



Ta M 端の XANES スペクトル

岡島敏浩

あいちシンクロトロン光センター、九州シンクロトロン光研究センター

キーワード：Ta M-edge、XANES スペクトル、第一原理計算

1. 背景と研究目的

近年の計算機の性能向上は目覚ましく、また、汎用的な第一原理計算のパッケージが利用できるようになり、理論研究者でなくても材料などの種々の物性を容易に計算できるようになった。XANES スペクトルは、X 線の吸収端近傍に現れる微細なスペクトル構造を示し、吸収原子周りに存在する配位原子の対称性（立体構造）や価数といった材料物性に重要なパラメータを得ることが可能である。XANES スペクトルの解析は一般的に、構造の分かった参照物質から得られたスペクトルとの比較により行っているが、参照物質がない材料においては第一原理計算を用いた XANES スペクトルの計算が有効である。K 吸収端や L 吸収端よりも浅い準位にある M 吸収端は化学結合状態の変化により敏感である。しかし、M 吸収端の測定例や計算例は少なく、実用材料への応用は難しい。今回、電子材料として利用されている Ta 酸化物について M 吸収端で測定したスペクトルと計算結果との比較を行った。

2. 実験内容

測定には、試薬として購入できる Ta 箔、Ta₂O₅、KTaO₃ そして LiTaO₃ を用いた。Ta 箔はそのまま、酸化物は粉末をそれぞれを In 箔に埋め込み、試料ホルダーに取付けた。スペクトルの測定は BL6N1 において全電子収量法により行った。Ta M-edge の XANES スペクトルの計算は CASTEP を用いて行った。M₃ 端の計算では 3p 軌道に空孔を、M₅ 端の計算では 3d 軌道に空孔をそれぞれ開けて計算を行った。スペクトルは内殻空孔寿命と装置関数によるブロードニングを考慮した。

3. 結果および考察

Fig. 1 は、実験で得られた Ta₂O₅ 粉末の Ta M₃ 端で測定した XANES スペクトルと、第一原理計算で求めたものとを比較したものである。計算で得られたスペクトルの横軸（エネルギー軸）は実験結果と合うようにずらして比較している。おおよそのスペクトルの形状は両方で違いは見られないが、計算で求めたスペクトルの方が明らかにエネルギー分解能が高い。この時、内殻空孔寿命に 1.11eV、装置関数に 0.2eV を用いた。内殻空孔寿命は物理的に決まるものであることから、今後装置関数を調整し、実験スペクトルを再現することを検討する。一方、本手法がビームライン全体のエネルギー分解能を評価する手法として用いることが期待できる。

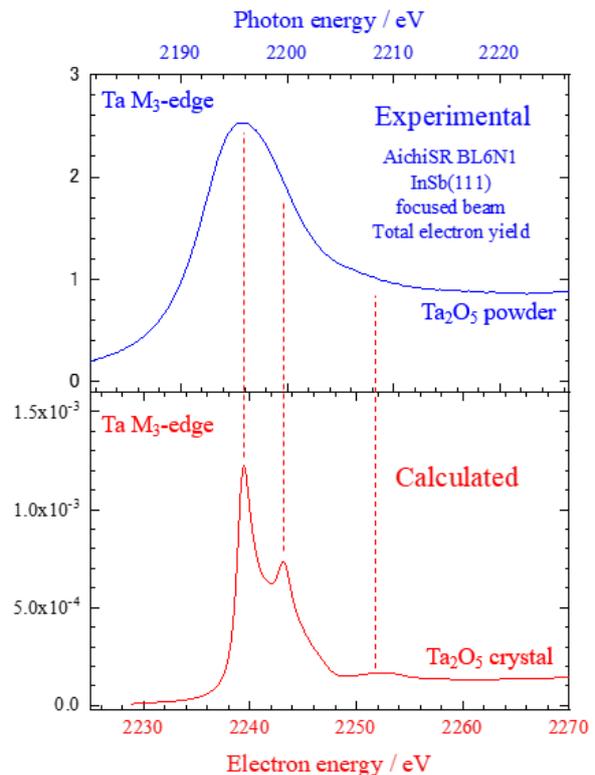


Fig.1 Ta₂O₅ 粉末から得た Ta M₃-edge XANES スペクトル（上、青色）と第一原理計算によって求めた XANES スペクトル（下、赤色）