

GPGPUによる第一原理計算の高速化

Acceleration of First-Principles Calculation with General-Purpose Graphics Processing Unit

青木 優

- I. はじめに
- II. GPGPUによる高速フーリエ変換の高速化
- III. Orbital-Free 第一原理計算
- IV. GPGPUによる Orbital-Free 第一原理計算の精度評価
- V. GPGPUによる Orbital-Free 第一原理計算の高速化
- VI. まとめ

I. はじめに

近年、高性能コンピュータ技術は目覚ましい進歩を遂げ、それに伴い科学技術計算やコンピュータ・シミュレーションが、自動車、船舶、航空機、高層ビル、原子力、材料開発、生命科学、医療などの様々な産業分野の発展に寄与している。これらの科学技術計算やコンピュータ・シミュレーションは、理論や実験と並ぶ第3の研究開発手法として、今や企業の国際競争力を強化する為に必要不可欠となっている。

2011年、国家プロジェクトとして開発されたスパコン「京(けい)」が、世界最速のコンピュータとして認定され、その後、「京」を用いて、創薬、地震・津波、気象、宇宙物理学、ものづくり、材料開発など幅広い分野で成果が出て来ている¹。

特に、高性能コンピュータ技術の進歩の恩恵を最も受けている分野の一つに医薬品産業が挙げられる。薬を開発する場合、病気の原因となっているタンパク質の機能を阻害する為、それに結合する化合物を探索するが、化合物は 10^{60} 以上もあり、すべての化合物について薬としての効果を実験的に調べることは不可能である。しかも、化合物の形状が合うだけでなく、タンパク質との結合の強さを調べることは容易ではない。そこで、量子化学計算によって電子レベルの計算を行うことにより、病気の原因となる

タンパク質と薬の候補となる化合物の結合の強さを高精度で求め、薬の候補として有力な化合物を探し出すのである。実際、スパコン「京」によって、薬の開発期間：2年～3年が1年～1.5年と半分になり、成功率：1/2500が1/10～1/100と数十倍から数百倍になり、開発費については約200億円から数億円～数十億円と1/10～1/100になっている²。

このように、コンピュータ産業の発展は、どの国に於いても重要であり、コンピュータ産業の発展のレベルが、その国の様々な分野の発展のレベルと言っても過言ではない。そこで現在、米国をはじめ、日本、中国、欧州の国々が、更に高性能なエクサスケールのスパコン開発を、2020年頃の完成を目標に進めている。目標とする処理速度は1秒間に 10^{18} 回の演算性能であり、「京」の約100倍の処理速度である。

しかし、エクサスケールのスパコン開発にはいくつかのハードルが待ち構えている。半導体の微細加工技術は限界に達して、ムーアの法則も通用しなくなろうとしている。その為、マルチコア化によって並列性を上げて、処理速度向上を図っている。しかし、これ以上の並列化には、消費電力の問題が生じてくる。2011年11月の「TOP500」に於けるベンチマークテスト時の

¹ 理化学研究所 計算科学研究機構, <http://www.aics.riken.jp/jp/> (accessed Sep. 6, 2015).

² 奥野恭史, 「スパコン「京」が拓く医薬品開発の未来～速い安い旨い薬づくり～」, K computer Symposium 2013, 2013.

「京」の消費電力は、約 12.7MW である³。一般家庭での平均電力使用量を 400W とすると、「京」の消費電力は約 30000 世帯分に相当する。日本では 1MW が年間約 1 億円なので、電気料金だけでも年間約 12 億円になっている。現在の技術でエクサスケールのスパコンの消費電力を考えると、さらに一桁消費電力が増えてしまい、あまり現実的ではない。

このことから、スパコンの処理速度向上には、省エネルギー化が重要である。そこで、電力 1W 当たりの演算回数 (MFLOPS/W) を評価尺度として世界の上位 500 位までを発表する「Green500」⁴が 2007 年からスタートした。2015 年 6 月現在、「Green500」の上位 10 位内のスパコンの 6 台が NVIDIA 社製のアクセラレータ GPGPU (General Purpose Graphics Processing Unit)⁵を使用している。つまり、スパコンの処理速度向上に重要な省エネルギー化には、今のところ NVIDIA 社製のアクセラレータ GPGPU が有力であることがわかる。GPU (Graphics Processing Unit) とは、主にゲームの画像処理用に発展してきたコンピュータ・グラフィックス向け画像処理装置のことであり、3 次元画像などを高速で処理する為に、多数の演算コアが搭載されている。これを数値計算用に汎用化したものが GPGPU である。GPGPU 上での計算は、CUDA(Compute Unified Device Architecture)⁶という NVIDIA 社が無償で提供する GPGPU コンピューティング向け統合開発環境によって実現される。プログラム言語は C 言語をベースにしており、コンパイラ、ライブラリ、デバッグなどから構成されている。また、科学技術計算に用いられている Fortran 言語にも対応している⁷。

2009 年に長崎大の濱田等が、GPGPU を 760 個並列に動作させることにより、わずか 3800 万円で 158TFLOPS という処理速度を実現し、「スパコンのノーベル賞」と言われるゴードン・ベル

賞を受賞した。それまでの国内最速記録は、海洋研究機構の「地球シミュレータシステム」(数百億円)が持つ 122.4 TFLOPS であった為、非常にコストパフォーマンスが良いスパコンであると話題になった。翌年の 2010 年には、中国天津スパコンセンターのスパコン「Tianhe-1A (天河 1A 号)」が、中国のスパコンとして初めて「TOP500」に於いて世界最速となったが、この時のシステムは、CPU (Xeon X5670 2.93GHz) : 14336 個、GPGPU (NVIDIA Tesla 2050) : 7168 個という構成であった。2015 年 6 月現在、「TOP500」にランクインしているスパコンの内、NVIDIA 社製 GPGPU を搭載しているスパコンが 50 台あり、15 位以内には 4 台である⁸。

エクサスケールのスパコン開発には、消費電力の問題以外に開発費の問題もある。2009 年の政府の事業仕分けでも問題になったように、スパコンの開発には多額の費用が必要となる。そこで NVIDIA 社では、スパコン市場よりも大きな市場を持つコンピュータ・ゲーム等の 3D 画像処理や HD (High Definition) 映像の再生支援に用いられてきたコンシューマ向け GPU を複数搭載してスパコン並の処理速度を持つコンピュータを開発することを可能にし、開発費を大幅に下げることに成功した。

密度汎関数理論 (Density Functional Theory: DFT)⁹に基づいた第一原理計算 (First-Principles Calculation: FPC)による研究手法は、近年、その理論だけでなく計算手法やコンピュータの進歩と共に、物性研究において益々その地位を確立しつつある。1964 年に DFT が登場した当時は、現在に比べてコンピュータも非力であり、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コンピュータは急速に進歩を遂げ、現在では DFT は様々な分野に

³ FUJITSU, <http://jp.fujitsu.com/about/tech/k/qa/k04.html> (accessed Sep. 6, 2015).

⁴ GREEN500, <http://www.green500.org/> (accessed Sep. 6, 2015).

⁵ NVIDIA, <http://www.nvidia.co.jp/page/home.html> (accessed Sep. 6, 2015).

⁶ NVIDIA CUDA ZONE, <https://developer.nvidia.com/cuda-zone> (accessed Sep. 6, 2015).

⁷ CUDA Fortran, <https://developer.nvidia.com/cuda-fortran> (accessed Sep. 6, 2015).

⁸ TOP500, <http://www.top500.org/> (accessed Sep. 6, 2015).

⁹ Hohenberg, P. and Kohn, W., "Inhomogeneous Electron Gas", *Phys. Rev.* 136, 1964, pp.864-871; Lundqvist, S. and March, N. H., *Theory of the Inhomogeneous Electron Gas*, New York, Plenum Press, 1983; Dreizler, R. M. and Gross, E. K. U., *Density Functional Theory*, Berlin, Springer-Verlag, 1990; Parr, R. G. and Yang, W., *Density-Functional Theory of Atoms and Molecules*, New York, Oxford University Press, 1989.

において、その有用性が認められている¹⁰。

昔から多電子系の問題を高精度で解くことは、非常に困難であった。なぜならば、多電子系の Schrödinger 方程式を Hartree-Fock 法¹¹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、液体や高分子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 Kohn 等が提案した DFT によってコンピュータによる大規模系研究への扉が開かれた。この理論では、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、研究者達に広く受け入れられた。この理論では、多電子系の Schrödinger 方程式を Kohn-Sham (KS) 方程式¹²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 方程式の解き方は、その基底関数の選び方によって様々な方法が考案されており¹³、対象に応じて様々な手法を選ぶことができる。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為、行列の対角化が必要となる。コンピュータ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 Parrinello¹⁴による第一原理分子動力学(First-Principle Molecular Dynamics: FPMD)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 方程式を適用する。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く。ここまでは他の方法と同じであるが、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、原子系と電子系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コンピュータでも FPC 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 Car-Parrinello 法がそれに取って変わりつつある。しかし、Car-Parrinello 法で大規模系をシミュレートするためには、未だ多くの計算時間が必要になるため、更なる計算手法やコンピュータの進歩が不可欠であった。

1993 年、Pearson 等¹⁵によって Orbital-Free FPC(OF-FPC)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、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、計算時間とコンピュータのメモリ容量を格段に節約できるので、金属ガラス¹⁶や金属液体¹⁷などの大規模系へ応用され、

¹⁰情報機構、「第一原理計算 ～構造最適化に向けた材料・デバイス別 事例集～」, 情報機構, 2012.

¹¹ Szabo, A. and Ostlund, N. S., *Modern Quantum Chemistry*, Tokyo, Macmillan, 1982.

¹² Kohn, W. and Sham, L. J., "Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects", *Phys. Rev. A*140, 1965, pp.1133-1138.

¹³ Martin, R. M., *Electronic Structure: Basic Theory and Practical Methods*, Cambridge University Press, 2004.

¹⁴ Car, R. and Parrinello, M., "Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory", *Phys. Rev. Lett.* 55, 1985, pp.2471-2474.

¹⁵ Pearson, M., Smargiassi, E., and Madden, P. A., "Ab initio molecular dynamics with an orbital-free density

functional", *J. Phys. Condens. Matter*, 5, 1993, pp.3221-3240.

¹⁶ Aoki, M. I. and Tsumuraya, K., "Ab initio molecular dynamics studies on volume stability of Voronoi polyhedra under pressures in a metal glass", *J. Chem. Phys.* 104, 1996, pp.6719-6723; Aoki, M. I. and Tsumuraya, K., "Ab initio molecular-dynamics study of pressure-induced glass-to-crystal transitions in the sodium system", *Phys. Rev. B*56, 1997, pp.2962-2968.

¹⁷ Foley, M., Smargiassi, E. and Madden, P. A., "The dynamic structure of liquid sodium from ab initio simulation", *J. Phys. Condens. Matter*, 6, 1994, pp.5231-5241.

現在でも発展を続けている¹⁸。

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、筆者は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、同法が共有結合系へ適用可能であることを発見した¹⁹。その際、電子の運動エネルギー汎関数については、Thomas-Fermi-von Weizsäcker (TFvW) 汎関数²⁰と Perrot 汎関数²¹の両方について比較し、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を発見した。同法が共有結合物質に適用可能であれば、今後、ナノテクノロジー研究等の重要なツールとなる可能性がある。

OF-FPC 法の精度を左右するもう一つの要因に擬ポテンシャルが挙げられる。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ず、局所擬ポテンシャルのみを用いているが、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、昔から Appelbaum 等²²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 等²³が開発した第一原理擬ポテンシャルを始め、さまざまな第一原理擬ポテンシャル²⁴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-FPC 法に用いることは不可能である。そこで、筆者は、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²⁵。その結果、筆者が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高精度で結晶シリコンの静的物性を再現し、物性研究に有効であることがわかった。

筆者等は、これまでに、GPGPU を用いて FPC を高速化する研究を行ってきた²⁶。CUDA には、高速フーリエ変換ライブラリ CUFFT²⁷や行列演算ライブラリ CUBLAS²⁸などが実装されており、これらを用いた GPGPU 上での数値計算が可能である。そこで筆者等は、ソースコードを書き直し、CUFFT を用いることによって OF-FPC を最大約2倍高速化し、Car-Parrinello 法による FPC を7倍高速化することに成功した。

一般的に、通常の FPC で扱える原子数は、最近のコンピュータでは数百個程度である。しかしこれでは、生体分子やナノサイズの物性を研究することは不可能である。これらを対象とする FPC をおこなう場合、原子数は数万個以上必要となるが、現在のコンピュータの性能上、非常に困難である。スパコン「京」に於いても、原子数が数万個から 10 万個を超えるシステムサイズの FPC を目指している程である。したがって

¹⁸ Wesolowski, T. A. and Wang, Y. A., *Recent Progress in Orbital-free Density Functional Theory*, World Scientific Pub Co Inc, 2013.

¹⁹ 青木優, 「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」, 静岡産業大学論集『環境と経営』, Vol.13, No.1, 2007, pp.65-76.

²⁰ Thomas, L. H., “The calculation of atomic fields”, *Proc. Cambridge Phil. Soc.* 23, 1927, pp.542-548; Fermi, E., “Un metodo statistico per la determinazione di alcune proprietà dell’atome”, *Rend. Accad. Naz. Lincei* 6, 1927, pp.602-607; Fermi, E., “Eine statistische Methode zur Bestimmung einiger Eigenschaften des Atoms und ihre Anwendung auf die Theorie des periodischen Systems der Elemente”, *Z. Phys.* 48, 1928, pp.73-79; Weizsäcker, C. F. von, “Zur Theorie der Kernmassen”, *Z. Phys.* 96, 1935 pp.431-458.

²¹ Perrot, F., “Hydrogen-hydrogen interaction in an electron gas”, *J. Phys. Condens. Matter*, 6, 1993, pp.431-446.

²² Appelbaum, J. A. and Hamann, D. R., “Self-Consistent Pseudopotential for Si”, *Phys. Rev.* B8, 1973, pp.1777-1780.

²³ Bachelet, G. B., Hamann, D. R., and Schlüter, M., “Pseudopotentials that work: Form H to Pu”, *Phys. Rev.* B26, 1982, pp.4199-4228.

²⁴ Vanderbilt, D., “Soft self-consistent pseudopotentials in a generalized eigenvalue formalism”, *Phys. Rev.* B41, 1990, pp.7892-7895; Troullier, N. and Martins, J. L., “Efficient pseudopotentials for plane-wave calculations”, *Phys. Rev.* B43, 1991, pp.1993-2006.

²⁵ 青木優, 「シリコンの第一原理局所擬ポテンシャルの開発」, 静岡産業大学論集『環境と経営』, Vol.13, No.2, 2007, pp.1-12.

²⁶ 青木優, 伴野秀和, 円谷和雄 「GPU による Orbital-Free 第一原理分子動力学法の高速度化」 明治大学情報基盤本部機関紙『Informatics』, Vol.3, No.1, 2009, pp.19-28; 伴野秀和, 青木優, 円谷和雄, 「GPU-FFT による平面波基底第一原理電子状態計算の高速度化」, 明治大学情報基盤本部機関紙『Informatics』, Vol.3, No.1, 2009, pp.29-36.

²⁷ CUFFT, <https://developer.nvidia.com/cufft> (accessed Sep. 6, 2015).

²⁸ CUBLAS, <https://developer.nvidia.com/cublas> (accessed Sep. 6, 2015).

て、原子数が数万個以上の FPC を実現することは、より興味ある物質に研究対象を広げる意味でも、非常に重要である。そこで本研究では、計算精度はやや劣るものの、OF-FPC 法のソースコードを GPGPU 用にチューニングすることにより、研究対象をより大規模な系に広げ、原子数が 4~5 万個のシステムサイズの OF-FPC を可能とすることを目的とし、また OF-FPC がどの程度まで高速化されるか評価を行なう。

II. GPGPU による高速フーリエ変換の高速化

高速フーリエ変換 (Fast Fourier Transform: FFT) は、音響解析、振動解析、電磁波解析など様々な周波数解析に用いられている解析手法であり、データ数 N に対し計算量を $O(N \log N)$ にすることにより、高速な処理が可能である。FPC に於いても、データを実空間から逆格子空間に変換する際、またはその逆の際にも用いられており、周期系を扱う FPC では、必要不可欠な計算手法である。

GPGPU を用いずに CPU 上で FFT 計算を行う場合、フリーの FFT ライブラリでは最速の FFTW (Fastest Fourier Transform in the West)²⁹ を用いるのが一般的である。FFTW は、最も広く利用されている FFT ライブラリの一つであり、計算対象に応じて最適なアルゴリズムを選ぶことで、高速な処理を可能にしている。

一方、GPGPU に於いても、CUDA に CUFFT³⁰ という FFT ライブラリが実装されており、これを用いて GPGPU 上で FFT 計算が可能となっている。ただし、GPGPU 上での計算では、一度、データを CPU 側から GPGPU 側に転送し、更に計算後に GPGPU 側から CPU 側に転送する手間が生じる。本研究に於いては、これらに要する時間も、FFT に要する時間に含めて議論を行う。

本章では CUFFT を用いることによって OF-FPC 計算が、どの程度高速化されるかを評価する前に、CUFFT 計算と FFTW 計算の速度比較を行う。

評価方法は、CUFFT と FFTW に於いて、FFT の順変換と逆変換を 1 回ずつおこなうのに要す

る時間を計測する。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。計算に用いたコンピュータのスペックは、Mother Board: Intel X58 chipset、CPU: Core i7 Quad 920 (2.66 GHz)、Main Memory: DDR3-1066 3GB、GPU: GeForce GTX285(1GB) であり、OS は CentOS5、コンパイラは nvcc と gfortran を用いている。GTX285 は、240 個の演算コアと、メモリバンド幅 159GB/s で接続された 1GB のメモリを搭載しており、単精度浮動小数点演算では 1063GFLOPS の高い並列演算性能を実現している。また GTX285 は、PCI Express 2.0 x16 スロットに接続している。

図 1 に 1D-FFTW(DP)、1D-FFTW(SP)、1D-CUFFT(SP) の計算時間のシステムサイズ依存性を示す。単精度 (Single Precision: SP) 計算である FFTW(SP) と倍精度 (Double Precision: DP) 計算である FFTW(DP) の計算時間差は小さく、 $\log_2 N=23$ の時に最大で約 10% だけ FFTW(SP) の計算時間が短縮されている。一方、CUFFT(SP) は、FFT のメッシュ数 N の増加 (システムサイズが大きくなる) に伴い、FFTW(SP) に比べて計算時間が短縮されており、 $\log_2 N=23$ の時に最大で約 11 倍の速度である。

図 2 に 3D-FFTW(DP)、3D-FFTW(SP)、3D-CUFFT(SP) の計算時間のシステムサイズ依存性を示す。FFTW(SP) と FFTW(DP) の計算時間差は小さく、 $\log_2 N=24$ の時に最大で、約 20% だけ FFTW(SP) の計算時間が短縮されている。一方で CUFFT(SP) は、システムサイズが小さい場合 ($\log_2 N=15$) は FFTW(SP) や FFTW(DP) よりも遅いが、システムサイズが大きくなると共に FFTW(SP) に比べて計算時間が短縮されており、 $\log_2 N=24$ の時に最大で、約 13 倍の速度まで高速化している。

以上のことから、CUFFT(SP) は、次元に関らず、FFT のメッシュ数 N の増加と共に加速され、FFTW(SP) に比べて最大約十数倍高速であることがわかる。

²⁹ FFTW, <http://www.fftw.org/> (accessed Sep. 6, 2015).

³⁰ CUFFT, <https://developer.nvidia.com/cufft> (accessed Sep. 6, 2015).

図1. 1D-FFTW(DP)、1D-FFTW(SP)、1D-CUFFT(SP)の計算時間のシステムサイズ依存性の比較。横軸はFFTのメッシュ数 N の対数表示、縦軸はFFTの計算時間の対数表示。SPは単精度計算、DPは倍精度計算を表す。

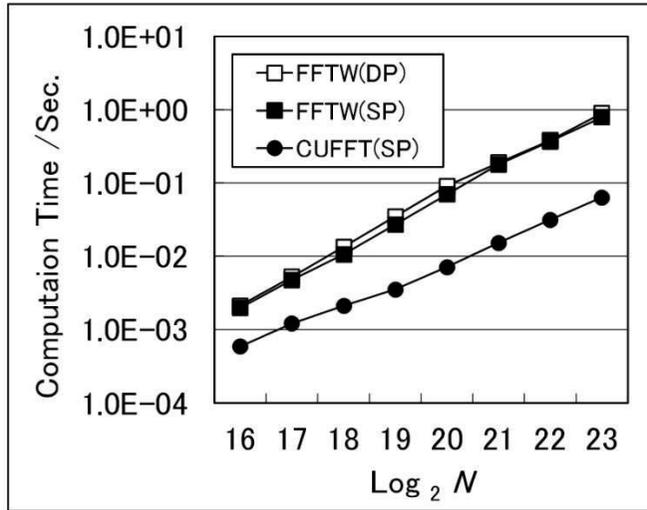
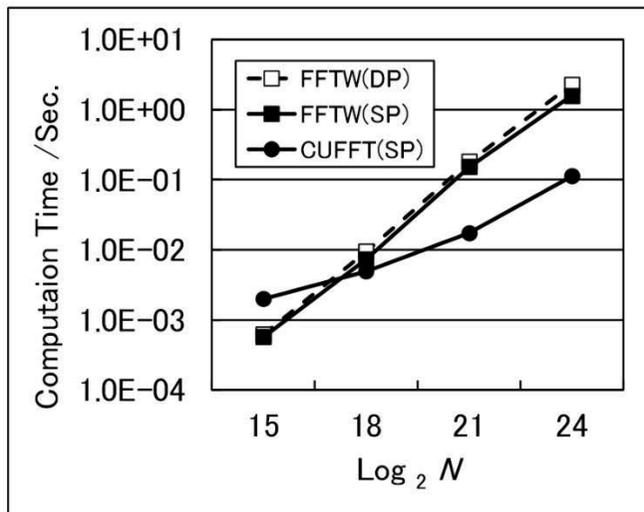


図2. 3D-FFTW(DP)、3D-FFTW(SP)、3D-CUFFT(SP)の計算時間のシステムサイズ依存性の比較。横軸はFFTのメッシュ数 N の対数表示、縦軸はFFTの計算時間の対数表示。SPは単精度計算、DPは倍精度計算を表す。



III. Orbital-Free 第一原理計算

密度汎関数法の精神は、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³¹。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、電子の運動エネルギーを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

Pearson等³²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OF-FPC法を開発した。

この方法では系のラグランジアン L を次のように表す。

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

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、 Λ : ラグランジュ未定数、 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:

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

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 $T[\rho]$ は電子の運動エネルギーであり、本研究では、後述する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

Pearson等は、(3)式における電子の運動エネルギー $T[\rho]$ にPerrot汎関数³³ :

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

をもちいている。ここで、 $T_{TFvW}[\rho]$ はTFvW汎関数³⁴、 $T_{lin}[\rho]$ は線形化されたTFvWエネルギー汎関数、 $T_{HK}[\rho]$ はHohenberg等³⁵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。

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

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

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

ここで逆格子ベクトル \vec{G} を使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^*

³¹ Hohenberg, P. and Kohn, W., “Inhomogeneous Electron Gas”, *Phys. Rev.* 136, 1964, pp.864-871; Lundqvist, S. and March, N. H., *Theory of the Inhomogeneous Electron Gas*, New York, Plenum Press, 1983; Dreizler, R. M. and Gross, E. K. U., *Density Functional Theory*, Berlin, Springer-Verlag, 1990; Parr, R. G. and Yang, W., *Density-Functional Theory of Atoms and Molecules*, New York, Oxford University Press, 1989.

³² Pearson, M., Smargiassi, E., and Madden, P. A., “Ab initio molecular dynamics with an orbital-free density functional”, *J. Phys. Condens. Matter*, 5, 1993, pp.3221-3240.

³³ Perrot, F. Hydrogen-hydrogen interaction in an electron gas, *J. Phys. Condens. Matter*, 6, 1993, pp.431-446.

³⁴ Thomas, L.H., “The calculation of atomic fields”, *Proc. Cambridge Phil. Soc.* 23, 1927, pp.542-548; Fermi, E., “Un metodo statistico per la determinazione di alcune proprietà dell’atome”, *Rend. Accad. Naz. Lincei* 6, 1927, pp.602-607; Fermi, E., “Eine statistische Methode zur Bestimmung einiger Eigenschaften des Atoms und ihre Anwendung auf die Theorie des periodischen Systems der Elemente”, *Z. Phys.* 48, 1928, pp.73-79; Weizsäcker, C.F. von, “Zur Theorie der Kernmassen”, *Z. Phys.* 96, 1935 pp.431-458.

³⁵ Hohenberg, P. and Kohn, W., “Inhomogeneous Electron Gas”, *Phys. Rev.* 136, 1964, pp.864-871.

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。Pearson 等はナトリウム結晶とアルミニウム結晶に対して格子定数、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認している³⁶。

3. 運動方程式のフーリエ表現

(3)式に於ける電子の運動エネルギー $T[\rho]$ が

(16)式のように得られたので、残りの各エネルギーもフーリエ空間で表すと、次のように表される。

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

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

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

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

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

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

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

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。

以上から、電子系の運動方程式は、フーリエ空間で次のように表される。

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

この第1項は次の汎関数微分のフーリエ係数：

³⁶ Pearson, M., Smargiassi, E., and Madden, P. A., "Ab initio molecular dynamics with an orbital-free density functional", *J. Phys. Condens. Matter*, 5, 1993, pp.3221-3240; Smargiassi, E. and Madden, P. A., "Orbital-free kinetic-energy functionals for first-principles molecular dynamics", *Phys. Rev. B* 49, 1994, pp.5220-5226.

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

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。

最後にイオン系の運動方程式は、フーリエ空間で、次のように表される。

$$M_i \ddot{R}_i = -\frac{\partial E_{tot}}{\partial \vec{R}_i} - \frac{\partial E_{II}}{\partial \vec{R}_i} \\ = i \sum_G \rho_G^* V_{ps}(\vec{G}) \exp(-i\vec{G} \cdot \vec{R}_i) - \frac{\partial E_{II}}{\partial \vec{R}_i} \quad (25)$$

IV. GPGPU による Orbital-Free 第一原理計算の精度評価

GPGPU がその性能を十分に発揮できるのは、単精度計算である。しかし、単精度計算によって、全体の計算精度がどの程度落ちるかは評価が必要である。そこで、以下の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、GPGPU による OF-FPC の精度評価を行なった³⁷。

- (1) FFT 以外の OF-FPC コードが倍精度で CUFFT のみが単精度の場合：OF-FPC(DP)+CUFFT(SP)
- (2) FFT 以外の OF-FPC コードが倍精度で FFTW のみが単精度の場合：OF-FPC(DP)+FFTW(SP)
- (3) FFT 以外の OF-FPC コードが倍精度で FFTW も倍精度の場合：OF-FPC(DP)+FFTW(DP)

計算対象となる系は、結晶ナトリウム（体心立方構造）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、4.225 Å とする。また、擬ポテンシャルには Topp-Hopfield 擬ポテンシャル³⁸、交換相関エネルギー汎関数には Perdew-Zunger 交換相関エネルギー汎関数を用い、カットオフエネルギー E_{cut} は 11(Ry) とする。FFT のメッシュ数 N は、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、計算に用いたコンピュータのスペックは、Mother Board：Intel X58 chipset、CPU：Core i7 Quad 920 (2.66 GHz)、Main Memory：DDR3-1066 3GB、GPU：GeForce GTX285 (1GB) であり、OS は CentOS5、コンパイラは nvcc と gfortran を用いている。

表 1 にシステムサイズ別、OF-FPC コード別の系の全エネルギー計算結果を示す。全エネルギーは、5つの系全てに於いて、3種類の OF-FPC コードについて比較すると、7桁一致していることがわかる。OF-FPC(DP)+CUFFT(SP)計算の OF-FPC(DP)+FFTW(DP)計算に対する最大相対誤差はスーパーセル内の原子数が 6750 個の場合で $3.9 \times 10^{-6} \%$ 、また OF-FPC(DP)+FFTW(SP)計算の OF-FPC(DP)+FFTW(DP)計算に対する最大相対誤差は、同様に 6750 個の場合で $4.5 \times 10^{-6} \%$ である。

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）に 0.005 Å（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 2）。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-FPC(DP)+CUFFT(SP)計算の OF-FPC(DP)+FFTW(DP)計算に対する最大相対誤差は、スーパーセル内の原子数が 6750 個の場合で $1.4 \times 10^{-3} \%$ 、OF-FPC(DP)+FFTW(SP)計算の OF-FPC(DP)+FFTW(DP)計算に対する最大相対誤差は、1024 個の場合で $6.1 \times 10^{-4} \%$ である。

以上の結果から、OF-FPC(DP)+CUFFT(SP)計算と OF-FPC(DP)+FFTW(SP)計算は、FFT が単精度であるにも拘わらず、系の全エネルギー、原子間力共に十分な精度で計算可能であることを示している。

³⁷ 青木優, 伴野秀和, 円谷和雄, 「GPU による Orbital-Free 第一原理分子動力学法の高速化」, 明治大学情報基盤本部機関紙『Informatics』, Vol.3, No.1, 2009, pp.19-28.

³⁸ Topp, W. C. and Hopfield, J. J., *Phys. Rev.* B7, 78, 1973, pp.1295-1303.

表 1. システムサイズ別、OF-FPC コード別の系の全エネルギー (Ry)。 N は FFT の全メッシュ数。

Number of Atoms	$\text{Log}_2 N$	OF-FPC(DP)	OF-FPC(DP)	OF-FPC(DP)
		+CUFFT(SP)	+FFTW(SP)	+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

図 3. 原子間力の計算精度の評価方法。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、計算精度を評価する。

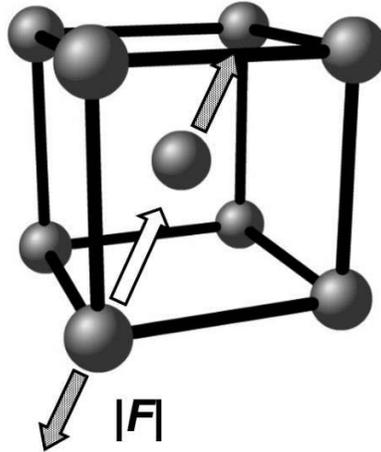


表 2. システムサイズ別、OF-FPC コード別の原子間力 (Ry/a.u.)。 N は FFT の全メッシュ数。

Number of Atoms	$\text{Log}_2 N$	OF-FPC(DP)	OF-FPC(DP)	OF-FPC(DP)
		+CUFFT(SP)	+FFTW(SP)	+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

V. GPGPU による Orbital-Free 第一原理計算の高速化

1. 金属系への適用

金属系に於いて、GPGPU による OF-FPC の高速化を評価する際、最も適当な金属はナトリウムやアルミニウム等の単純金属である。その理由は、OF-FPC 法の開発当初から、これらの単純金属は計算例として取り上げられ、その結果が広く認められているからである。そこで、結晶ナトリウムを対象に、金属系に於ける GPGPU による OF-FPC の高速化を評価した³⁹。

計算対象となる系は、体心立方構造の結晶ナトリウムであり、スーパーセル内の原子数が 2, 16, 128, 1024, 6750 個の 5 つの場合である。ただし、格子定数は 4.225 Å である。また、擬ポテンシャルには Topp-Hopfield 擬ポテンシャル、運動エネルギー汎関数には Perrot 汎関数、交換相関エネルギー汎関数には Perdew-Zunger 交換相関エネルギー汎関数を用い、カットオフエネルギー E_{cut} は 11(Ry) である。FFT のメッシュ数 N は、表 3 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 回である為、500 ステップで合計 5000 回呼び出している。また、今回用いたコンピュータのスペックは、Mother Board: Intel X58 chipset, CPU: Core i7 Quad 920 (2.66 GHz), Main Memory: DDR3-1066 3GB, GPU: GeForce GTX285 (1GB) であり、OS は CentOS5、コンパイラは `nvcc` と `gfortran` を用いている。

図 4 に OF-FPC(DP)+CUFFT(SP) と OF-FPC(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。システムサイズが小さい場合には FFTW を用いた方が計算時間は短いですが、システムサイズが大きくなると逆転し、CUFFT を用いた方が計算時間は短縮されている。Log₂ $N=24$ の場合、OF-FPC(DP)+CUFFT (SP) は、OF-FPC(DP)+FFTW(SP) の約 2.2 倍の計算速

度まで高速化している。

図 5 は、OF-FPC(DP)+FFTW(SP) の全計算時間に対する FFTW(SP) の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、Log₂ $N=21$ 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、システムサイズが大きい系では、FFT の計算時間の割合が、最大で約 6 割であることがわかる。

図 6 は、OF-FPC(DP)+CUFFT(SP) の全計算時間に対する CUFFT(SP) の計算時間、および CPU-GPU 間のデータ転送時間の占める割合を示す。CPU-GPU 間のデータ転送時間は、GPGPU 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) に要する時間と考えることにする。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、Log₂ $N=24$ ではわずか 7.8% である。その内訳は、FFT の計算時間の占める割合が 1.2%、CPU-GPU 間のデータ転送時間の占める割合が 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。実際の時間では、Log₂ $N=24$ の場合、全計算時間 7140 秒に対し、CUFFT(SP) の計算時間は 105 秒、CPU-GPU 間のデータ転送時間は 689 秒となっている。

2. 共有結合系への適用

本研究では、スーパーセル内に原子数 4~5 万個の大規模 FPC を目的とし、共有結合系への適用例として、結晶シリコンの OF-FPC を行う。GPGPU を搭載したデスクトップ PC1 台で、どの程度スパコン並みの計算が可能であるかを評価する。

計算対象となる系は、結晶シリコンであり、スーパーセル内の原子数が、8, 64, 1000, 10648, 46656 個の 5 つの場合である。ただし、格子定数は、5.43 Å とする。また、運動エネルギー汎関

³⁹ 青木優, 伴野秀和, 円谷和雄, 「GPU による Orbital-Free 第一原理分子動力学法の高速化」, 明治大学情報基盤本部機関紙『Informatics』, Vol.3, No.1, 2009, pp.19-28.

表 3. 結晶ナトリウムの場合の原子数、基底関数の数、FFT の全メッシュ数

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)

図 4. OF-FPC(DP)+CUFFT(SP) (●) と OF-FPC(DP)+FFTW(SP) (○) 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。

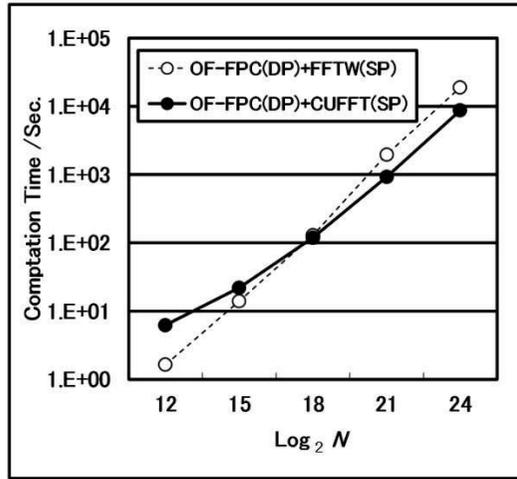


図 5. OF-FPC(DP)+FFTW(SP)の全計算時間に於ける FFTW(SP)計算時間の占める割合

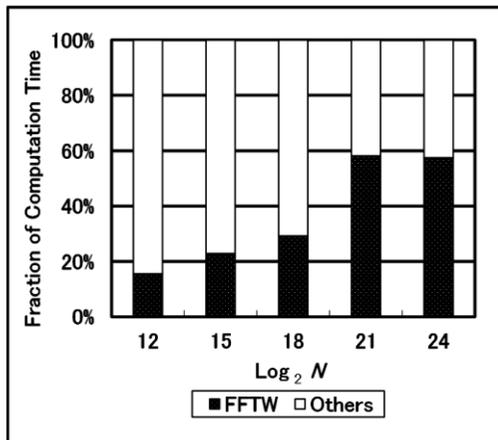
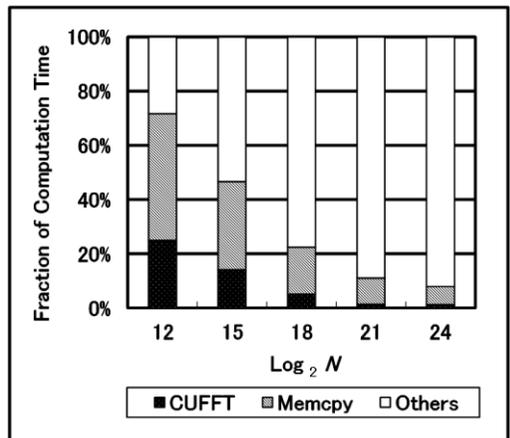


図 6. OF-FPC(DP)+CUFFT(SP)の全計算時間に於ける CUFFT(SP)計算時間、及び CPU-GPU 間のデータ転送時間 (Memcpy) の占める割合



数には Perrot 汎関数を用い、交換相関エネルギー汎関数には Perdew-Zunger 交換相関エネルギー汎関数を用い、カットオフエネルギー E_{cut} は 11.5 (Ry) とする。FFT のメッシュ数 N は、表 4 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、今回用いたコンピュータ X58 chipset, CPU : Core i7 Quad930 (2.80GHz), Main Memory : DDR3-1066 (12GB), GPU : Tesla C1060 (4GB) であり、OS は CentOS5、コンパイラは `nvcc` と `gfortran` を用いている。Tesla C1060 は、1GPGPU あたり 240 個の演算コアと、メモリバンド幅 102GB/s で接続された 4GB のメモリを搭載している。Tesla C1060 は、単精度浮動小数点演算では 933GFLOPS の高い演算性能を実現している。また、Tesla C1060 は、PCI Express 2.0 x16 スロットに接続している。

これまで OF-FPC 法を用いた多くの研究が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、筆者は結晶シリコンの安定な格子定数と電子密度分布 (図 7) を Car-Parrinello 法と Perrot 汎関数を用いた OF-FPC 法の両方で求め、OF-FPC 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結果、OF-FPC 法が共有結合系にも適用可能であることを発見した⁴⁰。同法が共有結合物質に適用可能であれば、今後のナノテクノロジー研究の重要なツールの一つとなる可能性がある。

OF-FPC 法の精度を左右するもう一つの要因に擬ポテンシャルが挙げられる。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ずに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 等⁴¹ によってバンド計算結果を再現するように経験的に求められた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。

しかし、これを用いた全エネルギー計算の結果は精度が低いため、現在では様々な第一原理擬ポテンシャル⁴²が用いられているが、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-FPC 法に用いることは不可能である。そこで、筆者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⁴³。その結果、筆者の開発した局所擬ポテンシャル (図 8、図 9) 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静的物性を高精度で再現し、物性研究に有効であることがわかった。

図 10 に OF-FPC(DP)+CUFFT(SP) と OF-FPC(DP)+FFTW(SP) の計算時間のシステムサイズ依存性を示す。ただし、エバルト法を用いたイオン間の相互作用エネルギーの計算時間は本質的ではないので省いている。結晶ナトリウムの場合と同様に、システムサイズが小さい場合には FFTW(SP) を用いた方が計算時間は短いですが、システムサイズが大きくなると逆転し、CUFFT(SP) を用いた方が計算時間は短縮されている。Log₂N = 24 の場合、OF-FPC(DP)+CUFFT(SP) は、OF-FPC(DP) + FFTW(SP) の約 1.9 倍の計算速度まで高速化している。

図 11 は、OF-FPC(DP)+FFTW(SP) の全計算時間に対する FFTW(SP) の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増加している。結晶ナトリウムの場合と同様、システムサイズが大きい系では、FFTW(SP) の計算時間の割合が、最大で 6 割弱であることがわかる。

⁴⁰ 青木優, 「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」, 静岡産業大学論集『環境と経営』, Vol.13, No.1, 2007, pp.65-76.

⁴¹ Appelbaum, J. A. and Hamann, D. R., "Self-Consistent Pseudopotential for Si", *Phys. Rev.* B8, 1973, pp.1777-1780.

⁴² Bachelet, G. B., Hamann, D. R., and Schlüter, M., "Pseudopotentials that work: From H to Pu", *Phys. Rev.*

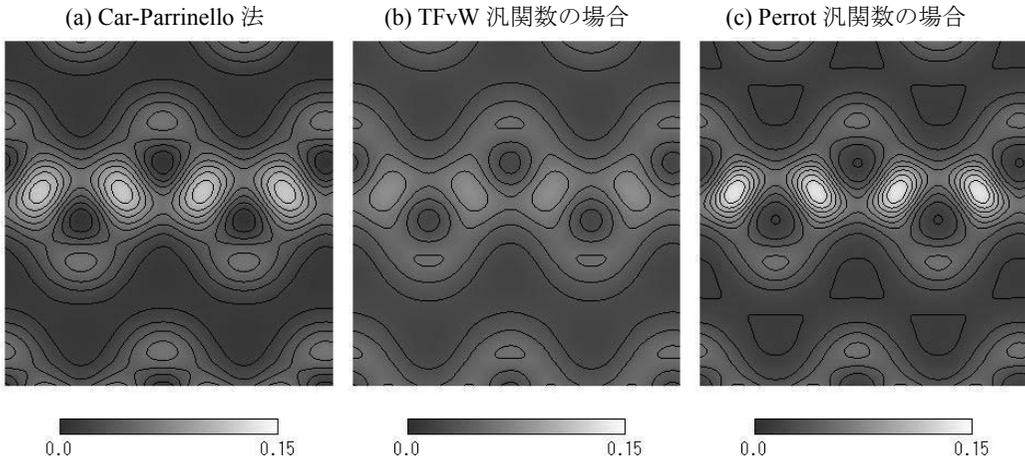
B26, 1982, pp.4199-4228; Vanderbilt, D., "Soft self-consistent pseudopotentials in a generalized eigenvalue formalism", *Phys. Rev.* B41, 1990, pp.7892-7895; Troullier, N. and Martins, J. L., "Efficient pseudopotentials for plane-wave calculations", *Phys. Rev.* B43, 1991, pp.1993-2006.

⁴³ 青木優, 「シリコンの第一原理局所擬ポテンシャルの開発」, 静岡産業大学論集『環境と経営』, Vol.13, No.2, 2007, pp.1-12.

表 4. 結晶 Si の場合の原子数、基底関数、FFT のメッシュ数の関係

原子数	基底関数の数	FFT の全メッシュ数
8	739	4,096 (=2 ¹²)
64	5,695	32,768 (=2 ¹⁵)
1,000	88,951	262,144 (=2 ¹⁸)
10,648	946,853	2,097,152 (=2 ²¹)
46,656	4,148,539	16,777,216 (=2 ²⁴)

図 7. 結晶シリコン中の (110) 面上の電子密度分布 (注)



(注) 等高線は 0 から 0.15 の間を 10 等分している。

図 8. A-H 局所擬ポテンシャル (実線) と A-H 型局所擬ポテンシャル (破線)

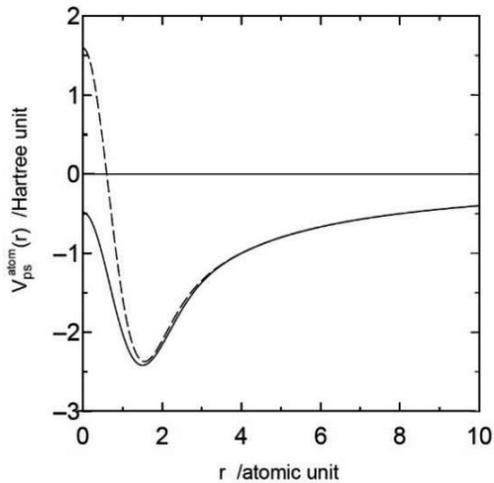


図 9. シリコン原子の 4s 軌道 (実線)、4p 軌道 (破線)、4s 擬原子軌道 (○)、4p 擬原子軌道 (△)

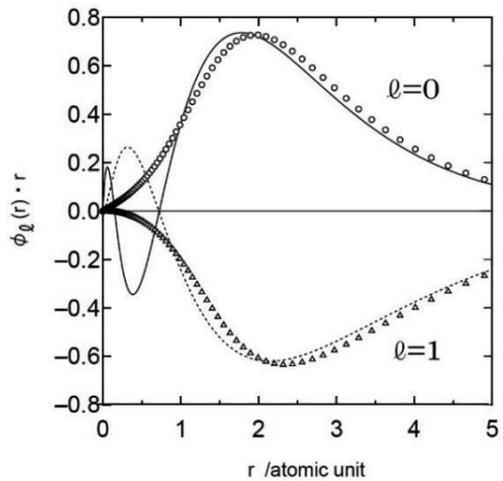


図 10. OF-FPC(DP)+CUFFT(SP) (●) と OF-FPC(DP)+FFTW(SP) (○) に於ける計算時間のシステムサイズ依存性。N は FFT の全メッシュ数。

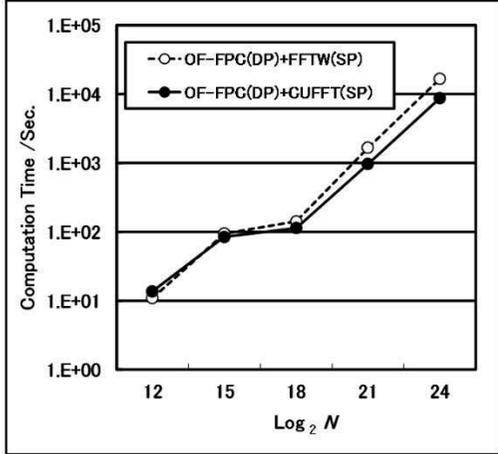


図 11. OF-FPC(DP)+FFTW(SP)の全計算時間に於ける FFTW(SP)計算時間の占める割合

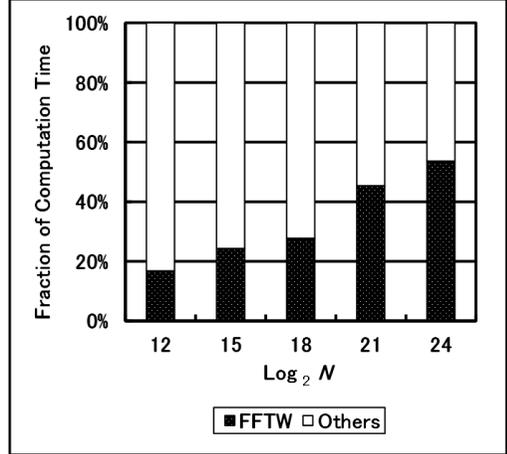


図 12. OF-FPC(DP)+CUFFT(SP)の全計算時間に於ける CUFFT(SP)計算時間、及び CPU-GPU 間のデータ転送時間 (Memcpy) の占める割合

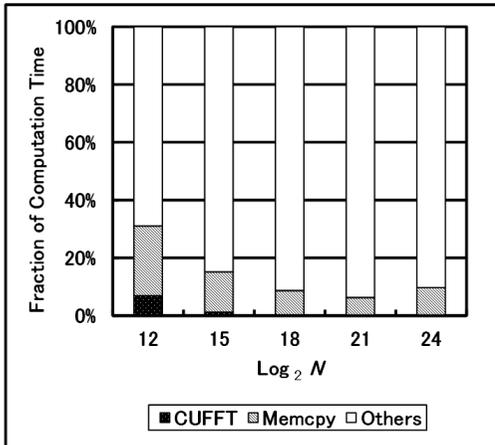


図 13. OF-FPC(DP)+CUFFT(SP)の全計算時間に於ける CUFFT(SP)の計算時間の割合

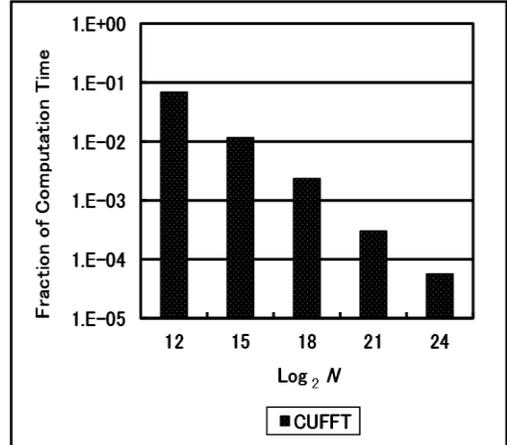


図 12 は、OF-FPC(DP)+CUFFT(SP)の全計算時間に対する CUFFT(SP)の計算時間、及び CPU-GPU 間のデータ転送時間の占める割合を示す。結晶ナトリウムの場合と同様、システムサイズが大きくなるにしたがって、CUFFT(SP)に要する時間 (CUFFT(SP)の計算時間と CPU-GPU 間のデータ転送時間の合計) の割合は減少しており、 $\text{Log}_2N=21$ では僅か 6.3% である。しかし、 $\text{Log}_2N=24$ では僅かに増加し、9.6% となっている。

図 12 では、CUFFT(SP)の計算時間が急激に短縮されている為、システムサイズ依存性がわからない。そこで、CUFFT(SP)の計算時間の占める割合のみを、縦軸を対数表示して図 13 に示す。CUFFT(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短縮されており、 $\text{Log}_2N=24$ では僅か $5.7 \times 10^{-3}\%$ である。実際の時間では、全計算時間 8661 秒に対し、CUFFT(SP)の計算時間は 0.49 秒と、ほぼ無視してよいほどの時間に短縮されている。結晶ナトリウムについて計算した際に用いた GPGPU(GeForce GTX285)と比較すると、今回用いた Tesla C1060 の方が十分高速化されていることがわかる。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。

ここで、図 12 に於いて CPU-GPU 間のデータ転送時間の割合が $\text{Log}_2N=24$ で増加した理由について考察を行う。表 3 や表 4 の様に、基底関数の増加と共に FFT の全メッシュ数も増加するが、これはカットオフエネルギー $E_{cut} (=G_{cut}^2)$ のカットオフ半径 G_{cut} (G は逆格子ベクトル) を半径とする球が、逆格子空間に於ける FFT ボックスからはみ出さないように FFT ボックスのサイズを決めている為である。この FFT ボックスのサイズは、できるだけ小さいほど計算効率が良いが、とびとびのサイズしか設定できない為、システムサイズを変えて計算をおこなう場合、FFT の全メッシュ数とカットオフ半径内の逆格子ベクトルの数の比 (FFT ボックスの体積とカットオフ半径を半径とする球の体積の比) が、

常に一定になるとは限らない。

結晶ナトリウムの計算の場合、(基底関数の数) / (FFT の全メッシュ数) の値は、システムサイズの小さい方から、0.0745, 0.0768, 0.0763, 0.0765, 0.0765 である。これからもわかる通り、結晶ナトリウムの計算の場合には、(基底関数の数) / (FFT の全メッシュ数) の値がほぼ一定であり、図 4~図 6 はこの値の影響を殆ど受けていないことがわかる。それに対し、結晶シリコンの場合、その値はシステムサイズの小さい方から、0.180, 0.174, 0.339, 0.451, 0.247 である。この値が小さいということは、FFT の全メッシュ数に対して基底関数の数の割合が少ないということであり、これは図 12 に於いて、CUFFT(SP)に要する計算以外の割合が少ないことを意味している。その結果として、全体に占める CUFFT(SP)に要する計算時間の割合が増え、 $\text{Log}_2N=24$ の場合のように CPU-GPU 間のデータ転送時間の割合が増える可能性がある。

結晶ナトリウムの場合も結晶シリコンの場合も、FFTW(SP)を用いた場合に対し、CUFFT(SP)を用いた場合は、2倍程度の高速化に留まった。これは、アムダールの法則⁴⁴を用いて説明できる。この法則は、システムの一部を改善したときに全体としてどの程度性能向上を期待できるかを見積もる為の法則である。本研究の場合、元の場合が FFTW(SP)を用いた場合であるとして、CUFFT(SP)を用いた場合が改善した場合であるとすれば、この法則を適用できる。

アムダールの法則によれば、ある改善が全計算時間の (P×100) % を占めている部分に適用され、その部分が S 倍に高速化されるとすると、全体としての計算速度の高速化は、 $1/[(1-P)+P/S]$ 倍と表される。例えば、改善前に全部で 10 時間掛かっていた計算があり、その内の 8 時間 (80%) の部分を 100 倍の速さで計算できるように改善したとする。しかし、この改善では、アムダールの法則によれば、4.8 倍の高速化にしかならない。例え 8 時間 (80%) の部分を 1000 倍の速さで計算できるように改善したとしても、僅か 4.98 倍にしかならず 5 倍を超えることは決してない。

⁴⁴ Amdahl, G. M., "Validity of the single processor approach to achieving large scale computing capabilities", AFIPS '67 (Spring) Proceedings of the April 18-20, 1967, pp.483-485.

今回の計算の場合、FFTW(SP)を用いた場合を改善前の場合としており、図 5 と図 11 に於いて、FFTW(SP)の計算時間が占める割合は、全体の 50~60%である。この部分が、II 章で述べたように CUFFT(SP)を用いて 10 倍に高速化されたとすれば、アムダールの法則によって、全体では 1.8~2.2 倍の高速化が見積もれる。結晶ナトリウムの場合は、2.2 倍の高速化が実現し、結晶シリコンの場合は、1.9 倍の高速化が実現した。このことから、アムダールの法則によって、今回の高速化の結果が裏付けられたことになる。

GPGPU を用いることによって OF-FPC を高速化し、スーパーセル内にシリコン原子数 4~5 万個の大規模 FPC を実現し、本研究の目的は果たすことができた。しかし、本研究で用いた方法では、GPGPU を用いて高速化を図ったとしても、今回扱ったシステムサイズの範囲内では、2 倍程度の高速化が限界であることがわかった。更なる高速化を図るためには、FFT 以外の部分の高速化が必要である。これには、計算時間を多く費やしている箇所を特定し、その部分をできるだけ GPGPU 上で計算すること、CPU-GPU 間で転送するデータ量を減らすことなどが挙げられる。しかし、本来の目的は、GPGPU を用いた 'FPC' の高速化であり、OF-FPC に拘る必要はない。FPC の更なる高速化を目指すのであれば、GPGPU に合う計算手法を一から再検討する必要がある。また、FPC 専用コンピュータの開発も検討の余地があると考えられる。

V. まとめ

近年、FPC 法は物質科学だけでなく、生命科学や創薬の分野の研究に於いても、非常に有効な研究手法の一つとして、その地位を確立しつつある。しかし、その一方で対象とする系の原子数の増加に伴い非常に計算コストが増加する。そのため、同法を用いた研究には高性能コンピュータの利用が欠かせない。現在のスパコンは、複数のコンピュータをネットワーク接続した並列計算によって高速化されているが、個々のコンピュータの性能向上なしには今後の高速化が見込めない。ところが近年、半導体の微細加工技術が限界に近づき、個々のコンピュータの性能向上は見込めなくなってきた。この問題を解決する方法の一つが、GPU コンピューティ

ングである。近年、NVIDIA 社が、PC の画像処理用に開発した GPU を改良し、汎用向けの GPGPU と、そのインターフェースである CUDA を開発することにより、GPGPU が数値計算に用いられるようになってきた。一般的な CPU は演算コアが 4 つであるのに対し、今回用いた GPGPU には演算コアが 240 個もあり、この GPGPU を用いれば、最大で PC の 100 倍程度の高速化を実現可能である。

そこで本研究では、OF-FPC 法のソースコードを GPGPU 用にチューニングすることにより、研究対象をより大規模な系に広げることを目的とし、CPU 上で動作する FFT ライブラリである FFTW を用いた OF-FPC に対し、GPGPU 上で動作する FFT ライブラリである CUFFT を用いた OF-FPC がどの程度まで高速化されるか評価を行なった。

計算対象は結晶シリコンとし、スーパーセル内の原子数が、8, 64, 1000, 10648, 46656 個の 5 つの場合について評価した結果、システムサイズが小さい場合には FFTW を用いた方が計算時間は短い、システムサイズが大きくなると逆転し、CUFFT を用いた方が計算時間は短縮された。特にシステムサイズが最大の場合、全体の計算速度が約 1.9 倍まで高速化していた。

次に全計算時間に対する FFT の計算時間が占める割合を調べたところ、FFTW 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増加傾向にあり、システムサイズが最大の系では、約 6 割を占めていた。一方、CUFFT に要する時間(CUFFT の計算時間と CPU-GPU 間のデータ転送時間の合計)の割合は減少傾向にあり、システムサイズが最大の系では 9.6% (CUFFT の計算時間のみであれば僅か $5.7 \times 10^{-3}\%$) であった。

したがって、GPGPU を用いることによって OF-FPC を高速化し、スーパーセル内にシリコン原子数 4~5 万個の大規模 FPC を実現するという本研究の目的は果たすことができた。しかし、アムダールの法則を用いた見積もりによって、今回の OF-FPC コードでは、GPGPU を用いて高速化を図ったとしても、今回扱ったシステムサイズの範囲内では、2 倍程度の高速化が限界であることがわかった。

今後、更なる高速化を図るためには、FFT 以外の部分の高速化が必要である。これには、計算時間を多く費やしている箇所を特定し、その部分をできるだけ GPGPU 上で計算すること、CPU-GPU 間で転送するデータ量を減らすことなどが挙げられる。しかし、本来の目的は、GPGPU を用いた'FPC'の高速化である。したがって、OF-FPC に拘らず、GPGPU に合う計算手法を再検討することも重要である。また、FPC 専用コンピュータの開発も検討の余地があると考えられる。

謝辞

本研究は、静岡産業大学研究活動助成金によって研究費のご支援を頂いた。また、本学の大堀兼男先生には、計算機環境の設定等に関してご助言を頂いた。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- 青木優, 「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」, 静岡産業大学論集『環境と経営』, Vol.13, No.1, 2007, pp.65-76.
- 青木優, 「シリコンの第一原理局所擬ポテンシャルの開発」, 静岡産業大学論集『環境と経営』, Vol.13, No.2, 2007, pp.1-12.
- 青木優, 伴野秀和, 円谷和雄, 「GPU による Orbital-Free 第一原理分子動力学法の高速化」, 明治大学情報基盤本部機関紙『Informatics』, Vol.3, No.1, 2009, pp.19-28.
- 奥野恭史, 「スパコン「京」が拓く医薬品開発の未来 ~速い安い旨い薬づくり~」, K computer Symposium 2013, 2013.
- 情報機構, 「第一原理計算 ~構造最適化に向けた材料・デバイス別 事例集~」, 情報機構, 2012.
- 伴野秀和, 青木優, 円谷和雄, 「GPU-FFT による平面波基底第一原理電子状態計算の高速化」, 明治大学情報基盤本部機関紙『Informatics』, Vol.3, No.1, 2009, pp.29-36.
- 理化学研究所 計算科学研究機構, <http://www.aics.riken.jp/jp/> (accessed Sep. 6, 2015).
- Amdahl, G. M., "Validity of the single processor approach to achieving large scale computing capabilities", AFIPS '67 (Spring) Proceedings of the April 18-20, 1967, pp.483-485.
- Aoki, M. I. and Tsumuraya, K., "Ab initio molecular dynamics studies on volume stability of Voronoi polyhedra under pressures in a metal glass", *J. Chem. Phys.* 104, 1996, pp.6719-6723.
- Aoki, M. I. and Tsumuraya, K., "Ab initio molecular-dynamics study of pressure-induced glass-to-crystal transitions in the sodium system", *Phys. Rev. B* 56, 1997, pp.2962-2968.
- Appelbaum, J. A. and Hamann, D. R., "Self-Consistent Pseudopotential for Si", *Phys. Rev. B* 8, 1973, pp.1777-1780.
- Bachelet, G. B., Hamann, D. R., and Schlüter, M., "Pseudopotentials that work: Form H to Pu", *Phys. Rev. B* 26, 1982, pp.4199-4228.
- Car, R. and Parrinello, M., "Unified approach for molecular dynamics and density-functional theory", *Phys. Rev. Lett.* 55, 1985, pp.2471 - 2474.
- CUBLAS, [https:// developer .nvidia .com/ cublas](https://developer.nvidia.com/cublas) (accessed Sep. 6, 2015).
- CUDA Fortran, [https:// developer .nvidia .com/ cuda-fortran](https://developer.nvidia.com/cuda-fortran) (accessed Sep. 6, 2015).
- CUFFT, [https:// developer .nvidia .com/ cufft](https://developer.nvidia.com/cufft) (accessed Sep. 6, 2015).
- Dreizler, R. M. and Gross, E. K. U., *Density Functional Theory*, Berlin, Springer-Verlag, 1990.
- Fermi, E., "Un metodo statistico per la determinazione di alcune proprietà dell'atome", *Rend. Accad. Naz. Lincei* 6, 1927, pp.602-607.
- Fermi, E., "Eine statistische Methode zur Bestimmung einiger Eigenschaften des Atoms und ihre Anwendung auf die Theorie des periodischen Systems der Elemente", *Z. Phys.* 48, 1928, pp.73-79.
- Foley, M., Smargiassi, E. and Madden, P. A., "The dynamic structure of liquid sodium from ab initio simulation", *J. Phys. Condens. Matter*, 6, 1994, pp.5231 -5241.
- FFTW, [http://www. fftw. org/](http://www.fftw.org/) (accessed Sep. 6, 2015).
- FUJITSU, [http://jp. fujitsu. com/about/tech/k/qa/ k04. html](http://jp.fujitsu.com/about/tech/k/qa/k04.html) (accessed Sep. 6, 2015).
- GREEN500, [http://www. green500. org/](http://www.green500.org/) (accessed Sep. 6, 2015).
- Hohenberg, P. and Kohn, W., "Inhomogeneous Electron Gas", *Phys. Rev.* 136, 1964, pp.864-871.

- Kohn, W. and Sham, L. J., “Self-Consistent Equations Including Exchange and Correlation Effects”, *Phys. Rev.* A140, 1965, pp.1133-1138.
- Lundqvist, S. and March, N. H., *Theory of the Inhomogeneous Electron Gas*, New York, Plenum Press, 1983.
- Martin, R. M., *Electronic Structure: Basic Theory and Practical Methods*, Cambridge University Press, 2004.
- Nehete, D., Shah, V., and Kanhere, D. G., “AIMD using density-based energy functionals: Application to ground-state geometries of some small clusters”, *Phys. Rev.* B53, 1996, pp.2126-2131.
- NVIDIA, <http://www.nvidia.co.jp/page/home.html> (accessed Sep. 6, 2015).
- NVIDIA CUDA ZONE, <https://developer.nvidia.com/cuda-zone> (accessed Sep. 6, 2015).
- Parr, R. G. and Yang, W., *Density-Functional Theory of Atoms and Molecules*, New York, Oxford University Press, 1989.
- Pearson, M., Smargiassi, E., and Madden, P. A., “Ab initio molecular dynamics with an orbital-free density functional”, *J. Phys. Condens. Matter*, 5, 1993, pp.3221-3240.
- Perrot, F., “Hydrogen-hydrogen interaction in an electron gas”, *J. Phys. Condens. Matter*, 6, 1993, pp.431-446.
- Press, W. H., Teukolsky, S. A., Vetterling, W. T., and Flannery, B.P., *Numerical Recipes in Fortran*, 2nd edition, Cambridge, New York, 1992, p.414.
- Shah, V., Nehete, D., and Kanhere, D. G., “Ab initio molecular dynamics via density based energy functionals”, *J. Phys. Condens. Matter* 6, 1994, pp.10773-10781.
- Smargiassi, E. and Madden, P. A., “Orbital-free kinetic-energy functionals for first-principles molecular dynamics”, *Phys. Rev.* B49, 1994, pp.5220-5226.
- Smargiassi, E. and Madden, P. A., “Free energies of point defects in sodium from first-principles molecular-dynamics simulations”, *Phys. Rev.* B51, 1995, pp.129-136.
- Smargiassi, E. and Madden, P. A., “Free-energy calculations in solids from first-principles molecular dynamics: Vacancy formation in sodium”, *Phys. Rev.* B51, 1995, pp.117-128.
- Szabo, A. and Ostlund, N. S., *Modern Quantum Chemistry*, Tokyo, Macmillan, 1982.
- Thomas, L. H., “The calculation of atomic fields”, *Proc. Cambridge Phil. Soc.* 23, 1927, pp.542-548.
- TOP500, <http://www.top500.org/> (accessed Sep. 6, 2015).
- Topp, W. C. and Hopfield, J. J., *Phys. Rev.* B7, 78, 1973, pp.1295-1303.
- Troullier, N. and Martins, J. L., “Efficient pseudopotentials for plane-wave calculations”, *Phys. Rev.* B43, 1991, pp.1993-2006.
- Vanderbilt, D., “Soft self-consistent pseudopotentials in a generalized eigenvalue formalism”, *Phys. Rev.* B41, 1990, pp.7892-7895.
- Verlet, L., “Computer "Experiments" on Classical Fluids. I. Thermodynamical Properties of Lennard-Jones Molecules”, *Phys. Rev.* 159, 1967, pp.98-103.
- Weizsäcker, C. F. von, “Zur Theorie der Kernmassen”, *Z. Phys.* 96, 1935 pp.431-458.
- Wesolowski, T. A. and Wang, Y. A., *Recent Progress in Orbital-free Density Functional Theory*, World Scientific Pub Co Inc, 2013.

