

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

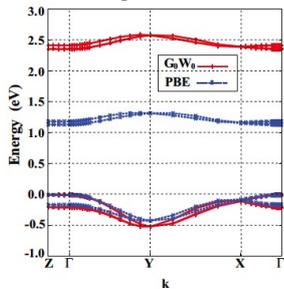
1. 研究背景・目的

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

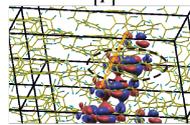
(GW近似; GW space-time プログラム)



S. Y., Y. Morikawa, and A. Schindlmayr, Phys. Rev. B **88**, 115438 (2013)

有効正孔質量( $m_h^*/m_e$ )

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

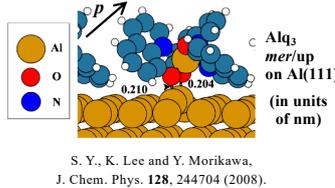


- 有機層と電極金属の界面

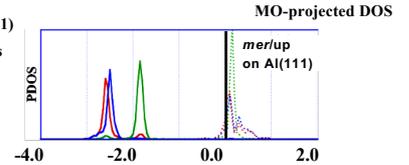
電荷 (正孔・電子) の電極からの注入障壁の形成要因  
 - 界面での電荷移動、化学結合  
 - 電子密度分布の再構成

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., K. Lee 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. 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).

- 有機薄膜表面での電荷注入準位の分子配向依存性

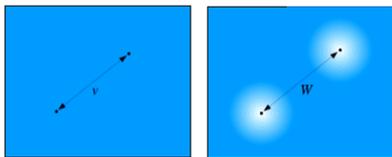
- K. Yamada, S. Y., T. Koganezawa, K. Mase, N. Sato, and H. Yoshida, Phys. Rev. B **97**, 245206 (2018).  
 - Y. Uemura, S. A. Abd-Rahman, S. Y., and H. Yoshida, Phys. Rev. B **102**, 125302 (2020).

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に、プログラムを大規模並列計算向けに効率化する。

2. 理論

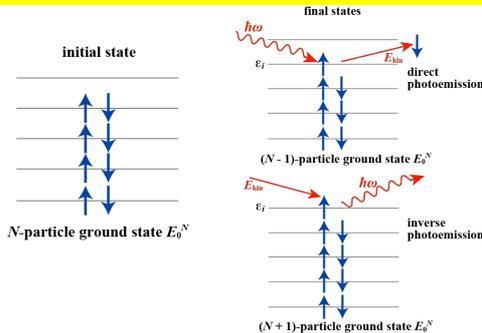
GW近似: 独立粒子模型・平均場近似に対し固体内のクーロン相互作用の遮蔽の効果を取り込む。



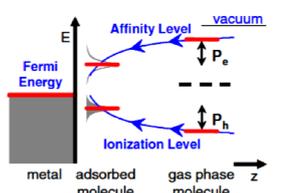
自己エネルギー  $\Sigma$   
 $\Sigma \approx GW$   
 G: 1体グリーン関数

「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).

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

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

畳み込み積分でなく、積を計算

- 高速フーリエ変換で、計算量が依存する変数を頻繁に切り替える:  $(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ と $(\mathbf{G}, \mathbf{G}')$ ;  $(i\tau)$ と $(i\omega)$ ; 波数 $\mathbf{k}$ と実格子ベクトル $\mathbf{R}$
- 非局所な複素数の量を計算。必要メモリが大きい。

前年度の実装、応用の状況

- 有機混合膜に適用し、表面の分子に配向した電荷注入準位の形成について知見を得た [Y. Uemura et al., Phys. Rev. B **102**, 125302 (2020)]。
- 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)]) と、有機薄膜の初期計算を実行した。
- ベクトル化率が低い高速フーリエ変換 ( $\mathbf{k} \leftrightarrow \mathbf{R}$ ) について、多重フーリエ変換を導入することで、コストの解消・計算時間の短縮に大きな成果が見られた。



今年度の予定

- 他の箇所のベクトル化率の向上。MPI\_ALLtoALLv通信のコスト軽減。
- より収束性を高めた計算の達成のために、SX-Aurora上でのメモリの有効利用や、通信のマッピングの向上をはかる。
- コードの、有機分子薄膜表面・スラブモデルへの適用を進め、典型的な有機-金属界面での、鏡像ポテンシャルの効果を検討した準位接続の再現を目指す。