筑波大学 物質創成科学特別講義I
2008.12.1-12.3

磁気光学入門(第2日)

佐藤勝昭
東京農工大学特任教授
JSTさきがけ「次世代デバイス」研究総括

第2日の内容

- 第1日（12月1日）
  1.磁気光学効果とは何か, (3時限)
  2.磁気光学効果は何に応用されているか(4時限)
  3.電磁気学に基づく磁気光学の理論(5時限)
- 第2日（12月2日）
  4.磁気光学効果の電子論(2,3時限)
  5.磁気光学効果の測定法 (4時限)
  6.磁気光学で電子構造をさぐる(5時限)
- 第3日（12月3日）
  7.磁気光学の最近の展開 (2,3時限)

4.磁気光学効果の電子論

4.1 磁気光学効果の古典電子論

4.2 磁気光学効果の量子論

4.1 磁気光学効果の古典電子論

- 電子を古典的な粒子として扱い、磁場中の古典的運動方程式を解いて電子の変位を求め、分極や誘電率を計算します。
- 次回は量子論にもとづく扱いをお話しします。

（光と磁気第４章4.1、4.2）

誘電率と電気分極

- 物質中の電束密度はDは、真空中での電束密度$\varepsilon_0 E$に物質の電気分極Pがもたらす電束密度を付け加えたものとなっています。

$$\boldsymbol{D} \equiv \tilde{\varepsilon}\varepsilon_0 \boldsymbol{E} = \varepsilon_0 \boldsymbol{E} + \boldsymbol{P} \qquad (4.1)$$

- 一般に、電気分極Pは印加電圧に依存し、電気感受率テンソルを用いて、次式のように表せます。

$$\boldsymbol{P} = \varepsilon_0 \tilde{\chi} \boldsymbol{E} \qquad (4.2)$$

比誘電率テンソルは $\tilde{\varepsilon} = 1 + \tilde{\chi}$ (4.3)

成分で書くと $\varepsilon_{ij} = \delta_{ij} + \chi_{ij}$ (4.4)

電気分極は、電気双極子の総和

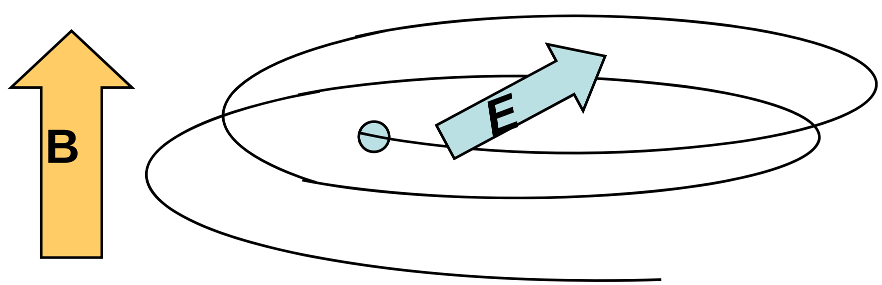
- 電気分極Pは単位体積あたりの電気双極子の総和を表しているので、電気双極子(電荷±q、距離u）密度をNとすると、Pは次式であらわされます。

$$\boldsymbol{P} = Nq\boldsymbol{u} \qquad (4.5)$$

- したがって、電界Eを加えたときの電荷対の相対変位uを見積もることができれば、電気感受率、ひいては、比誘電率を求めることができます。

電界･磁界のもとにおける荷電粒子の運動

- 古典力学の運動方程式を考えます。
  - 荷電粒子の電荷 q [C], 質量 m [kg]
  - 荷電粒子の変位 $\boldsymbol{u}=(\boldsymbol{x}, \boldsymbol{y}, \boldsymbol{z})$ [m]
  - 慣性力 $md^2\mathbf{u}/dt^2$
  - 摩擦力 $m\gamma d\mathbf{u}/dt$
  - Lorentz力 $q(\boldsymbol{E}+v\times\boldsymbol{B})=q(\boldsymbol{E}+d\mathbf{u}/dt\times\boldsymbol{B})$



運動方程式の振動解

運動方程式

$$\boxed{m\frac{d^2u}{dt^2}+m\gamma\frac{du}{d\,\mathrm{t}}+m\omega_0^2u=q\left(E+\frac{du}{dt}\times B\right)} \tag{4.6}$$

$\boldsymbol{B}=(0,0,B)$ （磁界はz方向を向いているとします。）

$\boldsymbol{E}=\boldsymbol{E}_0\,exp(-i\omega t)$ $\quad$ $\mathbf{u}=\mathbf{u}_0\exp(-i\omega t)$ （振動解を仮定します。）

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

$$\left.\begin{aligned}
&m\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)x-i\omega qBy=-qE_{\mathrm{x}}\\
&i\omega qBx+m\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)y=-qE_y\\
&m\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)z=-qE_z
\end{aligned}\right\} \tag{4.8}$$

という連立方程式が得られます。

変位uを求める

- 連立方程式を解いて、変位$\boldsymbol{u}$=(x, y, z)を求めます。

$$x = -\frac{q}{m}\frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{\left(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2\right)^2 - \omega^2\omega_c^2}E_x - \frac{q}{m}\frac{i\omega\omega_c}{\left(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2\right)^2 - \omega^2\omega_c^2}E_y$$

$$y = \frac{q}{m}\frac{i\omega\omega_c}{\left(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2\right)^2 - \omega^2\omega_c^2}E_x - \frac{q}{m}\frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{\left(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2\right)^2 - \omega^2\omega_c^2}E_y$$

$$z = -\frac{q}{m}\frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}E_z$$

電気分極Pを求める

- $\boldsymbol{P}=n q\boldsymbol{u}$により分極$\boldsymbol{P}$を求めます。

$$P_x=-\frac{nq^2}{m}\frac{\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2}{\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)^2-\omega^2\omega_c^2}E_x-\frac{nq^2}{m}\frac{i\omega\omega_c}{\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)^2-\omega^2\omega_c^2}E_y$$

$$P_y=\frac{nq^2}{m}\frac{i\omega\omega_c}{\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)^2-\omega^2\omega_c^2}E_x-\frac{nq^2}{m}\frac{\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2}{\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)^2-\omega^2\omega_c^2}E_y$$

$$P_z=-\frac{nq^2}{m}\frac{1}{\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2}E_z$$

ここに $\boxed{\omega_c=qB/m}$ はサイクロトロン角振動数です。

電気感受率を求める

- $\boldsymbol{P}=\chi\varepsilon_0\boldsymbol{E}$により電気感受率$\chi$を求めます。

$$P_x = \varepsilon_0\left(\chi_{xx}E_x + \chi_{xy}E_y\right)$$
$$P_y = \varepsilon_0\left(-\chi_{xy}E_x + \chi_{xx}E_y\right)$$
$$P_z = \varepsilon_0\chi_{zz}E_z$$

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

が得られます。

$$\boxed{\omega_c = qB/m}$$

より、非対角成分は磁界に比例することがわかります。

誘電率に変換する

- $\varepsilon_{ij}=\delta_{ij}+\chi_{ij}$を用いて、誘電率テンソルに変換します。

$$\varepsilon_{xx}(\omega)=1-\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\frac{\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2}{\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)^2-\omega^2\omega_c{}^2}$$

$$\varepsilon_{xy}(\omega)=-\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\frac{i\omega\omega_c}{\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)^2-\omega^2\omega_c{}^2} \qquad (4.10)$$

$$\varepsilon_{zz}(\omega)=1-\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\frac{1}{\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2}$$

$$\boxed{\omega_c=qB/m}$$

伝導率テンソルであらわすと

- (4.10)式をσで書き直すと

$$\sigma_{xx}(\omega)=i\omega\frac{nq^2}{m}\cdot\frac{\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2}{\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)^2-\omega^2\omega_c{}^2}$$

$$\sigma_{xy}(\omega)=-\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\frac{\omega^2\omega_c}{\left(\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2\right)^2-\omega^2\omega_c{}^2} \qquad (4.11)$$

$$\sigma_{zz}(\omega)=i\omega\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\frac{1}{\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2}$$

- B=0なのでω_c=0を代入するとLorentzの分散式が得られます。

$$\left.\begin{array}{l}\varepsilon_{xx}(\omega)=\varepsilon_{zz}(\omega)=1-\dfrac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\dfrac{1}{\omega^2+i\omega\gamma-\omega_0^2}\\[2ex]\varepsilon_{xy}(\omega)=0\end{array}\right\}\quad(4.12)$$

$$\left.\begin{array}{l}\varepsilon'_{xx}(\omega)=1-\dfrac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\dfrac{\omega^2-\omega_0^2}{(\omega^2-\omega_0^2)^2+\omega^2\gamma^2}\\[2ex]\varepsilon''_{xx}(\omega)=\dfrac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\dfrac{\omega\gamma}{(\omega^2-\omega_0^2)^2+\omega^2\gamma^2}\end{array}\right\}\quad(4.13)$$

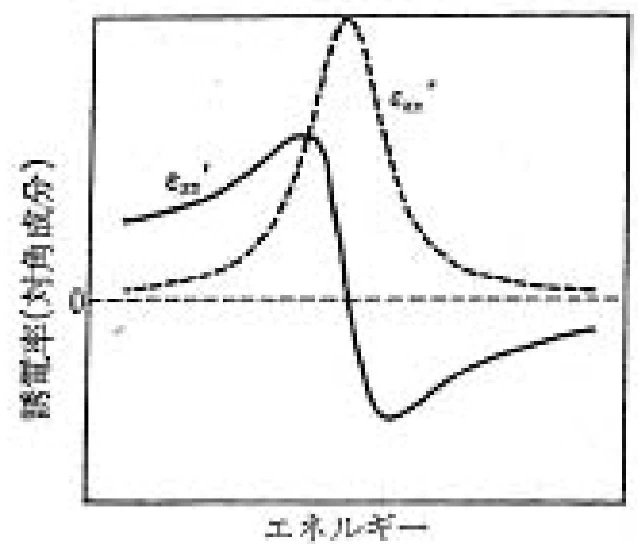


図4.1 束縛された電子の古典的運動方程式より得られた誘電率テンソルの対角成分のスペクトル
実線は実数部，点線は虚数部．

磁界がなく，束縛項もない場合：ドルーデの式

- ω_c=0, ω_0=0とおくとDrudeの式が得られます。

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

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

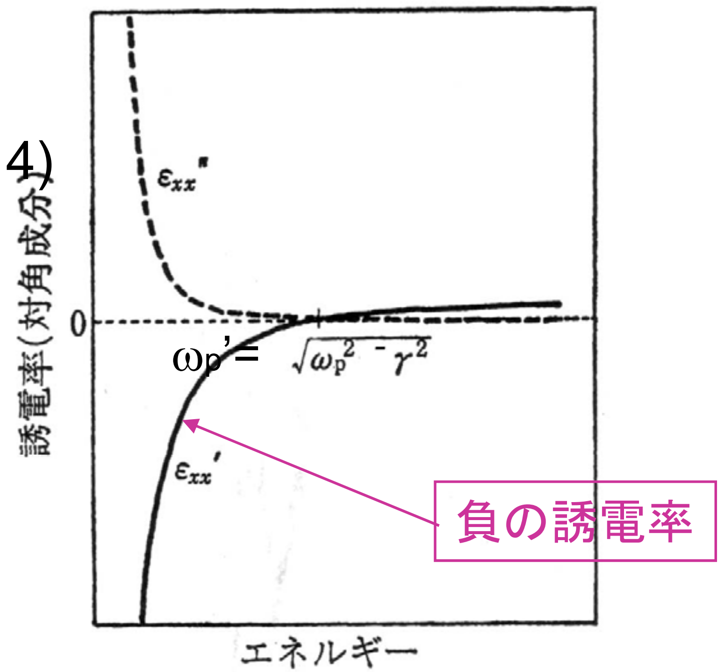


図 4.2 自由電子の古典的運動方程式より得られた誘電率テンソルの対角成分のスペクトル，いわゆるドルーデ型のスペクトル
実線は実数部，点線は虚数部.

ω=ωp'のとき実数部はゼロを横切ります。

ω→0のとき虚数部は発散します。

プラズマ振動数

- Drudeの式で、ダンピング項γを0としたとき、εの実数部が0となる振動数を自由電子プラズマ振動数ω_pとよび下の式で求められます。

$$\varepsilon'_{xx}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad \Longrightarrow \quad \omega_p = \sqrt{\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}}$$

ダンピングのある場合のDrudeの式をω_pを使って書き直すと

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

$$\varepsilon''_{xx}(\omega) = \frac{\gamma\omega_p^2}{\omega(\omega^2 + \gamma^2)}$$

$$\Longrightarrow \quad \omega'_p = \sqrt{\omega_p^2 - \gamma^2}$$

においてゼロを横切ります

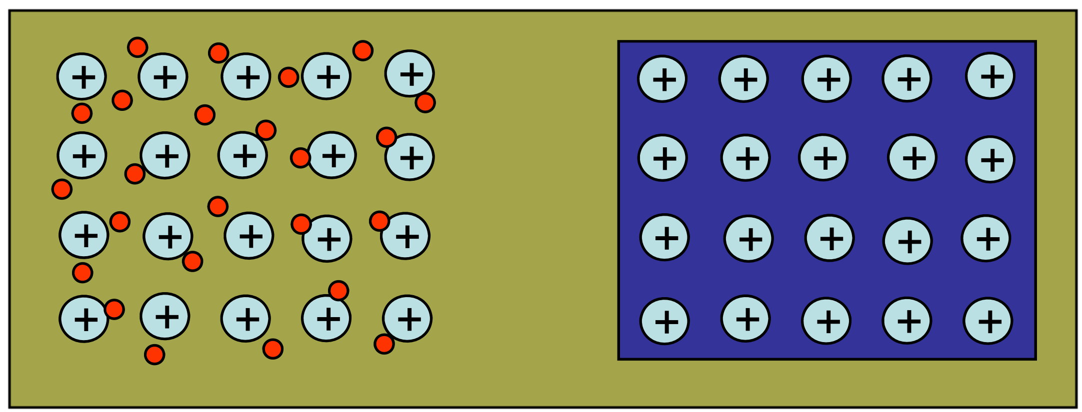
FAQ
金属中の電子はなぜ自由電子と見なせるのか

- 金属では、構成している原子が外殻電子を放出して結晶全体に広がる電子の海を作っています。
- この電子の海による遮蔽効果で、原子核の正電荷からのクーロンポテンシャルは非常に弱められています。
- このため、電子はあたかも自由電子のように振る舞うのです。実際、有効質量もほとんど自由電子質量と一致すると言われています。

FAQ

金属結合

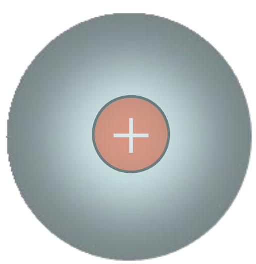
- 金属においては、原子同士が接近していて、外殻のs電子は互いに重なり合い、各軌道は2個の電子しか収容できないので膨大な数の分子軌道を形成しています。
- 電子は、それらの分子軌道を自由に行き来し、もとの電子軌道から離れて結晶全体に広がります。これを非局在化といいます。
- 正の原子核と負の非局在電子の間には強い引力が働き、金属の凝集が起きます。
- この状態を指して、電子の海に正の原子核が浮かんでいると表現されます。

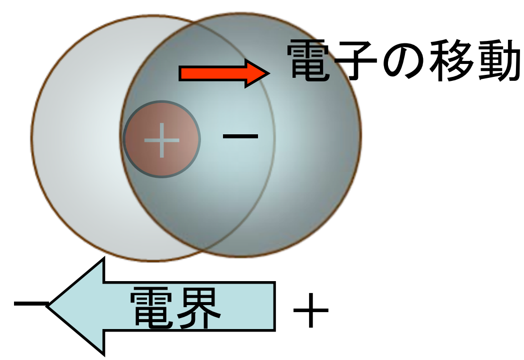


FAQ

自由電子とプラズマとの関係が分からない

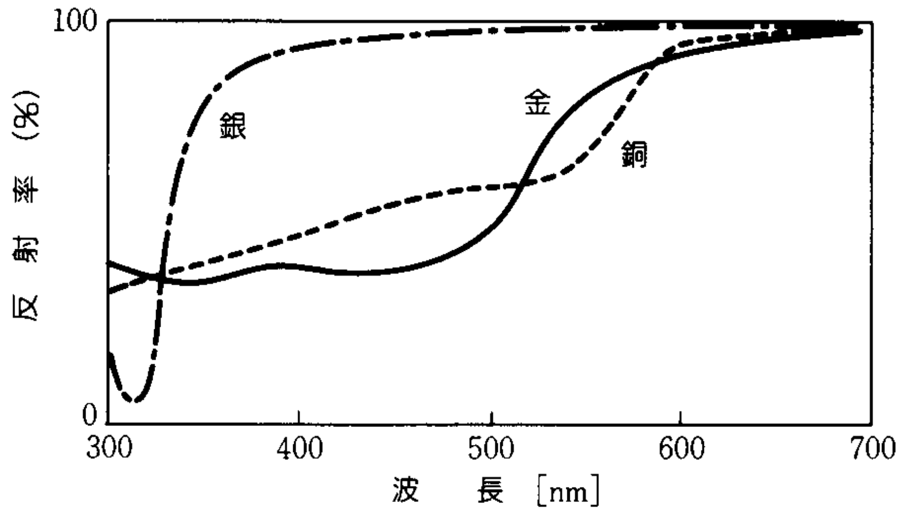
- 金属は電子がたくさんありますが、全体としては中性です。これは、電子による負電荷の分布の中心と原子核の正電荷の中心が一致しているからです。
- 光の電界を受けて電子が＋側に移動すると、－側には正電荷が残されます。この結果電気分極が生じるのですが、このように正電荷と負電荷が空間的に分離した状態をプラズマというのです。



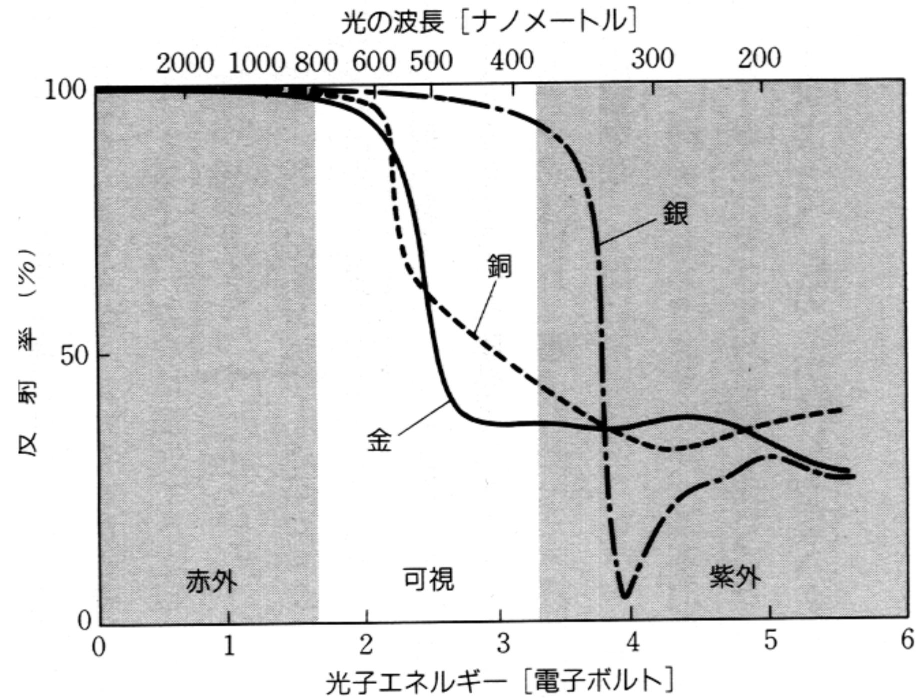


FAQ

金銀銅の反射スペクトル



波長表示



エネルギー表示

$$E[\mathrm{J}] = h[\mathrm{J\cdot s}]\nu[\mathrm{s^{-1}}] = \frac{h[\mathrm{J\cdot s}]c[\mathrm{m\cdot s^{-1}}]}{\lambda[\mathrm{m}]}$$

$$E[\mathrm{eV}] = \frac{h[\mathrm{J\cdot s}]c[\mathrm{m\cdot s^{-1}}]}{\lambda[\mathrm{m}]e[\mathrm{C}]} = \frac{6.626\times10^{-34}\times2.998\times10^{8}}{\lambda[\mathrm{nm}]\times10^{-9}\times1.602\times10^{-19}} = \frac{1240}{\lambda[\mathrm{nm}]}$$

佐藤勝昭：金色の石に魅せられて

FAQ

貴金属の選択反射の原因

- 光は電磁波の一種です。つまりテレビやラジオの電波と同じように電界と磁界が振動しながら伝わっていきます。
- 金属中に光がはいると金属中に振動電界ができ、この電界を受けて自由電子が加速され集団的に動きます。
- 電子はマイナスの電荷を持っているので、電位の高い方に引き寄せられます。その結果電位の高い方にマイナスの電荷がたまり、電位の低い側にプラスの電荷がたまって、**電気分極**が起きます。
- 外から金属に光の電界が進入しようとすると、逆向きの電気分極が生じて電界を遮蔽してしまって、**光は金属中に入れません**。光が入れないということは、いいかえれば、光が全部反射されてしまうということを意味します。

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

- ω_0=0, γ=0を代入しますと

$\omega^2=\omega_p{}^2+\omega_c{}^2$でゼロを横切る

マグネトプラズマ共鳴

$$\varepsilon_{xx}(\omega)=1-\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\frac{1}{\omega^2-\omega_c{}^2}=1-\frac{\omega_p^2}{\omega^2-\omega_c{}^2}$$

$$\varepsilon_{xy}(\omega)=\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}\cdot\frac{-i\omega_c}{\omega\left(\omega^2-\omega_c{}^2\right)}=-i\frac{\omega_p^2\omega_c}{\omega\left(\omega^2-\omega_c{}^2\right)}$$

$$\varepsilon_{zz}(\omega)=1-\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}\frac{1}{\omega^2}=1-\frac{\omega_p^2}{\omega^2}$$

$\omega=\omega_c$で発散

マグネトプラズマ共鳴の伝導率表現

- $\sigma_{ij}=-i\omega\varepsilon_0(\varepsilon_{ij}-\delta_{ij})$により$\sigma$に変換すると

$$\left.\begin{aligned}
\sigma_{xx}(\omega) &= -i\omega\varepsilon_0(\varepsilon_{zz}-1)=\frac{i\omega\omega_p^2\varepsilon_0}{\omega^2-\omega_c^2} \\
\sigma_{xy}(\omega) &= -i\omega\varepsilon_0\varepsilon_{xy}=-\frac{\omega_p^2\omega_c}{\omega^2-\omega_c^2}\varepsilon_0 \\
\sigma_{zz}(\omega) &= -i\omega\varepsilon_0(\varepsilon_{zz}-1)=\frac{i\omega_p^2\varepsilon_0}{\omega}
\end{aligned}\right\} \quad (4.17)$$

ホール効果
(直流において、自由電子のみを考え、磁界のある場合)

- DCにおいては、ω→0とすることにより、次式を得ます。σ_{xy}はx方向に電流が流れたときy方向に電圧が生じることを表していますから、まさにホール効果を記述するものとなっています。

$$
\left.
\begin{aligned}
\sigma_{xx}(0) &= \frac{nq^2}{m}\cdot\frac{\gamma}{\omega_c{}^2+\gamma^2} = nq\frac{q}{m\gamma}\frac{\gamma^2}{\omega_c{}^2+\gamma^2} = nq\mu\frac{\gamma^2}{\omega_c{}^2+\gamma^2} = \frac{\sigma_0}{(\omega_c/\gamma)^2+1} \\
\sigma_{xy}(0) &= -\frac{nq^2}{m}\cdot\frac{\omega_c}{\omega_c{}^2+\gamma^2} = -nq\frac{q}{m\gamma}\frac{\gamma\omega_c}{\omega_c{}^2+\gamma^2} = -\sigma_0\frac{\omega_c/\gamma}{(\omega_c/\gamma)^2+1} \\
\sigma_{zz}(0) &= \frac{nq^2}{m}\cdot\frac{1}{\gamma} = nq\frac{q}{m\gamma} = nq\mu = \sigma_0
\end{aligned}
\right\} \qquad (4.18)
$$

ここにσ_0は直流伝導率です。抵抗率テンソルに変換すると次式になります。

$$
\left.
\begin{aligned}
\rho_{xx} &= \rho_{zz} = \frac{1}{\sigma_0} \\
\rho_{xy} &= R_H B
\end{aligned}
\right\} \qquad (4.19)
$$

$$
\hat{\rho} = \begin{pmatrix} 1/\sigma_0 & -R_H B & 0 \\ R_H B & 1/\sigma_0 & 0 \\ 0 & 0 & 1/\sigma_0 \end{pmatrix}
$$

磁界がかかっていて，束縛がなく，散乱のない場合

$$\varepsilon_{xx}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - \omega_c^{\ 2}}$$

$$\varepsilon_{xy}(\omega) = -i\frac{\omega_p^2\omega_c}{\omega\left(\omega^2 - \omega_c^{\ 2}\right)}$$

$$\varepsilon_{zz}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}$$

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

(4. 21)

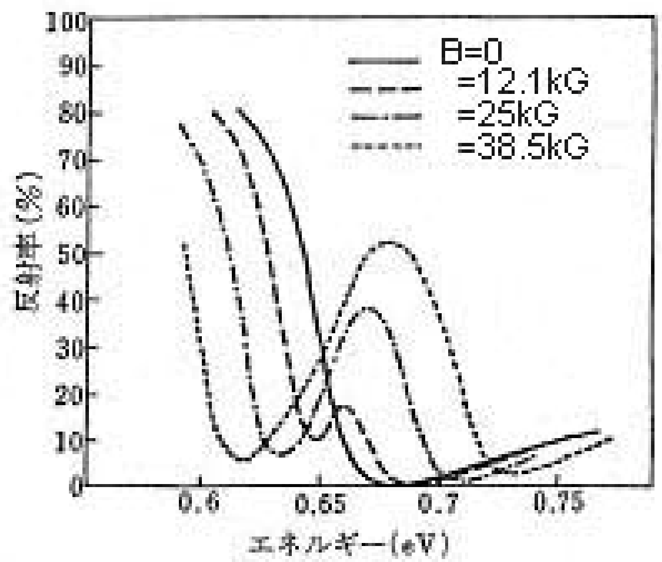


図 4. 3　InSb のマグネトプラズマ反射スペクトル[1)]

Feの磁気光学効果は古典電子論で説明できるか？

$$\varepsilon_{xy}(\omega) = -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{i\omega\omega_c}{\left(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2\right)^2 - \omega^2\omega_c{}^2} \quad \text{(4.10)}$$

- 比誘電率の非対角成分の大きさ:最大5の程度

$$\left.\begin{array}{l} \text{キャリア密度} \quad n = 10^{22}\,cm^{-3} = 10^{28}\,m^{-3} \\ \hbar\omega = \hbar\omega_0 = 2\boldsymbol{eV} \quad \hbar\gamma = 0.1\boldsymbol{eV} \end{array}\right\} \text{と仮定}$$

⇒ *B*=3000Tという非現実的な磁界が必要

⇒ **磁気光学効果の量子論**

●スピン軌道相互作用によって初めて説明可能

4.1 のまとめ

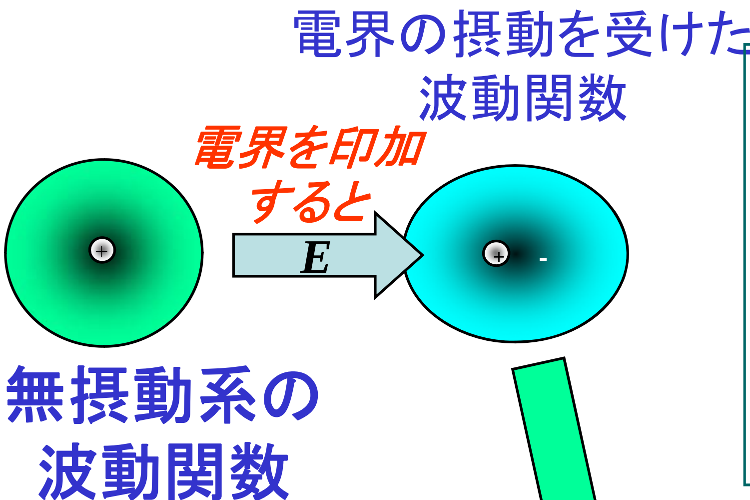
- 古典電子論に従えば、誘電率テンソルの対角成分、非対角成分ともLorentz型のスペクトルで表されることが導かれました。
- 磁気光学効果をもたらす非対角成分は、磁気によるローレンツ力から生じます。
- 強磁性体の磁気光学効果を説明するには、現実には存在しないような強い内部磁界が存在すると仮定しなければならないことがわかりました。

4.2 磁気光学効果の量子論

量子論に向けて

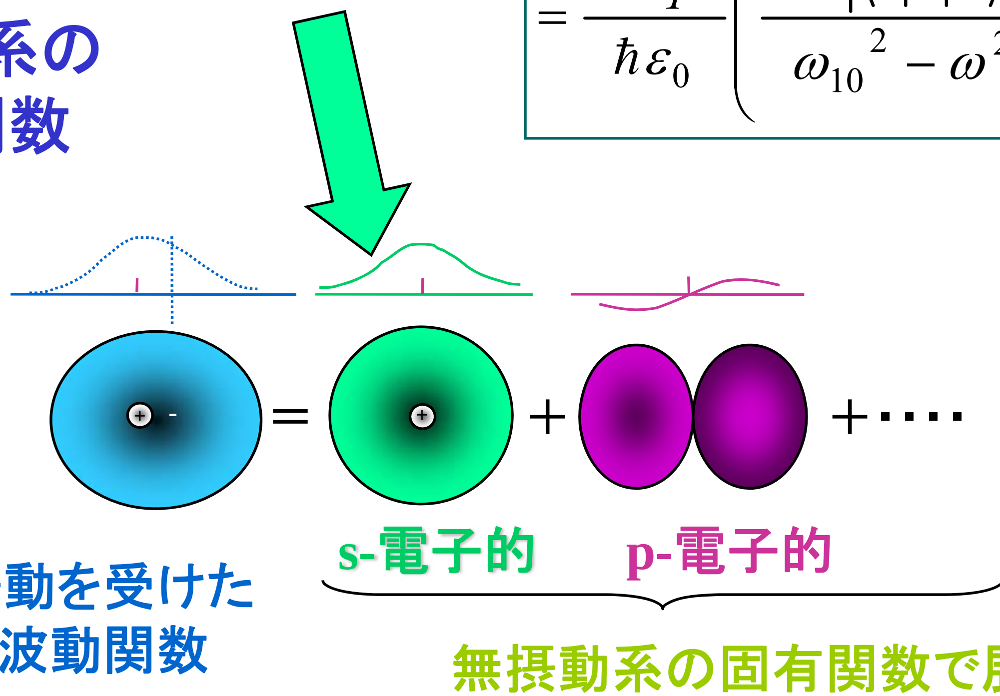
- 古典電子論では、電子が原子核にバネで結びついているイメージで説明しました。
- しかし、実際には、電子は原子核の付近にクーロン力で束縛され、その軌道のエネルギーは、量子数で指定されるとびとびの値をとります。
- 誘電率とは、物質に電界が加わったときの分極のできやすさを表す物理量です。分極とは、電界によって電子の波動関数の分布の形がゆがみ、重心(負電荷)が原子核(正電荷)の位置からずれることを意味します。
- 波動関数の分布のゆがみは、量子力学では、基底状態の波動関数に、励起状態の波動関数が混じり込むことによって生じます。この変化の様子を説明するのが「摂動論」です。

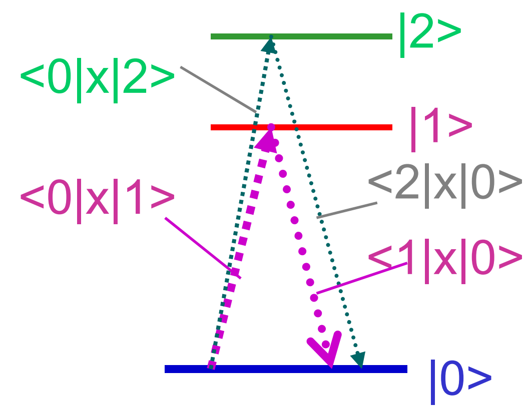
電子分極のミクロな扱い：対角成分



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

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





量子力学入門

- 量子力学では、電子は波動関数φで表されます。
- 波動関数の絶対値の2乗$|\varphi|^2$が存在確率を与えます。
- 電子の状態を記述するには、運動方程式の代わりに、シュレーディンガーの波動方程式を用います。
- シュレーディンガー方程式は、Hφ=Eφと書きます。
ここにHはハミルトニアン演算子、Eはエネルギーの固有値です。
- ハミルトニアン演算子Hは、運動量演算子p、ポテンシャルエネルギー演算子Vを用いてH=-(1/2m)p^2+Vとなります。ここにpは、
$p = -i\hbar\nabla$ によって表される演算子です。

- 運動量の期待値は、pをφ*とφで挟み全空間で積分して求めます。

$$\langle p \rangle = \frac{\int \varphi^* p \varphi d\tau}{\int \varphi^* \varphi d\tau}$$

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」のことを表します。
- 「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」として扱います。
- 「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。

時間を含む摂動論(1)

- 無摂動系の基底状態の波動関数を$\phi_0(\boldsymbol{r})$で表し,
- j番目の励起状態の波動関数を$\phi_j(\boldsymbol{r})$ で表す.
- 無摂動系のシュレーディンガー方程式

$$\mathcal{H}_0\phi_0(r) = \hbar\omega_0\phi_0(r)$$

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

  – $\mathcal{H}_0$は無摂動系のハミルトン演算子です。
  – $\hbar\omega_j$はj番目の固有状態$\phi_j(\boldsymbol{r})$に対する固有エネルギーを表します。
- 光の電界$\boldsymbol{E}(t)=\boldsymbol{E}_0\exp(-i\omega t)+\mathrm{c.c.}$ (c.c.=共役複素数)
  – 共役複素数を加えるのは、電磁界の波動関数は実数だからです。
- 摂動のハミルトニアン

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

時間を含む摂動論(2)

- 摂動を受けた系のシュレーディンガー方程式

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

- この固有関数を，無摂動系の固有関数のセット(ϕ_n; n=0,1,2,･･･)で展開します。時間を含めるためにexp(-$i\omega_n t$)を付けておきます。

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

- 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)を代入すると下記の展開係数$c_j(t)$に関する微分方程式がえられます。
- $$i\hbar\sum_{j'}\frac{dc_{j'}(t)}{dt}\phi_{j'}(\mathrm{r})\exp(-i\omega_{j'}t)=H'\phi_0(r)\exp(-i\omega_0 t)+\sum_{j'}c_{j'}(t)\exp(-i\omega_{j'}t)H'\phi_{j'}(r)$$

時間を含む摂動論(3)

$$i\hbar\sum_{j'}\frac{dc_{j'}(t)}{dt}\phi_{j'}(\mathrm{r})\exp\left(-i\omega_{j'}t\right)=H'\phi_0(r)\exp(-i\omega_0 t)$$

$$+\sum_{j'}c_{j'}(t)\exp(-i\omega_{j'}t)H'\phi_{j'}(r)$$

- 左から$\phi^*_j(r)\exp(i\omega_j t)$をかけて，$r$について積分すると次式がえられます。

$$i\hbar\frac{dc_j(t)}{dt}=\int dr\phi_j^*(r)\exp(i\omega_j t)H'\phi_0(r)\exp(-i\omega_0 t)$$

$$+\sum_{j'}c_{j'}\int dr\phi_j^*(r)\exp(i\omega_0 t)H'\phi_{j'}(r)\exp(-i\omega_{j'}t)$$

$$=\langle j|H'|0\rangle\exp\{i(\omega_j-\omega_0)t\}+\sum_{j'}c_{j'}\delta_{jj'}\langle j|H'|j\rangle\exp\{i(\omega_j-\omega_{j'})t\}=\langle j|H'|0\rangle\exp(i\omega_{j0}t) \quad (4.25)$$

ここに $\langle j|H'|0\rangle$ はディラックの表示で $\int dr\phi_j^*(r)H'\phi_0(r)$ の積分を表しています。

また、ϕ_jと$\phi_{j'}$の間の遷移行列は無視しました。

時間を含む摂動論(4)

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

- 式(4.25)を積分することにより式(4.24)の展開係数$c_j(t)$が求められます.

遷移行列

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

$$=qE_{x0}\langle j|x|0\rangle\left[\frac{1-\exp(i(\omega+\omega_{j0})t)}{\hbar(\omega+\omega_{j0})}+\frac{1-\exp(i(-\omega+\omega_{j0})t)}{\hbar(-\omega+\omega_{j0})}\right]\qquad(4.26)$$

- この係数は，摂動を受けて，励起状態の波動関数が基底状態の波動関数に混じり込んでくる度合いを表しています。

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

基底状態 |0>

励起状態 |j>

誘電率の対角成分の導出(1)

- 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)

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

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

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

$$=Nq^2\left[\sum_j\frac{|\langle j|x|0\rangle|^2}{\hbar}\cdot\left(\frac{1}{\omega_{j_0}-\omega}+\frac{1}{\omega_{j0}+\omega}\right)\right]E_x(t) \qquad (4.27)$$

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

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

誘電率の対角成分の導出(1)

- ここで有限の寿命を考え、$\omega \rightarrow \omega + i\gamma$ の置き換えをします。

$$\chi_{xx}(\omega) = \frac{Nq^2}{m\varepsilon_0}\sum_j m\left|\langle j|x|0\rangle\right|^2\left[\frac{1}{\hbar\left(\omega_{j0} - \omega - i\gamma\right)} + \frac{1}{\hbar\left(\omega_{j0} + \omega + i\gamma\right)}\right] \qquad (4.31)$$

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

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

ここにf_{xj}は直線偏光の振動子強度です。

- 誘電率に変換しますと、対角成分は次式のようになります。

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

誘電率の非対角成分の導出(1)

- 非対角成分:y方向の電界が$E_y(t)$が印加されたときの，分極Pのx成分の期待値

摂動後の波動関数

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

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

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

$$= Nq^2\sum_j \langle j|x|0\rangle\langle 0|y|j\rangle \frac{1}{\hbar}\left(\frac{E^*{}_{y0}\exp(-i\omega t)}{\omega_{j0}-\omega} + \frac{E_{y0}\exp(i\omega t)}{\omega_{j0}+\omega}\right) \qquad (4.34)$$

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

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

誘電率の非対角成分の導出(2)

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

$$\chi_{xy}(\omega) = \frac{Nq^2}{2i\varepsilon_0\hbar}\sum_j \omega_{j0}\frac{\left|\langle 0|x^+|j\rangle\right|^2 - \left|\langle 0|x^-|j\rangle\right|^2}{\omega_{j0}^2 - \omega^2} \qquad (4.35)$$

となります。

$\left|\langle 0|x^{\pm}|j\rangle\right|^2$ 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を $f_{jo}^{\pm} = \dfrac{m\omega_{j0}\left|\langle j|x^{\pm}|0\rangle\right|^2}{\hbar}$ (4.36) と定義すると

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

が得られます。

久保公式からの誘導

- 久保公式というのは、線形の応答を示す物理現象を量子統計物理学の立場から説明するもので、誘電率、磁化率などの理論的基礎を与えます。
- 久保公式によれば、分極率テンソルは、電流密度の自己相関関数のフーリエ変換によって表すことができます。これによる導出は、光と磁気の付録Cに書いてあります。結果だけを示すと

$$\chi_{xx}(\omega)=\lim_{\gamma\to 0}\frac{Nq^2(\omega+i\gamma)}{\hbar\omega\varepsilon_0}\sum_{n<m}(\rho_n-\rho_m)\frac{2\omega_{mn}\left|\langle m|x|n\rangle\right|^2}{\omega_{mn}^2-(\omega+i\gamma)^2}$$

$$=\lim_{\gamma\to 0}\frac{Nq^2}{m\varepsilon_0}\sum_{n<m}(\rho_n-\rho_m)\frac{(f_x)_{mn}}{\omega_{mn}^2-(\omega+i\gamma)^2} \qquad (4.39)$$

$$\chi_{xy}(\omega)=\lim_{\gamma\to 0}\frac{-Nq^2}{2\hbar\omega\varepsilon_0}\sum_{n<m}(\rho_n-\rho_m)\frac{\omega_{mn}^2\left(\left|\langle m|x^+|n\rangle\right|^2-\left|\langle m|x^-|n\rangle\right|^2\right)}{\omega_{mn}^2-(\omega+i\gamma)^2}$$

$$=\lim_{\gamma\to 0}(-i\frac{Nq^2}{2m\varepsilon_0})\sum_{j}(\rho_n-\rho_m)\frac{\omega_{mn}\left(f_{mn}^+-f_{mn}^-\right)}{\omega\left(\omega_{mn}^2-(\omega+i\gamma)^2\right)}$$

ここにρ_nは状態nの占有確率です。

磁化の存在がどう寄与するか

- 磁化が存在するとスピン状態が分裂します。
  - しかし左右円偏光の選択則には影響しません。
- スピン軌道相互作用があって初めて軌道状態の分裂に結びつきます。
- 右(左)回り光吸収は右(左)回り電子運動を誘起します。

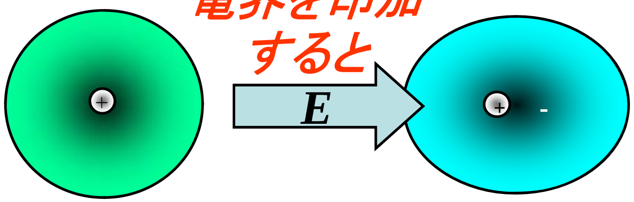
- 以下では、磁気光学の量子論を図を使って説明します。

電子分極のミクロな扱い:対角成分

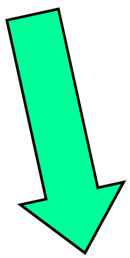
電界の摂動を受けた
波動関数

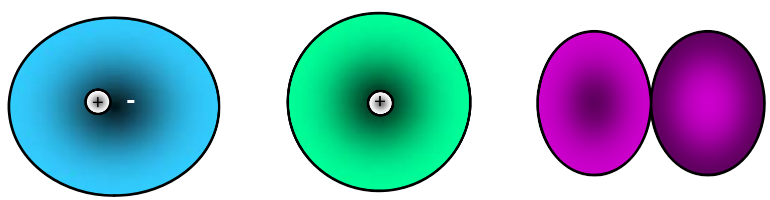
$$\chi_{xx}(\omega) = \frac{2Nq^2}{\hbar\varepsilon_0}\sum_j \omega_{j0}\left|\langle j|x|0\rangle\right|^2\left[\frac{1}{\omega_{j0}^{\ 2}-\omega^2}\right]$$

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



無摂動系の
波動関数

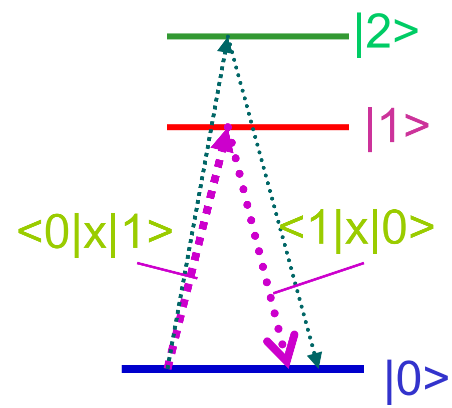




摂動を受けた
波動関数

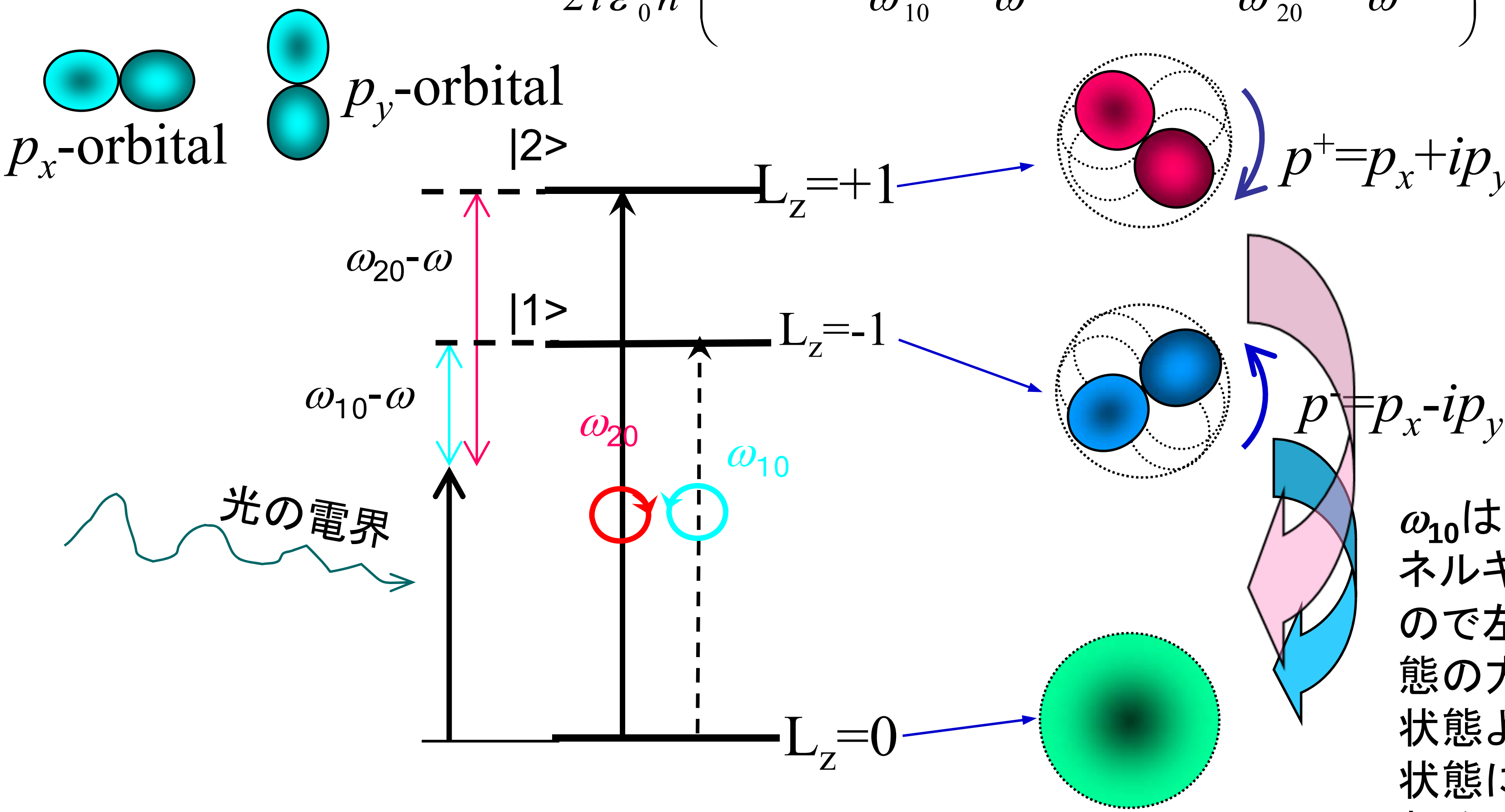
s-電子的　p-電子的

$\underbrace{\qquad\qquad\qquad\qquad}$
無摂動系の固有関数で展開



円偏光の吸収と電子構造：非対角成分

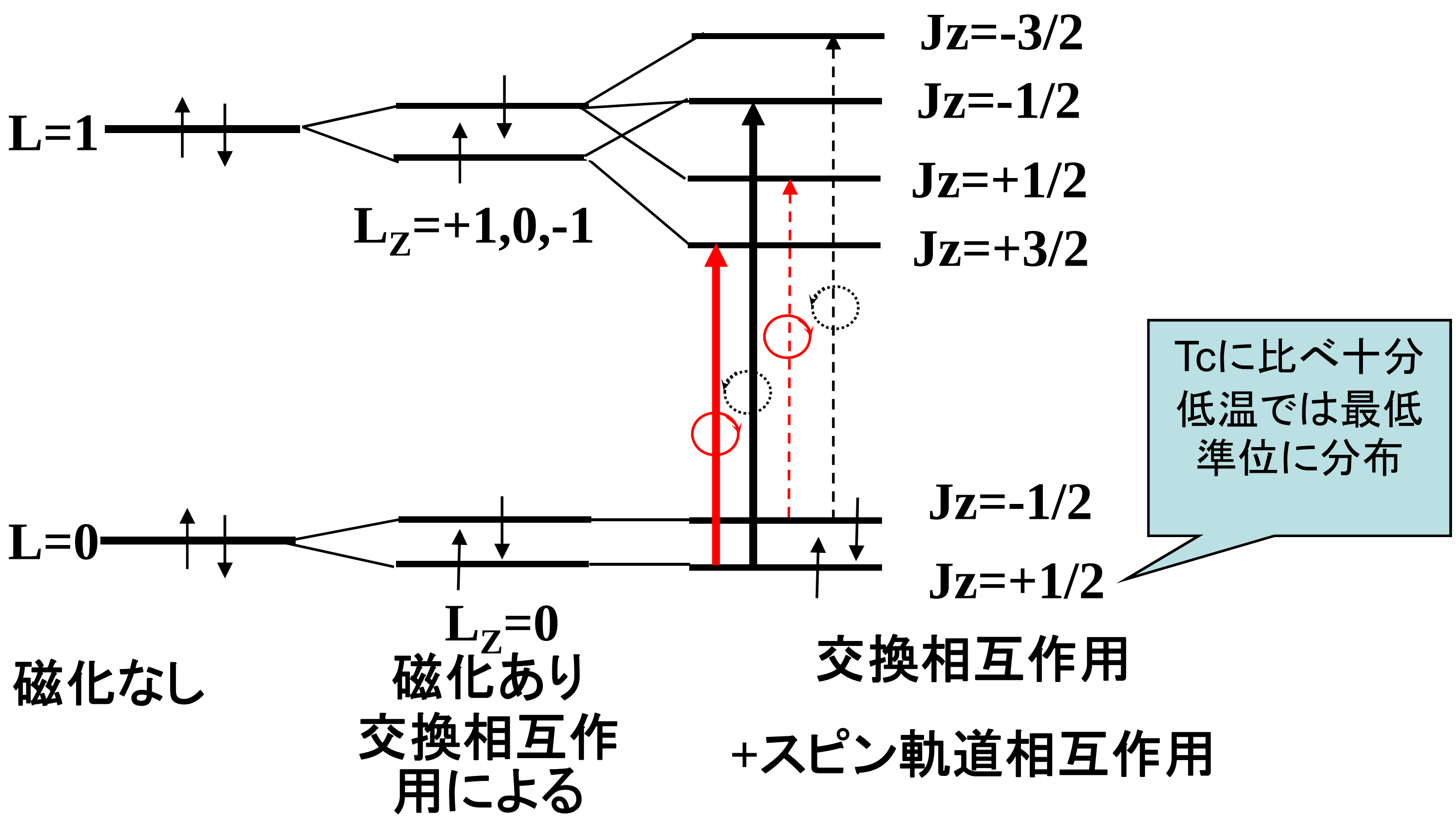
$$\chi_{xy}(\omega)=\frac{Nq^2}{2i\varepsilon_0\hbar}\left(-\omega_{10}\frac{\left|\langle 0|x^-|1\rangle\right|^2}{\omega_{10}^2-\omega^2}+\omega_{20}\frac{\left|\langle 0|x^+|2\rangle\right|^2}{\omega_{20}^2-\omega^2}\right)$$



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

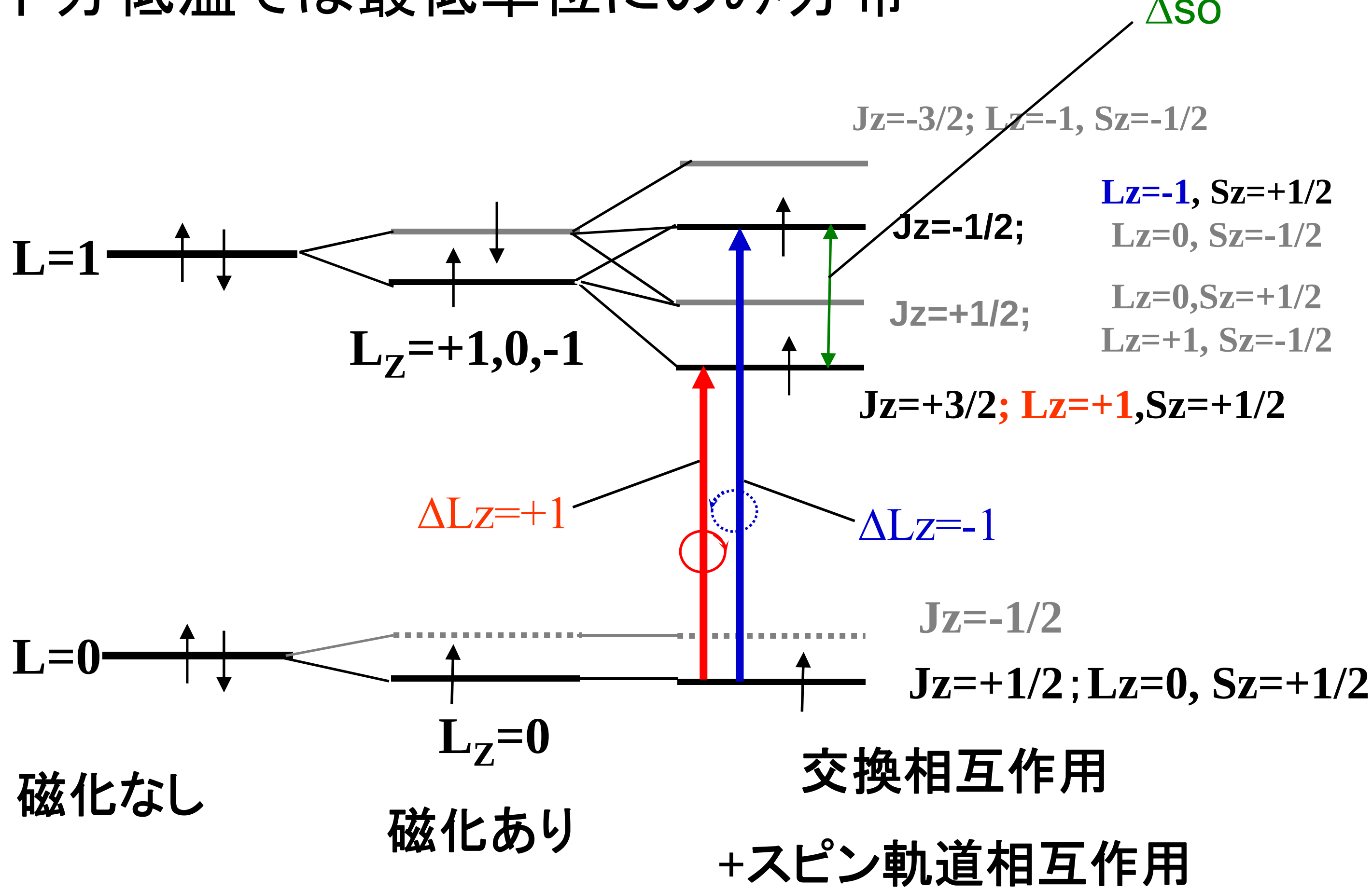
スピン軌道相互作用の重要性

- 磁化があるだけでは、軌道状態は分裂しません。スピン軌道相互作用があるために



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



磁気光学スペクトルの形(1)局在電子系

- 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。

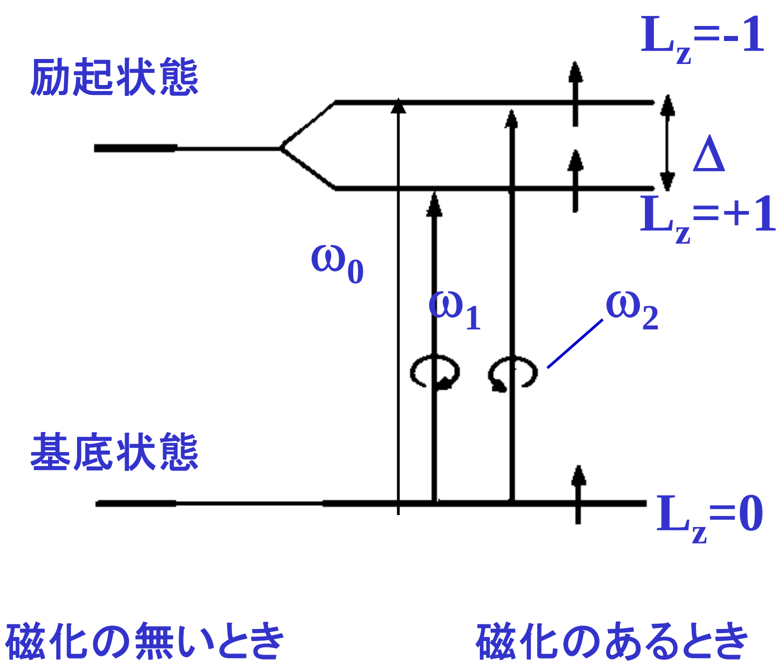


図4.7(a)

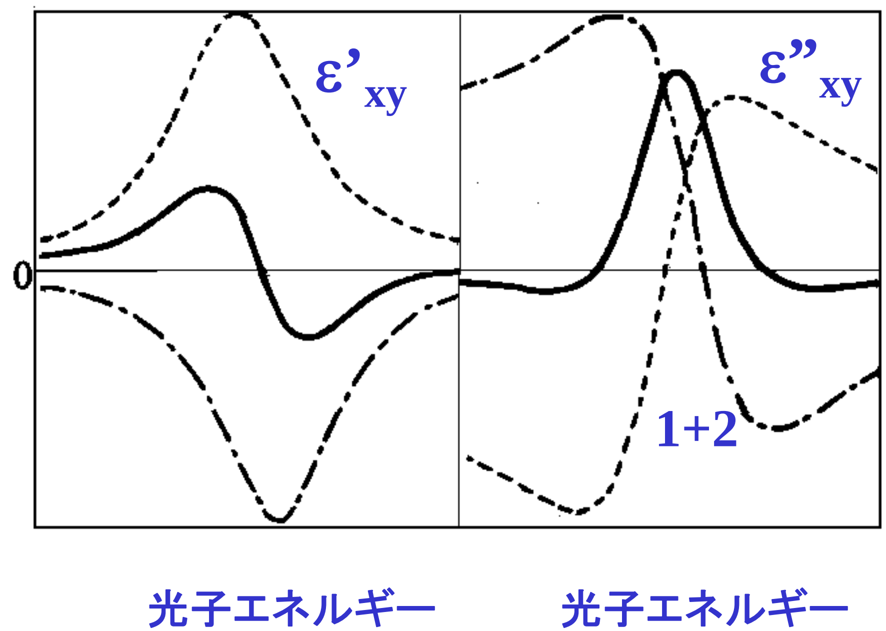


図4.7(b)

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。

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

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

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ε_{xy}”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：$N=10^{28}\mathrm{m}^{-3}$, $f_0=1$, $\hbar\Delta_{\mathrm{so}}=0.05\mathrm{eV}$, $\hbar\omega_0=2\mathrm{eV}$, $\hbar/\tau=0.1\mathrm{eV}$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Δ*f*がある場合を考えます．

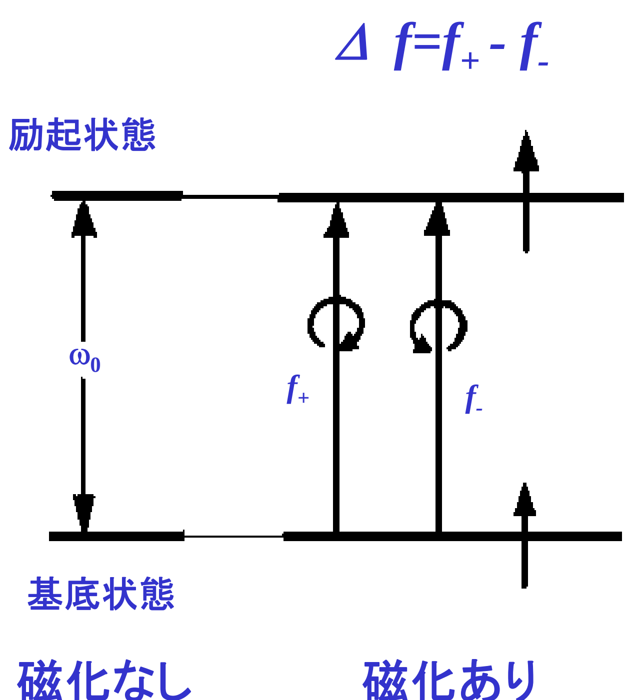


図4.8(a)

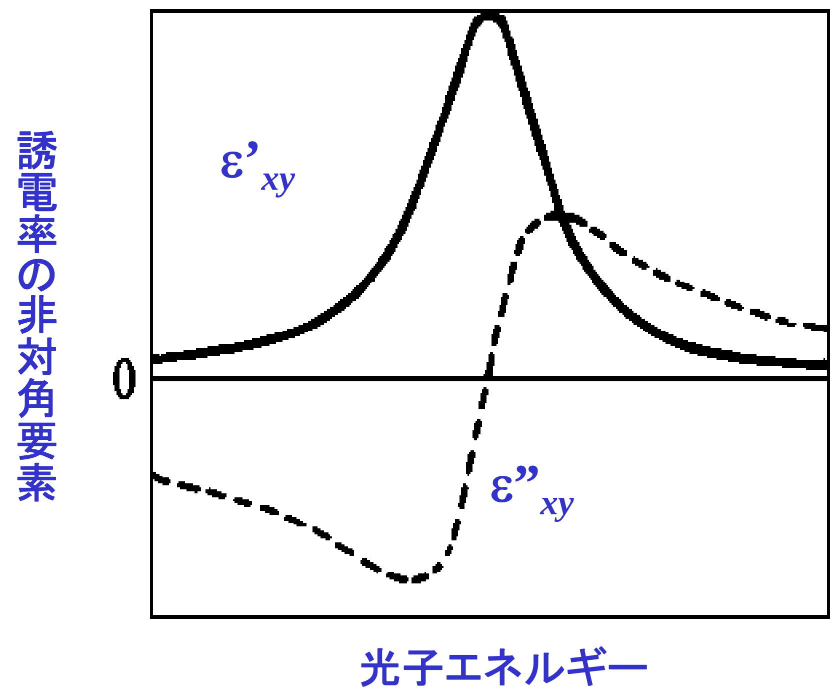


図4.8(b)

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。

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

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

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。

磁気光学スペクトルの形(2) バンド電子系

- 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りません。
- 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す。
- 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ります。

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*をかけました。
- 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ります。
- 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により導出されました。

運動量演算子πとσxy

- 運動量演算子Πを次のように定義します。

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

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す。導電率の非対角成分を見積もると

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

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

$$\alpha, \beta = (x, y) \qquad (4.42)$$

となります。

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,

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

- と表されます。

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，

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

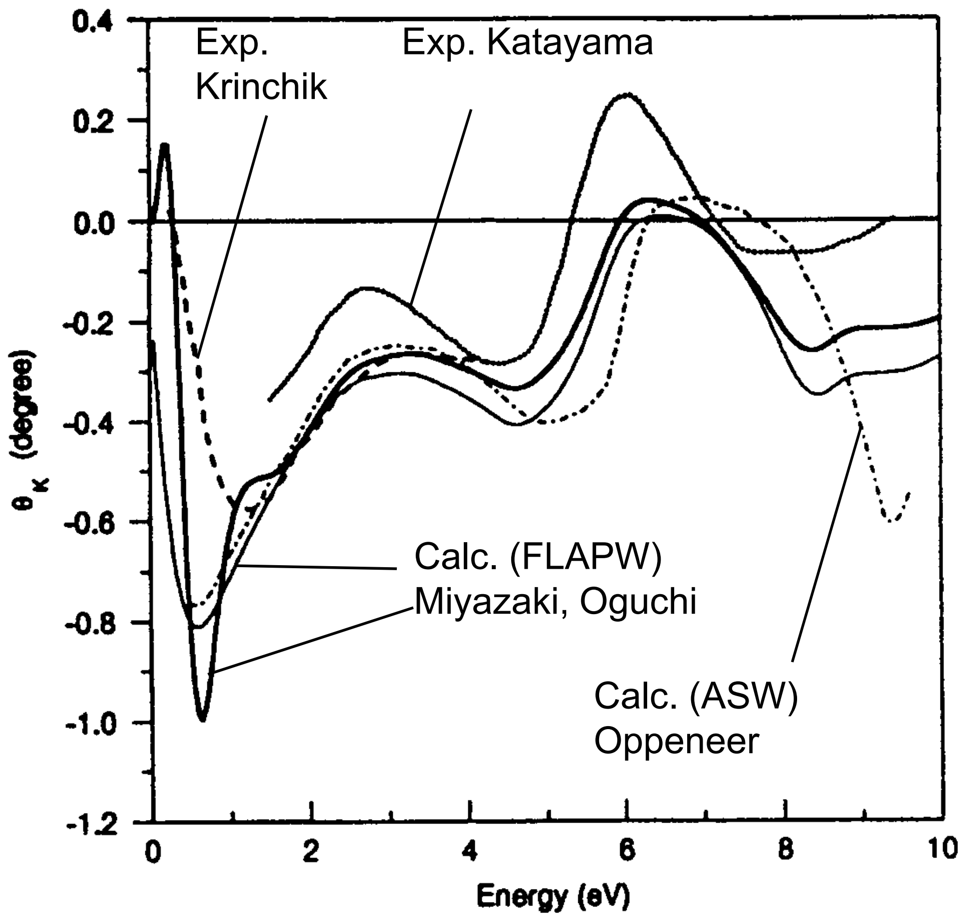
σ_{xy}の評価法

- 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(積分)をとればよいのです。
- 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ました。
- 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りました。（このことは、後の講義で触れたいと思います。）

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できます。

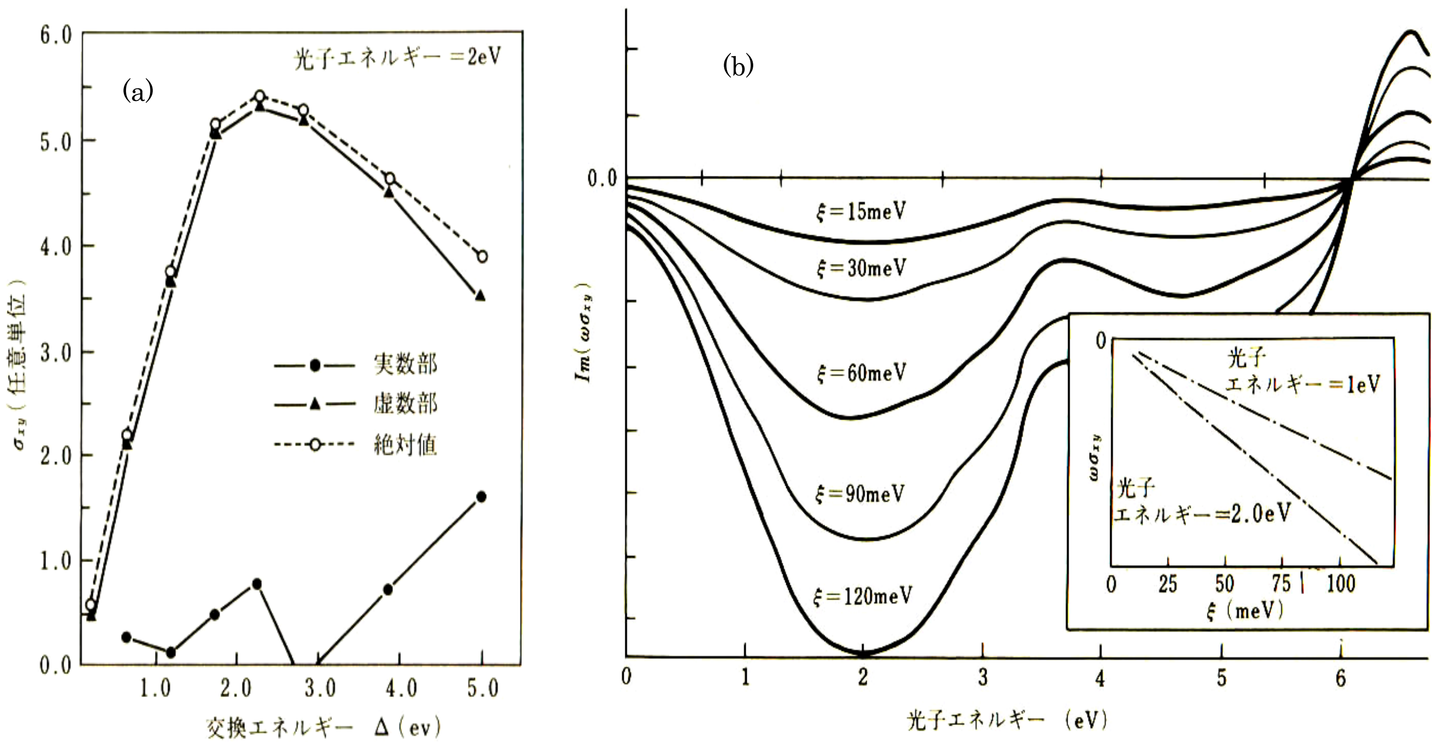
佐藤勝昭:光と磁気 図6.27



スピン軌道相互作用の重要性

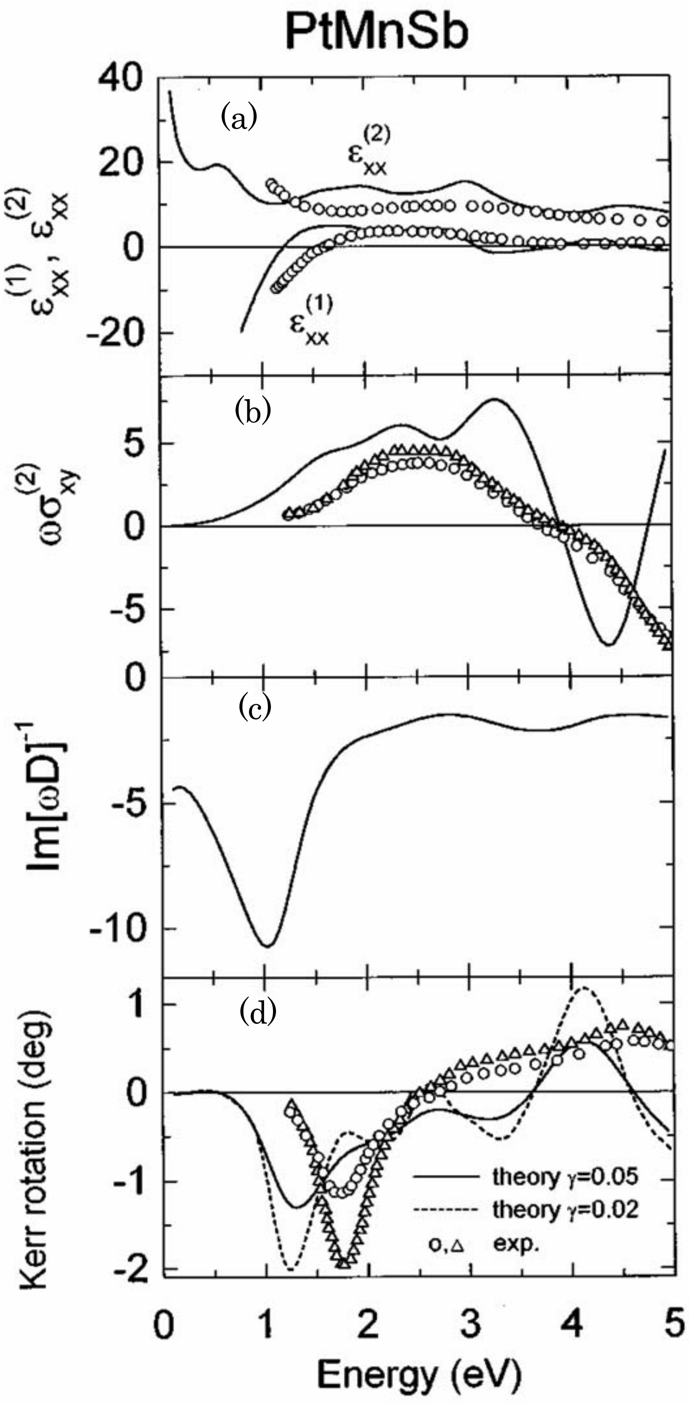
- MisemerはFeにおいて交換分裂の大きさとスピン軌道相互作用の大きさをパラメータとしてバンド計算を行いました。
- 磁気光学効果はスピン軌道相互作用には比例するが，交換分裂に対しては単純な比例関係はないということを明らかにしました。

D.K. Misemer: J. Magn. Magn. Mater. **72** (1988) 267.



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)



佐藤勝昭：光と磁気 図6.25

4.2 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、第1原理バンド計算によって実験結果が再現されることを学びました。

４の課題

- 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。

5.磁気光学効果の測定法

5.1 直交偏光子法

5.2 回転検光子法

5.3 振動偏光子法

5.4 ファラデー変調法

5.5 楕円率の評価

5.6 光学遅延変調法

5.7 磁気光学スペクトル測定法

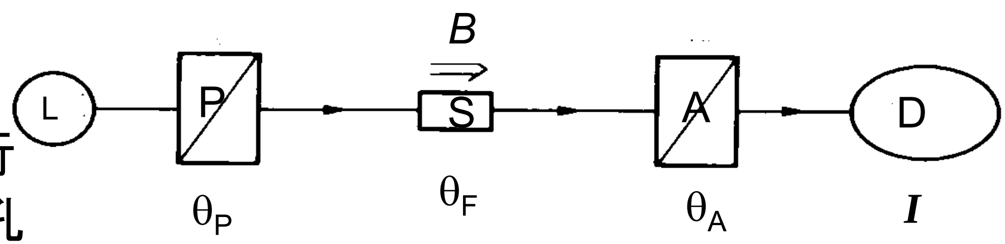
光と磁気第5章による

磁気光学効果の測定法

- 今回は「光と磁気」第5章にそって，磁気光学効果の具体的な測定の方法について述べます。
- ここでは、単に測定の方法を示すだけでなく，その原理についての理解が得られるように配慮しました。
- 原理を知っていると測定法を改善したり，さらに広い応用を考えたりするときの助けになります。
- 最初はスペクトルのことは考慮せず述べ，続いて分光測定の方法を述べます。
- 最後に測定によって得られたデータからどのようにして誘電率などのパラメータを計算するかについて述べます。

5.1 直交偏光子法(クロスニコル)

- 最もオーソドックスな磁気旋光角の測定法です。
- 図5.1(a)に示した構成で行われます．試料を磁極に孔をあけた電磁石の磁極の間に置き，光の進行方向と平行に磁界が印加されるように配置します．



$$\theta_P=\theta_A+\pi/2$$

図5.1(a)
直交偏光子法の概略図。L：光源、P：偏光子、S：試料、A：検光子、D：検出器

- 偏光子Pと検光子Aを用意し，磁界のないときに光検出器Dの出力が最小になるようAの角度を調整して，そのときの目盛θ_0を読み取ります。
- 次に磁界Hを印加して，Dの出力を最小とするAの目盛θ_Hを読み取り$\theta_H-\theta_0$を計算すると旋光角が得られます．読みとりの精度はAの微調機構の精度で決まり，あまり小さい旋光角を測定することはできません。

直交偏光子法の説明

- 検出器に現れる出力Iは，偏光子の方位角をθ_p，検光子の方位角をθ_A，ファラデー回転をθ_Fとすると，

$$I = I_0 \cos^2(\theta_P + \theta_F - \theta_A) \qquad (5.1)$$

と表されます．ここにθ_P，θ_Aはそれぞれ偏光子と検光子の透過方向の角度を表しています．直交条件では，$\theta_P - \theta_A = \pi/2$となるので，この式は

$$I = I_0 \sin^2 \theta_F = (I_0/2)(1 - \cos 2\theta_F) \qquad (5.2)$$

となります．θ_Fが磁界Hに比例するとき，IをHに対してプロットすると図5.1(b)のようになります．

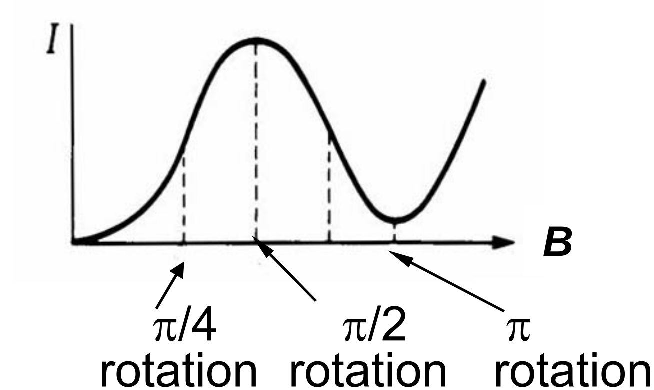
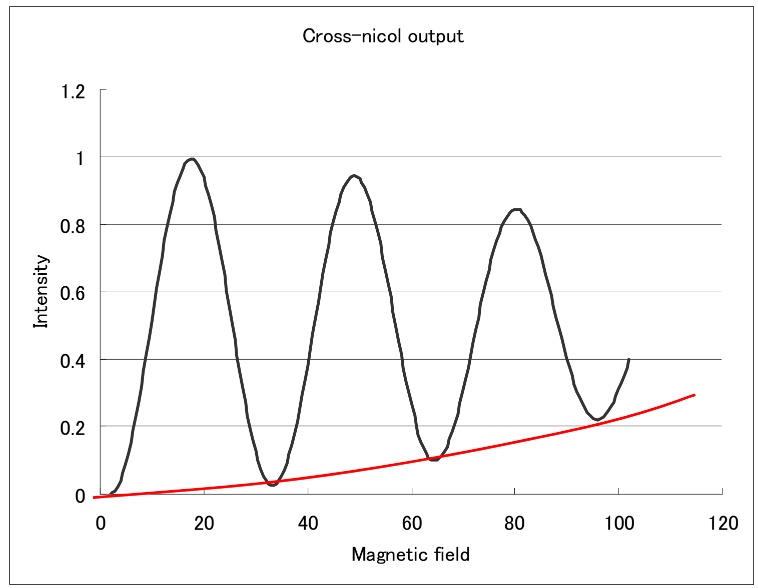


図5.1(b) 直交偏光子法における検出器出力の磁界強度依存性）

直交偏光子法(強い磁界下で)

- θ_Fがπの整数倍のとき出力I/I_0は0、π/2の奇数倍のとき1になるはずですが、実際には、図のように右上がりの曲線となりますが、何故でしょうか。

•これは、磁気円二色性があるためです。磁気円二色性のため出力光は楕円偏光になるため、検光子が楕円の長軸に直交していても、楕円の短軸の成分が検光子を透過して来るためです。



•図は、$I/I_0=(1-(\beta Hl)^2)\sin^2\alpha Hl+(\beta Hl)^2\cos^2\alpha Hl$として近似したものです。

5.2 回転検光子法

- この方法は，偏光子，または，検光子のいずれかを回転させる方法です．
- 図5.2には偏光子Pを固定し，検光子Aを一定速度で回転させる場合を示してあります．

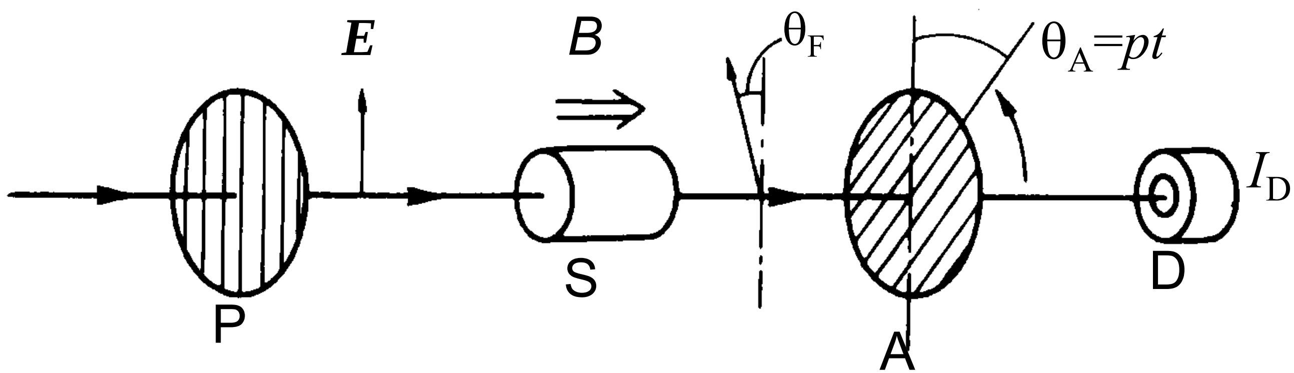


図5.2　回転検光子法の説明図。P：偏光子、S：試料、A：回転検光子、D：検出器

回転検光子法

・ 検光子が角周波数pで回転するならば，$\theta_{\mathrm{A}}=pt$と書けますから，検出器出力I_{D}は，

$$\begin{aligned} I_D &= I_0 \cos^2(\theta_F - \theta_A) \\ &= (I_0/2)\{1 + \cos 2(\theta_F - pt)\} \end{aligned} \qquad (5.3)$$

と表されます．

・ すなわち，光検出器Dには回転角周波数の2倍の角周波数$2p$の電気信号が現れます．求めるべき回転角θ_{F}は，出力光の位相が，磁界ゼロの場合からのずれの大きさΨを測定すれば，$\Psi/2$として旋光角が求まります．

5.3 振動偏光子法

- 図5.3のように偏光子と検光子を直交させておき，偏光子を

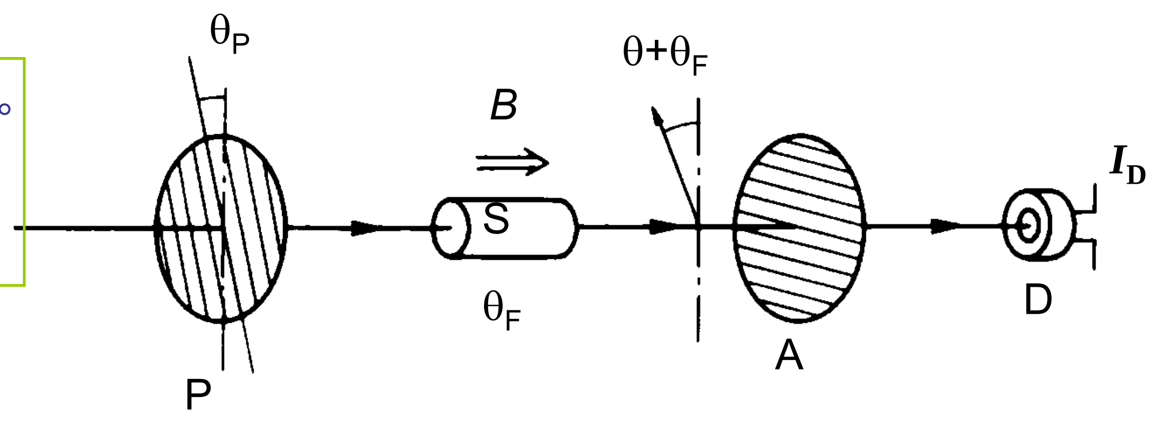
$$\theta = \theta_0 \sin pt \qquad (5.4)$$

のように小さな角度θ_0の振幅で角周波数pで振動させると，信号出力$\boldsymbol{I}_\mathrm{D}$は

$$I_D \propto I_0 \sin^2(\theta + \theta_F)$$
$$= I_0\{1 - J_0(2\theta_0)\cos 2\theta_F\}/2 - I_0 J_2(2\theta_0)\cos 2\theta_F \cdot \cos 2pt + I_0 J_1(2\theta_0)\sin 2\theta_F \cdot \sin pt \qquad (5.5)$$

となります．ここに，$Jn(\mathrm{x})$はn次のベッセル関数です。

図5.3 振動偏光子法の説明図。P：振動偏光子(方位角θ_P)、S：試料(ファラデー回転θ_F)、A：検光子、D：検出器(出力I_D))



[参考]

- 式(5.5) を誘導してみましょう。

$$I_D \propto I_0 \sin^2(\theta + \theta_F) = (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta + \theta_F)\} = (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta_0 \sin pt + \theta_F)\}$$
$$= (I_0/2)\{1 - (\cos(2\theta_0 \sin pt)\cos 2\theta_F - \sin(2\theta_0 \sin pt)\sin 2\theta_F)\}$$
$$= (I_0/2)\{1 - ((J_0(2\theta_0) + 2J_2(2\theta_0)\cos 2pt)\cos 2\theta_F - 2J_1(2\theta_0)\sin pt \sin 2\theta_F)\}$$
$$= I_0\{1 - J_0(2\theta_0)\cos 2\theta_F\}/2 - I_0 J_2(2\theta_0)\cos 2\theta_F \cdot \cos 2pt + I_0 J_1(2\theta_0)\sin 2\theta_F \cdot \sin pt$$

ここで、次のベッセル関数による展開式を用いました。

$$\sin(x \sin\phi) = 2J_1(x)\sin\phi + \cdots$$
$$\cos(x \sin\phi) = J_0(x) + 2J_2(x)\cos 2\phi$$

振動偏光子法の説明(cont)

- θ_Fが小さいとき,
  - 角周波数pの成分I(p)が光強度I_0およびθ_Fに比例し,
  - 角周波数2pの成分I(2p)はほぼ光強度I_0に比例します。

(5.5) ⇨ $$I_D = I(0) - I(p)\sin pt + I(2p)\cos 2pt$$

ここに
$$I(p) = I_0 J_1(2\theta_0)\sin 2\theta_F \approx 2I_0 J_1(2\theta_0)\theta_F$$
$$I(2p) = I_0 J_2(2\theta_0)\cos 2\theta_F \approx I_0 J_2(2\theta_0)$$

- 従って、I (p)とI (2p)の比をとればθFを測定できます。

$$I(p)/I(2p) = I_0 J_1(2\theta_0)\sin 2\theta_F / I_0 J_2(2\theta_0)\cos 2\theta_F \approx 2\theta_F\{J_1(2\theta_0)/J_2(2\theta_0)\}$$

5.4 ファラデー変調器法

- 検光子は偏光子と直交するように固定しておき，試料のファラデー効果によって起きた回転をファラデーセルによって補償し，自動的に零位法測定を行うのが図5.4に示した方法の特徴です。

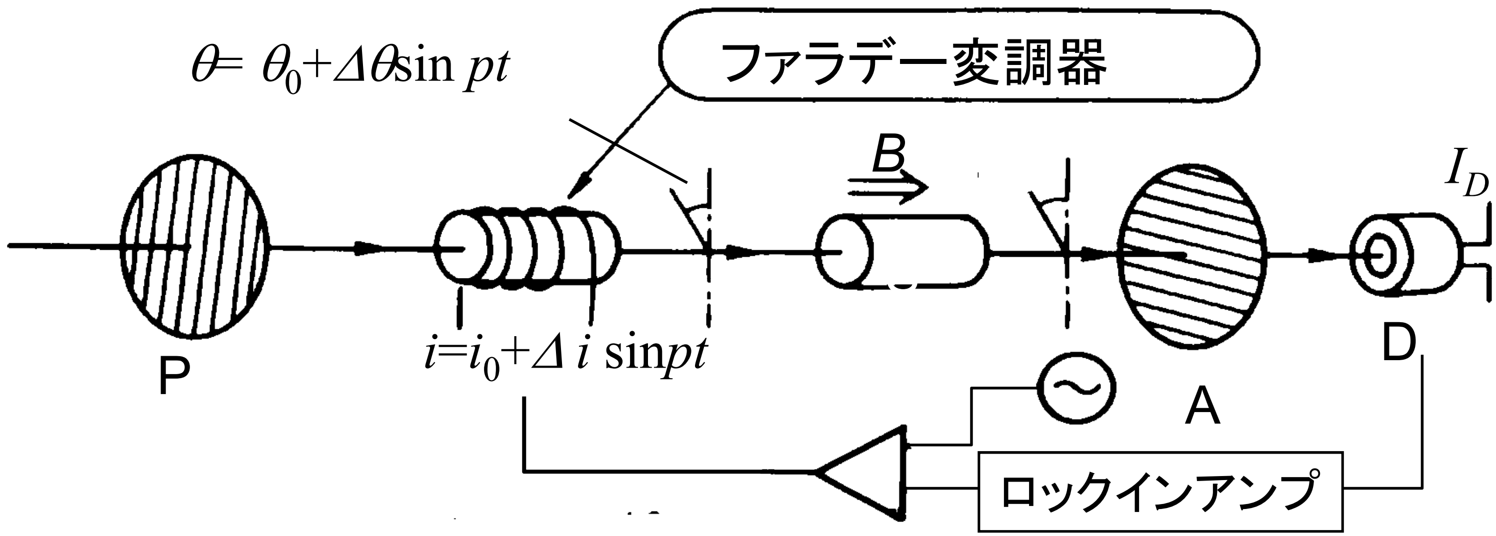


図5.4 ファラデー変調器法の模式図。P：偏光子、S：試料、A：検光子、D：検出器

ファラデー変調器法(1)

- 試料のファラデー効果によって起きた回転をファラデーセルによる逆向きの回転を使って補償し，検出器Dの出力がゼロになるようにファラデーセルに流す電流を調整すれば零位法で測定できます。ただし、セルに流す電流$\boldsymbol{i}$と回転角θの間の比例係数は予め校正しておきます。$\boldsymbol{\theta}=\boldsymbol{K}\,\boldsymbol{i}$
- 図5.4では、セルに流す電流を手で調整する代わりに、フィードバックによって自動的に検出器Dの出力をゼロにするようになっています。
- ファラデーセルに加える直流電流I_0に，変調用の交流$\Delta i\sin pt$を重畳させておきます。従って、
$\boldsymbol{i}= i_0+ \Delta i$, $\boldsymbol{\theta}=K\, i=K\, i_0+K\Delta i\sin pt =\boldsymbol{\theta}_0+\Delta\boldsymbol{\theta}\sin pt$
- そしてDの出力を，ロックイン・アンプなどの高感度増幅器で増幅し、加算器に入力しファラデーセルにネガティブフィードバックします.

ファラデー変調器法(2)

- 検出器出力I_Dは,

$$I_D = I_0 \sin^2(\theta_0 - \theta_F + \Delta\theta \sin pt)$$
$$= (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F)\cos(2\Delta\theta \sin pt) + \sin 2(\theta_0 - \theta_F)\sin(2\Delta\theta \sin pt)\}$$
$$\approx (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F)J_0(2\Delta\theta)\} + I_0 \sin 2(\theta_0 - \theta_F)J_1(2\Delta\theta)\sin pt$$
$$- I_0 \cos 2(\theta_0 - \theta_F)J_2(2\Delta\theta)\cos 2pt$$

となって, p成分の強度は$\sin(\theta_0 - \theta_F)$に比例します。

- ロックイン増幅器で角周波数pの成分のみを取りだします。その大きさは$I_0 \sin(\theta_0 - \theta_F)J_1(2\Delta\theta)$。増幅率を$A$とすると、その出力電流$i_0$は

$$i_0 = AI_0 J_1(\Delta\theta)\sin 2(\theta_0 - \theta_F)$$ となります。

ファラデー変調器法(3)
フィードバックシステム

- ファラデーセルの比例係数*K*を用いると

$$\theta_0 = KAI_0 J_1(\Delta\theta)\sin 2(\theta_0 - \theta_F) = K'\sin 2(\theta_0 - \theta_F)$$

- したがって、θ_0-θ_Fが小さければ

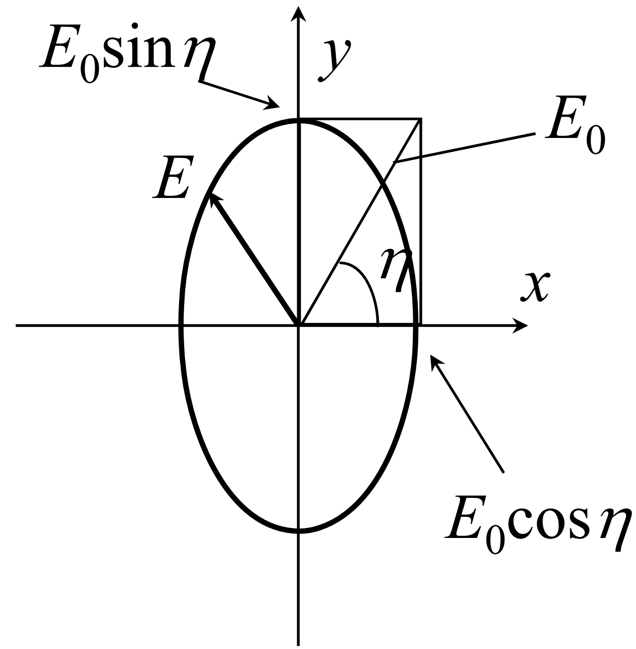
$$\theta_0 = 2K'(\theta_0 - \theta_F)$$

$$\theta_0 = \frac{2K'}{2K'-1}\theta_F$$

- となり、$K' \to \infty$ならば、θ_0=θ_Fとなります。

5.5 楕円率の測定法（1）

- 楕円率は，4分の1波長板(λ/4板と略称)を用いて楕円率角を回転に変換して測定することが可能です．以下にはその原理について述べます．
- 楕円率角η(rad)の楕円偏光が入射したとすると，その電気ベクトルEは$\boldsymbol{E}=\cos\eta\,\boldsymbol{i}+\sin\eta\,\boldsymbol{j}$ で表されます．(ここに$\boldsymbol{i},\boldsymbol{j}$ はそれぞれx,y方向の単位ベクトルです．)



楕円率の測定法(2)

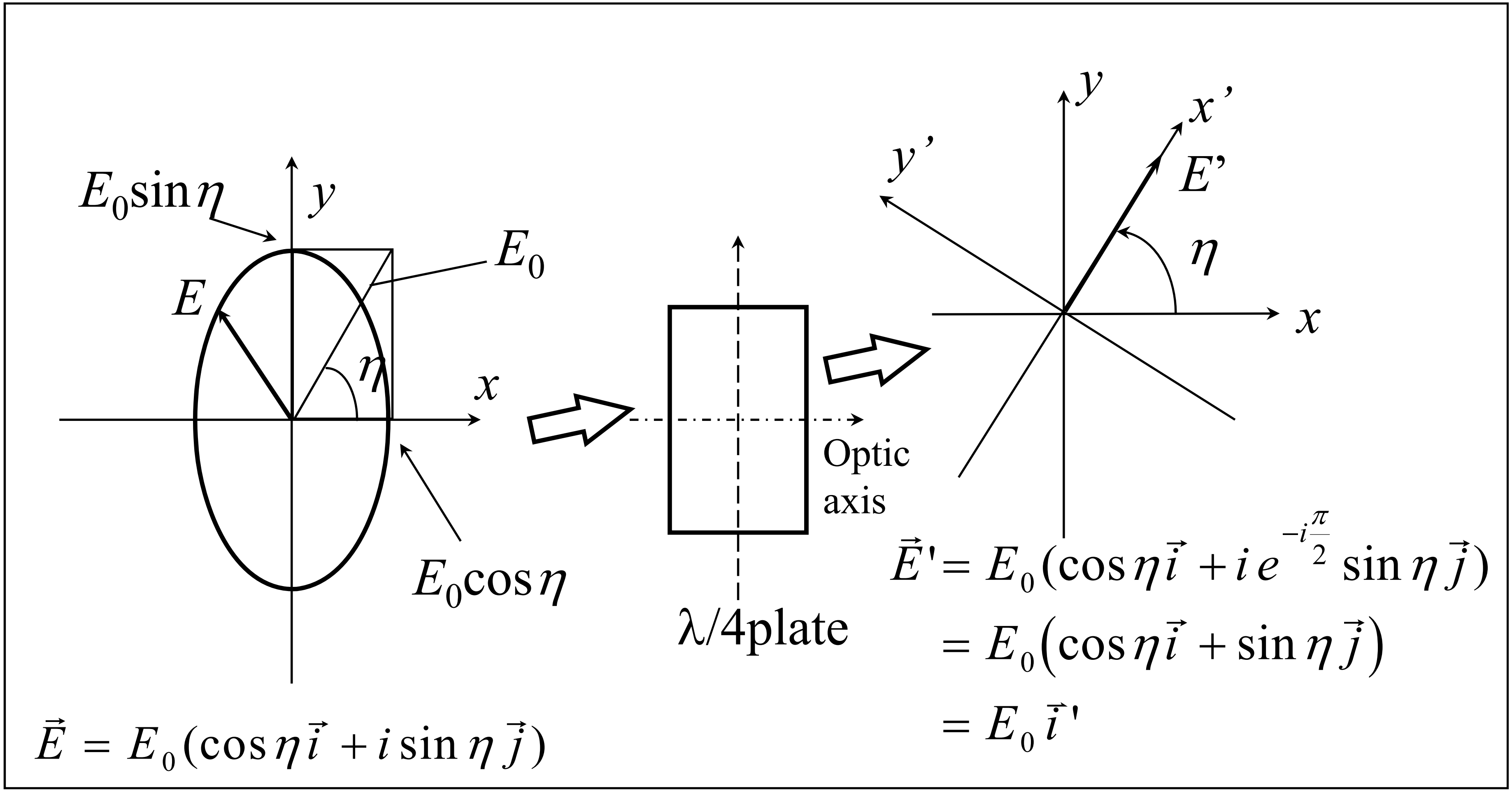
- x方向に光軸をもつ$\lambda/4$板を通すと，y方向の位相は90°遅れるので，出射光の電界$\boldsymbol{E'}$は

$$\vec{E}' = E_0\left(\cos\eta\boldsymbol{i} + i\exp\left(-i\pi/2\right)\sin\eta\boldsymbol{j}\right) = E_0\left(\cos\eta\boldsymbol{i} + \sin\eta\boldsymbol{j}\right) \quad (5.7)$$

となりますが，これは，x軸からη(rad)傾いた直線偏光を表しています．

- したがって，入射楕円偏光の長軸の方向に$\lambda/4$板の光軸をあわせれば，上に述べたいずれかの回転角を測定する方法で楕円率角を測定できます．

楕円率の測定法(3)



$$\vec{E} = E_0(\cos\eta\,\vec{i} + i\sin\eta\,\vec{j})$$

$$\begin{aligned}\vec{E}' &= E_0(\cos\eta\,\vec{i} + i\,e^{-i\frac{\pi}{2}}\sin\eta\,\vec{j}) \\ &= E_0\left(\cos\eta\,\vec{i} + \sin\eta\,\vec{j}\right) \\ &= E_0\,\vec{i}'\end{aligned}$$

図5.5 λ/4波長板を用いて楕円率が測定できることの原理の説明図

5.6 円偏光変調法（光学遅延変調法）

- 図5.7においてPとAは直線偏光子，Mは光弾性変調器(PEM)，Dは光検出器です．
- PEMとは，等方性の透明物質（石英，CaF_2など）に水晶の圧電振動子を貼付けたものです．
- PEMに角周波数p [rad/s]の高周波の電界を加えると，音響振動の定在波ができて透明物質にp [rad/s]で振動する一軸異方性が生じます．この結果複屈折Δnが現れます．
- これにより，光学遅延量 $\delta = 2\pi \Delta n l / \lambda$ がp [rad/s]で変調されます．すなわち，

$$\delta = \delta_0 \sin pt \qquad (5.8)$$

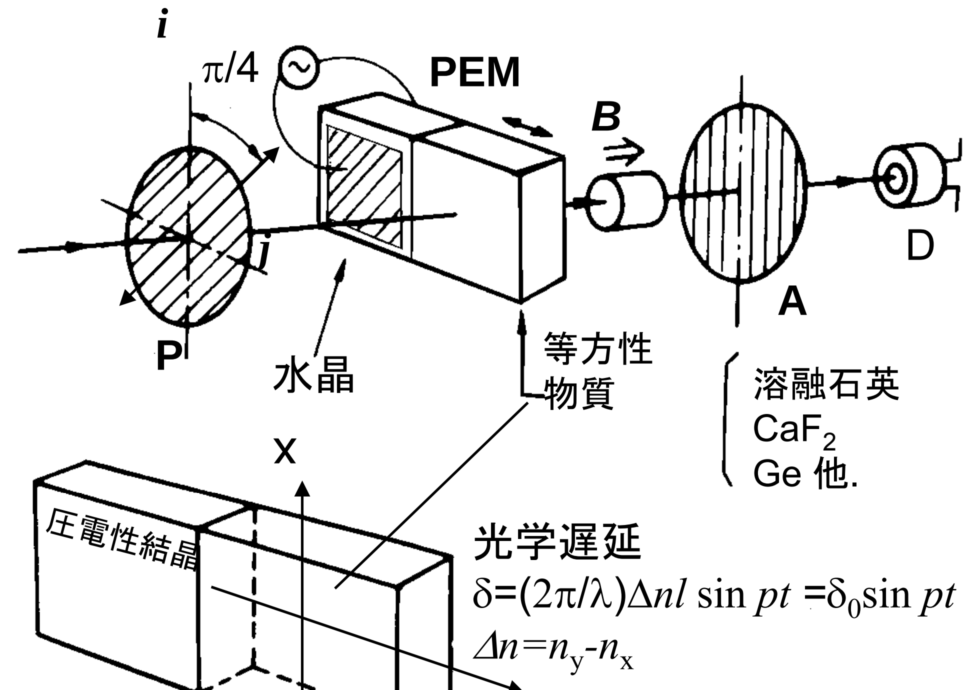
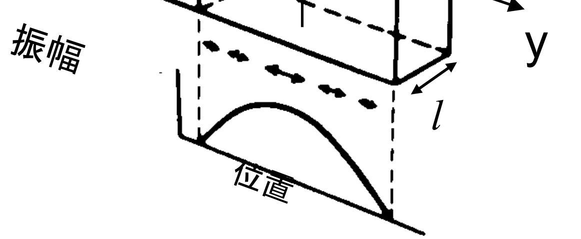



図5.7

円偏光変調法の定性的説明

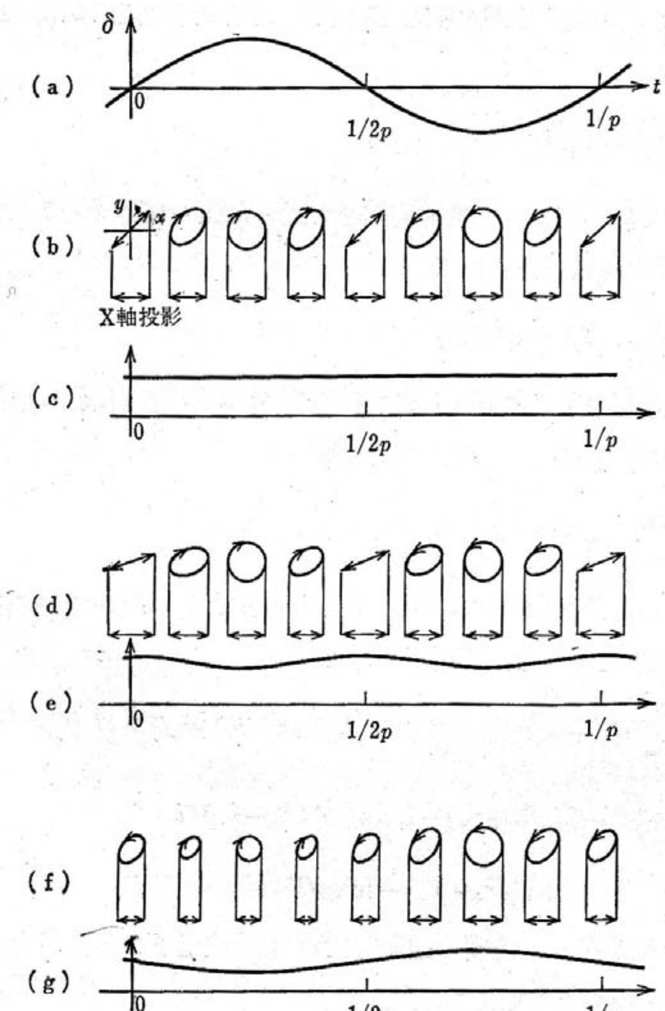


図5.8

- 図5.8 (a)は光弾性変調器(PEM) によって生じる光学的遅延δの時間変化を表します．この図においてδの振幅δ_0は$\pi/2$であると仮定するとδの正負のピークは円偏光に対応します．
- 試料Sが旋光性も円二色性ももたないとすると，電界ベクトルの軌跡は図(b)に示すように1周期の間にLP-RCP-LP-LCP-LPという順に変化します．(ここに，LPは直線偏光，RCPは右円偏光，LCPは左円偏光を表します．)
- 検光子の透過方向の射影は図(c)に示すように時間に対して一定値をとります．
- 旋光性があるとベクトル軌跡は図(d)のようになり，その射影は(e)に示すごとく角周波数2*p*[rad/s]で振動する．
- 一方，円二色性があるとRCPとLCPとのベクトルの長さに差が生じ，射影(g)には角周波数*p*[rad/s]の成分が現れます．

円偏光変調法の原理

- 直線偏光(45°)
- Y成分のみδ遅延
- 円偏光座標に変換
- 右円偏光および左円偏光に対する反射率をかける
- 元の座標系に戻す
- *x*軸からφの角度の透過方向をもつ検光子からの出力光
- 光強度を求める

$$\boldsymbol{E}_1 = \frac{1}{\sqrt{2}} \boldsymbol{E}_0 (\boldsymbol{i} + \boldsymbol{j}) \tag{5.9}$$

$$\boldsymbol{E}_2 = \frac{\boldsymbol{E_0}}{\sqrt{2}} (\boldsymbol{i} + \exp(i\delta)\boldsymbol{j}) \tag{5.10}$$

$$\boldsymbol{E}_2 = \frac{\boldsymbol{E_0}}{2} ((1\text{-}i\exp(i\delta))\boldsymbol{r} + (1 + i\exp(i\delta))\boldsymbol{l}) \tag{5.11}$$

$$\begin{aligned} \boldsymbol{E}_3 &= \frac{\boldsymbol{E_0}}{2} (r_+(1\text{-}i\exp(i\delta))\boldsymbol{r} + r_-(1 + i\exp(i\delta))\boldsymbol{l}) \\ &= \frac{\boldsymbol{E_0}}{2} (((r_+ + r_-)\text{-}i(r_+ - r_-)\exp(i\delta))\boldsymbol{i} + i((r_+ - r_-)\text{-}i(r_+ + r_-)\exp(i\delta))\boldsymbol{j}) \end{aligned} \tag{5.12}$$

$$E_4 = \frac{E_0}{2\sqrt{2}} \left(r^+(1\text{-}i\exp(i\delta))\exp(i\varphi) + r^-(1 + i\exp(i\delta))\exp(i\varphi) \right) \tag{5.13}$$

$$I \approx \frac{E_0^2}{2} (R + \varDelta R \sin\delta + R\sin(\varDelta\theta + 2\varphi)\cos\delta) \tag{5.14}$$

円偏光変調法の原理

- 磁気光学パラメータに書き換え

$$I = \frac{1}{2} E_0^2 R\{1 + 2\eta_K \sin\delta + \sin(2\varphi - 2\theta_K)\cos\delta\} \quad (5.16)$$

- $\varphi = 0$ かつθ_Kが小のとき

$$I \approx I_0 R(1 + 2\eta_K \sin\delta - 2\theta_K \cos\delta)$$

- $\delta = \delta_0$sinptを代入してBessel関数展開

$$\sin(x\sin\phi) = 2J_1(x)\sin\phi + \cdots$$
$$\cos(x\sin\phi) = J_0(x) + 2J_2(x)\cos 2\phi$$

$$\begin{aligned} I_D &= (I_0/2)\{1 + 2\eta_K \sin(\delta_0 \sin pt) - \sin 2\theta_K \cos(\delta_0 \sin pt)\} \\ &= (I_0/2)\{1 - 2\theta_K J_0(\delta_0)\} + I_0 \cdot 2\eta_K J_1(\delta_0)\sin pt - I_0 \cdot 2\theta_K J_2(\delta_0)\cos 2pt + \cdots \\ &\approx I(0) + I(p)\sin pt + I(2p)\cos 2pt \end{aligned} \quad (5.17)$$

- 周波数pの成分が楕円率、2pの成分が回転角

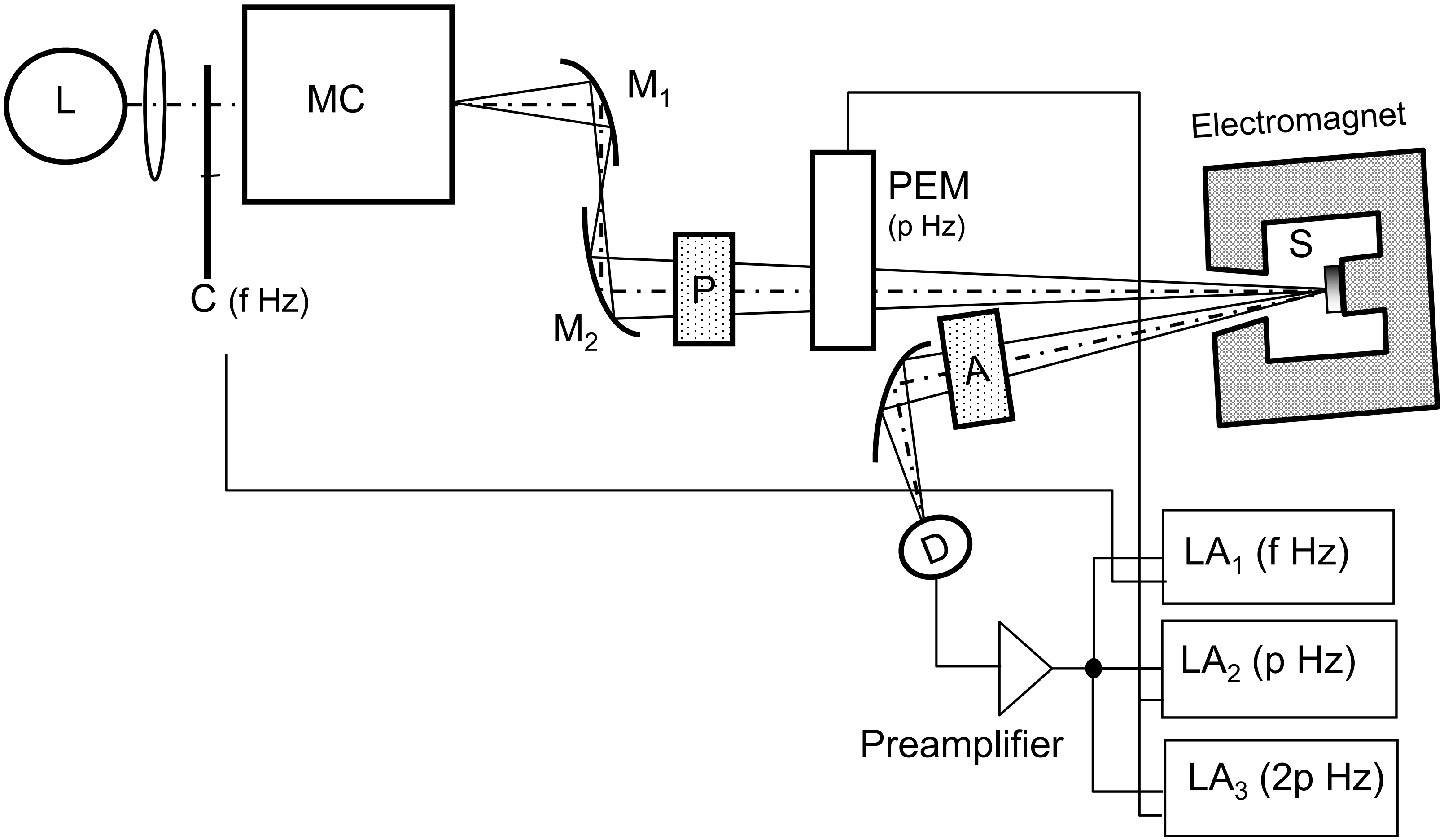
$$\begin{aligned} I(0) &= \frac{I_0}{2}\{1 - 2\theta_K J_0(\delta_0)\}, \\ I(p) &= 2I_0 \eta_K J_1(\delta_0) \\ I(2p) &= -2I_0 \theta_K J_2(\delta_0) \end{aligned} \quad (5.18)$$

円偏光変調法の特徴

- 同じ光学系を用いて旋光角と楕円率を測定できるという特徴をもっています.
- また，変調法をとっているため高感度化ができるという利点ももちます.
- この方法は零位法ではないので，何らかの手段による校正が必要です．詳しくは配付資料を参照してください。

5.7 磁気光学スペクトル測定法

磁気光学スペクトル測定系

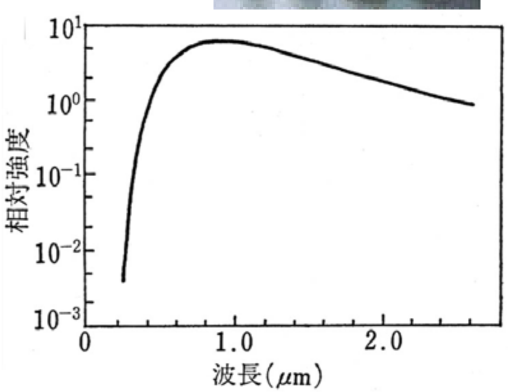


磁気光学スペクトル測定上の注意点

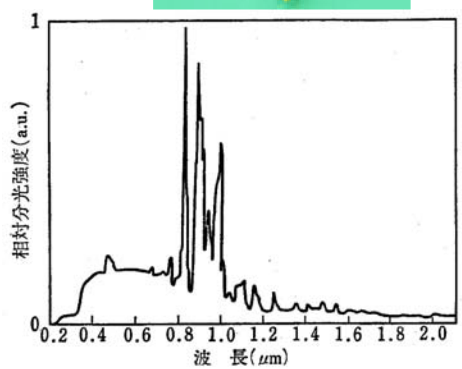
- 磁気光学スペクトルの測定には，光源，偏光子，分光器，集光系，検出器の一式が必要ですが，各々の機器の分光特性が問題になります．
- さらに，試料の冷却が必要な場合，あるいは，真空中での測定が必要な場合には，窓材の透過特性が問題になります．

光源

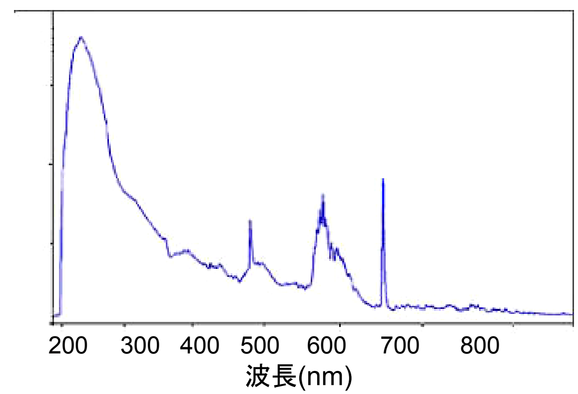
- ハロゲン･ランプ（近赤外-可視)
- キセノンランプ(近赤外-近紫外)
- 重水素ランプ(紫外)



ハロゲンランプ



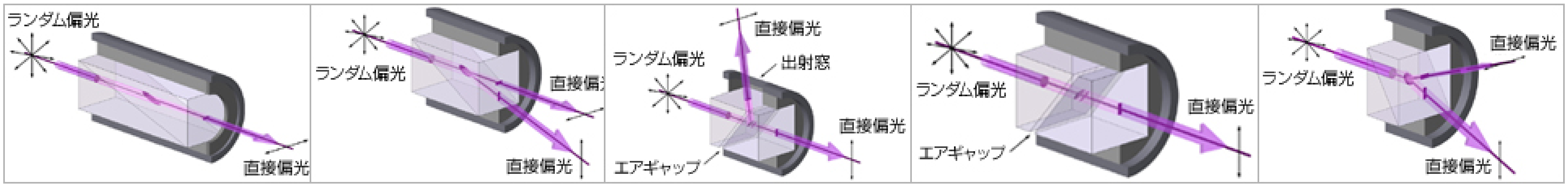
キセノンランプ



重水素ランプ

偏光子

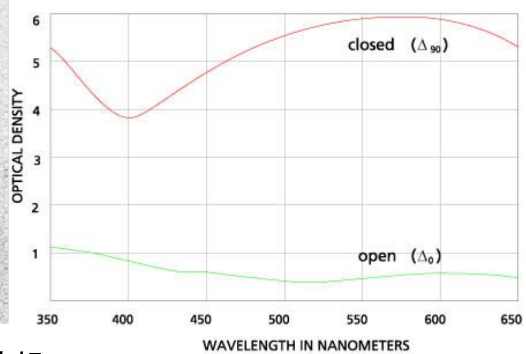
- 複屈折(プリズム)偏光子



グラントムソン　ロション　グランレーザー　グランテーラー　ウォラストン

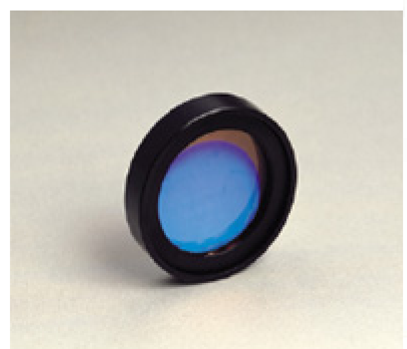
光学技研の製品情報(偏光子)http://www.kogakugiken.co.jp/products/polarizer06.htmlによる

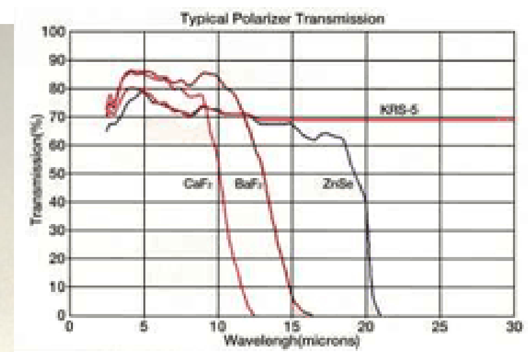
- 二色性偏光子(偏光板)



メレスグリオの製品情報
http://shop.mellesgriot.com/products/optics/optics.asp?plga=276736&CatID=10521&mscssidによる

- ワイヤグリッド偏光子

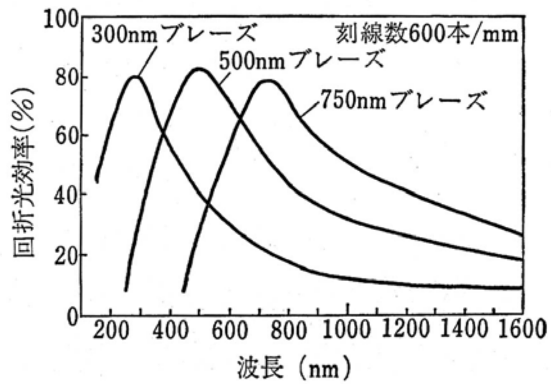




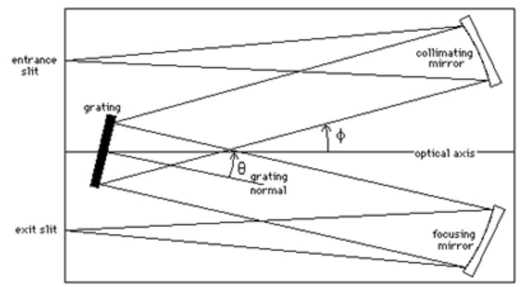
オプトライン社の製品情報
http://www.opto-line.co.jp/jp/henko/henko_sekigai.htmlによる

分光器

- 分解能よりも明るさに重点を置いて選ぶ必要があります．焦点距離25cm程度で，f ナンバーが3～4のものが望ましい．
- 回折格子は刻線数とブレーズ波長によって特徴づけられます．



堀場ジョバンイボンのH10型分光器

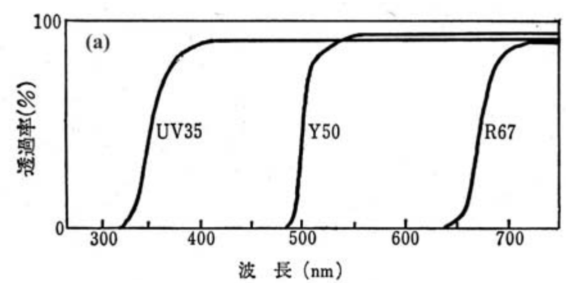


チェルニーターナー型回折格子分光器

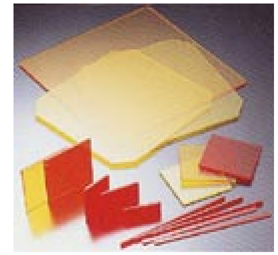
メリーランド大のホームページ
http://www.inform.umd.edu/EdRes/Topic/Chemistry/ChemConference/Chem623/Monochromator.htmから。l

高次光カットフィルタ

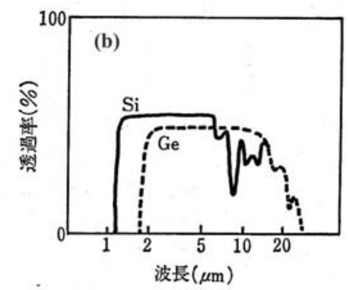
- 回折格子分光器はその性質上必ず高次光が出力されるので，ローパスフィルタを用いて高次光の遮断を行う．
- ローパスフィルタとしては適当な色ガラスフィルタ，半導体結晶フィルタ，干渉フィルタなどが用いられる．
- 高次光の遮断は特に赤外域で重要になってくる．例えば，2μmに波長ダイアルを合わせたとき同時に2次光1μm，3次光667nm，4次光500nm，5次光400nm，･･･が出力されており，2μmのみを取り出すためには，1μmより短い波長の光を遮断するフィルタを用いる必要がある．
- 高次光遮断フィルタは使用する波長領域に合わせて変えなければならない．



色ガラスフィルターの分光透過特性



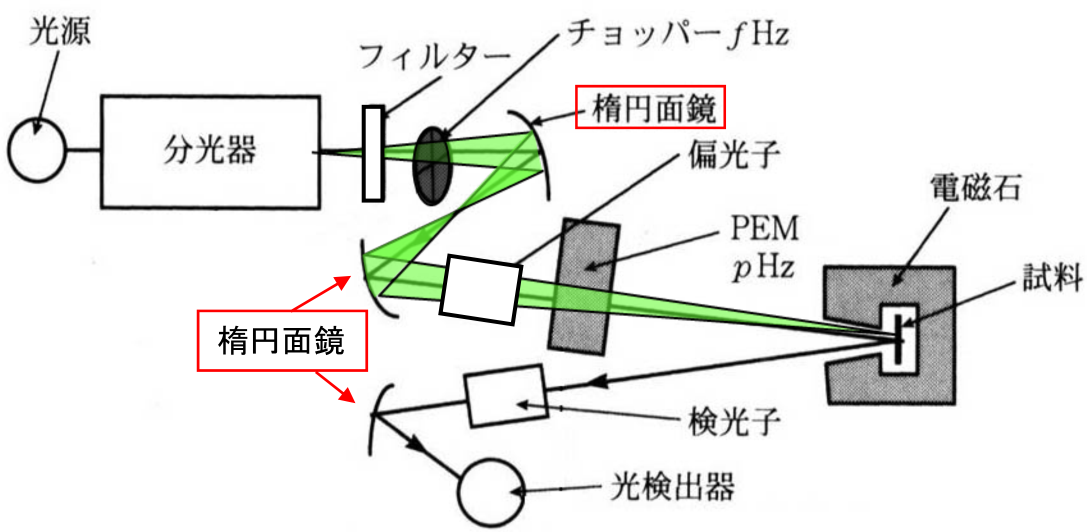
HOYACANDEOのホームページ
http://www.hoyacandeo.co.jp/japanese/products/より



半導体フィルターの分光透過特性

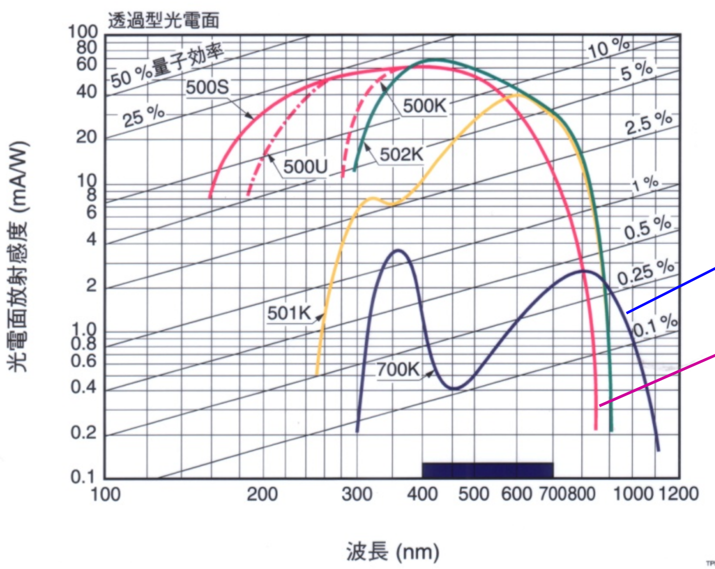
集光系

- 狭い波長範囲:レンズ使用
- 広い波長範囲:ミラー使用
  - 色収差が重要
  - たとえば，石英ガラスのレンズを用いて，0.4～2μmの間で測定するとすれば，$\delta f/f = -0.067$となり，$f = 15$cmならば$\delta f \sim 1$cmとなる．



検出器

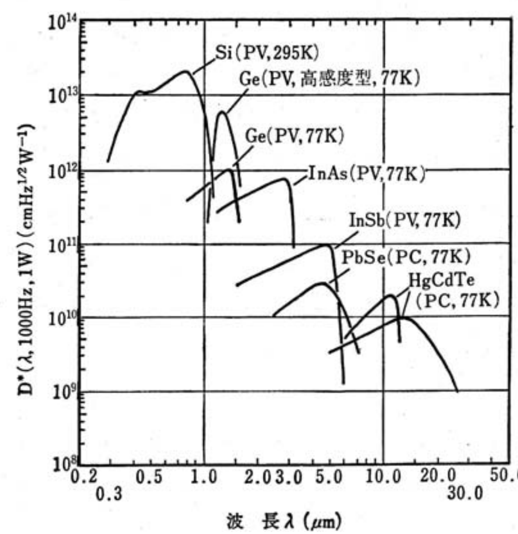
- 光電子増倍管
- 半導体光検出器



http://www.hpk.co.jp/Jpn/products/etd/pmtj/pmtj.htm

タイプ	光 電 面
S-1	Ag-O-Cs
S-4	Sb-Cs
S-20	マルチアルカリ
GaAs	GaAs 結晶

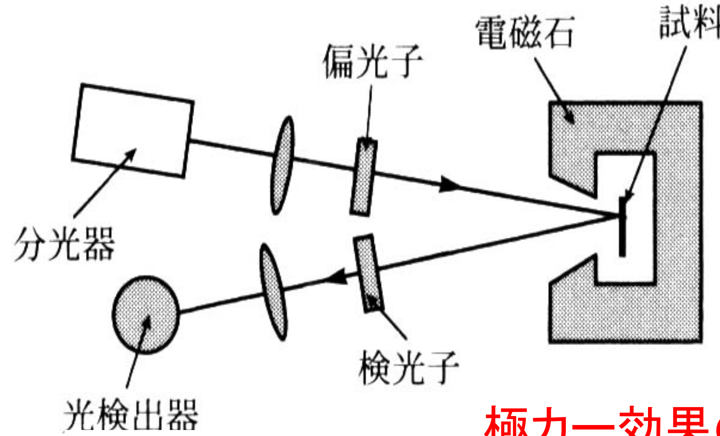
http://www.irassociates.com/



電磁石と冷却装置、素子の配置

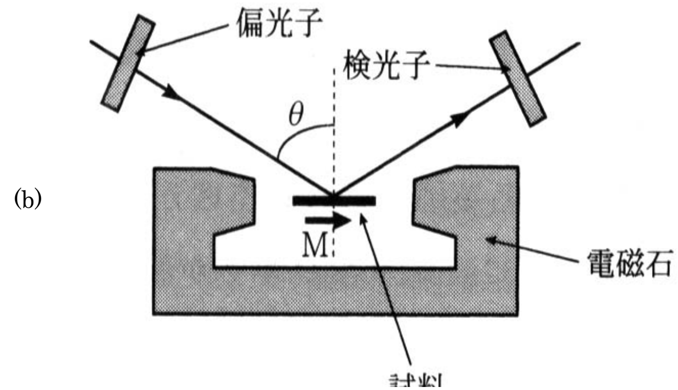
- ファラデー配置とフォーク卜配置
- 穴あき電磁石
- 鉄芯マグネット
- 超伝導マグネット

(a)



極カー効果の測定用

(b)



縦カー効果の測定用

電気信号の処理

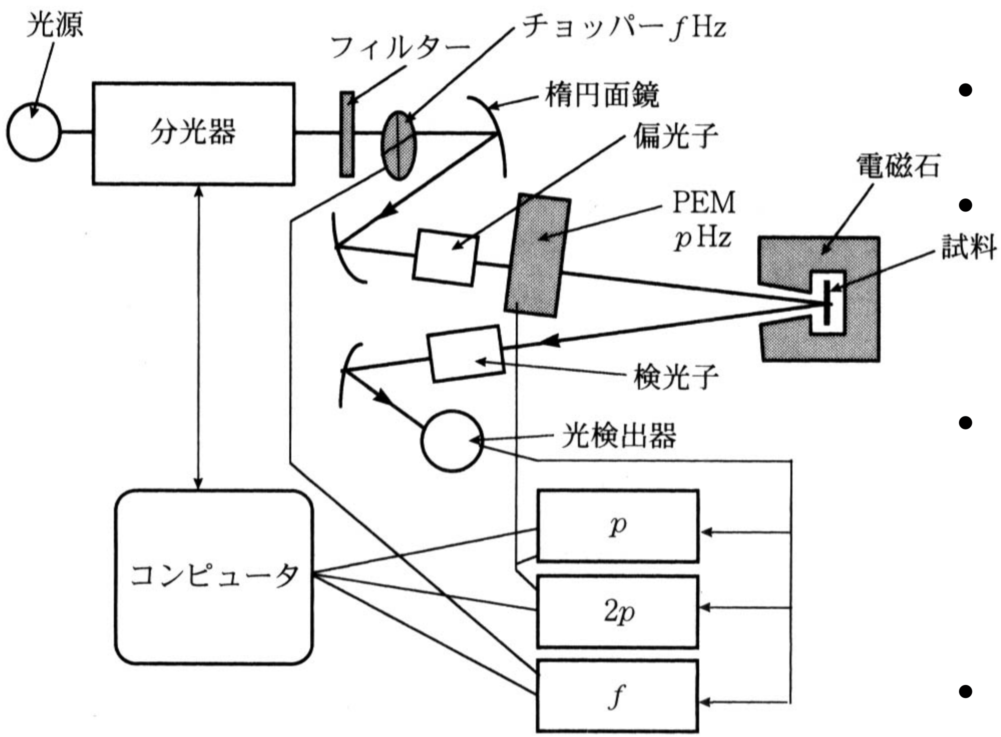
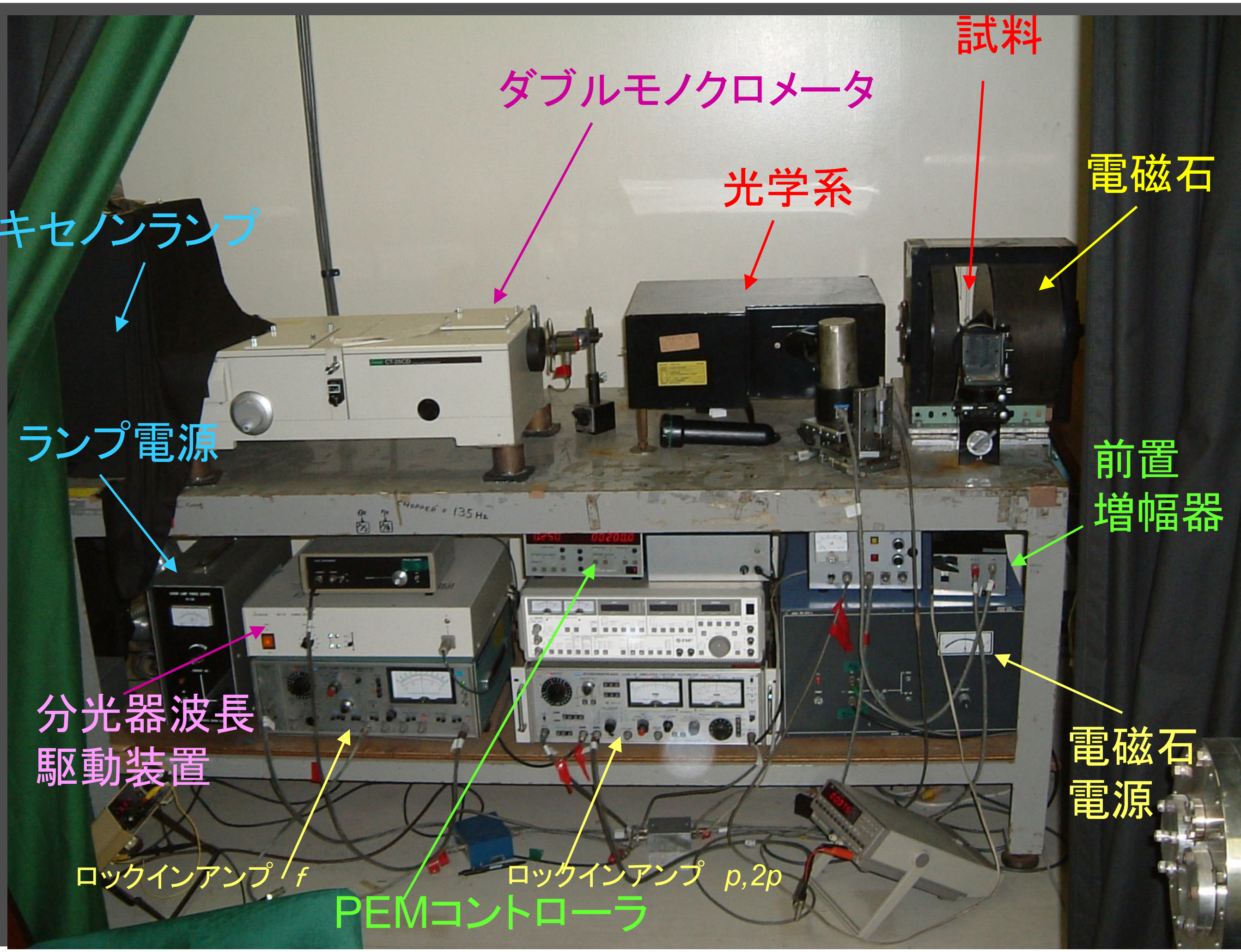


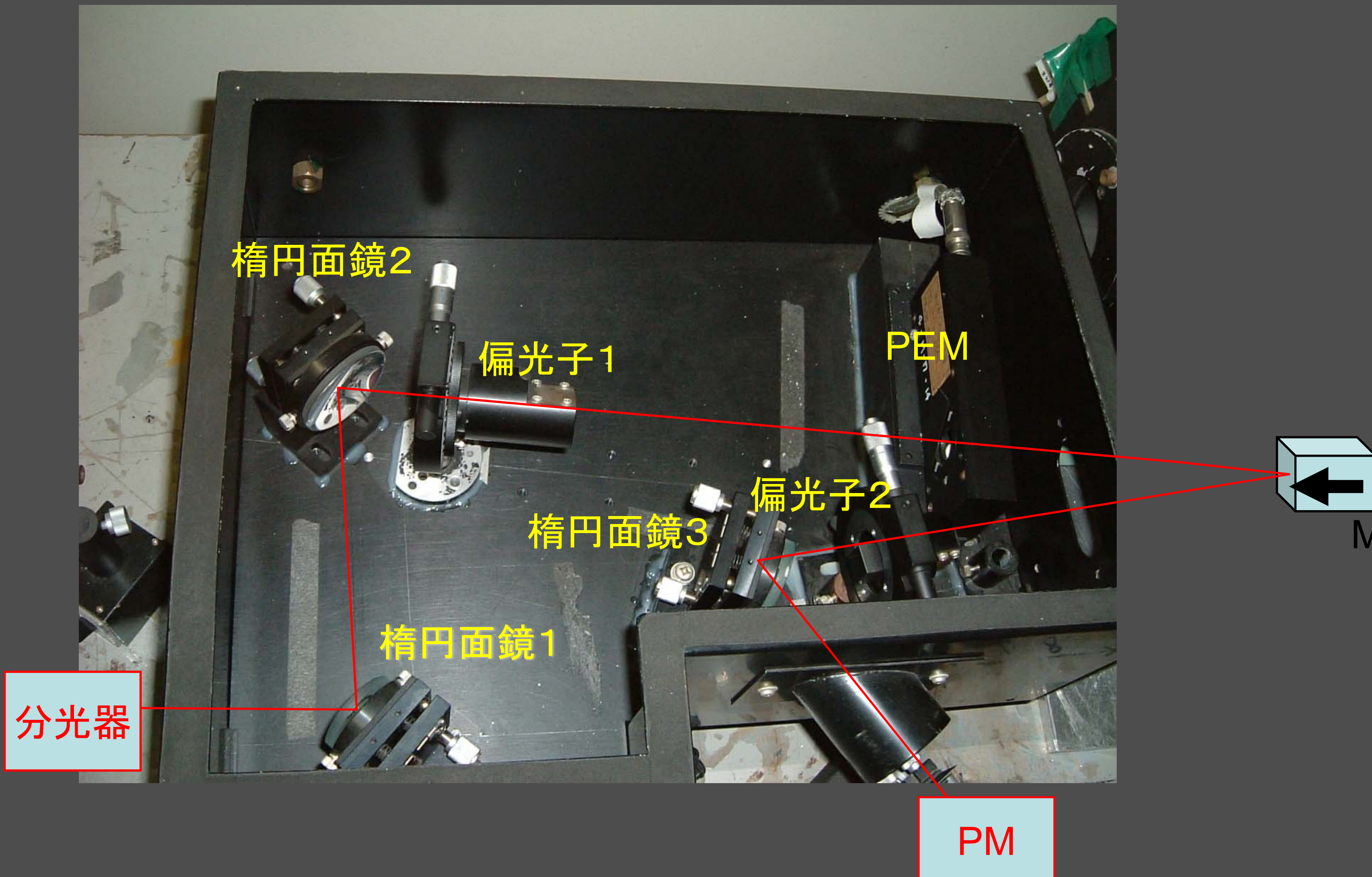
図5.23

- ここでは光学遅延変調法により磁気光学スペクトルを測定する場合の電気信号処理系について簡単に記述します.
- 図5.23にこの測定系のブロック線図を示します.
- 磁気旋光角は変調周波数*p* [rad/s]の２倍の成分と直流成分との比から，磁気円二色性は変調周波数成分と直流成分の比から求めることができます.
- 直流成分を知るために，光を*f* [rad/s]で断続して交流信号として検出することもよく行われています. (特に，半導体検出器を使うときは暗電流との分離のために交流にしなければなりません．)
- 従って，p [rad/s]成分とf [rad/s]成分，あるいは2p [rad/s]成分とf [rad/s]成分をロックインアンプの出力として求め，これらの比を計算する必要があります.

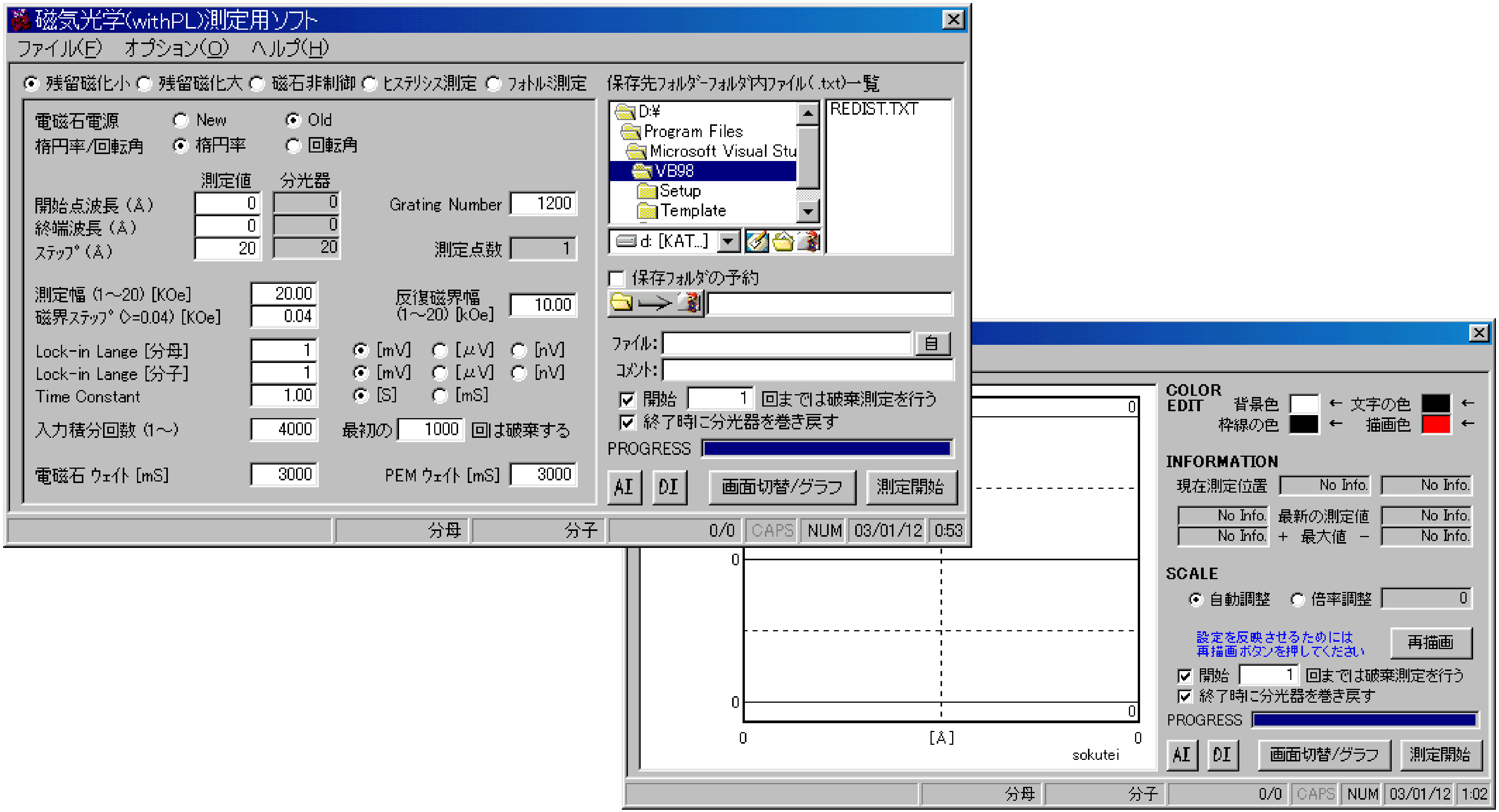
磁気光学スペクトル評価装置(1)



磁気光学スペクトル評価装置(2)

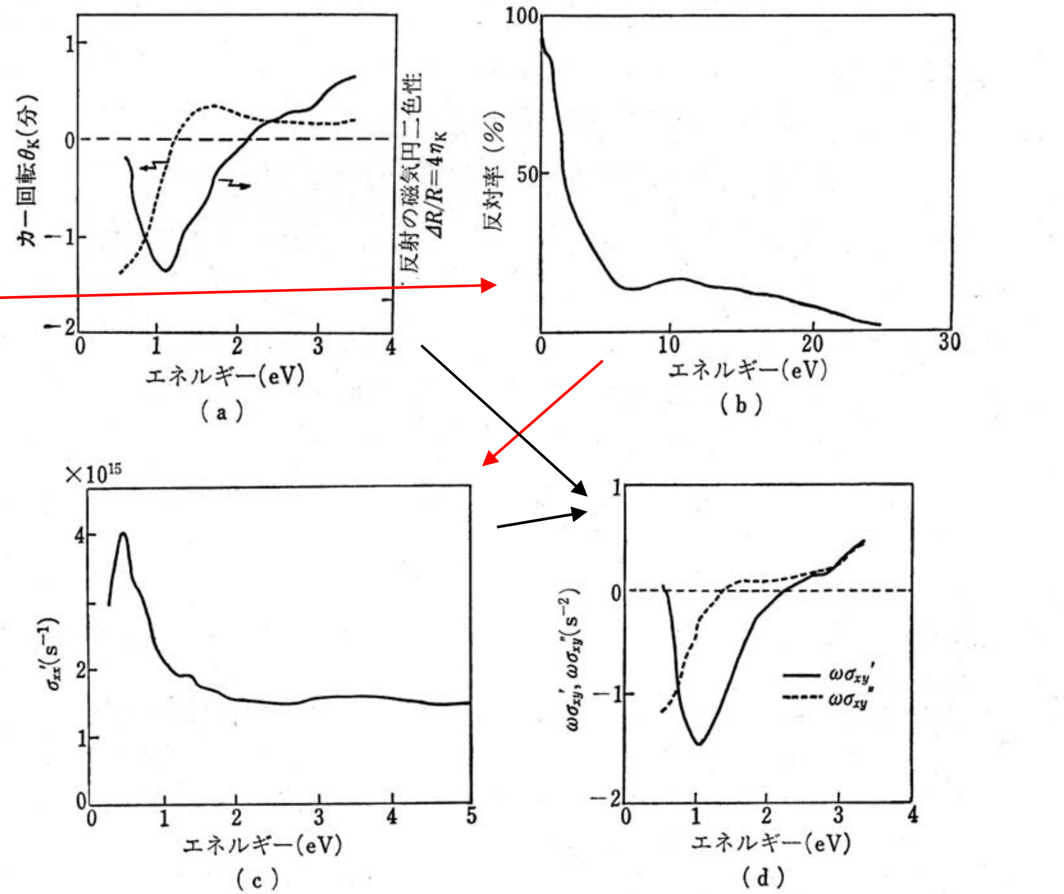


磁気光学スペクトル評価装置(3)



実験から誘電率または導電率テンソルを求める

- ナマの磁気光学スペクトル
- 反射スペクトル
  - n,κを求める
- 両者を用いてσ、あるいはεの対角・非対角成分を求める。



磁気光学スペクトルの解析手順（Fe_7Se_8を例として）
(a) カー効果のスペクトル（実線はカー回転，破線はカー楕円率）
(b) 反射スペクトル（0.2–25eV）
(c) 反射スペクトルから計算した伝導率テンソルの対角成分の実数部
(d) 伝導率テンソルの非対角成分にωをかけた$\omega\sigma_{xy}$のスペクトル（実線は実数部，点線は虚数部）

磁気光学効果測定法のまとめ

- この講義では、磁気光学効果の測定法のいくつかをとりあげ説明しました。直交偏光子法以外はなんらかの変調法を取り入れることによって感度を高めています。
- PEMを用いた円偏光変調法は、高感度の測定法です。この方法を使うと、光学系を変えることなく旋光角と楕円率の両方を測定できる便利な方法です。
- スペクトルを測定するには、光源、分光器、偏光子、変調器、集光系、電磁石、受光器などさまざまな光学素子の分光特性を考えなくてはならないことを学びました。

課題

1. 円偏光変調法に使うPEM　(photoelastic modulator=光弾性変調器)の原理を説明してください。
2. 磁気光学のスペクトルを測定をする場合に考慮しなければならないことを箇条書きにして下さい。

6.磁気光学で電子構造をさぐる

6.1 局在電子磁性と遍歴電子磁性

6.2 各種磁性体の磁気光学効果

6.3 局在電子系の光学遷移

6.4 磁性半導体：共存系

6.5 バンド電子系の磁気光学

1.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
- 磁性半導体:局在磁気モーメントと自由電子のスピンが相互作用→バンド端の磁気光学現象
- 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
  - 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

局在か非局在か

- モットは局在電子系に何らかの外部要因が加わって非局在電子系に転移することがあり、その変化はcatastrophicに起きることを示しました。このような転移をモット転移といいます。
- V_2O_3は低温では絶縁体ですが、ある温度で何桁も導電率が上昇して金属的な電気伝導を示すようになります。構造変化が引き金になっていますが、モット転移の典型例と考えられています。
- 何らかの理由で局在していた波動関数同士が重なり合うと、クーロン力が遮蔽を受けて、非局在化しさらに電子が広がって、ついに金属的なるというのです。

ハバードモデル

- バンドモデルに電子相関を導入する手法がハバードモデルです。図は、横軸をΔ/Uにとったとき、電子のエネルギー準位がΔ/Uに対しどのように変わるかを示した図です。
- ここにΔはバンド幅で電子の移動のしやすさの尺度です。T_0は満ちたバンドの平均エネルギーです。
- バンド幅が電子相関エネルギーに比べ十分小さなとき、すなわちΔ/U<<$2/3^{1/2}$のときは禁制帯が現れ、系は絶縁体となります。

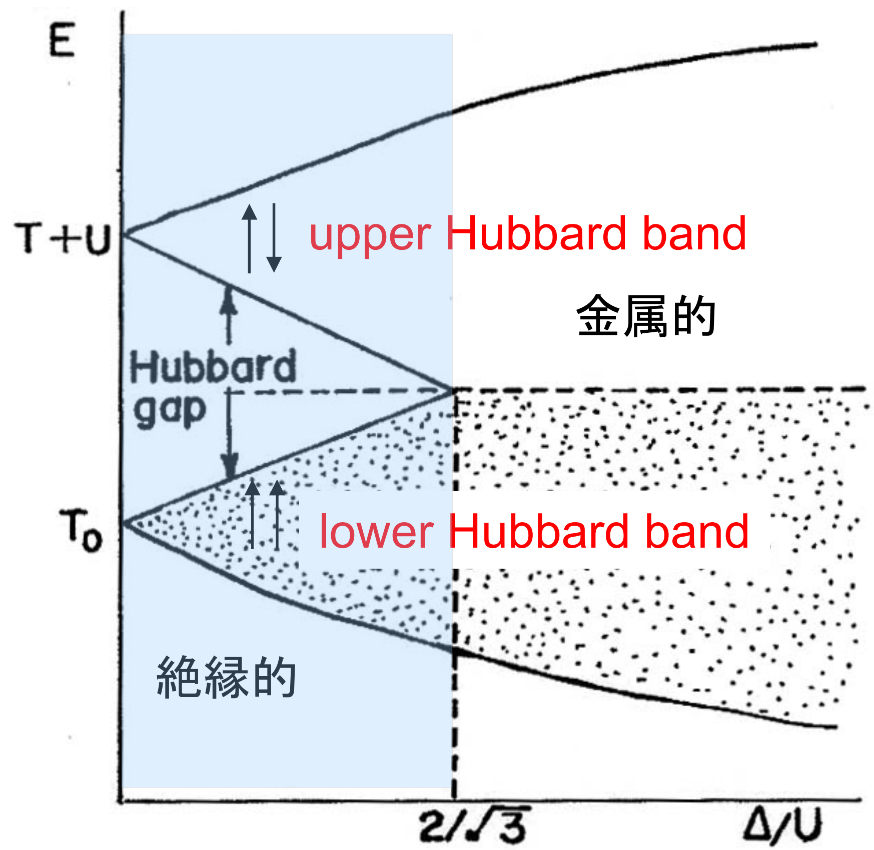
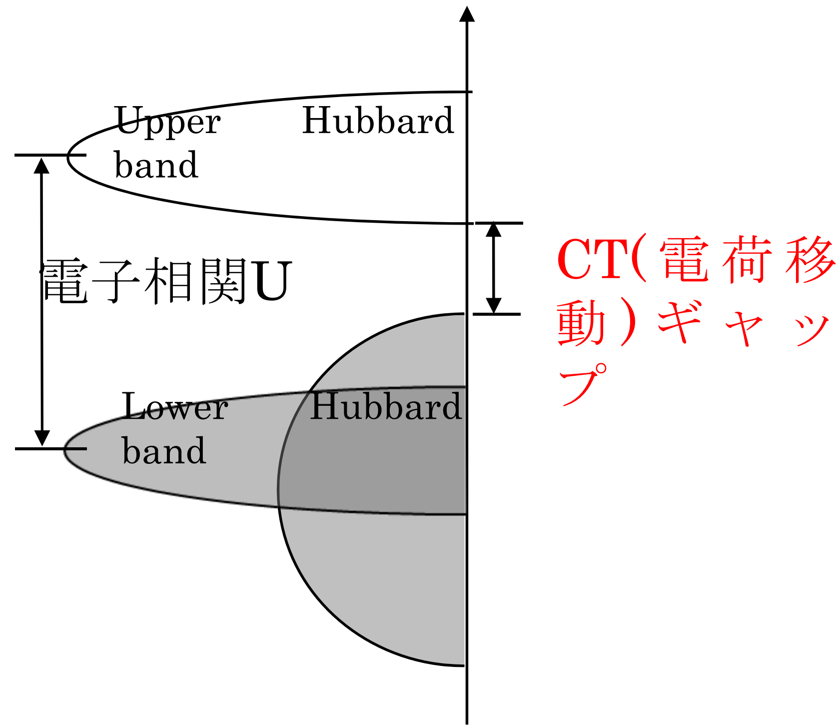


Fig. 3　電子相関を考慮したエネルギーバンド図

電荷移動型絶縁体

- MnOは電荷移動型絶縁体と考えられている。Mn^{2+}においては3d電子5個がスピンを揃えてlower Hubbard bandの5個の軌道を占有している。ここに1個電子を付け加えようとすると、逆向きのスピンを付け加えなければならないので、upper Hubbard bandに入り、電子相関Uだけエネルギーを損する。
- 実際には、酸化物イオンのp軌道からなる価電子帯が満ちたバンドの頂にくるので、ギャップはこの状態と3d電子系のupper Hubbard bandの間に開いている。これを電荷移動型ギャップという。



電荷移動型絶縁体のエネルギーバンド構造

2.各種磁性体の磁気光学効果

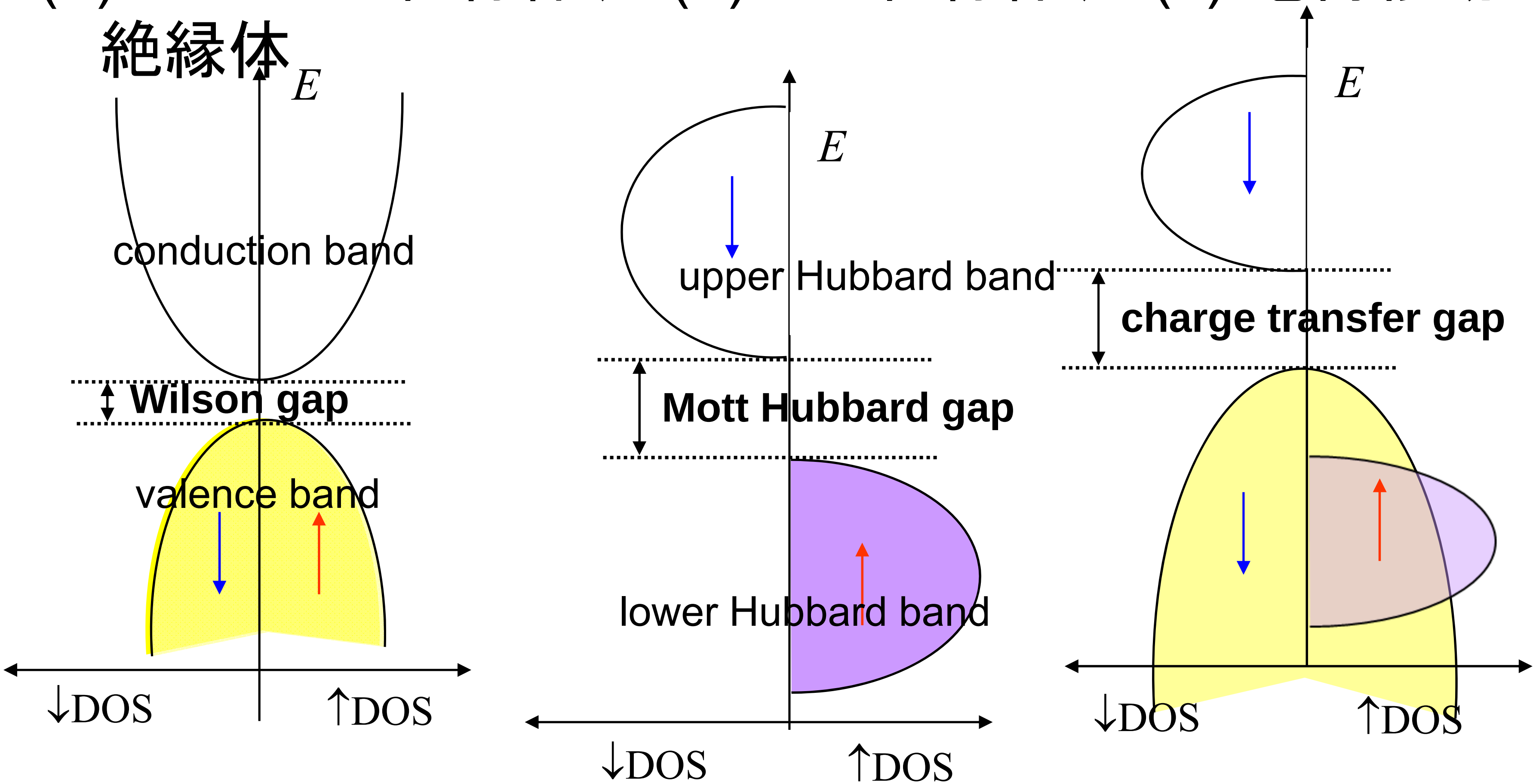
- 局在電子系
  - 酸化物磁性体：磁性ガーネット
- 局在・遍歴共存系
  - 磁性半導体：$CdCr_2Se_4$, CdMnTeなど
- 遍歴電子系
  - 金属磁性体：Fe, Co, Ni
  - 金属間化合物・合金：PtMnSb, MnBi, Cr_3Te_4, Fe_7Se_8など

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
  - $d_{\uparrow}$bandと$d_{\downarrow}$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
  - $d_{\uparrow}$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



3.局在電子系の光学遷移

- 配位子場遷移(結晶場遷移)
  - d^n多重項間の遷移；parity forbidden
  - 実際にはd軌道と配位子のp軌道が混成t2軌道とe軌道に分裂
  - 弱い遷移なので普通は磁気光学効果への寄与小
- 電荷移動遷移
  - P軌道からd軌道への遷移;allowed

MX_6クラスターの電子準位図

- 図6.1にはアニオンXの作る八面体の中心に遷移元素MがおかれたMX6クラスタを示します.
- このクラスタにおける電子準位を摸式的に描いたものが次のスライドの図6.2です.

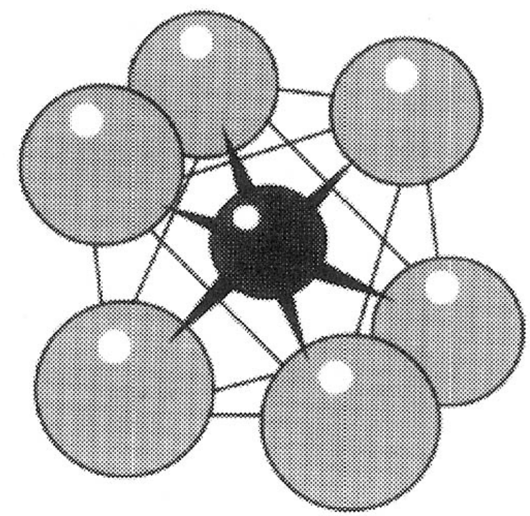


図 6.1 アニオン X のつくる八面体の中心に遷移元素 M が置かれた MX_6 クラスター

8面体配位における電子準位図

- 図の左側は遷移元素イオンの電子準位で，立方対称の結晶場を受けたd電子軌道は軸方向に伸びたdγ軌道の準位と2つの軸で作られる平面内に伸びたdε軌道の準位とに分裂します．
- 一方，図の右端は配位子Xの電子軌道準位で，p軌道についてはMとXとを結ぶ直線の方向に伸びたpσ軌道と，それに垂直な方向に伸びたpπ軌道とにエネルギーの分裂が起きます．
- 中心に描かれているのが分子軌道を作ったときのエネルギー準位です．

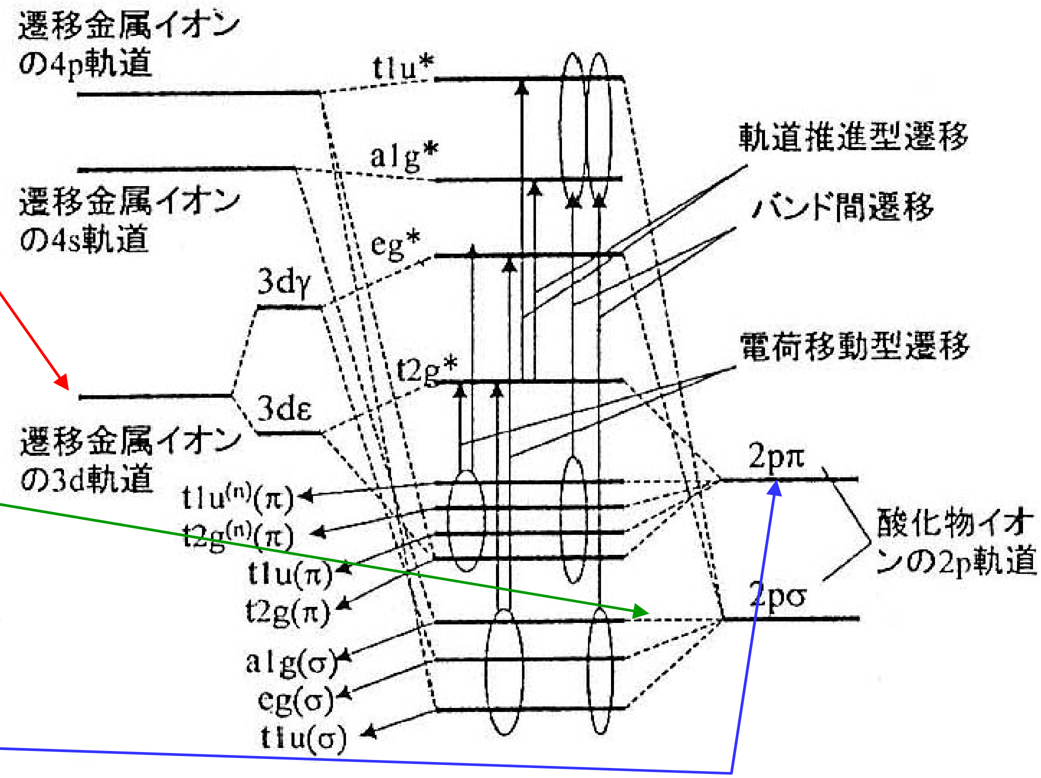
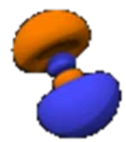
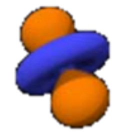
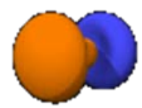


図 6.2　図6.1のクラスターにおける電子準位図[1]

原子軌道の空間分布

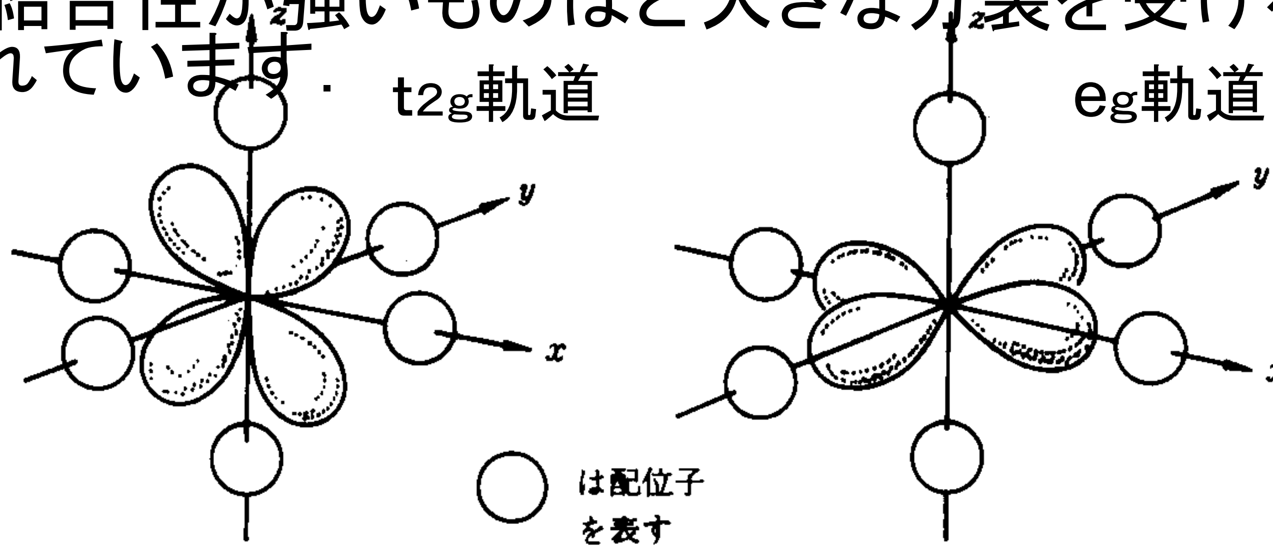
	n=1	n=2		n=3			
	l=0	l=0	l=1	l=0	l=1	l=2	
m=0							3dγ軌道
m=1							3dε軌道
m=2							
	1s	2s	2p	3s	3p	3d	

http://www.orbitals.com/orb/

結晶中のt_{2g}(dγ-π)軌道とe_g(dε-σ)軌道

- t_{2g}とt_{2g}*軌道は遷移元素Mのdε軌道と配位子Xのpπ軌道が混成したものであり，e_gとe_g*軌道はMのdγ軌道とXのpσ軌道とが混成したものであります．
- t_{2g}*軌道とe_g*軌道との分裂を配位子場分裂と呼び，共有結合性が強いものほど大きな分裂を受けることが知られています．

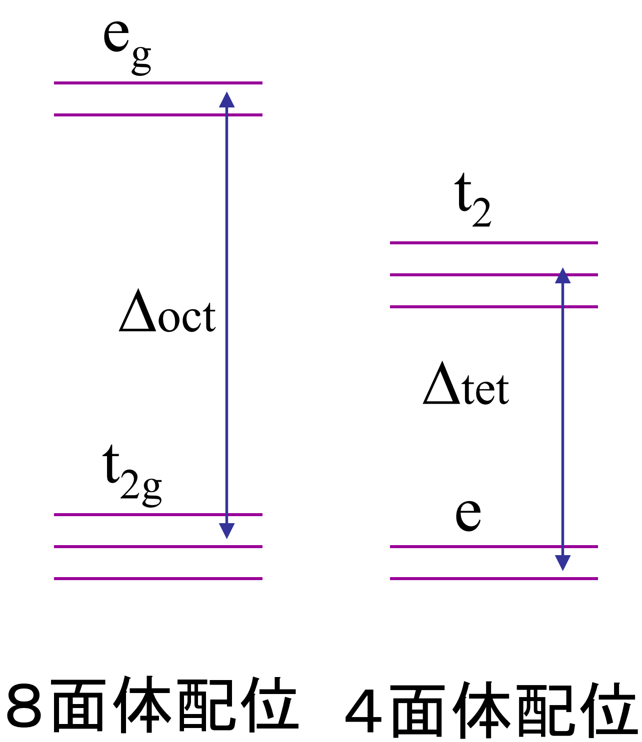
t_{2g}軌道　　　　e_g軌道



（a）　t_{2g} 軌道
xy，yz，zx の三つの波動関数のうち zx について示してある

（b）　e_g 軌道
x^2-y^2，$2z^2-(x^2+y^2)$ の二つの波動関数のうち x^2-y^2 について示してある

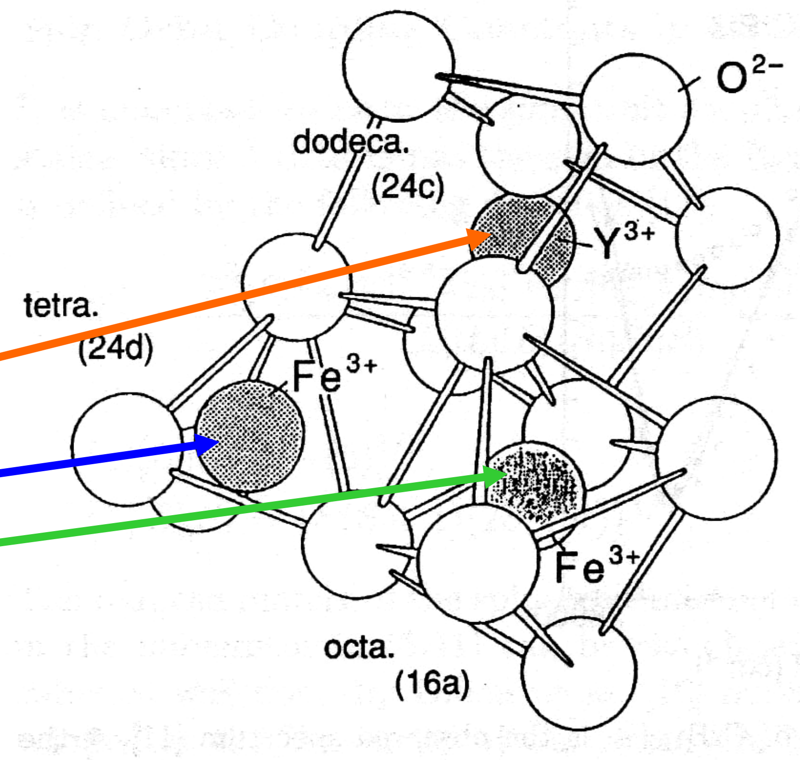
８面体配位と4面体配位の比較



- ８面体配位：イオン結合性強い
  - 反転対称性をもつ
  - t_{2g}軌道はe_g軌道より低エネルギー
- ４面体配位：共有結合性強い
  - 反転対称性なし
  - e軌道はt_2軌道より低エネルギー
- $\Delta tet=(4/9)\Delta oct$

磁性ガーネット

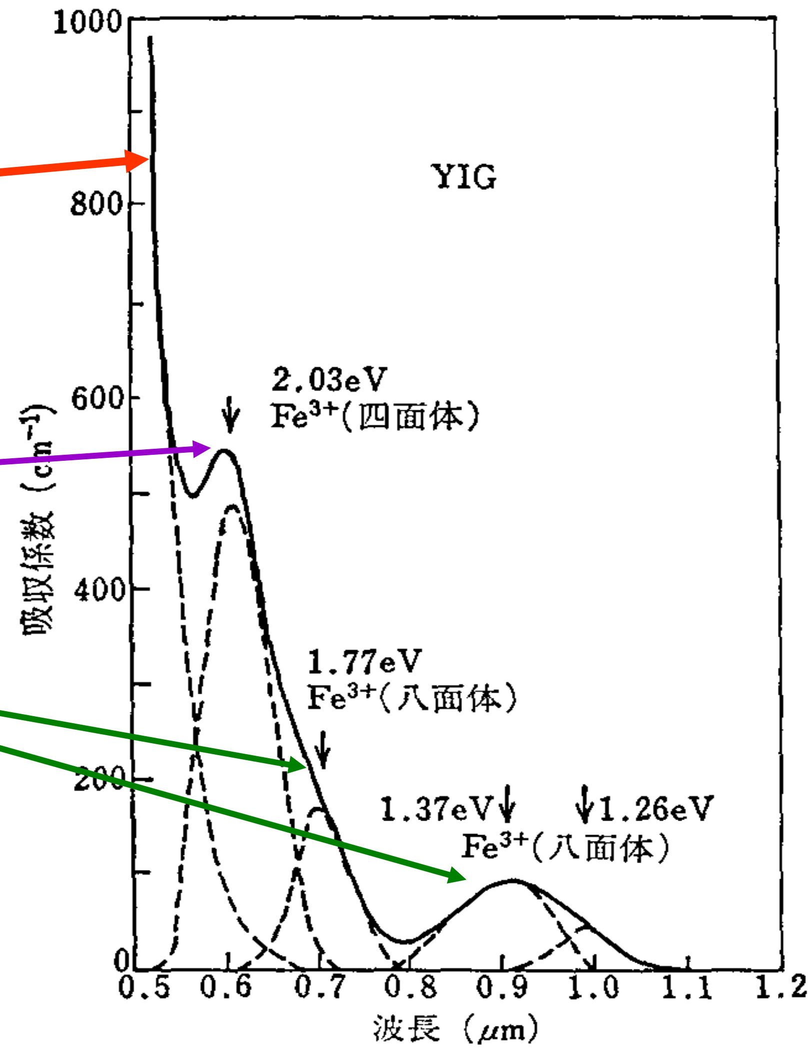
- 磁性ガーネット：
  - YIG($Y_3Fe_5O_{12}$)をベースとする鉄酸化物；Y→希土類、Biに置換して物性制御
- 3つのカチオンサイト：
  - 希土類　12面体位置
  - 鉄Fe^{3+}：4面体位置・8面体位置、反強磁性結合
  - フェリ磁性体



ガーネットの結晶構造

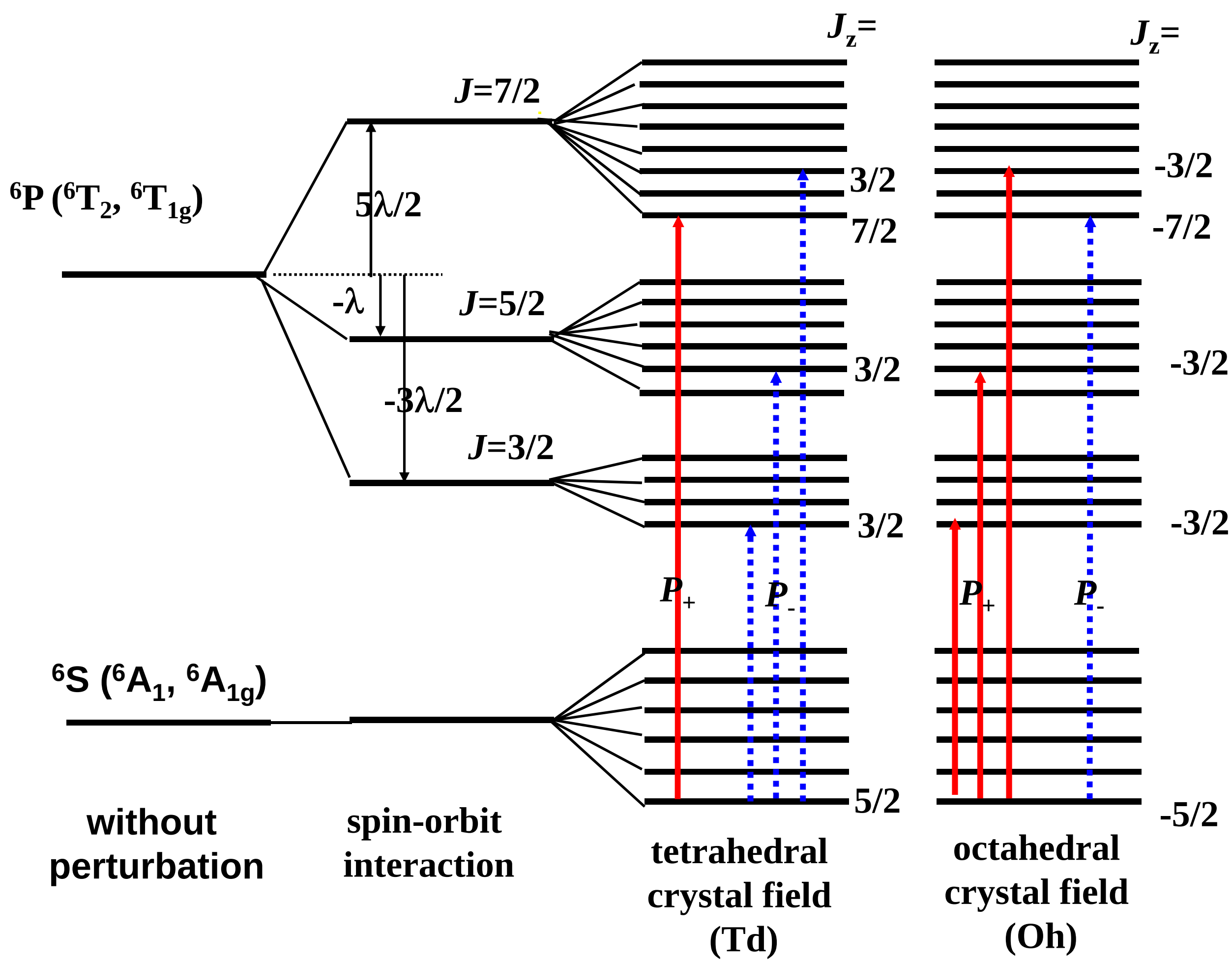
YIGの光吸収スペクトル

- 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$3d^5 2p^6$電子状態



品川による

YIGの磁気光学スペクトル

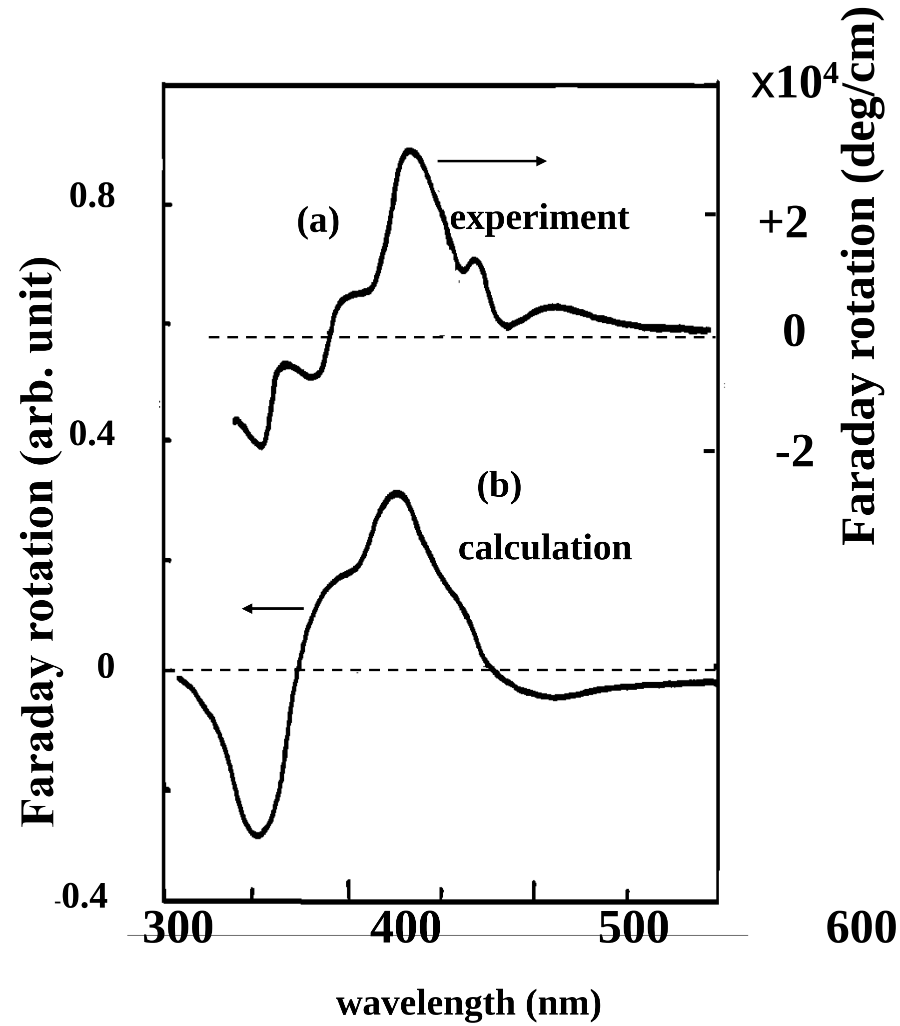
- 電荷移動型遷移を多電子系として扱い計算。

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	$t_{1u} \to t_{2g}^*$	$-\zeta_{3d}-\zeta_{2p}$
B	tet	$t_{1u} \to e^*$	$-\zeta_{2p}$
C	tet	$t_2 \to e^*$	$-\zeta_{2p}$
D	oct	$t_{2u} \to t_{2g}^*$	$-\zeta_{3d}-\zeta_{2p}$

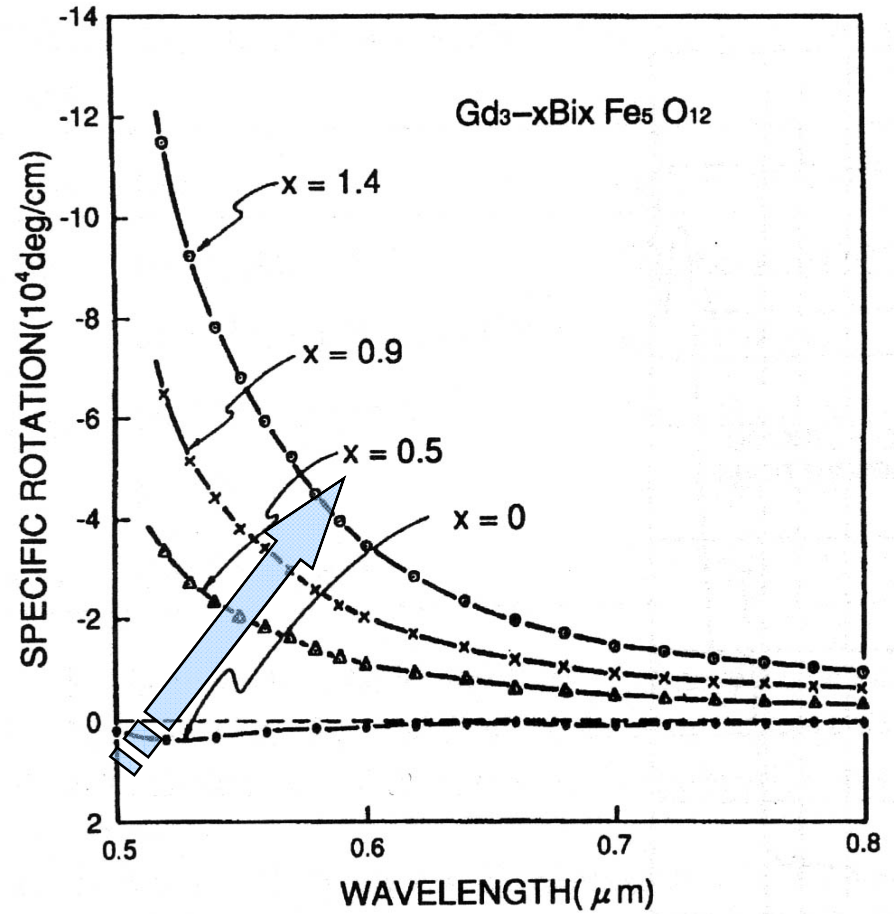
ファラデー回転スペクトルの解析に用いたパラメーター

	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

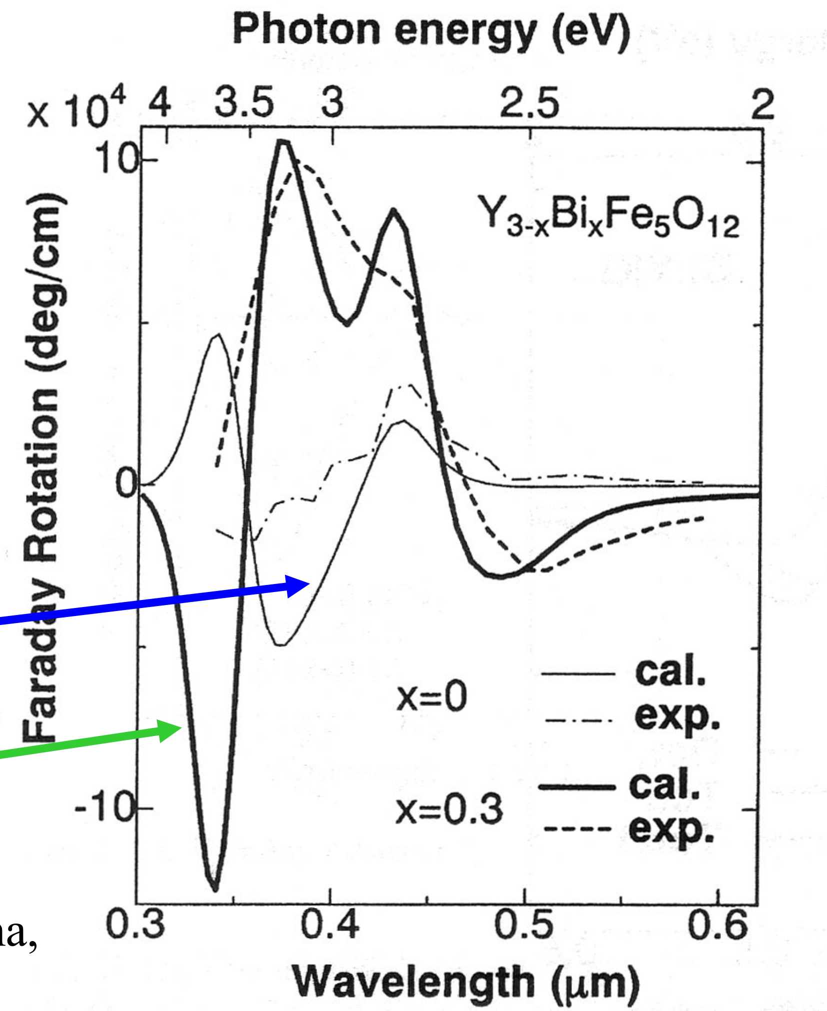


Bi置換YIGの磁気光学スペクトル
実験結果と計算結果

Table 5.6. Parameters used for calculation of Faraday rotation spectrum

transition	$\omega_0\,\mathrm{cm}^{-1}$ (eV)	$\gamma\,\mathrm{cm}^{-1}$	$f \times 10^3$	site
$t_1(\pi) \rightarrow e^*$	20 170 (2.50)	1800	0.25	tet
$t_2(\pi) \rightarrow e^*$	21 620 (2.68)	1800	0.40	tet
$t_{2u}(\pi) \rightarrow t_{2g}^*$	23 110 (2.86)	1800	1.8	oct
$t_{1u}(\pi) \rightarrow t_{2g}^*$	25 600 (3.17)	2700	3.1	oct
$t_1(\pi) \rightarrow t_2^*$	27 400 (3.40)	2500	5.5	tet
$t_2(\pi) \rightarrow t_2^*$	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 $Bi_{0.3}Y_{2.7}IG$



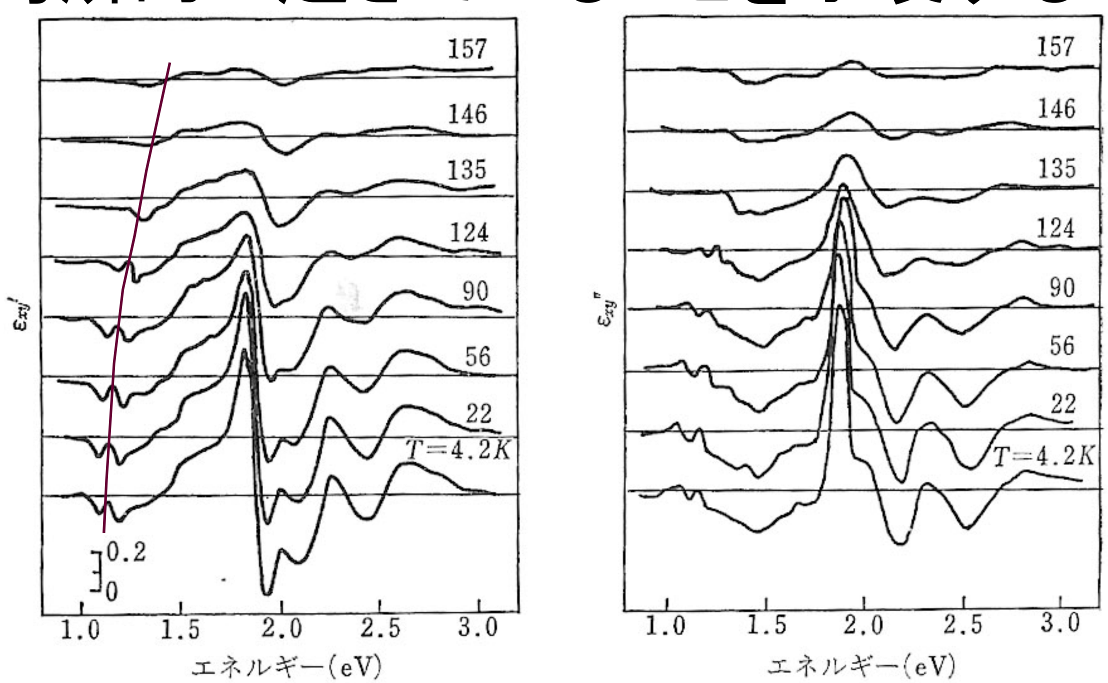
K.Shinagawa:Magneto-Optics, eds. Sugano, Kojima, Springer, 1999, Chap.5, 137

4.磁性半導体:共存系

- 磁性半導体では、局在スピン系と伝導電子スピン系が共存していて、局在スピンによって伝導電子がスピン偏極を受け、それが他の局在スピンをそろえるという磁気ポーラロンモデルで説明されています。
- この結果、半導体のバンドギャップはスピン偏極により分裂し、磁気光学効果をもたらします。
- ここでは、第1世代の磁性半導体である$CdCr_2Se_4$のバンドギャップの温度変化と磁気光学スペクトルを示すとともに、第2世代の磁性半導体CdMnTeのバンド端における大きな磁気光学効果を紹介しておきます。

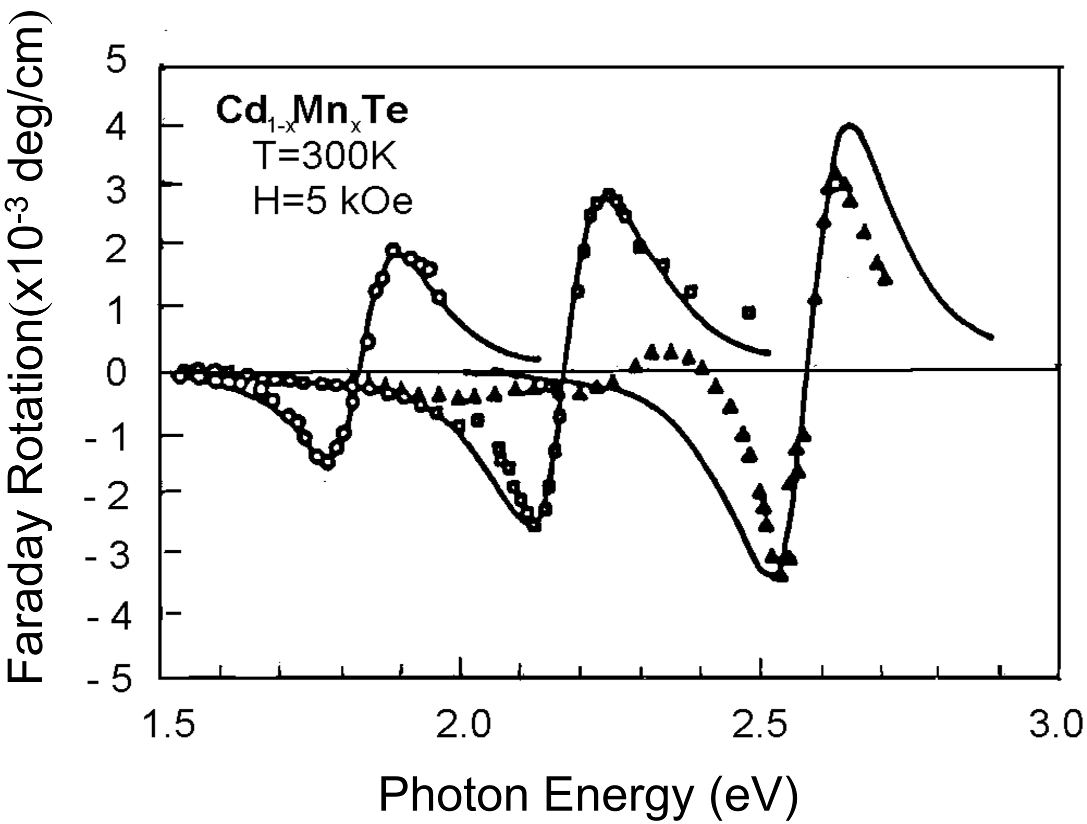
磁性半導体$CdCr_2Se_4$の磁気光学スペクトル

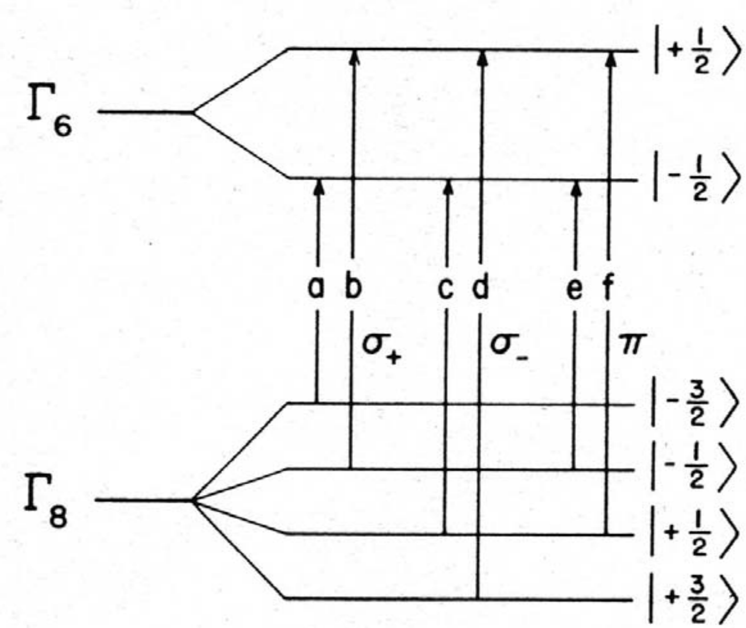
- p型$CdCr_2Se_4$の磁気光学スペクトルの温度変化である．この図には，誘電率テンソルの非対角成分のスペクトルを示してある．スペクトルは大変複雑で多くの微細構造を示している．各構造のピークの半値幅は狭く，遷移が局所的に起きていることを示唆する



希薄磁性半導体CdMnTe

II-VI族希薄磁性半導体：Eg(バンドギャップ)がMn濃度とともに高エネルギー側にシフト
磁気ポーラロン効果(伝導電子スピンと局在磁気モーメントがsd相互作用→巨大g値：
バンドギャップにおける磁気光学効果



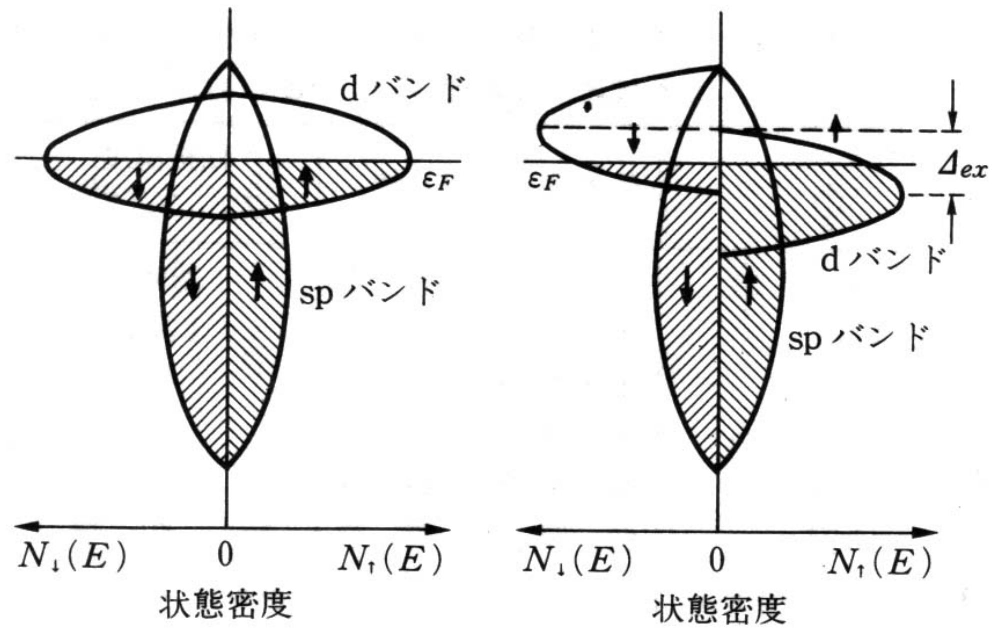


5.バンド電子系の磁気光学

- 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．

強磁性金属のバンド磁性

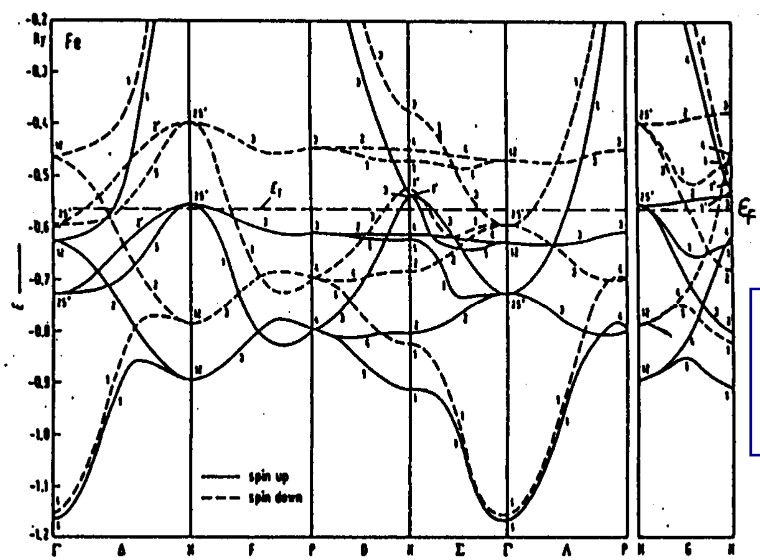
- 多数(↑)スピンのバンドと少数(↓)スピンのバンドが電子間の直接交換相互作用のために分裂し、熱平衡においてはフェルミエネルギーをそろえるため↓スピンバンドから↑スピンバンドへと電子が移動し、両スピンバンドの占有数に差が生じて強磁性が生じる。
- 磁気モーメントMは、M=(n↑- n↓)μBで表される。このため原子あたりの磁気モーメントは非整数となる。



（a） $T>T_c$
常磁性状態

（b） $T<T_c$
強磁性状態 Δ_{ex}…交換分裂

磁性体のスピン偏極バンド構造



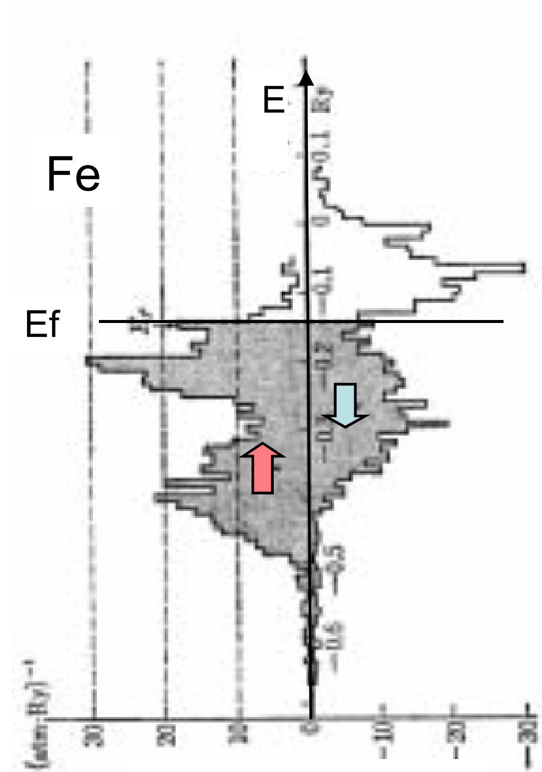
(b) Ｆｅのバンドダイヤグラム〔2〕

↑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



スピン状態密度

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

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

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

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

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，

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

- 非対角成分の虚数部は，

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

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

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

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

Fe, Co, Niのσ_{xx}とσ_{xy}

- 図6.36(a)には，Fe，CoおよびNiの伝導率の対角成分の実数部σ'_{xx} (吸収スペクトルに相当) が，(b)には非対角成分の虚数部σ''_{xy}磁気円二色性吸収に相当) がプロットしてあります．
- (b)はErskineのまとめたσ''_{xy}のデータです．非対角成分の1～2eVのスペクトルはFe，CoとNiの3つでたいそう似通っていますが，1eV以下と2.5eV以上で非常に異なっています．

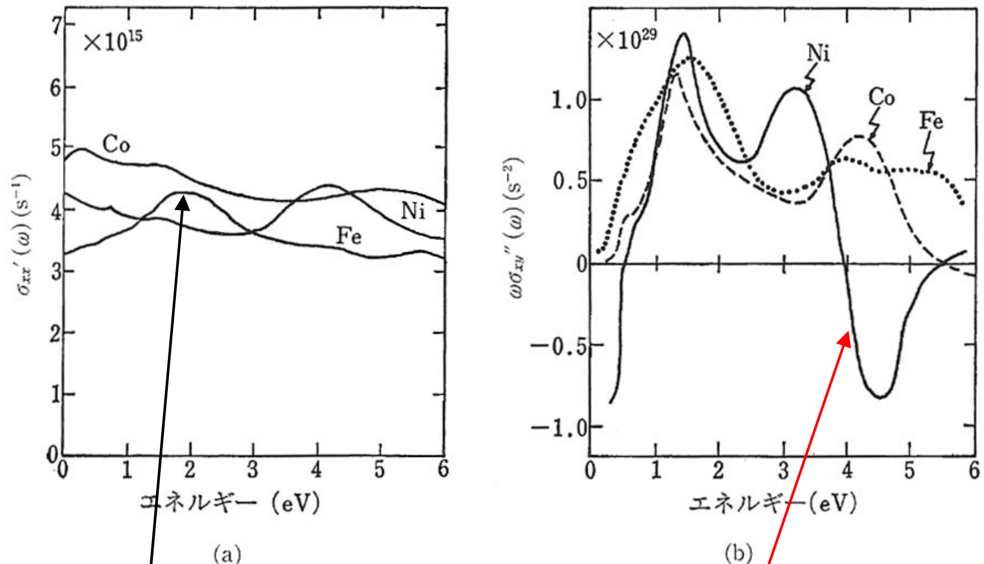


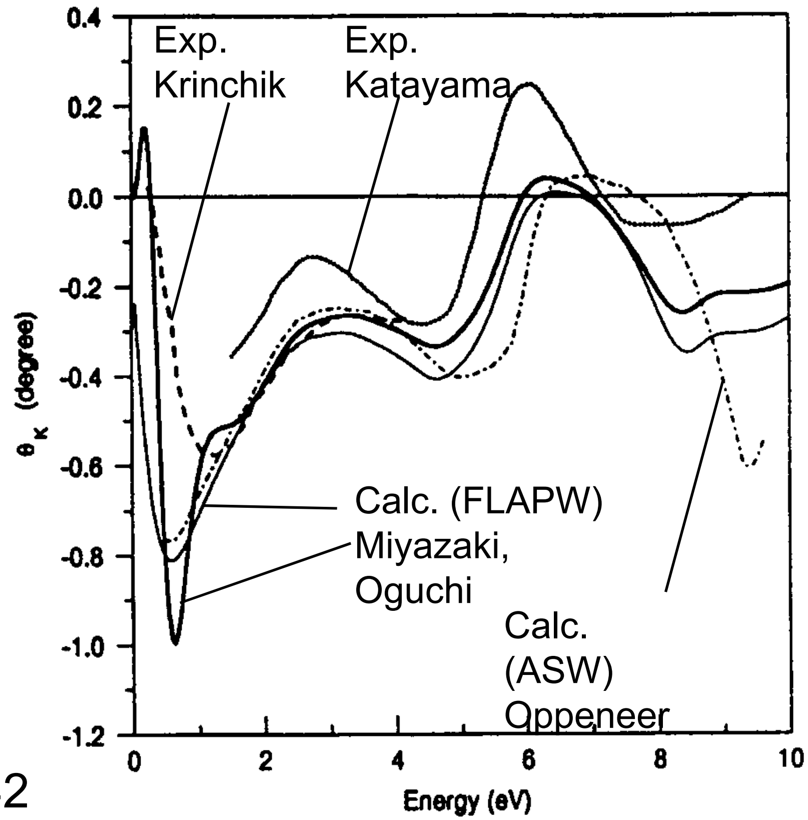
図 6.36　Fe, Co, Ni の伝導率テンソル[61] (Ni の非対角成分については 5 倍に拡大して示してあることに注意)

Feの2.5eV付近のσ‘*xx*のピークは交換分裂したdバンド間の遷移によるものです．

Niの磁気光学効果は小さいのでこの図では5倍にして示してあります

Feのカー回転スペクトルの理論と実験

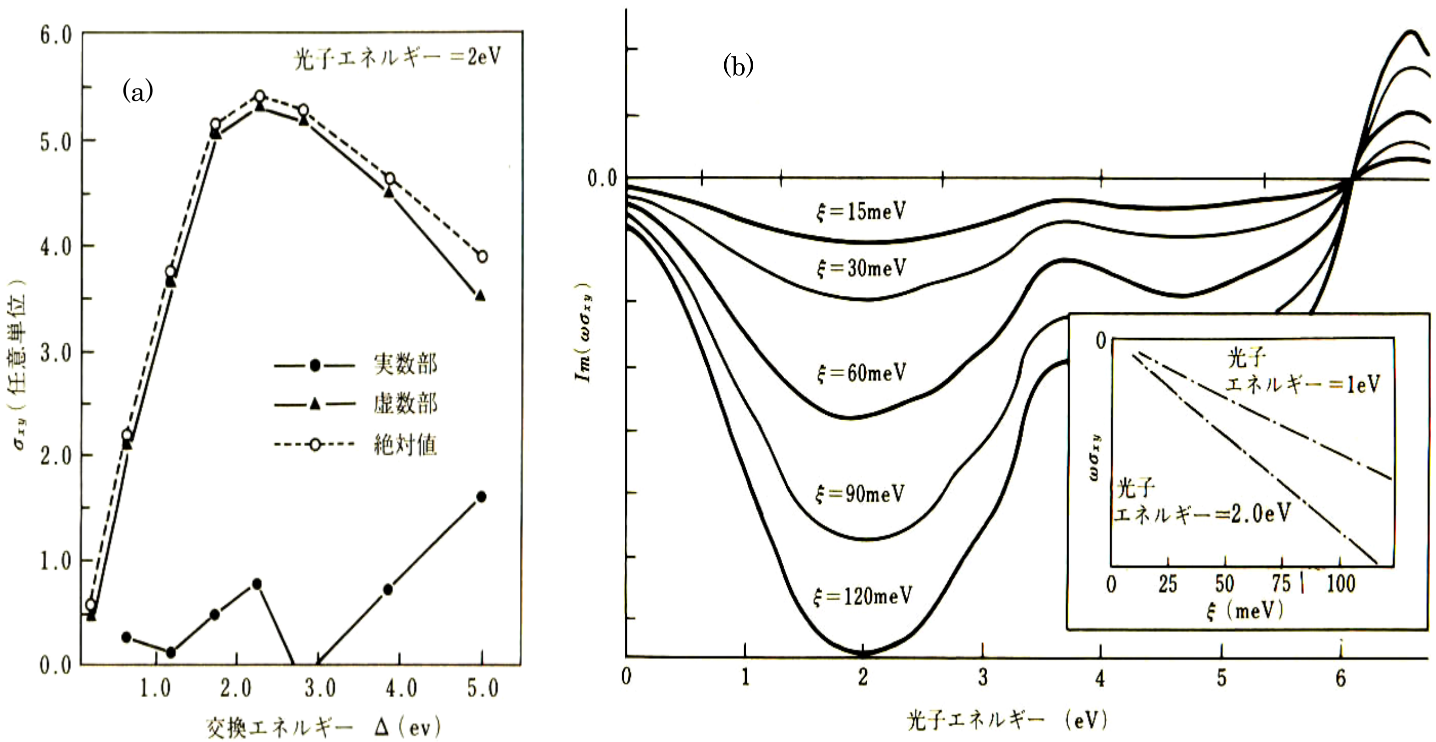
- 第1原理のバンド計算にもとづいて磁気光学効果の大きさを見積もることが可能となってきました。
- Oppeneer, Miyazakiらの計算結果は、Krinchik, Katayamaらの実験データをよく再現しています。



P.M.Oppeneer et al.:Phys.Rev.B45('92)100942
H.Miyazaki et al.:J.Magn.Magn.Mater.192('99)325
G.S.Krinchik et al.:Sov.Phys.JETP 26('68)1080
T.Katayama et al.:J.Magn.Magn.Mater.177-181('98)1251

スピン軌道相互作用の重要性

- MisemerはFeにおいて交換分裂の大きさとスピン軌道相互作用の大きさをパラメータとしてバンド計算を行いました。
- 磁気光学効果はスピン軌道相互作用には比例するが，交換分裂に対しては単純な比例関係はないということを明らかにしました。　D.K. Misemer: J. Magn. Magn. Mater. **72** (1988) 267.



MnBiの磁気光学スペクトルとバンド計算

- Oppeneerらは、第1原理計算により磁気光学スペクトルを計算し、図に実線で示すスペクトルを得ました。
- Mnの4p軌道とBiの6p軌道との間，および，Mnの3d軌道とBiの6d軌道の間には強い混成が見られ、2eV付近の磁気光学効果を伴う遷移は主としてBiに由来する占有された6pバンドと占有されていない6dバンドの間の遷移の寄与であると結論しました.

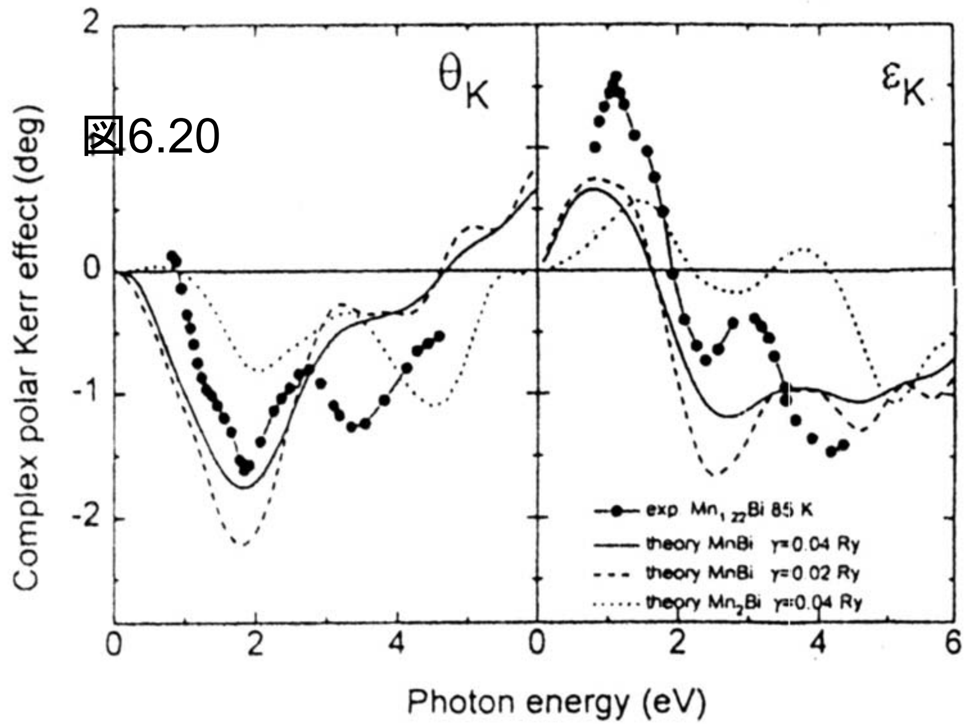


図6.20

- この計算結果をDiらの実験データと比較し、1.85 eVのピークはよく再現されるが、3.5eVの構造については実験との一致が悪い. 3.5eVのピークはC1b構造の仮想的なMn2Bi相の存在によると考えている。一方、Köhlerらは3eV付近のピークは酸化物の形成によるとしている。

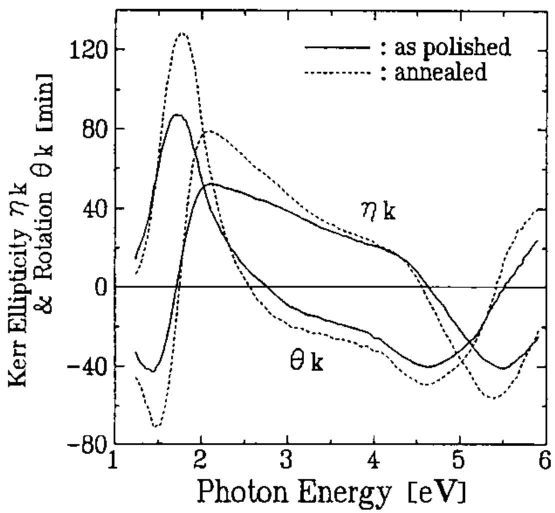
P.M.Oppeneer et al.:J. Appl. Phys. 80('96)1099.

PtMnSbの磁気光学スペクトル

Buschowという人は、多数の磁性合金の磁気光学スペクトルを探索して、PtMnSbが室温で最も大きなカー回転を示すことを見いだしました。

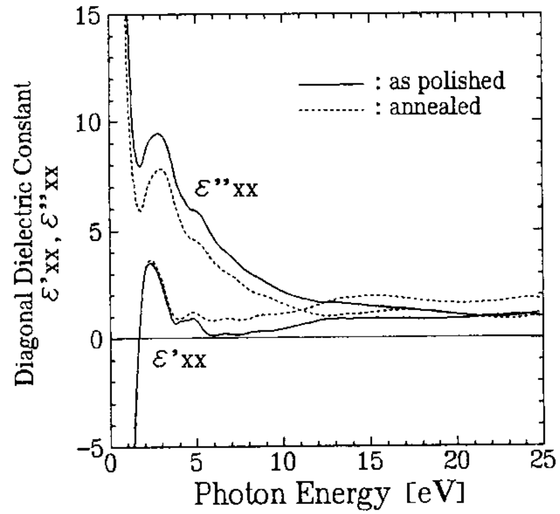
$$\Theta_K = \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}\left(1-\varepsilon_{xx}\right)}$$

カー回転と楕円率



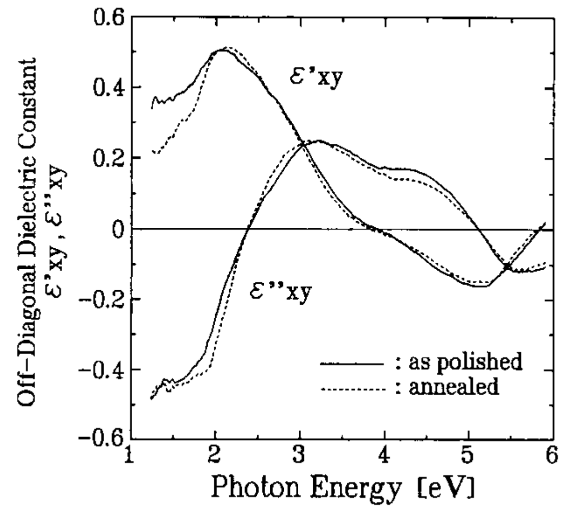
(a)

誘電率対角成分



(b)

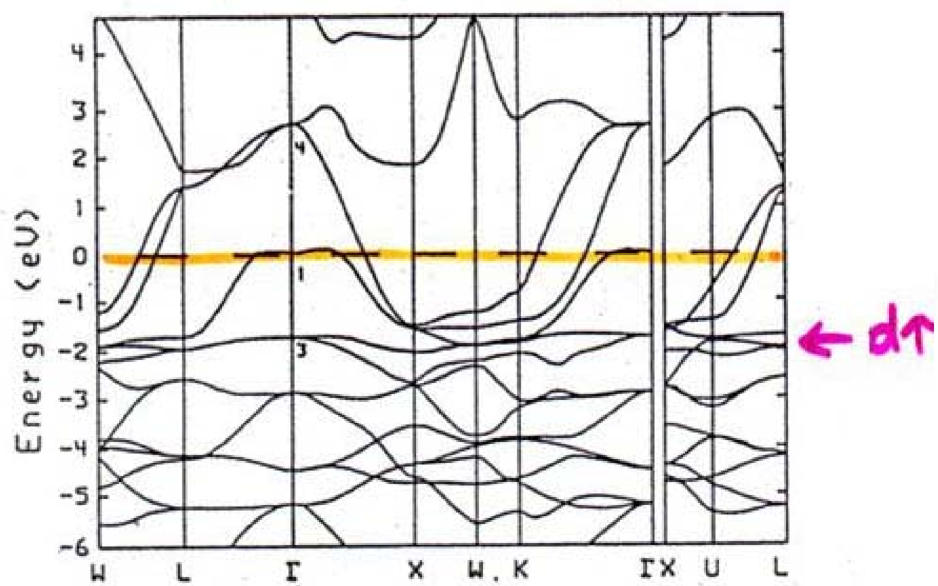
誘電率非対角成分



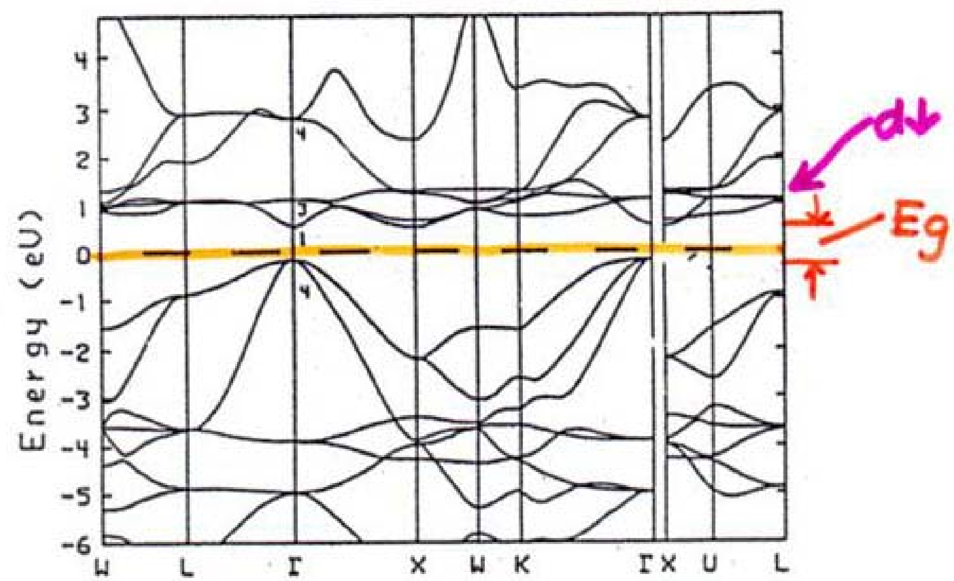
(c)

PtMnSbのバンド構造

- 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ますが、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ました

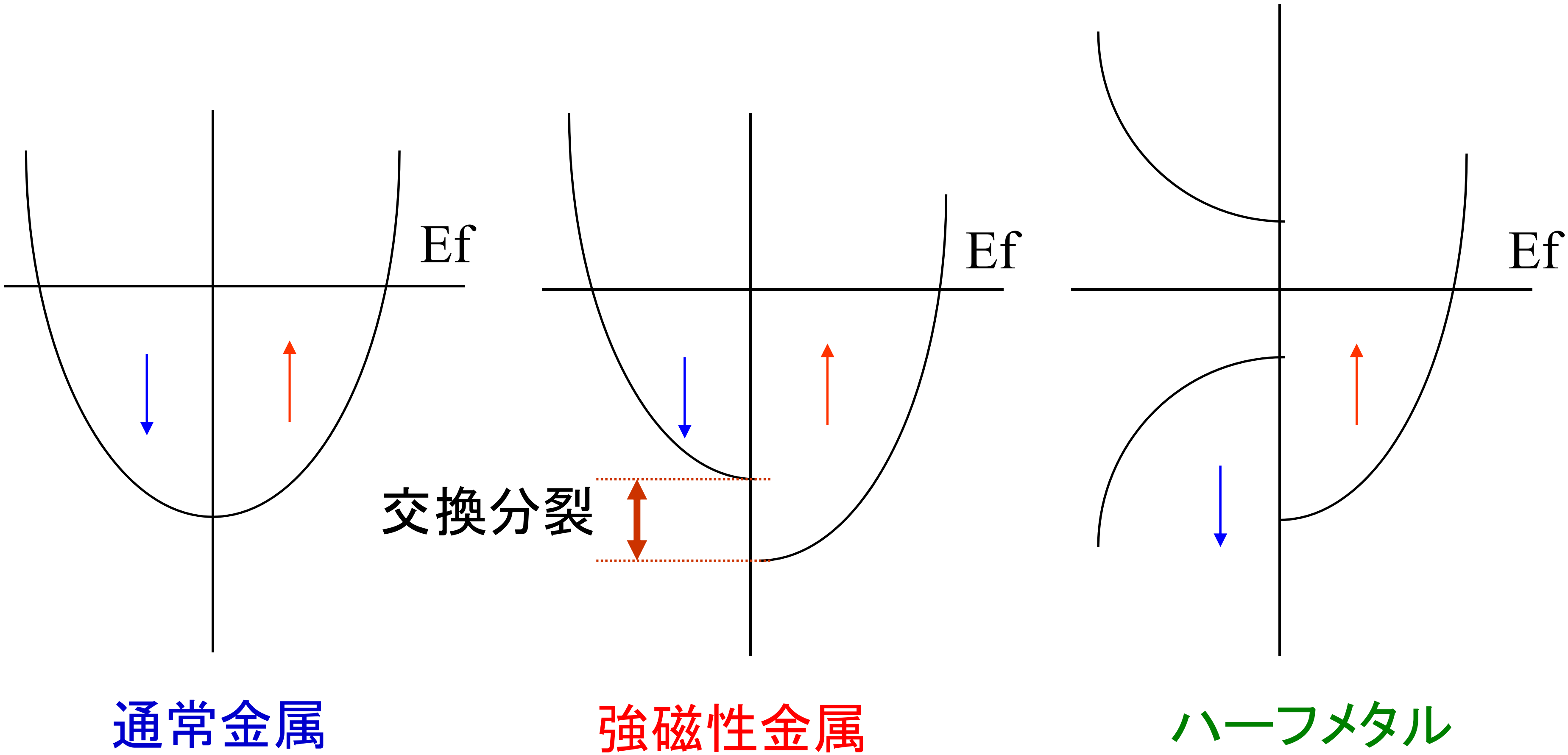


多数スピン(up spin)バンド



少数スピン(down spin)バンド

バンドと磁性

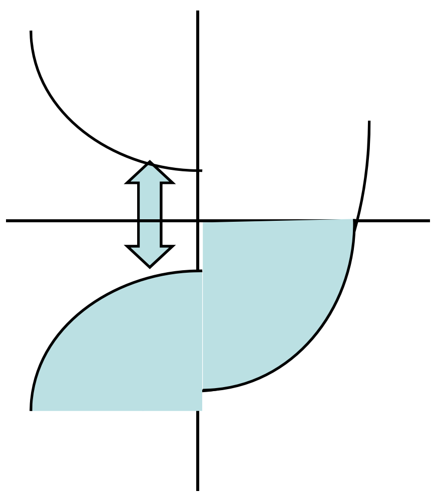


ハーフメタルと半金属の違い

- 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。

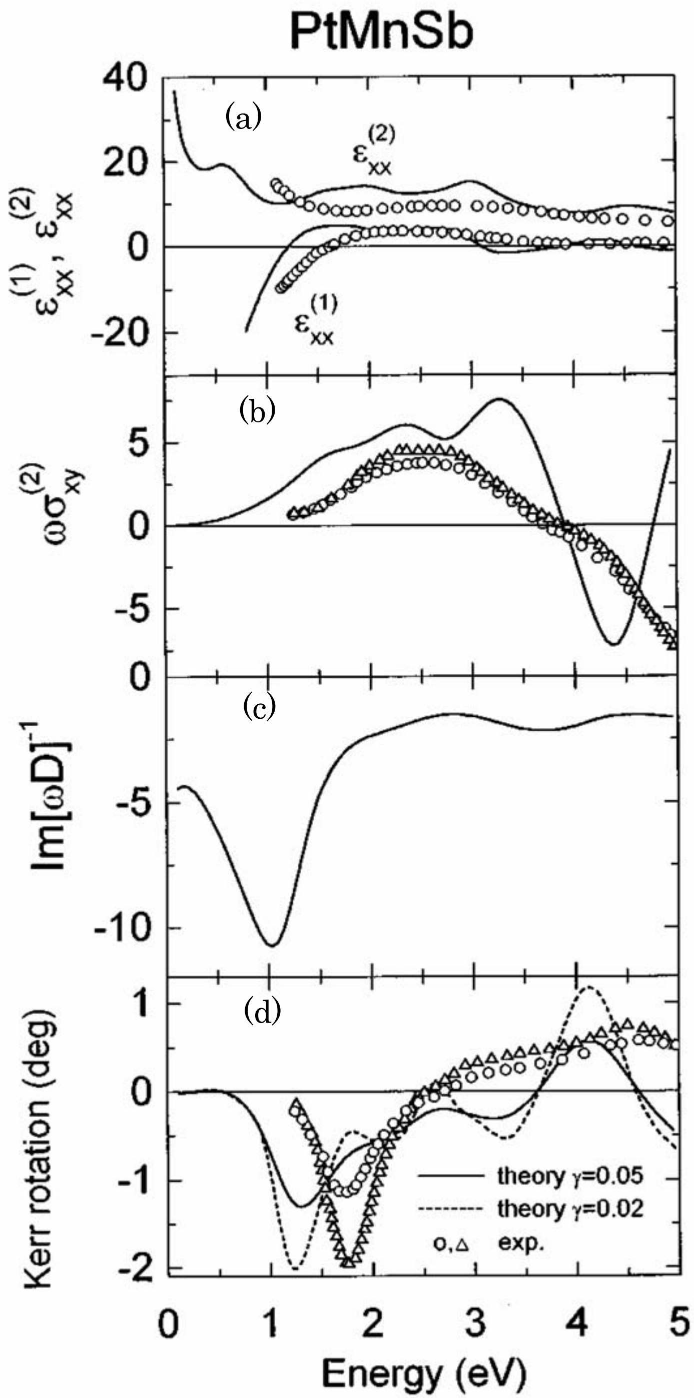
第1原理計算と実験

- 第1原理計算値(V.N.Antonov)と実験値(K.Sato)はよく対応し、2eV付近のσ''_{xy}の立ち上がりは小数スピンバンドにおける価電子帯から伝導帯への遷移によること、2eV付近に見られるカー回転のピークは、誘電率の対角成分の実数部がゼロを横切ることによることなどが明らかになりました。



$$\Theta_K = \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}\left(1-\varepsilon_{xx}\right)}$$

V.N.Antonov, P.M.Oppeneer et al.:Phys.Rev. B56 ('97) 13012
K.Sato et al.:Proc.ICF6, 1992, p.1647



バンド系の磁気光学効果の模式的説明

バンド計算はあるが非対角成分の計算値が得られない場合の推定方法

4.　光と磁気の電子論

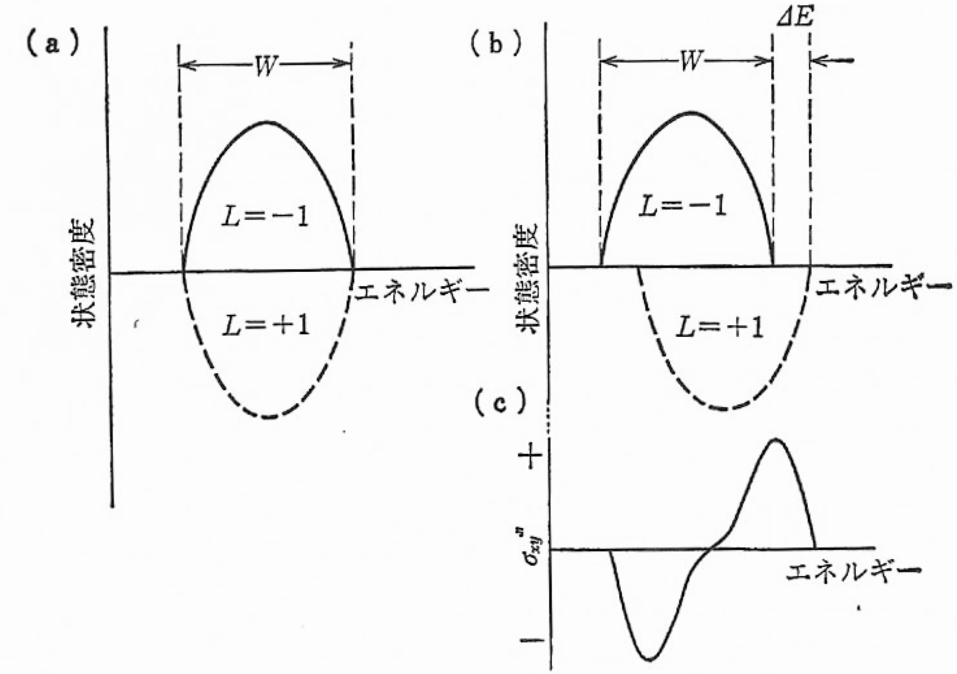


図 4.10　金属磁性体のバンド構造と磁気光学スペクトル
(a)　磁化のないときのバンド構造，(b)　磁化のあるときのバンド構造，
(c)　磁気光学スペクトル

- 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*ΔE*/*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.

Cr_3Te_4の磁気光学スペクトル

Cr_3Te_4はキュリー温度325Kをもつ強磁性体
対角成分：実験値－反射スペクトルからKK変換で求めた
　　　　　計算値－Dijkstraのバンド計算にもとづくもの
非対角成分：実験値－円偏光変調法で測定
　　　　　　計算値－ 前述の方法で推定

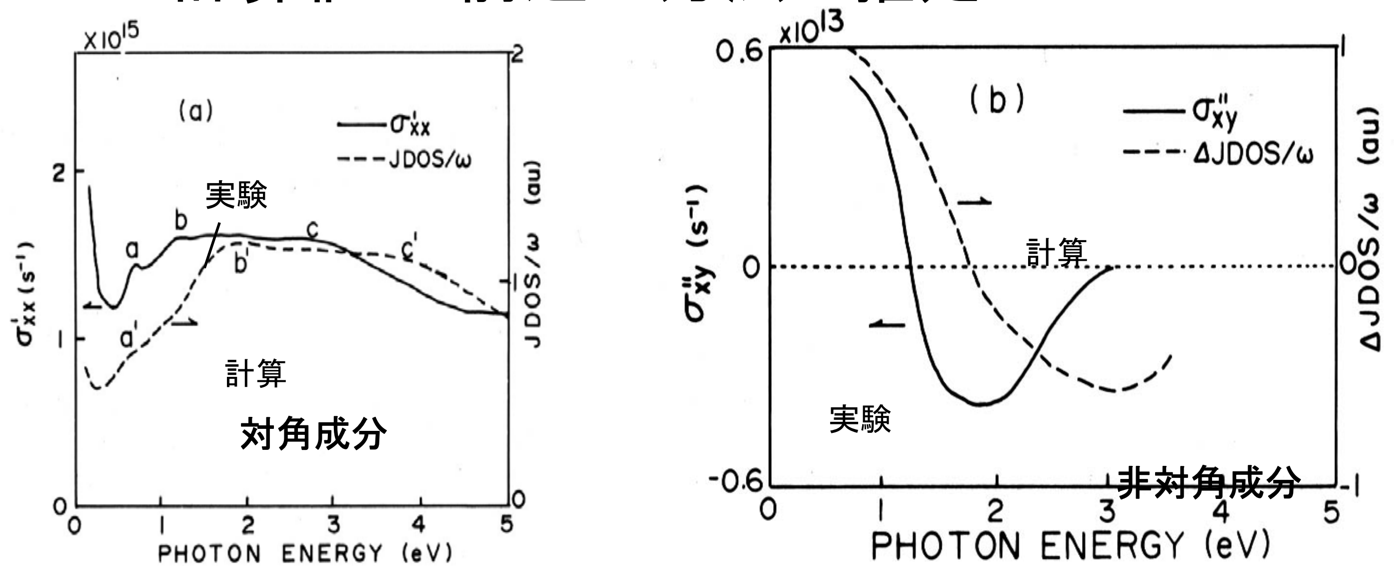


図6.17 Cr3Te4の伝導率テンソルの(a)対角成分および(b)非対角成分。実線は実験結果、点線はバンド計算結果に基づいて推定した結合状態密度23)に基づいて計算したスペクトル

K.Sato et al.:JMMM104-107('92)1947

この時間のまとめ

- 多くの物質の磁気光学スペクトルの形状や大きさは、理論的な考察から求めたものによってよく説明できることがわかりました。
- 磁気光学効果にはスピン軌道相互作用が大きく寄与していることがバンド計算からも明らかにされました。

課題

- PtMnSbという金属間化合物は、ハーフメタルの電子構造をもっています。ハーフメタルとは何でしょう。半金属（セミメタル）とどう違うのか説明してください。