The Photo-Dielectric Effect in Wide-Gap Aluminates

(ワイドギャップ Al 酸化物における光誘電効果)

永井　隆之

主論文の要約

誘電率はコンデンサや周波数フィルタ等のエレクトロニクス基幹材料の性能を決める重要な物理量であることから、その大きさの変調や外部刺激による制御は誘電体物理学における中心的な研究課題として精力的に研究されている。これまでの研究において、電場や磁場によって誘電率が変化する物質は数多く報告されており、その物性発現機構の理解も進んでいる。しかしながら、光照射によって誘電率が変化する効果（光誘電効果）を有する物質は未だに報告例が少なく、研究分野としても未開拓の領域である。それに対して申請者は、光誘電効果を示す新規物質の創出と光誘電効果の発現機構に関する知見を得ることを目的として、独自の物質設計指針に基づく物質探索と精密な光照射下誘電率測定を行った。

まず申請者は、限りなく移動度の小さい光励起キャリアの移動度が外部電場印加の下で分極変位に寄与する機構を考え、それに基づく物質設計指針を考案した。その物質設計指針に従ってワイドギャップ Al 酸化物 $LaAlO_3$ に着目し、Al サイトに Zn を部分置換した $Zn:LaAlO_3$ 多結晶試料を合成した。合成した試料において、光照射による試料の温度上昇まで考慮した精密な光照射下誘電率測定を行い、光照射によって誘電率に有意な変化が生じることを見出した。さらに、$Zn:LaAlO_3$ における光誘電効果の励起エネルギー依存性を測定し、光誘電効果発現に励起エネルギーの閾値が存在することを明らかにした。これにより、Zn 置換によって導入された欠陥に起因するギャップ内準位へ光励起された電子が光誘電効果の起源となる可能性を示した。

次に申請者は、$Zn:LaAlO_3$ において光誘電効果に本質的な役割を果たす欠陥が酸素欠損であると推定し、還元焼成によって酸素欠損を導入した還元 $LaAlO_3$ 多結晶試料を合成した。そして合成した試料において、$Zn:LaAlO_3$ と比べてはるかに顕著な光誘電効果を観測した。さらに、第一原理計算によって La 欠損と酸素欠損のペアが還元 $LaAlO_3$ 中の最安定欠陥構造であることを明らかにし、価電子帯の上端と酸素欠損に起因するギャップ内準位のエネルギー差が光誘電効果発現の励起エネルギー閾値に対応することを示した。

最後に申請者は、$LaAlO_3$ とは異なる結晶構造をもつワイドギャップ Al 酸化物 $BaAl_2O_4$ に着目して、$Zn:LaAlO_3$ と同様に Al サイトに Zn を部分置換した $Zn:BaAl_2O_4$ を合成し、光照射下での誘電率測定を行った。その結果、$Zn:BaAl_2O_4$ においても光照射によって誘電率が有意に変化することを見出した。さらに、$Zn:LaAlO_3$ における光誘電効果が光照射を停止すると直ちに消失する即時的な効果であるのに対して、$Zn:BaAl_2O_4$ における光誘電効果が光照射を停止後も残存する永続的な効果であることを明らかにした。また申請者は、$Zn:BaAl_2O_4$ 多結晶試料において光照射下での分光エリプソメトリーを実施し、光誘電効果において光照射で変化する分極機構の候補から電子分極の可能性を排除した。

これらの実験結果により申請者は、光誘電効果が光励起キャリアの移動度によって光伝導と区別される新規な内部光電効果であることを提案した。