Electronic Structure and the Properties of Solids: The Physics of the Chemical Bond*, W.H.Freeman and Company.
- Hohenberg, P. and Kohn, W. (1964) Inhomogeneous Electron Gas, *Phys.Rev.* 136, 864-871.
- Ihm, J., Zunger, A., and Cohen, M.L. (1979) Momentum-space formalism for the total energy of solids, *J.Phys. C: Solid State Phys.* 12, 4409-4422.
- Kittel, C. (1986) *Introduction to Solid State Physics, 6th ed.*, New York, John Wiley & Sons.
- Kohn, W. and Sham, L.J. (1965) Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects, *Phys.Rev.* A 140, 1133-1138.
- Krakauer, H., Posternak, M., and Freeman, A.J. (1979) Linearized augmented plane-wave method for the electronic band structure of thin films, *Phys.Rev. B* 19, 1706-1719.
- Lundqvist, S. and March, N.H. (1983) *Theory of the Inhomogeneous Electron Gas*, New York, Plenum Press.
- Methfessel, M., Rodriguez, C.O., and Andersen, O.K. (1989) Fast full-potential calculations with a converged basis of atom-centered linear muffin-tin orbitals: Structural and dynamic properties of silicon, *Phys.Rev. B* 40, 2009-2012.
- Nehete, D., Shah, V., and Kanhere, D.G. (1996) AIMD using density-based energy functionals: Application to ground-state geometries of some small clusters, *Phys.Rev. B* 53, 2126-2131.
- NVIDIA Corp., cuda@nvidia.com CUDA ZONE, http://www.nvidia.co.jp/object/cuda_home_jp.html# (accessed July 27, 2009).
- Parr, R.G. and Yang, W. (1989) *Density-Functional Theory of Atoms and Molecules*, New York, Oxford University Press.
- Pearson, M., Smargiassi, E., and Madden, P.A. (1993) Ab initio molecular dynamics with an orbital-free density functional, *J.Phys.Condens.Matter*, 5, 3221-3240.
- Perrot, F. (1993) Hydrogen-hydrogen interaction in an electron gas, *J.Phys. Condens. Matter*, 6, 431-446.
- Press, W.H., Teukolsky, S.A., Vetterling, W.T., and Flannery, B.P. (1992) *Numerical Recipes in Fortran*, 2nd edition, Cambridge, New York, 414.
- Remler, D.K. and Madden, P.A. (1990) Molecular dynamics without effective potentials via the Car-Parrinello approach, *Mol.Phys.* 70, 921-966.
- Sambe, H. and Felton, R.H. (1975) A new computational approach to Slater's SCF-X α equation *J.Chem.Phys.*, 62(3), 1122-1126.
- Shah, V., Nehete, D., and Kanhere, D.G. (1994) Ab initio molecular dynamics via density based energy functionals, *J.Phys.Condens.Matter* 6, 10773-10781.
- Skriver, H.L. (1984) *The LMTO method in Solid State Sciences* 41, Berlin, Springer-Verlag.
- Smargiassi, E. and Madden, P.A. (1995, I) Free energies of point defects in sodium from first-principles molecular-dynamics simulations, *Phys.Rev. B* 51, 129-136.
- Smargiassi, E. and Madden, P.A. (1995, II) Free-energy calculations in solids from first-principles molecular dynamics : Vacancy formation in sodium, *Phys.Rev. B* 51, 117-128.
- Szabo, A. and Ostlund, N.S. (1982) *Modern Quantum Chemistry*, Tokyo, Macmillan.
- Thomas, L.H. (1927) The calculation of atomic fields, *Proc. Cambridge Phil. Soc.* 23, 542-548.
- Troullier, N. and Martins, J.L. (1991) Efficient pseudopotentials for plane-wave calculations, *Phys.Rev. B* 43, 1993-2006.
- Vanderbilt, D. (1990) Soft self-consistent pseudopotentials in a generalized eigenvalue formalism, *Phys.Rev. B* 41, 7892-7895.
- Verlet, L. (1967) Computer "Experiments" on Classical Fluids. I. Thermodynamical Properties of Lennard-Jones Molecules *Phys. Rev.* 159, 98-103.
- Weinert, M., Wimmer, E., and Freeman, A.J. (1982) Total-energy all-electron density functional method for bulk solids and surfaces, *Phys.Rev. B* 26, 4571-4578.
- Weizsäcker, C.F. von (1935) Zur Theorie der Kernmassen, *Z.Phys.* 96, 431-458.
- Wimmer, E., Krakauer, H., Weinert, M., and Freeman, A.J. (1981) Full-potential self-consistent linearized-augmented-plane-wave method for calculating the electronic structure of molecules and surfaces: O₂ molecule, *Phys.Rev. B* 24, 864-875.