

磁場中の Polaron の運動

波田野 彰 (東大教養物理)

中山 正 敏 (東大教養基礎科学)

[11月4日受理]

§ 1 Introduction

有極性結晶中では電子は格子の変位分極との相互作用が強いために、band の状態に更に光学 phonon の雲を伴った quasi-particle— polaron として振舞うということは、Fröhlich 以来多くの人々によつて理論的に検討されてきた¹⁾。近年、銀，アルカリハライド結晶製作の技術の進歩に伴つて、これらの結晶の intrinsic な電子的性質の実験的研究もようやく盛んになつてきている²⁾。これらは既存の polaron 理論の検証として役立つであろうが、一方では具体的な物質の電子的構造の解明に役立つ理論の展開を要求している。この論文では、一様な静磁場が polaron の運動に及ぼす影響について考察することにしてしよう。

立方反転対称の結晶で、電子の band が $k=0$ に極小をもち縮退していない場合を考えることにする。磁場がない時の polaron の energy の計算は多くの人によつてなされているが、この論文では、我々はくり込みの方法によつた。この方法は § 2～3 で詳述するが、quasi-particle としての polaron の運動を表す Hamiltonian を運動量 p の函数として $\epsilon(p)$ の形で与える。さて一様な静磁場の影響は vector potential A が有界でないので、単純な摂動論では扱えない事がよく知られている。band の場合には、Hamiltonian は $\pi = p + \frac{e}{c}A$ として $\epsilon(\pi)$ と書ける部分 (有効質量近似) と、それに対する補正項として表される。補正項もまた、 π の函数であるが、その他にあらたに磁場を含んでいる。この磁場への依存性は、 π の成分が非可換であることに由来している。我々は § 4 でこの考えを polaron の場合に適用し、Hamiltonian を $\epsilon(\pi; H)$ の形で求めた。 $\epsilon(\pi; H)$ の π の函数としての形が H に依存して ϵ から変化するの、磁場によつて電子の運動が変化するため光学 phonon の雲が変化するためである。このため基底状態のエネルギー、有効質量の磁場によ

る変化が起りうる。この効果は、 $\alpha(\omega_c/\omega)^2$ の程度であつて、band の場合に期待される効果 $(\hbar\omega_c/4E)^2$ に比べてかなり大きく、実験で検証される可能性があると期待される。

§ 2 Canonical 変換と Renormalization

静磁場中での電子-格子系を連続体近似による Fröhlich の Hamiltonian で表そう。

$$\left. \begin{aligned} H &= H_0 + H_{ph} + H_I \\ H_0 &= \pi^2 \\ H_{ph} &= \sum_k a_k^\dagger a_k \\ H_I &= \sum_k \{ V_k a_k e^{ikr} + V_k^+ a_k^\dagger e^{-ikr} \} \end{aligned} \right\} (1)$$

ここで

$$\pi = p + \frac{e}{c} A \quad (2)$$

$$V_k = -\frac{i}{k} \sqrt{\frac{4\pi\alpha}{V}} \left(\frac{\hbar}{2m\omega} \right)^{3/4} \quad (3)$$

$$\alpha = \frac{e^2}{2\hbar c} \sqrt{\frac{2mc^2}{\hbar\omega}} \left(\frac{1}{n^2} - \frac{1}{\epsilon} \right) \quad (4)$$

である。但しつぎのような単位を用いる。

$$\text{energy} : \hbar\omega$$

$$\text{momentum} : \sqrt{2m\hbar\omega}$$

$$\text{磁 場} : \frac{1}{2} \left(\frac{\omega_c}{\omega} \right) \equiv s$$

ω は optical phonon の frequency, ω_c は cyclotron frequency ($\omega_c \equiv \frac{e}{mc} H$), m は band electron のはだかの mass である。

ここで1)の H_0 の部分をくり込んだ polaron quasi-particle を表わす Hamiltonian $\tilde{H} = \epsilon(\pi)$ を使つて形式的に書きなおす。

$$H = H + H_{ph} + H_I + \Delta H \quad (5)$$

$$\Delta H = H_0 - \tilde{H} \quad (6)$$

(5)の Hamiltonian に対して次のような canonical 変換を行う。

$$U = e^S \quad (7)$$

$$\mathcal{H} = U H U^{-1} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} &= \tilde{H} + H_{ph} + [S, \tilde{H} + H_{ph}] + H_I \\ &\quad + \frac{1}{2} [S, [S, \tilde{H} + H_{ph}]] + [S, H_I] + \Delta H \\ &\quad + (S \text{ に関する higher order}) \end{aligned} \quad (9)$$

ここで、 H_I のうちで virtual process を表す部分を 1st order で消すように S をえらぼう。

$$[S, \tilde{H} + H_{ph}] + H_I = 0 \quad (10)$$

それには S の形として

$$S = \sum_k S_k = \sum_k (a_k f_k(\pi) e^{ikr} - a_k^\dagger f_k^\dagger(\pi) e^{-ikr}) \quad (11)$$

とおく事にする。この $f_k(\pi)$ は電子に対する operator である点を注意しておく。(11)を(10)に代入する事により、 $f_k(\pi)$ を決める方程式として

$$[f_k(\pi), \epsilon(\pi)] + f_k(\pi) \{ \epsilon(\pi - k) - \epsilon(\pi) + 1 \} = -V_k \quad (12)$$

を得る。

つぎにこの $\epsilon(\pi)$ を決定する方程式として

$$\frac{1}{2} [S, H_I]_d + \Delta H = 0 \quad (13)$$

但し $[\dots]_d$ はこの operator の phonon 座標を含まぬ部分をあらわす。以上の手続きによつて $\mathcal{H}$ は S の二次まででは

$$\mathcal{M} = \epsilon(\pi) + H_{\text{ph}} + H_{\text{I}}^{(\text{real})} + \frac{1}{2} [S, H_{\text{I}}]^{(\text{phonon})} \quad (14)$$

と求められる。

我々は上の $\epsilon(\pi)$ を一般的に求めることはむづかしいので近似的な計算を行うことにする。即ち $\epsilon(\pi)$ を π に関して展開したとき π^2 の係数のみを self-consistent に決定し、高次の係数は、それを用いて表すことにする。即ち

$$S \rightarrow S_0$$

$$[S_0, \epsilon_0(\pi) + H_{\text{ph}}] + H_{\text{I}} = 0 \quad (10')$$

$$\frac{1}{2} [S_0, H_{\text{I}}]_{\text{d}}^{(\pi^2 \text{ まで})} + \Delta H_0 = 0 \quad (13')$$

$$\epsilon_0(\pi) = a + b\pi^2 \quad (15)$$

のごとく近似する。したがって (12) は

$$[f_k(\pi), \epsilon_0(\pi)] + f_k(\pi) \{ \epsilon_0(\pi - k) - \epsilon_0(\pi) + 1 \} = -V_k \quad (12')$$

となる。この近似の結果は (14) で

$$\epsilon(\pi) = \epsilon_0(\pi) + \frac{1}{2} [S_0, H_{\text{I}}]_{\text{d}}^{(\pi \text{ の } 4 \text{ 次以上})} \quad (16)$$

とおいた形で $\mathcal{M}$ が求まる。もし $\epsilon_0(\pi) = \pi^2$ とおけばこれは完全に摂動展開となり S^2 まで求める計算では a^1 までの結果が得られる。ここでの方法は諸係数が $a F(b(a))$ の形で得られ、これは単なる摂動ではない。 $\epsilon_0(\pi)$ として四次以上の項を含めることは、それらは $a^2 F(b, \dots)$ の形の寄与を与えることになる。また S の高次の項の寄与も同じ order であることを注意しておこう。

§ 3 磁場がない場合

§ 2 での一般的な議論をまず磁場 $H = 0$ の場合に適用してみよう。この場合 $\pi = p$ である。 $\epsilon(p)$ は一般につきのように p^2 の巾で展開される。

$$\epsilon(p) = a + bp^2 + cp^4 + dp^6 + \dots \quad (17)$$

また

$$[f_k(p), \epsilon_0(p)] = 0 \quad (18)$$

が成り立ち、従つて(12')から $f_k(p)$ は

$$f_k(p) = -\frac{V_k}{\epsilon_0(p-k) - \epsilon_0(p) + 1} \quad (19)$$

$$= -\frac{V_k}{b k^2 - 2b(p \cdot k) + 1} \equiv -\frac{V_k}{g_k(p) - 2b(p \cdot k)} \quad (20)$$

一方(1)及び(11)から

$$\frac{1}{2}[S, H_1]_d = \frac{1}{2} \sum_k (f_k(p) V_k^\dagger + f_k^\dagger(p) V_k) \quad (21)$$

$$= -\sum_k \frac{|V_k|^2}{g_k(p) - 2b(p \cdot k)} \quad (22)$$

ここで(22)の分母の p を展開し、 k の和を積分に置きかえ V_k に(3)を代入する。

その結果

$$\frac{1}{2}[S, H_1]_d = -a \frac{2}{\pi} \int_0^\infty dk \sum_m (2b)^{2m} \frac{\langle (p \cdot k)^{2m} \rangle_Q}{g^{2m+1}} \quad (23)$$

$$= -a \sum_m \frac{\{(2m-1)!!\}^2}{(2m+1)!} b^{m-\frac{1}{2}} p^{2m} \quad (24)$$

ここで $\langle \dots \rangle_Q$ は k の angle 平均である。以上から

$$a = -\frac{a}{\sqrt{b}} \quad (25)$$

$$b = 1 - a \frac{\sqrt{b}}{6} = \left[\sqrt{1 + \left(\frac{a}{12}\right)^2} - \frac{a}{12} \right]^2 \quad (26)$$

$$b^{-1} = \frac{m^*}{m} = 1 + \frac{a}{6} + \frac{a^2}{72} + \left(\frac{a}{12}\right)^3 + \dots$$

$$c = -\frac{3}{40} a b \sqrt{b} \quad (27)$$

$$d = -\frac{5}{7 \cdot 2^4} a b^2 \sqrt{b} \quad (28)$$

を得る。

この a , b の値は Green 函数法で Hartree-Fock 近似で切断を行ない、mass operator $\Sigma(k, \omega)$ の ω 依存性を無視した結果と一致する²⁾。また a , b , c , d は a^1 まででは L.L.P. と一致する。

§ 4 磁場が存在する場合

$\epsilon(\pi)$ の函数形は s を parameter として $\epsilon(\pi_{\perp}^2, \pi_{//}^2; s)$ の形をしていることが対称性から判る。但し $\perp$, $//$ は磁場に関し、垂直、平行な成分を表すものとする。energy level は n を量子数として

$$E_n(n, p_{//}) = \epsilon(2(n + \frac{1}{2})s, p_{//}^2; s) \quad (29)$$

で与えられる。energy の固有値を s^3 まで求めるには ϵ の π , s での展開で次式の項まで計算すればよい。

$$\begin{aligned} \epsilon(\pi; s) = & a + b\pi^2 + c\pi^4 + d\pi^6 \\ & + s^2(a' + b'\pi^2 + e\pi_{//}^2) \end{aligned} \quad (30)$$

これらの係数を $aF(b(a))$ の order まで求めるには、§ 2 の手法に従つて $\epsilon_0(\pi) = a + b\pi^2$ として b まで self-consistent に決めれば充分である。

今度は $\epsilon_0(\pi)$ と $f_k(\pi)$ とは commute しないから $f_k(\pi)$ を決める式として (12') を用い、 $f_k(\pi)$ について

$$f_k(\pi) = f_k^0(\pi) + s f_k^1(\pi) + s^2 f_k^2(\pi) \quad (31)$$

として各々求めることにする。 π の成分の間の交換関係

$$\pi \times \pi = \frac{\hbar}{i} \quad (32)$$

から、公式

$$[\pi, G(\pi)] = -\frac{\hbar}{i} (\mathbf{n} \times \nabla_{\pi}) G(\pi) \quad (32)$$

を使つて計算すれば磁場 s^0, s^1, s^2 について(12')は各々

$$f_k^0(\pi) \{ b k^2 - 2b(\pi \cdot k) + 1 \} = -V_k \quad (33)$$

$$2 \frac{b}{i} \pi (h \times \nabla_\pi) f_k^0(\pi) + f_k^1(\pi) \{ b k^2 - 2b(\pi \cdot k) + 1 \} = 0 \quad (34)$$

$$2 \frac{b}{i} \pi (h \times \nabla_\pi) f_k^1(\pi) - b (h \times \nabla_\pi)^2 f_k^0(\pi) + f_k^2(\pi) \{ b k^2 - 2b(\pi \cdot k) + 1 \} = 0 \quad (35)$$

となる。但し上で用いた h は H の単位 vector である。これから (21) で p を π で置き変えた式を用いて $\mathcal{M}$ が計算される。その結果 $f_k^1(\pi), f_k^2(\pi)$ は (30) の a', b', e への寄与を与える。更に $f_k^0(\pi)$ の π による展開は § 3 の (23) で p を π で置き変えたものになるのだが $\langle (\pi \cdot k)^4 \rangle_0, \langle (\pi \cdot k)^6 \rangle_0$ の項を π^2 に関する対称式になおす際、 π の非可換性からやはり a', b', e への寄与を与える項があらわれる。即ち

$$\langle (\pi \cdot k)^4 \rangle_0 = \frac{k^4}{5} \{ (\pi^2)^2 + s^2 \} \quad (36)$$

$$\langle (\pi \cdot k)^6 \rangle_0 = \frac{k^6}{7} \{ (\pi^2)^3 - 5s^2 \pi^2 + 2s^2 \pi^2_{//} \} \quad (37)$$

となる。

以上をまとめて (30) の諸係数を求めると $a, b, c, d \dots$ は § 3 の結果に一致し a', b', e は各々

$$\left. \begin{aligned} a' &= a \frac{11}{480} b \sqrt{b} \\ b' &= a \frac{23}{2^6 \cdot 3 \cdot 7} b^2 \sqrt{b} \\ e &= a \frac{1}{2^2 \cdot 3 \cdot 7} b^2 \sqrt{b} \end{aligned} \right\} \quad (38)$$

となる。

§ 5 Discussion

磁場中の polaron の ground state ($n=0, p_{//}=0$) の energy E_0 は、

$\epsilon(0, H)$ の磁場依存性と cyclotron 運動の 0 点 energy を加え合せて、つぎのようにまとめられる。

$$E_0 = -a^* + \frac{1}{2} \left(\frac{\omega_c^*}{\omega} \right) + \frac{a^*}{240} \left(\frac{\omega_c^*}{\omega} \right)^2 + \frac{a^*}{2^4 \cdot 3 \cdot 7} \left(\frac{\omega_c^*}{\omega} \right)^3 + \dots \quad (39)$$

$$a^* = a/\sqrt{b}$$

$$\omega_c^* = b\omega = \frac{e}{m^* c} H$$

また $p_{\parallel} = 0$ での Landau level の間隔 $\Delta E = E(n+1, 0) - E(n, 0)$ は

$$\begin{aligned} \Delta E = \left(\frac{\omega_c^*}{\omega} \right) \left\{ b + \frac{1}{4} b' \left(\frac{\omega_c}{\omega} \right)^2 \right\} \\ + \left(\frac{\omega_c}{\omega} \right)^2 \left\{ 2(n+1)c + \left(3n^2 + 6n + \frac{13}{4} \right) d \left(\frac{\omega_c}{\omega} \right) \right\} \end{aligned} \quad (40)$$

である。最近 Larsen は Lee-Low-Pines の方法を磁場がある場合に拡張し、energy を s^2 の order まで計算した³⁾。(39), (40) の結果は a^1 の order までは Larsen の結果と (従つて摂動計算とも) 一致* する。

(40) は Landau level の間隔は等間隔 $\left(\frac{\omega_c}{\omega} \right)$ から磁場と n に依存してずれることを示すが、その原因を二つに分けることができる。まず (40) の第二行目の項であるが、これは polaron band について有効質量近似を行つた時、band が non-parabolic であるために生じたものである。これに対して第一行の b' による項は、band の底の曲率——つまり effective mass 自身が磁場の二乗に比例した変化分をもつことを表している。

energy に対して、 s^3 の寄与を与えるこの項は、Larsen の計算には含まれていない。彼は、(40) の $2c \left(\frac{\omega_c}{\omega} \right)^2$ の項を mass shift と解釈しているが、それは ϵ の函数形の変化とは関係したものではない。

band の底の曲率の変化を有効質量の変化として表すと次の様になる。

$$\begin{aligned} \Delta \left(\frac{m_1^*}{m} \right) &= -b^{-2} b' s^2 = -0.017 a \sqrt{b} \left(\frac{\omega_c}{\omega} \right)^2 \\ \Delta \left(\frac{m_{\parallel}^*}{m} \right) &= -b^{-2} (b' + e) s^2 = -0.029 a \sqrt{b} \left(\frac{\omega_c}{\omega} \right)^2 \end{aligned} \quad (41)$$

このように、磁場をかけると、垂直，平行方向共にわずかながら有効質量

は軽くなる。また異方性も生ずる。mass shift の計算はTulubによつても行われているが、その結果は、(41)とは異つて、 α の小さいところでは $\Delta m^* > 0$ であり、絶対値も一桁程度大きい。彼は基底状態等のenergyの計算は行っていない。⁴⁾

磁場に平行方向のmass shiftは磁気抵抗効果の縦効果に寄与する。polaronの場合、はだかのbandが球対称であつても縦効果が表れうることは電子構造の決定に関して興味がある。しかし、この効果は量的には非常に小さい。例えば、 $m = m_e$, $\alpha = 3$, $\omega = 10^{13} \text{ sec}^{-1}$ のとき、1%の効果を得るには約200 K O_e の磁場を必要とする。このような磁場では、polaronの分布に関する強磁場の効果が支配的となり、従つてmass shiftの効果を検証するのは困難であろう。

指導、討論していただいた金沢秀夫先生に感謝します。この研究は今夏北軽井沢の基研夏期研究施設で、大いに進行しました。付記して、謝意を表します。

References

- 1) Polaronに関する理論，実験の現状については“Polarons and Excitons” edited by C.G. Kuper and G.D. Whitfield. Oliver and Boyd. 1964
- 2) G. Whitfield : reference (1) p.183.
- 3) D.M. Larsen : Phys. Rev. 135 A (1964) A419.
- 4) A.V. Tulub : Soviet Physics J.E.T.P. 9(1959) 392.