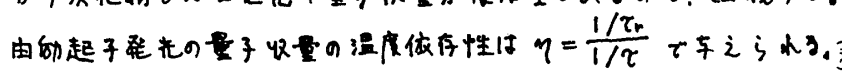
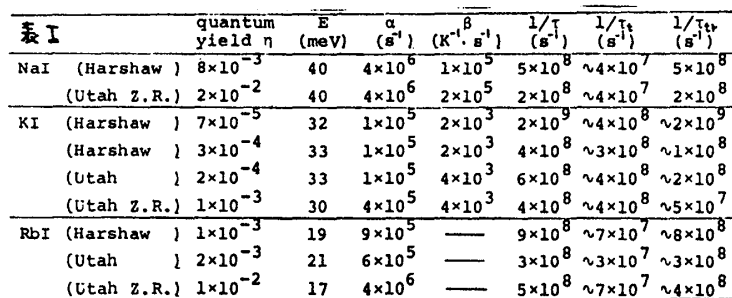
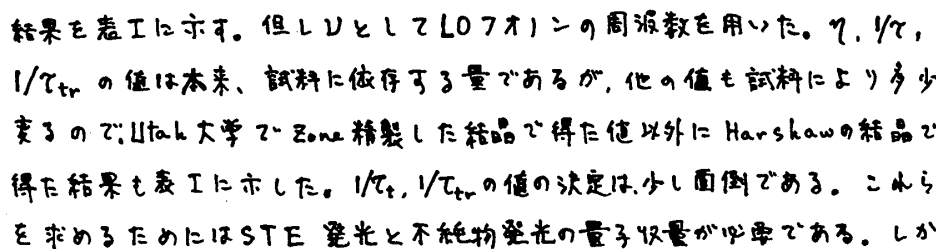
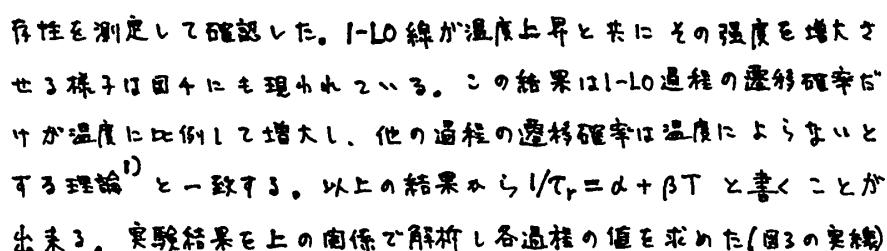


大阪市立大学 工学部 西村 仁

一方STE発光には、 σ , π , E_x 発光がある。アルカリハライドにおける1s自由励起子の動的過程は上記発光を伴う消滅過程の和で決定され、自由励起子の寿命の逆数は $1/\tau = 1/\tau_r + 1/\tau_t + 1/\tau_{th} + 1/\tau_{tr} + 1/\tau_g$ で表わされる。 $1/\tau_r$ は輻射消滅の確率、 $1/\tau_t$, $1/\tau_{th}$ はポテンシャル障壁をトンネル及び熱活性化過程で通り、自己束縛化する確率； $1/\tau_{th} = \nu \exp(-E/k_B T)$, E はポテンシャル障壁、 $1/\tau_{tr}$ は励起子拡散により不純物へエネルギーを伝達して消滅する確率、 $1/\tau_g$ は非輻射消滅過程の確率；但しこの過程はアルカリハライドでは全発光の量子収量がほぼ1であるので、無視する。1s自



実験結果(図3)は低温で η が温度に比例して増大し、40 K以上では指数函数的に減少する。40 Kまでの η の増大は自由励起子発光の0-L0, 1-L0, 2-L0, 3-L0…線の強度の中、1-L0線強度が温度に比例して増大する結果である。このことは各発光成分の強度^の温度依



生成により近策 図4

外、及び可相域に生じるすべての発光帯を、そのいすれかに assign することは容易ではない。特に不純物として同族イオン(例えば K^+ in RbI , Na^+ in KI) が含まれていると

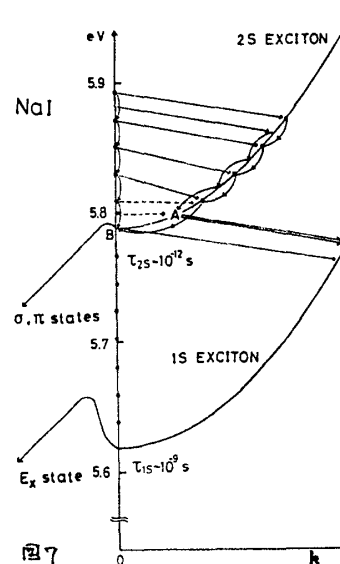
きは、これらイオンに perturb された STE 発光 (σ, π, E_x 発光によく似ている) が生じ、固有の σ, π, E_x 発光と区別が付きにくい。そのため STE 発光と、不純物発光の量子収量を決定する上で大きな障害になる。従って $1/\tau_t, 1/\tau_{tr}$ の値にはかなりの誤差が含まれていると思われる。一方 1S 自由励起子の寿命 τ の値は比較的正確で、 η の大きい結晶では約 10^{-9} s である。この値は励起子が格子振動と熱平衡になる上で十分に長いと思われる。両者が熱平衡状態にあることは図4の 0-LO, 2-LO 線の形が 15K 以上で Maxwellian であることから明らかであり両方の結果は一致する (各温度での Maxwell 分布は図4中に点線で示している)。一方 2S 自由励起子発光の量子収量の温度依存性から上と同様の解析をおこなった結果を表IIに示す。KI では $\tau \sim 10^{-12}$ s であり、

	η	E (meV)	$1/\tau_r$ (s ⁻¹)	$1/\tau$ (s ⁻¹)	$1/\tau_t$ (s ⁻¹)	$1/\tau_{sc}$ (s ⁻¹)
NaI (Utah Z.R.)	$\sim 10^{-5}$	~ 4	—	$10^{11} \sim 10^{12}$	—	—
KI (Harshaw)	3×10^{-5}	3	4×10^6	4×10^{11}	2×10^{11}	2×10^{11}
RbI (Utah Z.R.)	$\sim 10^{-5}$	~ 3	—	$10^{11} \sim 10^{12}$	—	—

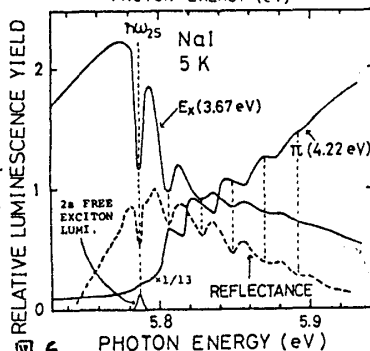
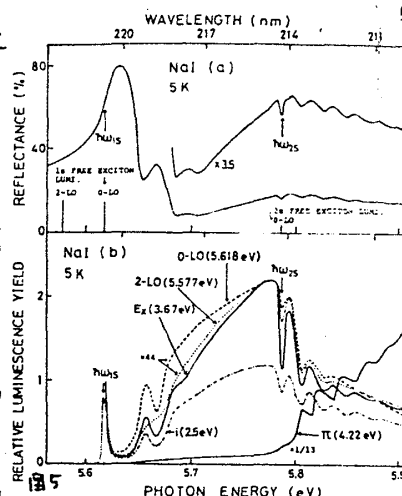
NaI, RbI でも $1/\tau_r \sim 10^6$ s⁻¹ と仮定すれば、 τ は $10^{-11} \sim 10^{-12}$ s になる。2S 励起子の短い寿命の原因は

自己束縛化に際してポテンシャル障壁が非常に小さいこと、及び 2S $\rightarrow$ 1S 励起子散乱による。励起子の寿命が非常に短い場合、励起子の緩和過程は励起子が格子系と熱平衡になる前に完了する。このような励起子による効果 (ホット励起子効果) はアルカリハライドにおいては 2S 励起子において観測出来る。図5は NaI における 1S 自由励起子発光 (0-LO, 2-LO 線), π 発光, E_x 発光, 不純物発光の励起スペクトルである。2S 励起子吸収領域で LO フォノン間隔 (21 meV) の振動構造

が現われる (図6は拡大図)。1S 自由励起子発光, E_x 発光, 不純物発光に対する振動構造はすべて同じ (同位相) である。一方 σ 発光と π 発光に対しても同じ振動構造をもつ (但し NaI では σ 発光は観測されていない)。そして両グループ間では山と谷が大体連なっている。この構造を図7を使って説明する。2S 励起子バンドの底 $\hbar\omega_{2S}(k=0)$ から LO フォノンエネルギーの整数倍のエネルギーをもつ光 $\{\hbar\omega = \hbar\omega_{2S}(k=0) + n\hbar\omega_{LO}\}$ で



2S 励起子が創られると、その励起子は LO フォンをいくつか放出 (カスケード過程) してすみやかに $k=0$ 附近に緩和する。そこで熱平衡になる前に一部は自己束縛化して π または σ 発光になり、残りは 1S 励起子バンドに散乱されて 1S 自由励起子発光, E_x 発光, 不純物発光になる。次に A 点 (A 点のエネルギーは $\frac{1}{2}\hbar\omega_{LO}$ に対応する) から LO フォンエネルギーの整数倍のエネルギーをもつ光 $\{\hbar\omega = \hbar\omega_{2S}(k=0) + (n + \frac{1}{2})\hbar\omega_{LO}\}$ で 2S 励起子が創られると、カスケード過程で速かに A 点附近に緩和する。2S 励起子の自己束縛化は $k=0$ 附近で「起るの?」



A 点附近に緩和した励起子が自己束縛化するためには音響フォノンとの散乱を繰り返して $k=0$ 附近まで緩和しなければならぬ。そのため自己束縛化して π 発光を出す割合は、この条件では、前の条件にくらべて少し小さくなり、 σ 励起子の寿命も少し長くなる。そして π 発光が減少する分だけ、1S 励起子状態への散乱、そして 1S 自由励起子発光, E_x 発光, 不純物発光を出す割合が増加する。即ちこの条件では、1S 励

起る光、 E_x 光、不純物光に対する励起スペクトルには山が、 π 光の励起スペクトルには谷が現れる。一方前の条件では、これは逆に π 光に対して山が、 π 光自由励起子光等に対しては谷が現れる。2s自由励起子光が図の $k\omega_{2s}(k=0)$ の位置に現れる。このことは上記説明とconsistentである。上記モデルで、LOフォノン1個と $k=0$ 励起子1個を創る過程($n=1$ 過程)は禁制であるが、これに対応する π 光に対するオスラム目の山、及び1s自由励起子光等に対するオスラム目の谷が観測されている。これは励起子・音響フォノン散乱により $k=\left(\frac{2m\omega_{2s}}{\hbar}\right)^{1/2}$ の励起子と音響フォノン各1個創られる過程の確率が大いことを示すと思われる。2s励起子に対する上記振動構造は、2s励起子がもし格子系と熱平衡になつていけば、励起エネルギーの記憶は失われて、現れることはない。それは寿命の長い1s励起子に対してこの様な構造が現れないことから明らかである。

次に2s励起子吸収領域に現れる反射スペクトルについて述べる。図5,6に示す様に反射スペクトルは2s励起子領域でLOフォノンエネルギー間隔の振動構造をもつ。RbI, KIでは図8,9に示す様にこの振動構造は一層顕著である。その特徴は①反射の谷が鋭く、谷と谷の間隔がほぼ等エネルギー間隔($\hbar\omega_{LO}$)であるが山と山の間隔は等エネルギー間隔より少しおちる。特にオスラム目の山とオスラム目の山との間隔は $\hbar\omega_{LO}$ よりかなり小さい。②2s自由励起子光がオスラム目の谷に現れる。③反射スペクトルの谷と1s自由励起子光、 E_x 光、不純物光の励起スペクトルの谷はNaI, KI, RbI共非常によく一致するが、山と山の一致はよくない。又谷の中(鋭い)は反射スペクトルの方がはるかに鋭い。更に π 光の励起スペクトルの形状との不一致は一層大きい。Baldini²⁾等はKIで同様の反射スペクトルを観測し、そのオスラム目の山を2s励起子バンドの底への直接遷移、続くオスラム、オスラム...の山を1-LO, 2-LO...フォノンサイドバンドと説明した。しかしこの説明では禁制であるべき1-LO線が観測されておらず、2s自由励起子光がオスラム目の山ではなくオスラム目の谷に現れること、更に図9の反射形状等をこのモデルで説明することは困難である。一方反射スペクトルの振動構造と、励起スペクトルの振動構造の比較的良好な対応関係から、反射スペクトルにホット励起子効果が反映している可能性もなくはないが、主には次に述べる励起子・LOフォノン複合体によるものと考えた方がよい様に思う。RbI, KIの1s励起子吸収領域の反射スペクトルは図8の如く幅広いL-T分裂の間に、ほぼ全反射域があり、ほとんど構造がない。しかし両物質の2s励起子領域ではL-T分裂向の全反射域に鋭い、いくつかの $\hbar\omega_{LO}$ 間隔の谷が現れる。もしこの全反射域に不連続な許容状態が出来る(図10)とすれば、そのエネルギーのところで反射率は小さくなる。この許容状態として励起子・LOフォノン複合体を考へることが出来る。即ち $\hbar\omega = \hbar\omega_{2s}(k=0) + n\hbar\omega_{LO}$ のところに図8

反射の谷が現れ、励起スペクトルの構造と対応はつくが、原因は異なる。

- 1) B. Segall and G.D. Mahan: Phys. Rev. 171(1968)935.
- 2) G. Baldini, A. Bosacchi and B. Bosacchi: Phys. Rev. Letters 15(1969)846.

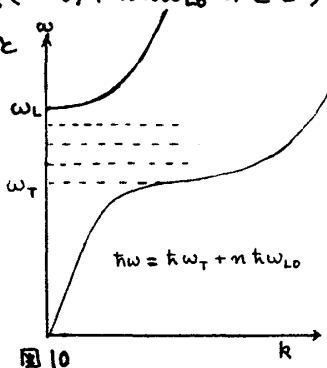


図10

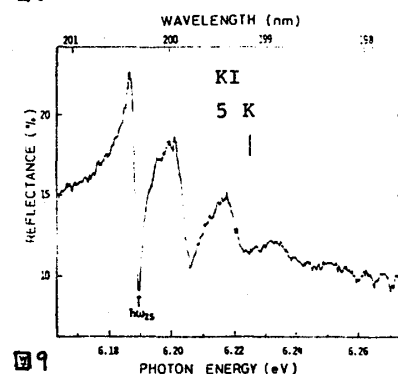
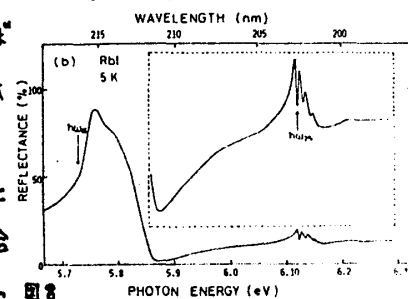


図9