



M-BaTaO₂N の窒素 K 吸収端軟 X 線吸収スペクトル

曾田一雄^{1,2,3}, 茨木俊貴¹, 加藤政彦¹, Khujamberdiev Mirabbos¹, 丹羽健¹,
長谷川正¹, 高倉将一^{2,3}, 仲武昌史³

¹名古屋大学工学研究科, ²名古屋大学 SR 研究センター, ³あいち SR センター

キーワード：窒素 K 吸収端軟 X 線吸収スペクトル, perovskite 型 BaTaO₂N

1. 背景と研究目的

ペロブスカイト型酸窒化物 BaTaO₂N は、可視光応答型光触媒の母材として期待されている^[1]。我々は、触媒性能の向上を目指して金属 *M* を数%添加した *M*-BaTaO₂N の触媒性能と電子構造との関係を明らかにするため、光電子分光および軟 X 線吸収分光で *M*-BaTaO₂N の電子構造を調べている。今回は、金属 *M* を数%添加した *M*-BaTaO₂N の窒素 K 吸収端軟 X 線吸収スペクトル N-K XAS の測定結果を示す。

2. 実験内容

試料（大きさ $\phi 2 \times t 1$ 程度）を導電性接着剤で取り付け、超高真空中でダイヤモンドやすりにより表面汚染層を除去した。N-K XAS スペクトルは、全電子収量 TEY 法のほか、最近整備された部分電子収量法 PEY および全蛍光収量法 TFY で室温にて得た。

3. 結果および考察

Fig.1 に TFY 法による N-K XAS スペクトルの測定例（赤色実線）を第一原理計算の結果（黄色実線；4倍拡大した *Np* 部分状態密度）と比較する。第一原理計算は、WIEN2k コードを用いて一般化勾配近似による全ポテンシャル線型化補強平面波法で行った。図では、非占有 *Np* 部分状態密度分布の立ち上がりと N-K XAS スペクトルの立ち上がりを一致させた（黒色縦線）。測定結果には、ビームライン分光器の高調波成分によって Ba *M*_{4,5} 吸収の構造（青色実線）が見られるが、N-K XAS スペクトル構造は、*Np* 部分非占有状態密度分布で定性的に説明でき、主として Ta および Ba の *5d* 状態との混成バンドと同定される。第一原理計算によると、価電子帯頂上付近は、N *2p* 状態、また、伝導帯底付近は、Ta *5d* 状態から主として構成される。

今後、バンドギャップをより正しく評価する第一原理計算を行うとともに、他の内殻吸収スペクトルと内殻準位光電子スペクトル測定を行い、電子構造と触媒能の相関を明らかにする。

また、今回の測定で、TFY 法は、計数揺らぎが他の手法に比べて大きく、長い測定時間が必要となる懸念があるが、バックグラウンドも少なく、絶縁性の高い試料に対しても有効であることがわかった。

4. 参考文献

1. S. Balaz *et al.*, *Chem. Mater.* **25** (2013) 3337.

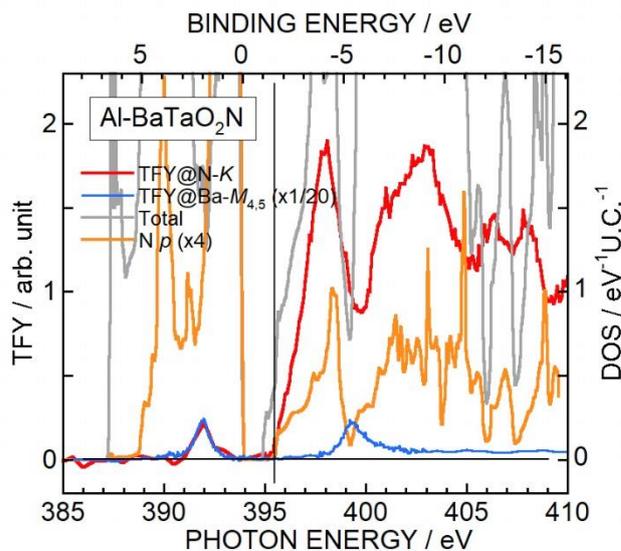


Fig.1 N K-edge X-ray absorption spectrum (XAS) of perovskite-type Al doped BaTaO₂N. Calculated partial density of N *p* states and total density of states are presented for comparison. A Ba *M*_{4,5} XAS induced by the second-order light is also compared.