

11. KTaO_3 における、光ルミネセンスの時間分解分光

大久保 敦

KTaO_3 では、液体窒素温度でバンドギャップ光(3.5 eV)励起により、2.6 eV付近にピークを持つブロードなルミネセンスが観測されており、これは、ドナーアクセプタ対(DAP)の再結合によるものであると考えられている。一般にDAPによる発光については、 t -SHIFT(発光スペクトルのピーク位置の時間変化)の存在が指摘されているが、このシフト量は母体結晶の諸物性に依存する。本研究は、 KTaO_3 のルミネセンスについて時間分解分光をおこない、 t -SHIFTについて KTaO_3 の物性とあわせて考察する。

KTaO_3 の発光については、Thomasらにより示されたDAP発光の式に、DAPと格子との相互作用の効果を取り入れた以下の式を用いて考えた。

$$I \propto \langle Qt \rangle \cdot W_{\max} \cdot \int R^4 \exp \left[-R \cdot W_{\max} \cdot t \cdot \exp(-R) - \frac{(hu + Shu - \frac{e^2}{\epsilon R R_d})^2}{2\sigma^2} \right] dR$$

$$\langle Qt \rangle = \exp \left[4\pi n \cdot R_d^3 \int \{ \exp[-W_{\max} \cdot t \cdot \exp(-R)] - 1 \} R^2 dR \right]$$

$$\sigma^2 = 2 \cdot kT \cdot Shu.$$

図1は、これを用いて t -SHIFTの様子を誘電率の関数としてコンピューターシミュレーションを行ったものである。この結果から、 t -SHIFTの変化量が、DAPの再結合確率 $W_{\max}$ と誘電率 ϵ に依存することが明らかになった。

実験は、励起光に N_2 パルスレーザーを用い、発光の様子は、コンピューターに取り込んだのち積算した。測定結果は簡単な指数関数では表されず、DAPによる発光であることを示している。図2にこれをスペクトルの時間変化として表す。ピークの位置は500 μs で0.02 eVほどシフトしており、これから、DAP再結合に寄与する誘電率は $\epsilon = 14$ であることが、計算によって得られた。この値は KTaO_3 のこの温度における静的誘電率800に比べたいへん小さく、むしろ光学的誘電率5.3に近い。このことから、DAP発光に寄与する誘電率は、一般に言われている静的なものよりも小さくなる可能性のあることがわかり、これは発光現象にイオンの変位が追従しきれないためであろう。

また、図2からはスペクトルの高エネルギー部(2.9 eV)に速い減衰を示す成分の存在がわかる。この減衰は指数関数でFittingでき、時定数は3 μs 程度である。これは、スペクトルがブロードであることから、局在したエキシトンによるものであると考えられる。

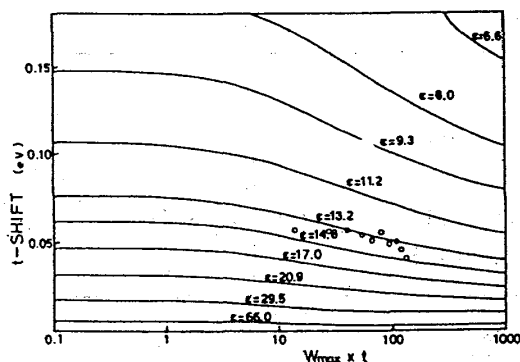


図1

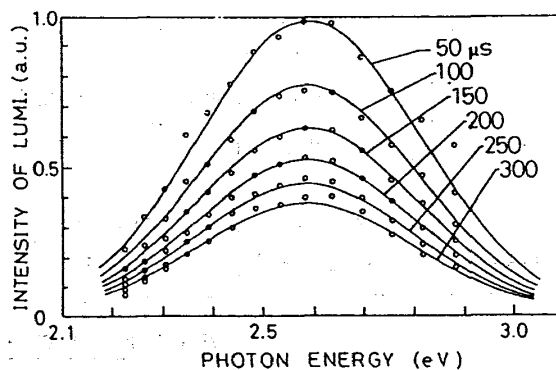


図2