

第4章 「光と磁気」の電子論

第4章の内容

第3章では、マクロスコピックな立場に立って、光を電磁波として扱いその伝搬という観点から磁気光学効果を論じた。そのポイントは、「磁化を持つ物質の誘電率テンソルの非対角成分は磁化に対し奇関数であり、これにより右回りの円偏光と、左回りの円偏光の伝搬の仕方に差が生じ、その結果として旋光性や円二色性を生じる」ということであった。この章ではミクロスコピックな立場に立って、物質中の電子と光の相互作用という観点から磁気光学効果を扱う。この扱いには二通りあって、ひとつは、電磁界のもとでの電子の運動を古典力学の運動方程式に基づいて扱い、比誘電率の表式を導くものであり、もうひとつは、量子力学の波動方程式に対する摂動論に基づいて扱い、物質の誘電応答を導くものである。量子論による取り扱いがなければ、強磁性体の磁気光学効果の大きさや、磁気光学効果が特有のスペクトルを持つことを説明できない。この章ではやや面倒な式がでてくるが、その誘導にとらわれず、その式のもつ物理的な意味をご理解いただきたい。

4.1 誘電率と分極

3章では、電束密度の電界に対する係数として比誘電率テンソル $\tilde{\epsilon}$ を定義した。一方、物質中における電束密度 D は、真空中の電束密度 $\epsilon_0 \mathbf{E}$ に物質の物質的分極 \mathbf{P} (単位体積あたりの双極子モーメント) がもたらす電束密度を加えたものとなっている。

$$\mathbf{D} \equiv \epsilon \epsilon_0 \mathbf{E} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (4.1)$$

一般に電気分極 \mathbf{P} は印加電界 \mathbf{E} に依存し、電気感受率テンソル $\tilde{\chi}$ を用いて

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \tilde{\chi} \mathbf{E} \quad (4.2)$$

と表すことができるので、式(4.1)より、比誘電率テンソルは電気感受率を使って

$$\tilde{\epsilon} = \mathbf{1} + \tilde{\chi} \quad (4.3)$$

のように書ける。ここに $\mathbf{1}$ は単位テンソルである。成分で書くと

$$\epsilon_{ij} = \delta_{ij} + \chi_{ij} \quad (4.4)$$

となる。ここに δ_{ij} は Kronecker のデルタである。電気感受率は物質の分極のしやすさの尺度であるから、比誘電率も分極のしやすさを表しているといえる。

前に書いたように、分極とは単位体積中にある電気双極子の総和を表している。物質に電界 \mathbf{E} を加えたときに正電荷 q と負電荷 $-q$ が相対的に \mathbf{u} だけ変位すると、 $q\mathbf{u}$ という電気双極子モーメントが誘起されるから、電気双極子の密度を N とすると、電気分極は

$$\mathbf{P} = Nq\mathbf{u} \quad (4.5)$$

と表される。従って、電界 \mathbf{E} を印加したときの電荷対の相対変位 \mathbf{u} を見積もることができれば、電気感受率が得られ、従って比誘電率テンソルも求められる。

4.2 誘電率の古典電子論と磁気光学効果

電子を古典的に扱い、高周波電界 \mathbf{E} と直流磁界 \mathbf{B} のもとでの運動方程式を立てると次式で与えられる。

$$m \frac{d^2 \mathbf{u}}{dt^2} + m\gamma \frac{d\mathbf{u}}{dt} + m\omega_0^2 \mathbf{u} = q \left(\mathbf{E} + \frac{d\mathbf{u}}{dt} \times \mathbf{B} \right) \quad (4.6)$$

左辺において、 m は電子の有効質量、 γ は衝突の確率で $\gamma = 1/\tau$ (τ は電子の平均自由時間=散乱の緩和時間)、 $m\omega_0^2 \mathbf{u}$ は電子が \mathbf{u} だけ変位したときの復元力を表す。ここに ω_0 は共振周波数である。一方、右辺はローレンツ力である。ここで、磁界は z 方向に向いていると仮定すると $\mathbf{B} = (0, 0, B)$ と表される。

光の電界が $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t)$ の形の高周波電界で表されるとすると、変位 $\mathbf{u} = (x, y)$ も同様に $\mathbf{u} = \mathbf{u}_0 \exp(-i\omega t)$ の形の高周波振動として表されるので、代入すると

$$-m\omega^2 \mathbf{u} - im\omega\gamma \mathbf{u} + m\omega_0^2 \mathbf{u} = q(\mathbf{E} - i\omega \mathbf{u} \times \mathbf{B}) \quad (4.7)$$

上の式を x, y, z 成分別で書くと

$$\begin{aligned} m(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)x - i\omega qBy &= -qE_x \\ i\omega qBx + m(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)y &= -qE_y \\ m(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)z &= -qE_z \end{aligned} \quad (4.8)$$

となる。この連立方程式を解くことにより、 $\mathbf{u} = (x, y, z)$ を求め式(4.5)に代入することにより、電界 \mathbf{E} の関数として \mathbf{P} が求められる。式(4.2)を使えば電気感受率 χ は次式で表される。

$$\begin{aligned}\chi_{xx}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\ \chi_{xy}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{i\omega\omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\ \chi_{zz}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}\end{aligned}\quad (4.9)$$

を得る．ここに、 $\omega_c = qB/m$ はサイクロトロン角周波数である．この式を誘電率に書き換えると次式を得る．

$$\begin{aligned}\varepsilon_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\ \varepsilon_{xy}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{i\omega\omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\ \varepsilon_{zz}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}\end{aligned}\quad (4.10)$$

式(4.10)において、分母第2項の ω_c^2 は磁束密度 B が低いときは無視できるので、比誘電率の対角成分はほとんど磁界に依存しない．一方、磁気光学効果に寄与する非対角成分は B にほぼ比例するので、電子の古典的運動によって磁気光学効果が導かれる．

式(4.10)を $\sigma_{ij} = -i\omega\varepsilon_0(\varepsilon_{ij} - \delta_{ij})$ を用いて伝導率に書き換えると

$$\begin{aligned}\sigma_{xx}(\omega) &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{i\omega(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\ \sigma_{xy}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m} \cdot \frac{\omega^2\omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\ \sigma_{zz}(\omega) &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{i\omega}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}\end{aligned}\quad (4.11)$$

以下では、いくつかの特別の場合について分けて考える．

① 磁界ゼロの場合：ローレンツの式

(4.10)式において、 $B=0$ 従って $\omega_c=0$ とすると

$$\begin{aligned}\varepsilon_{xx}(\omega) = \varepsilon_{zz}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2} \\ \varepsilon_{xy}(\omega) &= 0\end{aligned}\quad (4.12)$$

この式は、いわゆるローレンツ型の誘電分散スペクトルである． ε の非対角成分が 0 なので $B=0$ では磁気光学効果は生じない． ε_{xx} の実数部と虚数部について式を書き下すと、

$$\begin{aligned}\varepsilon'_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\omega^2 - \omega_0^2}{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + \omega^2\gamma^2} \\ \varepsilon''_{xx}(\omega) &= \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\omega\gamma}{(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + \omega^2\gamma^2}\end{aligned}\quad (4.13)$$

のように書ける．図 4.1 には式(4.22)で与えられる ε'_{xx} および ε''_{xx} のスペクトルの形状が示してある．3. 5節に述べたように ε' が分散型を示すのに対して ε'' はベル型を示し互いに相手の微分型になっていることを確認してほしい．

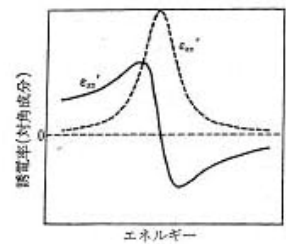


図 4.1 ローレンツ型スペクトル

②磁界がなく、束縛項もない場合：ドルーデの式

次に、式(4.12)において、磁界も束縛もない自由電子の場合を考える、すなわち $\omega_c=0$ 、 $\omega_0=0$ とすると、

$$\begin{aligned}\varepsilon_{xx}(\omega) = \varepsilon_{zz}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega(\omega + i\gamma)} \\ \varepsilon_{xy}(\omega) &= 0\end{aligned}\quad (4.14)$$

となる．この式を実数部と虚数部に分けて書くと

$$\begin{aligned}\varepsilon'_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 + \gamma^2} \\ \varepsilon''_{xx}(\omega) &= \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\gamma}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)}\end{aligned}\quad (4.15)$$

と書けるが、これは、いわゆるドルーデの式になっており、 $\omega \rightarrow 0$ のとき虚数部は無限大となる。 $\omega=0$ で実数部は負の大きな値をとり、ある周波数で負から正へと 0 を横切る。自由電子の散乱がない($\gamma=0$)として誘電率の実数部 ε' が 0 を横切る角周波数 ω_p を求めると、

$$\omega_p = \sqrt{\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}}\quad (4.16)$$

が得られる。 ω_p は自由電子の集団運動の固有振動数でプラズマ角周波数と呼ばれる。

散乱を考えると、 ε' が 0 を横切る角周波数 ω'_p は $\omega'_p = \sqrt{\omega_p^2 - \gamma^2}$ である。式(4.24)で与えられる誘電率の実数部と虚数部をプロットすると、図 4.2 に示すようなスペクトルを示す。図からわかるように $\omega < \omega'_p$ の領域では誘電率の実数部は負になっている。誘電率が負ということは光が物質中に入り込めないことを意味し、金属の高い反射率の原因になっている。もちろん、誘電率の虚数部の存在のために完全に入れないわけではなく skin depth だけは入り込めるのであるが、量子論的に見ると、束縛のない電子系の運動は同じバンド内での励起に相当するのでバンド内遷移と考えることができる。一方、誘電率の虚数部は、裾野を引く形状を示す。キャリア密度が高い半導体で見られる自由キャリア吸収はこの項に由来する。

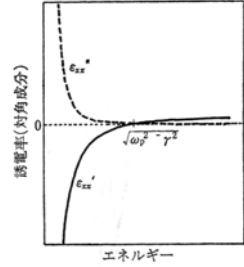


図 4.2 自由電子の古典的運動方程式より得られた誘電率テンソルの対角成分のスペクトル。いわゆるドルーデ型のスペクトル。実線は実数部、点線は虚数部。

③ 磁界がかかっており束縛項がない場合：マグネトプラズマ共鳴とホール効果

式(4.11)において、 $B \neq 0$, $\omega_0 = 0$ をいれると、自由電子の輸送現象における磁界の効果をみるができる。この場合の電気伝導率テンソルは次のようになる。

$$\begin{aligned}\sigma_{xx}(\omega) &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{i(\omega + i\gamma)}{(\omega + i\gamma)^2 - \omega_c^2} \\ \sigma_{xy}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m} \cdot \frac{\omega_c}{(\omega + i\gamma)^2 - \omega_c^2} \\ \sigma_{zz}(\omega) &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{i}{\omega + i\gamma}\end{aligned}\quad (4.17)$$

これがマグネトプラズマ共鳴を表す電気伝導率テンソルである。 σ_{xy} がホール効果の周波数分散を与えることは以下のようにしてわかる。式(4.17)で直流すなわち $\omega \rightarrow 0$ を考えると

$$\begin{aligned}\sigma_{xx}(\omega) &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{\gamma}{\omega_c^2 + \gamma^2} = \frac{\sigma_0}{(\omega_c/\gamma)^2 + 1} \\ \sigma_{xy}(\omega) &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{\omega_c}{\omega_c^2 + \gamma^2} \\ \sigma_{zz}(\omega) &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{1}{\gamma} = \sigma_0\end{aligned}\quad (4.18)$$

となる。ここに、 σ_0 は直流導電率である。

抵抗率のテンソル $\tilde{\rho}$ は伝導率の逆テンソルで与えられるので、

$$\begin{aligned}\rho_{xx} &= \rho_{zz} = 1/\sigma_0 \\ \rho_{xy} &= R_H B\end{aligned}\quad (4.19)$$

ここに、 R_H はホール係数で、 $R_H = 1/nq$ で与えられている。(問題 4.2 参照)

すなわち、伝導率テンソルの非対角成分は直流でのホール効果に対応するものであることが示された。¹

④ 磁界がかかっていて、束縛がなく、散乱のない場合

式(4.10)において、 $\gamma \rightarrow 0$ (あるいは $\tau \rightarrow \infty$) とすると

¹ ここでは非磁性の金属や半導体を考えていたので、 $B = \mu_0 H$ と見ることができたが、自発磁化 M を持つ物質においては、 $B = \mu_0(H + M)$ としなければならない。そればかりではなく、磁性体では上述のような単純な取り扱いが出来ず、異常ホール効果と呼ばれる現象が起きる。それは伝導電子のバンドが M と同じ向きのスピンを持つ電子と逆向きのスピンを持つ電子に対して異なるからである。さらに伝導電子の散乱の緩和時間 τ もスピンに依存する複雑なものとなる。

$$\begin{aligned}
\varepsilon_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - \omega_c^2} \\
\varepsilon_{xy}(\omega) &= -i \frac{\omega_p^2 \omega_c}{\omega(\omega^2 - \omega_c^2)} \\
\varepsilon_{zz}(\omega) &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}
\end{aligned} \tag{4.20}$$

このような誘電率テンソルを持った物質中を進む電磁波の複素屈折率は

$$N_{\pm}^2 = \varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega^2 - \omega_c^2)} (\omega \pm \omega_c) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega \mp \omega_c)} \tag{4.21}$$

となつて、左右円偏光に対する屈折率の違いを生じ、磁気光学効果をもたらす。これはマグネトプラズマ共鳴(magneto-plasma resonance)とよばれる現象である。ここでは光がBと平行に進む場合を考えたが、Bが光の波数ベクトルに垂直な場合には、磁気複屈折をもたらすことが知られている。Nが求まれば反射率Rも計算できる。図4.3はInSbにさまざまな大きさの磁界を加えたときの反射スペクトルの実験結果である¹⁾。

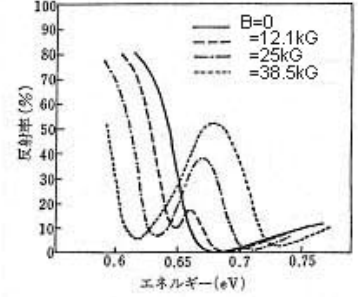


図4.3 InSbのマグネトプラズマ反射スペクトル¹⁾

非磁性の半導体のように自由電子の運動が重要な役割をもつ場合については、上記の古典力学的考え方で実験を説明できるが、強磁性体のように自発磁化をもつ物質の磁気光学効果を古典電子論にもとづいて説明しようとするとは非常に大きな内部磁界の存在を仮定しなければならない。一例として、鉄の磁気光学効果を考えてみよう。比誘電率の非対角成分の大きさは最大5の程度である。式(4.10)において $\hbar\omega = \hbar\omega_0 = 2\text{eV}$ 、 $\hbar\gamma = 0.1\text{eV}$ 、キャリア密度 $n = 10^{22} \text{cm}^{-3} = 10^{28} \text{m}^{-3}$ と仮定すると、 $B=3000\text{T}$ という大きな磁界を仮定しなければならない。このように、古典的な電子の運動方程式から導いた式では強磁性体の磁気光学効果を説明することはできない。この問題を解決に導いたのは次に述べる量子論であった。

4.2節のまとめ

電子の古典的運動方程式から誘電率の対角、非対角成分の分散式が導かれる。

$$\begin{aligned}
\varepsilon_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\
\varepsilon_{xy}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{i\omega\omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\
\varepsilon_{zz}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}
\end{aligned}$$

ここに $\omega_c = qB/m$ はサイクロトロン角周波数である。

磁界がないときは、上式は単純なローレンツ型の分散式になる。

$B=0, \omega_0=0$ と置くと、

$$\begin{aligned}
\varepsilon'_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 + \gamma^2} \\
\varepsilon''_{xx}(\omega) &= \frac{\gamma\omega_p^2}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)}
\end{aligned}$$

となり、ドルーデの式が得られる。ここに、 $\omega_p^2 = \frac{nq^2}{m\varepsilon_0}$ である。

$\omega \rightarrow 0$ (直流) のとき抵抗率テンソルは

$$\begin{aligned}
\rho_{xx} &= \rho_{zz} = 1/\sigma_0 \\
\rho_{xy} &= R_H B
\end{aligned}$$

となり、ホール係数が得られる。

4.3 誘電率の量子論

この節では量子論に従って、誘電テンソルが光学遷移に基づく分散式の重ね合わせで表せることを述べる。この節は量子力学になじみの薄い読者には難解かも知れない。結果は式(4.38)に与えられているので、そこまで読みとばしていただいて差し支えない。しかし、4.2.4の項に物理的描像を述べてあるので、その部分はぜひお読みいただきたい。

4.3.1 時間を含む摂動論

この節では、電気分極を量子力学的に考えるとどのようなになるかを考える。4.1に述べたように、電気分極とは、「電界によって正負の電荷がずれることにより誘起された双極子モーメントの単位体積における総和」である。これを量子力学で扱うとつぎのようになる。電界が及ぼす効果を、電界のない場合の電子の波動関数に対する「摂動」として扱い、摂動を受けた場合の固有関数を無摂動系の波動関数の1次結合として展開する。この固有関数を用いて電気双極子の期待値を計算するのである。電界を加えた後電気分極が生じるまでには当然のことながら時間遅れがあるので、動的な誘電応答を計算しなければならない。一般論としては、動的感受率テンソル $\chi_{\mu\nu}(\omega)$ の正確なフォーマリズムは久保公式^{2,3)}を用いて導かれる。しかし、このアプローチは初学者には理解しにくいと思われるので、ここでは、通常の「時間を含む摂動論」に従って感受率テンソルの対角成分を求めてみよう。⁴⁾

無摂動系の基底状態の波動関数を $\phi_0(\mathbf{r})$ で表し、j 番目の励起状態の波動関数を $\phi_j(\mathbf{r})$ で表す。無摂動系のハミルトニアンを H_0 とすると、

$$\begin{aligned} H_0\phi_0(\mathbf{r}) &= \hbar\omega_0\phi_0(\mathbf{r}) \\ H_0\phi_j(\mathbf{r}) &= \hbar\omega_j\phi_j(\mathbf{r}) \end{aligned} \quad (4.22)$$

光の電界を $\mathbf{E}(t) = E_0(\exp(-i\omega t) + cc.)$ と表す。この電界を受けたときの摂動のハミルトニアンは $H' = q\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t)$ で与えられる。摂動を受けた系のハミルトニアン $H = H_0 + H'$ の（時間を含む）固有関数を $\psi_j(\mathbf{r}, t)$ と表すと、シュレーディンガー方程式は、

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = H\psi(\mathbf{r}, t) \equiv [H_0 + H']\psi(\mathbf{r}, t) \quad (4.23)$$

と書くことができる。この固有関数は、次式のように無摂動系の（時間を含まない）固有関数のセットで展開することができる。

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \phi_0(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_0 t) + \sum_j c_j(t) \phi_j(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_j t) \quad (4.24)$$

この式を式(4.23)に代入し、無摂動系の波動関数について成立する式(4.22)を代入すると、

$$i\hbar \sum_j \frac{dc_j(t)}{dt} \phi_j(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_j t) = H'\phi_0(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_0 t) + \sum_j c_j(t) \exp(-i\omega_j t) H'\phi_j(\mathbf{r}).$$

左から $\phi_j^*(\mathbf{r})$ をかけて、 r について積分すると

$$i\hbar \frac{dc_j(t)}{dt} = \langle j|H'|0\rangle \exp\{i\omega_{j0} t\} \equiv e\langle j|r|0\rangle \cdot E(t) \exp\{i\omega_{j0} t\} \quad (4.25)$$

となる。ここで $e\langle j|r|0\rangle = e\int d\mathbf{r} \phi_j^*(\mathbf{r}) r \phi_0(\mathbf{r})$ は、基底状態から励起状態への電気双極子遷移の遷移行列、 $\omega_{j0} = \omega_j - \omega_0$ は励起に要するエネルギーである。また、導出に当たっては、励起状態間の遷移行列 $e\langle i|r|j\rangle$ は無視した。式(4.25)を積分することにより式(4.24)の展開係数 $c_j(t)$ が求められる。

ここで x 成分の電界についての展開係数を求めると

$$\begin{aligned} c_{xj}(t) &= (i\hbar)^{-1} \int_0^t e\langle j|x|0\rangle E_{0x} [\exp(i\omega t) + cc.] \exp\{i\omega_{j0} t\} dt \\ &= eE_{x0} \langle j|x|0\rangle \left[\frac{1 - \exp(i(\omega + \omega_{j0})t)}{\hbar(\omega + \omega_{j0})} + \frac{1 - \exp(i(-\omega + \omega_{j0})t)}{\hbar(-\omega + \omega_{j0})} \right] \end{aligned} \quad (4.26)$$

となる。この係数は、摂動を受けて、励起状態の波動関数 $\phi_j(\mathbf{r})$ が基底状態の波動関数 $\phi_0(\mathbf{r})$ に混じり込んでくる度合いを表している。

4.3.2 誘電率の導出

(1) 対角成分

式(4.26)で求められた展開係数を式(4.24)に代入して、固有関数を求め、それを使って電気分極 P の期待値を計算すると、入射光の角周波数と同じ成分のみについて、

$$\begin{aligned}
\langle P_x \rangle &= \langle Nqx(t) \rangle = Nq \int \Psi^* x \Psi dx \\
&= Nq^2 \left[\sum_j \frac{|\langle j|x|0 \rangle|^2}{\hbar} \cdot \left(\frac{1}{\omega_{j0} - \omega} + \frac{1}{\omega_{j0} + \omega} \right) \right] E_x(t)
\end{aligned} \tag{4.27}$$

が得られる。ここで入射光と異なる周波数の分極は無視した。また期待値を求めるにあたり、準位占有の分布関数を考慮していない。 $P_x(\omega) = \chi_{xx}(\omega) \varepsilon_0 E_{0x}$ であるから、電気感受率テンソルの対角成分 $\chi_{xx}(\omega)$ は次式のように得られる。

$$\chi_{xx}(\omega) = \frac{Nq^2}{\hbar \varepsilon_0} \sum_j |\langle j|x|0 \rangle|^2 \left[\frac{1}{\omega_{j0} - \omega} + \frac{1}{\omega_{j0} + \omega} \right] \tag{4.28}$$

上式は実数の応答を表している。虚数部は式(4.28)よりクラマースクローニヒの関係式を用いて、

$$\chi_{xx}''(\omega) = i\pi \frac{Nq^2}{\hbar \varepsilon_0} \sum_j |\langle j|x|0 \rangle|^2 \left[\delta(\omega_{j0} - \omega) + \delta(\omega_{j0} + \omega) \right] \tag{4.29}$$

と表されるので、

$$\chi_{xx}(\omega) = \frac{Nq^2}{\hbar \varepsilon_0} \sum_j |\langle j|x|0 \rangle|^2 \left[\left\{ \frac{1}{(\omega_{j0} - \omega)} + \frac{1}{(\omega_{j0} + \omega)} \right\} + i\pi \left[\delta(\omega_{j0} - \omega) + \delta(\omega_{j0} + \omega) \right] \right] \tag{4.30}$$

と書ける。ここで、

$$\lim_{\gamma \rightarrow 0} \frac{1}{x + i\gamma} = P\left(\frac{1}{x}\right) + i\pi\delta(x)$$

の関係を用い、 γ を有限値にとどめると、

$$\begin{aligned}
\chi_{xx}(\omega) &= \frac{Nq^2}{m\varepsilon_0} \sum_j m |\langle j|x|0 \rangle|^2 \left[\frac{1}{\hbar(\omega_{j0} - \omega - i\gamma)} + \frac{1}{\hbar(\omega_{j0} + \omega + i\gamma)} \right] \\
&= \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \sum_j f_{xj} \frac{(\omega_{j0}^2 - \omega^2 + \gamma^2) + 2i\gamma\omega}{(\omega_{j0}^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + 4\gamma^2\omega^2}
\end{aligned} \tag{4.31}$$

ここに、 f_{xj} は基底状態 $|0\rangle$ から励起状態 $|j\rangle$ への電気双極子遷移の振動子強度で

$$f_{xj} = 2m\omega_{j0} |\langle j|x|0 \rangle|^2 / \hbar \tag{4.32}$$

で表される。この式は、古典的運動方程式から得られた電気感受率の式(4.9)において、 $\mathbf{B} \rightarrow \mathbf{0}$ と置いた式と形式的に一致している。しかし、その物理的意味は古典的な式の意味とは異なり、電子状態間の光学遷移が関与していることが本質的である。誘電率に書き換えると、

$$\varepsilon_{xx}(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \sum_j f_{xj} \frac{(\omega_{j0}^2 - \omega^2 + \gamma^2) + 2i\gamma\omega}{(\omega_{j0}^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + 4\gamma^2\omega^2} \tag{4.33}$$

(2) 誘電率の非対角成分の導出

電気感受率の非対角成分は、 y 方向の電界 $E_y(t)$ が印加されたときの、分極 P の x 成分の期待値を求めることにより得られる。

$$\begin{aligned}
\langle P_x \rangle &= \langle Nqx(t) \rangle = Nq \int \Psi^* x \Psi dx \\
&= Nq \sum_j \left[\langle 0|x|0 \rangle + \langle j|x|0 \rangle c_{yj}(t) \exp(i\omega_{j0}t) + \langle 0|x|j \rangle c_{yj}^*(t) \exp(-i\omega_{j0}t) + \dots \right] \\
&= Nq^2 \sum_j \langle j|x|0 \rangle \langle 0|y|j \rangle \frac{1}{\hbar} \left(\frac{E_{y0}^* \exp(-i\omega t)}{\omega_{j0} - \omega} + \frac{E_{y0} \exp(i\omega t)}{\omega_{j0} + \omega} \right)
\end{aligned} \tag{4.34}$$

これより、電界の $\exp(-i\omega t)$ の成分について感受率を求めると、

$$\chi_{xy}(\omega) = \frac{Nq^2}{\varepsilon_0} \sum_j \frac{\langle 0|x|j \rangle \langle j|y|0 \rangle}{\hbar(\omega_{j0} - \omega)} \text{ および } \chi_{xy}^*(-\omega) = \frac{Nq^2}{\varepsilon_0} \sum_j \frac{\langle 0|y|j \rangle \langle j|x|0 \rangle}{\hbar(\omega_{j0} + \omega)} \text{ が得られる。}$$

Onsager の関係式 $\chi_{xy}(\omega) = \chi_{yx}^*(-\omega)$ から、

$$\chi_{xy}(\omega) = \frac{\chi_{xy}(\omega) + \chi_{xy}^*(-\omega)}{2} = \frac{Nq^2}{2\varepsilon_0} \sum_j \left(\frac{\langle 0|x|j \rangle \langle j|y|0 \rangle}{\hbar(\omega_{j0} - \omega)} + \frac{\langle 0|y|j \rangle \langle j|x|0 \rangle}{\hbar(\omega_{j0} + \omega)} \right)$$

ここで $x^\pm = (x \pm iy)/\sqrt{2}$ という置き換えをすると、若干の近似のもとで

$$\chi_{xy}(\omega) = \frac{Nq^2}{2i\epsilon_0\hbar} \sum_j \omega_{j0} \frac{|\langle 0|x^+|j\rangle|^2 - |\langle 0|x^-|j\rangle|^2}{\omega_{j0}^2 - \omega^2} \quad (4.35)$$

が得られる。ここで qx^\pm は右まわり (+) および左回り (-) の円偏光に対応する電気双極子の演算子である。また、 $|\langle 0|x^\pm|j\rangle|^2$ は右および左円偏光により基底状態 $|0\rangle$ から、励起状態 $|j\rangle$ に遷移する確率である。さらに、円偏光についての振動子強度を

$$f_{j0}^\pm = \frac{m\omega_{j0} |\langle j|x^\pm|0\rangle|^2}{\hbar} \quad (4.36)$$

により定義し、有限の遷移幅を考慮することにより電気感受率テンソルの非対角成分 χ_{xy} は

$$\chi_{xy}(\omega) = -i \frac{Nq^2}{2m\epsilon_0} \sum_{n<m} \frac{f_{j0}^+ - f_{j0}^-}{\omega_{j0}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \quad (4.37)$$

となる。誘電率に書き換えると、

$$\epsilon_{xy}(\omega) = -i \frac{Nq^2}{2m\epsilon_0} \sum_{n<m} \frac{f_{j0}^+ - f_{j0}^-}{\omega_{j0}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \quad (4.38)$$

4.3.3 久保公式からの誘電率の分散式の導出^{2,3,5)}

以上紹介したやり方で求めた式はやや厳密性を欠く。非対角成分の厳密な表式は、久保公式を使って導かれる。久保公式は、分極率を電流密度の自己相関関数のフーリエ変換で与えられる。詳細は、付録に譲り、結果だけを書いておくと、

$$\begin{aligned} \chi_{xx}(\omega) &= \lim_{\gamma \rightarrow 0} \frac{Nq^2(\omega + i\gamma)}{\hbar\omega\epsilon_0} \sum_{n<m} (\rho_n - \rho_m) \frac{2\omega_{mn} |\langle m|x|n\rangle|^2}{\omega_{mn}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \\ &= \lim_{\gamma \rightarrow 0} \frac{Nq^2}{m\epsilon_0} \sum_{n<m} (\rho_n - \rho_m) \frac{(f_x)_{mn}}{\omega_{mn}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \\ \chi_{xy}(\omega) &= \lim_{\gamma \rightarrow 0} \frac{-Nq^2}{2\hbar\omega\epsilon_0} \sum_{n<m} (\rho_n - \rho_m) \frac{\omega_{mn}^2 \left(|\langle m|x^+|n\rangle|^2 - |\langle m|x^-|n\rangle|^2 \right)}{\omega_{mn}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \\ &= \lim_{\gamma \rightarrow 0} \left(-i \frac{Nq^2}{2m\epsilon_0} \right) \sum_j (\rho_n - \rho_m) \frac{\omega_{mn} (f_{mn}^+ - f_{mn}^-)}{\omega(\omega_{mn}^2 - (\omega + i\gamma)^2)} \end{aligned} \quad (4.39)$$

で表される。ここに ρ_n は状態 $|n\rangle$ の占有確率で、

$$\rho_n = \frac{\exp(-\hbar\omega_n/kT)}{\text{Tr} \exp(-H_0/kT)} = \frac{\exp(-\hbar\omega_n/kT)}{\sum_n \exp(-\hbar\omega_n/kT)}$$

で与えられる。

比誘電率の対角、非対角成分を書き下すと、

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{Nq^2}{m\epsilon_0} \sum_n (\rho_n - \rho_m) \frac{(f_x)_{mn}}{(\omega + i\gamma)^2 - \omega_{n0}^2} \\ \epsilon_{xy}(\omega) &= i \frac{Nq^2}{2m\epsilon_0} \sum_n (\rho_n - \rho_m) \frac{\omega_{mn} (f_n^+ - f_n^-)}{\omega((\omega + i\gamma)^2 - \omega_{mn}^2)} \end{aligned} \quad (4.40)$$

となる。ここに $\Delta f_{mn} = f_{mn}^+ - f_{mn}^-$ である。 $T=0$ のとき、 $\rho_n=1$ 、 $\rho_m=0$ となるので、

$$\begin{aligned}\varepsilon_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{Nq^2}{m\varepsilon_0} \sum_n \frac{(f_x)_n}{(\omega + i\gamma)^2 - \omega_{n0}^2} \\ \varepsilon_{xy}(\omega) &= i \frac{Nq^2}{2m\varepsilon_0} \sum_n \frac{\omega_{n0}(f_n^+ - f_n^-)}{\omega((\omega + i\gamma)^2 - \omega_{n0}^2)}\end{aligned}\quad (4.41)$$

のように表される。これらは、(4.33)、(4.38)に対応する。

こうして光学現象をもたらす誘電率テンソルの対角および非対角成分が量子力学的に導かれた。量子力学にもとづいて電子状態の固有状態 ϕ_n 、 ϕ_m と固有値 ω_{mn} を求め、これより振動子強度 f_{mn} を計算すると誘電率 ε を理論的に求めることができる。電子系の固有状態がバンドを作っているときは、遷移エネルギーや遷移行列は波数 k 依存性をもち、 k についての積分を計算する必要がある。

4.3.4 誘電率の分散式の物理的解釈

誘電率が式(4.31)のように、電子状態間の光学遷移を用いて表されることの物理的な意味を考えてみよう。誘電率は物質の分極のしやすさを表す量である。さきに述べたように、分極というのは電磁波の電界による摂動を受けて電荷の分布が無摂動のときの分布からずれる様子を表している。これを図 4.4 に示す。いかなる関数も正規直交関数系でフーリエ級数展開できることはよく知られている。従って、電界の摂動を受けて変化した新たな電子波動関数は、無摂動系の固有関数（基底状態および励起状態は正規直交完全系であることはいうまでもない）を使ってフーリエ級数展開できる。ここで、どのような励起状態をどの程度混ぜるかを表しているのが振動子強度 f とエネルギー分母 $(\omega - \omega_{j0})^{-1}$ であると解釈できる。

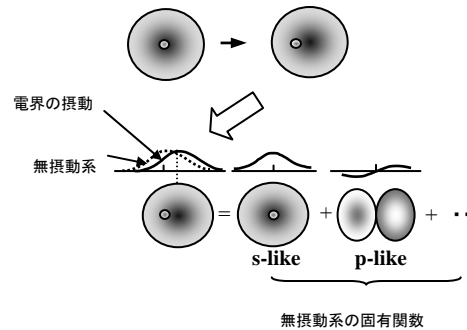


図 4.4 電気双極子による分極の量子論的解釈

このように考えると実際に遷移の起きる共鳴周波数より低い周波数の光に対しても、分極が生じその結果として比誘電率が 1 ではない値をとる理由が理解できる。すなわち、励起周波数より低い周波数の光の摂動によって、励起状態の波動関数が部分的に基底状態に取り込まれて、電子の空間分布が変化し分極が起きると解釈されるのである。このプロセスは、仮想的(virtual)であって、エネルギーの消費を伴わない。式(4.31)から、誘電率の対角成分の実数部は分散型、虚数部は吸収型のスペクトルを示すことがわかる。

非対角成分についての式(4.38)の第 2 式を見ると、全体に i がかかっている所以对角成分とは逆に実数部が吸収型、虚数部が分散型になっている。このことは第 3 章に書いたように、 N^2 の固有値が $N^2 = \varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy}$ となり、非対角成分に i がかかっていることに対応している。

誘電率に非対角成分が現れこれによって左右円偏光に対する光学応答の違い（光学活性）が生じるためには、(a) $\phi_0 \rightarrow \phi_j$ 遷移（振動数 ω_{j0} ）において、右円偏光に対する振動子強度 f_{j+} と左円偏光に対する振動子強度 f_{j-} とが異なる、または、(b) 右円偏光による遷移の中心周波数 ω_+ と左円偏光による遷移の中心周波数 ω_- が異なる、のいずれかの機構が寄与していればよいことがわかる。

量子力学の教えるところによれば、右回り、あるいは、左回りの円偏光による電気双極子遷移が起きるためには、軌道角運動量量子数 L の量子化軸成分（今の場合、光の進行方向の成分） L_z が基底状態と励起状態とで 1 だけ異ならなければならない。一方、固体中に置かれた遷移元素の d 電子の基底状態は軌道の角運動量をもたないことが知られているので、基底状態の軌道角運動量 L は 0 と見なすことができる。 $L=0$ というのは、あたかも、s 電子のように球対称であると考えておいてよい。これに対して、励起状態の L はさまざまな値を取り得る。いま、磁化の向きが z 方向にあるとすると、基底状態の L_z は 0 なので円偏光で許容遷移が起きるためには、図 4.5 の電子準位図に示すように励起状態の L_z は ± 1 でなければならない。

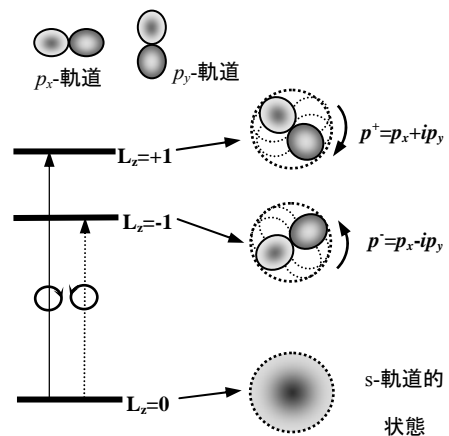


図 4.5 電子の軌道角運動量 L と円偏光の選択則

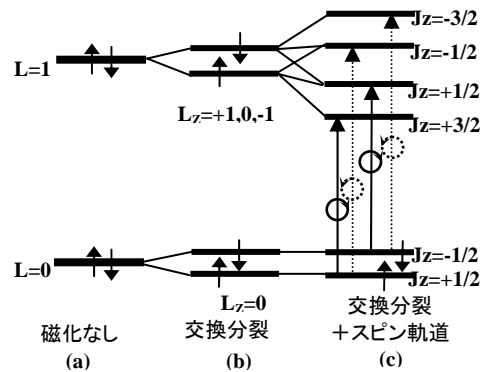


図 4.6 スピン軌道相互作用の重要性を示す図

$L_z = \pm 1$ という状態は p 電子的な角度分布を持つ状態と考えればよい。いま、 $L_z = +1$ なる固有値に対応する p 電子状態は、 $p_+ = p_x + ip_y$ であり、 $L_z = -1$ を固有値にもつのは $p_- = p_x - ip_y$ であるが、これらの状態はそれぞれ電子が z 軸を中心に右回り、および左回りに回転している状態と考えられる。したがって、円偏光によって電子の回転運動を励起しているのであると理解してよい。式(4.38)は、円偏光によって、角運動量をもった回転する電子状態が基底状態に部分的に混じってくることによって、誘電率の非対角項が現れることを示している。

これまでの議論では、磁性体の磁化の効果は explicit には現れていない。以下では、このことを図 4.6 に基づいて考

察する。図 4.6(a)に示すように、磁界（または磁化）のないとき、 $L_z = +1$ と $L_z = -1$ の状態は縮退している。磁界が存在すると、Fig. 4.6(b)に示すようにゼーマン効果（または交換分裂）によって↑スピンの状態のエネルギーと↓スピンの状態のエネルギーとの間に分裂が起きるが、それだけでは、軌道状態の縮退は解けない。p 電子を例にとると、スピンの異なる p_{\uparrow} 状態と p_{\downarrow} 状態とのエネルギー分裂は起きるが、磁気光学効果に必要な右回りの回転運動をする軌道 (p_{+}) と左回りの回転運動をする軌道 (p_{-}) とのエネルギー分裂は起きない。ここでスピン軌道相互作用が存在すると、図 4.6(c)のようにスピンの向きと軌道角運動量が結びつき、全角運動量 $J(L+S)$ が状態を表すよい量子数となる。p 電子についていえば、 $J=3/2$ に対応するのが p_{+1} 軌道、および、 p_{-1} 軌道であり、 $J=1/2$ に対応するのが p_{-1} 軌道および p_{+1} 軌道である。

もし基底状態の分裂が熱エネルギー kT に比べて十分に大きければ、基底状態は↑スピン電子だけとなるので、右円偏光による $J_z=+1/2 \rightarrow J_z=+3/2$ の遷移と左円偏光による $J_z=+1/2 \rightarrow J_z=-1/2$ の遷移のみが現れ、その遷移エネルギーの違いから磁気光学効果が生じる。

↓スピンからの遷移は↑スピンからの遷移とは逆のスペクトル応答が期待される。このため基底状態の↑スピン状態の数 n_{\uparrow} と、↓スピン状態の数 n_{\downarrow} の分布を考慮せねばならない。もし、基底状態において n_{\uparrow} と n_{\downarrow} が同数であれば、遷移が起きても軌道状態の変化は打ち消してしまう。

上のような理由で、磁気光学効果を表す ϵ_{xy} の表式には、スピン偏極率 $\langle \sigma \rangle = (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) / (n_{\uparrow} + n_{\downarrow})$ がかかってくる。常磁性体では、 $\langle \sigma \rangle$ はブリュアン関数 $B_J(B/T)$ で表される。 B/T の十分に小さいとき、この関数は B/T に比例するが、極低温または強磁界の極限では一定の値に収束する。一方、強磁性体では交換相互作用によって、一方のスピン状態の数が多数となっているので、磁化がある限り基底状態の↑スピンと↓スピンの数に差があり

$$|n, L_z = 0, \uparrow\rangle \Rightarrow |m, L_z = +1, \uparrow\rangle$$

および

$$|n, L_z = 0, \uparrow\rangle \Rightarrow |m, L_z = -1, \uparrow\rangle$$

の遷移が優勢となる。

遷移エネルギーの分裂の大きさは、ゼーマン効果によるものではなく、励起状態の $J_z=+3/2$ と $-1/2$ のエネルギー差を与えるスピン軌道相互作用によるものなので、磁化または外部磁界に依存しない。有限温度では基底状態のスピンは↑のみならず↓も混じってくるので、温度上昇とともに磁気光学効果は減少する。温度変化の様子は、 $M_s(T)/M_s(0)$ の曲線で記述できる。

注：この節で導いたものと若干異なる ϵ の表式が Shen⁶⁾, Benett⁷⁾, Kahn⁸⁾ らによって導出されている。電流密度-電流密度の相関の形(久保公式)からの誘導は、上村によってなされ^{3,9)}、結果が磁性体ハンドブック 19 章に示されている。本書は基本的にはこれに従っている。

4.3.5 バンド電子系の磁気光学効果

金属磁性体や磁性半導体の光学現象は、絶縁性の磁性体と異なってバンド間遷移という概念で理解せねばならない。なぜなら、d 電子はもはや原子の状態と同様の局在準位ではなく、空間的に広がって、バンド状態になっているからである。このような場合には、バンド計算によってバンド状態の固有値と固有関数とを求め、久保公式に基づいて分散式を計算することになる。式(4.38)では、各原子の応答は等しいものとして単位体積当りの原子の数 N をかけたが、金属の場合は、 k -空間の各点においてバンド計算から遷移エネルギーと遷移行列を求め、すべての k についての和をとる必要がある。電子状態がバンドで記述できる系について久保公式に基づいて誘電率テンソルの成分を求める式は Wang, Callaway により導出された¹⁰⁾。彼らは、

$$\pi = p + \frac{\pi}{4mc^2} \sigma \times \nabla V(r)$$

で定義される運動量演算子 π を用いる。ここに第 1 項は運動量の演算子、第 2 項はスピン軌道相互作用の寄与であるが、通常は無視して差し支えない。

$$\sigma_{\alpha\beta} = \frac{iNq^2}{\omega + i\gamma} \left(\frac{1}{m^*} \right)_{\alpha\beta} - \frac{2iq^2}{m^2\hbar} \times \sum_{l,k}^{occ} \sum_{n,k}^{unocc} \left(\frac{\omega + i\gamma}{\omega_{nl}} \text{Re} \langle l | \pi^\alpha | n \rangle \langle n | \pi^\beta | l \rangle + i \text{Im} \langle l | \pi^\alpha | n \rangle \langle n | \pi^\beta | l \rangle \right) \frac{1}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \quad (4.42)$$

$$\alpha, \beta = (x, y)$$

(単位は s^{-1}) ここに、遷移行列要素 $\langle l | \pi^\alpha | n \rangle$ などはブロッホ関数の格子周期成分 $u(k, r)$ を用いて、

$$\langle l | \pi^\alpha | n \rangle = \frac{(2\pi)^3}{\Omega} \int u_l^*(k, r) \left[p^\alpha + \frac{\hbar}{4mc^2} (\sigma \times \nabla V(r))_\alpha \right] u_n(k, r) d^3r$$

という式で表される。式(4.42)の第 1 項は、有効質量の異方性によるもので以後無視する。

対角成分の実数部は、散乱寿命を無限大とすると、

$$\sigma'_{xx} = \text{Re}(\sigma_{xx}) = \frac{\pi q^2}{m^2 \hbar} \sum_{l,k} \sum_{n,k} \text{occunocc} \left| \langle l | \pi^x | n \rangle \right|^2 \delta(\omega - \omega_{ln,k}) \quad (4.43)$$

一方、非対角成分の虚数部は、

$$\begin{aligned} \sigma''_{xy}(\omega) = \text{Im}(\sigma_{xy}) &= \frac{2q^2}{\hbar m^2} \sum_{l,k} \sum_{n,k} \text{occunocc} \frac{\text{Im}(\langle l | \pi^x | n \rangle \langle n | \pi^y | l \rangle)}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \\ &= \frac{\pi q^2}{m^2 \hbar \omega} \sum_{l,k} \sum_{n,k} \text{occunocc} \text{Im}(\langle l | \pi^x | n \rangle \langle n | \pi^y | l \rangle) \delta(\omega - \omega_{nl,k}) \end{aligned} \quad (4.44)$$

式(4.44)において、 $\pi^\pm = \pi^x \pm i\pi^y$ と置き換えると、

$$\begin{aligned} \text{Im}(\langle l | \pi^x | n \rangle \langle n | \pi^y | l \rangle) &= \text{Im} \left(\frac{\langle l | (\pi^+ + \pi^-) | n \rangle \langle n | (\pi^+ - \pi^-) | l \rangle}{4i} \right) \\ &= -\frac{1}{4} \text{Im} \left[i \left(|\langle l | \pi^+ | n \rangle|^2 - |\langle l | \pi^- | n \rangle|^2 \right) - \text{Im}(\langle l | \pi^- | n \rangle \langle n | \pi^+ | l \rangle) \right] = -\frac{1}{4} \left(|\langle l | \pi^+ | n \rangle|^2 - |\langle l | \pi^- | n \rangle|^2 \right) \end{aligned}$$

と表されるので、

$$\sigma''_{xy}(\omega) = \text{Im}(\sigma_{xy}) = -\frac{\pi q^2}{2m^2 \hbar \omega} \sum_{l,k} \sum_{n,k} \text{occunocc} \left(|\langle l | \pi^+ | n \rangle|^2 - |\langle l | \pi^- | n \rangle|^2 \right) \delta(\omega - \omega_{nl,k}) \quad (4.45)$$

と書ける。また、スピン偏極を考慮すると $\sigma''_{xy} = \sigma''_{xy} \uparrow + \sigma''_{xy} \downarrow$ となり、 \uparrow スピンに対する伝導率と \downarrow スピンに対する伝導率の和を計算すべきということになる。

σ_{xy} を評価するには、スピン軌道相互作用を含めて、スピン偏極バンドを計算し、ブリルアン域の各 k における ω_{mn} および、 π^+ と π^- を計算して、式(4.45)に従って全ての k について和をとればよい。実際、そのような手続きは Wang と Callaway によって Fe, Ni についておこなわれた^{10,11)}。最近、バンド計算技術が発展し、多くの物質で第1原理計算にもとづく磁気光学スペクトルの計算がなされ、実験ときわめてよい一致を示すことが明らかになった。これについては、第6章で改めて紹介する。

4.3 節のまとめ

量子力学によって誘電率を評価すると

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{Nq^2}{m\epsilon_0} \sum_{n < m} (\rho_n - \rho_m) \frac{(f_x)_{mn}}{(\omega + i\gamma)^2 - \omega_{n0}^2} \\ \epsilon_{xy}(\omega) &= i \frac{Nq^2}{2m\epsilon_0} \sum_{n < m} (\rho_n - \rho_m) \frac{\omega_{mn} (f_n^+ - f_n^-)}{\omega((\omega + i\gamma)^2 - \omega_{mn}^2)} \end{aligned}$$

と表される。ここに、 f は状態 $|n\rangle$ と $|m\rangle$ の間の遷移の振動子強度である。 f_x は直線偏光に対するもの、 f_\pm は左右円偏光に対するもの、 ρ_n は状態 $|n\rangle$ の分布関数である。

誘電率は、光の電界の摂動を受けて基底状態の電子の波動関数に励起状態の波動関数が混じることにより、電子の空間的分布が変化する様子を記述する。励起状態の混じり方を表すのが遷移行列とエネルギー分母である。

4.4 磁気光学スペクトルの形(1) - 絶縁性磁性体の場合 -

前節ではミクروسコピックな描像にもとづいて磁気光学効果の原因となる誘電率テンソルの非対角成分の分散式を導いた。この節では鉄ガーネットなどに代表される絶縁性の磁性体でみられる局在した光学遷移について、磁気光学スペクトルの形状を説明する。

磁気光学効果スペクトルは式(4.38)をきちんと計算すれば、説明できるはずのものであるが、遷移の性質により、典型的な2つの場合にわけて調べられている。励起状態がスピン軌道相互作用で分かれた2つの電子準位からなる場合は、伝統的に反磁性項とよばれる。一方、励起電子準位が1つで、基底状態との間の左右円偏光による光学遷移確率異なる場合は、伝統的に常磁性項とよばれる⁶⁾。

1) 反磁性項 (二遷移型スペクトル)

図4.7 (a)のような電子構造を考える。励起状態はスピン軌道相互作用によって2つの準位に分裂しているとする。このときの誘電率の非対角成分は、絶対0度では、

$$\epsilon'_{xy} = \frac{Ne^2 f_0 A_{so}}{2m\epsilon_0 \omega \tau} \cdot \frac{\omega_0 - \omega}{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2} \quad (4.46)$$

$$\epsilon''_{xy} = -\frac{Ne^2 f_0 \Delta_{SO}}{4m\epsilon_0 \omega} \cdot \frac{(\omega_0 - \omega)^2 - \gamma^2}{\{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2\}^2}$$

で表される。ここに f_0 は振動子強度である。これを図示すると、Fig. 4.7(b)のようになる。すなわち、 ϵ''_{xy} の実数部は分散型、虚数部は両側に翼のあるベル型を示す。この形状を歴史的な理由で反磁性項という。

大きな磁気光学効果を示す物質では、ほとんど、ここに述べた反磁性型スペクトルとなっている。 $\omega = \omega_0$ において ϵ''_{xy} のピーク値は

$$\epsilon''_{xy} = \frac{Ne^2}{m\epsilon_0} \cdot \frac{f_0 \Delta_{SO}}{\omega_0 / \tau^2}$$

で与えられる。この式から大きな磁気光学効果をもつ物質を探索するための指針として、振動子強度 f_0 が大きいこと、励起状態のスピンの軌道分裂 Δ_{SO} が大きいこと、遷移の周波数 ω_0 が観測している光の周波数 ω に近いことの3つが重要であることがわかる。式(4.47)を使って、Feの場合に誘電率の非対角成分を計算してみよう。 $N=10^{28} \text{m}^{-3}$ 、 $f_0=1$ 、 $\hbar\Delta_{SO}=0.05 \text{eV}$ 、 $\hbar\omega_0=2 \text{eV}$ 、 $\hbar/\tau=0.1 \text{eV}$ という極めて常識的な数値を代入することにより比誘電率の対角成分のピーク値として約3.5という数値が得られる。古典論では3000Tという大きな磁界が必要であったのと対照的であることが理解されよう。

2) 常磁性項 (一遷移型スペクトル)

図 4.8(a)に示すように、基底状態にも励起状態にも分裂はないが、両状態間の遷移の振動子強度 f_+ と f_- とに差 Δf がある場合を考える。このとき ϵ''_{xy} は

$$\epsilon'_{xy} = \frac{Ne^2 \Delta f}{m\epsilon_0 \tau} \cdot \frac{\omega_0}{(\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2 \gamma^2}$$

$$\epsilon''_{xy} = \frac{-Ne^2 \Delta f}{2m\epsilon_0} \cdot \frac{\omega_0 (\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2)}{\omega \{(\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2 \gamma^2\}}$$

このスペクトルを図 4.8(b)に示す。この場合は実数部が(翼のない)ベル型、虚数部が分散型を示す。

3) 低温で常磁性項, 高温で反磁性項

もし、図 4.9 のように基底状態にスピンの軌道分裂があれば(希土類イオンのように固体中でも軌道角運動量が消滅していない場合にはこのようなことが起こり得る)、低温では2の準位は占有されていないので、図 4.9(a)のように実数部がベル型をしたスペクトルを示すが、k Tが Δ の程度になると1と2の準位が同じように占有され、図 4.9(b)のように反磁性項に類似のスペクトル、つまり、実数部が分散型の形状となる。

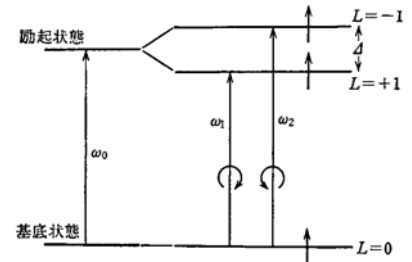
温度変化の実験をしてスペクトルの形状の変化が見られれば、このタイプであると判断できる。

4) 一般の場合

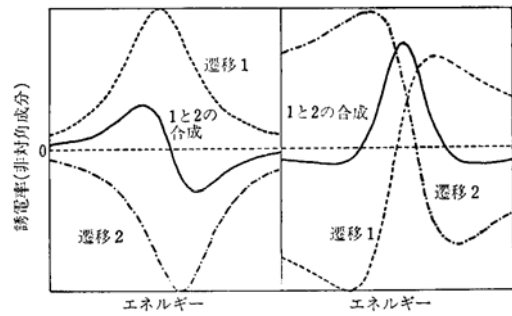
実際の場合には、電子準位はこのように単純ではなく、いくつもの準位から成っており、選択則ももっと複雑なものとなる。そのような場合は、式(4.40)にたちかえて、1つ1つの遷移確率を計算して振動子強度を求めなければならない。実例は、第6章に示す。

4. 4節のまとめ

絶縁性磁性体の光学遷移は局在電子系の取り扱いがよい

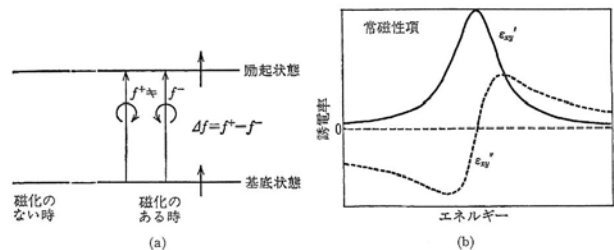


(a) 反磁性型磁気光学スペクトルをもたらす電子構造モデル(基底状態に軌道縮退がなく、交換相互作用が十分大きく↑スピンのみが占有されているとする。また励起状態がスピン軌道相互作用によって分裂しているとする)



(b) 反磁性型磁気光学スペクトル ϵ''_{xy} の形状

(4.48)



一遷移型スペクトル(常磁性項)
(a) 常磁性型磁気光学スペクトルをもたらす電子構造モデル(基底状態にも分裂がなく、両状態間の遷移強度にのみ違いがある場合。
(b) 常磁性型磁気光学スペクトルの形状

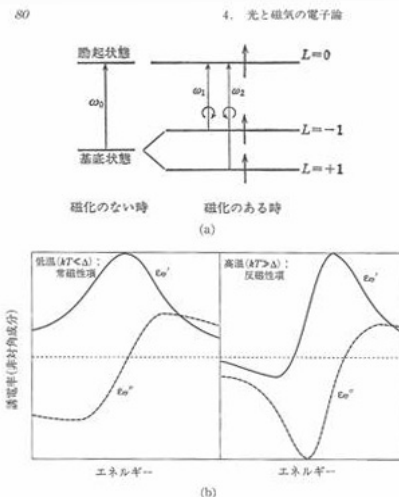


図 4.9 スペクトル形状の温度変化がある場合の電子構造モデル
(a) 基底軌道分裂がある場合。
(b) (a)の電子構造をとる場合の磁気光学スペクトル形状

近似となる。

局在系の遷移には

配位子場遷移, 電荷移動遷移, 軌道推進遷移の3種がある。

この様な系での磁気光学スペクトルの形状は次のように表せる。

タイプ I : ϵ'_{xy} 分散型, ϵ''_{xy} 翼のあるベル型; 電荷移動遷移など

$$\epsilon'_{xy} = \frac{Ne^2 f_0 \Delta_{so}}{2m\epsilon_0 \omega \tau} \cdot \frac{\omega_0 - \omega}{\left\{ (\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2 \right\}^2}$$

$$\epsilon''_{xy} = -\frac{Ne^2 f_0 \Delta_{so}}{4m\epsilon_0 \omega} \cdot \frac{(\omega_0 - \omega)^2 - \gamma^2}{\left\{ (\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2 \right\}^2}$$

タイプ II : ϵ'_{xy} ベル型, ϵ''_{xy} 分散型: スピン禁止配位子場遷移など

$$\epsilon'_{xy} = \frac{Ne^2 \Delta f}{m\epsilon_0 \tau} \cdot \frac{\omega_0}{\left(\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2 \right)^2 + 4\omega^2 \gamma^2}$$

$$\epsilon''_{xy} = \frac{-Ne^2 \Delta f}{2m\epsilon_0} \cdot \frac{\omega_0 (\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2)}{\omega \left\{ (\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2 \gamma^2 \right\}}$$

4.5 磁気光学スペクトルの形(2) - 金属磁性体の場合 -

4.3.5 節に述べたように、金属の磁気光学効果をもたらす σ''_{xy} を評価するには、スピン軌道相互作用を含めて、スピン偏極バンドを求め、ブリルアン域の各 k における ω_{nl} , および, $\pi+$ と $\pi-$ を計算して、式(4.45)を用いて計算しなければならない。しかし、スピン軌道相互作用を考慮したスピン偏極バンド計算結果がどのような物質においても得られているわけではない。ここでは、厳密さには目をつぶって、バンド系の磁気光学スペクトルをもう少し見通しのよい描像で眺めてみたい。(以下の手続きは Erskine に従う¹²⁾.)

式(4.45)を積分形になおすと次式を得る。

$$\omega \sigma''_{xy}(\omega) = \frac{\pi q^2}{2m^2} \cdot \frac{1}{8\pi^3} \int F_{nl}(\omega) \delta(\omega - \omega_{ln}) d^3 k \quad (4.46)$$

ここに、

$$F_{nl}(\omega) = \frac{|\langle n \uparrow | \pi \uparrow \rangle|^2 - |\langle n \uparrow | \pi \downarrow \rangle|^2}{|\langle n \downarrow | \pi \uparrow \rangle|^2 - |\langle n \downarrow | \pi \downarrow \rangle|^2} \quad (4.47)$$

である。 $\omega \sigma$ の形にしたのは表式を見やすくするためである。遷移確率の平均値 \bar{F}_{nl} を

$$\int F_{nl}(\omega) \delta(\omega - \omega_{ln}) d^3 k = \bar{F}_{nl} \int \delta(\omega - \omega_{ln}) d^3 k$$

によって定義し、さらに \bar{F}_{nl} が大きな ω 依存性を持たないと仮定し、一定値 F_{nl} とおけるなら式(4.46)は簡単になって、

$$\omega \sigma''_{xy}(\omega) = \frac{\pi q^2}{2m^2 \hbar} F_{nl} J_{nl}(\omega) \quad (4.48)$$

となる。ここに、 $J_{nl}(\omega)$ は結合状態密度とって、

$$J_{nl}(\omega) = \frac{1}{8\pi^3} \int \delta(\omega_{ln} - \omega) d^3 k$$

と表され、占有状態と非占有状態の状態密度のたたみこみを示している。

ここで、左右円偏光に対する振動子強度 $F_{nl}^{\pm}(\omega)$ を

$$F_{nl}^{\pm}(\omega) = \left| \langle n \uparrow | \pi^{\pm} | \uparrow l \rangle \right|^2 + \left| \langle n \downarrow | \pi^{\pm} | \downarrow l \rangle \right|^2$$

と定義し、左右円偏光に対する結合状態密度 $J_{nl}^{\pm}(\omega)$ を

$$F_{nl}^{\pm} J_{nl}^{\pm}(\omega) = \frac{1}{8\pi^3} \int F_{nl}^{\pm}(\omega) \delta(\omega - \omega_{ln}) d^3 k$$

で定義すれば、

$$\omega \sigma''_{xy}(\omega) = \frac{\pi q^2}{2m^2 \hbar} \left(F_{nl}^- J_{nl}^-(\omega) - F_{nl}^+ J_{nl}^+(\omega) \right) \quad (4.49)$$

を得る。このように書けば、 $\omega \sigma''_{xy}$ が左円偏光と右円偏光に対するバンド間遷移のスペクトルの差として表されることが分かる。このように書けるためには原子状態にあった成分がバンド全体に均一に広がっていて、同じ遷移確率がこのバンド間遷移全体を通じて適用できるという仮定が必要である。Fe や Ni では実際にこれに近い状況が実現していること

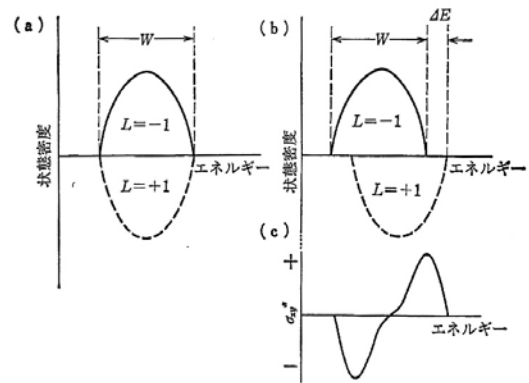


図 4.10 金属磁性体のバンド構造と磁気光学スペクトル
(a) 磁化のないときのバンド構造, (b) 磁化のあるときのバンド構造,
(c) 磁気光学スペクトル

が証明されている。式(4.49)から、 $F_{nl}^+(\omega)$ と $F_{nl}^-(\omega)$ に差があるか、 $J_{nl}^+(\omega)$ と $J_{nl}^-(\omega)$ の分布の重心に差があれば、磁気光学効果を生じることが示される。この事情は 4.3.2 節に紹介した局在系の場合に類似している。(線スペクトルか、バンドかの違いはあるが)

図 4.10(a)に示すように磁化が存在しないと左円偏光による遷移と右円偏光による遷移は完全に打ち消しあう。この結果、 σ_{xy} は 0 になるが磁化が存在すると図 4.10(b)のように J と J' との重心のエネルギーが ΔE だけずれて、 σ_{xy} (従って ϵ_{xy}) に分散型の構造が生じる。 σ_{xy} のピークの高さは σ の対角成分の実数部 σ_{xx}' (左右円偏光に対する連結状態密度の和に比例) が示すピーク値のほぼ $\Delta E/W$ 倍となる。ここに、 W は連結状態密度スペクトルの全幅、 ΔE は正味のスピンの偏極と実効的スピンの軌道相互作用の積に比例する量となっている。たとえば、 $S \rightarrow P_{1/2}$, $P_{3/2}$ の遷移を考えると、 $\Delta E = (2/3) \cdot \Delta_{so} \cdot (n_1 - n_2) / (n_1 + n_2)$ で与えられる。ここに、 n_1 , および、 n_2 は、それぞれ、多数スピンと少数スピンの電子の数である。従って、 σ_{xy} のスペクトルの分散形の符号からフェルミ面のスピンの偏極を見ることが出来る。また、バンド構造が変わらない範囲では、磁気光学効果が磁化の大きさに比例することも理解できる。

4. 5節のまとめ

金属磁性体の磁気光学効果のスペクトルは、定性的には、左右円偏光に対するバンド間遷移の結合状態密度の差として表せる。磁化があると、スピンの軌道相互作用のために、左右円偏光に対する状態密度のバンドのずれが起き磁気光学効果

4.6 遷移金属の自由電子と磁気光学効果

この節では遷移金属の伝導電子による磁気光学効果の分散式を、Erskine¹³⁾の方法に従って量子論的に導いておく。

われわれは 4.2 節で磁界の中に置かれた金属の自由電子がもたらす磁気光学効果について古典論的に扱い、式(4.17)に示すようなマグネトプラズマ共鳴という σ_{xy} の分散式を得た。また、これはホール効果と本質的に同じ起源を持つ効果であることを示した。

強磁性体においては、異常ホール効果と呼ばれる効果があり、磁界がなくてもホール起電力が生じる。異常ホール効果は、通常のホール効果を表す式において $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ を単純に $\mu_0 \mathbf{M}_s$ に置き換えたものとはなっていない。それはこの効果がローレンツ力によって生じているのではなく、電子の散乱にスピンの軌道相互作用が働いていることによるからである。

異常ホール効果の起源は次のように考えることができる。

インパルス的な電界 $\mathbf{E} = q\mathbf{E}_0\delta(t)$ がフェルミ波数 k_0 を持った伝導電子に加ったものとする。これによって電子はバンド内で励起されて $\mathbf{k} = \mathbf{k}_0 + \Delta$ になるが、これがもとの値に戻る際には、 \mathbf{k} とスピンの両方に垂直な方向へ散乱を受ける。これを式で書くと、

$$-\frac{d\mathbf{k}}{dt} = \frac{\mathbf{k}}{\tau} + \frac{\mathbf{s} \times \mathbf{k}}{\tau_s} \quad (4.50)$$

のように表される。第1項は通常の散乱であるが、第2項はスピンの軌道相互作用によって生じる散乱で、斜め(スキュー)散乱と呼ばれる。この散乱によって、1次電流 J_x に垂直な電流成分 J_y が生じる。

\mathbf{s} が z 方向を向いているとすると、この緩和現象は次式で表される。

$$\begin{aligned} -\frac{dk_y}{dt} &= \frac{k_y}{\tau} + \frac{s}{\tau_s} k_x \\ -\frac{dk_x}{dt} &= \frac{k_x}{\tau} - \frac{s}{\tau_s} k_y \end{aligned} \quad (4.51)$$

これを初期条件

$$\begin{aligned} k_x(0) &= \Delta = \frac{qE_{0x}}{\hbar} + k_{0x} \\ k_y(0) &= k_{0y} \end{aligned}$$

のもとに解くと、

$$\begin{aligned} k_x &= \frac{qE_{0x}}{\hbar} \cos \Omega t \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + k_{0x} \\ k_y &= -\frac{qE_{0x}}{\hbar} \sin \Omega t \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) + k_{0y} \end{aligned} \quad (4.52)$$

ここで、 $\Omega = s/\tau_s$ である。電流密度は、電荷と速度(運動量/質量)の積をフェルミ分布のもとで平均したもので、

$$\mathbf{J} = q \int v f(\mathbf{k}) d^3 k = \frac{q\hbar}{m^*} \int \mathbf{k} f(\mathbf{k}) d^3 k \quad (4.53)$$

で与えられる。式(4.52)の k を式(4.53)に代入すると、フェルミ波数 k_0 の成分は消えて

$$J_y = -\frac{nq^2 E_{0x}}{m^*} \sin \Omega t \cdot \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right)$$

となる。したがって、伝導率テンソルの非対角成分は、 J_y/E_{0x} のフーリエ変換をとって

$$\sigma_{xy}(\omega) = \int \frac{J_y(t)}{E_{0x}} \exp(i\omega t) dt = \frac{nq^2}{m^*} \cdot \frac{\Omega}{(\omega + i/\tau)^2 - \Omega^2} \quad (4.54)$$

となる。この式は、マグネトプラズマ共鳴における σ_{xy} の古典論的分散式(4.17)において、サイクロトロン周波数 ω_c を $\Omega = s/\tau_c$ に置き換えた形になっている。もしも、ここで $\omega_c = qB/m^* = \Omega$ と置けば、 $B = m^* \Omega q$ という実効的な磁界が加っていると見なすこともできる。なお、Reim によると式(4.54)にはフェルミ面におけるスピン偏極率 $\langle \sigma_z \rangle = \Delta n / n = (n_1 - n_2) / (n_1 + n_2)$ を掛けるべきであるとしている¹⁴⁾。

しかし、これだけでは、遷移金属の伝導電子による磁気光学効果を説明するには不十分である。Smit によると波数 k で運動している電子はスピン軌道相互作用による分極 $\mathbf{P}(\mathbf{k})$ を受けているという。この $\mathbf{P}(\mathbf{k})$ は $\mathbf{k} \times \mathbf{M}$ に比例する量である。これが電界を加えたときの分布関数 $f(k)$ の変化を通じて全体として $\mathbf{P}_0 = \int \mathbf{P}(\mathbf{k}) f(k) d^3k$ だけの巨視的分極を持っている。この分極の時間変化による分極電流を評価すると、 \mathbf{M} が z 軸に平行である場合、

$$\left(\frac{dP_0}{dt} \right)_y = \frac{d}{dt} \frac{\hbar |P'_0|}{m^* v_0} \int (-k_x \Delta n) f(k) d^3k$$

となる。ここに、 $|P'_0|$ は $\mathbf{P}(\mathbf{k})$ の最大値、 v_0 はフェルミ速度 $\hbar k_0 / m^*$ である。

Erskine は、この式に式(4.52)を代入し、 $(dP_0/dt)/E_0$ をフーリエ変換することにより次式を導いた。

$$\sigma_{xy}(\omega) = \frac{nq^2}{m^*} \langle \sigma_z \rangle \frac{|P'_0|}{qv_0} \left(1 - \frac{\omega(\omega + i/\tau)}{(\omega + i/\tau)^2 - \Omega^2} \right) \quad (4.55)$$

ここに、 $\langle \sigma_z \rangle$ はスピン偏極率である。

したがって、伝導電子による磁気光学効果の分散式は、式(4.54)と式(4.55)の和の形で次式のように与えられる。

$$\sigma_{xy}(\omega) = \frac{nq^2}{m^*} \langle \sigma_z \rangle \left[\frac{\Omega}{(\omega + i/\tau)^2 - \Omega^2} + \frac{|P'_0|}{qv} \left(\frac{1}{\omega^2 \tau^2} + \frac{1}{\omega \tau} \right) \right] \quad (4.56)$$

ここに、第1項は、Reim に従って式(4.54)に $\langle \sigma_z \rangle$ を乗じた形を採用した。

この式の光学周波数における寄与を考えよう。 $\omega \tau \gg 1$ 、 $\Omega \ll |P'_0| / qv_0$ と考えて第1項を無視し、第2項については $\omega \rightarrow \infty$ の極限をとることにより、

$$\sigma_{xy}(\omega) = \frac{nq^2}{m^*} \langle \sigma_z \rangle \frac{P'_0}{qv_0} \left(\frac{1}{(\omega \tau)^2} + \frac{i}{\omega \tau} \right) \quad (4.57)$$

の式が得られる。すなわち、実数部は $(\omega \tau)^{-2}$ 、虚数部は $(\omega \tau)^{-1}$ の周波数依存性を示す。

したがって、 $\sigma'_{xy}(\omega)$ をプロットして一定値になれば伝導電子のスピン偏極の影響が見られるということになる。図 4.11 は金属 Gd について $\omega \sigma_{xy}$ をプロットしたもので点線の下部分が伝導電子の寄与であり、それより上の構造がバンド間遷移によるものであるとされている。

Reim は式(4.55)の第1項が場合によっては大きな寄与をすると主張している。彼は Ω がスピン軌道相互作用の大きさの程度であると考えており、希土類化合物のようにスピン軌道相互作用の大きな物質では第1項によってははっきりした分散型の磁気光学スペクトルが生じることがあると考えている。

4. 6 節のまとめ

伝導電子のスピン偏極とスピン軌道相互作用に基づく散乱によって磁気光学スペクトルには、 $\omega \sigma'_{xy} = \text{一定}$ という寄与が生じる。

第4章の参考文献

- 1) B. Lax and G.B. Wright: Phys. Rev. Lett. **4** (1960) 16.
- 2) R. Kubo: J. Phys. Soc. Jpn. **12** (1957) 570.
- 3) 近桂一郎, 上村洸: 日本物理学会誌 **24** (1969) 713. (この解説の(3.11)式は本書付録の式(C-9)と本質的に同じであるが、一部に誤りがある。それは(3.7)で $J = dP/dt = i \omega P$ とおいたことによる。 $J_{nm} = (1/i\hbar)[H_0, P]_{nm} = (\omega_n - \omega_m)P_{nm} = \omega_{nm}P_{nm}$ とすれば本書と同じ形になる。)
- 4) 花村栄一, 固体物理学, 裳華房, 東京 (1986) p. 132
- 5) R.F. Wallis and M. Balkanski: *Many-Body Aspects of Solid State Spectroscopy* (North Holland, Amsterdam, 1986)
- 6) Y. Shen: Phys. Rev. **133** (1964) A551.
- 7) H.S. Bennett and E.A. Stern: Phys. Rev. **137** (1964) A448.
- 8) F.J. Kahn, P.S. Persian & J.P. Remeika: Phys. Rev. **186** (1969) 891.
- 9) 上村洸: 磁性体ハンドブック (近角他編, 朝倉書店 1975) 1014.
- 10) C.S. Wang and J. Callaway: Phys. Rev. **B9** (1974) 4897.
- 11) M. Singh, C.S. Wang and J. Callaway: Phys. Rev. **B11** (1975) 287.
- 12) J.L. Erskine and E.A. Stern: Phys. Rev. Lett. **30** (1973) 1329.
- 13) J.L. Erskine and E.A. Stern: Phys. Rev. **B8** (1973) 1239.
- 14) W. Reim, O. E. Husser, J. Schoenes, E. Kaldis, P. Wachter and K. Seiler: J. Appl. Phys. **55** (1984) 2155.

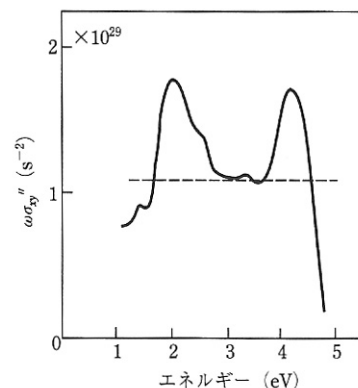


図 4.11 Gd (ガドリニウム) の磁気光学効果に対する伝導電子の寄与 $\omega \sigma''_{xy}$ スペクトルの点線の下が伝導電子の寄与である。

問 題

4.1 式(4.7)から(4.9)式が導かれることを確かめよ。

[ヒント] 式(4.8)に $u = U \exp(-i\omega t)$, $E = E_0 \exp(-i\omega t)$ を代入すると $(-m^* \omega^2 - im^* \omega \gamma + m^* \omega_0^2)(xi + yj + zk) = q \{ (E_x i + E_y j + E_z k) - i\omega(yBi - xBj) \}$ を得る。これを成分ごとに書いたものが式(4.8)である。これより x, y, z を求め、 $P = nqu$ の式に代入し式(4.9)を得る。

4.2 ローレンツの分散式(4.12)においてその虚数部がピークを示す角振動数 ω_p を求めよ。

[略解] 式(4.13)の第2式を ω で微分し 0 になるときの値を求めよ。およその値を求めるには、分母が最小となる場合を探せばよい。分母 $(\omega^2 - \omega_0^2)^2 + \omega^2 \gamma^2$ の2つの項はいずれも正であるから、最小値は $(\omega^2 - \omega_0^2)^2 = \omega^2 \gamma^2$ のときに得られ、 $\gamma \ll \omega_0$ ならば、 $\omega_p = \sqrt{\omega_0^2 + \gamma^2/4} + \gamma/2 \approx \omega_0 + \gamma/2$ で与えられる。

4.3 ドルーデの式(4.14)において、 $\omega \rightarrow 0$ としたときの虚数部から直流電気伝導率 σ_0 を求めよ。

[略解] $\epsilon_{xx} = 1 + \frac{i\sigma_{xx}}{\omega\epsilon_0}$ より、 $\sigma_{xx} = -i\omega\epsilon_0(\epsilon_{xx} - 1)$ となるので、この ϵ_{xx} に式(4.14)を代入し、 $\omega \rightarrow 0$ とすると、

$$\sigma_0 = \lim_{\omega \rightarrow 0} \sigma_{xx}(\omega) = \lim_{\omega \rightarrow 0} i \frac{ne^2}{m} \cdot \frac{1}{\omega + i\gamma} = \frac{ne^2}{m\gamma} = ne \cdot \frac{e\tau}{m} = ne\mu_e$$

ここに μ_e は電子の移動度である。

4.4 ドルーデの式において、 $\gamma = 0$ のとき、 $\omega < \omega_p$ における反射率を求めよ。

[略解] $\epsilon_{xx} = 1 - \omega_p^2 / \omega^2$ $n^2 = (\epsilon'_{xx} + |\epsilon_{xx}|) / 2$; $\kappa^2 = (-\epsilon'_{xx} + |\epsilon_{xx}|) / 2$

より、 $n=0$, $\kappa = \sqrt{\omega_p^2 / \omega^2 - 1}$ 従って第3章の式(3.72)より $R=1(=100\%)$ となる。

4.5 式(4.18)に与えられる伝導率テンソルの逆テンソルを計算し式(4.19)を導け。

[ヒント] 伝導率行列 $\tilde{\sigma}$ の行列式を $|\tilde{\sigma}|$, 要素 σ_{ij} の余因子 A_{ij} とすると逆行列 $\tilde{\rho} = \tilde{\sigma}^{-1}$ の要素は、 $(\tilde{\sigma}^{-1})_{ij} = A_{ij} / |\tilde{\sigma}|$ で与えられる。

4.6 電子密度 $n=10^{18} \text{cm}^{-3}$ 移動度 $5000 \text{cm}^2/\text{Vs}$ の GaAs において、磁界 5T においてマグネトプラズマ共鳴が現れる光子エネルギー $\hbar\omega_{MP}$ をもとめよ。ただし、電子の有効質量を $0.07m_0$ とせよ。ここに m_0 は自由電子の質量 $9.1 \times 10^{-31} \text{kg} = 9.1 \times 10^{-28} \text{g}$ とする。

[略解] $\mu = e\tau / m^*$ より $\tau = 4 \times 10^{-11} \text{s}$ となり、プラズマ角周波数は $\omega_p = 2.13 \times 10^{14} \text{rad/s}$ 、サイクロトロン角周波数は $\omega_c = 1.26 \times 10^{13} \text{rad/s}$ であるから、 $\omega_{MP} \approx (21.3 \pm 0.6) \times 10^{13} \text{ rad/s} = (3.39 \pm 0.1) \times 10^{13} \text{ Hz}$ 、これを eV に変換すると、 $140 \pm 4 \text{ meV}$ となる。

4.7 時間を含む摂動法において式(4.24)の展開係数 $c_j(t)$ が式(4.26)で与えられることを確かめよ。

[略解] いま、式(4.25)において、x成分のみを書く

$$\begin{aligned} \frac{dc_{xj}(t)}{dt} &= \frac{1}{i\hbar} \langle j | H' | 0 \rangle \exp\{i\omega_{j0} t\} \equiv \frac{1}{i\hbar} e \langle j | x | 0 \rangle \cdot E_x(t) \exp(i\omega_{j0} t) \\ &= \frac{1}{i\hbar} e \langle j | x | 0 \rangle \cdot E_{x0} \{ \exp\{i(\omega_{j0} + \omega)t\} + \exp\{i(\omega_{j0} - \omega)t\} \} \end{aligned}$$

これを積分したものが式(4.26)になることは容易に確かめられる。

4.8 式(4.26)で求められた展開係数を式(4.24)に代入して、摂動系の固有関数 ψ を書き下せ。

$$\begin{aligned} \psi(r, t) &= \phi_0(r) \exp(-i\omega_0 t) + \sum_j c_j(t) \phi_j(r) \exp(-i\omega_j t) \\ &= \phi_0(r) \exp(-i\omega_0 t) + eE_{0x} \sum_j x_{j0} \left[\frac{1 - \exp\{i(\omega_{j0} + \omega)t\}}{\hbar(\omega + \omega_{j0})} + \frac{1 - \exp\{i(\omega_{j0} - \omega)t\}}{\hbar(-\omega + \omega_{j0})} \right] \phi_j(r) \exp(-i\omega_{j0} t) \\ &= \phi_0(r) \exp(-i\omega_0 t) + eE_{0x} \sum_j x_{j0} \left[\frac{\exp(-i\omega_{j0} t) - \exp\{i\omega t\}}{\hbar(\omega + \omega_{j0})} + \frac{\exp(-i\omega_{j0} t) - \exp\{-i\omega t\}}{\hbar(-\omega + \omega_{j0})} \right] \phi_j(r) \exp(-i\omega_{j0} t) \end{aligned}$$

4.9 前問で得られた固有関数を用いて電気分極 P の期待値を計算し、入射光の角周波数と同じ成分が式(4.27)で与えられることを示せ。

$$\begin{aligned}
 \langle P_x \rangle &= \langle Nq\dot{x}(t) \rangle = Nq \int \Psi^* \dot{x} \Psi dx \\
 &= Nq \int dx \left[\left\{ \phi_0^*(r) \exp(i\omega_0 t) + \sum_j c_{xj}^*(t) \phi_j^*(r) \exp(i\omega_{j0} t) \right\} x \left\{ \phi_0(r) \exp(-i\omega_0 t) + \sum_j c_{xj}(t) \phi_j(r) \exp(-i\omega_{j0} t) \right\} \right] \\
 &= Nq \left[\langle 0|x|0 \rangle + \sum_j \left[\langle 0|x|j \rangle c_{xj}(t) \exp(-i\omega_{j0} t) + \langle j|x|0 \rangle c_{xj}^*(t) \exp(i\omega_{j0} t) + \dots \right] \right] \\
 &= Nq^2 E_{x0} \sum_j \left[\langle j|x|0 \rangle^2 \left[\frac{\exp(i\omega_{j0} t) - \exp\{-i\omega t\}}{\hbar(\omega + \omega_{j0})} + \frac{\exp(i\omega_{j0} t) - \exp\{i\omega t\}}{\hbar(-\omega + \omega_{j0})} \right] \right. \\
 &\quad \left. + \left[\frac{\exp(-i\omega_{j0} t) - \exp\{i\omega t\}}{\hbar(\omega + \omega_{j0})} + \frac{\exp(-i\omega_{j0} t) - \exp\{-i\omega t\}}{\hbar(-\omega + \omega_{j0})} \right] \right]
 \end{aligned}$$

このうちで $\exp(-i\omega t) + cc$ の項のみに注目すると式(4.27)の最後の式を得る。

4.10 E_y (y 方向の電界) により生じた x 方向の分極 P_x を表す式(4.34)を導け

[ヒント] 前問において $\langle Nq\dot{x}(t) \rangle$ を求める代わりに $\langle Nq\dot{y}(t) \rangle$ を計算せよ。このとき、前問同様、 $\exp(-i\omega t)$ の項だけを考えればよい。

4.11 電気感受率の非対角成分を表す式 (4.35) を導け。

[ヒント] 式(4.35)の前の式に $x=(x^++x^-)/2^{1/2}$ 、 $y=(x^+-x^-)/2^{1/2}i$ を代入すると、

$$\begin{aligned}
 \frac{\langle 0|x|j \rangle \langle j|y|0 \rangle}{\hbar(\omega_{j0} - \omega)} + \frac{\langle 0|y|j \rangle \langle j|x|0 \rangle}{\hbar(\omega_{j0} + \omega)} &= \frac{\langle 0|(x^+ + x^-)|j \rangle \langle j|(x^- - x^+)|0 \rangle}{2i\hbar(\omega_{j0} - \omega)} + \frac{\langle 0|(x^- - x^+)|j \rangle \langle j|(x^+ + x^-)|0 \rangle}{2i\hbar(\omega_{j0} + \omega)} \\
 &= \frac{1}{2i} \left(\frac{\langle 0|x^-|j \rangle + \langle 0|x^+|j \rangle}{\hbar(\omega_{j0} - \omega)} \left(\langle j|x^-|0 \rangle - \langle j|x^+|0 \rangle \right) + \frac{\langle 0|x^-|j \rangle - \langle 0|x^+|j \rangle}{\hbar(\omega_{j0} + \omega)} \left(\langle j|x^-|0 \rangle + \langle j|x^+|0 \rangle \right) \right) \quad \text{もし、状態}|0\rangle \text{と状態} \\
 &= \frac{1}{\hbar i} \left(\langle 0|x^-|j \rangle^2 - \langle 0|x^+|j \rangle^2 \right) \frac{\omega_{j0}}{\omega_{j0}^2 - \omega^2} - \frac{1}{\hbar} \text{Im} \left(\langle 0|x^-|j \rangle \langle j|x^+|0 \rangle \right) \frac{\omega}{\omega_{j0}^2 - \omega^2}
 \end{aligned}$$

$|j\rangle$ の間の遷移が右円偏光のみで許されるならば、第1項は有限の値をとるが、第2項は0になる。また、左右円偏光に対する遷移行列があまり大きく違わないときにもやはり第2項は小さな値をとる。

4.12 式(4.46)を確かめよ。

[略解] 図 4.9(a) のような準位を考える。絶対零度では $\rho_n=1$ 、 $\rho_m=0$ と書けるので、式(4.41)が成立する。2遷移系では、2つの遷移についてのみ和をとればよいので、式(4.41)の第2式は、

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{xy} &= \frac{iNq^2}{m\varepsilon_0\omega} \left\{ \frac{f_0\omega_1}{(\omega+i\gamma)^2 - \omega_1^2} + \frac{-f_0\omega_2}{(\omega+i\gamma)^2 - \omega_2^2} \right\} \\
 &= \frac{iNq^2 f_0}{m\varepsilon_0\omega} \left\{ \frac{\omega_0 - \Delta/2}{(\omega+i\gamma)^2 - (\omega_0 - \Delta/2)^2} - \frac{\omega_0 + \Delta/2}{(\omega+i\gamma)^2 - (\omega_0 + \Delta/2)^2} \right\} \\
 &= \frac{iNq^2 f_0}{2m\varepsilon_0\omega} \left\{ \frac{1}{\omega+i\gamma - \omega_0 + \Delta/2} - \frac{1}{\omega+i\gamma + \omega_0 - \Delta/2} - \frac{1}{\omega+i\gamma - \omega_0 - \Delta/2} + \frac{1}{\omega+i\gamma + \omega_0 + \Delta/2} \right\} \\
 &\approx \frac{iNq^2 f_0}{2m\varepsilon_0\omega} \left\{ \frac{1}{\omega+i\gamma - \omega_0 + \Delta/2} - \frac{1}{\omega+i\gamma - \omega_0 - \Delta/2} \right\} \\
 &\approx \frac{iNq^2 f_0}{2m\varepsilon_0\omega} \left(\frac{\{1 - \Delta/2(\omega - \omega_0 + i\gamma)\}}{(\omega - \omega_0 + i\gamma)} - \frac{\{1 + \Delta/2(\omega - \omega_0 + i\gamma)\}}{(\omega - \omega_0 + i\gamma)} \right) \\
 &= -\frac{iNq^2 f_0 \Delta}{2m\varepsilon_0\omega} \frac{1}{(\omega - \omega_0 + i\gamma)^2} = -\frac{iNq^2 f_0 \Delta}{2m\varepsilon_0\omega} \frac{(\omega - \omega_0)^2 - \gamma^2 - 2i\gamma(\omega - \omega_0)}{\{(\omega - \omega_0)^2 + \gamma^2\}}
 \end{aligned}$$