

3. BiI_3 結晶に於ける励起子の磁気光効果

小 池 一 良

1. 励起子の磁気光効果

励起子は電子と正孔がクーロン相互作用によって束縛された状態であり、絶縁体の励起状態の一つとして物性研究上重要な役割を演じている。励起子には、小さなクーロン相互作用のため、軌道半径が大きい Wannier型と、大きなクーロン相互作用のため、軌道半径が極端に小さい Frenkel型、及び、その中間的なものが考えられる。これまで、磁気光効果は主に Wannier型に於て、比較的低磁場で調べられており、その軌道の大きさによる高エネルギー側への反磁性シフトが観測される。軌道半径が小さい場合には電子-正孔交換相互作用が内部エネルギー構造に於て重要となるが、その磁場効果は小さく、観測には強磁場が必要である。

BiI_3 の励起子には小さな軌道半径の、直接励起子、間接励起子、積層欠陥励起子(Q、R、S、T)の三種類がある。これらの内部構造については今まで不明であった。直接励起子については、その反射スペクトルの示す特徴からcationic励起子モデルが提唱されていた。本研究では、パルス強磁場下での詳細な磁気光効果の実験と、モデルに基づいた数値計算を行い、それらの結果を比較検討した。発表会では積層欠陥励起子についての結果を主として述べる。

2. 励起子のモデル

BiI_3 の価電子帯の頂上及び伝導帯の低部は、それぞれ Bi^{3+} のs軌道とp軌道からなると考えられ、 BiI_3 の母体励起子は Bi^{3+} のs-likeの正孔とp-likeの電子からなるcationic励起子モデルで説明されている。このモデルに基づいて、結晶場分裂、クーロン相互作用、交換相互作用、スピン軌道相互作用を考慮し、その行列表示に於ける対角化を行い、固有値と固有関数を求めた。これにZeeman効果を考慮し、磁場下での状態を得た。各相互作用のエネルギーはパラメーターとして導入した。

BiI_3 は層状結晶であり、結晶の成長過程で積層順に不整が生じた状態(積層欠陥)が起こりやすい。母体励起子は積層欠陥に束縛され、積層方向の運動を妨げられると考えた。これを積層欠陥励起子と呼ぶ。この効果を新たなパラメーターとして母体励起子の行列要素に導入し対角化を行うことによって、積層欠陥励起子の固有値、固有関数を求めた。さらにZeeman効果を考慮し磁場効果を計算した。

3. 実験及びモデル計算の結果

母体励起子の磁気光効果は Wannier型で知られている結果とは異なり、負のエネルギーシフト等特異な性質を示した。積層欠陥励起子における磁場効果は磁場方向に大きく依存し、磁場方向が積層面に平行な場合の方が、垂直な場合よりもその効果は大きかった。磁場とともに成長する新たな構造が観測された。

モデル計算の結果、これらの振舞いはcationic励起子に共通した特徴であることがわかった。新たな構造は電子-正孔交換作用によって分裂した禁制レベルが、磁場によって許容となった結果である。これらの結果から、励起子の種々のパラメーターが得られた。

4. まとめ

磁気光効果の実験結果とモデルに基づく計算結果は、 BiI_3 における母体励起子及び積層欠陥励起子が軌道半径の小さなcationic励起子の有する特性を良く反映することを示した。このモデルは積層欠陥励起子の吸収強度や偏光特性をも良く説明する。