

氏 名	かた やま いく ふみ 片 山 郁 文
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	理 博 第 2967 号
学位授与の日付	平 成 18 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	理 学 研 究 科 物 理 学 ・ 宇 宙 物 理 学 専 攻
学位論文題目	量子常誘電体 KTaO_3 における光励起キャリアダイナミクス

論文調査委員 (主 査) 教 授 田 中 耕 一 郎 教 授 松 田 祐 司 教 授 金 光 義 彦

論 文 内 容 の 要 旨

光誘起相転移は、光励起によって生成された励起状態間に協力的な相互作用が働き、基底状態とはマクロに物性が異なる状態へと転移する現象である。この現象は励起状態間の相互作用が重要であることから原理的に非線形であり、また、温度相転移では到達し得ない物質相を誘起できる可能性もあることから注目を集めている。しかしながら、これまでの研究は、温度相転移を伴う系を舞台にしたものがほとんどであった。

本論文で扱う量子常誘電体は、低温で量子揺らぎによって強誘電相転移が阻害されているという特徴的な物質である。また、量子常誘電体は光励起によって非常に大きな誘電率が誘起されることが近年報告されている。もしこれが光誘起相転移であれば、量子揺らぎを超え、温度相転移では達し得ない相を誘起したことになり興味深い。しかしながら、この現象の起源は未解明であり、光励起キャリアのダイナミクスなどとの関連も不明確であった。そこで、本論文では、量子常誘電体の一つである KTaO_3 の光励起状態を、発光などの光学測定と、誘電率測定とにより調べ、それらの結果から光励起状態を理解する事を目的とした。

まず、 KTaO_3 の光励起状態の起源を明らかにするために、発光・吸収・反射測定などの基礎光学測定を行った。その結果、タンタル酸カリウムにおける電子格子相互作用は非常に強く、自己束縛励起子が安定に存在し、それに応じて発光も吸収端から大きくシフトした位置に現れることが分かった。さらに、様々に処理した結晶の発光スペクトルとその温度変化から、この物質の発光には酸素欠陥発光と自己束縛励起子発光の2成分が存在することを明らかにした。高温では局在正孔が熱励起され、酸素欠陥へ到達することにより酸素欠陥発光が誘起されている。このことは光励起状態で、電子正孔が分離している事を示唆している。

この事を確かめるために、本論文では発光減衰の測定を行い、 KTaO_3 の発光減衰が非指数関数的であり、寿命が長いことを示した。このことは、電子と正孔が分離局在しているという解釈を支持している。さらに、発光減衰形状が励起密度に依存し、強励起下の発光減衰形状は時間のべき乗に比例していることも示した。また、この励起密度依存性とべき乗減衰を理解するためにモデルを構築した。しかしながら、電子・正孔の両方が常に局在すると仮定して発光減衰を計算すると、矛盾が生じる事を見出した。これは、電子の局在準位が有限であることを示唆しており、実際にそのような仮定の下に発光減衰を計算することで、発光減衰形状の励起密度依存性をうまく説明できることを示した。また、発光減衰の温度変化に関しても、無輻射過程をモデルに導入することで説明できる事がわかった。局在電子の数が有限であることは光励起状態の起源を考える上で重要である。

さらに、本論文は KTaO_3 においても SrTiO_3 と同様に光励起下で誘電率が大幅に増大する事を明らかにした。また、この光誘起誘電分散が、励起密度に依存して変化する事を見出した。ある臨界密度までは、誘電分散の振動子強度が増大するものの、その密度を超えると振動子強度が飽和し、緩和時間が増大を始めることがわかった。この振動子強度の飽和は、キャリアダイナミクスから示唆された局在電子の飽和と対応しているものと考えられる。一方で、強励起下で緩和時間が早く

なることは、局在準位が飽和して現れた伝導電子による分極間相互作用の遮蔽に起因すると考えられる。これらのことは、光励起キャリアの誘電性への寄与を明らかにした点で重要であり、光による誘電性の制御などを考える上で指針になるものと考えられる。また、少ない数の局在状態が巨大な応答を示すことは、相転移の前駆的な状態が光励起によって実現されている事を示唆している。

論文審査の結果の要旨

本論文はペロブスカイト構造をもつ量子常誘電体の一つである KTaO_3 の光励起状態を、発光・吸収などの光学測定と誘電率測定によって研究したものである。量子常誘電体は、量子揺らぎによって強誘電相転移が阻害された物質群であり、不純物、圧力、電場などの微小な摂動によって強誘電相転移を起こすなど、非常に強誘電体に近い性質を示す。本論文はそれらの点に着目し、光照射による相転移の可能性を、特に誘電率に注目して検証している。また、一連の光学測定を通じて光励起状態の起源が明らかにされている。

量子常誘電体における光励起状態の研究は、近年 SrTiO_3 において行われ、バンド間励起光照射下で誘電率が大幅に上昇することが報告されている。しかしながら、この現象のメカニズムはまだ明らかとなっていない。特に、光励起キャリアのダイナミクスは誘電応答に大きな影響を与えていると考えられる。本論文はこの点に着目し、まずバンド間励起によって生成される光励起状態の起源を、発光・吸収などの基礎光学測定によって調べている。また、 SrTiO_3 が持つ 105K の構造相転移の影響を除外するために、構造相転移を示さない KTaO_3 を試料として用いている。その結果、 KTaO_3 の光励起緩和過程のひとつである発光が、自己束縛励起子起源であることが明らかにされた。これは発光や吸収の温度変化を詳細に調べることによって結論されている。

また、本論文では、この自己束縛励起子が形成される過程を調べるために発光減衰の測定を行っている。その結果、電子と正孔が分離して局在していると考えられる事が示された。さらに、その発光減衰を再現するモデルを構築し、そこから、電子の局在準位の密度が有限であることを見出した。従来の電子正孔の再結合を取り扱うモデルでは、各々の励起状態が独立であるとの仮定が用いられる場合が多いが、本研究で提案されたモデルはその仮定が成り立たない場合でも適用できる汎用性の高いものであり、今後乱れが存在する系での電子・光子ダイナミクスの記述に広く使われる可能性がある。

本論文では、 KTaO_3 における光照射下での巨大誘電率現象も見出されている。その光励起密度依存性にある臨界密度が存在することを明らかにした。また、その密度で光誘起誘電分散の振動子強度が飽和していることから、それが発光減衰から導かれた局在準位の飽和に対応しているものと考えている。高密度で誘電緩和時間が早くなる事は、飽和して現れた伝導電子による遮蔽であると考えた。伝導電子による遮蔽効果はリラクサーの光励起効果や不純物ドーブ系でも確認されており、妥当な結論であるといえる。また、キャリアが巨大な分極を持つことも、近年報告された巨大分極ポーラロンの理論モデルや SHG の実験結果を考えれば合理的であるといえる。

本論文は、量子常誘電体の光励起状態における巨大な分極の起源が、有限の密度を持つ局在電子と考えられる事を明らかにした。また、高密度励起下では局在準位が飽和したために自由に動くことができる電子が現れ、誘電緩和時間を早めることも指摘した。これらの結論は、光励起キャリアの誘電性への寄与を明らかにした点で重要であり、今後、光による誘電性の制御などを考える際の指針になるものと考えられる。また、本論文における発光の起源やダイナミクスの議論は、同様の誘電体の光励起状態を調べる上でも、基本となるものと考えられる。以上のことから、本論文は博士（理学）の学位論文として価値あるものと認める。また、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。