# 量子誘電体タンタル酸カリウムにおける光キャリアの過渡光電流法

# による研究

# 左近司裕樹、伊東千尋

和歌山大学大学院システム工学研究科システム工学専攻

Transient photocurrent study of photogeneration carriers in quantum dielectric potassium

### tantalite crystal

Y. Sakonji, and C. Itoh

Graduate school of systems Engineering, Wakayama University

We have studied behavior of photogenerated carriers in potassium tantalite ( $KTaO_3$ ) crystal by means of transient photocurrent measurement in the temperature range from 5 K to 300K. We have found that the contributions of electrons and holes to the photocurrent are affected greatly by a temperature range. We also found that the drift mobility of electron and hole are almost vanished at low temperature. However, the drift mobility of holes is enhanced above 30K. These results imply that hole in  $KTaO_3$  is in localized state below 30 K.

#### 1. 序論

タンタル酸カリウム(KTaO<sub>3</sub>)はペロブスカ イト構造をとり、極低温で4000程度の誘電 率を示す量子常誘電体である。淡黄色の結 晶でエネルギーバンドギャップが3.4eVと 大きい。KTaO<sub>3</sub>において低温でバンドギャ ップ以上のエネルギーを持つ紫外光を照射 すると、誘電率が増大することが示されて いる。[1]この現象には光キャリアが関与し ていると考えられるが、KTaO<sub>3</sub>における光 キャリアの振舞は未だ明らかにされていな い。本研究では、KTaO<sub>3</sub>結晶に対して過渡 光伝導測定を用いて、光励起によって生じ たキャリアの時間応答と温度依存性変化に ついて評価し、キャリアの振る舞いを議論 する。

#### 2. 実験方法

過渡光伝導測定は、(100)面を最大面とす る 5x5x0.5 mm<sup>3</sup>の大きさ持つ KTaO<sub>3</sub>結晶を 透明絶縁膜と透明電極で構成する二つのブ ロッキング電極で挟み、過渡光伝導測定を 行った。片側の透明ブロッキング電極を通 して試料をバンド間励起すると、光励起さ れた側の表面近傍にのみ電子-正孔対がシ ート状に生成される。ブロッキング電極間 に電圧をかけておくと、その極性に応じて 電子または正孔のみが対極に向かってドリ フトする。このとき鏡映電荷効果により外 部回路に流れる電流を測定することで、 各々のキャリアの振舞を独立に調べること ができる。本稿では、電子を対極ヘドリフ トさせる場合を電子極性、正孔をドリフト させる場合を正孔極性と呼ぶこととする。

外部回路に設ける負荷抵抗Rが十分小さ い場合には、得られる過渡シグナルは結晶 中のキャリア移動の時間応答を直接反映す る。一方、*R*が大きい場合には、積分回路 としての応答を示し、シグナルのピーク強 度から外部回路に流れる電流の電荷総量を 評価することができる。本研究では、過渡 光電流の時間応答測定には 4.7kΩ、過渡電 流ピーク強度測定には 1MΩ を使用した。励 起光には N<sub>2</sub> パルスレーザ (宇翔(株), KEC-150)を用い、励起の繰返周波数を 20 Hz として実験を行った。励起光の照射によ り生じる光電流は、外部回路の負荷抵抗両 端に生じる過渡的な電位差をオシロスコー プ(Tektronix, TDS-3032B)を用いて、記録 した。励起パルスで生じた光キャリアが不 純物あるいは格子欠陥に捕獲されると、空 間電場が生じ信号が変化してしまう。これ を避けるために、励起レーザパルス照射後 20 ms 後に 10ms 間 1W 赤色 LED の光を試 料に照射し、測定時とは逆極性の電圧をサ ンプルに印加した。この赤色 LED 光の照射 により、バンド間準位に捕獲されたキャリ アは電動状態へ再励起され、印加された電 圧によって電極へ動かすことでき、空間電 場を解消することができる。

## 3. 実験結果

Fig.1に温度 T=80K で337nm レーザパルス 励起により外部回路の負荷抵抗両端に生じ る電位差の時間変化を示す。図に示した結 果は負荷抵抗が4.7kΩとし、電極間に100V、 200Vの電圧を印加して得た。上図は電子極 性、下図は正孔極性である。どちらの極性 でも過渡光電流が流れていることから KTaO<sub>3</sub> では電子正孔共に伝導に寄与してい ることが確認できる。正孔極性および t>3.5 μs での電子極性で得られた過渡信号の指数 関数的減衰は、試料の静電容量と負荷抵抗 で決定される電気的な時定数で説明できる。



Fig.1 Semi-legalistic plot of the transient photocurrent signal of  $KTaO_3$  induced by a 337-nm laser pulse at T=80 K.



Fig.2 Dependence of the photocurrent strength of  $KTaO_3$  on the applied voltage.

この結果から、80 K では、正孔が試料中を 移動する時間は電気的時定数よりも速いこ とが考えられる。電子極性の場合、t<3.5 μs での過渡信号は明らかに t>3.5 μs 以降より も減衰の傾きがなだらかである。

Fig.2 に外部回路の負荷抵抗を1 MΩ とし た場合の過渡光電流ピーク強度の印加電圧 依存性を示す。低温では、電子極性と正孔 極性で大きな違いはないが、100K では、正 孔極性で大きな光電流値が得られることか ら、100K 正孔が主たるキャリアとなること がわかる。

### 4. 考察

Fig.1 に示した光電流の過渡波形からキャ リアのドリフト移動度を評価することがで きる。キャリアが試料内をドリフとしてい るときには一定の電流が生じるが、対局ま で到達する、あるいは再結合やトラップに より途中で電流へ寄与しなくなると、測定 回路の電気的時定数で指数関数的に減少す る。実際の測定では、負荷抵抗を十分小さ くすることができないため、キャリアがド リフとしている最中に外部回路に流れる電 流は一定にならず、時間とともに変化する。 したがって、ドリフト中とドリフト終了後 では光電流の過渡波形の減衰は異なる。 Fig.1の電子極性で見られる時間変化の折れ 曲がりはこのような変化を反映している。 温度を変えて測定した光電流の過渡応答か ら、各温度で時間変化が折れ曲がる時間を 求め、電子、正孔のドリフト移動度を以下 の式を用いて評価した。

$$\mu = \frac{L^2}{t_d V}$$

(*L*:結晶の厚さ,*t*<sub>d</sub>:ドリフト時間,

V:電圧源で発生させる電位差·)

結果を Fig.3 に示す。T~10K ではドリフト 移動度は低いことがわかる。特に正孔は低 く、自己束縛状態を取っている可能性が高い。ところが、T=80Kでは、Fig.1に示した電子極性と正孔極性で光電流の過渡波形に明らかに違いからも明らかな様に、電子と正孔の振る舞いは大きく変化し、電子の



Fig.3 Temperature dependence of the contribution ratio to the photocurrent of electron and hole in  $KTaO_3$ .

ドリフト速度が正孔に比べて遅い。

上述のような温度による光キャリアの振 る舞いの違いを明らかにするために、Fig.2 に示した光電流の印加電圧依存性から、光 電流への各キャリアの寄与を評価する。 Fig.2 の結果を、原点を通る直線で近似し、 その傾きから各キャリアの伝導度を近似的 に求めることができる。Fig.4 に Fig.2 の結 果をグラフから傾きを近似して電流への寄 与率を求め、また Fig.1 から移動度を算出し、 以下の式を用いてそれぞれの温度依存性を 示した。

電子の傾き 電子の傾き+正孔の傾き この結果から、0~30Kの温度範囲では、正 孔は局在している。一方、電子は自由状態 にあるが、局在した正孔に捕獲されて局在 状態を形成すると考えられる。この状態は 輻射再結合し、消滅する。実際に、この温 度領域での測定時に励起光の照射によって、 青色の発光が肉眼で観測できている。30K 以上の温度では、正孔の移動度が高くなる。 この結果は、正孔が局在状態から自由状態 に熱励起されるためと考えられる。一方、 電子は比較的浅い準位による捕獲と熱励起 による解放を繰返しドリフトとする為、光 電流への寄与が小さいと考えられる。90~



Fig4 Model of the carrier dynamics in the temperature ranges defined by the difference in the behavior of photocurrent.



Fig.5 Model of the carrier dynamics in the temperature ranges defined by the difference in the photocurrent.

160K では電子正孔共にトラップに捕獲・再 励起が繰り返されている。160K~ではトラ ップによる捕獲と熱励起による放出がほぼ 拮抗し、トラップが再結合中心として働い ていると考えられる。

キャリアダイナミクスの温度依存モデル 図をFig.5 に示す。領域1では温度0~30K、 IIは 30~90K、IIIは 90~160K、IV は 160 ~を表している。

# 5. 結語

本研究では KTaO<sub>3</sub> における光キャリアダ イナミクスについて研究し、以下の結果を 得た。

- 電子・正孔共に伝導に寄与しており、温度領域により電子と正孔の光電流への寄与は大きく変化することを見いだした。
- T=30 K以下の低温では、正孔は局在状態 にある。電子は局在正孔に捕獲されて、局 在励起子を形成し、再結合発光すると考 えられる。T=30 Kよりも高い温度では、 正孔の局在状態は不安定となり、自由状 態に変化する。

# 参考文献

[1] 篠部光義 和歌山大学大学院システム 工学研究科修士論文 (2005)
[2] 左近司裕樹 和歌山大学システム工学 部卒業論文 (2010)