

白色ポンプ・プローブ法による BiFeO₃ 薄膜の過渡吸収ダイナミクス

Transient absorption dynamics of BiFeO₃ thin film by white-light pump-probe spectroscopy

京大化研¹, 東工大院² ◯中村 透¹, 山田 泰裕¹, 安井 伸太郎², 舟窪 浩², 金光 義彦¹

ICR Kyoto Univ.¹, Tokyo Inst. of Tech.²

◯T. Nakamura¹, Y. Yamada¹, S. Yasui², H. Funakubo², and Y. Kanemitsu¹

E-mail: nakamura.tooru.25z@st.kyoto-u.ac.jp

BiFeO₃(BFO)は高いキュリー温度と大きな自発分極を有する強誘電体であり、そのユニークな誘電特性のため基礎・応用両面から精力的に研究が行われてきた。さらに最近、周期的に配列した 71° ドメイン壁を有する BFO 薄膜においてバンドギャップエネルギー($E_g = 2.6\text{-}2.8\text{eV}$)を超える高い光起電力($V_{oc} \sim 16\text{V}$)が報告され[1]、大きな注目を集めている。光起電力は自発分極の方向に誘起されていることから、光キャリアは自発分極が作る反電場によって駆動されていることが示唆されている。このような巨大光起電力の物理的起源を解明するためには、BFO の光キャリアの緩和ダイナミクスを理解することが重要である。そこで、本研究ではポンプ・プローブ法によるフェムト秒過渡吸収測定を行った。光源には Yb:KGW レーザーをベースとした再生増幅器を用い、光パラメトリック増幅器によって波長変換した光をポンプ光(2.70-3.26 eV)に、サファイア結晶によって発生した白色光(1.13 eV-3.10 eV)をプローブ光に用いた。また、ナノ秒からマイクロ秒の時間領域における過渡吸収ダイナミクスを測定するため、プローブ光に連続光を用いたポンプ-プローブ測定も行った。試料として、化学気相成長(CVD)法によって SrTiO₃(100)基板上にエピタキシャル成長させた BFO(400nm)薄膜を用いた。

ピコ秒からマイクロ秒の時間領域では、過渡吸収に 4 つの特徴的な緩和過程があることが分かった。1 つは、励起直後に立ちあがりその後 2~4 ps の間に信号強度の変化が少なく、そこから 1 ps ほどで鋭く緩和する矩形型ダイナミクスで、残りの 3 つはそれぞれ、100 ps、60 ns、380 μs の寿命をもつ指数関数型の緩和である。これらは指数関数型の緩和成分はポンプ光の励起強度($1.0\text{-}3.9 \mu\text{J}/\text{cm}^2$)やエネルギー(2.76-3.10 eV)にほとんど依存しない。白色ポンプ・プローブ測定により吸収スペクトルの時間変化を観測したところ、矩形型の時間変化を起こす際に、短波長側から吸収強度の減少が見られた。また吸収スペクトルは、矩形型変化を示す初期の時間領域において、2.3 eV と 1.9 eV 付近に緩やかなピークをもつ。4 ps 以降にも同じエネルギー位置に僅かなピーク構造がみられ、過渡吸収スペクトルには自由キャリア吸収以外の寄与があると考えられる。講演では、BFO 薄膜における光励起状態の緩和過程の全体像と、光起電力効果との関係について議論する。

本研究は、科研費(No. 20104006)および(公)住友電工グループ社会貢献基金の援助による。

[1] S. Y. Yang *et al.*, Nature Nanotechnology 5, 143 -147 (2010).