

## I) 励起子のフォノンサイドバンドの理論

## II) 励起子の自縄自縛と光吸収スペクトル

東大物性研 豊 沢 豊

張 紀久夫

結晶の基礎吸収スペクトルに現われる励起子格子相互作用の効果を、いろいろな角度から理論的に考察した。現象として興味があるのは「励起子ピークの高エネルギー側に現われるフォノンサイドバンド」や「低エネルギー側のいわゆる Urbach tail」であるが、理論的にも「相互作用の弱い場合から強い場合まであらゆる場合に、励起子といくつかのフォノンが同時に励起されている状態を求めること、とりわけ、それによる光吸収スペクトルや発輝スペクトルの形状を調べること」は、二つの素励起の間の相互作用を扱う典型的な問題として興味深い。

I) では、現在までに明らかにされている理論的な結果の中から

- イ) 局在励起子のフォノンとの相互作用<sup>1)</sup>
- ロ) イ) に励起子が移動する効果を入れた場合のサイドバンドの motional narrowing<sup>2)</sup>
- ハ) 励起子格子相互作用を摂動として、Van Hove の damping theory を用いると、吸収曲線は形式的に<sup>3)</sup>

$$I(\omega) = \frac{1}{\pi} \frac{\Gamma(\omega)^2}{[\omega - E(\omega)]^2 + \Gamma(\omega)^2}$$

の形にまとめられて、 $E(\omega)$  や  $\Gamma(\omega)$  の  $\omega$  依存性が、ゼロフォノン線や、フォノンサイドバンドの情報を含んでいること。(励起子に内部自由度を考慮すれば、更に分子に非対称ローレンツ型にする項がつく)<sup>4)</sup>

また、摂動展開がうまくゆかない例として

- ニ) 励起子とフォノンの束縛状態の導出<sup>5)</sup>
- ホ) 最低励起状態の自縄自縛現象<sup>6)</sup>

等を取り上げて解説をした。

II) では, Frenkel 励起子 ( $a_n^+$ ,  $a_n$ ) と Einstein 振動子 ( $b_n^+$ ,  $b_n$ ) が相互作用している, というモデルハミルトニアン

$$H = \sum_n \epsilon_0 a_n^+ a_n + \sum_{m,n} V_{mn} a_m^+ a_n + \sum_n \hbar\omega_0 b_n^+ b_n - \hbar\omega_0 \sqrt{S} \sum_n (b_n + b_n^+) a_n^+ a_n \quad (1)$$

( $m, n$  は格子点の位置,  $V_{mn}$  は励起子の transfer energy,  $S$  は相互作用定数) について, いろいろな相互作用の強さに対して,  $0^\circ\text{K}$  での光吸収スペクトルを計算した。 $S=0$  の場合は単純な Frenkel 励起子の問題であり, また,  $V_{mn}=0$  の場合は孤立励起子とフォノンとの相互作用の問題で, どちらも厳密な解がわかつている。 $S$  も  $V_{mn}$  もゼロでない場合の一般解を求めるための第一歩として,

(1) を記述する基底関数の空間の中から, 次のような部分空間

$$\psi_p(n) = a_n^+ \exp[-\sqrt{S}(b_n - b_n^+)] \frac{(b_n^+)^p}{\sqrt{p!}} |0\rangle \quad (2)$$

( $|0\rangle$  は励起子とフォノンの真空,  $p=0, 1, 2, \dots, \infty$ ) を考え, 先ずこの中だけで (1) を対角化することを考えた。(2) は (1) で  $V_{mn} \equiv 0$  としたときの固有解になっている。

$$\Phi_p(\mathbf{k}) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_n \psi_p(n) e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{n}}, \quad (3)$$

$$\epsilon(\mathbf{k}) = \sum_n V_{0n} e^{i\mathbf{k}\cdot\mathbf{n}} \quad (4)$$

とすると,

$$\langle \Phi_p(\mathbf{k}) | H | \Phi_{p'}(\mathbf{k}') \rangle = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \left\{ (p-S) \delta_{pp'} + \epsilon(\mathbf{k}) (-1)^{p+p'} e^{-S} \sqrt{\frac{S^{p+p'}}{p!p'!}} \right\} \quad (5)$$

となるから, 固有値  $E_\lambda(\mathbf{k})$  のもつ固有関数

$$\Psi_\lambda(\mathbf{k}) = \sum_p C_p^{(\lambda)}(\mathbf{k}) \Phi_p(\mathbf{k}) \quad (6)$$

に対する永年方程式は分離可能で、エネルギーは、 $x = E_\lambda(\mathbf{k}) + S$  とすると

$$-\frac{1}{\epsilon(\mathbf{k})} = \sum_{p=0}^{\infty} \frac{e^{-S} S^p / p!}{p-x} \equiv G(x) \quad (7)$$

の根として求まり、一次結合の係数は

$$c_p^{(\lambda)}(\mathbf{k}) = \frac{(-1)^p}{p-x_\lambda(\mathbf{k})} \sqrt{\frac{e^{-S} S^p}{p! G'(x_\lambda(\mathbf{k}))}} \quad (8)$$

となる。

0°Kでの光吸収スペクトルは  $B \equiv -\epsilon(0)/\hbar\omega_0$  したとき、 $1/B = G(x)$  の根の位置に  $1/B^2 G'(x)$  の強度をもつ  $\delta$  関数の系列として求まる。(無次元の)  $B$  と  $S$  をパラメタとする数値計算を「 $S = 5, 10, 20, 30, 40, 50$ ;  $B = 1, 3, 5, 10, 20, 30, 40, 50$ 」の全ての組合せに対して実行した結果、主なものとして次の結論を得た。

- a) 吸収スペクトルの鋭いピークは、殆んど自由な励起子の状態  $a_{\mathbf{k}=0}^+ |0\rangle$  から成る。
- b)  $B > S$  の場合は、最低励起状態が殆んど全ての吸収強度をもつ。
- c)  $S > B$  の場合は、最低励起状態は殆んど吸収強度をもたず、それより高エネルギー側の吸収ピークまで指数関数的な立上りでつながっている。
- d) 自由な励起子の並進運動に対する質量を  $m_0$  とすると、最低励起状態の質量  $m^*$  は  $m^* = m_0 B^2 G'(x_{\lambda=0})$  となり、この値は、 $S$  を大きくしてゆくと  $S \approx B$  の前後で  $m_0$  から  $e^S m_0$  程度に急激に(但し連続的に)変化し、 $S \gg 1$  のときには、後者の状態が自縛自縛状態となる。

7)  
 以上のような近似解は、「ずれぼけ行列の方法」における内部の解とみることができ、(2)以外の部分空間からの寄与をとり込むことは形式的には容易であつて、吸収スペクトルは、(7)の根にずれとぼやけを加えた非対称ローレンツ曲線の系列として書き下すことができる。そのようなずれとぼやけを計算することは現在検討中であるが、光吸収スペクトルの能率

$$M_\ell = \frac{1}{N} \sum_n \sum_m \langle 0 | a_p H^\ell a_m^+ | 0 \rangle \quad (\ell = 0, 1, 2, \dots) \quad (9)$$

を調べると、この近似解によるスペクトルの能率は、 $l=0\sim 3$ については、厳密に(9)に一致することがわかるので、最終的に求めるべきスペクトルも、ここで求めた近似的なスペクトルとあまり著しい違いはないように思われる。

また、この近似の範囲内で有限温度のスペクトルを求めることや、発揮スペクトルを求めることは、(7)、(8)の解を使えば、極めて容易に実行できる。

### 文 献

- 1) Y. Toyozawa ; "Dynamical Processes in Solid State Optics" ed. Kubo and Kamimura, Syokabo, 1967, p.90
- 2) Y. Toyozawa ; ISSP Technical Report A373 (1969)
- 3) L. Van Hove ; Physica 21 (1955) 901
- 4) Y. Toyozawa ; J. Phys. Chem. Solids 25 (1964) 59
- 5) Y. Toyozawa and J. Hermanson ; Phys. Rev. Letters 21 (1968) 1637  
Y. Toyozawa ; ISSP Technical Report A369 (1969)
- 6) Y. Toyozawa ; Prog. Theor. Phys. 26 (1961) 29,  
"Polarons and Excitons" ed. Kuper and Whitfield, p.211
- 7) Y. Toyozawa, M. Inoue, T. Inui, M. Okazaki and E. Hanamura ; J. Phys. Soc. Japan 22 (1967) 1337

### 磁場によつて誘起されるポーラロン効果 (I)

九大教養 中山正敏  
住 齋

磁場中の有極性結晶中の0フォノンランダウ準位(または付随した励起子)