

## 第一原理計算によるスペクトルの解析

## Analysis of spectra using first-principles calculation

化学研究所 複合ナノ解析化学 根本 隆

## 背景と目的

近年、微小領域の局所解析手法として電子顕微鏡法と組み合わせた電子エネルギー損失分光法 (EELS) や走査トンネル顕微鏡と組み合わせた走査トンネル分光法により原子スケールでの分光測定が可能となってきた。しかしながら、これらの分光法で得られるスペクトルは分析位置を含む周辺の原子分子の影響を受けた複雑なものとなっており、詳細の解析にあたっては、構造モデルを元にした第一原理計算などとの比較検討が必須となっている。従来は WIEN2k ソフトウェアを用い、パーソナルコンピュータを用いた第一原理計算を行ってきたが、励起状態の計算においては、モデルの対称性が大きく低下し、更に周期境界の近接の影響を避けるため、スーパーセルの計算を行う必要がある。したがって、計算量が膨大になることから、スーパーコンピュータラボラトリを積極的に利用して計算を行うための準備を行うことにした。本年度は、実用計算は行っておらず、計算条件の見積り計算のみの利用である。

## 検討内容・結果

本年度は、ペロブスカイト系の金属酸化物について Materials Studio の CASTEP モジュールによるバンド構造の計算を行い、WIEN2k によるバンド計算との比較を行い、EELS スペクトルのシミュレーションにおける計算条件等の検討を行った。スーパーコンピュータシステムでは、主として CASTEP 利用した計算を行い、計算手法の違いによる計算条件の調整などを行った。

CASTEP による計算は、GUI を用いて構造モデルが容易に構築できること、また、WIEN2k を使用する場合と比較すると、同程度の精度の計算結果に対して比較的計算時間を低く抑えることができるという利点があった。しかし、細かな設定がうまくいっておらず、励起状態の計算では、十分な計算精度が得られていない。

一方で、WIEN2k の計算自体はスーパーコンピュータで走らせることができるが、設定ファイルの生成やジョブ管理を行うための WIEN2k 標準の web interface をスーパーコンピュータ上で設定することが困難であることから実用的な運用が困難であり、現時点では試用にとどまっている。

現状の計算手順をそのまま CASTEP に移行することはできておらず、当面は WIEN2k による計算の一部をバッチ処理にて実行するため、現在、下記の作業を行っている途中である。

1. 計算の各過程における最小限の設定ファイルの抽出。データ転送の最適化
2. ローカルな計算機上の Web Interface から計算時間のかかるジョブのみをスーパーコンピュータへ転送するスクリプトの作成。
3. 計算の収束までの繰り返し動作を Web Interface を介さずに実行するためのスクリプトの修正

発表論文・参考論文 : なし