

プロジェクト名(タイトル): 第一原理計算ソフトウェア NTChem の開発

利用者氏名: ○川嶋 英佑

理研における所属研究室名: 計算科学研究センター 量子系分子科学研究チーム

### 1. 本プロジェクトの研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

当研究チームでは量子化学計算ソフトウェア NTChem を開発している. 密度汎関数 (density Functional Theory, DFT) 法では 2 電子積分がボトルネックの一つであり, 基底関数の数  $N$  に対して  $O(N^4)$  で増加するため, 大規模系の計算が困難である. これを解決する手法の一つが adaptive density partitioning technique (ADPT) であり, Gauss 型基底関数と平面波の補助基底関数を組み合わせることで計算コストを低減させる [1]. ポテンシャルの変化が緩やかな領域では平面波基底を用い, 実空間の電子密度を運動量空間に Fourier 変換し, 運動量空間で 2 電子積分を求め, 実空間に逆変換して数値積分を行う. 高速 Fourier 変換 (FFT) の利用により, 運動量空間で効率的に計算を行うことができる.

本プロジェクトでは NTChem に実装された ADPT についてベンチマークを取り, その効率性を検証した.

### 2. 具体的な利用内容、計算方法

系として珪素のユニットセル ( $Fd\bar{3}m$ , 格子定数 5.431 Å) を用いた. dangling bond 処理のため, 表面の Si を水素で終端した ( $\text{Si}_{17}\text{H}_{36}$ , 図 1). 汎関数には PBE, 基底関数には STO-3G (H: [1s], Si: [3s,2p];  $N=189$ ), def2-SVP (H: [2s,1p], Si: [4s,3p,1d];  $N=486$ ) を用いた.

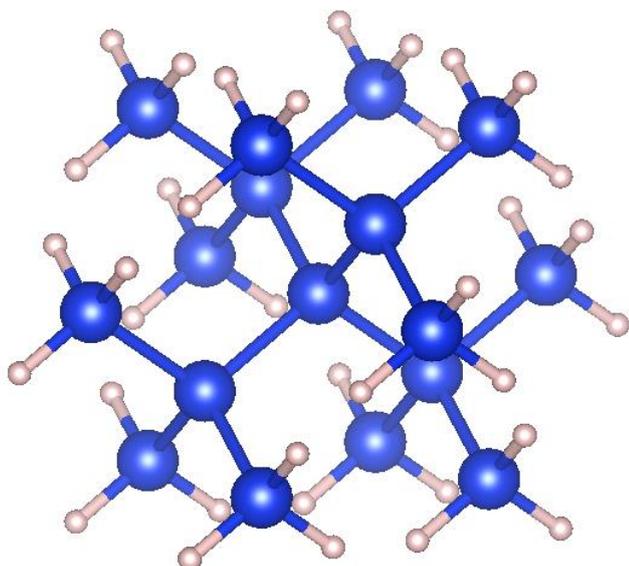


図 1. 表面を水素終端した珪素ユニットセル,  $\text{Si}_{17}\text{H}_{36}$ .

最新の NTChem を Hokusai で提供されている Intel oneAPI classic 2021.7.1/LLVM 2022.2.1 コンパイラでビルドした. プロファイラとして用いる Intel oneAPI vtune の仕様のため, 最適化レベルを `-g (Debug)` または `-O2 -g (RelWithDebInfo)` とした. 並列化はフラット MPI または OpenMP-MPI ハイブリッド並列である. Intel oneAPI MKL 2022.0.2 を線形代数ライブラリー BLAS/LAPACK ならびに FFT として用いた. 計算には 1 ノードを用い, ハイブリッド並列版については OpenMP スレッド数を変化させて計算した.

### 3. 結果

フラット MPI では DFT 計算にメモリが不足して計算ができなかった. ここではハイブリッド並列版 (`OMP_NUM_THREADS=10`) の結果を示す. なお, Intel classic と LLVM の結果はほぼ同じであった.

全体の実行時間に対し, NTChem の ADPT 関連のサブルーチンが占める割合は, PBE/def2-SVP の Debug および RelWithDebInfo ビルド, ならびに PBE/STO-3G の Debug ビルドで 40%-50% でホットスポットであったが, PBE/STO-3G の RelWithDebInfo では 20% であった. FFT がホットスポットとなったのは PBE/STO-3G の RelWithDebInfo ビルドのみであった. これは NTChem に最適化がかかって相対的に高速化したのに加え, 基底関数が小さく, FFT のコストが相対的に大きかったためであると考えられる.

一般的に, 基底関数の数を増やすほど (計算コストは増大するものの) 精度が向上するため, 実用的な計算では FFT ではなく NTChem 自身がボトルネックとなることがわかった.

### 4. まとめ

NTChem に実装された ADPT を用いる場合, 基底関数が小さい場合を除いて, そのサブルーチンが計算上のボトルネックとなることが明らかになった.

本報告書では ADPT について記述したが, その他 NTChem のテスト計算やデバッグも行った.

5. 今後の計画・展望

今後も継続して NTChem のテストやベンチマークを行い、性能の向上を目指す。

[1] Y. Kurashige, T. Nakajima, K. Hirao, Chem. Phys. Chem., 417, 1-9 (2006).

<https://doi.org/10.1016/j.cplett.2005.10.027>