

実空間差分法に基づく第一原理伝導計算法用超並列アルゴリズムの開発

小野 倫也, 岩瀬 滋

筑波大学計算科学研究センター

1. はじめに

第一原理電気伝導特性計算法は、デバイス中の電子移動を解析・予測する手段として開発されてきたが、従来の電子状態計算よりも非常に計算コストが高く、実デバイスの機能予測を行うことは困難であった。近年の超並列計算機の飛躍的な性能向上により、計算コストの課題を超並列計算に適した実空間差分法に基づく数値計算法で回避できることが示され、第一原理計算を利用した新機能・新原理デバイスのデザインへの道が開かれた。今後、超並列計算機を駆使して、大規模シミュレーションによるデバイスデザインを実現するには、ボトルネック部の計算コストを下げる必要がある。本稿では、実空間差分法を用いた第一原理電気伝導特性計算コードRSPACE[1]のいくつかのボトルネック部分を、超並列計算によって高速化する取り組みについて紹介する。

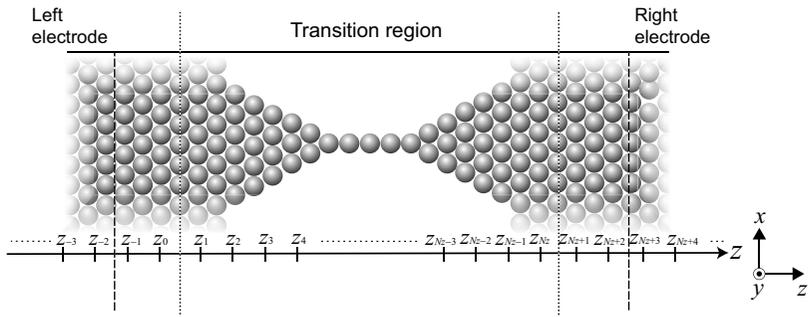
2. 第一原理伝導計算の概要

伝導特性を求める方法は大きく分けて2つに分けられ、ひとつは波動関数接合法[1, 2, 3]、もうひとつは、非平衡グリーン関数法である。両者とも第1図に示すような散乱領域が対向する電極に挟まれたモデルを用いる。波動関数接合法は、電極効果のない非摂動グリーン関数を計算し、波動関数を電極の一般化ブロッホ波に接続する。計算のボトルネックは、一般化ブロッホ波と非摂動グリーン関数の計算である。一方、非平衡グリーン関数法は、電極効果を自己エネルギーとして取り込んだハミルトニアンに対し、摂動グリーン関数を計算する。計算のボトルネックは、自己エネルギーと摂動グリーン関数の計算である。電極の一般化ブロッホ波と自己エネルギーは、数学的に厳密に結びつけることができる。また、非摂動グリーン関数と摂動グリーン関数も、一般化ブロッホ波と自己エネルギーの関係を用いれば、数学的に厳密に結びつけられる。したがって、一方の方法のボトルネックを解決すれば、もう一方の方法の問題点を同時に解決できるため、本稿では波動関数接合法のボトルネック解決法に関して解説する。また、伝導特性計算全体の枠組みについては、参考文献[1]を参考にされたい。

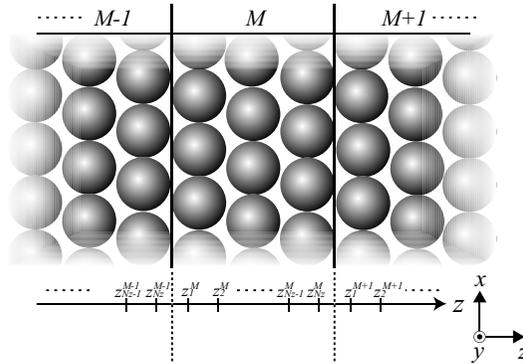
3. 電極の一般化ブロッホ波の計算

電極の一般化ブロッホ波を求めるには、密度汎関数理論のコーン・シャム方程式を二次固有値問題に置き換える方法[4, 5]と、コーン・シャム方程式にブロッホ条件を課した一般化固有値問題に置き換える方法[6]がある。伝導計算では、全固有値・固有ベクトルを必要としないため、櫻井・杉浦法[7, 8]のようなフィルタリング法を用いて、必要な範囲の固有値・固有ベクトルのみを求める[9]。櫻井・杉浦法を用いた並列計算における高速化の指針は、両方法とも同じなので、二次固有値問題を解く方法をもとに説明する。

第2図に、結晶電極のモデル図を示す。結晶電極内では、ポテンシャルはユニットセルを単位



第1図: 半無限に続く2つのバルク電極に挟まれたナノ構造体モデル。
参考文献[3]より一部変更の上転載。



第2図: 周期的ポテンシャルをもつ結晶のモデル。

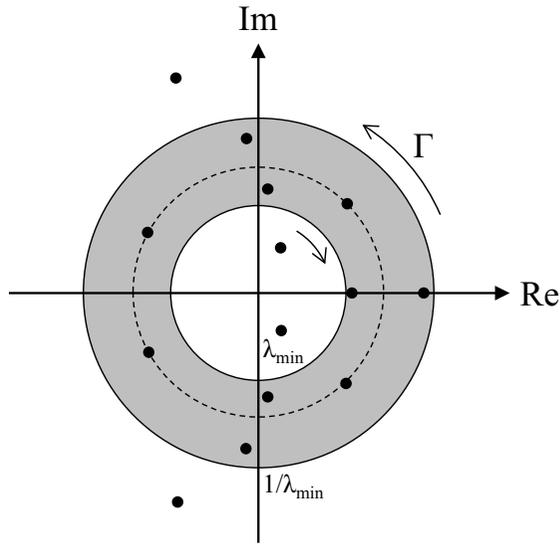
z_k^M は第 M 番目ユニットセル中の第 k 番目グリッドの z 座標を表わす。参考文献[3]より一部変更の上転載。

に周期的であり、電子のエネルギー E に対応する波動関数 ϕ は次の二次固有値問題を満たす。

$$-\frac{1}{\lambda} B^\dagger \phi + (EI - A)\phi - \lambda B\phi = 0 \quad (1)$$

A , B は、結晶電極のハミルトニアン の記述方法によって決まる行列で、 $L_x \times L_y \times L_z$ のサイズのユニットセルに $N_{xyz} = N_x \times N_y \times N_z$ グリッドを配置した実空間差分法を用いた場合、擬ポテンシャルの非局所項を無視し、3点差分の使用を想定して書くと、

$$A = \begin{bmatrix} V_{z,1} & B_z & & 0 \\ B_z^\dagger & V_{z,2} & B_z & \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ & & B_z^\dagger & V_{z,N_z-1} & B_z \\ 0 & & & B_z^\dagger & V_{z,N_z} \end{bmatrix} \quad (2)$$



第3図: λ 平面上の周回積分の経路。

内円と外円に囲まれた領域の固有値を計算する。点線は $|\lambda| = 1$ の円, 黒点は固有値を表す。

と表される。ここで,

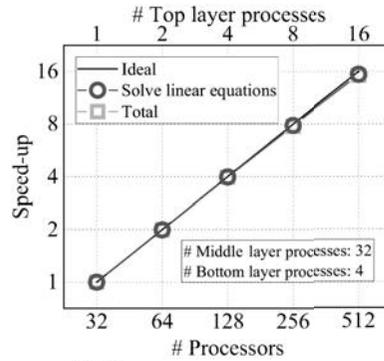
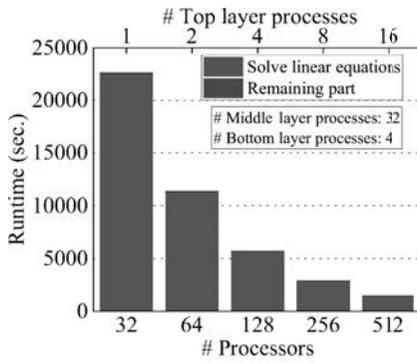
$$V_{z,k} = \begin{bmatrix} V_1(z_k) & B_y & & e^{ik_y L_y} B_y^\dagger \\ B_y^\dagger & V_2(z_k) & B_y & \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ & & B_y^\dagger & V_{N_y-1}(z_k) & B_y \\ e^{-ik_y L_y} B_y & & & B_y^\dagger & V_{N_y}(z_k) \end{bmatrix}, \quad (3)$$

$$V_j(z_k) = \begin{bmatrix} v_1(y_j, z_k) & b_x & & e^{ik_x L_x} b_x \\ b_x & v_2(y_j, z_k) & b_x & \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ & & b_x & v_{N_x-1}(y_j, z_k) & b_x \\ e^{-ik_x L_x} b_x & & & b_x & v_{N_x}(y_j, z_k) \end{bmatrix}, \quad (4)$$

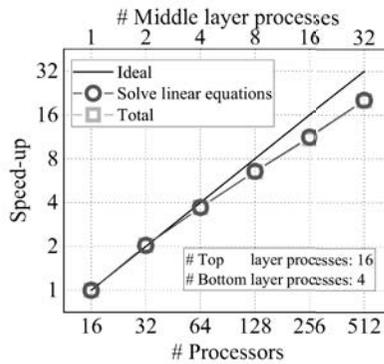
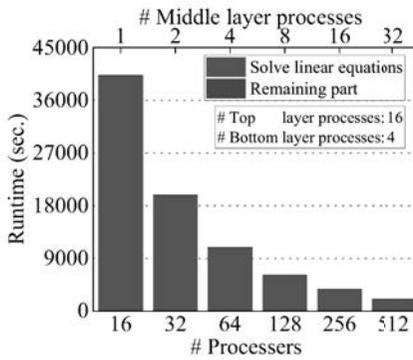
$$v_i(y_j, z_k) = 1/h_x^2 + 1/h_y^2 + 1/h_z^2 + v_{eff}(x_i, y_j, z_k), \quad (5)$$

$$B = \begin{bmatrix} 0 & 0 & & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \\ & \ddots & \ddots & \ddots \\ & & 0 & 0 & 0 \\ B_z & & & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad (6)$$

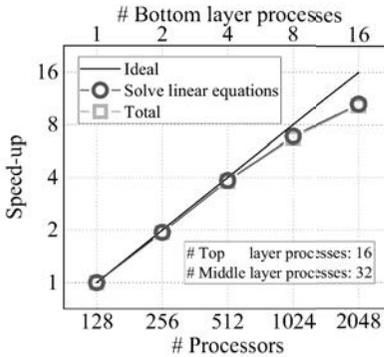
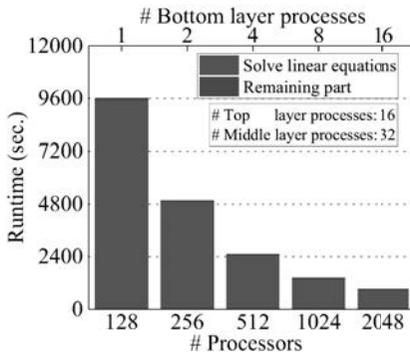
である。また, h_x, h_y, h_z を x, y, z 方向のグリッド幅として, $b_x = -1/2h_x^2, B_y = -I/2h_y^2, B_z = -I/2h_z^2, h_x = L_x/N_x, h_y = L_y/N_y, h_z = L_z/N_z$ である。さらに, k_x と k_y は, xy 方向のブリルアン領域内のサンプリング点である。



(a) Top layer parallelism



(b) Middle layer parallelism



(c) Bottom layer parallelism

第4図: 並列化効率の評価。

(a) 乱数行列 V の列 N_{rh} に対する並列化(Top layer), (b) 積分点 N_{int} に対する並列化(Middle layer), (c) 実空間グリッド N_{xyz} に対する並列化(Bottom layer)。©Iwase *et al.* 2017. This is the author's version of the work. It is posted here for your personal use. Not for redistribution. The definitive Version of Record was published in Ref. [4], <http://dx.doi.org/10.1145/3126908.3126942>.

伝導計算では、 $|\lambda| = 1$ 近傍のみの固有値・固有ベクトルを必要とするため、ここでは(1)式の二次固有値問題を櫻井・杉浦法を用いて解く。この方法では、

$$P(z) = -\frac{1}{z}B^\dagger + (EI - A) - zB \quad (7)$$

とにおいて、固有値 λ が分布する平面に対し第3図のような経路で、次の積分を実行する。

$$S_p = \frac{1}{2\pi i} \oint_{\Gamma} z^p P(z)^{-1} V dz \quad (8)$$

ここで、 S_p は固有ベクトルを構成する N_{xyz} 行の基底ベクトルを集めた $N_{xyz} \times N_{rh}$ の行列、 p はモーメントで、櫻井・杉浦ハンケル法の場合は0から $2N_{mm} - 1$ までの範囲で使用する。 V は乱数で構成される $N_{xyz} \times N_{rh}$ の行列であり、 N_{rh} は、 N_{eig} を積分領域内部の固有値数として、 $N_{rh} > N_{eig}/N_{mm}$ となるように選ぶ。本研究の用途では、十分な計算精度を得るには、 $N_{rh} > 4N_{eig}/N_{mm}$ 程度必要であることが分かっている。 $P(z)$ は疎行列であるため、直接逆行列を計算することはせず、 $\mathbf{u} = P(z)^{-1}V$ とにおいて

$$P(z)\mathbf{u} = V \quad (9)$$

の連立方程式を共役勾配法で解く。

櫻井・杉浦法を用いた固有値解法において、最も計算コストが高いのは(9)式の連立一次方程式計算である。参考文献[4]に示す(6,6)カーボンナノチューブの例では、積分点数を各円当たり N_{int} として、 $2N_{int}N_{rh}$ セットの連立方程式を解くために全計算時間の99.9%以上が費やされる。この割合は、上で述べた一般化固有値問題を解く方法においても、さらには櫻井・杉浦法の別バージョンである櫻井・杉浦レーリー・リッツ法を用いてもほとんど変わらない。高速化の焦点は、(1)乱数行列 V の列 N_{rh} に対する並列化(Top layer)、(2)積分点 N_{int} に対する並列化(Middle layer)、(3)実空間グリッド N_{xyz} に対する並列化(Bottom layer)にあてられる。

第4図に、1024原子からなるBN原子が不純物としてドーピングされた(8,0)カーボンナノチューブモデルのOakforest-PACSにおける並列効率を示す。計算条件は、 $N_{xyz} = N_x \times N_y \times N_z = 72 \times 72 \times 640$ 、 $N_{int} = 32$ 、 $N_{mm} = 8$ 、 $N_{rh} = 16$ 、 $\lambda_{min} = 0.5$ 、 $\delta = 10^{-10}$ である。Top layerの並列化は、ハンケル行列を計算するまで通信が無いため、理想的な並列効率である。Middle layerの並列化は、行列 S_p を計算する際にベクトル \mathbf{u} に関して積分を行うため、若干の並列効率低下が見られる。Bottom layerの並列化は、共役勾配法の反復の度にステンシル計算に関する通信が生じるため、他の2つの並列化に比べて高並列領域における効率劣化が大きい。しかし、いずれの並列化も効率が良い。

本計算では、2048並列で計算粒度の細分化による効率の劣化が見え始めている。今後のさらなる並列数増加にむけては、計算精度の向上や計算モデルの拡大による計算量の増加が見込まれるため、増加分に並列数を割り振る。例えば、伝導計算の精度を向上させるには、計算する固有値・固有ベクトルを増やす、すなわち λ_{min} を小さくする必要がある。自由電子状態密度の解析解より、 N_{rh} は $\log|\lambda_{min}|$ の2乗に比例して増やさねばならないことが分かっているため、Top layerの並列数を増やすことができる。また、計算モデルを拡大すれば、グリッド数が増加するため、Bottom layerの並列数を増やすことができる。領域内の固有値・固有ベクトル数は、 xy 方向の断面積に比例するため、Top layerの並列数も増加する。

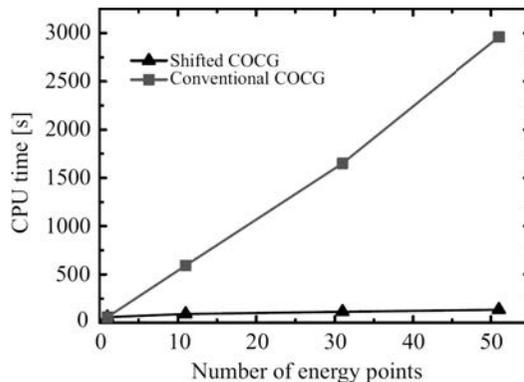
本稿では、一般化ブロッホ波の計算に対し、二次固有値問題を櫻井・杉浦ハンケル法で解く方法を紹介したが、一般化固有値問題を櫻井・杉浦レーリー・リッツ法[10, 11]で解く方法も提案されている[6]。二次固有値問題を用いるか一般化固有値問題を用いるかについては、本質的な違いはない。一方、ハンケル法では行列 S_p に対し $2N_{mm} - 1$ までのモーメントを用いるが、レーリー・リッツ法では $N_{mm} - 1$ までのモーメントしか用いない。周回積分の内円と外円の半径の比が大きいと、高次モーメント部の内円に沿った積分が精度劣化するため、レーリー・リッツ法の方が精度が良い。また、内円と外円の半径の比を小さくするため、積分領域を円環状に分割することで、精度向上が図れることも報告されている[6]。伝導計算では、複数のエネルギー点に対して一般化ブロッホ波を計算することになる。実空間差分法を用いた場合、(9)式でエネルギーは行列の対角項に定数シフトでしか現れないため、シフト共役勾配法が使える、高速計算が可能である[5]。

4. 非摂動グリーン関数の計算

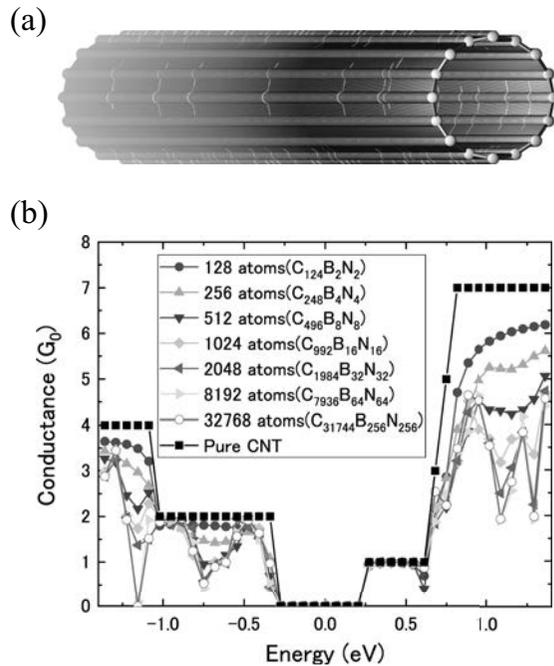
もうひとつの計算のボトルネックは、散乱領域のグリーン関数計算である。散乱領域の非摂動グリーン関数は、

$$(EI - \hat{A})X = U \quad (10)$$

という連立方程式を、共役勾配法で解いて求める。 U は、左上 $N_x N_y \times N_x N_y$ 要素、右下 $N_x N_y \times N_x N_y$ 要素が単位行列で、それら以外の要素は0の $N_{xyz} \times 2N_x N_y$ の行列である。並列化は、前節のBottom layerの並列化に加え、行列 U の列方向に対して行う。小規模系モデルでも U の列数は1000以上、大規模系では50000以上になるので、並列数は十分に稼げる。(10)式では、エネルギー E は行列の対角項にしか現れないため、シフト共役勾配法が使える[12]。特に、透過スペクトルのみを計算する場合、 X の上部 $N_x N_y$ 行、下部 $N_x N_y$ 行のみしか必要としないため、反復計算におけるシフト部の X の更新コストを大幅に削減できる[13]。第5図に、ナトリウム原子鎖の計算をIntel Xeon E5-2667v2 CPUで実行した例を示す。グリッド数 N_{xyz} は $N_x \times N_y \times N_z = 40 \times 40 \times 8$ 、用いた差分は3点差分である。従来の共役勾配法は、行列ベクトル積を各エネルギー点に対して実行するのに対し、シフト共役勾配法は、シード系に対してのみ実行するため、エネルギー点を増やした場合にシフト共役勾配法の効果が発揮されていることが分かる。



第5図: Na単原子鎖のグリーン関数を計算するために要する時間。参考文献[12]より転載。



第6図: 不純物がドーピングされた(8,0)カーボンナノチューブとコンダクタンススペクトル。

(a)計算モデル。緑色(薄い色)の原子が不純物である。(b)コンダクタンススペクトル。

(10)式は逆行列の一部を求めることに対応する。また、共役勾配法では、反復回数は行列サイズに比例する。計算規模の拡大に伴い(10)式の係数行列をブロック化し、ブロック行列の逆行列の関係を利用することによって、大規模系に対する X を高速に計算しようという試みもある。第6図はOakforest-PACSを利用し、3万原子以上からなる不純物ドーピングされたカーボンナノチューブの透過スペクトルを計算したものである。予備的計算のため、計算コストやスペクトルに対する考察が不十分であるが、原子数が増えるほど不純物をドーピングした領域の周期性により、コンダクタンススペクトルが鋭くなっている様子が分かる。この計算の散乱領域は、同じ構造の周期的な繰り返しのため、ブロック行列に対する逆行列計算に対する並列化を施していないが、複雑な構造を持つ散乱領域の場合は、ブロック行列の逆行列計算も並列化できるため、さらに並列数を増やす余地が残っている。3万原子以上のモデルを使用した世界最大規模の第一原理伝導計算は、Oakforest-PACSを用いた超並列計算により実現された例である[14]。

5. おわりに

本稿では、密度汎関数理論に基づく第一原理電気伝導特性計算法とそれに基づく計算コードRSPACE[1]をOakforest-PACSのような超並列計算機で高速化する取り組みについて紹介した。電気伝導計算は、半無限に続く電極を扱うため、電子状態計算に比べ計算コストが高い。超並列計算機の進化と本稿で示したアルゴリズムの改良により、大規模モデルを扱えるようになってきた。とりわけ、本稿で示した1万原子を超えるモデルに対する伝導計算の実現は、Oakforest-PACSのような超並列計算機の恩恵によるところが大きい。ポスト京など高性能な超並列計算機の開発が続けられる状況を鑑み、実空間差分法を用いた大規模第一原理電気伝導特性シミュ

レーションによる新機能デバイスデザインや新原理デバイスデザインの実現を目指して、計算手法の改良・開発が進められている。

参 考 文 献

1. K. Hirose, T. Ono, Y. Fujimoto, and S. Tsukamoto, *First-Principles Calculations in Real-Space Formalism, Electronic Configurations and Transport Properties of Nanostructures* (Imperial College Press, London, 2005).
2. Y. Fujimoto and K. Hirose, *Phys. Rev. B* 67, 195315 (2003).
3. T. Ono, Y. Egami, and K. Hirose, *Phys. Rev. B* 86, 195406 (2012).
4. S. Iwase, Y. Futamura, A. Imakura, T. Sakurai, and T. Ono, *SC '17 Proceedings of the International Conference for High Performance Computing, Networking, Storage and Analysis* 40 (2017).
5. S. Iwase, Y. Futamura, A. Imakura, T. Sakurai, S. Tsukamoto, and T. Ono, *Phys. Rev. B* 97, 195449 (2018).
6. S. Tsukamoto, T. Ono, S. Iwase, and S. Blügel, *Phys. Rev. B* 98, 195422 (2018).
7. T. Sakurai and H. Sugiura, *J. Comput. Appl. Math.* 159, 119 (2003).
8. T. Ikegami, T. Sakurai, and U. Nagashima, *J. Comput. Appl. Math.* 233, 1927 (2010).
9. S. Tsukamoto, K. Hirose, and S. Blügel, *Phys. Rev. E* 90, 013306 (2014).
10. T. Sakurai and H. Tadano, *Hokkaido Math. J.* 36, 745 (2007).
11. T. Ikegami and T. Sakurai, *Taiwan. J. Math.* 14, 825 (2010).
12. S. Iwase, T. Hoshi, and T. Ono, *Phys. Rev. E* 91, 063305 (2015).
13. R. Takayama, T. Hoshi, T. Sogabe, S.-L. Zhang, and T. Fujiwara, *Phys. Rev. B* 73, 165108 (2006).
14. T. Ono, and S. Tsukamoto, in preparation.