

課題名 (タイトル) :

第一原理計算を利用した X 線光電子分光および X 線吸収分光法の理論スペクトルの算出

利用者氏名 : ○中尾愛子

小和田善之\*

理研での所属研究室名 : 前田バイオ工学研究室

\*兵庫教育大学

1. 本課題の研究の背景、目的、関係するプロジェクトとの関係

次世代蓄電池として期待されている全固体 2 次電池の材料開発において、XPS や XANES は、局所的な構造変化を検討し、また特定の元素についての状態分析を行うことができることから、電極活物質や固体電解質の状態変化を調べる上で、極めて有効な手法である。しかし、全固体 2 次電池に用いる材料については、その反応や構造変化が非常に複雑であり、安定な物質をリファレンスとするだけではスペクトルを解析することが困難である。そこで本研究では、様々なモデル構造を構築し、その理論スペクトルを算出することで、全固体電池材料のスペクトルを理論的に解析することを目的とする。

2. 具体的な利用内容、計算方法

本年度は、HOKUSAI システム上に移植を行った第一原理計算法のひとつである DV-X $\alpha$  分子軌道計算プログラムを用いて、電極材料表面にコーティングされた LiNbO<sub>3</sub> 薄膜の XPS および XANES の解析を行った。また、モデルの構造最適化を行うために、まずクラスターモデルの全エネルギーをエネルギー計算プログラムである TESDA および coulomb2 を用いて算出することを試みた。

3. 結果

LiNbO<sub>3</sub> 薄膜の XPS および XANES については、相対論 DV-X $\alpha$  法を用いてスピン-軌道相互作用を考慮することで、実測とよく対応する理論スペクトルが得られることがわかった。また、Nb 周辺の構造をエネルギー計算から最適化することを試みる予定であったが、クラスターサイズの増加に伴い、エネルギー計算プログラムのバグが見つかり、デバッグに時間を要したため、いくつかのモデルについて全エネルギーを求めるに留まっ

た。

4. まとめ

HOKUSAI システム上において、相対論版およびエネルギー計算プログラムを含めて DV-X $\alpha$  法が正常に動作することが確認できた。また、相対論版 DV-X $\alpha$  法が重元素の XPS や XANES の理論解析に有効であることも確認できた。

5. 今後の計画・展望

アプリケーションサーバ上において、全固体電池に利用される電極材料、固体電解質およびそれらの表面に施されるコーティングなどについて、電子遷移スペクトルの理論解析を進める。また、局所的な構造を理論的に予測するため、全エネルギー計算および構造最適化プログラムの整備を進める。