

利用課題名 密度汎関数法体系における実空間直接数値解析の大規模高速化
Large scale-up and speed-up of real space direct numerical analysis in a density functional theory scheme

利用課題責任者 福島 公親
Kimichika Fukushima

東芝原子力エンジニアリングサービス株式会社
Toshiba Nuclear Engineering Service Corporation (TNES)

抄録

物質・材料中の量子多電子系に対する密度汎関数法(DFT)は、全エネルギーを電子密度の汎関数で表わす。DFT法は、最適電子密度を用いるとエネルギー最低の基底状態を正確に記述する。筆者は量子波動方程式の解析に有限要素(FEM)法を用いた時空直接数値解法を開発したが、この方法は格子点数増大により正確な解に収束させる。本利用課題は、スーパーコンピュータによる DFT-FEM の高速大規模化を目指している。平成25年度は、パソコン上プログラムをスパコンに移植して性能比較を行い、計算速度は1ノードで約30倍となり、メモリも2GBの壁を越えて数10倍の利用が可能となった。また、水素エネルギーに関する解析から、新たな知見を得た。

Abstract

Density functional theory (DFT) represents the quantum total electron energy as a functional of the electron density. DFT describes the exact ground state when the accurate electron density is given. The present author has developed a method to solve a quantum wave equation directly in a space (-time) using the finite element (FEM). The numerical solution approaches a continuum solution with the increase of the number of grid points. The present theme aims at fast and huge calculations for the DFT-FEM analysis using the supercomputer TSUBAME. This study in the Japan financial year 2013, converted the DFT-FEM program on a personal computer (PC) to that on the supercomputer. The computation speed on the supercomputer using one node was about 30 times that on a PC case and the memory on the supercomputer was a few of ten times the PC memory, whose limit is 2GB. Furthermore, the hydrogen energy analysis has obtained new results.

Keywords: 密度汎関数法、有限要素法、時空直接数値解法、スーパーコンピュータ、水素エネルギー

背景と目的

物質・材料中の多電子系を記述する量子力学の密度汎関数法は、複雑な波動関数となる多電子系の全エネルギーハミルトニアンを電子密度の汎関数で表現する。密度汎関数法はホーエンバーク・コーンの定理により、最適電子密度を用いると基底状態を正確に記述する。密度汎関数法を用いた具体的解析法として、周期系についてはブロッホ関数を対象とするバンド計算法等があり、周期性を考慮しない場合は原子軌道関数を基底関数とする分子軌道法等がある。密度汎関数法を用いた電子状態解析法は固体、分子、原子やさらに広範囲の実用材料に適用され、有効性は広く受け入れられている。現在の電子状態解析法を越える方法も模索中で、著者は有限要素法を用いた量子波動方程式の時空直接数値解法を開発した。この方法は時空の格子点

を含む領域で量子波動方程式の解を直接数値解析で求めるもので、格子点数を増やすことにより波動方程式の正確な解に収束させる。このため、密度汎関数法と実空間直接数値解析とを組合せてスーパーコンピュータ TSUBAME で解析することにより、極限として厳密解となる数値厳密化が可能になる。平成25年度は、パソコン上プログラムのスパコン移植変換作業を実施して動作可能にし、イオン性 LiH の解析で性能比較を行った。その結果、計算速度は1ノードで約30倍となり、メモリもパソコンの上限値である2GBの壁を越えて数10倍の利用拡大が可能となった。また、エネルギー環境分野への利用として、水素エネルギーに関する解析を行い、新たな知見を得た。

概要

固体や分子、原子の特性は主として電子が担っており、電子の運動は量子力学によって記述される。量子力学の波動方程式を解いて波動関数を求めるには幾つかの方法があり、ハートリーフォック法が知られている。電子の交換や相関関係に関係する相互作用は複雑で、計算時間を要する。密度汎関数法は全エネルギーの交換相関相互作用エネルギーを次式で表すが、ホーエンバーク・コーンの定理により、最適電子密度を用いるとエネルギー最低の基底状態を正確に記述する。

$$E_{xc}(\rho, \zeta) = \int d\mathbf{r} \varepsilon_{xc}[\rho, \zeta] \rho, \quad (1)$$

ここで、

$$\zeta(\mathbf{r}) = \frac{\rho_{\uparrow}(\mathbf{r}) - \rho_{\downarrow}(\mathbf{r})}{\rho(\mathbf{r})}, \quad (2)$$

であり、 $\rho_{\uparrow}(\mathbf{r})$ および $\rho_{\downarrow}(\mathbf{r})$ は位置 \mathbf{r} における上向きスピンと下向きスピンの電子密度である。電子密度は特定スピンを有する波動関数の自乗に電子数を掛けた量で表され、

$$\rho(\mathbf{r}) = \rho_{\uparrow}(\mathbf{r}) + \rho_{\downarrow}(\mathbf{r}), \quad (3)$$

ある。また、

$$\varepsilon_{xc}[\rho, \zeta] = \varepsilon_{xc}^P[\rho] + (\varepsilon_{xc}^F[\rho] - \varepsilon_{xc}^P[\rho])f(\zeta), \quad (4)$$

$$f(\zeta) = \frac{(1+\zeta)^{3/4} + (1-\zeta)^{3/4} - 2}{2(2^{1/3} - 1)}, \quad (5)$$

であり、Kohn-Sham 理論では

$$\varepsilon_{xc}^P[\rho] = -\frac{3}{4} \left[\frac{\pi}{3} \right]^{1/3} \rho^{1/3}, \quad (6)$$

$$\varepsilon_{xc}^F[\rho] = 2^{1/3} \varepsilon_{xc}^P[\rho], \quad (7)$$

である。

全エネルギーの変分により、量子力学の 1 電子波動方程式が以下のように得られる。

$$[-\nabla^2 + V_N(\mathbf{r}) + V_C(\mathbf{r}) + V_{XC}(\mathbf{r})]\psi(\mathbf{r}) = \varepsilon\psi(\mathbf{r}), \quad (8)$$

ここで、 $\psi(\mathbf{r})$ は電子の波動関数、 $V_N(\mathbf{r})$ は原子核からの引カポテンシャル、 $V_C(\mathbf{r})$ は電子間クーロンポテンシャル、 $V_{XC}(\mathbf{r})$ は電子間交換相関相互作用ポテン

シャル、 ε は電子の軌道エネルギーである。

本利用課題の時空直接数値解法では、有限要素法を用いて密度汎関数法の波動方程式を解く。空間座標が 2 次元の場合、領域分割した中心点のまわりで定義されるピラミッド関数を用いて、波動関数は次のように表わされる。

$$\begin{aligned} \psi(x, y) &= \sum_i C_i h_i(x, y) \\ &= \sum_{k,l} C_{k,l} h_k(x) h_l(y) \end{aligned}, \quad (8)$$

ここで、 $a = x_k - x_{k-1}$ として、ピラミッド関数は区間 $x_{k-1} \leq x \leq x_k$ で

$$h_k(x) = \frac{1}{a}(x - x_{k-1}), \quad (9)$$

と定義され、区間 $x_k \leq x \leq x_{k+1}$ で

$$h_k(x) = \frac{1}{a}(x_{k+1} - x), \quad (10)$$

と定義される。エネルギーの変分をとると、次の永年方程式が得られる。

$$HC = \varepsilon SC, \quad (11)$$

ここで、

$$H_{ij} = \int d\mathbf{r} h_i H h_j, \quad (12)$$

$$S_{ij} = \int d\mathbf{r} h_i h_j, \quad (13)$$

である。以上は直交座標の場合であるが、円筒座標の場合も同様である。

結果および考察

平成 25 年度に実施した研究課題では、それまでパソコンで実施していた密度汎関数・有限要素法プログラム[1,2]をスパコンに移植変換して実行することにより、計算速度と利用可能メモリの比較を行った。解析対象

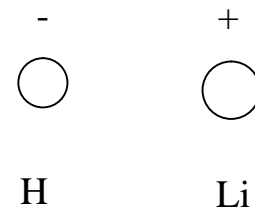


図 1 イオン性 LiH 分子

は、図 1 に示す水素を含むイオン性の LiH 分子その他である。Li は正にイオン化し H は負にイオン化している。

一方、金属酸化物のように、真空中では O²しか測定されず固体中で O²が実験的に測定されるような負イオンを含む系では、負イオンの解析が困難な場合があったが、著者は SIWB (Surrounding or solid coulomb-potential-Induced Well for Basis set)法を開発して解析を可能にした[3-5]。また、これまでに小規模系で密度汎関数・有限要素法と SIWB 法の比較を行った。

<http://dx.doi.org/10.2477/jccj.2013-0002>

の Figure 4 には、パソコンで行い同じ結果をスパコンで得たイオン性 LiH 分子の解析結果を示す。パソコンでは演算素子 CPU が 1 ノード、1 スレッドでメモリは 2GB を超えることができなかったが、スーパーコンピュータ TSUBAME では 1 ノード、12 スレッドと最大約 50GB のメモリを利用することにより、計算速度はパソコンの約 30 倍となった。

まとめ、今後の課題

密度汎関数(DFT)法は、量子多電子系の全エネルギーハミルトニアンを電子密度の汎関数で表現する。DFT 法は、最適電子密度を与えることにより基底状態を正確に記述する。著者は DFT 法の波動方程式を有限要素法(FEM)により解く時空直接数値解法を開発した。この方法は実空間の格子点を含む領域で波動方程式を直接数値解析で求めるもので、格子点数の増加により正確な解に収束させる。DFT-FEM による実空間直接数値解析をスーパーコンピュータで行うことにより、極限として数値厳密化が可能になる。

平成 25 年度に実施した研究課題では、有限要素法を用いて量子波動方程式の時空直接数値解析を行うプログラムを、パソコンからスーパーコンピュータに移植した。解析はイオン性 LiH 分子について行い、パソコンでは 2GB を超えることができなかったが、スーパーコンピュータ TSUBAME では 1 ノードで最大約 50GB のメモリを利用することにより、計算速度はパソコンの約 30 倍となった。また、水素エネルギー分野の解析を行い、新たな知見を得た。

今後は、スーパーコンピュータ TSUBAME を用いて

密度汎関数法体系における実空間直接数値解析のさらなる高速大規模化を目指す。具体的には、スーパーコンピュータのノード間通信を用いた並列計算により、計算速度と利用メモリをさらに拡大した大規模解析にトライしている。また、これまでに小規模系で密度汎関数・有限要素法と SIWB 法の比較を行った。密度汎関数・有限要素法による解析体系をさらに大規模化して SIWB 法と比較し、SIWB 法による実用材料の解析をますます発展させることができる。

参考文献

- [1] K. Fukushima, *Phys. Rev. D* **30** (1984) 1251.
- [2] K. Fukushima and H. Sato, *J. Computer Chemistry, Japan*, **12** (2013) 197.
Freely available website:
<http://dx.doi.org/10.2477/jccj.2013-0002>
- [3] K. Fukushima, *J. Phys. Soc. Jpn.* **69** (2000) 1247.
DOI: 10.1143/JPSJ.69.1247
- [4] K. Fukushima, *Int. J. Quantum Chem.* **109** (2009) 2664.
- [5] K. Fukushima, *J. Computer Chemistry, Japan*, **12** (2013) 95.
Freely available website:
<http://dx.doi.org/10.2477/jccj.2012-0013>