

酸化物の光誘起誘電効果

山田泰裕

京都大学大学院理学研究科

近年、物質の光制御・光応答が非常に注目され、盛んに研究がなされている。最近、我々は光励起によって量子常誘電体 SrTiO₃(STO)において図 1 に示したような誘電分散が現われることを報告した⁽¹⁾。このように誘電率の実部が周波数の減少とともに単調に増大し、虚部にピークをもつような分散は Debye 型と呼ばれ、以下のような式で表される。

$$\epsilon^*(\omega) = \epsilon_\infty + \frac{\epsilon_0 - \epsilon_\infty}{1 - i\omega\tau} \quad (1)$$

Debye 型の誘電分散は、永久双極子の配向緩和によってもたらされる場合が有名であるが、誘電率の異なる二層が混合した場合 (Maxwell-Wagner effect)⁽²⁾でも現れることが知られている。

本研究では、光誘起 Debye 型誘電分散の起源を明らかにするために、STO に Ca を導入した強誘電体 Sr_{1-x}Ca_xTiO₃(SCT)における光誘起誘電効果、特に光誘起 Debye 型誘電分散に注目して研究を行った。SCT 中にドーピングされた Ca イオンは Sr とのイオン半径が異なるためにダイポールとして振舞うことが知られている。このようなダイポールの光応答を詳細に調べることで、光誘起 Debye 分散の起源を明らかにすることができる。

本研究で使用した試料は Floating Zone 法で作成された単結晶である。酸素雰囲気下でアニールすることで欠

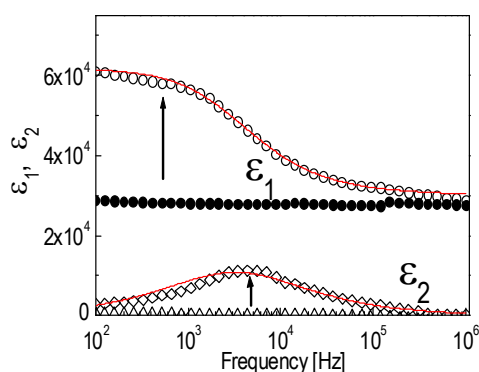


図 1 STO の 5K における光誘起 Debye 分散。光励起前は (実部●、虚部△) 分散が見られないが、光励起 (実部○、虚部◇) によって Debye 分散が現れる。

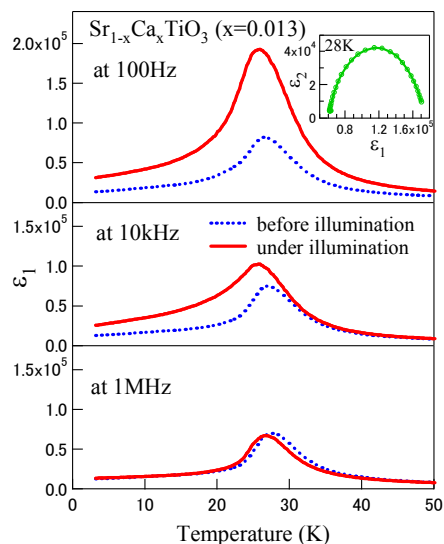


図 2 SCT における光誘起誘電効果。100Hz, 10kHz, 1MHz での光照射前 (点線)・光照射中 (実線) の誘電率の温度依存性。光励起によって、低周波で誘電率の増大が見られるほか、転移温度の低下も観測されている。inset は Cole-Cole プロット。

陥密度を低減させている。100Hz～1MHz の誘電率は交流インピーダンス測定で測定された。励起光源は He-Cd レーザー（波長 325nm）で、バンド間光励起を行った。

図 2 に SCT の 100Hz、10kHz、1MHz での光照射前（—）・光照射中（-）の誘電率の温度依存性を示す。光照射前の誘電率は 27K 付近にピークをもち、強誘電相転移が起きていることを示している。光励起を施すと、Debye 型分散に対応して低周波ほど誘電率が大きく増大している。また光励起によって転移温度が低下していることも分かる。転移温度のシフトは、光励起キャリアによる静電遮蔽効果で説明することができる⁽³⁾。

光誘起 Debye 分散の起源を考えるために、以下のような解析を行った。Debye 型の誘電分散は

$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_0 + f/(1 - i\omega\tau)$ と表される。ここで、 ω は周波数である。 τ は緩和時間、 f は振動子強度と呼ばれる。

Debye 型誘電分散の緩和時間と振動子強度の温度依存性を図 3 に示す。緩和時間・振動子強度ともに転移温度 T_c 付近で anomaly を持つ。このような緩和時間・振動子強度の温度依存性は、Maxwell-Wagner effect でのみ説明することができる。詳細な解析の結果として、光励起によって伝導領域が生成され、もとの絶縁領域との 2 相混合状態が実現していることが示唆される。

講演では、Maxwell-Wagner effect から Debye 型の誘電分散が導かれることを示し、光誘起効果の詳細を議論したい。

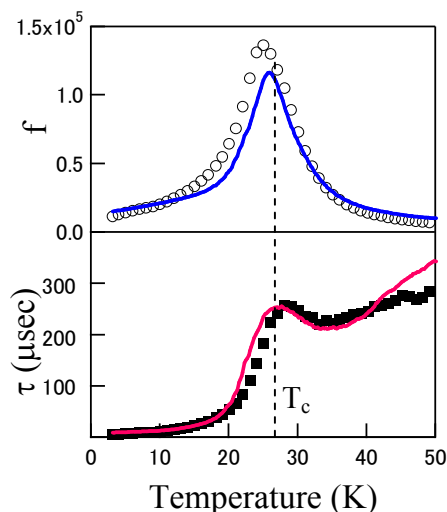


図 3 Sr_{1-x}Ca_xTiO₃(x=0.013)における Debye 型誘電分散の振動子強度 (○) と緩和時間 (■)。転移温度付近で anomaly をもつ。実線は Maxwell-Wagner model による計算値。

References

1. T. Hasegawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. **72**, 41 (2003)
2. I. P. Raevski et al., J. Appl. Phys. **93**, 4130 (2003).
3. Y. Yamada et al., J. Lumi. **112**, 259 (2005)