

jh200061-NAH

12th Symposium JHPCN

柳澤 将 (琉球大学・代表)、江川 隆輔 (東北大学・副代表)

研究課題名

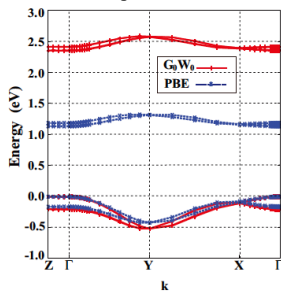
GW space-timeコードの大規模な有機-金属界面への適用に向けた高効率化

1. 研究背景・目的

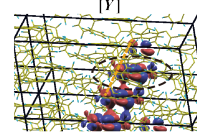
有機エレクトロニクス材料物質の基礎電子物性の理解

- バンドギャップ・バンド分散の精密予測

ルブレ単結晶のバンド計算
(GW近似; GW space-time プログラム)

S. Y., Y. Morikawa, and A. Schindlmayr, Phys. Rev. B **88**, 115438 (2013)有効正孔質量(m_h^*/m_e)

m_h/m_e	$[\Gamma-Y]$	$[\Gamma-X]$
DFT	1.00	2.15
GW	0.90	1.65
Exp.	0.65 ± 0.1	1.9 ± 0.3

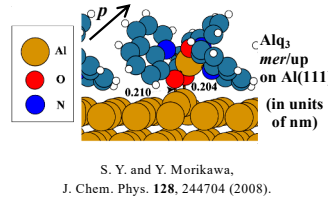
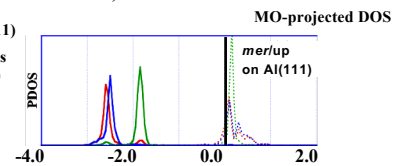


- 有機層と電極金属の界面

電荷 (正孔・電子) の電極からの注入障壁の形成要因
- 界面での電荷移動、化学結合
- 電子密度分布の再構成

H. Ishii et al., Adv. Mater. **11**, 605 (1999).

金属フェルミ準位と有機層の最高占有・最低非占有(HOMO・LUMO) 準位の並び

S. Y. and Y. Morikawa, J. Chem. Phys. **128**, 244704 (2008).

- 結晶構造・分子配置とバンド構造の関係

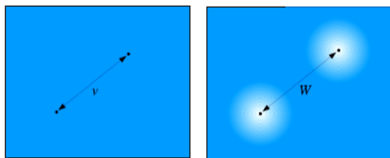
- S. Y., K. Yamauchi, T. Inaoka, T. Oguchi, and I. Hamada, Phys. Rev. B **90**, 245141 (2014)
- S. Y., K. Okuma, T. Inaoka, and I. Hamada, J. Electron. Spectrosc. Relat. Phenom. **204**, 159 (2015).
- S. Y. and I. Hamada, J. Appl. Phys. **121**, 045501 (2017).
- S. Y. and I. Hamada, A Chapter in Theoretical Chemistry for Advanced Nanomaterials - Functional Analysis by Computation and Experiment (Springer Nature 2020).

本研究の目的:

有機-金属界面での準位接続の予測の精密化のために
GW近似を適用できるよう、プログラムを大規模並列計算
向けに高度化。

2. 理論

GW近似: 独立粒子模型・平均場近似に対し固体内の
クーロン相互作用の遮蔽の効果を取り込む。

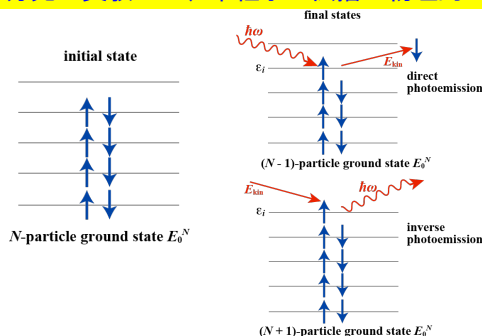
自己エネルギー Σ

$$\Sigma \approx GW$$

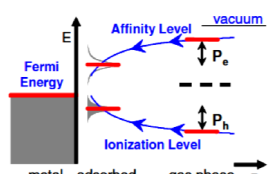
G: 1 体グリーン関数

「裸」のクーロン相互作用 V 遮蔽相互作用 W

光電子分光の実験での、準粒子の伝播に物理的に対応



有機層と電極金属の界面での準位接続の再現

J. B. Neaton et al., Phys. Rev. Lett. **97**, 216405 (2006).

- 有機層のHOMO-LUMOバンドギャップ

- 表面付近での鏡像ポテンシャルの効果

$$\sim 1/4|z - z_0|$$

3. 計算方法、プログラムの現状、予定

GW space-time 法

M. M. Rieger et al., Comput. Phys. Commun. **117**, 211 (1999).
L. Steinbeck et al., Comput. Phys. Commun. **125**, 105 (2000).
C. Freysoldt et al., Comput. Phys. Commun. **176**, 1 (2007).

$$W(\mathbf{G}, \mathbf{G}'; i\omega) = \varepsilon^{-1}(\mathbf{G}, \mathbf{G}'; i\omega) v(\mathbf{G}, \mathbf{G}')$$

$$\Sigma(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; i\tau) = iG(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; i\tau) W(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; i\tau)$$

$$P(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; i\tau) = -2iG(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; i\tau) G(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; -i\tau)$$

量込み積分でなく、積を計算

$$\tilde{\varepsilon}_k(\mathbf{G}, \mathbf{G}'; i\omega) = \delta_{\mathbf{G}\mathbf{G}'} - \frac{4\pi}{|\mathbf{k} + \mathbf{G}| |\mathbf{k} + \mathbf{G}'|} P_k(\mathbf{G}, \mathbf{G}'; i\omega)$$

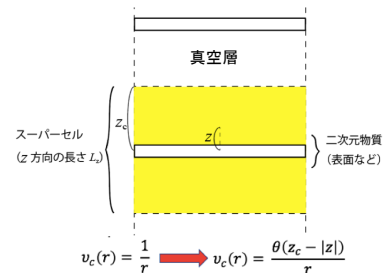
$$W_k(\mathbf{G}, \mathbf{G}'; i\omega) = \frac{4\pi}{|\mathbf{k} + \mathbf{G}| |\mathbf{k} + \mathbf{G}'|} \tilde{\varepsilon}_k^{-1}(\mathbf{G}, \mathbf{G}'; i\omega)$$

- 高速フーリエ変換で $(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ と $(\mathbf{G}, \mathbf{G}')$; $(i\tau)$ と $(i\omega)$ を切替
- 非局所な複素数の量を計算。必要メモリが大きい。

前年度までの実装の状況

- 誘電行列 $\varepsilon_{\mathbf{G}\mathbf{G}'}$ の逆行列化を、ScaLapackを使わず、 $\mathbf{k}$ と $i\omega$ のグリッドについて、ノードに分配
- ノード内で逆行列化計算をタスク並列化 (OpenMP)

- 表面などの計算のための効率的計算法の実装: クーロンカットオフ [S. Ismail-Beigi, Phys. Rev. B **73**, 233103 (2006)]



今年度の予定

- 経過時間の上位を占めるMPI_ALLTOALLV通信のコスト軽減や、他の箇所のベクトル化率の向上。
- GW近似の有機分子薄膜の表面・スラブモデルへの適用を進め、典型的な有機-金属界面への適用も狙う。