

Sc_xGa_{1-x}N における XANES スペクトルの第一原理計算

First-principles calculation of XANES spectra for Sc_xGa_{1-x}N

九大総理工¹, 産総研², 九州シンクロトロン光研究センター³

◦(M1)池本 勇¹, 平田 研二², 瀬戸山 寛之³, 大曲 新矢²,

Anggraini Sri Ayu², 秋山 守人², 山田 浩志^{1,2}, 上原 雅人^{1,2}

Kyushu Univ.¹, AIST², SAGA-LS³, ◦(M1) Yu Ikemoto¹, Kenji Hirata², Hiroyuki Setoyama³,

Shinya Ohmagari², Sri Ayu Anggraini², Morito Akiyama², Hiroshi Yamada^{1,2}, Masato Uehara^{1,2}

E-mail: m.uehara@aist.go.jp

【緒言】ウルツ鉱型窒素化合物のAlNやGaNはSc添加することで圧電性能が飛躍的に向上し^{[1][2]}、ScAlNは5G用の高周波フィルタに使用される等、先端的なMEMSデバイスへ応用されている。これまでに、XRD実験によって a 軸と c 軸の格子定数比(c/a)と圧電性能には相関があることが示され、第一原理計算からも、Sc添加によりGaや添加したScの局所構造が変化し c/a が減少することが示されている^[3]。更なる高機能化が期待されるMEMSデバイスの開発には、材料設計指針を確立することが重要であり、そのためには添加元素が与える配位構造変化やデバイス性能への影響を解明することが必要である。そこで、我々はX線吸収分光法を用い、構成元素それぞれの局所構造や配位構造の解明に取り組んでいる。本発表では、実験結果のX線吸収端近傍構造(XANES)スペクトルを考察するために、第一原理計算を用いてSc_xGa_{1-x}NにおけるGa-K端とSc-K端のXANESスペクトルを算出した。

【計算方法】第一原理計算は、平面波基底の密度汎関数理論(DFT)コード群である Quantum Espresso を用いて行った。計算モデルは構造最適化された4×4×2スーパーセル(128原子)のSc_xGa_{1-x}N固溶体結晶構造を用いた。Sc及びGaの励起原子に1sコアホールを考慮したウルトラソフト擬ポテンシャルを用いて、電気双極子近似のもとでXANESスペクトルを計算した。

【結果および考察】Sc-K端の計算では、ピークAとBのエネルギー間隔には不確かさがあるが、実験で得られたXANESスペクトルの特徴を反映した計算スペクトルが得られた(図1(a))。また、Sc濃度を増加させたモデルでは、pre-edgeピークの強度が低下する結果となり、測定スペクトルの傾向と一致した。Sc₁Ga₆₃N₆₄において4~6配位のSc-Nモデルを作成し計算すると、配位数の増加によってpre-edgeピークの強度が低下した。このことから、pre-edgeピークの強度変化とScの配位構造変化には関係があると考えられる。

Ga-K端の計算では、実験で得られたXANESスペクトルの形状と概ね一致した計算スペクトルが得られた(図1(b))。また、Sc濃度を増加させたモデルではピークCとFの強度が低下する結果となり、測定スペクトルの傾向と一致した。さらに、実験では分離できていないピークD₁とD₂が計算では得られた。発表では、計算で得られたXANESスペクトルのSc濃度依存性を考察し、実験結果と比較した結果についても報告する。

【参考文献】[1] M. Akiyama *et al.*, Adv. Mater. **21**, 593-59 (2009).

[2] M. Uehara *et al.*, Appl. Phys. Lett. **114**, 012902 (2019).

[3] F. Tasnádi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 137601 (2010).

【謝辞】本研究の一部は科研費基盤研究(B)(22H01784)で行われた。

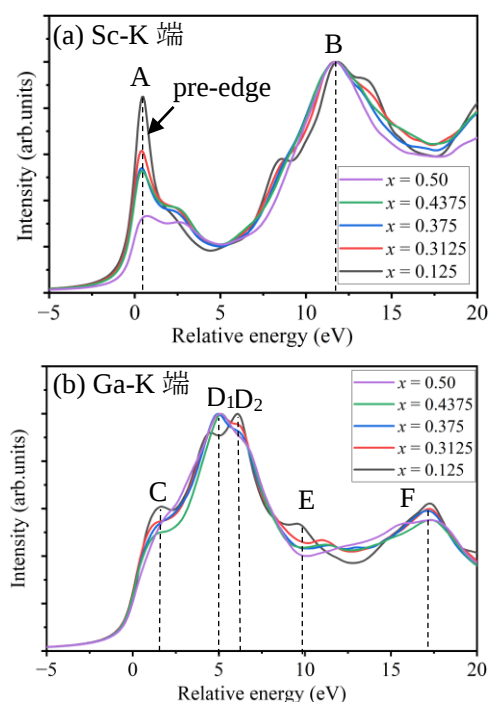


図1 計算で得られたSc_xGa_{1-x}NにおけるXANESスペクトル