

偏光 X 線を用いた放射光光電子分光 ～部分状態密度の理論的・実験的評価に向けて～

物質・材料研究機構¹、東工大元素戦略²、JASRI³

大橋直樹^{1,2}、大澤健夫¹、上田茂典¹、鈴木 基寛³、ウィリアムス ジェシー¹、館山佳尚¹、

Ohashi.naoki@nims.go.jp

電子材料の物質探索において、直感的な探索方針を決める指標として重要なものに、原子半径(イオン半径)、元素の電気陰性度、イオンの有効電荷があげられる。元素置換による物性制御や構造制御などの様々な局面において、イオンの電荷状態(有効電荷)を知ること、さらにその電荷状態を制御することは、材料設計、材料探索の原点である。近年、第一原理計算の進展によって、物質中の電子状態を詳細にシミュレーションすることが可能となっている。しかし、多電子問題などの理由により、比較的汎用的に利用できるシミュレーションコードでは、すべての物性を正確に再現することは容易ではない。第一原理計算で得られる有効電荷についても、実験結果と計算結果の比較において、その妥当性が議論されるべき状況にある。

こうした背景の元、合成に携わる材料科学者の直感と第一原理計算を結ぶパラメータとしてイオンの有効電荷を取り上げた場合、第一原理計算で求められる部分状態密度の妥当性の検証が重要であると考えられる。すなわち、電子のバンド構造を LCAO の描像に投影し、物質中での各元素の有効電荷を示すことで、合成化学者の直感と電子状態計算とのインターフェースを築くことができる。そこで、第一原理計算の結果を LCAO に投影した場合の妥当性を検証する手段として、偏光 X 線を用いた光電子分光についての検討を進めている。

光電子分光スペクトルの強度は、観測対象となる軌道の対称性、励起に用いる X 線偏光方向、観測される光電子の脱出方向、という 3 要素に依存する。すなわち、光電子分光スペクトルを励起するための X 線の偏光方向を変化させた場合、s 軌道、p 軌道、d 軌道のそれぞれの軌道の電子は、その軌道の対称性に対応した偏光依存性を示すため、偏光方向を変えた X 線を用いて光電子分光スペクトルの測定を実施することで、観測対象としている電子の軌道の特徴付けることが可能となる。

図 1 に光電子分光スペクトルの X 線偏光依存性の例として、SPring8 の BL15XU において測定した GaN の価電子帯スペクトルの測定結果を示す。ここでは、H-pol. は、X 線の電場ベクトルと光電子の放出方向が、ともに試料表面に垂直な場合のスペクトルであり、V-pol. は、X 線の電場ベクトルを回して試料表面と平行とした場合のスペクトルである。最も顕著な変化は、H-pol. 条件において、9-10eV のピークが強調されていることである。このようにして観測される偏光依存性と第一原理計算で得られる部分状態密度との対応を検討した結果について、報告する。

[1] Ohsawa et al., Appl. Phys. Lett. 107[17]
(2015) 171604 DOI:10.1063/1.4934842

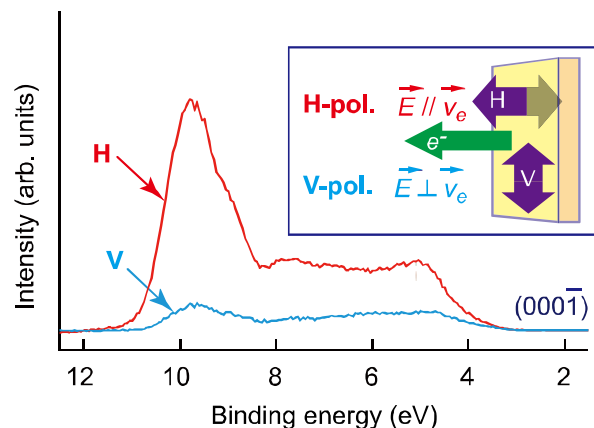


図 異なる偏光方向を持った X 線で励起した、GaN の価電子帯スペクトル。