

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

中央大 理工 木井敏郎

§ 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関係のエネルギー準位及び吸収スペクトルに与え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格子点のみに生じ得る最子化された 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静電相互作用ポテンシャルにおける電子の散乱を論じて成り立つ Koster-Slater¹⁾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 Izyumov²⁾ Callaway³⁾たち)によって定められた Green 関数⁴⁾の方法に

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

$$G_{mn}^{(0)}(E) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{e^{i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_n - \mathbf{R}_m)}}{E - E(\mathbf{k})} \quad \text{の要素}$$

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

で与えられるもので、第 1.1 図に描いた曲線 $N^{(0)}(E)$ 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 $F^{(0)}(E)$ の概形も同図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、以下のとおりであつて、第 1 の Introduction はまさに筆者の勝手に入れたものである。序論というより紹介の表題はこれを表わしている気持である。識者には全く無用の蛇足(蛇足歟?)であろう。張氏は現在海外にあるのでその原著者に対して承知をとることは略させていただいた。

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

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

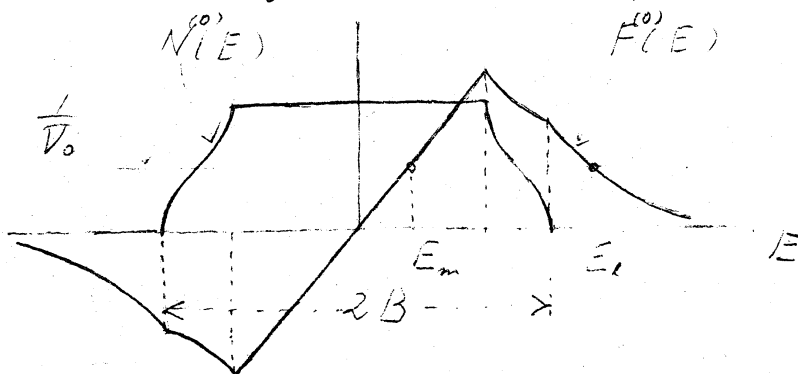
によつて與えられる。(式(1.1)の第3般以下無振動系を示す角符0を略す) ここに E_m は ΔE の最大値を與ふる ~~E の値~~ E の値で略す

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

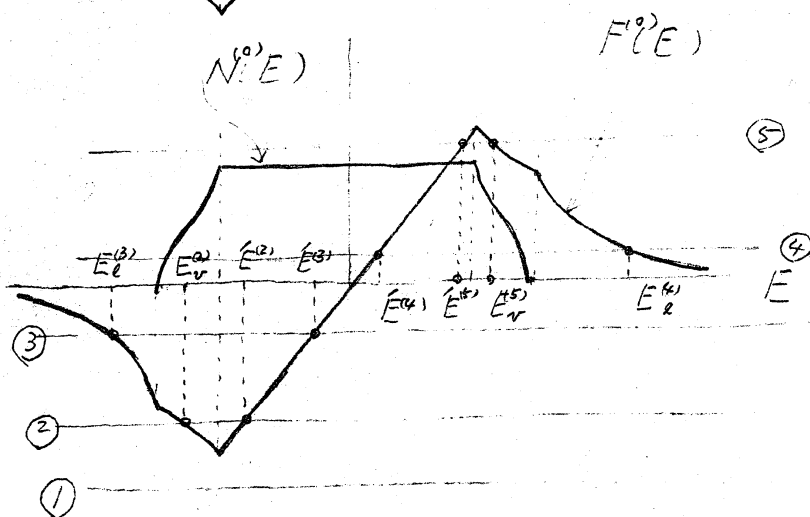
の根で與えられるものであり、 $P_0(E)$ は共振を示す半値巾のオーダーを與ふる量で近似的に

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

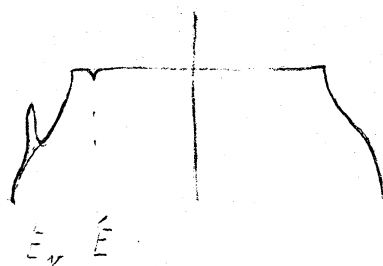
1. 図1に $V_0 > 0$ とする (半反接局所ポテンシャル) と、(4), (5) のエネルギー局所化 ~~位置~~ ^{位置 $E_L^{(0)}$} の位置 $E_V^{(0)}$ が図4と(3)。



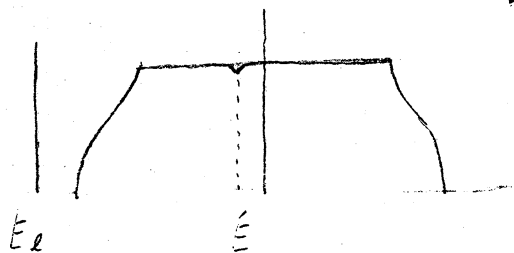
第1.1図



第1.2図



第1.3a図



第1.3b図

以上は $Koster-Slater$ 理論から来る ^{局所的} 不純物の格子状態
 密度に対する影響を暗示したものであるが 張 紀久文氏は最
 最近 ρ の (2.1) で与えられる励起子-音子の複合型に
 対して $Koster-Slater$ に代った取組を行い 自由な励
 起子と自由な音子系の合成 [図 2.1 (国)] に図的に示す [か
 ら局在化した励起子と音子系の合成系 [図 2.2 国] に図
 的に示す] の 両極限の両者を連らぬ一般合成状態に対
 して両極限が相対的に同じように変化する傾向を調べる
 ようという目的で先ず ρ 2 に示すようなモデルに就いて
 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形式であるがこの合
 場に来るおられる格子 Green 関数の導出あたりの批評
 と助言を得られたならば我々以下に氏の研究の要旨を説明
 する次第である。

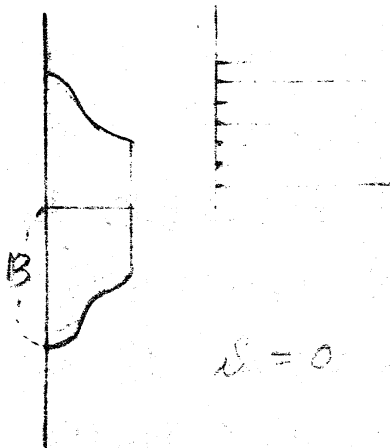
ρ 2 正統的考察

張氏は ρ 3 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
 を与えている、 $N(E)$ は (3.6) の与えらる $\epsilon(\mathbf{k})$ を
 用いて

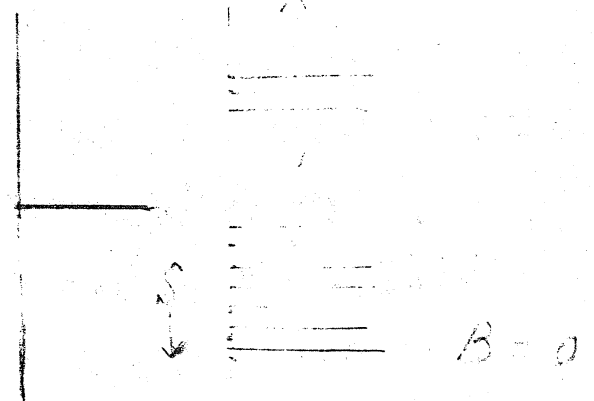
$$2B = -2\epsilon(0)$$

の与えらることを示した。これは自由な音子系のエネルギー

一準位 ρ , $\rho = 0, 1, 2, 3 \dots$ (零エネルギーを除く)
 2) とおきの準位を合成したものの固有系が相互作用を無視した
 完全に向向起子と音子の合成系の準位 ($S=0$ の場合)
 は第2.1図 である。



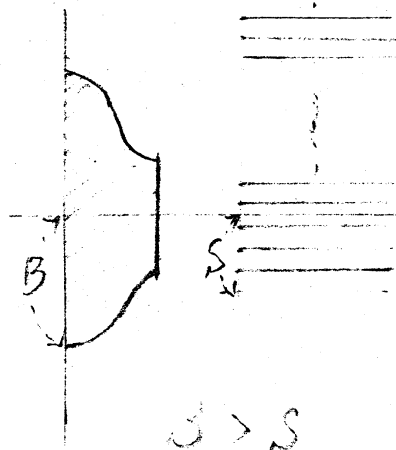
第 2.1 図



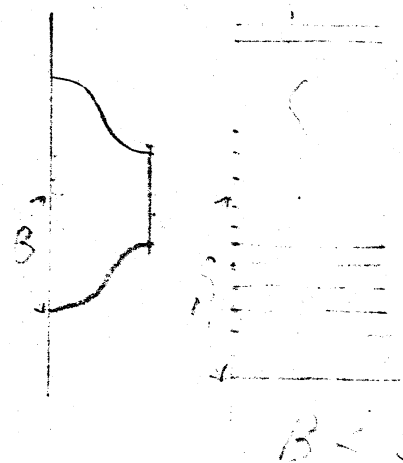
第 2.2 図

これに対して完全に向向化した起子 (格子音子 $\rho=0$ にあつた) と $\rho=0$ 格子音子に向向する音子系の結果を準位に合成して得たものは第2.2図である。

実際は系は向向 $B \neq 0$, $S \neq 0$ でありまた相互作用を考慮に入れれば第2.3.及び第2.4図のようにあつたと思われ。



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すれば十分である。音子は格子点 n だけに $0, 1, 2, \dots, p, \dots$ 個存在する場合を考慮する。エネルギーは原子単位に比べ、前者励起子1個のエネルギー ε_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1個あるモデル Hamiltonian は次式で表えられる。

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

ここに $a_m^{\dagger}, a_m$ 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), $b^{\dagger}, b$ 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) で音子は唯一の格子点 n だけに生成滅するものとして添字 n を省略した。

$v_{m'm}$ は励起子が $m' \rightarrow m$ に移るときに移動エネルギー (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) 補正を行うための付加項であるが、計算の途中では $\sigma = 0$ として計算を進める。

このような固有 ket (bra) の基底を

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

にとる (但し $|0\rangle, \langle 0|$ は励起子及び音子と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 (2) を用い、基本の対関係

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

を利用すれば

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

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

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

を用いて書き直すとにより、(3.4) の諸式は次の代りに

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

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

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

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

から(2)が得られる。

(3.7)

一般の H の固有ベクトル $|\lambda\rangle$ を

$$|\lambda\rangle = \sum_{k,p} C_\lambda(k,p) |kp\rangle \quad \text{ただし} \quad (3.8)$$

これは固有値 E_λ は $H|\lambda\rangle = E_\lambda |\lambda\rangle$ に代入

して得られる連立方程式

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

に対する連立方程式を解いて得られるわけである。

励起子に固有格子状態を $|m, p\rangle$ と用い

る

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

に表わす Green 関数はその定義から

$$d_{\lambda}(n, p) = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{ikn} c_{\lambda}(k, p) \quad (3.10)$$

の値があるが計算の結果

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

なる p に (1) としてこの漸化式を繰り返して行くと (3.11) になる。ただし、ここに $G_0(E_{\lambda})$ は ^{完全格子に (2.33)} 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 で表わせば

(3.11) は

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

(3.13) の D_p の解析的表現が求まれば表晶の励起子の問題に (1) として様々な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な見通しを得ることはできない。格子 Green 関数の異同等々への御意見が伺えればありがたい。

なお (3.13) は特殊な場合として Laguerre の関数に対してある漸化関係の一般化と見做せることが出来ることを付記する。

$$\text{あるいは} \quad D_p \equiv \sqrt{\frac{p!}{Sp}} L_p \quad (3.14)$$

とあると L_p は

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

$G_0(E-p) = 1/(E-p)$ といふ、
と取りその特別な場合には $E = \ell - S$ とすると L_p は

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

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

が満足していることが示される。

$$(m+1)L_{m+1}^{\alpha-(m+1)}(S) + \{S - \alpha + m\} L_m^{\alpha-m}(S) + S L_{m-1}^{\alpha-(m-1)}(S) = 0$$

と一致した形になる。

(3.17)