

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 9 月 7 日現在

機関番号：13901

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2015～2017

課題番号：15K14120

研究課題名(和文)革新的光応答機能性誘電体の創製

研究課題名(英文)Development of Innovative photoresponsive dielectric materials

研究代表者

谷口 博基 (Taniguchi, Hiroki)

名古屋大学・理学研究科・准教授

研究者番号：80422525

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究課題では、光で誘電的性質をコントロールする新しい物性機能の創出に取り組んだ。その結果、AlサイトにZnを1%置換したLa(Al_{0.99}Zn_{0.01})O₃において、光照射によって誘電率が上昇し、光照射を止めることによって即座に誘電率が元の値に戻る即時的光誘電効果を発見した。さらに、Ba(Al_{0.97}Zn_{0.03})₂O₄において、光照射後も誘電率変化が持続する永続的光誘電効果を発見した。本研究成果は、光と物質の相互作用に関する新たな基礎学術を切り拓くとともに、革新的な光-電子デバイス創製の基盤となるものである。

研究成果の概要(英文)：Conducted in the present study is the development of new functionality which can control dielectric properties by photoirradiation. We have discovered the instantaneous photo-dielectric effect in La(Al_{0.99}Zn_{0.01})O₃, the 1% of Al-sites in LaAlO₃ are substituted by Zn ions, where the dielectric permittivity increases under the photoirradiation and immediately recovers to the initial value when the photoirradiation ceases. The persistent photo-dielectric effect has furthermore been found in Ba(Al_{0.97}Zn_{0.03})₂O₄, in which the increase of permittivity remains after switching the photo-irradiation off. The results of the present study open a new realm of light-matter interactions and form the foundation for the development of innovative photo-electric devices.

研究分野：物性物理学

キーワード：誘電体 光応答

1. 研究開始当初の背景

誘電体は、エレクトロニクスや情報・通信、あるいは医療・福祉の分野において広く応用されており、電気の世紀と呼ばれる20世紀の科学技術を根幹から支えてきた。いま21世紀は光の世紀と呼ばれ、光通信やフォトニクスにおける新技術が盛んに開発されている。その中で、誘電体も光技術を支える新たな材料としての革命的な進化を遂げなければならない。

その為に、本研究では「光誘電効果の創出」に取り組む。光誘電効果とは、光照射によって物質の誘電率が変化する現象であり、初報としては1956年にデュポン社製の硫化亜鉛と硫化カドミウム混合粉末において米国の陸軍通信団技術研究所より報告されている[S. Kronenberg and C. A. Accardo Phys. Rev. 101 (1956) 989]。それによると、可視から紫外の連続光照射の下で、100Hz~100kHzの領域において約150%の誘電率増加が観測されている。さらに、光照射に伴って誘電損失が殆ど変化しないことから、光電流による見かけ上の誘電率上昇ではなく、本質的な光誘電率効果と考えられている。この光誘電効果を利用すると、光で静電容量を制御するいわばフォトキャパシタとも呼ぶべき全く新しい基本回路素子の創製が見込まれるが、その起源に関しては全く明らかになっておらず、以後の研究・開発も殆ど報告されていない。

2. 研究の目的

本研究では、次世代のフォトエレクトロニクスを支える全く新しい基本回路素子の創出を目的として、光照射による誘電的性質の制御を可能にする光誘電効果の探索に取り組む。その為に、従来の絶縁体における荷電子帯をデザインする“基底状態の物質設計”とは本質的に異なる、絶縁体における伝導体をデザインする独自の“励起状態の物質設計”に取り組む。それによって、光励起電子が外部電場に対して単なる電気伝導としてではなく、誘電的機能の起源となる電気変位として働くような革新的な物質系を創出する。本研究の達成によって、光で誘電率をコントロールする全く新しい基本回路素子“フォトキャパシタ”の新規開発が見込まれる。それによって、これまでに例の無い革新的な科学技術のフロンティアの形成が期待される。

3. 研究の方法

本研究では、ワイドギャップアルミネートに着目し、化学組成制御や異種元素微量添加による系統的な物質合成を実施する。合成した物質群に対して、種々の波長の光照射下にお

ける精密な誘電率測定を行い、光誘電効果の探索に取り組む。

また、光照射下における誘電率の温度依存性や周波数分散を計測し、光励起電子の状態を明らかにする。さらに第一原理計算によって、合成した物質系におけるバンド構造を明らかにする。これらによって得られた結果より、光誘電効果の発現メカニズムを解明する。

以上によって得られた知見を物質設計にフィードバックすることによって、光機能的誘電体としての物性の最適化に取り組む。

4. 研究成果

独自の光誘電効果測定システムの構築

本研究課題においては光照射下における精密な誘電測定が必須となるが、これを実施する為の確立した計測システムは存在しないため、本研究では独自の光誘電効果計測システムの構築に取り組んだ。一般的に光照射下では光吸収によって物質の温度が上昇する。したがって、光照射下で精密な誘電測定を実施するには、この昇温による外因性の誘電率変化を補正しなければならない。本研究では赤外放射温度計を用いて光照射部の局所温度を常にモニターし、その結果を用いて昇温による外因性の誘電率変化を完全に排除した。それによって光照射による本質的な誘電率変化の高精度検出を可能とした。

La(Al_{0.99}Zn_{0.01})O₃における即時的光誘電効果の発見

LaAlO₃のAlサイトを微量のZnで置換したLa(Al_{0.99}Zn_{0.01})O₃において、光照射による約7%の誘電率の変化(光誘電効果)を発見した。この光誘電効果は、光照射による誘電損失の上昇を伴わず、またMHz以上の高周波数領域でも観測されることから、光伝導に起因した見かけ上の誘電率変化とは全く異なる本質的な光誘電効果であると結論される。さらに、La(Al_{0.99}Zn_{0.01})O₃の焼成条件を最適化することで、光誘電効果をおよそ30%にまで増強することに成功した。また、光スイッチング測定によって、La(Al_{0.99}Zn_{0.01})O₃における光誘電効果が、光照射を止めると即座に消失する即時的光誘電効果であることを明らかにした。

Ba(Al_{0.97}Zn_{0.03})₂O₄における永続的光誘電効果の発見

BaAl₂O₄のAlサイトを微量のZnで置換したBa(Al_{0.97}Zn_{0.03})₂O₄においても、光照射による誘電率の変化を見出した。また光スイッチング測定によって、Ba(Al_{0.97}Zn_{0.03})₂O₄における光誘電効果がLa(Al_{0.99}Zn_{0.01})O₃で見出した現象とは対照的に、光照射を止めた後でも消失することなく残存する永続的光誘電効果であることを明らかにした。

5. 主な発表論文等
(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

1. Photo-induced persistent enhancement of dielectric permittivity in Zn:BaAl₂O₄
T. Nagai, Y. Yamada, K. Tanabe, I. Terasaki, and H. Taniguchi
Appl. Phys. Lett. **111** (2017) 232902.
2. Optical Control of Dielectric Permittivity in LaAl_{0.99}Zn_{0.01}O_{3-δ}
T. Nagai, H. Takahashi, R. Okazaki, K. Tanabe, I. Terasaki, and H. Taniguchi
Appl. Phys. Lett. **110** (2017) 172901.
3. 光誘電効果～フォトチューナブル誘電体の創製にむけた新機能性
永井隆之、谷口博基
セラミックス **53** (2018) 252-255.

[学会発表] (計 22 件)

招待講演 (国際)

1. Development of Functional Materials with Ubiquitous Oxides
H. Taniguchi
JSPM International Conference on Powder and Powder Metallurgy, Kyoto, 6-9 November 2017
2. Development of Functional Dielectric Materials in Silicates and Aluminates
H. Taniguchi
Frontiers in Materials Science 2017, Greifswald, Germany, 4-6 September 2017

招待講演 (国内)

1. ユビキタス酸化物による新規機能性誘電体の設計と開発
谷口博基
九州工業大学講演会、九州工業大学、2018年2月28日
2. 複合応答機能性誘電体の設計と開発
谷口博基
九州大学講演会、九州大学、2017年7月25日
3. ユビキタス酸化物による新しい機能性誘電体材料の開発
谷口博基
第26回フロンティア材料研究所講演会、東京工業大学フロンティア材料研究所、2017年1月10日

4. 高クラーク数元素による機能性誘電体の新規開発
谷口博基
中部・関西誘電体セミナー、岐阜大学、2016年12月17日

5. ユビキタス酸化物における新しい機能性誘電体の設計と開発
谷口博基
村田製作所講演会、村田製作所、2016年12月8日

6. 軽元素酸化物における機能性誘電体開発
谷口博基
光・電子機能材料研究会「最近の光・電子機能材料の進展④」、九州工業大学、2016年12月2-3日

7. 誘電体の機能性を追求する
谷口博基
大阪大学基礎工学部 固体物理セミナー、大阪大学、2016年10月20日

8. 共応答誘電体：光特性・機械特性・誘電特性をまたぐ新機能の創出に向けて
谷口博基
日本物理学会 2016年秋季大会、金沢大学、2016年9月13-16日

9. 誘電特性・光特性・機械特性をまたぐ共応答誘電体の開発
谷口博基
公益社団法人日本セラミックス協会 第29回秋季シンポジウム、広島大学、2016年9月7-9日

10. 誘電体における既存の機能性の向上、あるいは新しい機能性の創出に対する最近の取り組み
谷口博基
豊田理化学研究所特定課題研究「マルチプローブ融合利用による新奇強誘電体材料の物性解明」第五回研究会 東北大学、2016年5月11日

一般講演 (国際)

1. Optical Control of Dielectric Permittivity in LaAl_{0.99}Zn_{0.01}O_{3-δ} and Reduced LaAlO_{3-δ}
T. Nagai, K. Tanabe, I. Terasaki, and H. Taniguchi
STAC10, Yokohama, 1-3 August 2017
2. Photo-dielectric effect in Zn:LaAlO₃
T. Nagai, K. Tanabe, I. Terasaki, and H. Taniguchi
13th Russia/CIS/Baltic/Japan Symposium on Ferroelectricity and 8th International Workshop on Relaxor Ferroelectrics (Joint RCBJSF-IWRF), Shimane, 19-23 June 2016

一般講演（国内）

1. Zn:BaAl₂O_{4-δ}における光誘電効果
永井隆之、田辺賢士、寺崎一郎、谷口博基
日本物理学会 2017 年秋季大会
岩手大学、2017 年 9 月 21-24 日
2. ワイドギャップ Al 酸化物を用いた光応答機能性誘電体の創出
永井隆之、田辺賢士、寺崎一郎、山田保誠、谷口博基
日本セラミックス協会 2018 年年会
東北大学、2018 年 3 月 15-17 日
3. 光応答性を有する革新的誘電材料の創出
永井隆之、桑原彰秀、熊谷悠、田辺賢士、寺崎一郎、谷口博基
応用物理学会 新領域 強的秩序とその操作に関わる研究グループ 第 5 回研究会
福岡、2017 年 9 月 8-9 日
4. 還元 LaAlO₃ における光誘電効果
永井隆之、田辺賢士、寺崎一郎、桑原彰秀、谷口博基
日本物理学会 2016 年秋季大会
金沢大学、2016 年 9 月 13-16 日
5. 還元 LaAlO₃ における光誘電効果
永井隆之、田辺賢士、寺崎一郎、谷口博基、桑原彰秀、山田保誠
日本セラミックス協会 2017 年年会
日本大学、2017 年 3 月 17-19 日
6. LaAl_{0.99}Zn_{0.01}O_{3-δ} における光誘電効果
永井隆之、田辺賢士、寺崎一郎、谷口博基
第 52 回 東海若手セラミスト懇話会 2016 年 夏期セミナー
岐阜、2016 年 6 月 23-24 日
7. LaAl_{0.99}Zn_{0.01}O₃ における光誘電率効果
永井隆之、高橋英史、田辺賢士、岡崎竜二、寺崎一郎、谷口博基
日本物理学会 2015 年秋季大会、関西大学、2015 年 9 月 16-19 日
8. LaAl_{0.99}Zn_{0.01}O_{3-δ} における光誘電効果
永井隆之、高橋英史、田辺賢士、岡崎竜二、寺崎一郎、谷口博基
公益社団法人日本セラミックス協会 2016 年 年会、早稲田大学、2016 年 3 月 14 日-16 日

〔図書〕（計 0 件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計 1 件）

名称：光応答性誘電体及び光応答性誘電体を含む容量変化検出素子

発明者：谷口博基

権利者：谷口博基、国立大学法人東京工業大学、国立大学法人名古屋大学

種類：

番号：

出願年月日：2015/12/17

国内外の別：国内

○取得状況（計 0 件）

名称：

発明者：

権利者：

種類：

番号：

取得年月日：

国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://vlab-nu.jp/member/134.html>

6. 研究組織

(1)研究代表者 谷口博基(TANIGUCHI Hiroki)
名古屋大学・大学院理学研究科・准教授
研究者番号：80422525

(2)研究分担者 ()

研究者番号：

(3)連携研究者 ()

研究者番号：

(4)研究協力者 ()