

X線吸収及び共鳴X線非弾性散乱を用いた量子常誘電体 SrTiO₃の光誘起効果の研究

JST-ERATO, 野澤俊介

SrTiO₃（以下 STO）はペロブスカイト構造を持つ量子常誘電体であり、低温において強誘電相転移の兆候が見られるものの、ある温度以下で誘電率は飽和し、温度に寄らず一定の値を保つことが知られる [1]。これは強誘電秩序化が量子ゆらぎによって抑制されたためだと考えられている。STO はバンドギャップ約 3.2 eV の真性半導体であるが、低温の量子常誘電相においてバンドギャップを越えるエネルギーの紫外光を照射することで、巨大な光伝導性を示し、その光キャリヤの高い易動度は量子ゆらぎと相関があることが示唆された[2]。さらに紫外光照射により誘電率が上昇するという報告もなされている[3]。本研究はこのような STO の光誘起現象を X 線吸収・非弾性散乱測定を用いて微視的電子状態の立場から考察することを目的としている。

我々は STO の Ti-K edge での X 線吸収スペクトルによる光照射依存性の測定を行った。量子常誘電相において紫外線を照射すると、プリエッジ構造の四極子 Eg 遷移成分の強度変化 (Fig. 1 中での A2 ピーク)、低エネルギー側への吸収端のシフト、および EXAFS 構造における僅かなデバイ・ワーラー因子の変化が観測された。これらの変化の起源は紫外線照射によって Ti 原子に励起された Ti-O 方向への一軸性振動だと考えられる[4]。

Fig. 2 は STO における Ti 2p-1s RXES である。これは放射光の偏光が t_{2g} 軌道方向を向いている配置で測定したスペクトルであり、横軸はラマンシフト表示で表している。励起光のエネルギーは Fig. 2 の実線で示した X 線吸収スペクトルに示している。励起光のエネルギーを高くすると (a→v) 高エネルギー側に流れていく 2 つの大きな構造は 2p_{3/2}-1s, 2p_{1/2}-1s の蛍光成分である。また、点線で示した 4 つの成分 (Q1, Q2, D1, D2) の強度は、共鳴効果によつて励起光のエネルギーを変えると劇的に変化し、この各成分の最大強度のエネルギー位置は X 線吸収スペクトルのプリエッジ構造と非常に良い一致を示す。したがってこれらの成分は Ti-1s 電子が四極子、または双極子励起によって t_{2g}、もしくは e_g 軌道に遷移することに伴う発光であるといえる。

Fig. 3 に STO における Ti 2p-1s RXES の紫外線照射効果を示す。横軸はラマンシフト表示で表わされ、このスペクトルは放射光の偏光が e_g 軌道方向を向いている配置で測定した。図中の t_{2g}, e_g は A1, A2 ピークのエネルギー位置で測定した RXES を表わす。Ti を 0 方向に変位させた時のクラスター計算はこの紫外線照射時のスペクトル変化を良く再現する[4]。したがって RXES からも紫外線照射による Ti 原子の一軸性振動励起が再検証されたといえる。

講演ではさらに、3p-1s RXES スペクトルの紫外線照射効果、CT 成分の紫外線照射効果、紫外線波長依存性についても詳細に議論する予定である。

- [1] K. A. Müller et al., Phys. Rev. B **19**, 3593 (1979).
- [2] T. Ishikawa et al., J. Phys. Soc. Jpn. **73**, 1635 (2004).
- [3] M. Takesada et al., J. Phys. Soc. Jpn. **72**, 37 (2003).
- [4] 魚住孝幸等, 「遷移金属酸化物の共鳴 X 線発光スペクトルの理論」, Spring-8 研究会

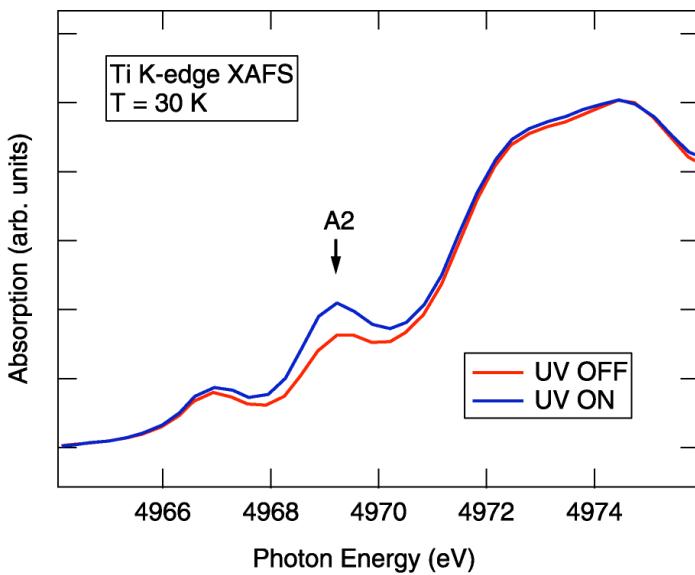


Fig. 1

Ti K-edge 吸収スペクトルのプリエッジにおける紫外線誘起効果。紫外線照射によって A2 ピーク強度が増大する。

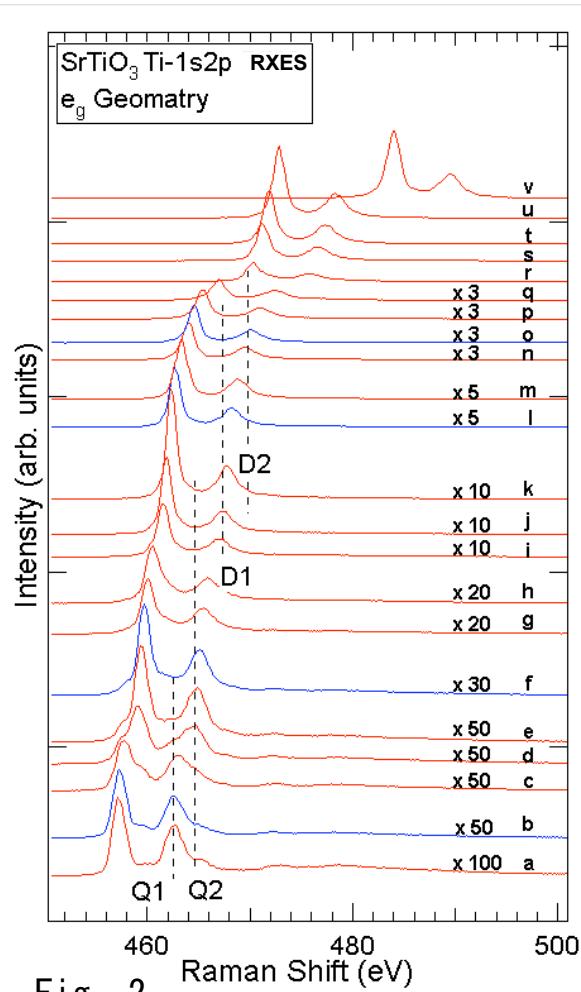


Fig. 2

横軸をラマンシフト表示にした時の Ti 2p-1s RXES。4つのラマン成分 (Q1, Q2, D1, D2) が観測される。

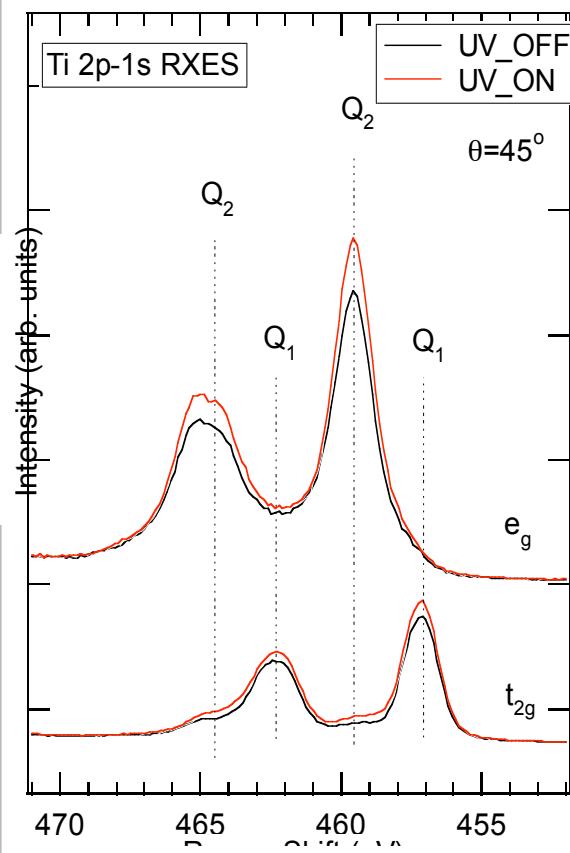


Fig. 3

Ti 2p-1s RXES の紫外線照射効果。 t_{2g}, e_g は A1, A2 ピークのエネルギー位置で測定した RXES を表わす。