

2. 光カロリメトリー分光 (PCS) と 層状結晶 BiI_3 の積層欠陥励起子

赤 井 一 郎

1. 本研究の目的

物質中で光励起された励起状態は、輻射過程により再び光としてエネルギーを放出する以外に、非輻射過程で熱に変換されて物質中に残る部分があり、そこには緩和過程の重要な情報が含まれる。その熱発生部分を直接観測する光カロリメトリー分光 (PCS) は実験的困難さの為にこれまで殆ど取組まれていなかった。本研究では、新たにPCS測定装置を開発し、その測定装置を用いて層状結晶 BiI_3 の積層欠陥励起子の緩和過程の詳細を明らかにする。

2. 方法

安価なカーボン抵抗を極薄片にスライスし、その2K近傍に於ける抵抗値の温度に対する急激な勾配を利用して高感度熱検出器とした。試料及び熱検出器は熱交換用冷却ガスを注入出来るガラスセル内に封入し、効率良く測定が出来る様に任意の圧力で冷却スピードをコントロールした。更に、測定環境の温度変動を補償しつつ試料の温度上昇による抵抗値の変化のみを信号処理出来る様に電子回路を工夫した。得られた検出感度は0.96pJで、今まで報告されている例で最高感度に匹敵する。

3. 結果

BiI_3 の積層欠陥励起子遷移で得たPCSスペクトルと光スペクトルの解析から、この系の緩和過程を支配する主要な要因が明らかになった。

- 1) BiI_3 結晶で得たPCSスペクトルは、輻射過程を表す発光の励起スペクトルと異なり、基礎吸収域で大きく現れる。この結果は、積層欠陥励起子遷移領域と基礎吸収遷移領域に於ける緩和過程の違いを示し、基礎吸収遷移領域内に新たな非輻射緩和過程の道筋が開かれていることを明らかにした。
- 2) 三つの異なる積層欠陥励起子状態R, S, Tの発光強度は、高エネルギー側から順に一桁以上づつ増加するが、それとは全く異なってPCS信号は、同程度の強度となり吸収された光量と良く対応する。この結果は、R, S, T間に非輻射過程ではない特異な緩和過程の存在を示している。この緩和過程は、発光強度の時間変化をピコ秒時間領域で測定した実験からR→S→Tへ順に緩和するカスケード緩和であることが明らかになった。

4. 研究の意義

今回開発したPCS測定装置は、非常に高感度でしかも簡便に測定が行なえ、今後多種の結晶試料に適用可能であり、これまで取組まれていなかった研究領域での応用の道を開いた。又、 BiI_3 結晶に於ける光励起状態の緩和のメカニズムを非輻射過程を直接観測して明らかにし、積層欠陥励起子間に非常に効率の良いカスケード緩和過程の存在を明らかにした。励起子間にこのような形のenergy transfer が観測された例は他になく、これら励起子の起源を探る興味ある結果である。