

氏 名	大 野 宣 人 おの のぶ ひと
学位の種類	理 学 博 士
学位記番号	理 博 第 652 号
学位授与の日付	昭 和 56 年 1 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項 該 当
研究科・専攻	理 学 研 究 科 物 理 学 第 一 専 攻
学位論文題目	Optical Properties of Indium Iodide, Photoluminescence and Resonant Raman Effect (沃化インジウムの光学的性質；フォトルミネッセンス及び 共鳴ラマン効果)
論文調査委員	(主 査) 教 授 中 井 祥 夫 教 授 浅 井 健 次 郎 教 授 端 恒 夫

論 文 内 容 の 要 旨

インジウムハライド (InI, InBr) はタリウムハライドと同じ III—VII 族化合物に属する物質である。後者は立方晶 CsCl 型の結晶構造を示すが、前者は特異な層状構造を有し著しい光学的異方性を示す。

申請論文では、沃化インジウムの偏光反射スペクトルの光学測定及びその磁気光効果を通じて、2.0 eV 付近にある第一励起子帯の構造が明確にとらえられ、次に発光スペクトルの温度変化を調べることによって、自由励起子の再結合発光帯を確認すると共にその緩和機構についての考察がなされている。以上の基本的光学スペクトル測定から得られる知識を基礎として、申請者は通常—及び共鳴—ラマン散乱スペクトルを調べることによってフォノンモードの同定を試みるとともに第一励起子帯域を色素レーザーを用いて共鳴的に励起することによりルミネッセンススペクトルと共鳴ラマン散乱スペクトルの比較検討を行った。

液体ヘリウム温度における ac 面（層状面）の反射スペクトルには、a 軸・c 軸両偏光の間で異方性が観測され、殊に吸収端近傍 (2.02 eV) に見られる鋭い第一励起子帯における異方性は著しいことを見出した。この物質の吸収端における光学遷移は c 軸偏光に対しては直接許容型であり、a 軸偏光ではその許容度は極めて小さいことがわかった。励起子帯の磁気光効果の測定より、InI の励起子は異方性媒質中であるにもかかわらず 3 次元水素原子モデルで極めて良く記述されること、励起子束縛エネルギーは 4 meV とイオン結晶としては非常に小さな値であること、したがってかなり顕著な磁場効果が比較的容易に観測されること等の結果が確かめられた。

発光スペクトルにおいても異方性が見出され、第一励起子帯近傍に観測される吸収端発光はその温度依存性から自由励起子及び束縛励起子の再結合に起因していることが明らかとなった。低エネルギー域には上記発光帯の LO のフォノンによるレプリカ及びドナー・アクセプター対の再結合発光とその多重 LO フォノンレプリカからなる発光帯も認めている。

一方、ラマン散乱の偏光特性及び温度変化の測定から、5 本の鋭いラマン活性モードのうち 2 本 (7.0

meV と 10.7 meV) は A_g 対称性であり、2 本の巾の広い線は赤外活性の LO フォンモード (13.8 meV) とその 2 倍音子に起因するものであると推論された。これらの同定にもとづいてラマン散乱の共鳴効果を調べた結果、第一励起子帯近傍を CW 色素レーザーで共鳴的に励起した際の散乱スペクトルには、入射レーザーエネルギーの変化と共に移動するスペクトル線 (ラマン線) と移動しないスペクトル線 (ルミネッセンス線) とが共存することが認められた。特にラマン散乱強度の共鳴増大の様子は上記の A_g , 1 LO 及び 2 LO モードにおいて同様ではなく、各モードがそれぞれ特徴的な変化をすることが見出された。これらのちがいはラマン過程における中間電子状態の相異、及び中間電子状態とフォノンとの相互作用のメカニズムの相異に起因するものとして説明されている。

論文審査の結果の要旨

申請論文は層状物質沃化インジウムの光学スペクトル——反射スペクトルとその磁場効果、発光スペクトルとその温度依存性、及びラマン散乱とその共鳴効果——を第一励起子帯近傍について詳細に観測し、異方性媒質中の励起子構造と励起子格子相互作用ならびに励起状態の緩和機構についてその解明を試みたものである。

申請者は立方晶タリウムハライドと同じⅢ—Ⅶ族化合物であるインジウムハライド (InI, InBr) の特異な層状構造と著しい光学的異方性に注目し、まず、沃化インジウムの第一励起子帯の反射スペクトルとその磁気効果を調べることによって異方性媒質における励起子構造の解明を試みた結果、この物質の励起子はイオン性結晶としては非常に小さな束縛エネルギーを有すること、および著しい異方性媒質であるにもかかわらず励起子は 3 次元水素原子モデルで精度よく記述されることを実験的に確認している。励起子の束縛エネルギーが小さいため、磁場を変化させたときのいわゆる ‘Rydberg-Landau’ 移行現象の詳細が比較的容易に詳しく観測されている点は興味深い。

次に Ar レーザー照射による帯間励起の際に観測される発光スペクトルの温度変化を詳細に調べることによって、これらの発光帯が自由励起子の共鳴発光及び不純物或いは格子欠陥に捕えられた励起子の再結合発光であることの同定に成功した結果、InI の励起状態の緩和過程において、低温においては束縛励起子が重要な役割を果たしていることが明らかになった。

上述の光学スペクトルからえられた知見の上に立って、申請者はラマン散乱スペクトルを観測することにより、 A_g , 1 LO, 2 LO の各フォノンモードの同定を行いラマン散乱スペクトルに関する共鳴効果について詳細な観測を実施した結果、散乱強度の励起子帯近傍での共鳴増大の様子から、ラマン過程のメカニズム及び電子・格子相互作用についての知見を得ることに成功している。ラマン散乱強度の入射フォトンエネルギー依存性は、許容のラマン活性モード A_g 、他のラマン活性モード B_{1g} あるいは B_{2g} 、赤外活性モード LO、及びその 2 倍音子の 2 LO の 4 者の間で互いに異なった様相を呈することが明らかとなり、これらの依存性に基づいてラマン過程における中間電子状態の相異、さらに中間電子状態とフォノンの相互作用のメカニズムの相異が明確にとらえられている点は重要な結果である。

以上に述べたように、申請論文は 2 次光学過程の理解の上で興味深い実験結果を提示し、異方性媒質中の励起子構造及び励起状態の緩和機構に関する基本的問題を独自の方法によって明らかにしたものであ

り、物性物理学への貢献は少なくない。したがって本論文は理学博士の学位論文とし価値のあるものと認めるものである。