

音子による励起子の非弾性  
散乱の理論 — 東大物性研究所  
張紀久夫氏卒業論文の紹介

中央大 理工 大井敏郎

§ 1. 紹介

この研究の目的は励起子 (exciton) が音子 (phonon) に衝突して散乱するためには両者のエネルギー準位及び吸収率のずれに起因する変化を調べるために一つの理想化したモデル Hamiltonian を用いて計算を行い定性的または半定量的な結論を求めることにある。

取り上げた問題は Frenkel 励起子と 1 格子点の対して生じた電子化された Einstein 振動子との非弾性散乱である。これは極めて局在している音子振動子 (フォノン) による電子の散乱を論じて成り立つ Koster-Slater<sup>1)</sup> の方法を非弾性散乱の場合に拡張した形になっている。

Koster-Slater (及びその後の Izyumov<sup>2)</sup> Callaway<sup>3)</sup> など) によって述べられた Green 関数の方法に

\*  
よれば、理想結晶中のエネルギー一本立密度  $N^{(0)}(E)$  はよく知られているように  $N^{(0)}(E) = \frac{1}{N} \text{Im} G_0(E + i\epsilon)$ ,  $\epsilon > 0$ ,  $\epsilon \rightarrow 0$  で与えられる。ただし  $G_0(E)$  は格子 Green 関数

$$G_{mn}^{(0)}(E) = \frac{1}{N} \sum_{\alpha} \frac{e^{i\alpha \cdot (R_n - R_m)}}{E - E(\alpha)} \quad \text{の要素}$$

$$G_{00}^{(0)}(E) = \frac{1}{N} \sum_{\alpha} \frac{1}{E - E(\alpha)}$$

で与えられるもので、第 1.1 圖に描いた曲線  $N^{(0)}(E)$  がその概形である。これに対して同じ関数  $G_0(E + i\epsilon)$  の実部  $F^{(0)}(E)$  の概形も同圖に示してある通りである。ポテンシャル  $V$  が極めて局所的なときは、1 格子点の近傍に限られているとしてこれを  $V_0$  で表わすと、擾乱を考慮したときの状態密度と無擾乱の上述の  $N^{(0)}(E)$  との偏差は  $\frac{\Delta N}{N}$

---

\* 筆者が張紀久夫氏から知らされたことは、以下のことであつて、 $\beta$  1 の Introduction はまさに筆者が勝手に入れたものである。序論というように紹介の表題はこれを表わしている気味である。識者には全く無用の贅足(跽足歟?)であろう。張氏は現在海外にあるので、この原著者に補して取りかきとることは略せたい。た。

$$\Delta N(E) = N(E) - N^0(E) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} [1 - V_0 F(E) + i\pi V_0 N(E)]$$

$$\approx \frac{1}{\pi} \frac{P_0(E)}{(E - E_m)^2 + P_0(E)^2} \quad (1.1)$$

よって知られる (式(1.1)の第3級以下無振動項を示す符号を略す) ことに  $E_m$  は  $\Delta E$  の最大値を示す  ~~$E$  の値~~  $E$  の値と略す

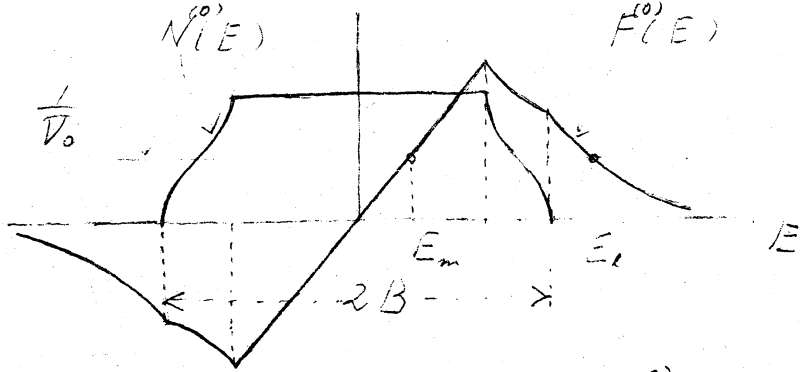
$$1 - V_0 F(E_m) = 0 \quad (1.2)$$

の根が知られるものであり、 $P_0(E)$  は共振を示す半値中の  $\sigma$  を示す値と近似的に

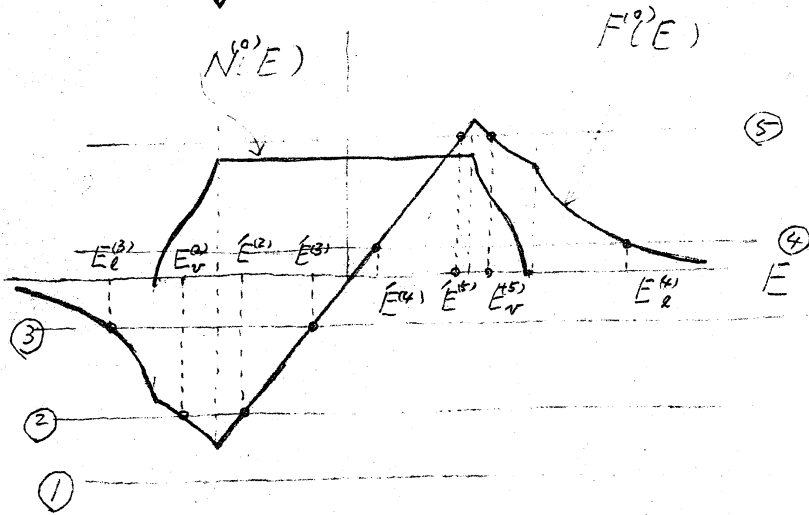
$$P_0(E) = -\frac{\pi N_0(E)}{F'(E_m)} \quad (1.3)$$

~~見られる~~  
 見られる。(1.2) によつて  $E_m$  の位置は曲線  $F(E)$  と一直線  
 $V_0$  の高さ位置をもつた直線との交差として図解的に求めら  
 れる。第2図の①のように  $|V_0|$  が小さくて両者が交わること  
 が無い場合は振動の状態密度に及ぼす影響は無視される。こ  
 れより  $V_0$  が ~~ある~~ <sup>ある</sup> の大きさを越えて ( $V_0 < 0$  が引力性の物理  
 的に実現する場合もある) ②の場合のように交差に補  
 足するエネルギー  $E_m^{(1)}$  及び  $E_m^{(2)}$  が現れるが (1.3) によつて  $E_m$   
 $= E_m^{(1)}$  とした式から明かきよりに ( $F'(E_m^{(1)}) < 0$  のため),  $P_0(E)$   
 $> 0$  とする。それより (1.1) から  $\Delta N(E) > 0 \rightarrow$  まり状  
 状態密度は  $E_m^{(1)}$  の近傍に局所的に増大する (第3a図)。一  
 方  $E_m^{(2)}$  については  $F'(E_m^{(2)}) > 0$  から  $\Delta N(E)$  の相殺的  
 減小が期待される。その他の諸効果は振動  $E_m^{(1)}$  の付近ほど  
 顕著ではない。定訳りを得られる (吸収スペクトル) - 直線のつらつ  
 らいにはこのことを実証していることを見られる。  $E_m$  を  
<sup>束縛</sup> 振りの状態 (virtual state) と呼ぶ。完全格子 (無振動)  
<sup>連続性</sup> の状態密度に付加せられた不連続状態 <sup>の寄与</sup> については理めこま  
 かくという見方ができる。更に  $|V_0|$  が増大して ③に於けるよ  
 程に補足するエネルギー  $E_m^{(1)}$  の方は  $E_m^{(2)}$  と同様に  $E_m^{(2)}$   
 の方は連続性外に孤立して現れる局所状態 (localized state)  
 と見られる (第3b図) <sup>孤立した</sup>。この1個のバンドの底の連続性から  
 導き出されるのは4つの成分を起すのである (Koster-Slater)。更

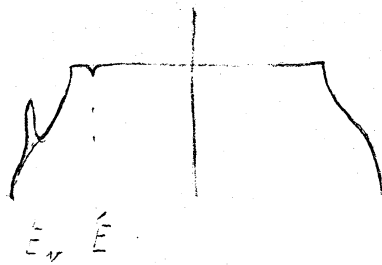
この図は  $V_0 > 0$  の場合 (電圧降下がある) の場合、(4)、(5) のエネルギー準位  $E_v^{(4)}$  の位置が、(3) の位置より低くなる。この場合、(4) の位置が、(5) の位置より低くなる。



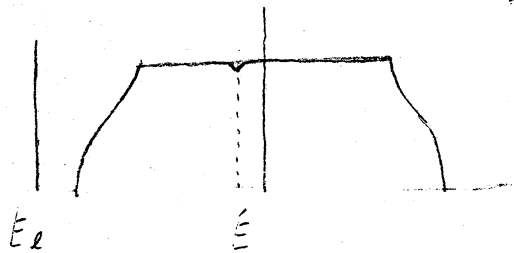
第1.1図



第1.2図



第1.3a図



第1.3b図

以上は  $Koster-Slater$  理論から <sup>局所的</sup> 系  $\rho$  の格子状態  
 密度に対する影響を考察したのであるが 張 紀久文氏は最  
 最近  $\rho$  の (2.1) で与えられる励起子-音子の複合系に  
 対して  $Koster-Slater$  に代わった取組を行い 自由な励  
 起子と自由な音子系の合成 [ 図 2.1 (a) ] に図的に示す [ 図  
 2.1 (b) ] の励起子と音子系の合成系 [ 図 2.2 (a) ] に図的に  
 示す [ 図 2.2 (b) ] の両極限の両者を連らゆる一般合成状態に  
 対して両極限が相対的に同心として表わして行くことを  
 調べるという目的で先づ  $\rho$  によるモデルに就いて  
 解析を行った結果 (2.15) に示すかゝるような漸近式に  
 到達した。その式の示すように相対複合係数であるがこの  
 場面に集まつておられる格子 Green 関数の専門家たちの批評  
 と助言を得られたらば我々以下に記す研究の進捗を説明  
 する次第である。

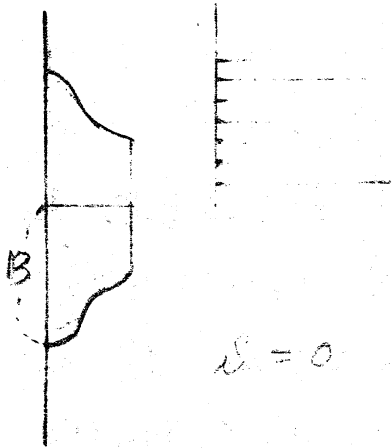
## 2.2 正統的考察

張氏以下に詳述したモデル (Hamiltonian) に対し自由  
 (無擾動系) の励起子系の状態密度  $N(E)$  を求める一般的方法  
 を与えておく、 $N(E)$  は (3.6) の見をもちいて (1) (3.9) を  
 用いて

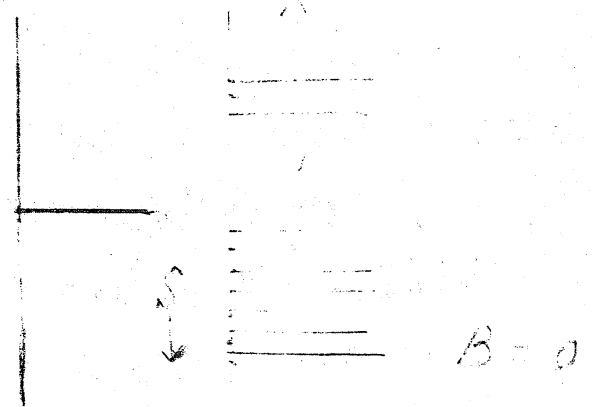
$$2B = -2E(0)$$

の見をもちいてこれを示した。これは自由な音子系のエネルギー

一準位  $\rho$ ,  $\rho = 0, 1, 2, 3$  (零エネルギーを除く)  
 2) とおきの準位合成したものの固有系が相互作用を無視した  
 定常固有起子と音子の合成系の準位 ( $S=0$  の場合)  
 は第2.1図 の如くである。



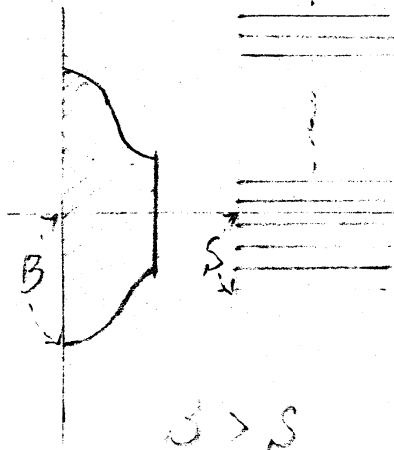
第 2.1 図



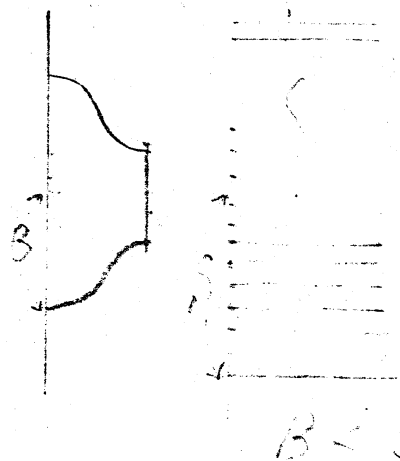
第 2.2 図

これに対し  $S$  定常固有起子 (格子音子  $n+m$   
 に相当) と  $S$  格子音子  $n$  に向き音子系の結果準位に合  
 成したものは第 2.2 図である。

実際は相互作用  $B \neq 0, S \neq 0$  のありまた相互作用を  
 考慮に入れたものは第 2.3. 及び第 2.4 図のようになると思  
 われる。



第 2.3 図



第 2.4 図

### § 3 モデル Hamiltonian による励起子、音子相互作用の計算

この問題では励起子は1個だけの場合を考慮し十分である。音子は格子点  $n$  だけ  $0, 1, 2, \dots, p, \dots$  個存在する場合を考慮する。エネルギーは原子単位に選べ、自由励起子1個のエネルギー  $\varepsilon_0$  を基準にとり考える。

あるとき、この励起子-音子複合系に固有なモデル Hamiltonian は次式で表わされる。

$$H = \sum_{m' \neq m} v_{m'm} a_{m'}^+ a_m + b^+ b - \sqrt{S} (b + b^+) a_n^+ a_n - \sigma a_n^+ a_n \quad (3.1)$$

ここに  $a_m^+, a_m$  は格子点  $m$  にある励起子に対する励起子の生成並びに消滅演算子 (Fermi 統計),  $b^+, b$  は格子点  $n$  における音子に対する生成並びに消滅演算子 (Bose 統計) であり音子は唯一の格子点  $n$  だけ生成されるものとして添字  $n$  を省略した。

$v_{m'm}$  は励起子が  $m' \rightarrow m$  に移るときの変動エネルギー (transfer energy),  $S$  は励起子-音子相互作用の強度を表わす定数, 最後の項は CPA (coherent potential approximation) 補正を行うときに加わっているが計算の途中では  $\sigma = 0$  とし計算を進める。

このように固有 ket (bra) の基底を



$$|m, p\rangle = a_m^+ \frac{1}{\sqrt{p!}} (b^+)^p |0\rangle, \quad \langle m', p'| = \langle 0| a_m \frac{1}{\sqrt{p'!}} b^{p'} \quad (3.2)$$

にとる。(但し  $|0\rangle, \langle 0|$  は励起子及び音子も存在しない真空状態に対する ket 及び bra ベクトル)。

基底 ket, bra (取) を用い、基本の対関係

$$\{a_m, a_{m'}^+\} = \delta_{mm'}, \quad [b, b^+] = 1 \quad (3.3)$$

を利用すれば

$$\begin{aligned} \langle m', p' | m, p \rangle &= \delta_{p'p} \delta_{m'm}, \quad \langle m', p' | b^+ b | m, p \rangle \\ &= p \langle n', p' | n, p \rangle = p \delta_{p'p} \delta_{n'n}, \\ \langle n', p' | (b + b^+) a_n^+ a_n | n, p \rangle &= \sum_{n', n} \langle 0 | a_m a_n^+ a_n a_m^+ | 0 \rangle \\ &\langle 0 | \frac{1}{\sqrt{p'!}} (b)^{p'} (b + b^+) \frac{1}{\sqrt{p!}} (b^+)^p | 0 \rangle \\ &= \delta_{nn'} \{ \sqrt{p'} \delta_{p'-1, p} + \sqrt{p'+1} \delta_{p'+1, p} \}, \\ &\langle n', p' | \sum_{m' \neq m} v_{m'm} a_m^+ a_m | n, p \rangle \\ &= \sum_{n', n} \delta_{n'm'} \delta_{m'n} \sum_{m' \neq m} v_{m'm} \cdot \delta_{p'p} = \sum_{n' \neq n} v_{n'n} \delta_{p'p} \end{aligned} \quad (3.4)$$

の諸関係が導かれる。従って以上の励起子及び音子に因る格  
子表示の代りに

$$|k, p\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n e^{ikn} |m, p\rangle, \quad \langle k', p'| = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n \langle n', p'| e^{-ik'n} \quad (3.5)$$

を用いて書き直すとにより、(3.4) の諸式は次の代りに

$$\begin{aligned}
 \langle k'p' | b^+ b | kp \rangle &= p \frac{\delta_{pp'}}{N} \sum_n e^{-ik'n} \delta_{na} e^{ikn} \\
 &= p \frac{\delta_{pp'}}{N} \sum_n e^{i(k-k')n} = p \delta_{pp'} \delta_{kk'}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \langle k'p' | (b+b^+) a_n^+ a_n | kp \rangle \\
 = \frac{1}{N} e^{-i(k'-k)n} \left\{ \sqrt{p+1} \delta_{p+1,p} + \sqrt{p'} \delta_{p'-1,p} \right\}
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle k'p' | \sum_{m \neq n} v_{m'm} a_m^\dagger a_n | kp \rangle &= \sum_{n', n} v_{n'm'l} e^{-ik'n} e^{ikn} \delta_{p'p} \\ &= \frac{\delta_{p'p}}{N} \sum_n e^{i(k-k')n} \sum_{n'-n} v_{n'n} e^{ik(n'-n)} = \frac{\delta_{p'p}}{N} \sum_n v_{0n} e^{ikn} \\ \text{よって: } \sum_n v_{0n} e^{ikn} &= \varepsilon(k) \quad \text{とあり (3.6)} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \langle k'p' | \sum_{m \neq n} v_{m'm} a_m^\dagger a_n | kp \rangle &= \delta_{k'k} \delta_{p'p} \varepsilon(k) \\ \text{よって: } \langle k'p' | H | kp \rangle &= \delta_{k'k} \delta_{p'p} \{ \varepsilon(k) + p \} \\ &\quad - \frac{1}{N} e^{-i(k'-k)n} \{ \sqrt{p'+1} \delta_{p'+1,p} + \delta_{p'p} + \sqrt{p} \delta_{p'-1,p} \} \end{aligned}$$

右辺(2)の第2項が得られる。 (3.7)

一般の H の固有値  $\lambda$  と固有ベクトル  $|\lambda\rangle$  を

$$|\lambda\rangle = \sum_{k,p} C_\lambda(k,p) |kp\rangle \quad \text{の係数は規格化してあり} \quad (3.8)$$

これは固有値  $E_\lambda$  は  $H|\lambda\rangle = E_\lambda|\lambda\rangle$  として

して得られる連立方程式

$$\begin{aligned} \{ E_\lambda - \varepsilon(k) - p \} C_\lambda(k,p) &= -\frac{1}{N} e^{-ikn} \sum_{k', p'} e^{ik'n} C_\lambda(k', p') \\ &\quad \times \{ \sqrt{p'+1} \delta_{p'+1,p} + \delta_{p'p} + \sqrt{p} \delta_{p'-1,p} \} \quad (3.9) \end{aligned}$$

に対する連立方程式を解いて得られるわけである。

励起子に因る格子振動系  $\text{ket } |m, p\rangle$  を用い

て

$$|\lambda\rangle = \sum_{m'} \sum_{p'} d_\lambda(m', p') |m', p'\rangle \quad (3.10)$$

に表わす(座標)関数はその定義から

$$d_\lambda(m, p) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{ikm} c_\lambda(k, p) \quad (3.11)$$

の逆が計算の結果

$$d_\lambda(n, p) = G_0(E_\lambda - p) \left\{ \sqrt{S(p+1)} d_\lambda(n, p+1) + \sigma d_\lambda(n, p) + \sqrt{S p} d_\lambda(n, p-1) \right\}$$

なる  $p$  に (1) (2) の漸化式を繰り返してゆくと (3.11) による。ただし、ここに  $G_0(E_\lambda)$  は <sup>完全格子に因る</sup> Green 関数

$$G_0(E_\lambda) = \frac{1}{N} \sum_k \frac{1}{E(k) - E_\lambda} \quad (3.12)$$

である。

$d_\lambda(n, p)$  の  $p$  依存性に着目してこれを  $D_p$  と表わせば (3.11) は

$$\left\{ \sqrt{S(p+1)} D_{p+1} + \left\{ \sigma - \frac{1}{G_0(E-p)} \right\} D_p + \sqrt{S p} D_{p-1} \right\} = 0 \quad (3.13)$$

(3.13) の  $D_p$  の解析的表現が求まれば表層の励起子の問題に (1) (2) 様々の半定量的考察が下せるわけが検討中であるが現在はお明か不明瞭しを得ることになりそうである。格子 Green 関数の要因等からの御意見が伺えれば有難い。

なお (3.13) は特殊の場合として Laguerre の関数に対する漸化式関係の一般させたものが記述されることを付記する。

$$D_p \equiv \sqrt{\frac{p!}{S^p}} L_p \quad (3.14)$$

とあると  $L_p$  は

$$(p+1)L_{p+1} + \left\{ \sigma - \frac{1}{G_0(E-p)} \right\} L_p + \rho L_{p-1} = 0 \quad (3.15)$$

$G_0(E-p) = 1/(E-p)$  といふ)  
 とする。その特別な場合には  $E = l-s$  とすると  $L_p$  は

$$(p+1)L_{p+1} + \{s - (l-s) + p\} L_p + s L_{p-1} = 0 \quad (3.16)$$

と書けるからこれは Laguerre 関数  $L_m^{\alpha-m}(s)$

が満足している。これを

$$(m+1)L_{m+1}^{\alpha-(m+1)}(s) + \{s - \alpha + m\} L_m^{\alpha-m}(s) + s L_{m-1}^{\alpha-(m-1)}(s) =$$

と一致した方がよい。

(3.17)