

Étude des spectres EELS de matériaux pour accumulateurs à base de silicium

Gaël Donval^{1,2}, Philippe Moreau¹, Pascale Bayle-Guillemaud³, Séverine Jouanneau-Si Larbi² et Florent Boucher¹

¹ Institut des matériaux Jean Rouxel, Université de Nantes, CNRS, 2 rue de la Houssinière, BP 32229, 44322 Nantes Cedex, France. Email: gael.donval@cnrs-immn.fr

² CEA-LITEN, DEHT, SRGE, 38054 Grenoble Cedex 9, France.

³ CEA-INAC, SP2M, LEMMA, Minattec, 38054 Grenoble Cedex 9, France.

La théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) est un puissant outil permettant, entre autres, de calculer la structure électronique de matériaux et d'en déduire des spectres EELS. La recherche dans ce domaine s'est majoritairement orientée vers l'amélioration de l'accord entre calculs et expériences en prenant en compte, par exemple, les effets de champs locaux, l'interaction électron-trou voire les effets multiplets. Des développements allant au delà de la DFT (TDDFT ou Bethe-Salpether) peuvent ainsi être mis en œuvre mais conduisent à des calculs prohibitifs pour les systèmes qui nous intéressent. Nous étudions en effet des systèmes contenant plusieurs centaines d'atomes, afin de décrire des interfaces partiellement ou totalement amorphes générées électrochimiquement dans les accumulateurs à base de silicium.

Nous verrons qu'il est tout de même possible d'effectuer des calculs de spectres sur de tels systèmes sans pour autant complètement transiger sur la précision. Nous montrerons l'intérêt du calcul de seuils dans des codes à pseudopotentiels ainsi que la nécessité des codes hautement parallélisés comme le démontre la Fig. 1.

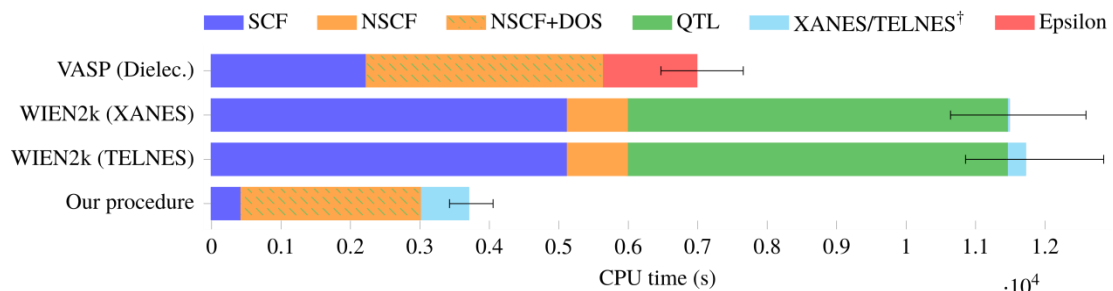


Fig. 1 - Temps de calcul des seuils $L_{2,3}$ des 64 atomes d'une structure de silicium amorphe. VASP est un code à pseudopotentiel. WIEN2k est un code tous-électrons. La routine QTL n'est pas parallélisée. "Our procedure" : approche XANES dans VASP.

Nous évoquerons ainsi les méthodes utilisées pour calculer les spectres EELS sur des systèmes de grande taille ainsi que les difficultés rencontrées lors de l'élaboration de ces systèmes amorphes. Nous étudierons finalement les différences entre les spectres de plasmons et de seuils des structures amorphes et ceux des structures cristallines de même composition.