

# ミュオンで探るペロフスカイト型酸化物中の不純物水素の電子状態 Electronic State of Hydrogen Impurities in Perovskite Oxides Investigated by Muon Spin Spectroscopy

伊藤 孝

日本原子力研究開発機構 先端基礎研究センター / J-PARC センター

単純ペロフスカイト構造をもつ一連の酸化物は電子材料として我々の生活に広く役立てられている。これらの多くは、本来、優れた誘電体であるが、その絶縁性能は微量の欠陥や不純物の存在により著しく劣化し得る。ゆえに、ペロフスカイト酸化物における特定の欠陥・不純物の電子状態を明かにすることは、そのアプリケーションにおいて大変重要である。

本研究では、もっともありふれた不純物である水素に着目し、代表的なペロフスカイト型酸化物誘電体 BaTiO<sub>3</sub> および SrTiO<sub>3</sub> における不純物水素の電子状態の解明を試みた。水素は結晶成長や還元アニール処理に際し、意図せずに結晶に混入する可能性があるため、その電子状態の解明は非常に重要な課題である。ところが、希薄な不純物水素の電子状態を実験的に明らかにすることは、測定対象が微量であるがゆえに大変難しい。そこで我々は、水素原子核と同じ+1 価の正電荷を持つ正ミュオンを純良単結晶に打ち込み、格子間水素をシミュレートした上で、その電子状態をミュオンの崩壊を利用して高感度に測定する手法 ( $\mu$ SR 法) を用いることにした。 $\mu$ SR 法の測定サイクルにおいて、一度に試料内に留まるミュオンの数は高々  $10^5$  個程度である。ゆえに、本手法を用いることにより希薄極限の格子間水素に対応する情報が容易に得られる。

$\mu$ SR 実験は J-PARC ミュオン実験施設およびポールシェラー研究所において行われた。BaTiO<sub>3</sub> および SrTiO<sub>3</sub> 純良単結晶に対する測定の結果、極低温でミュオニウム (正ミュオンと電子の束縛状態) の形成を示す信号が両物質において観測された。そのイオン化の様子から、伝導帯下端から数十 meV のところにミュオニウムが浅い不純物準位を形成していることが明らかになった [T. U. Ito *et al.*, Appl. Phys. Lett. **103**, 042905 (2013)]。格子間水素もこれらの物質中においてミュオニウムと同様に浅い不純物準位を形成し、室温付近では電子を放出して絶縁劣化を引き起こすと考えられる。

本研究は、原子力機構の髭本亘氏、松田達磨氏 (現首都大)、KEK 物構研の幸田章宏氏、西山樟生氏、下村浩一郎氏との共同研究である。