

# Q2 セミナーレジュメ

中田 陽介

2008年5月27日

## 1 媒質と電磁場

### 1.1 媒質の応答

媒質の分極  $P$  は電場  $E$  に対し,  $P = \epsilon_0 \chi_e E$  と書けるような媒質が電磁気学ではよく考えられる. 今回の範囲ではこれだけでは不十分なので少し拡張しておく.

すなわち, 分極  $P(t)$  が  $E(t)$  の過去の情報に引き連られることを考えて

$$P(t) = \epsilon_0 (\hat{\chi} * E)(t) \quad (1)$$

$$= \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} \hat{\chi}(t-\tau) E(\tau) d\tau \quad (2)$$

のように任意の電場に対する応答として畳み込みを用いて表せると仮定する. ただし  $\hat{\chi}(t)$  は時間の実関数である.

これを Fourier 変換することにより,

$$\tilde{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \tilde{E}(\omega) \quad (3)$$

を得る.  $\chi(\omega)$  は複素感受率である. また複素誘電率  $\epsilon(\omega) = 1 + \chi(\omega)$  を導入しておく.

当たり前ではあるが, 後で使うので次の命題について考察しよう.

**命題 1.1.** 上記のような媒質に対し,  $E(t) = \frac{1}{\sqrt{2}} \tilde{E}_0 \exp(-i\omega_0 t) + \text{c.c.}$ <sup>\*1</sup> なる場がかかっており<sup>\*2</sup>, 分極が  $P(t) = \frac{1}{\sqrt{2}} \tilde{P}_0 \exp(-i\omega_0 t) + \text{c.c.}$  のように書けたとする. 更

<sup>\*1</sup> c.c. はその前の項の複素共役を表わすとする.

<sup>\*2</sup> ただし,  $\tilde{E}_0$  は実ベクトル  $E_0$  を用いて  $\tilde{E}_0 = E_0 \exp[i\phi]$  のように表される複素ベクトルとする.

に、 $\tilde{P}_0 = \epsilon_0 \chi \tilde{E}_0$  なる関係があるとすると ( $\chi$  は複素数),  $\chi(\omega_0) = \chi$ ,  $\chi(-\omega_0) = \chi^*$  が成立する。

証明. 実際に Fourier 変換を行なうと,

$$\tilde{P}(\omega) = \frac{2\pi}{\sqrt{2}} \tilde{P}_0 \delta(\omega - \omega_0) + \frac{2\pi}{\sqrt{2}} \tilde{P}_0^* \delta(\omega + \omega_0),$$

$$\tilde{E}(\omega) = \frac{2\pi}{\sqrt{2}} \tilde{E}_0 \delta(\omega - \omega_0) + \frac{2\pi}{\sqrt{2}} \tilde{E}_0^* \delta(\omega + \omega_0)$$

を得る. このとき式 (3) に注意して  $\omega = \pm\omega_0$  を代入することにより結果を得る.  $\square$

## 1.2 場の分類

先に考察した媒質中の電場はマイクロな電場の粗視化として実際に媒質内に生じているもので、内部場と呼ばれる。別な概念として系に加えられる場として、外場と呼ばれるものもある。これは、媒質を置く前の電場である。さらに、マイクロな意味での着目双極子に働くそれ自身が作る場を除いた電場としての局所場と呼ばれるものも考えられる。纏めると、

- 外場  $E_0$ : 外部から加えられる電場
- 内部場  $E$ : ミクロな電場の粗視化
- 局所場  $E_L$ : 着目する電気双極子に働く、自己場を除いた場 (通常平均的な値が使われる。)

となる。

一般にはこれらは一致するとは限らない。

マイクロな誘導を特徴付ける量として、着目電気双極子の電気双極モーメントを  $p$  としたときにこれが局所場と比例すると仮定して、つまり、 $p = \alpha_e E_L$  として  $\alpha_e$  を定めることができる。これはマイクロな関係式である。更に電気双極子の個数密度を  $N$  として、分極ベクトル  $P$  を  $P = N\alpha_e E_L = \epsilon_0 \chi_e^0 E_L$  と表わしておく。

## 1.3 局所場と内部平均場

分極  $P$  を持つ誘電体の局所場を求めよう。

まず着目点に半径  $a$  として分極が一定とみなせるそれなりに小さな球を考える。球面における外向き法線ベクトルとして  $\mathbf{n}$  しておく。結晶の格子間隔  $h$  から見ると十分大きくとる。

その上で着目双極子の電場を以下のように分けて考える。

$$\mathbf{E}_L = \mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_1 + \mathbf{E}_2 + \mathbf{E}_3$$

- $\mathbf{E}_0$ : 着目点での外場
- $\mathbf{E}_1$ : みかけの電荷  $-\text{div}\mathbf{P}$  が着目点作る電場 (主に表面に表われる。)
- $\mathbf{E}_2$ : 球を除いたときに\*3球面に生じているみかけの電荷  $(-\mathbf{P}\cdot\mathbf{n})$  が着目点に作る電場
- $\mathbf{E}_3$ : 球面内の着目双極子を除いた双極子が着目点に作る電場

まず次の事が成立する。

補題 1.1.  $\mathbf{P}$  を定ベクトルとし、球面上の電荷密度が  $-\mathbf{P}\cdot\mathbf{n}$  となるとき中心で生ずる電場は

$$\mathbf{E}_2 = \frac{\mathbf{P}}{3\epsilon_0}$$

となる。

証明.  $\mathbf{P}$  の方向に  $z$  軸を取り、球の中心を原点に置き、球面極座標  $(\theta, \phi)$  を取る。電荷密度は  $\sigma(\theta) = -P \cos(\theta)$  となり、 $(\theta, \theta + d\theta)$  の帯の中にある電荷は  $dQ = \sigma(\theta)(2\pi a \sin \theta) a d\theta$  となる。対称性から電場は  $z$  軸にしか成分を持たない。

$$E_z = \int_{\theta=0}^{\theta=\pi} \frac{dQ}{4\pi\epsilon_0 a^2}$$

を計算すると上記結果を得る。

□

結晶が適当な対称性を持つとき  $\mathbf{E}_3 = 0$  が成立する。特別な場合として以下を考える。

補題 1.2. 結晶が立方格子の場合  $\mathbf{E}_3 = 0$  が成立する。

\*3 状態を凍結したままで

証明.  $z$  軸方向にすべての電気双極子が向いているとすし, それを  $\mathbf{p} = (0, 0, p)$  で表すとする.  $\{(sh, th, uh) | (s, t, u) \in \mathbb{N}^3, (sh)^2 + (th)^2 + (uh)^3 \leq a^2\}$  に双極子が置かれているとして, 原点 (双極子を除く点) に生じる電場を計算する.

格子点  $m = (s, t, u)$  の双極子が原点に作る電場は  $\mathbf{r}_{(s,t,u)} = -(sh, th, uh)$  と置いて

$$\mathbf{E}_m = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left( -\frac{\mathbf{p}}{r_m^3} + 3\frac{\mathbf{r}_m(\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}_m)}{r_m^5} \right) \quad (4)$$

とかける.

ここで

$$\mathbf{E}_L = \sum_{\text{球内の } m(\neq 0)} \mathbf{E}_m$$

となる.

$$-\frac{\mathbf{p}}{r_m^3} + 3\frac{\mathbf{r}_m(\mathbf{p} \cdot \mathbf{r}_m)}{r_m^5} = \frac{ph^2}{r_m^5} (3us, 3tu, 2u^2 - s^2 - t^2)$$

となり,

$$\sum_{\text{球面上}} us = \sum_{\text{球面上}} tu = 0$$

$$\sum_{\text{球面上}} s^2 = \sum_{\text{球面上}} t^2 = \sum_{\text{球面上}} u^2$$

を用い和を球殻ごとにとることにより上記結果を得る.

□

以上の二つの補題と内部電場が  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_1$  と表わされる事を用い, 直ちに次を得る.

命題 1.2. 局所場, 内部場, 分極の間には

$$\mathbf{E}_L = \mathbf{E} + \frac{\mathbf{P}}{3\epsilon_0} \quad (5)$$

の関係が成立する.

## 1.4 Clausius-Mossotti の公式

$$P(t) = \frac{\epsilon_0}{3} (\hat{\chi}_e * \mathbf{E})(t) \quad (6)$$

$$= (\hat{\chi}_e^0 * \mathbf{E}_L)(t) \quad (7)$$

$$(8)$$

ただし、時間に依存する電気感受率  $\hat{\chi}_e(t)$ ,  $\hat{\chi}_e^0(t)$  とした。これらの Fourier 変換の間の関係を考えよう。

磁場の変化が生じそれが無視できない場合は前節の電場の生成元を4つに分けたときの仮定が使えなくなるが、低周波域では式(5)が成立すると仮定してよい。この式を Fourier 変換すると、

$$\tilde{\mathbf{E}}_L(\omega) = \tilde{\mathbf{E}}(\omega) + \frac{\tilde{\mathbf{P}}(\omega)}{3\epsilon_0}$$

を得る。ここで、 $\tilde{\mathbf{P}}(\omega) = \chi_e(\omega)\tilde{\mathbf{E}}(\omega)$ , および、 $\tilde{\mathbf{P}}(\omega) = \chi_e^0(\omega)\tilde{\mathbf{E}}_L(\omega)$  から  $\tilde{\mathbf{E}}, \tilde{\mathbf{E}}_L$  を  $\tilde{\mathbf{P}}$  で表わしたものを上の式に代入して整理することにより、Clausius-Mossotti の関係式(光領域での Lorentz-Lorenz の方程式)

$$\frac{\chi_e(\omega)}{\chi_e(\omega) + 3} = \frac{\chi_e^0(\omega)}{3} \quad (9)$$

を得る。これはミクロとマクロの間をつなぐ関係式である。

## 2 誘電率の古典モデル

物質の光学的性質は物質中の調和振動子と電磁場との相互作用で表わされる。

### 2.1 運動方程式と誘電関数

他の振動子と互いにカップルなしの調和振動子のアンサンブルを考える。簡単のため  $x$  方向にのみ変位できて  $z$  方向に間隔  $a$  でバネが並んでいる状況を考える。固有振動数  $\omega_0'$ , バネ定数  $\beta$  とすると、 $\omega_0'^2 = \beta/m$  が成立。

以下のような状況が例えば起こる。

- (1) 同一位相での振動:  $\lambda = \infty, k = 0$  ( $k$ -空間での  $\Gamma$  点)
- (2) となり合う振動子が逆位相:  $\lambda_{\min} = 2a, k_{\max} = \pi/a$   
(第1 Brillouin ゾーン)

この系の特徴は

- $\omega'_0$  が  $k$  に依存しない…水平分散関係 (フラットバンド)
- $v_g = d\omega/dk = 0$  で波束はすすまない (カップリングがないため)

である.

一般に次の関係に注目する.

- ゼロカップリング  $\leftrightarrow$  ゼロバンド  $\leftrightarrow v_g = 0$
- 有限カップリング  $\leftrightarrow$  有限バンド  $\leftrightarrow v_g \neq 0$

さて, このような系を電磁場にカップルさせよう.  $E_L = (E_0, 0, 0) \exp[i(k_z z - \omega t)]$  なる  $z$  方向への進行波を掛けたとする\*4. ここで局所場と考えているのは, 実際に双極子にかかる力を問題にしたいからである.

すべてのバネにつながれた質点が電荷  $e$  を持つとし,  $x = 0$  の位置にそれぞれ  $-e$  の固定された電荷がいるとする. (電子の電荷と思うなら  $e$  は負である) 電気双極子モーメントは  $p_x = ex$  となる. これは誘電体のモデルになり, Lorentz 振動子, Selmaier 振動子と呼ばれる.

双極子近似 ( $a \ll \lambda$ ) を行ない  $z$  依存性は消して,  $E_L = (E_0, 0, 0) \exp(-i\omega t)$  として考える.

各調和振動子の運動方程式は (複素化した上で)

$$m\ddot{x} + \gamma m\dot{x} + \beta x = eE_0 \exp(-i\omega t) \quad (10)$$

で与えられる.

この方程式は所謂, 強制振動の方程式であり, 特解を  $x_p(\omega) \exp(-i\omega t)$  として

\*4 このような局所場を実際に掛けることができるかは不明である. 我々が制御できるのは外場だけである.

$x_p(\omega)$  を求めた上で一般解を求めると、

$$x(t) = x_0 \exp\left(-i\left(\omega_0^2 - \frac{\gamma^2}{4}\right)^{\frac{1}{2}} t\right) \exp\left(-\frac{t\gamma}{2}\right) + x_p(\omega) \exp(-i\omega t) \quad (11)$$

となる。ただし、

$$x_p(\omega) = \frac{eE_0}{m} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma} \quad (12)$$

である。適切な条件が満たされると、第一項はすみやかに減衰するので無視する。

このことを用いて分極は  $p_x = ex = ex_p(\omega) \exp(-i\omega t)$  となる。  $N$  を振動子密度とする。実部のみに興味があると考え、入力としての  $E_{Lx} = \frac{E_0}{2} \exp(-i\omega t) + \text{c.c.}$  に対して出力としての  $P_x = Np_x = \frac{eNx_p(\omega)}{2} \exp(-i\omega t) + \text{c.c.}$  を得ていることになる。命題 1.1 を用いると、

$$\chi_e^0(\omega) = \frac{eNx_p(\omega)}{\varepsilon_0 E_0} \quad (13)$$

ここで電磁場と振動子のカップリング定数  $f$  を

$$f = \frac{e^2 N}{\varepsilon_0 m}$$

と導入すると、

$$\chi_e^0(\omega) = \frac{f}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma} \quad (14)$$

を得る。

さらに、

$$\begin{aligned} \chi_e^0(-\omega) &= \frac{eNx_p(\omega)^*}{\varepsilon_0 E_0} \\ &= \frac{eNx_p(-\omega)}{\varepsilon_0 E_0} \end{aligned} \quad (15)$$

も成立する。特に式 (13), (15) はこのモデルの無矛盾性を示している。

### 3 古典モデルの補正

#### 3.1 量子的補正

上記のモデルを量子力学的に取り扱ってみよう。

- 多準位系 ( $\{|n\rangle\}_n$  で張られるとする) において輻射を加えたときの遷移率を問題にする.  $|i\rangle$  から  $|j\rangle$  への遷移を問題にするとき特にこれらだけの二準位系として扱ってよいだろう (他の遷移小).
- $|1\rangle, |2\rangle$  で張られる二準位系を考え, そのハミルトニアンを  $\hat{H}_0$  と置く.  $\hat{H}_0|n\rangle = E_n|n\rangle$  としておく. さらに,  $E_2 - E_1 = \hbar\omega'_0$  なる  $\omega'_0$  を導入する.
- $\hat{D} = e\hat{x}$  とし, 双極近似を行ない, 輻射による新しいハミルトニアン  $\hat{H} = \hat{H}_0 - DE_0 \cos \omega t$  ( $H' = -DE_0 \cos \omega t$ ) を得る.

この条件のもとで解を時間に依存する摂動論による取扱の時と同じく,

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{i=1}^2 c_i(t) \exp(-\frac{i}{\hbar} E_i t) |i\rangle \quad (16)$$

と置いて  $c_i$  の満たすべき微分方程式,

$$\dot{c}_j = \frac{1}{i\hbar} \sum_{n=1}^2 c_n(t) \exp(i\omega_{jn}t) \langle j|H'|n\rangle \quad (17)$$

を (exact に) 得る. ただし,  $\omega_{jn} = (E_n - E_j)/\hbar$  と置いている.

これを計算するために少し準備をする.

補題 3.1.  $\hat{D}$  は奇パリティである.

証明.  $\hat{x}$  が奇パリティを言えばよい.  $\hat{P}$  をパリティ演算子とする.

$$\begin{aligned} \hat{P}\hat{x}\hat{P}^\dagger\psi(x) &= \hat{P}\hat{x}\psi(-x) \\ &= \hat{P}x\psi(-x) \\ &= -x\psi(x) \\ &= (-\hat{x})\psi(x) \end{aligned}$$

より従う. □

補題 3.2.  $\hat{H}_0$  がパリティ不変ならば,  $\langle i|\hat{D}|i\rangle = 0$ .

証明.  $[\hat{H}, \hat{P}] = 0$  より,  $\hat{P}|i\rangle = \exp(i\theta_i)|i\rangle$  なる  $\theta_i \in \mathbb{R}$  が存在する. (縮退がないとしている.) このことから,

$$\begin{aligned} \langle i|\hat{D}|i\rangle &= \langle i|\hat{P}^\dagger(\hat{P}\hat{D}\hat{P}^\dagger)\hat{P}|i\rangle \\ &= -\langle i|\hat{P}^\dagger\hat{D}\hat{P}|i\rangle \\ &= -\langle i|\hat{D}|i\rangle \end{aligned}$$

より従う。

□

以下、系にパリティ不変性は仮定することにする。  
さらに

- ① • はじめ  $t=0$  で  $|1\rangle$  にいた。
- 摂動が小さいので  $c_1(t) \approx 1$  と近似する。

を仮定して、 $c_2$  の満たすべき式として、

$$\dot{c}_2(t) = \frac{1}{i\hbar} \exp(i\omega'_0 t) [-E_0 \cos \omega t (2|\hat{D}|1\rangle)] - \frac{\gamma}{2} c_2(t) \quad (18)$$

を得る。ただし、右辺第二項は現象論的に加えた項で環境との相互作用などを表わしていると考える。

- ② この方程式の解として  $t \rightarrow \infty$  を考える。すなわち特解を求めると良い。

$$c_2(t) = \alpha \exp(i(\omega'_0 + \omega)t) + \beta \exp(i(\omega'_0 - \omega)t)$$

として  $\alpha, \beta \in \mathbb{C}$  を決めると

$$\alpha = \frac{E_0 D_{21}}{2\hbar} \frac{1}{\omega'_0 + \omega - i\gamma/2}$$

$$\beta = \frac{E_0 D_{21}}{2\hbar} \frac{1}{\omega'_0 - \omega - i\gamma/2}$$

を得る。

この特解より、電気双極モーメントが

$$\langle \psi(t) | \hat{D} | \psi(t) \rangle = \frac{E_0 D_{21}}{2\hbar} \frac{2\omega'_0}{\omega'^2_0 - \omega^2 - i\omega\gamma + \gamma^2/4} \exp(-i\omega t) + \text{c.c.}$$

$\gamma$  は小さいと仮定して二乗の項を落として、双極子密度  $N$  倍することで分極  $P$  として

$$P(t) = N \langle \psi(t) | \hat{D} | \psi(t) \rangle = N \frac{E_0 D_{21}}{2\hbar} \frac{2\omega'_0}{\omega'^2_0 - \omega^2 - i\omega\gamma} \exp(-i\omega t) + \text{c.c.} \quad (19)$$

を得る。再び、命題 1.1 を用い、

$$\chi_e^0(\omega) \approx \frac{N |D_{21}|^2}{\epsilon_0 \hbar} \frac{2\omega'_0}{\omega'^2_0 - \omega^2 - i\omega\gamma} \quad (20)$$

と古典論の結果 (式 (14)) に合致する結果を (半ば無理矢理) 得ることができた。ただし、

$$f = \frac{2N\omega'_0|D_{21}|^2}{\epsilon_0\hbar}$$

と置きかえるのである。

### 3.2 局所場補正

今までの取り扱いではマイクロな応答を問題にしていた。実際に計測にかかるのはマイクロな応答としての複素感受率  $\chi_e(\omega)$  であるから、この分の補正が必要である。

これには Clausius-Mossotti の関係式 (式 (9)) を用いるとよい。これにより  $\chi_e(\omega)$  を求めると、

$$\chi_e(\omega) = \frac{f}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma} \quad (21)$$

を得る。ただし補正として、

$$\omega_0^2 = \omega'^2_0 - \frac{f}{3}$$

なる  $\omega_0$  を導入している。

## 4 誘電関数のスペクトルと複素屈折率

前節で得られた結果を複数の共振周波数を持つ媒質に一般化すると、次の公式が得られる。

$$\epsilon(\omega) = 1 + \sum_j \frac{f_j}{\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j} \quad (22)$$

これは本質的に Helmholtz-Ketleler 公式や Kramers-Heisenberg の誘電関数と呼ばれるものである。もし  $\omega_0$  が連続的な場合は和を積分に置きかえたものが用いられる。これはイオン化されたエキシトンの連続媒質やすべての振動子が少しずつ違う  $\omega_0$  を持つ不均質に広げられた系の記述に使われる。

この振舞を見るために次の近似を行う。

- $\omega$  として  $\omega_{0j}$  の付近のみを注目するとする。
- $\{\omega_{0j}\}_j$  は互いに十分離れているとする。

この時、 $f_j/(\omega_{0j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j)$  の振舞いは次のように近似される。

- $\omega \ll \omega_{0j}$  なる  $\omega_{0j}$  に対しては実定数として振る舞う。
- $\omega_{0j} \ll \omega$  なる  $\omega_{0j}$  に対しては 0 として振る舞う。

このことを用いると、 $\epsilon_b$  を実定数として、

$$\epsilon(\omega) \approx \epsilon_b + \frac{f_j'}{\omega_{0j'}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j'} \quad (23)$$

と近似されることになる。以下添え字の  $j'$  は省略することにする。ここで  $\gamma = 0$  のときは

$$\epsilon(\omega) \approx \epsilon_b + \frac{f}{2\omega_0} \frac{1}{\omega_0 - \omega} \quad (24)$$

とさらに近似される。ただし、 $\omega_0^2 - \omega^2 \approx 2\omega_0(\omega_0 - \omega)$  を用いている。

さて、式 (23) から複素誘電率の実部・虚部は次のように振るまうことがわかる。

- $\gamma$  が 0 に近づくことで実部は  $\omega = \omega_0$  において特異的に振る舞うようになる。
- $\gamma$  が 0 に近づくことで  $\omega_0$  において特異性を持つデルタ関数的に振る舞うようになる。

このような誘電関数に対し特徴的な  $\omega$  は  $\omega_0$  と  $\text{Re}[\epsilon(\omega_L)] = 0$  なる  $\omega_L$  である。

$\gamma$  が 0 に十分近いと、

$$\epsilon(\omega = \omega_T \equiv \omega_0) = \infty$$

$$\epsilon(\omega_L) \approx 0$$

となる。(これはグラフをみればわかるだろう。)

$\epsilon(\omega_L) = 0$  がもし成立していれば、真空中の電磁波が横波であることを示す式は

$$\text{div} \mathbf{D}(\omega) = \epsilon_0 \text{div}(\epsilon(\omega) \cdot \mathbf{E}(\omega)) = 0$$

であったから、媒質中の電磁波を考えると特に  $\omega_L$  の時、横波でなくても上の式は常に満たされる。つまり縦波成分が可能となる。このとき、 $\epsilon_0 \mathbf{E} = -\mathbf{P}$  が満たされる。

$\omega_T$  と  $\omega_L$  の間には次の関係が成立する。

$$\omega_L^2 - \omega_T^2 = \frac{f}{\epsilon_b}$$

$$\omega_L - \omega_T = \frac{f}{2\omega_T \epsilon_0}$$

このことより次の関係に注目する。

$$|H_{ij}^D| \neq 0 \iff f \neq 0 \iff \Delta_{LT} \equiv \hbar(\omega_L - \omega_T) \neq 0$$

物理的にこの  $\Delta_{LT}$  は縦波成分の場合分極により電束が打ち消される分、余計にエネルギーが要することを示している。横波成分は誘電体表面に表面モードを立てるため、表面モードの周波数が  $\omega_0$  と  $\omega_L$  の間になる。