

森 雄造, 大倉 潤

来計画では, マルチポールウイグラーやアンジュレーターによる SOR 光の干渉効果を利用して, すくなくとも現状の 10^3 倍以上強力な高輝度単色光励起による物性研究の実現を第一目標とし, さらに短波長領域での波長可変レーザーとしての自由電子レーザーに向っての開発研究をめざしている。SOR 物性研究の従来の発展をふり返ってみても, 光源の輝度や時間構造における性能向上が新しい研究と新しい物理の展開に寄与したのは明白な歴史的事実である。現在計画中のこれら「新世代光源」が実現したあかつきには現在予想し得る以上の研究の発展が確実に行われるであろう。

共鳴二次発光による F 中心の格子緩和過程の研究

大阪市大・工 森 雄 造
大 倉 潤

アルカリハライド結晶中の F 中心の捕獲電子は, 水素原子模型で近似的に表現され, 格子と強く結合している。F 中心を共鳴光励起すると, 格子緩和の過程にラマン散乱, ホットルミネッセンスを生じる。これらは, 緩和後の (通常) 蛍光を含めて, 「共鳴二次発光」と呼ばれる。F 中心を直線偏光レーザー光で共鳴励起した時起きる共鳴二次発光及びその励起光との偏光相関を, 全ストークス領域に亘って測定し, 格子緩和過程を調べた。¹⁾

図 1 は, 二次発光の励起偏光と平行な成分 $I_{||}$ の強度スペクトルである。同時に測定された垂直成分 $I_{\perp}$ から計算された直線偏光度 $P = (I_{||} - I_{\perp}) / (I_{||} + I_{\perp})$ による偏光相関スペクトルを, 図 2 に示す。ここで母体結晶は KCl, 温度は 80 K, 励起波数 k_r は 19436 cm^{-1} である。図中横

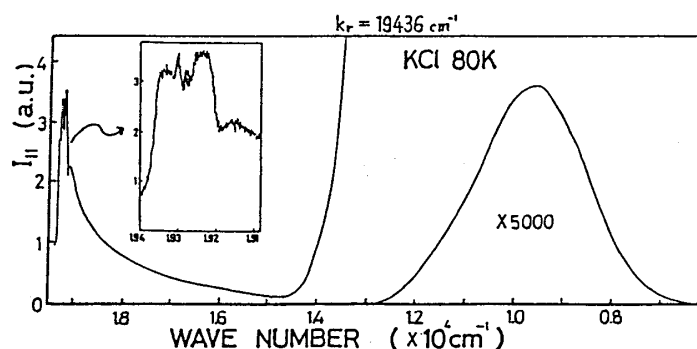


図 1

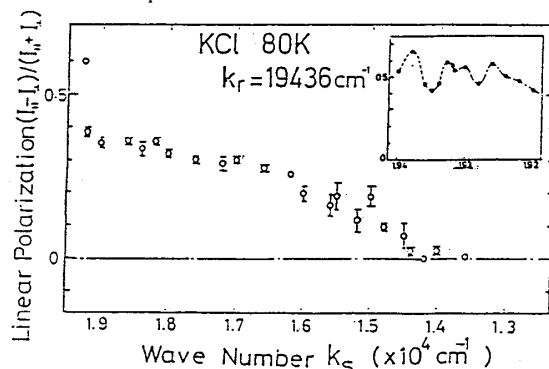


図 2

軸は, 二次光波数 k_s を示す。偏光相関は, フォノンを 1 個, 次いでさらに 1 個散乱する過程等で, 合せて 40 % 迄減少した後, 広い波数範囲に亘ってプラトー状にほぼ一定値を保ち, 蛍光

帯の直前で完全消失へ向けて減少し始める。

O_h 対称性を持つ F 中心の励起状態を擬縮退している $2s$, $2p$ 状態に限定する時, 結合フォノン は, Γ_1^+ , Γ_3^+ , Γ_5^+ , Γ_4^- モード (各モードとの一次の結合定数を $C(\Gamma_i)$ と記す。) である。偏光 相関消失に効く Γ_5^+ モードとの結合定数について, 光吸収過程では $C(\Gamma_5) \sim C(\Gamma_3) \sim \frac{1}{2}C(\Gamma_1)$,²⁾ 蛍光過程では $C(\Gamma_5) \sim \frac{1}{50}C(\Gamma_3)$ ³⁾ が実験的に決定されている。図 2 中, ラマン散乱の P は前 者と矛盾しない。蛍光での偏光相関完全消失は, Γ_3^+ , Γ_5^+ による Jahn-Teller 効果は小さく, 格 子緩和が主として Γ_1^+ との結合によることを物語っている。従って上記の $C(\Gamma_5^+)$ の減少は, 二 次の電子格子相互作用によるものとして, $C(\Gamma_5) = C(\Gamma_5; Q(\Gamma_1) = 0) - KQ(\Gamma_1)$ [但し $Q(\Gamma_1)$ は基底状態の配置からの Γ_1^+ モードの変位, K は定数。] と書ける。この二次の効果は, 緩和励 起状態の電子軌道半径が, 吸収時より数倍広がっている事実から発している。⁴⁾

$2p$ 状態を互に混ぜる Γ_5^+ モードとの結合に比べて, Γ_3^+ モードとの結合は, $2p$ 状態の成分を 互に混ぜることなくその縮退を解く働きをする。この効果は, Γ_5^+ モードによる偏光相関消失を 抑制する作用をし, 特に $(k_r - k_s)$ の小さな領域で重要となる。まとめてみると, F 中心は二 次の電子格子相互作用及び Γ_3^+ との結合により, 励起された成分の p 状態を保ったまま緩和し ていると言える。図 2 同様の結果が KC1 以外の母体結晶の F 中心についても得られており, 上 記の考え方で理解できる。

Hizhnyakov⁵⁾ は, ある二準位局在電子系に対し, 一次の電子格子相互作用を取入れ, Condon 近似によりホットルミネッセンスのスペクトル $I \propto \sqrt{k_r - k_s}$ を得た。図 1 のスペクトルはこれ と合わない。これも緩和に伴う軌道半径増大の効果を取入れる必要性を示唆している。

- 1) Y. Mori, R. Hattori and H. Ohkura: J. Phys. Soc. Jpn. **51** (1982) 2713.
- 2) S. E. Schnatterly: Phys. Rev. **140** (1965) A1364.
- 3) N. Akiyama, K. Asami, M. Ishiguro and H. Ohkura: J. Phys. Soc. Jpn. **50** (1981) 3427.
- 4) H. J. Reyher, K. Hahn, Th. Vetter and A. Winnacker: Z. Phys. **B33** (1979) 357.
- 5) V. V. Hizhnyakov and I. J. Tehver: J. of Luminescence **18/19** (1979) 673.