$LaAlO_3$のフォトルミネセンスに与える熱処理の影響

Effect of Thermal Annealing on PL of $LaAlO_3$

○針間正幸[1]，森本貴明[1,2]，大木義路[1,3] (早大 [1]先進理工・[3]材研，[2]学振 DC2)

°M. Harima[1], T. Morimoto[1,2], Y. Ohki[1,3] ([1]SASE and [3]RIMST of Waseda Univ., [2]JSPS DC2)

E-mail: harima1571@asagi.waseda.jp

Czochralski 法 $LaAlO_3$(100)単結晶に酸素中で熱処理を行い，その後 10K にて SR 光を励起光としたフォトルミネセンス(PL)測定，室温にて In-plane XRD 測定を行った。

図 1 に 4.7eV，6.0eV で励起し，1.70eV で検出した Cr^{3+}よりの PL[(1)]と，5.0eV で励起し 2.87eV で検出した酸素空孔の一種である F^+中心よりの PL[(1)]の熱処理温度依存性を，未処理時のそれぞれの PL 強度で規格化して示す。4.7eV 励起 Cr^{3+}PL は，300 °C と 700 °C の熱処理で強度が約 2 倍になり，500 °C と 900 °C では約 10 倍になる。6.0eV 励起 Cr^{3+}PL は 300 °C と 700 °C で僅かに強度が減少し，500 °C と 900 °C では強度が 2 倍以上になる。5.0eV 励起 F^+PL は 300 °C と 700 °C では 60%，500 °C と 900 °C では 80%以上減少する。図 2 に XRD 測定結果を示すが，500 °C と 700 °C では強度はほぼ変化せず，300 °C と 900 °C で強度が増加する。

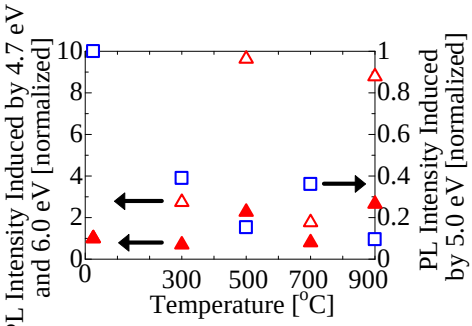

Fig. 1 Changes in intensity of the 1.70-eV PL induced by the irradiation of 4.7-eV (△) and 6.0-eV (▲) photons, and the 2.87-eV PL induced by 5.0-eV (□) photons, as a function of the annealing temperature in O_2.

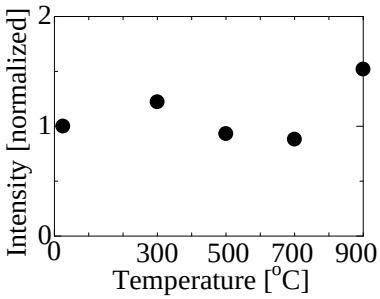

Fig. 2 Changes in intensity of in-plane XRD (●), as a function of the annealing temperature in O_2.

$LaAlO_3$ を酸素か窒素中で熱処理すると 500 °C 付近で長さ 20～300μm 程度の縞模様が消滅し，これと符合して，3.0THz にピークを持つ鋭い吸収が生じる。我々は，これが，460°C 付近で活性化される酸素空孔の拡散に起因すると推測した[(2)]。この 3.0THz 吸収の強度の熱処理温度依存性も[(2)]，おおむね図 1，2 の挙動と似ている。このように，$LaAlO_3$ においては，300～700°C 付近のさまざまな特性の挙動が複雑である。

$LaAlO_3$ の菱面体晶，立方晶間の相転移温度には 420～623°C[(3)(4)]と複数の説があることも，特性の複雑さの現れと考えられる。この 700°C 以下の複雑さに比べて，900°C においては明確に Cr^{3+}による PL 強度増加，酸素空孔による PL 強度減少，XRD 強度の増加が見られる。これは酸素中熱処理により酸素空孔に酸素が入り込み，$LaAlO_3$ の結晶性が向上し，酸素原子が形作る八面体型配位子場に敏感な Cr^{3+}の PL 強度[(5)]が増加したと考えられる。また，未処理時には Cr^{3+}は $LaAlO_3$ の禁制帯幅 5.6eV[(6)]以上の励起により発光するが，熱処理により禁制帯幅以下の 4.7eV での励起が活発になることは重要な事実と考えられる。

文献 (1) E. Hirata *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 49, (2010) 091102.
(2) K. Nomura *et al.*, Jpn. J. Appl. Phys. 50, (2011) 021502.
(3) http://www.shinkosha.com/LaAlO3.html.
(4) M A Carpenter *et al.*, J. Phys. Condens. Matter 22, (2010) 035405.
(5) J. Heber *et al.*, Z. Phys. 246, (1971) 261.
(6) J. Robertson, Rep. Prog. Phys. 69, (2006) 327.

© 2015年 応用物理学会