

内殻電子の絶対束縛エネルギーの計算手法開発とシリセンの構造決定

尾崎泰助：東大物性研

X線光電子分光法(XPS: X-ray Photoemission Spectroscopy) は物質の元素組成、構造、電子状態を調べる汎用的な実験手法の一つである。内殻電子の絶対束縛エネルギーはほぼ元素毎に決定されているため、元素の指紋として利用することで表面近傍の元素組成分析が可能になる。また原子の置かれた化学的環境に応じて内殻電子の束縛エネルギーは敏感に変化し、その僅かな束縛エネルギーの違いを測定することで、表面近傍の構造やその時間変化を追跡することも出来る。それゆえ物質表面・二次元物質の構造や触媒の原子レベルでの反応機構の解析などに不可欠な実験手段となっている。近年では放射光施設を利用することで分解能が向上し、振動微細構造解析、光電子ホログラフィー解析などの様々な発展が見られる。一方、その長い歴史と物質科学における重要性にも関わらず、最も基本的な測定量である内殻電子の絶対束縛エネルギーを密度汎関数理論に基づき高精度に算出する第一原理計算手法はこれまで知られていなかった。我々は最近、ペナルティ汎関数法と厳密クーロンカットオフ法に基づき固体(金属、半導体、絶縁体)中での内殻電子の絶対束縛エネルギーを密度汎関数理論に基づき高精度に計算する新手法を開発した[1]。相対論的擬ポテンシャル法と2成分スピノール形式の密度汎関数理論の枠組みにおいてペナルティ汎関数法を導入し、さらにコアホール間の偽の相互作用を厳密クーロンカットオフ法で遮断することで、自己無動着計算を通して内殻ホールに対する内殻電子・価電子による遮蔽効果、スピン軌道相互作用、磁氣的交換相互作用が同一の理論的枠組みで取り扱いが可能となった。本手法を $\text{ZrB}_2(0001)$ 表面上のシリセンに適用し、絶対値のレベルで実験と直接に比較することで、論争となっていたバックリング構造の決定に成功した[2,3]。

参考文献

- [1] T. Ozaki and C.-C. Lee, Phys. Rev. Lett. 118, 026401 (2017).
- [2] C.-C. Lee et al., Phys. Rev. B 95, 115437 (2017).
- [3] “2次元材料の電子状態解析 - シリセン研究における実験と計算の協奏”, 高村(山田) 由起子, 尾崎 泰助, 応用物理 第86巻 第6号 p.488 (2017).

関連 web

<http://www.openmx-square.org/>