Osaka University Knowledge Archive

Title	F-center Formation in KI Crystal under High-Density Optical Excitation
Author(s)	市村, 暢子
Citation	大阪大学, 2004, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/45583
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

Osaka University

【8】

氏　　名	市　村　暢　子（いち むら のぶ こ）
博士の専攻分野の名称	博　士（理　学）
学　位　記　番　号	第　１９０１７　号
学位授与年月日	平成 16 年 9 月 30 日
学位授与の要件	学位規則第４条第１項該当 理学研究科物理学専攻
学　位　論　文　名	F-center Formation in KI Crystal under High-Density Optical Excitation （KI 結晶における高密度光励起下での F 中心生成）
論　文　審　査　委　員	（主査） 教　授　木下　修一 （副査） 教　授　交久瀬五雄　　教　授　野末　泰夫　　教　授　兼松　泰男 助教授　渡辺　純二

論　文　内　容　の　要　旨

この研究では、非常に強い紫外光を絶縁体結晶に照射した際に、通常の弱い光照射の下では起きない点欠陥生成が起きる事を発見した。絶縁体結晶は、食塩（NaCl）の結晶に代表される典型的なイオン結晶である、ハロゲン化アルカリ結晶の、ハロゲンイオンがヨウ素イオンである、ヨウ化カリウム（KI）という結晶を用いた。特にハロゲン化アルカリ結晶における光学的性質は、結晶構造が簡単であることから、これまでに点欠陥や励起子の微視的構造、生成・消滅のダイナミクスに関する知見が多く得られている。

KI 結晶は可視光領域において透明である。古くからの研究で、ハロゲン化アルカリ結晶に放射線や紫外線を照射すると着色が起きる事が知られている。この着色は、可視領域に幅の広い吸収帯を持つ F 吸収帯に起因する。F 吸収帯を引き起こす F 中心は結晶中の局在中心であり、陰イオン空孔に電子が捕獲された構造を取る点欠陥である。KI 結晶において、F 中心は低温かつ通常励起下では起きないことが知られている。

結晶が固有吸収領域の光を吸収すると、固体中の電子が励起され、基底状態に電子の抜け穴である正孔を残す。電子は負の電荷を持ち、正孔は正の電荷を持つので、電子と正孔はお互いに引き合い、束縛状態を作る。この状態は、水素原子様の性質を持ち、固体中の素励起状態であることから「励起子」と呼ばれている。固体における励起子の研究は、光と物質の相互作用を理解する上で必要不可欠である。ハロゲン化アルカリ結晶においては、励起子は自己束縛することが知られている。

励起光は、非常に強いパワーを持つ紫外線（193 nm）パルスレーザーである ArF エキシマーレーザーを用いた。このレーザー光は、通常光源と比較すると非常に高密度な光子密度を持つ。非常に強いレーザー光を当てると、結晶表面からの微視的な原子離脱や巨視的な損傷を避けることができないが、結晶表面がサファイアセルにより保護されている「融液育成薄膜結晶」を用いることにより、光学測定を妨げる要因を排除し、今回の発見が可能になった。この試料は、２枚のサファイア板の狭いすき間に原料融液を毛細管現象で導入し、固化させて作成した。

今回の研究では、高密度励起下において低温でも F 中心生成が起き、その励起強度依存が非線形であることを実験的に確認した。通常励起下では起きない励起強度に非線形に増加する F 中心生成の機構について考えるために、自己束縛励起子の発光特性についても調べた。その結果、発光効率の低下と新たな寿命成分の出現を発見した。これらの

発光に関する実験結果は、励起強度に非線形なF中心生成と密接なかかわりを持つ事に注目して、励起子間相互作用のモデルを提案し、レート方程式による解析とシュミレーションを行った。その結果、今回用いたモデルは実験結果を定性的に良く説明することが示された。

今回の研究成果は、ハロゲン化アルカリ結晶に限られず、一般的な非金属固体における励起子へと、その理解を広げることが期待され、物性を制御・設計する際の基礎として非常に重要な意味を持つと考えられる。

論文審査の結果の要旨

アルカリイオン結晶に放射線やX線を照射すると着色することは、色中心（カラーセンター）として古くから知られており、レーザー発振などにも応用されている。色中心の中でも、F中心は最もよく研究された色中心で、陰イオンがなくなった空孔に電子がトラップされたものとして理解されている。F中心のできやすさは結晶によって大きく変化し、陰イオン間距離に対する移動する中性原子の大きさの比が大きいほど、できやすいとされていた。この意味で、大きな陰イオン体積をもつヨウ化物は一般にできにくいとされ、特に、低温での生成は不可能とされていた。

本研究は、KI結晶を試料に選び、結晶をサファイア板ではさむことにより、光照射による脱離を防ぎ、また、励起に193 nmのエキシマーレーザーを高密度に照射することにより、低温ではじめてF中心が生成することを実験的に示すことができた画期的な研究である。

低温におけるF中心の生成機構は、励起強度依存性の測定により、2光子過程であることが分かった。1光子過程によるF中心生成では、過渡的な前駆状態の形成が報告されており、この前駆状態を介して、一方ではF中心が生成し、他方、自己束縛励起子ができることが知られている。従って、2光子過程においても、この両者は何らかの関係があることが期待できる。発光の時間分解測定の結果、自己束縛励起子からの発光は、F中心生成が顕著になる高密度励起下で抑制され、さらに、発光寿命の異なる成分が生成することが分かった。この結果を、前駆状態と自己束縛励起子の対になった状態が初期に生成し、その後、自己束縛励起子の対状態ができるとして、速度方程式を用いて解析し、生成機構に対する定性的な理解を得ることができた。この研究は、博士論文としての充分価値のある内容をもっており、5人の審査員の一致した意見として合格と判断した。