

氏 名	迫 田 昭 一 郎 さこ だ しょういち ろう
学 位 の 種 類	理 学 博 士
学 位 記 番 号	理 博 第 291 号
学 位 授 与 の 日 付	昭 和 48 年 7 月 23 日
学 位 授 与 の 要 件	学 位 規 則 第 5 条 第 1 項 該 当
研 究 科 ・ 専 攻	理 学 研 究 科 物 理 学 第 一 専 攻
学 位 論 文 題 目	励起子吸収曲線の研究 — 縮重励起子と格子の相互作用 —
論文調査委員	(主 査) 教 授 松 原 武 生 教 授 富 田 和 久 教 授 中 井 祥 夫

論 文 内 容 の 要 旨

結晶中を波として伝播する電子励起，すなわち励起子の概念は早く 1930 年代に Frenkel によって提出され，その後 Wannier により電子のバンド理論の立場で再構成された。固体の分光学的研究から，絶縁体の光吸収スペクトルの基礎吸収帯端長波長側に現われる強い吸収ピークがこれに相当するものであることは，1950 年代になって始めて確立されたものである。このピークの形状すなわち励起子吸収曲線の研究は，種々の絶縁体の電子励起状態の系統的知識を多様な分光実験結果との対比において得るために極めて重要なものである。その最初の一般的な理論は 1958 年 Toyozawa によって展開され，電子格子相互作用が吸収曲線の形状因子（線幅，シフト，非対称因子等）におよぼす機構の骨子が解明された。一方実験データの集積とともに，現実の絶縁体特にアルカリ・ハライド結晶においてはバンドの単純でない構造すなわち「縮重」を理論の中に取り入れることが必要となる。

申請者は，バンドの縮重がもたらす励起子吸収線の形状変化について以下に述べる重要な効果を考慮し，弱結合，強結合の二つの場合に対応するモデル計算を実行して前述の Toyozawa 理論を深めたものである。

第 1 部 弱い励起子格子相互作用。吸収線の形状は本質的には Toyozawa 理論の非対称ローレンツ型の取り扱いに属するものであるが，そこでは単純バンドの仮定から低次摂動の範囲内で線幅が零となる欠陥が Toyozawa 自身によって指摘されており，これを救うため高次摂動効果を取り入れる試みがなされていた。申請者はバンドの縮重を取り入れる場合，電子正孔間の交換相互作用によっていわゆる三重項励起子の状態への散乱確率のために有限の線幅が導かれることを指摘した。この考察に基いて典型的な例である KBr の励起子に対する吸収線の形状をもっとも現実にもっとも現実に近い数値計算によって書き，上述の欠陥を克服することを果たしたものである。

第 2 部 強い励起子格子相互作用。電子格子相互作用が軌道状態におよぼす影響としてその縮重がもっとも本質的に露呈する現象はいわゆる Jahn-Teller 効果と考えられ，相互作用が強い場合の不純物準位間

光吸収スペクトルの分裂として顕著に観測されるのが常である。しかしながら、結晶全体に拡がった励起子状態にこのようなことが生ずるか否かは、理論的にも実験的にも興味ある未解決な問題であった。申請者はこの問題を、① Frenkel 励起子の模型、②格子振動の運動エネルギーを分離する古典近似、③相互作用を電子に対するランダムな作用とみなすコヒーレント・ポテンシャルの近似、を採用して定式化し、結果として不純物の場合と全く同様な現象が観測され得ることを示したものである。

論文審査の結果の要旨

1958年 Toyozawa によって提出された励起子吸収曲線の形状に関する一般理論は、当時磁気共鳴吸収曲線の研究の一つの主題であった「運動による吸収曲線の尖鋭化現象」の理論を光吸収の場合にあてはめ、励起子の運動の速さ（概念的にはその分散曲線のひろがりすなわちバンド幅）と、励起子-格子振動間相互作用の強さとの対比において、吸収線の形状を分類的に考察するものであり、一般に弱結合の場合、非対称性ローレンツ型曲線、また強結合の場合、ガウス型曲線となることを示している。ここに弱結合、強結合とは、励起子バンド幅に比し相互作用定数が小さいまたは大きいことを意味する。当時、1950年後半から60年代にかけて、絶縁性固体の光学スペクトルの研究は新しい分光実験の手段の開発によって著しい進展を見せた時期であり、そのバンド構造および励起子構造が各種の固体についてきわめて詳細に知られるようになった。従って、吸収曲線の形状に関する Toyozawa 理論がこの種の実験研究に有力な指針を与えるものとされたのであるが、同時にその理論の当否の検討にはこれらのバンド構造の多様性を取り入れることが不可欠となったわけである。

一般に多様なバンド構造を考慮した理論を展開することは極めて困難なことであるが、申請者は典型的なアルカリ・ハライドのバンド構造すなわち価電子帯がスピンを含め六重に縮重していることに着目し、その縮重性が光スペクトルにおよぼす効果として、ローレンツ型曲線の幅の確定値を与える問題と励起子 Jahn-Teller 分裂の可能性の問題に明快な解答を与えたものということが出来る。

すなわち第一の問題については、Toyozawa 理論において単純無縮重の仮定から $k=0$ での励起子バンド状態密度がなく実は有限の線幅が与えられていなかったのであるが、縮重性のために生ずるいわゆる三重励起子状態へのフォノン散乱がこの結果を訂正して有限確定の線幅を与えることを示したのである。具体的 KBr に励起子Cバンドに対して申請者が実行した計算結果によれば、この結晶の他の実験にもとづく有効質量および変形ポテンシャル定数の適切な値を用いて、観測された吸収線形状をよく再現するものであることがわかる。

第二の問題については、Jahn-Teller 分裂のダイナミカルな機構を厳密に取り扱うことが数学的に困難であることから、強結合の場合しばしば有効な手段としてひろく認められている古典近似（格子振動の運動エネルギーと相互作用との非交換性を度外視して前者をハミルトン形式から分離する）を採用して吸収線の概略図を描き、定性的に分裂の生ずることを示したものである。その際、振動子系の運動エネルギーの分離に伴って、相互作用が励起子系に対するランダム力とみなされることから自然な考え方として、最近有力な手段とみなされているコヒーレント・ポテンシャルの方法を活用して定式化を行った。定性的な結論を得るべく相互作用定数対バンド幅のパラメタに対し分裂の様相が如何に変化するかを示しているが、

それによればパラメタ零の極限で不純物の場合の対称な分裂に一致，その反対極限で分裂の消失，中間値では一般に短波長側にショルダーとして現われる。また一つの興味ある結果はこのようなパラメタの変化に対し全吸収線面積が常に一定に保たれるという総和則である。これらの結果は，今後実験的に励起子 Jahn-Teller 分裂を観測するための有力な指針となろう。

以上により，申請論文は Toyozawa 理論をより実地的なものに深化し，かつ今後の実験研究を勇気づける価値をもつものと考えられる。申請者がすでに当該光物性研究分野において幾つかの優れた研究結果を発表していることを合わせ考えれば，本論文は理学博士の学位論文として価値あるものと認める。

なお，主論文の調査に際しては，その一部を，長谷川 洋助教授に依頼したことを附記する。