物性物理学特論A第8回
－磁気光学効果の電子論(3):量子論(2) －

佐藤勝昭
慶應義塾大学講師（非常勤）
東京農工大学名誉教授･工学府特任教授
(独)科学技術振興機構(JST)戦略的創造研究事業さきがけ
「革新的次世代デバイスを目指す材料とプロセス」研究総括

KEIO 150
Design the Future

復習コーナー

磁気光学効果の量子論

- 電気分極と摂動論
- 時間を含む摂動論
- 誘電率の対角成分の導出

復習コーナー

電気分極と摂動論

- 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電気双極子の単位体積における総和」
- 「電界の効果」を，電界を与える前の系(無摂動系)のハミルトニアンに対する「摂動」として扱う。
- 「摂動を受けた場合の波動関数」を「無摂動系の固有関数」の1次結合として展開。この波動関数を用いて「電気双極子の期待値」を計算。

復習コーナー

時間を含む摂動論

- 無摂動系の基底状態の波動関数をϕ_0(r)で表し,
- j番目の励起状態の波動関数をϕ_j(r) で表す.
- 無摂動系のシュレーディンガー方程式

$$\mathcal{H}_0\phi_0(r)=\hbar\omega_0\phi_0(r)$$
$$\mathcal{H}_0\phi_j(r)=\hbar\omega_j E\phi_j(r) \qquad (4.22)$$

- 光の電界$\boldsymbol{E}(t)=\boldsymbol{E}_0\exp(-i\omega t)+\mathrm{c.c.}$ (c.c.=共役複素数)
- 摂動のハミルトニアン

$$\mathcal{H}'=e\boldsymbol{r}\cdot\boldsymbol{E}(\boldsymbol{t})$$

時間を含む摂動論

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

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

$$= eE_{x0}\langle j|x|0\rangle\left[\frac{1-\exp\left(i(\omega+\omega_{j0})t\right)}{\hbar\left(\omega+\omega_{j0}\right)}+\frac{1-\exp\left(i(-\omega+\omega_{j0_0})t\right)}{\hbar\left(-\omega+\omega_{j0}\right)}\right]$$

$$\psi(r,t) = \phi_0(r)\exp(-i\omega_0 t) + \sum_j c_j(t)\phi_j(r)\exp(-i\omega_j t)$$

復習コーナー

誘電率の対角成分の導出

- 電気分極Pの期待値を計算

(入射光の角周波数と同じ成分)

$$c_{xj}(t)=eE_{x0}\langle j|x|0\rangle\left[\frac{1-\exp\left(i(\omega+\omega_{j0})t\right)}{\hbar\left(\omega+\omega_{j0}\right)}+\frac{1-\exp\left(i(-\omega+\omega_{j0})t\right)}{\hbar\left(-\omega+\omega_{j0}\right)}\right]$$

$$\langle P_x\rangle=\langle Nqx(t)\rangle=Nq\int\Psi^*x\Psi dx$$

$$=Nq\sum_j\left[\langle 0|x|0\rangle+\langle j|x|0\rangle c_{xj}(t)\exp\left(i\omega_{j0}t\right)+\langle 0|x|j\rangle c_{xj}^*(t)\exp\left(-i\omega_{j0}t\right)+\cdots\right]$$

$$=Nq^2\left[\sum_j\frac{\left|\langle j|x|0\rangle\right|^2}{\hbar}\cdot\left(\frac{1}{\omega_{j0}-\omega}+\frac{1}{\omega_{j0}+\omega}\right)\right]E_x(t)$$

$$P_x(\omega)=\chi_{xx}(\omega)\varepsilon_0E_x$$

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

復習コーナー

誘電率の対角成分の導出

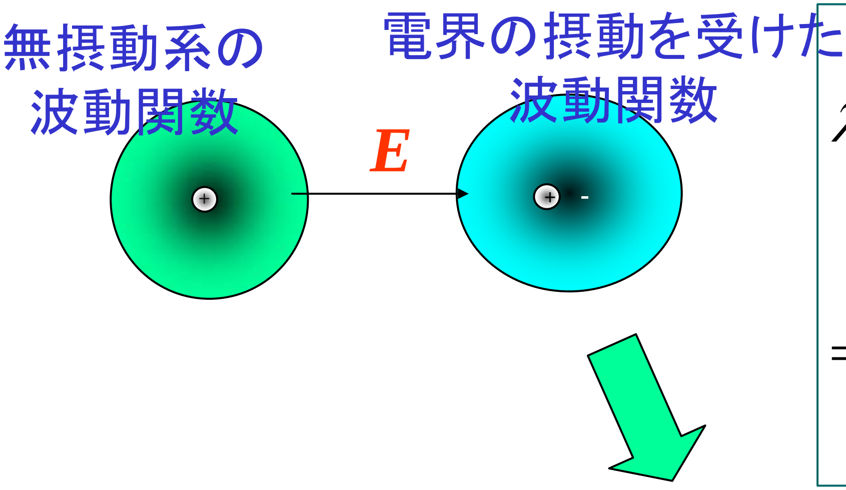
$$\chi_{xx}(\omega)=\frac{Nq^2}{m\varepsilon_0}\sum_j m\left|\langle j|x|0\rangle\right|^2\left[\frac{1}{\hbar(\omega_{j0}-\omega-i\gamma)}+\frac{1}{\hbar(\omega_{j0}+\omega+i\gamma)}\right]$$

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

振動子強度　$f_{xj}=2m\omega_{j0}\left|\langle j|x|0\rangle\right|^2/\hbar$

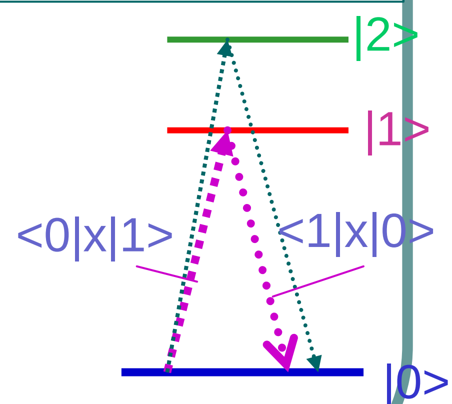
$$\varepsilon_{xx}(\omega)=1+\frac{Ne^2}{m\varepsilon_0}\sum_j f_{xj}\frac{(\omega_{jo}^2-\omega^2+\gamma^2)+2i\gamma\omega}{(\omega_{j0}^2-\omega^2+\gamma^2)^2+4\gamma^2\omega^2}$$

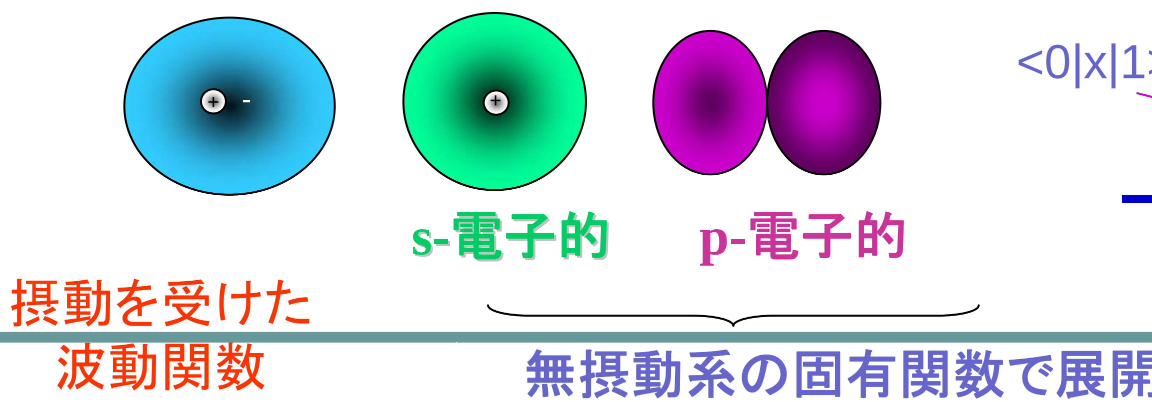
復習コーナー
電子分極のミクロな扱い



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

$$= \frac{2Nq^2}{\hbar\varepsilon_0}\left(\frac{\omega_{10}\left|\langle 1|x|0\rangle\right|^2}{\omega_{10}{}^2-\omega^2} + \frac{\omega_{20}\left|\langle 2|x|0\rangle\right|^2}{\omega_{20}{}^2-\omega^2} + \cdots\right)$$





第8回前半で学ぶこと

- 量子論に向けて
- 電気分極と摂動論
- 時間を含む摂動論
- 誘電率の対角成分の導出
- 誘電率の非対角成分の導出
- 磁気光学効果の物理的説明
- 磁気光学スペクトルの形状

誘電率の非対角成分の導出

$$c_{yj}(t) = eE_{y0}\langle j|y|0\rangle\left[\frac{1-\exp\left(i(\omega+\omega_{j0})t\right)}{\hbar(\omega+\omega_{j0})} + \frac{1-\exp\left(i(-\omega+\omega_{j0_0})t\right)}{\hbar(-\omega+\omega_{j0})}\right]$$

$$\langle P_x\rangle = \langle Nqx(t)\rangle = Nq\int\Psi^* x\Psi dx$$

$$= Nq\sum_j\left[\langle 0|x|0\rangle + \langle j|x|0\rangle c_{yj}(t)\exp(i\omega_{j0}t) + \langle 0|x|j\rangle c_{yj}^*(t)\exp(-i\omega_{j0}t) + \cdots\right]$$

$$= Nq\sum_j\left[\langle j|x|0\rangle c_{yj}(t)\exp(i\omega_{j0}t) + cc.\right]$$

$$= Nq^2\sum_j\langle j|x|0\rangle\langle 0|y|j\rangle\frac{1}{\hbar}\left(\frac{E^*_{y0}\exp(-i\omega t)}{\omega_{j_0}-\omega} + \frac{E_{y0}\exp(i\omega t)}{\omega_{j0}+\omega}\right)$$

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

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

誘電率の非対角成分の導出

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

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

$\left|\langle 0|x^{\pm}|j\rangle\right|^2$ 右および左円偏光により基底状態|0>から，励起状態|*j*>に遷移する確率

円偏光についての振動子強度 $f_{jo}^{\pm} = \dfrac{m\omega_{j0}\left|\langle 0|x^{\pm}|j\rangle\right|^2}{\hbar}$

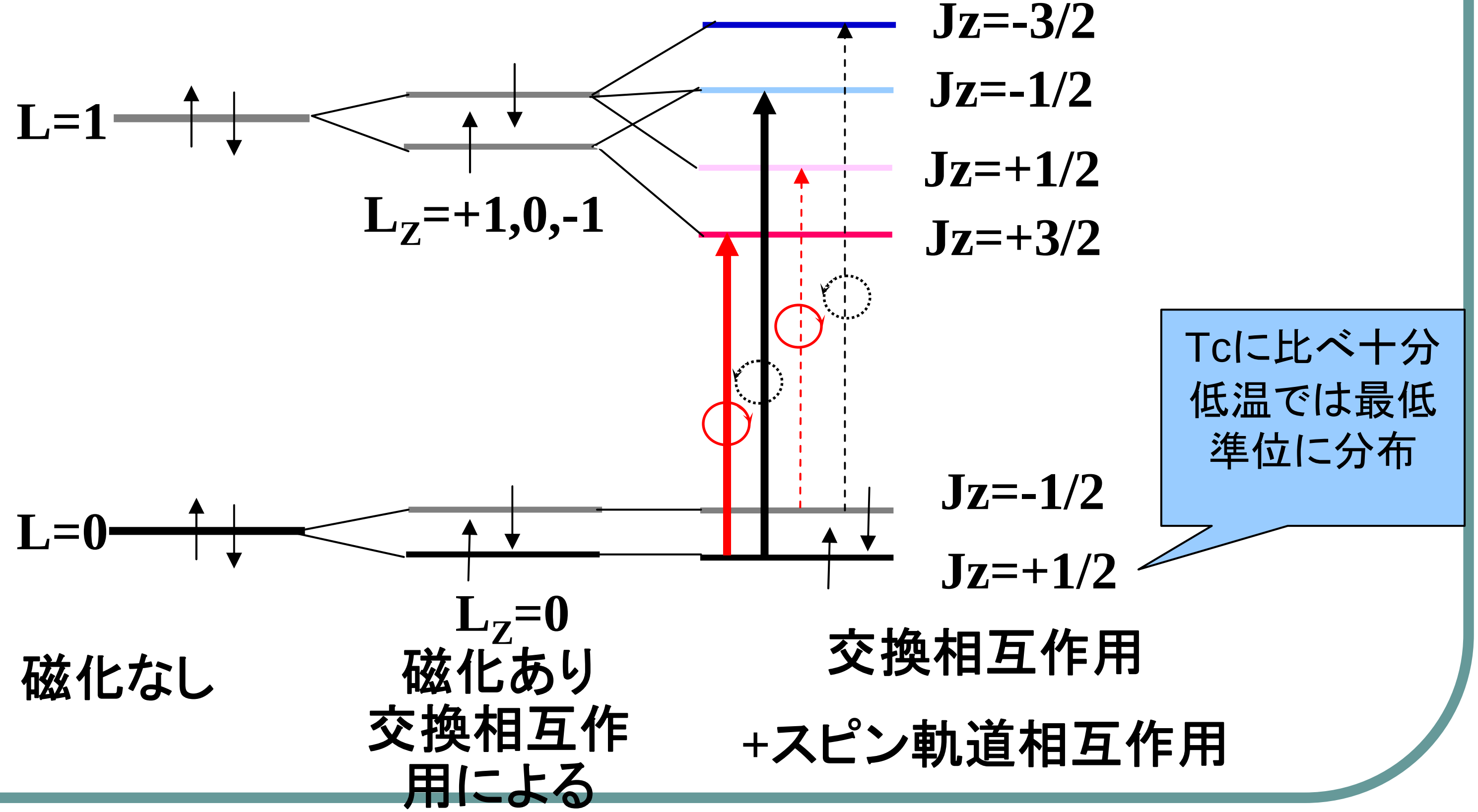
$$\boxed{\varepsilon_{xy} = \chi_{xy}(\omega) = -i\frac{Nq^2}{2m\varepsilon_0}\sum_j \frac{f_{j0}^+ - f_{j0}^-}{\omega_{j0}^2 - (\omega + i\gamma)^2}}$$

磁気光学効果の 量子論

- 磁化の存在→スピン状態の分裂
  - 左右円偏光の選択則には影響しない
- スピン軌道相互作用→軌道状態の分裂
- 右(左)回り光吸収→右(左)回り電子運動誘起
- 大きな磁気光学効果の条件
  - 遷移強度の強い許容遷移が存在すること
  - スピン軌道相互作用の大きな元素を含む
  - 磁化には必ずしも比例しない

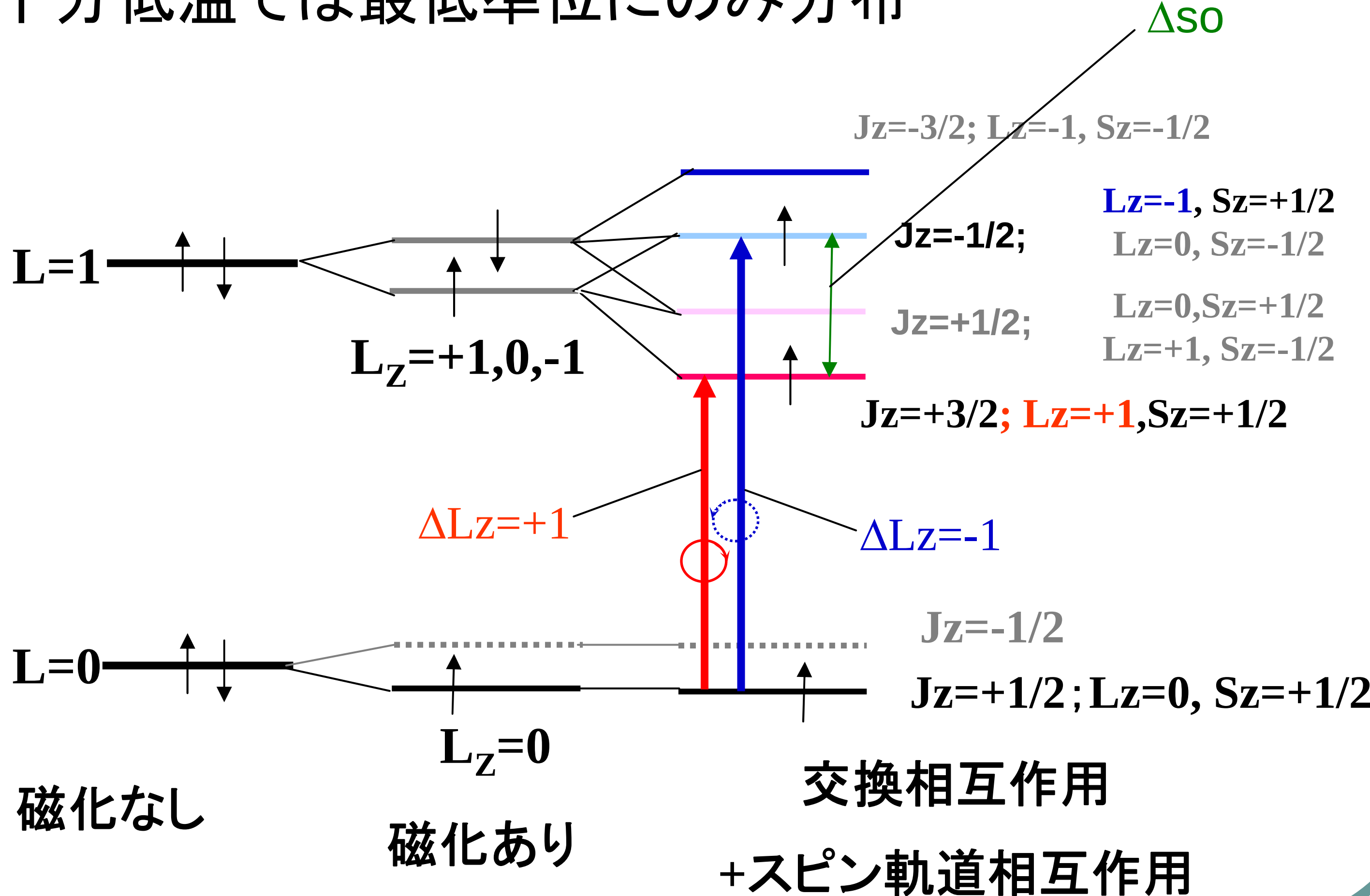
スピン軌道相互作用の重要性

- 磁化があるだけでは、軌道状態は分裂しないが、スピン軌道相互作用によって全角運動量がよい量子数になり分裂します。



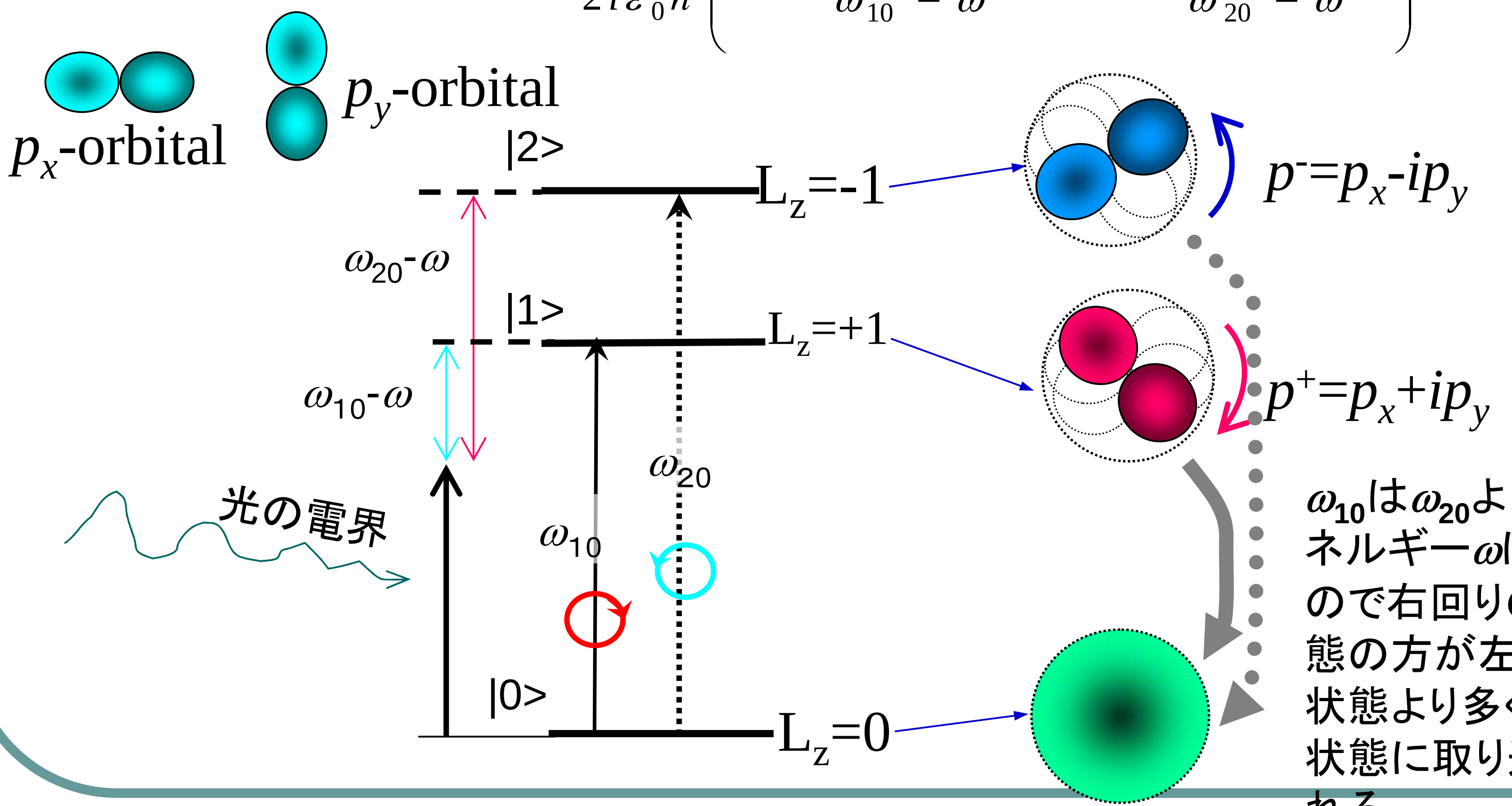
スピン軌道相互作用の重要性

- Tcに比べ十分低温では最低準位にのみ分布



円偏光の吸収と電子構造：非対角成分

$$\chi_{xy}(\omega) = \frac{Nq^2}{2i\varepsilon_0\hbar}\left(\omega_{10}\frac{\left|\langle 0|x^+|2\rangle\right|^2}{\omega_{10}^2-\omega^2} - \omega_{20}\frac{\left|\langle 0|x^-|1\rangle\right|^2}{\omega_{20}^2-\omega^2}\right)$$



ω_{10}はω_{20}より光エネルギーωに近いので右回りの状態の方が左回り状態より多く基底状態に取り込まれる

磁気光学スペクトルの形

$$\varepsilon_{xy} = \chi_{xy}(\omega) = -i\frac{Nq^2}{2m\varepsilon_0}\sum_j \frac{f_{j0}^{+} - f_{j0}^{-}}{\omega_{j0}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \qquad (4.38)$$

- 磁気光学効果スペクトルは上式(4.38)をきちんと計算すれば,説明できるはずのものですが,単純化するために、遷移の性質により、典型的な2つの場合にわけています。
- 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呼びます。
- 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びます。

反磁性型スペクトル

- 図4.7のような電子構造を考えます。基底状態として交換分裂した最低のエネルギー準位を考えます。このときの誘電率の非対角成分の実数部・虚数部は図4.7(b)のように表されます。

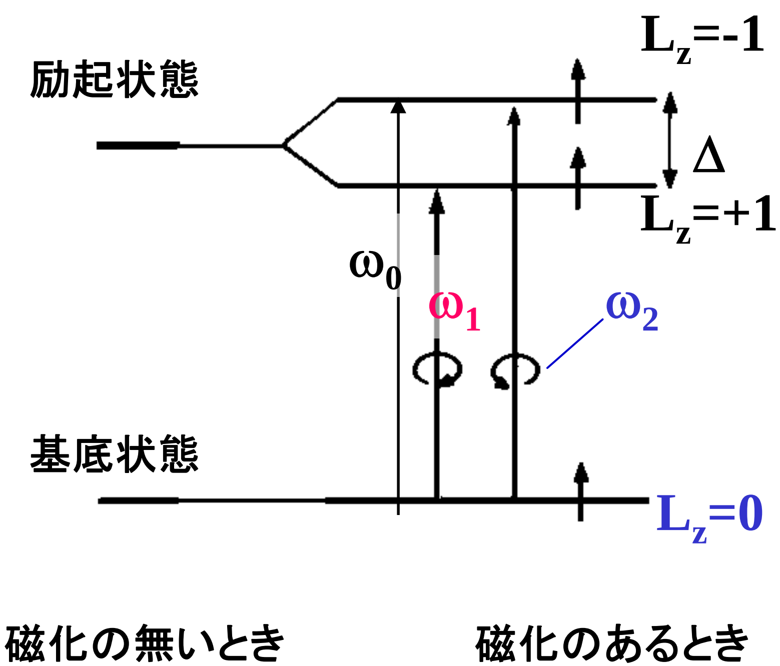


図4.7(a)

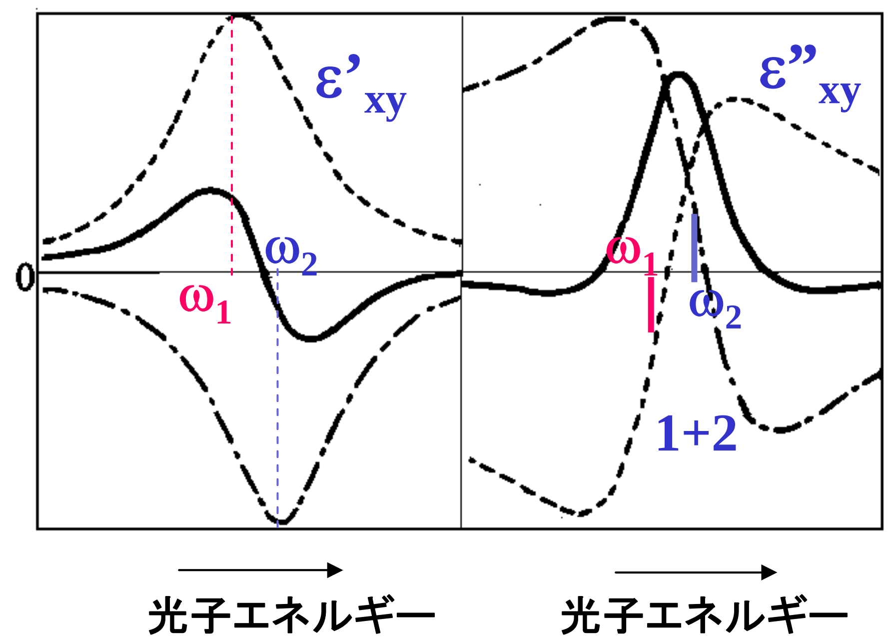


図4.7(b)

反磁性型スペクトルの式

- 図4.7(a)のような準位図を考えたときの誘電率の非対角成分は次式になります。

$$\varepsilon_{xy} = -\frac{iNe^2}{2m\varepsilon_0\omega}\left\{\frac{\omega_1 f_0}{\omega_1^2-(\omega+i\gamma)^2}+\frac{-\omega_2 f_0}{\omega_2^2-(\omega+i\gamma)^2}\right\}$$

$$= -\frac{iNe^2 f_0}{2m\varepsilon_0\omega}\left\{\frac{\omega_0-\Delta/2}{(\omega_0-\Delta/2)^2-(\omega+i\gamma)^2}-\frac{\omega_0+\Delta/2}{(\omega_0+\Delta/2)^2-(\omega+i\gamma)^2}\right\}$$

$$\approx -\frac{iNe^2 f_0\Delta}{4m\varepsilon_0\omega}\cdot\frac{(\omega_0-\omega)^2-\gamma^2+2i(\omega_0-\omega)}{\left\{(\omega_0-\omega)^2+\gamma^2\right\}^2}$$

反磁性スペクトルの誘電率の式

- 図4.7(a)のような準位図を考えたときの誘電率の非対角成分は次式になります。

$$\varepsilon'_{xy} = \frac{Ne^2 f_0 \Delta_{so}}{2m\varepsilon_0 \omega\tau} \cdot \frac{\omega_0 - \omega}{\left((\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2\right)^2}$$

$$\varepsilon''_{xy} = -\frac{Ne^2 f_0 \Delta_{so}}{4m\varepsilon_0 \omega} \cdot \frac{(\omega_0 - \omega)^2 - \gamma^2}{\left\{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2\right\}^2} \qquad (4.46)$$

これを図示したのが図4.7(b)の実線です。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となります。

誘電率の非対角成分のピーク値

- 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εxy”のピーク値は

$$\varepsilon''_{xy}\Big|_{peak} = \frac{Ne^2 f \Delta_{SO}}{4m\varepsilon_0\omega\gamma^2} \qquad (4.47)$$

鉄の場合：$N=10^{28}\mathrm{m}^{-3}$, $f_0=1$, $\hbar\Delta_{so}=0.05\mathrm{eV}$, $\hbar\omega_0=2\mathrm{eV}$, $\hbar/\tau=0.1\mathrm{eV}$という常識的な値を代入$\varepsilon_{xy}''|_{\mathrm{peak}}=3.5$を得ます。

大きな磁気光学効果を持つ条件：

・光学遷移の振動子強度 f が大きい

・スピン軌道相互作用が大きい

・遷移のピーク幅が狭い

常磁性型スペクトル

- 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がある場合を考えます．

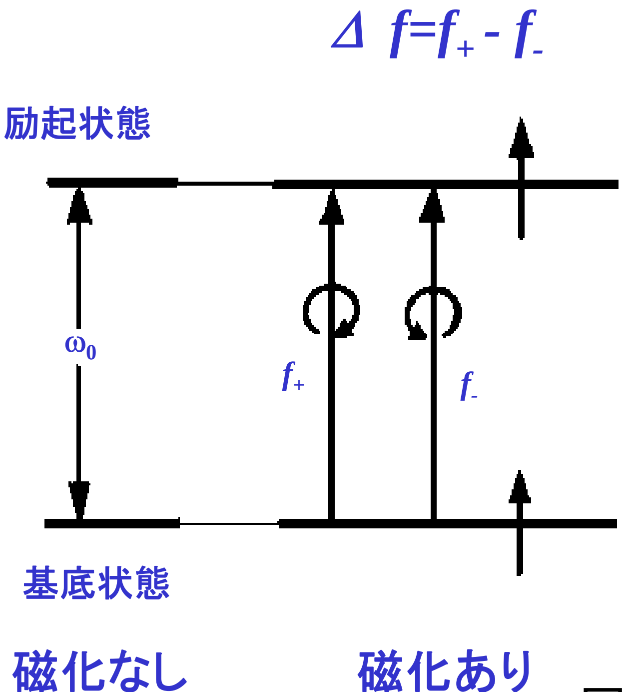


図4.8(a)

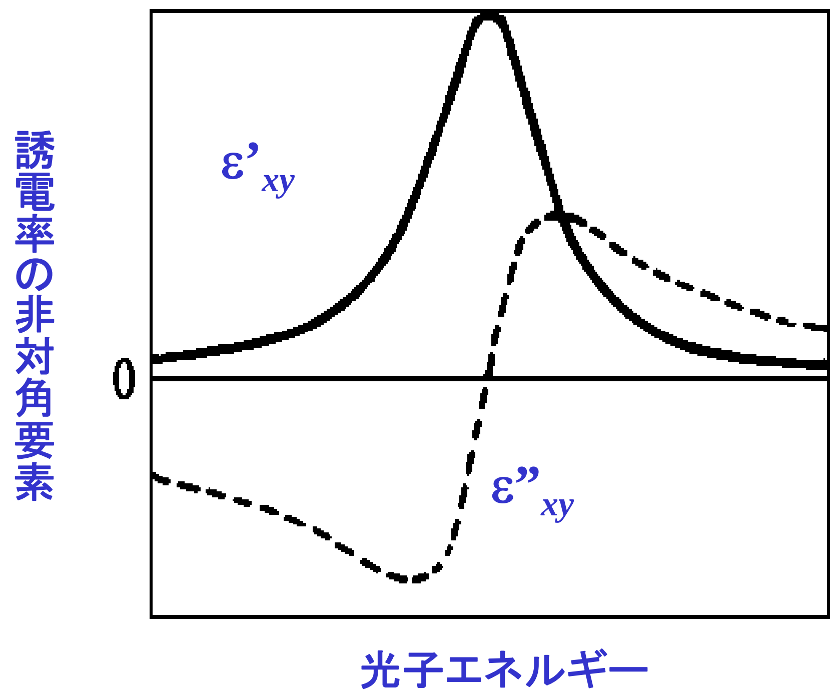


図4.8(b)

常磁性スペクトルの誘電率の式

- この場合は(4.38)式そのものです。実数部・虚数部に分けて書くと次の式になります。

$$\varepsilon'_{xy} = \frac{Ne^2 \Delta f}{m\varepsilon_0 \tau} \cdot \frac{\omega_0}{\left(\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2\right)^2 + 4\omega^2\gamma^2}$$

$$\varepsilon''_{xy} = \frac{-Ne^2 \Delta f}{2m\varepsilon_0} \cdot \frac{\omega_0\left(\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2\right)}{\omega\left\{\left(\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2\right)^2 + 4\omega^2\gamma^2\right\}} \qquad (4.48)$$

これを図示したのが図4.8(b)の実線です。すなわち，ε_{xy}の実数部が（翼のない）ベル型，虚数部が分散型を示します。

ここまでのまとめ

- 量子論にもとづいて誘電率テンソルの非対角成分の実数部、虚数部を導きました。
- 強磁性体の大きな磁気光学効果は、交換相互作用とスピン軌道相互作用がともに起きることによって生じていることがわかりました。
- 磁気光学スペクトルの形状は電子状態間の円偏光による電子双極子遷移の重ね合わせで説明できることを学びました。

第8回の課題

1. 時間を含む摂動論を用いて、電気感受率の非対角成分χ_{xy}を求めてください。
2. これまで、電磁気学、古典電子論、量子論に基づいて磁気光学効果の原理を学びました。これを振り返って、なぜ強磁性体の磁気光学効果が生じ、それが波長依存性をもつかについて、自分で理解していることを説明してください。

- この回答は、7月4日までにお送りください。

第8回後半に学ぶこと

- 局在電子系と非局在電子系
- スピン偏極バンドと遍歴電子強磁性
- バンド電子系における誘電率テンソルの理論
- 金属磁性体における磁気光学スペクトルの例

局在電子磁性と遍歴電子(バンド)磁性

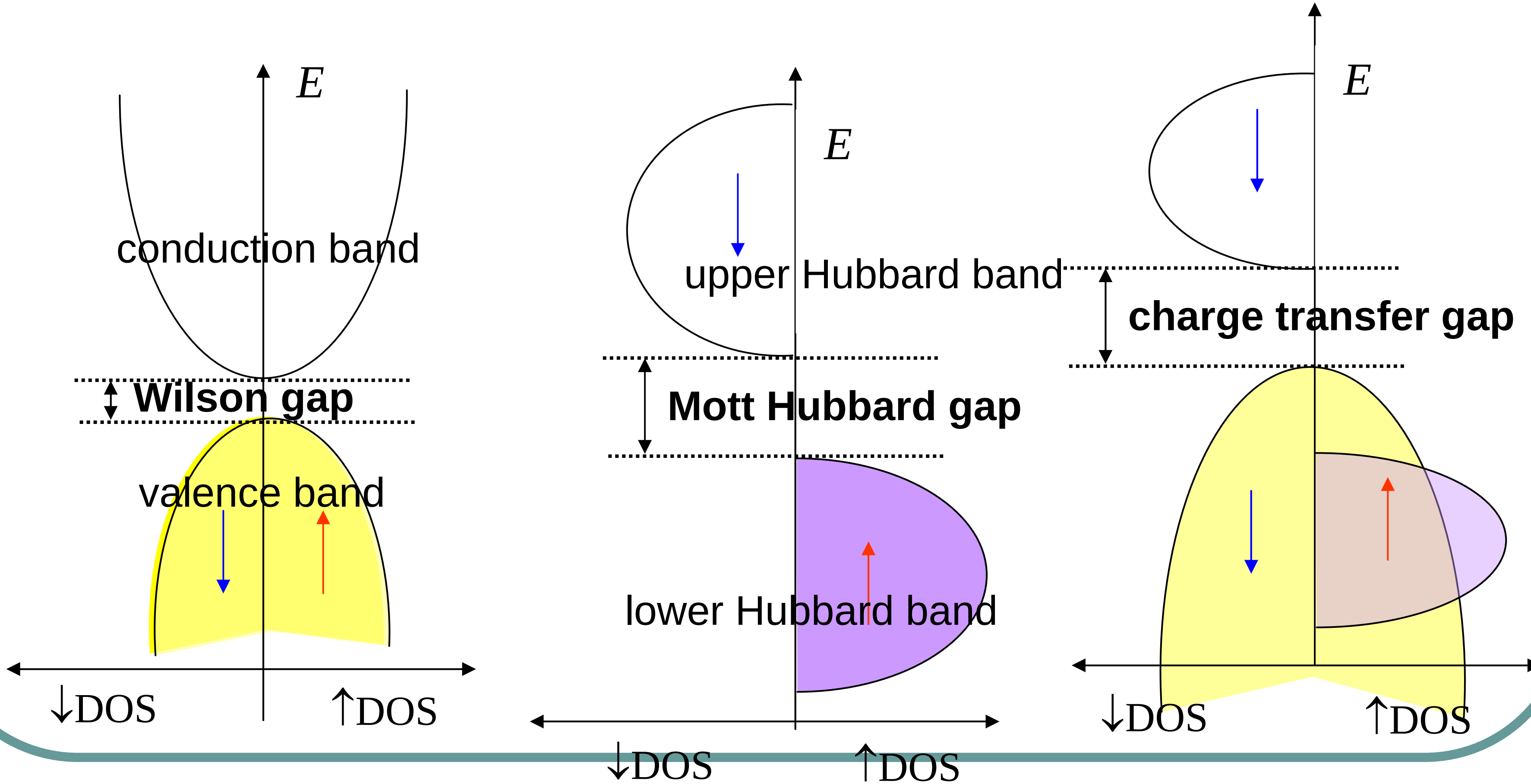
- 絶縁性磁性体:3d電子は電子相関により格子位置に局在→格子位置に原子の磁気モーメント→交換相互作用でそろえ合うと強磁性が発現
- 金属性磁性体:3d電子は混成して結晶全体に広がりバンドをつくる（遍歴電子という）
  - 多数スピンバンドと少数スピンバンドが交換分裂で相対的にずれ→フェルミ面以下の電子数の差が磁気モーメントを作る
- ハーフメタル磁性体:多数スピンは金属、小数スピンは半導体→フェルミ面付近のエネルギーの電子は100%スピン偏極

局在電子系のエネルギー準位

- Mott-Hubbard 局在（Mott絶縁体)
  - 電子相関がバンド幅より十分大きいとき
  - 電子の移動がおきるとクーロンエネルギーを損する
  - d↑ bandとd↓ band間にMott-Hubbard gap
  - NiS_2、V_2O_3など
- 電荷移動型局在(Charge-transfer絶縁体)
  - Mott-Hubbard gap内にアニオンのp価電子帯
  - d↑ bandとp価電子帯間にcharge transfer gap
  - MnO, CoO, NiO, MnS,

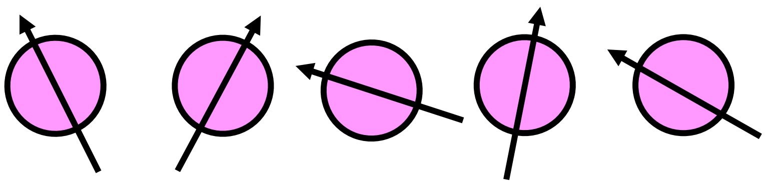
さまざまな絶縁体

(a) Wilson型絶縁体、 (b)Mott絶縁体、 (c) 電荷移動絶縁体

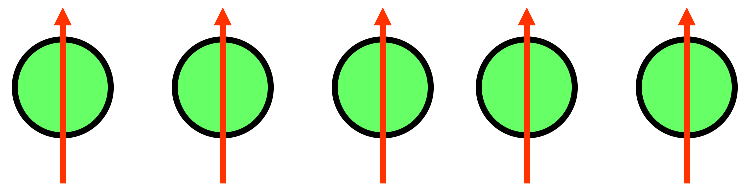


局在電子系磁性モデル

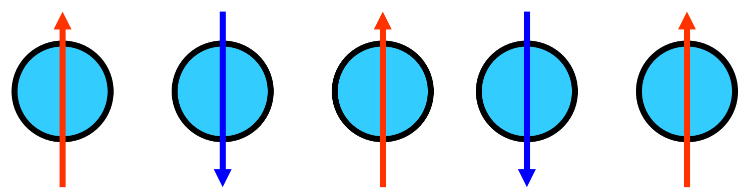
常磁性



J>0　強磁性



J<0　反強磁性

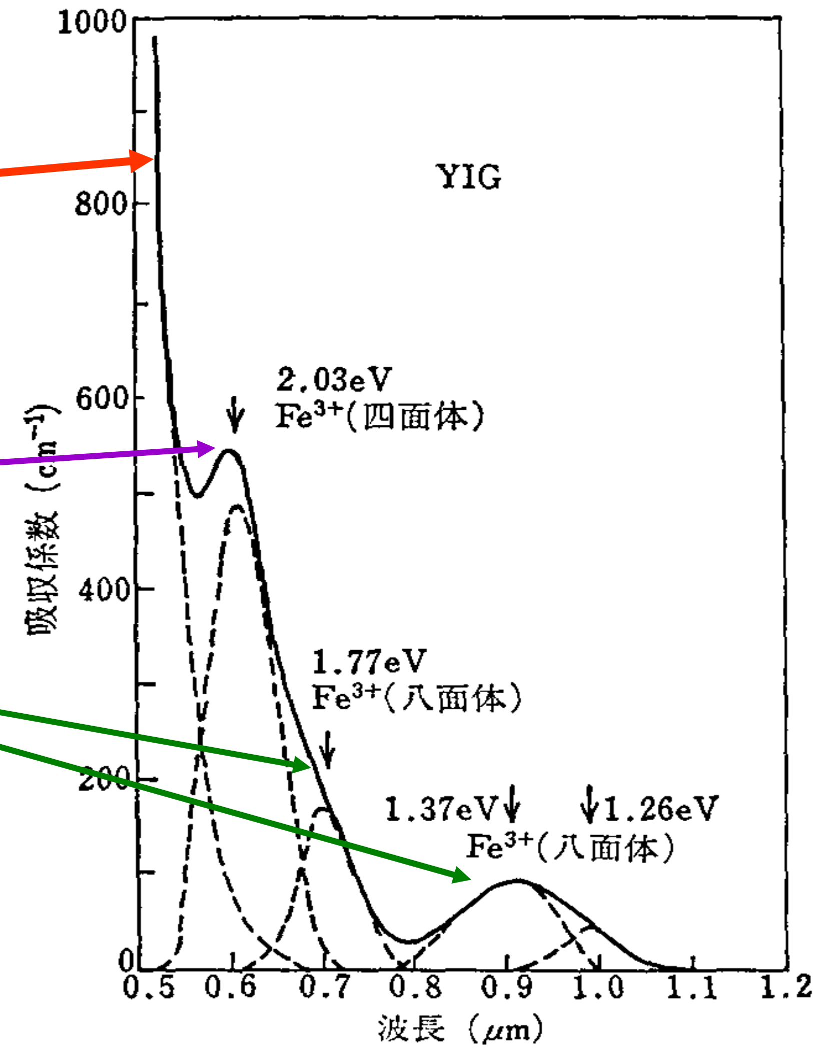


交換相互作用

$$H=-JS_1S_2$$

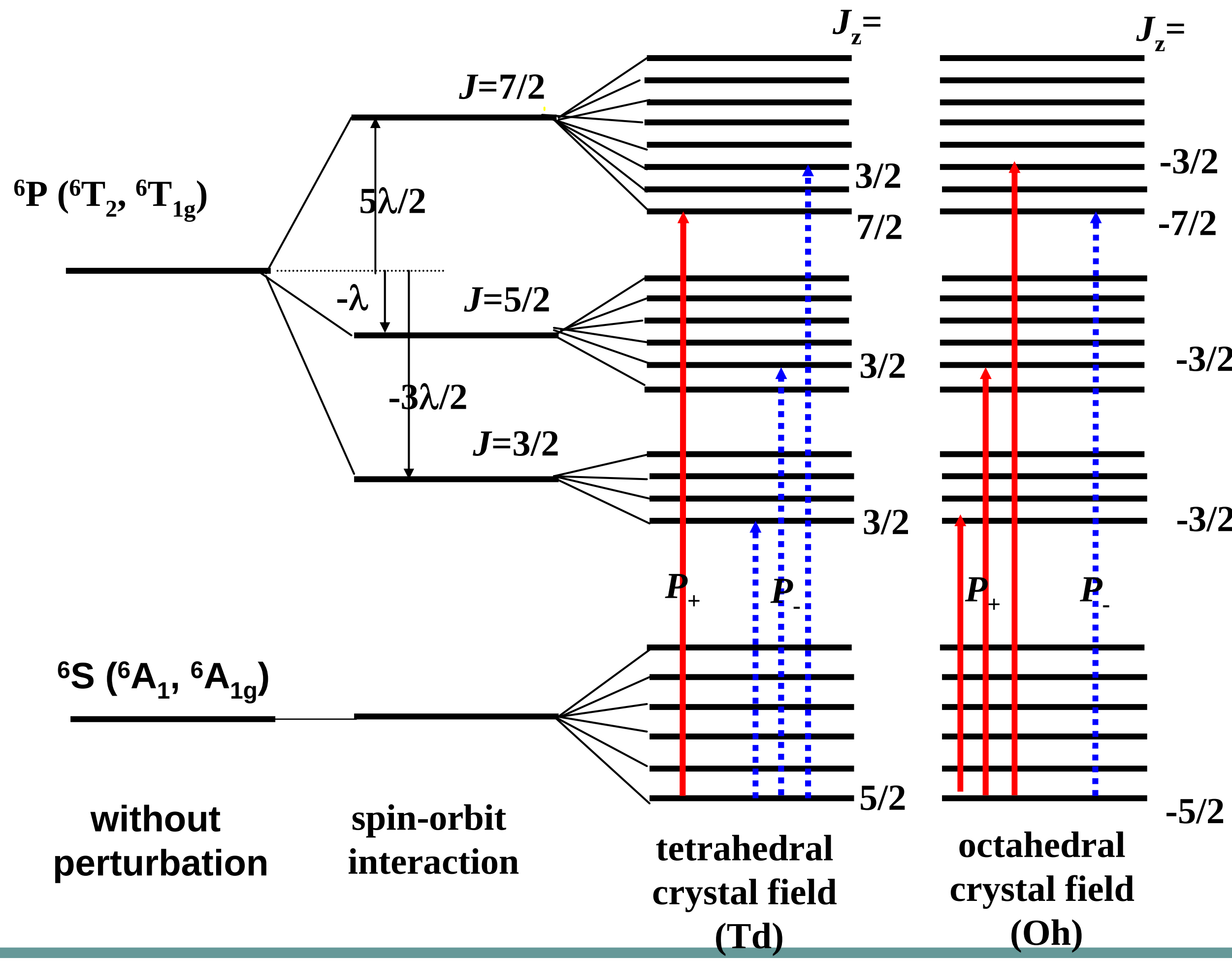
YIGの光吸収スペクトル

- 電荷移動型(CT)遷移 強い光吸収)2.5eV
- 配位子場遷移 弱い光吸収)
  - 4面体配位 2.03eV
  - 8面体配位：1.77eV,1.37eV,1.26eV



YIG の光吸収スペクトル(室温)[22]

磁性ガーネットの3d⁵2p⁶電子状態



品川による

YIGの磁気光学スペクトル

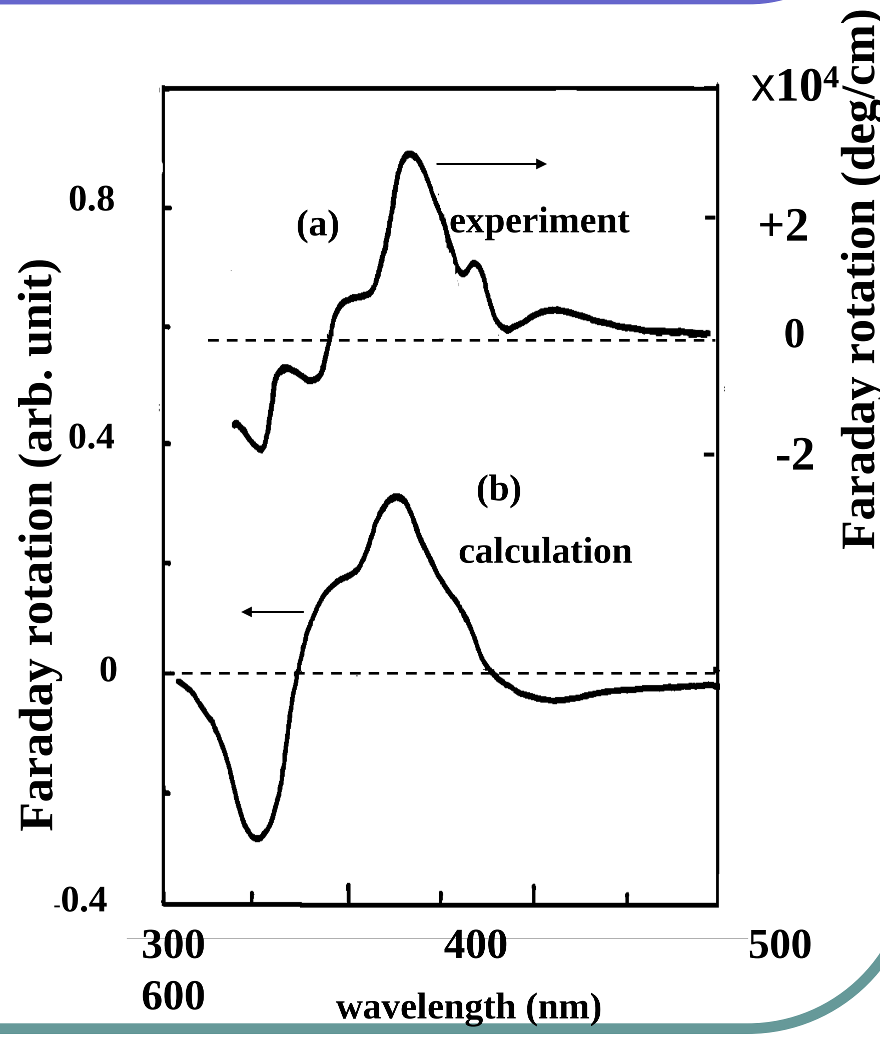
- 電荷移動型遷移を多電子系として扱い計算。

π型遷移とスピン-軌道相互作用係数

	配位	π型遷移	スピン-軌道相互作用係数（λ）
A	oct	$t_{1u}\rightarrow t_{2g}^*$	$-\zeta_{3d}-\zeta_{2p}$
B	tet	$t_{1u}\rightarrow e^*$	$-\zeta_{2p}$
C	tet	$t_2\rightarrow e^*$	$-\zeta_{2p}$
D	oct	$t_{2u}\rightarrow t_{2g}^*$	$-\zeta_{3d}-\zeta_{2p}$

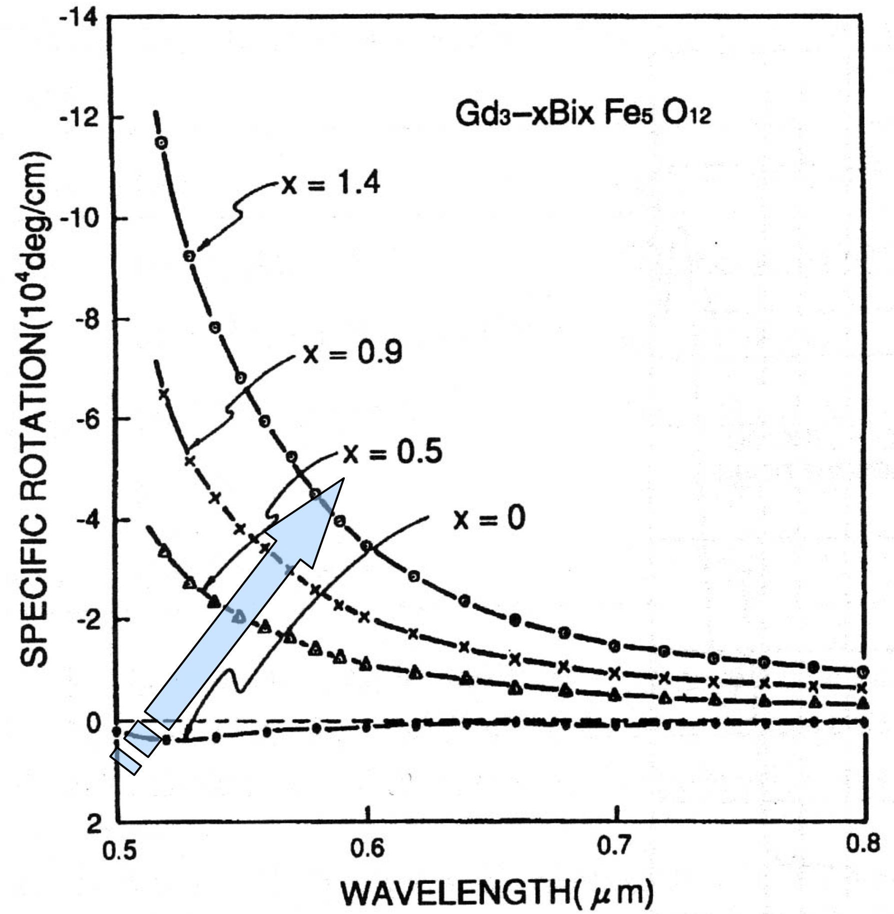
ファラデー回転スペクトルの解析に用いたパラメーター

	ω_0 (cm^{-1})	f	γ_0 (cm^{-1})
A	21640	(1.0×10^{-4})	1000
B	23110	1.8×10^{-3}	1800
C	25600	3.1×10^{-3}	2700
D	27400	1.1×10^{-2}	2500



Bi置換磁性ガーネット

- Bi: 12面体位置を置換
- ファラデー回転係数: Bi置換量に比例して増加。
- Biのもつ大きなスピン軌道相互作用が原因。
- Bi置換によって吸収は増加しないので結果的に性能指数が向上

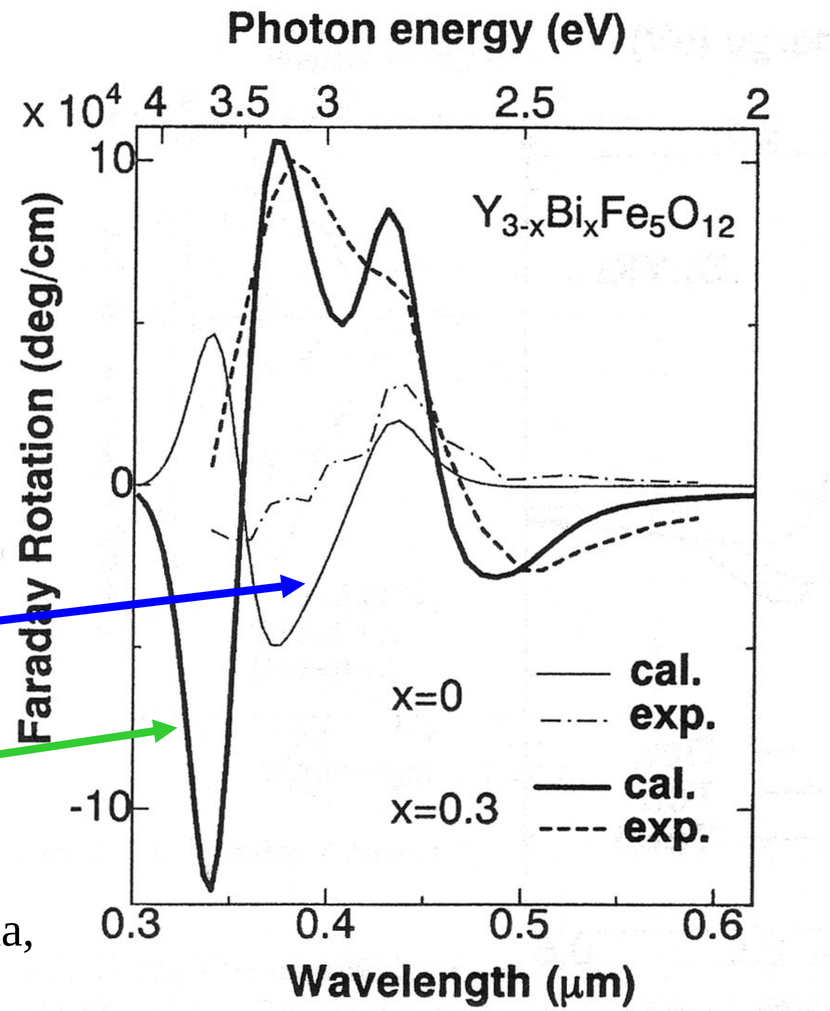


Bi置換YIGの磁気光学スペクトル
実験結果と計算結果

Table 5.6. Parameters used for calculation of Faraday rotation spectrum

transition	ω_0 cm^{-1} (eV)	γ cm^{-1}	$f \times 10^3$	site
$t_1(\pi) \to e^*$	20 170 (2.50)	1800	0.25	tet
$t_2(\pi) \to e^*$	21 620 (2.68)	1800	0.40	tet
$t_{2u}(\pi) \to t^*_{2g}$	23 110 (2.86)	1800	1.8	oct
$t_{1u}(\pi) \to t^*_{2g}$	25 600 (3.17)	2700	3.1	oct
$t_1(\pi) \to t^*_2$	27 400 (3.40)	2500	5.5	tet
$t_2(\pi) \to t^*_2$	29 120 (3.61)	2500	5.5	tet

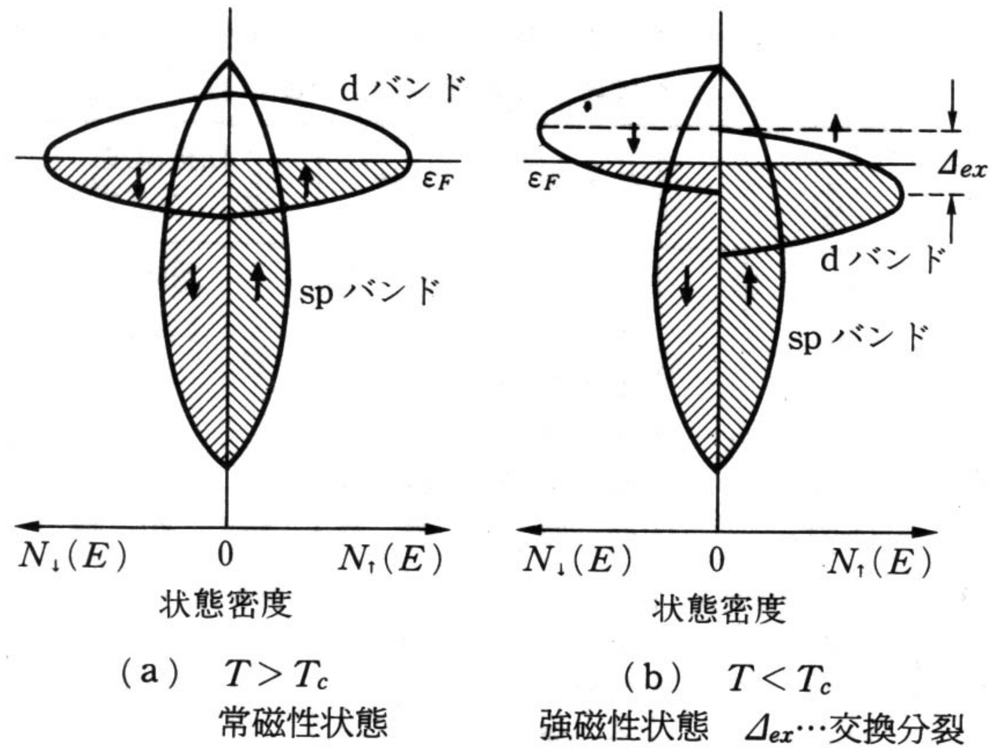
- スペクトルの計算
- ζ_{3d}=300cm^{-1},
  - ζ_{2p}=50cm^{-1} for YIG
  - ζ_{2p}=2000cm^{-1} for $Bi_{0.3}Y_{2.7}IG$



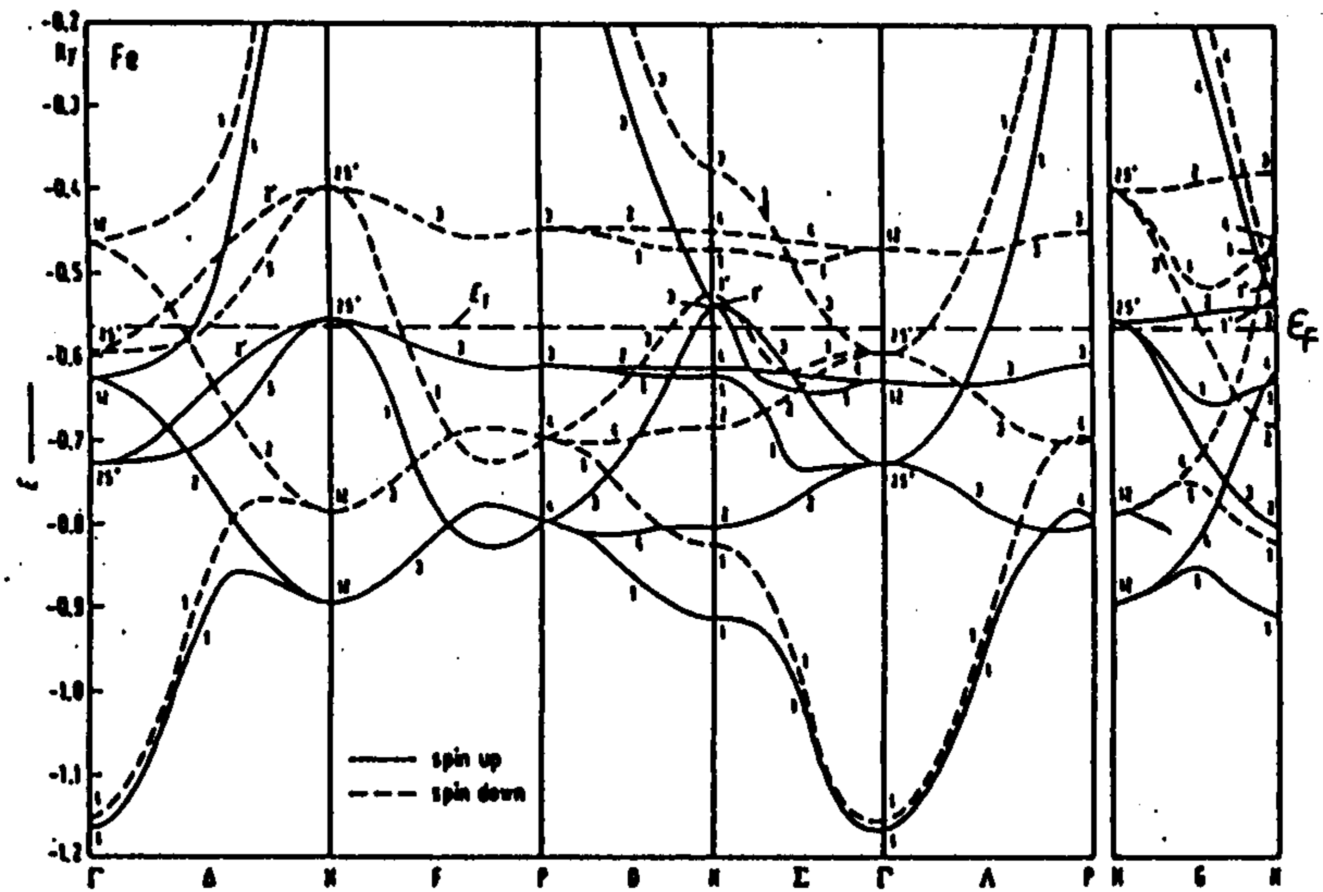
K.Shinagawa:Magneto-Optics, eds. Sugano, Kojima, Springer, 1999, Chap.5, 137

強磁性金属のバンド磁性

- 多数(↑)スピンのバンドと少数(↓)スピンのバンドが電子間の直接交換相互作用のために分裂し、熱平衡においてはフェルミエネルギーをそろえるため↓スピンバンドから↑スピンバンドへと電子が移動し、両スピンバンドの占有数に差が生じて強磁性が生じる。
- 磁気モーメント*M*は、*M*=(*n*↑ - *n*↓)μBで表される。このため原子あたりの磁気モーメントは非整数となる。



磁性体のスピン偏極バンド構造



(b) Feのバンドダイヤグラム[2]

↑スピンバンド

↓スピンバンド

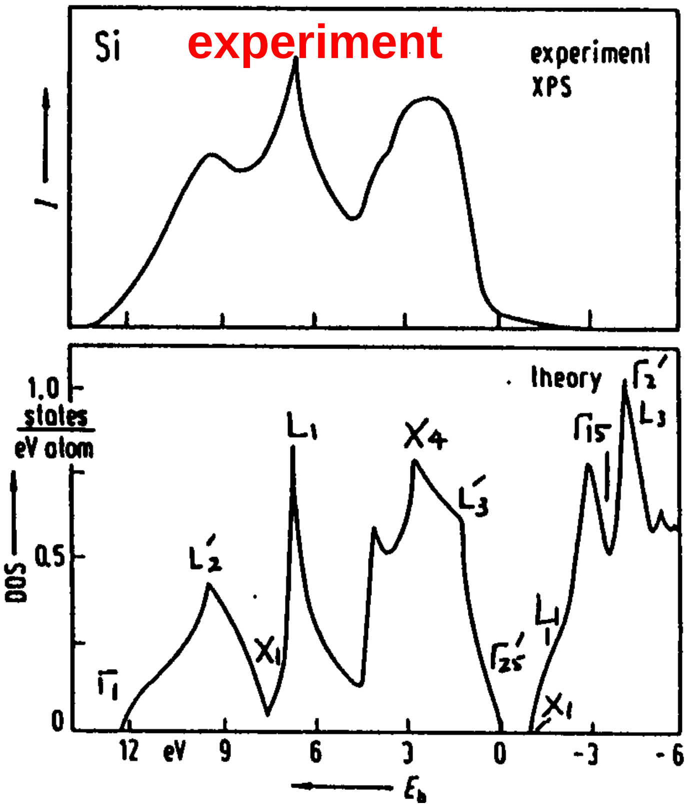
↑スピンバンドと
↓スピンバンド
の占有状態密
度の差によって
磁気モーメント
が決まる

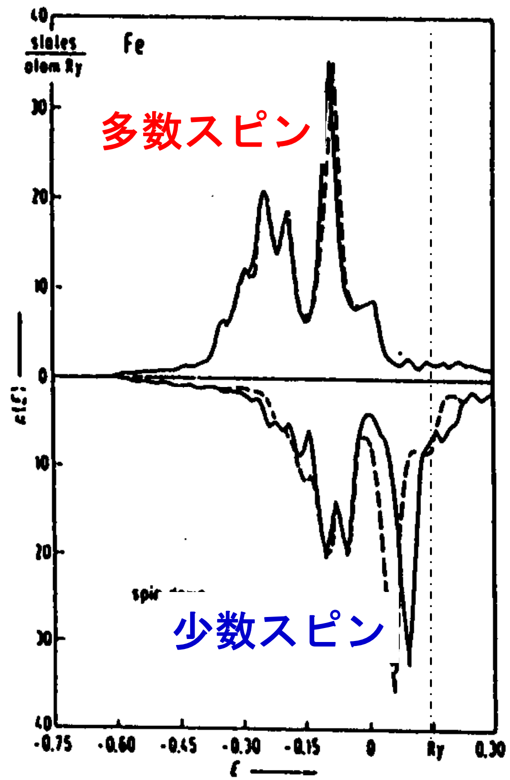
Callaway, Wang, Phys. Rev. B16('97)2095

状態密度

単位エネルギーの区間にどれくらいたくさんの状態があるか

Si

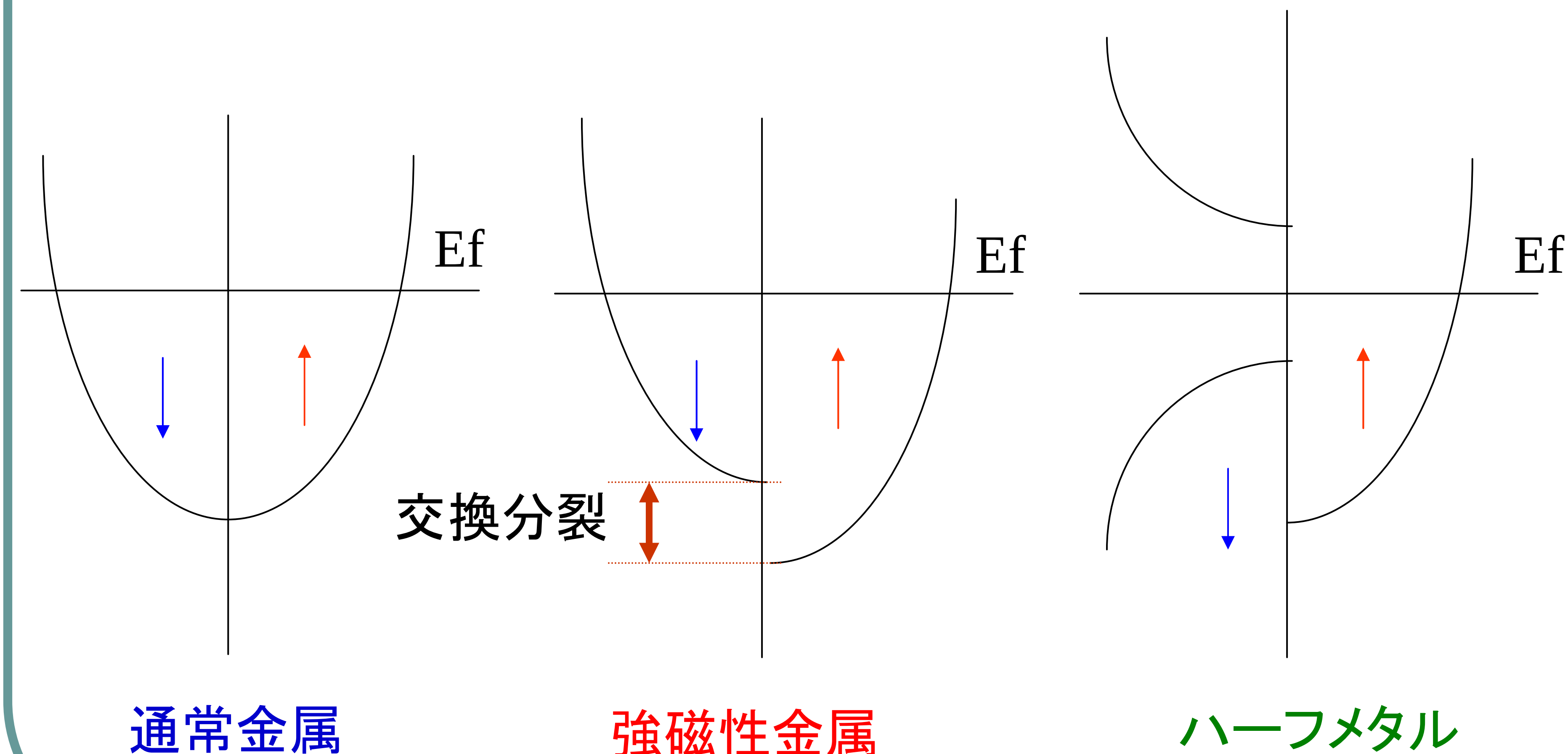




Fe

calculation

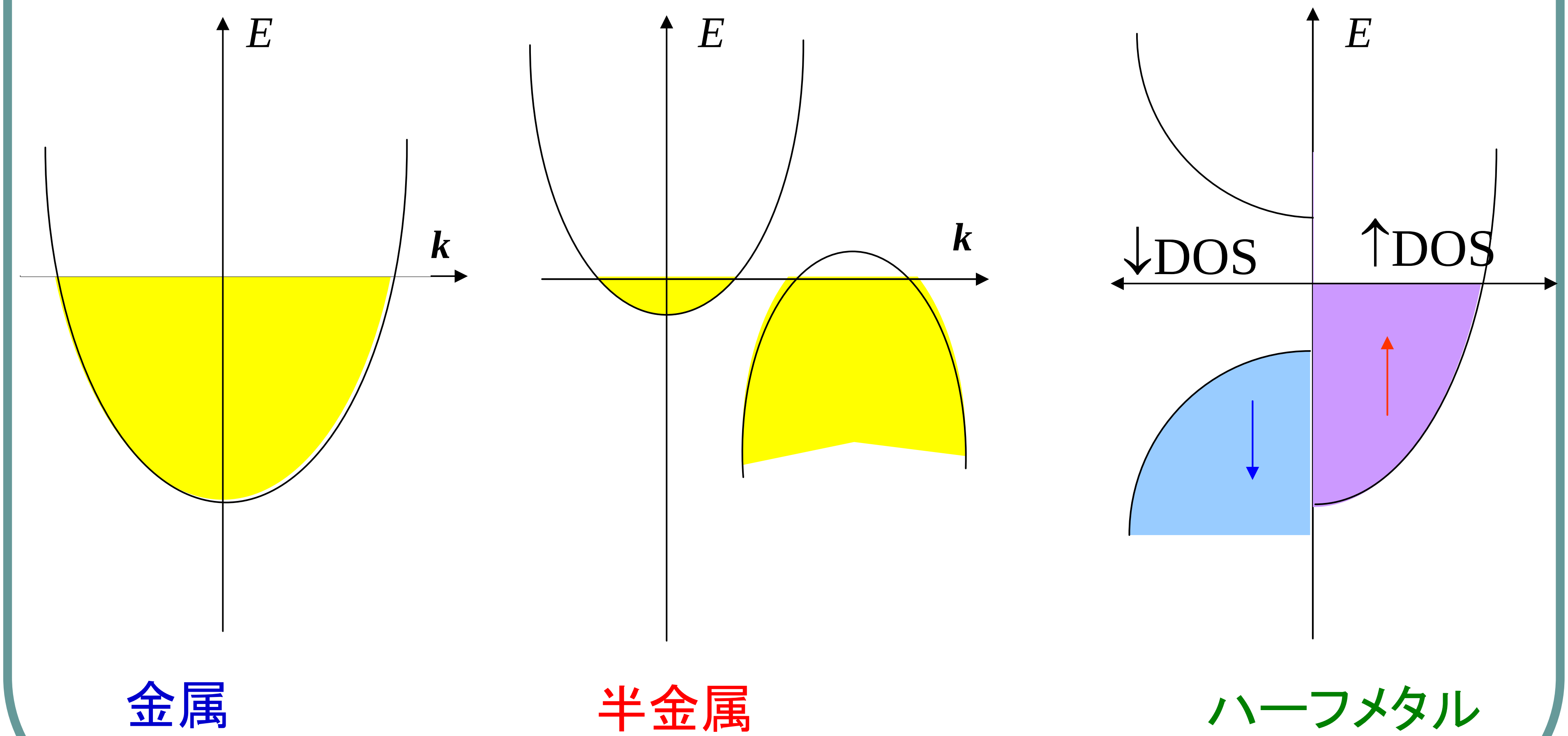
バンドと磁性



ハーフメタルと半金属の違い

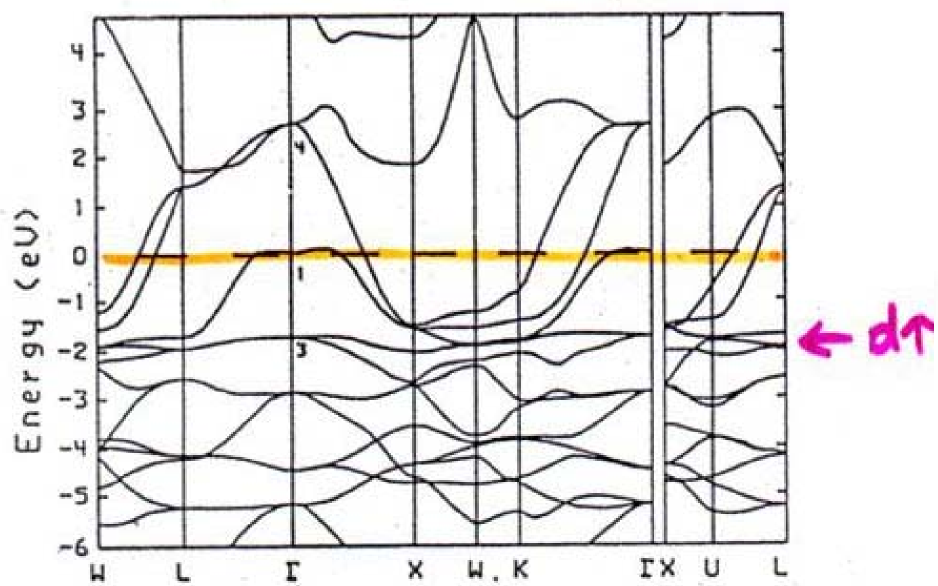
- 半金属はsemimetal。伝導帯と価電子帯がエネルギー的に重なっているがk空間では離れている場合をいう。
- 一方、ハーフメタルは英語でhalf metalでスピン的に半分金属であることを表す。バンド計算の結果、上向きスピンは金属であってフェルミ面があるが、下向きスピンは半導体のようにバンドギャップがあり、フェルミ準位がギャップ中にあるような物質をそう呼ぶ。金属と半導体が半々という意味。
- ハーフメタルでは、フェルミ準位付近に重なりがないので、伝導に与る電子は100%スピン偏極している。

金属、半金属、ハーフメタル

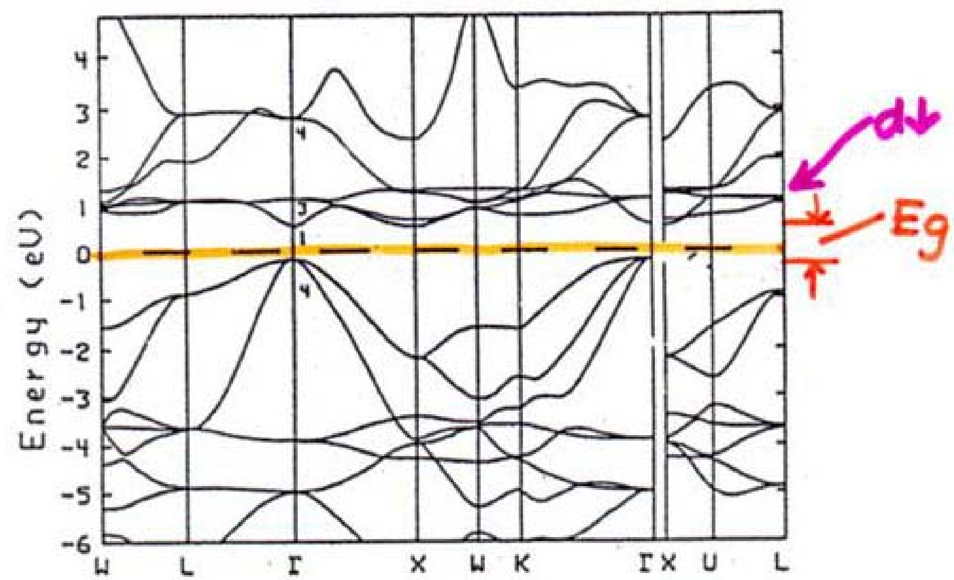


ハーフメタルの例：PtMnSb

- L21型ホイスラー合金PtMnSbは室温で大きなカー回転角を示す物質として知られるが、オランダの理論家de Grootによるバンド計算の結果、ハーフメタルであることが初めて示された。



多数スピン(up spin)バンド



少数スピン(down spin)バンド

Half metalの典型例とされるPtMnSbのバンド構造

バンド電子系の磁気光学

- 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．

誘電率テンソルの成分を求める式

- 局在電子系では、各原子の応答は等しいものとして単位体積あたりの原子の数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．

運動量演算子πとσxy

- 運動量演算子π

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

- 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。導電率の非対角成分

$$\sigma_{\alpha\beta} = \frac{iNq^2}{\omega + i\gamma}\left(\frac{1}{m*}\right)_{\alpha\beta} - \frac{2iq^2}{m^2\hbar}$$

$$\times \sum_{l,k}^{occ}\sum_{n,k}^{unoccu}\left(\frac{\omega + i\gamma}{\omega_{nl}}\mathrm{Re}\left(\langle l|\pi^{\alpha}|n\rangle\langle n|\pi^{\beta}|l\rangle\right) + i\,\mathrm{Im}\left(\langle l|\pi^{\alpha}|n\rangle\langle n|\pi^{\beta}|l\rangle\right)\right)\frac{1}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i\gamma)^2}$$

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

遷移行列要素

- 遷移行列要素はブロッホ関数の格子周期成分 $u(k,r)$を用いて,

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

- と表される。

対角・非対角成分

- 対角成分の実数部は，散乱寿命を無限大とすると，

$$\sigma'_{xx} = \mathrm{Re}(\sigma_{xx}) = \frac{\pi q^2}{m^2 \hbar} \sum_{l,k}^{occ} \sum_{n.k}^{unocc} \left| \langle l | \pi^x | n \rangle \right|^2 \delta(\omega - \omega_{l\,n,k})$$

- 非対角成分の虚数部は，

$$\sigma''_{xy}(\omega) = \mathrm{Im}(\sigma_{xy}) = \frac{2q^2}{\hbar m^2} \sum_{l,k}^{occ} \sum_{n,k}^{unocc} \frac{\mathrm{Im}(\langle l | \pi^x | n \rangle \langle n | \pi^y | l \rangle)}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i\gamma)^2}$$

$$= \frac{\pi q^2}{m^2 \hbar \omega} \sum_{l,k}^{occ} \sum_{n,k}^{unocc} \mathrm{Im}(\langle l | \pi^x | n \rangle \langle n | \pi^y | l \rangle) \delta(\omega - \omega_{nl,k})$$

- $\pi^{\pm} = \pi^x \pm i\pi^y$ と置き換えると，

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

σ_{xy}の評価法

- 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_{nm}，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
- 最近，バンド計算技術が発展し，多くの物質で第1原理計算に基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．

磁気光学スペクトルの形 －金属磁性体の場合－

- 式(4.45)を積分形になおすと次式を得る.

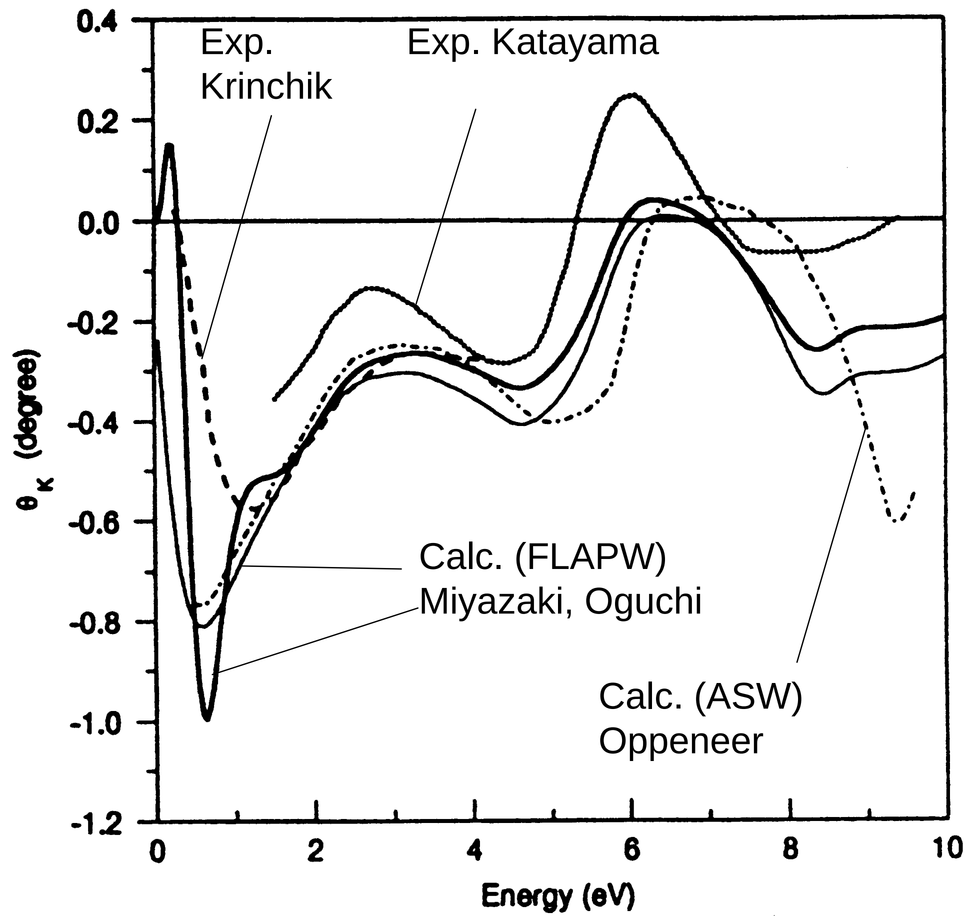
$$\omega\sigma''_{xy}(\omega)=\frac{\pi q^2}{2m^2}\cdot\frac{1}{8\pi^3}\int F_{nl}(\omega)\delta(\omega-\omega_{ln})d^3k$$

ここに,

$$Fnl(\omega)=|\langle n\uparrow|\pi^-|\uparrow l\rangle|2-|\langle n\uparrow|\pi^+|\uparrow l\rangle|2+|\langle \mathrm{n}\uparrow|\pi^-|\uparrow l\rangle|2-|\langle n\uparrow|\pi^+|\uparrow l\rangle|2$$

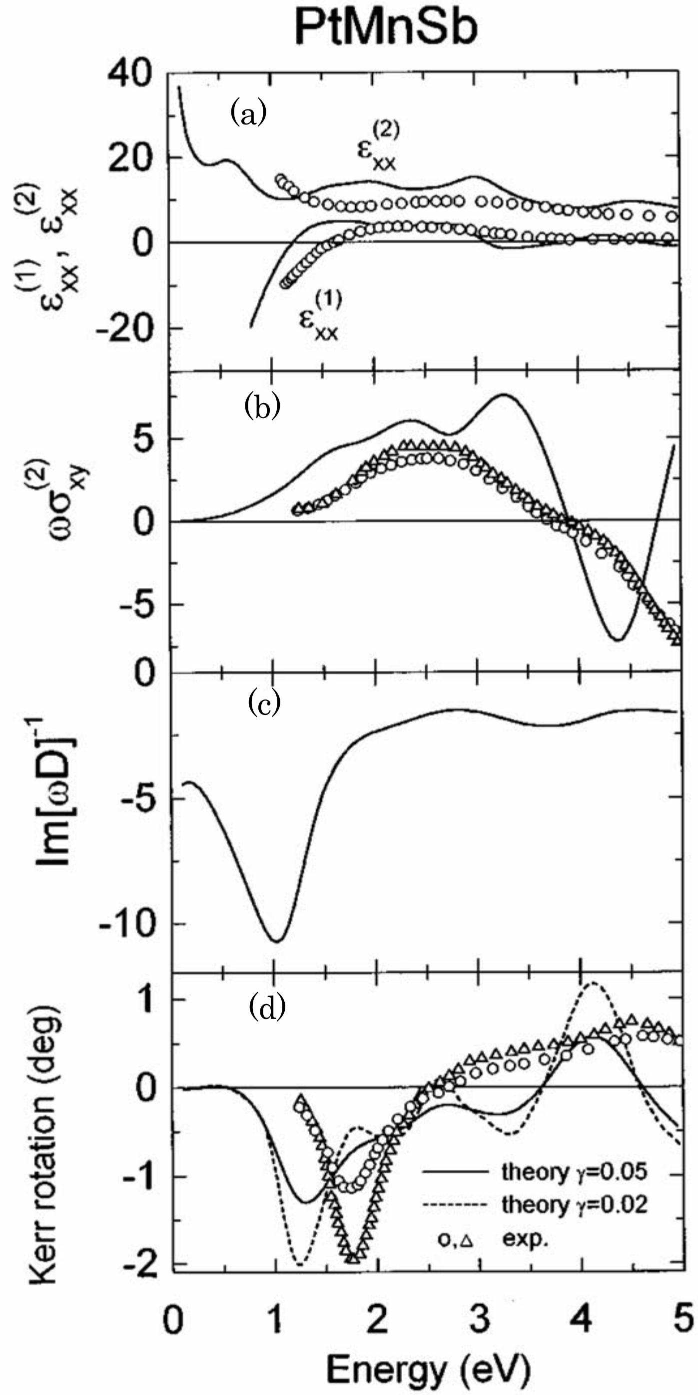
こんなによく合う第1原理計算と実験結果(1)

- Feのバンド計算：計算法により多少の違いはあるが、実験で得られた形状をよく再現しており、回転角の値もほぼ実験値を説明する。



こんなによく合う第１原理計算と実験結果(2)

- ハーフメタルPtMnSbの磁気光学スペクトルの第１原理計算値(P. Oppeneer)と実験値(K.Sato)



平均振動子強度と結合状態密度による表式

もし，遷移確率の平均値を $\int F_{\ln}(\omega)\delta(\omega-\omega_{nl})d^3k=\overline{F}_{nl}\int\delta(\omega-\omega_{l\,n})d^3k$ によって定義し，さらにが大きなω依存性をもたないと仮定し，一定値F_{nl}とおくなら

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

ここに，$Jnl(\omega)$は結合状態密度といって，

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

占有状態と非占有状態の状態密度のたたみこみである。

導電率の非対角成分

- 左右円偏光に対する振動子強度を

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

を左右円偏光に対する結合状態密度とすると

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

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

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わかる.

バンド系の磁気光学効果の模式的説明

4.　光と磁気の電子論

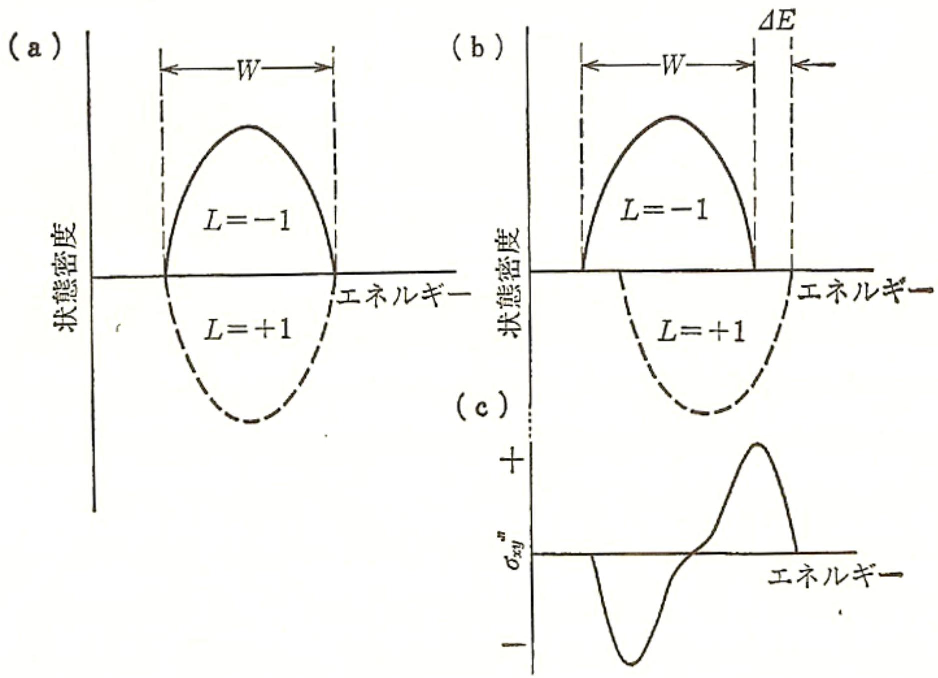


図 4.10　金属磁性体のバンド構造と磁気光学スペクトル
(a)　磁化のないときのバンド構造，(b)　磁化のあるときのバンド構造，
(c)　磁気光学スペクトル

- 図 (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 (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} (したがって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} が示すピーク値のほぼ$\Delta E/W$倍となる．
- ここに，Wは結合状態密度スペクトルの全幅，ΔEは正味のスピン偏極と実効的スピン軌道相互作用の積に比例する量となっている．