— [11]

氏 藤 新 名 近 いち どう

学位の種類 理 学 博 士

学位記番号 博 第 359 号 理

昭和50年5月23日 学位授与の日付

学位規則第5条第1項該当 学位授与の要件

理学研究科物理学第一専攻 研 究 科・専 攻

タリウム・ハライドにおける第一励起子吸収帯の応力効果の研 学位論文題目

究

(主 查) 数 授 中井祥夫 教授 富田和久 教授 端 恒夫 論文調查委員

論文内容の要 旨

タリウム・ハライドの第一励起子吸収帯は低温において微細な二重構造を伴った非常に鋭い吸収ピーク を持っている。本論文ではこの吸収帯の原因となる光学遷移に関して,反射率の応力変調スペクトルから ブリルアン域における特異点の位置を判定し、励起子状態の対称性を明らかにしている。

結晶に応力を加えると,これに伴う歪によって電子状態が変化する。この変化の様子はブリルアン域に おける特異点の位置やバンド状態の対称性によって異なったものとなる。したがって光学スペクトルの応 力効果を測定し、これを解析すれば光学遷移に関連した特異点や電子状態の対称性を推定することができ る。これらの考えに基づいて最近 Mohler らは TICI の第一吸収帯について静的な応力による反射率の変 化を測定し微細構造の原因について興味ある解釈を提唱した。

タリウム・ハライドは柔らかい結晶で、試料の処理や測定の際に残留歪が入りやすく、また、第一励起 子吸収帯の形状は残留歪による影響を受けやすいことが知られている。このため、静的な応力による反射 率変化の測定においては厳密な意味での定量性の期待にはある程度の限界が存在する。

以上の理由により申請者は変化量を詳細に調べる目的で交流応力を用いた変調スペクトルの測定を試み ている。変調スペクトルに対する定量的な解析は誘電率の虚数部 (ε_2) の変化量 $(\Delta \varepsilon_2)$ を三個の定数 W_1 , W₃, W₅ で記述することによって行なうことができる。すなわち,電子状態に関する情報はこの三個の定 数に含まれると考えてよい。

測定には TlBr 及び TlCl の板状の単結晶を使い,その曲げ振動の共振によって試料面上に発生する交 流応力を利用している。また,スペクトルの詳しい解析を期して,上記の応力変調スペクトルと共に,波 長変調スペクトルをも同時に測定した。これらのスペクトルから,Kramers-Kronig 変換によって 🕰 を 求め、 W_{i} (j=1, 3, 5) の値を決定した。

結果は次のとおりである。TlBr, TlCl 共に、〈001〉応力に対して得られた Δε₂ は強い偏光特性を示す。 これより求めた W_1 のスペクトルは ϵ_2 の微分スペクトルとほとんど重なっており, また, W_3 のスペク

トルは ϵ_2 の微分スペクトルに比べてやや高エネルギー側にずれている。 $\langle 111 \rangle$ 応力に対しては $\Delta\epsilon_2$ はほとんど偏光特性を示さず,これより $W_5=0$ であることが示される。変調スペクトルの測定は,結晶の反射面 $\{001\}$, $\{110\}$ と応力の方向 $\langle 001 \rangle$, $\langle 111 \rangle$, $\langle 110 \rangle$ に関する五種類の組み合せに対して行なわれたが,えられたスペクトルはすべて上記の三個の定数 W_1 , W_3 , W_5 によって矛盾なく統一的に説明できた。

以上の結果から,第一励起子帯はブリルアン域のX点における励起子への光学遷移に基づくことが結論されている。また,W。のふるまいに関する詳細な解析から,励起子帯の微細な二重構造(液体ヘリウム温度において観測されている)はX点における励起子の単一 valley 内及び異なる valley 間における相互作用に基づいていることが確認された。

論文審査の結果の要旨

申請論文は、TlBr,及びTlClの第一励起子吸収帯について一軸性応力のもとでの反射率の変化を変調 分光法によって詳しく調べ、励起子の電子状態の解明を試みたものである。

タリウム・ハライドの励起子吸収帯は、アルカリ・ハライドのそれと比較していくつかの特徴的な性質を有している。特に、第一吸収帯についてはそれが低温において微細な二重構造を伴った非常に鋭い吸収ピークを持ち、また、ピークエネルギーは温度や静水圧の変化に際してアルカリハライドとは逆方向に変位することなどが知られている。これらのことから、タリウム・ハライドは興味ある物質として従来から注目され、これまでにも多くの研究がなされている。しかし、いわゆる変調分光法を用いて励起子スペクトルの応力に対する応答を詳細に調べるという研究はまだ試みられたことがない。

変調分光法は半導体の分野で開発され、実用化されてきた分光測定法の一つであり、申請者はこの方法 をタリウム・ハライドに対して応用することにより、反射スペクトルの応力による微少変化を液体窒素温 度において詳しく測定し、その結果を綿密に解析している。

タリウム・ハライドは柔らかい結晶で、塑性変形を受けやすく、特に第一励起子吸収帯はこのような変形によって著しくゆがめられることが知られている。このため、試料の処理や加圧には種々の困難を伴い、特に低温での変調法による応力効果の測定では、再現性の点からみて通常の加圧法は適用が困難である。このため申請者は低温においても有効であり且つ効率のよい独自の加圧方法を開発し、また、試料の処理や測定の際に生じる恐れのあるスペクトルのゆがみを、波長変調法の併用によって監視しながら測定するなど、独特の実験方法を用いて信頼度の高い測度結果を得ている。

測定結果は Kramers-Kronig の公式によって誘電率の虚数部に関するスペクトルに変換され、電子状態の性質を反映する三個の定数 W_1 , W_3 , W_5 によって定量的に解析されている。その結果、申請者は結晶の反射面 $\{001\}$, $\{110\}$ と応力の方向 $\{001\}$, $\{111\}$, $\{110\}$ の組み合せ方の違いで区別される五種類の試料の各々に対する応力変調スペクトルが、すべて三個の定数 W_1 (j=1, 3, 5) によって矛盾なく統一的に説明されることを示した。特に重要な結論として、第一励起子帯がブリルアン域におけるX点での光学遷移に基づいていることを明らかにしている。更に励起子帯のもつ微細な二重の構造がX点における励起子の相互作用に基づいていることを示し、これと共に二重構造の各々の成分に対して、エネルギー準位の同定を行なった。

本研究においては試料の処理や加圧に伴う種々の困難が一歩一歩解決され、変調法を用いた応力効果の 測定が液体窒素温度において実現されている。また、波長変調法の併用によって信頼度の高い実験結果が 得られ、その解析においても波長変調スペクトルが巧みに利用された結果、重要な結論が導き出されてい る。この意味で、本研究は今後におけるこの種の研究に対して新たな指針を与えるものであり、また参考 論文で得られた結果をもあわせ考えるとき、申請者が広い知識と独創的な研究能力を持つことを示すもの である。

以上述べたごとく、本論文は固体内電子の基本的なふるまいに関連して、独自の研究方法によりタリウム・ハライドにおける第一励起子帯に対応する電子状態を明らかにしたものであり、物性物理学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は理学博士の学位論文として価値あるものと認める。