

氏 名	やま だ やす ひろ 山 田 泰 裕
学位(専攻分野)	博 士 (理 学)
学 位 記 番 号	理 博 第 3231 号
学位授与の日付	平 成 20 年 3 月 24 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	不純物誘起強誘電体における光誘起誘電効果

論文調査委員	(主 査) 教 授 田 中 耕 一 郎	教 授 前 野 悦 輝	教 授 高 橋 義 朗
--------	------------------------	-------------	-------------

論 文 内 容 の 要 旨

近年、光励起によって物質の磁性や誘電性などの性質を変化させ、制御する研究が盛んに行われている。中でも量子常誘電体であるSrTiO₃(STO)やKTaO₃にバンドギャップエネルギー以上の光を照射することで静的誘電率が增大する現象が報告され、注目を集めている。この現象の直接の原因は、キロヘルツ付近に緩和周波数を持つDebye型分散の出現にあることが明らかになってきた。Debye型の誘電分散は、誘電分極の緩和現象を意味しているので、光励起によって何らかの分極が誘起されたことが示唆される。また、典型的な実験条件では励起状態密度は高々10¹⁷cm⁻³程度に過ぎないことから、一励起状態あたりに換算するとこの光誘起分極は異常なほど巨大であることが分かる。このような分極の起源として、強誘電クラスターモデルと伝導領域モデルの二つが提案されてきた。強誘電クラスターモデルでは、光励起によって生じた電子(正孔)が強い電子-格子相互作用のために格子を歪め、ダイポールとして振舞うと考えている。この光誘起ダイポールの配向緩和がDebye分散を与える。一方、伝導領域モデルでは、光励起によって部分的に伝導領域が生成すると考え、その界面に生じる界面分極がDebye分散の起源となっている。2つのモデルを選別する決定的な実験結果は存在しないことから、Debye型の誘電分散の起源の特定は重要課題として認識されていた。

本論文は、量子常誘電体の光誘起Debye分散の起源を明らかにすることを目的としている。そのため、STOの不純物誘起強誘電体として知られるSr_{1-x}Ca_xTiO₃(SCT)と酸素同位体置換体である強誘電体SrTi(¹⁶O_{1-x}¹⁸O_x)₃(STO18)を取りあげ、STOと比較しながら研究を進めた。まず、光励起状態を明らかにするために、STO、SCT、STO18において光吸収・発光・発光減衰などの光学測定および光伝導測定をおこない、光励起キャリアの寿命や伝導度の温度変化を決定した。その結果、Caドーブや酸素同位体置換は光励起状態に定性的に変化を与えず、STO・SCT・STO18では光励起によって生じた電子・正孔は低温においてはモバイルな光励起キャリアとして振舞うと結論された。

次に、光誘起誘電効果の誘電性に対する依存性を調べるために、光照射下での誘電特性を詳細に調べた。その結果、SCT・STO18では、STOと同様の光誘起Debye分散に加えて、光励起による転移温度の低下が観測された。SCTにおける光誘起Debye分散の温度依存性に着目することにより、強誘電クラスターモデルでは光誘起誘電効果の温度依存性を再現できないことを明らかにし、伝導領域モデルによるフィッティングは非常によく実験結果を再現することを示した。

さらに、解析で得られた伝導領域の誘電率から、伝導領域の強誘電転移温度が低下していることを明らかにした。このような転移温度の低下は、ダイポール間クーロン相互作用が光励起キャリアによって遮蔽されることによって説明することができ、キャリア密度は発光の減衰時間から見積もったものと定量的によく一致することを示した。これは、伝導領域モデルを支持する結果である。

以上のことから、申請者は光誘起Debye分散の起源は、光励起によって生じた部分的な伝導領域であると結論している。伝導領域が部分的にしかできない理由は現時点では不明であるが、不純物や欠陥などによるなんらかの空間的な不均一性が原因であろうと推測している。

論文審査の結果の要旨

本論文は、量子常誘電体の一種である SrTiO_3 (STO) およびその不純物誘起強誘電体における光誘起誘電効果についての研究である。STO や KTaO_3 では、バンド間光励起によって静的誘電率が增大することが報告されており、これまでの研究からその直接の原因は Debye 分散の出現であることが明らかにされている。このことは、光誘起分極の生成を意味している。また、低い励起状態密度であるにも拘らず誘電率が大きく変化することから、光励起は通常では考えられないほどの巨大な分極を形成するといえる。しかしながら、この現象の起源はこれまでのところ明らかにされていない。

光励起による物性の変化は、光誘起相転移を示す物質などでこれまで盛んに研究がなされてきたが、低周波の誘電特性を変化させた事例は他に報告がなく、光励起状態がどのようなメカニズムを通して誘電性に影響を及ぼすのかを明らかにすることは重要である。また、この現象は量子常誘電体でしかこれまで報告されていないことから、量子常誘電体の特異な誘電特性が原因である可能性があり、多くの研究者の注目を集めてきた。

本論文では、STO とその不純物誘起強誘電体である $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{TiO}_3$ (SCT) や酸素同位体置換強誘電体 $\text{SrTi}({}^{16}\text{O}_{1-x}{}^{18}\text{O}_x)_3$ (STO18) の光照射下での誘電性を測定し、その比較から光誘起 Debye 分散の起源が結晶中に部分的に生成した光誘起伝導領域の界面に生成した界面分極の誘電緩和であることを明らかにしている。

本論文ではまず、STO・SCT・STO18 の光励起状態の性質を種々の光学実験によって研究している。光吸収・発光スペクトルや発光の減衰曲線から、これらの試料の光学的性質は定性的に同じものであることがわかった。その結果から、Ca ドープや酸素同位体置換は STO の光励起状態の性質に本質的な影響を与えないと結論できる。このことから、光励起状態が誘電性に与える影響は、STO・SCT・STO18 で同じ枠組みで議論できることが保証された。

また、光照射下での誘電率測定を行った結果、SCT・STO18 においても光励起によって Debye 型の誘電分散が現れること、強誘電転移温度が光励起によって低下することを見出した。本論文ではまず、Debye 分散の温度依存性に着目することで、これまでに光誘起誘電効果に対して提案されてきた「強誘電クラスターモデル」と「伝導領域モデル」のうち「強誘電クラスターモデル」では、SCT の光誘起 Debye 分散は定性的にも説明できず、もう一方の「伝導領域モデル」は実験結果をよく再現することを示している。この結果は、部分的な伝導領域が光励起によって生じることをあらわしている。その原因はいまのところ不明であるが、量子常誘電体が大きな空間的揺らぎ（不均一性）を持っていることが示唆されることを指摘している。さらに、強誘電転移温度の低下は光励起キャリアがダイポール間のクーロン相互作用を遮蔽するとして定量的に説明できることを示した。

このように長らく議論がなされてきた量子常誘電体の光誘起誘電効果の起源に一定の決着をつけたことは本研究の大きな成果である。また、強誘電体転移温度の光照射下での低下に関して定量的評価を与えた意義は大きい。よって本論文は博士（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。