

ミクロな光学応答理論の最近の展開: キャビティにおける共鳴光学過程および 巨視的 Maxwell 方程式の完全形

張 紀久夫

Recent development of microscopic optical response theory:
Resonant optical processes in a cavity,
Complete form of macroscopic Maxwell equations

Kikuo CHO

Summary is given in three parts about the series of the author's talks in Toyota Phys. & Chem. Res. Inst. since 2004, covering (a) Optical response theory of nanostructures, (b) Optical processes of a resonant medium in a cavity; coupled modes, radiative lifetime, enhancement of coupling, (c) SAW induced Bragg scattering of multilayer cavity polaritons, (d) Incompleteness of macroscopic Maxwell equations; Lack of uniqueness and a problem about defining left handed materials. The first part is a compact description of the characteristic aspects of microscopic nonlocal response theory. The second part deals with the optical response of resonant matter in a cavity in terms of cavity Green function, and discussions are given about the coupled modes of light and matter resonances and the modulation effect of multilayer cavity polaritons. In the third part, a model independent derivation of macroscopic Maxwell equations is made on the basis of microscopic nonlocal susceptibility. The new form is shown to be more general than the traditional one in terms of ϵ and μ , and free from the problems about the lack of uniqueness and consistency in the latter.

1 微視的非局所応答理論の特徴

1.1 はじめに

物質の光学応答における基本的な過程は「光による振動分極の発生」と「振動分極による光の放出」の組み合わせたものである。分極から放出された光はさらに物質を分極させるので、このやりとりが無限に繰り返されて収束したところが実際の応答として観測される光であり誘起分極である。これを記述する理論には物質も電磁場も量子論的に扱う量子電磁気学 (QED) と、物質だけを量子力学的に扱う半古典論があり、さらに後者は空間構造を微視的に扱うか巨視的成分だけを扱うかによって微視的理論と巨視的理論に分けられる。すなわち厳密さの順に、

1. QED,
2. 微視的半古典論,
3. 巨視的半古典論

の3つが階層構造を作っている。QED は物理の中でも最も精密な理論の一つであるが、問題によっては半古典論で正しい答が求められるものも多いし、また、QED の精密さをきちんと発揮させることは数学的な煩雑さにより (簡単な系を除いて) 難しい。一方、伝統的な巨視的半古典論は巨視化の近似範囲内できちんとできあがっているように見えるが、本稿の第3章で述べるようにまだ不完全な部分があると考えられる。またナノ物質系に当てはめようとすると、本来あるはずの微視的応答を巨視的平均化の過程で落としているために、ナノ物質系に特有の応答を議論するには不十分である

巨視的半古典論では、巨視的感受率は電場のかかったところにだけ分極が生じるという局所的なものであるが、量子力学を忠実に実行すると微視的分極率は「非局所的」なものになる。弦楽器を鳴らすとき弦に力を加えた点だけでなく弦の他の部分も振動するが、これが非局所応答である。弓が電場、弦の振動が量子論的分極と見れば物質の光応答とよく対応している。量子力学から導かれる微視的・非局所分極率に長波長近似をすれば巨視的・局所感受率が得られることを第3章で詳しく議論する。非共鳴の場合とか局在不純物などによる共鳴の場合などの限られた条件では、長波長近似が許されるであろうが、一般の共鳴過程では正当化されるとは考えにくい。共鳴条件下では微視的・非局所的感受率を使うのが妥当である。

光が物質を分極する際の「非局所応答」をなじみが薄いと思う読者は、逆過程である「振動分極による光の放出」を記述する Maxwell 方程式の解が非局所的な形に書かれていることを思い出すとよい。光は分極の存在する場所にだけ生じるのではなく、全空間に広がって生じているのである。分極した物質中の電場を「局所場」と呼ぶが、それはまわりの分極が作る「非局所的な電場」を入射場に加えたものである。これまで我々が微視的非局所応答理論 [1] として提唱してきたことは、Maxwell 方程式の解の非局所性だけでなく、量子力学的に計算される微視的分極率の「非局所性」もきちんと考慮しよう、ということに過ぎない。また「非局所的」なのは場ではなく、応答の形であることも強調しておく必要がある。

以下では「微視的非局所応答理論」の基本的な特徴をまとめ、次いで電磁場がキャピティによって変調されている場合の興味ある問題を議論しよう。

1.2 電磁場の境界条件

巨視的応答理論では物質の表面や界面で電磁場の境界条件を設定することが応答を一意的に決めるための必須の手続きであった。その数学的理由は感受率に位置依存性が含まれていないためである。しかし微視的応答理論では感受率自体に「物質中で分極を観測する点と電磁場を印加する点」の情報が含まれているため、Maxwell 方程式は電磁場の境界条件を考慮することなく散乱問題の形(入射光を与えると応答光が求められる形)で解ける。別な言い方をすれば、境界条件は物質の固有状態を求める段階で考慮済みなので、それが反映されている感受率

を使う限り、電磁場に対する境界条件を考慮する必要はない、ということである。1個の原子に対して電磁場の境界条件などをもち出すのは明らかにおかしいが、微視的非局所応答理論では1個の原子からバルク結晶まで電磁場の境界条件なしに応答が求められる。

1.3 輻射シフトと幅

非局所応答理論で応答電磁場を計算するとその振動数依存性の中に輻射補正の効果が現れる。この輻射補正は「個々の物質励起に伴う振動分極が互いに光を介して相互作用するエネルギー」(一般に複素数)として定義され、物質励起の固有エネルギーに幅とシフトを与える。この幅は励起状態の輻射寿命に逆比例する。ナノ物質系のサイズや形が変わると物質励起の固有エネルギー $E_{\nu 0}$ が変化するが、それに加えて輻射補正 A の大きさも変化する。ナノ物質系では隣り合う $E_{\nu 0}$ の間隔と A の大きさが同じ程度になるので、 A を正しく考慮することが是非とも必要である。(一般に A は励起状態を表す量子数に関する行列である。)また、この輻射補正は応答スペクトルの形に影響を与えるが、感受率の中には(物質由来の)非輻射寿命の効果だけが存在し、この輻射補正は現れないことに注意すべきである。

1.4 内部電場の空間構造

非局所応答理論では分極と電場(または電流密度とベクトルポテンシャル)をセルコンシステントに決めるため、両者の関係を反映している Maxwell 方程式の解と量子力学の解を連立させて(与えられた初期条件に応じて)解く。光の振動数が物質の共鳴条件に近いとき、このようにして得られた物質中の応答電磁場は真空中と比べて大きな空間変動を示すが、これは共鳴に寄与する分極モードの空間構造を反映している。振動数を変えてゆくと、このような空間構造が極大になるのは物質の励起エネルギーから輻射シフト分だけずれた振動数においてであるが、試料サイズを変えるとその極大値は共鳴準位ごとに特徴的なサイズで共鳴的に大きくなる。このような共鳴増大を非線形過程に用いると、巨視的局所応答にはない全く新しいタイプの「多重共鳴増大した非線形信号」が現れる。これは GaAs 薄膜(量子井戸ではない!)において実験的にも見いだされ、非局所理論の正当性を実験的にも示している。[2]

1.5 相互作用する光・物質系の固有モード

励起子ポラリトンのような「結合系の固有モード」という概念を任意の結合系に拡張することができる。線形応答の範囲で応答を記述するとき、外場が無くても振幅有限の電場や分極が現れる条件として $\det|E+A-\hbar\omega|=0$ という方程式を得る。 E は物質励起のエネルギー、 A は輻射補正項、 $\hbar\omega$ は光のエネルギーである。孤立した準位の場合は1行1列の行列を考えればよいが、近接した励起エネルギーがあるときには、輻射補正の非対角項も効くことがある。この条件を満たす(複素)振動数が結合系の固有振動数で、入射光が共鳴するとき、これに寄与する励起準位の空間変動を反映した内部電場が共鳴増大する。この条件式はバルクや表面のポラリトンモードや、X線の動的回折、キャビティモード、フォトリックバンドのバンド構造、輻射寿命をもつ原子や量子ドットの励起準位、等々広範な固有モードを統一的に表現する。

1.6 QEDとの比較

「QEDから半古典論の方程式を導出する」にはどういう近似をすればよいか、という立場でQEDと非局所理論を比較してみることは興味深い。ベクトルポテンシャルと電流密度の運動を連立方程式の形で解く、という段階までは両者は全く同じ形をしていることが示される。QEDにおける光は各モードごとにあるアンサンブルで表されるフォトンの統計集団になっている。これを古典論で表現するときには、各モードの力学変数を(平均の)振幅と位相、という2つの量で表す。これは「各モードのアンサンブルにおける平均的振幅と位相を表す(Glauberの)コヒーレント状態」でQEDの運動方程式(におけるベクトルポテンシャルの部分)の期待値をとることに相当する。この段階ではこれらの振幅と位相の値は未定で、後から初期条件に応じて決める。さらに、演算子の方程式中でフォトンの演算子の交換関係から生じるお釣りの項をすべて無視して、物質の固有状態で電流密度演算子の行列要素をとると古典量で書いた電流密度とベクトルポテンシャルの連立方程式になる。ここから初期条件に応じて残る行列要素を集めてくと非局所理論に相当する連立方程式が得られると、考えられる。

1.7 背景誘電率の扱い

どのような応答理論においても物質系に含まれる全ての(無限に多くの)励起状態を考慮することはできないし、あまり意味のあることでもない。そこで昔から行われていることは、共鳴準位として考慮する有限個の励起状態以外はすべてひとまとめにして「背景分極」をつくる非共鳴状態として扱い、あらわな力学変数としては考慮しない。その代わりとしてその効果を局所的な背景感受率(一定値)で表すのが普通である。このようにすると、非局所応答理論において分極を表す力学変数の数が大幅に減るので、セルフコンシステントな電磁場と分極を決めるための方程式は共鳴に關与する有限個の変数に対する連立方程式になる。ここに現れる輻射補正は、相互作用を媒介する電磁場として(自由場ではなく)背景誘電率をもつ媒質に対して定義される電磁場を用いたものである。このような定義による電磁場は2章で述べられるように数学的にきちんと定義されたものであると同時に、多層平板や多層球の場合には解析的な表式を与えることもできる

上記の内容は光物性研究会(2003.12.5)における著者のチュートリアル講演[3]の内容に追加を加えたものである。

2 キャビティにおける共鳴光学過程

2.1 キャビティモード

キャビティは一定の巨視的感受率をもつ物質の組み合わせで電磁場のモード構造を変調したものである。たとえば、ある空間を鏡で囲むと電磁場はその中に完全に閉じ込められるため、鏡の表面で完全反射という境界条件を満たすモードだけが存在できることになる。このようなモードはキャビティモードと呼ばれ、とびとびの振動数分布を持つ。実際には反射率100%の鏡は無いのでキャビティモードの振動数は有限の幅を持ち、外部への電磁場のしみ出し、外部からのしみ込みが起こる。キャビティモードは各モードごとに特徴的な空間構造を持つので、キャビティの中においた物質との相互作用の強さはその物質の位置によって大きく変化する。これに

より同じ物質を自由空間に置いた場合とは大きく異なる状況を人為的に作り出すことができるので、キャビティの中における光学過程が注目されるわけである。たとえば、輻射寿命を真空中の値より長くも短くも変化させることができるし、特定の非線形過程を強くも弱くも変調することが可能である。

光と物質の相互作用は次章の(14)に示すように、誘起分極の位置における電磁場の強さで決まるので、それを目安にしてどのような変調をするか設計ができる。キャビティモードの鋭さを表す量としてQ値(共鳴振動数/共鳴の幅)が用いられるが、キャビティの定義としてQ値いくら以上と決まっているわけではない。また全振動数域でQ値を高くすることは一般に不可能である(そのような鏡は存在しない)から、キャビティとは特定の振動数域だけでQ値が高いものと言うこともできる。その意味ではすべての物質は多少なりとも電磁場のモード構造を変化させるから(良い悪いは別として)キャビティであると言える。実際、以下に述べるキャビティの電磁場を表すグリーン関数は、一般の巨視的感率物質の組み合わせに対して定義されており、Q値の大きいものも小さいものも同じ数学的形式で書かれる。うまい構造を選べばQ値の高いキャビティになるというだけである。

2.2 キャビティグリーン関数

キャビティの中に別の共鳴媒質をおいたときの光学過程を記述するのは、キャビティの電磁場を表すグリーン関数 $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega)$ を導入するのが便利である。このグリーン関数はキャビティという環境の中で、点 \mathbf{r}' にある電流密度が点 \mathbf{r} につくる振動数 ω の光の場(ベクトルポテンシャル)を与える(2階テンソル形の)関数である。微視的 Maxwell 方程式

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} - \nabla \times \nabla \times \mathbf{A} = \frac{4\pi}{c} \mathbf{J} \quad (1)$$

を解く際に、電流密度 \mathbf{J} をキャビティによるもの \mathbf{J}_{cav} とその中においた共鳴媒質によるもの \mathbf{J}_{res} とに分け、 \mathbf{J}_{cav} は $\mathbf{J}_{\text{cav}}(\mathbf{r}) = (\omega^2/c) \chi_{\text{cav}}(\mathbf{r}) \mathbf{A}(\mathbf{r})$ のように局所的な分極率 $\chi_{\text{cav}}(\mathbf{r})$ で表されるとする。 $\chi_{\text{cav}}(\mathbf{r})$ の \mathbf{r} 依存性はキャビティの構造を表す。 $q = \omega/c$, $\epsilon_b(\mathbf{r}) = 1 + 4\pi\chi_{\text{cav}}(\mathbf{r})$ として、グリーン関数 $G(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ を

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{G} + q^2 \epsilon_b(\mathbf{r}) \mathbf{G} = -4\pi \mathbf{1} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (2)$$

で定義すれば(1)の解は

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}) = \mathbf{A}_0(\mathbf{r}) + \frac{1}{c} \int d\mathbf{r}' \mathbf{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mathbf{J}_{\text{res}}(\mathbf{r}') \quad (3)$$

のように求められる。 \mathbf{A}_0 はキャビティだけがあるときの(与えられた入射波に対する)電磁場である。

キャビティの固有モードは

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{A}(\mathbf{r}, \omega) + q^2 \epsilon_b(\mathbf{r}) \mathbf{A}(\mathbf{r}, \omega) = 0 \quad (4)$$

で定義され、固有モードの振動数 $\omega_\lambda (= cq_\lambda)$ およびベクトルポテンシャル $\mathbf{A}_\lambda(\mathbf{r}, \omega_\lambda)$ は(4)を満たす。一般に固有モード $\{\mathbf{A}_\lambda\}$ は全体として完全系を作っていると仮定してもよいであろう。すなわち \mathbf{A}_a をすべてのモードに共通の振幅として

$$\sum_\lambda \mathbf{A}_\lambda(\mathbf{r})^* \mathbf{A}_\lambda(\mathbf{r}') = |\mathbf{A}_a|^2 \mathbf{1} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \quad (5)$$

が成り立つと考えられる。これを用いるとグリーン関数を次のように書き表すことができる。

$$\mathbf{G}_b(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) = \frac{4\pi}{|\mathbf{A}_a|^2 \epsilon_b(\mathbf{r})} \sum_\lambda \frac{\mathbf{A}_\lambda(\mathbf{r}, \omega_\lambda)^* \mathbf{A}_\lambda(\mathbf{r}', \omega_\lambda)}{q_\lambda^2 - q^2} \quad (6)$$

これが正しいグリーン関数であることは(2)に代入して、固有モードの条件(4)を用いれば確かめられる。

上の議論からグリーン関数は固有モードの振動数を極として持つことがわかるが、これらの固有モードにはキャビティモードだけでなく外部の連続スペクトルモードも含まれる。キャビティの閉じ込めが完全($Q = \infty$)なときには内部と外部のモードが完全に分かれるので、内部の電磁場を問題にする限り、モード指数 λ はキャビティモードだけを表す。この観点を拡張して、減衰のあるキャビティモードのみによってキャビティの問題を扱う方法(quasi mode approach)がしばしば用いられる。しかしこれは間に合わせ的なやり方であって、本来キャビティ内外のモードを正しく含む(2)の解全体を(Q値の有限・無限大に関わらず)用いるべきである。上記のグリーン関数を用いれば内外のすべてのモードが自然に取り入れられる。

2.3 共鳴モード間の混成

一般に固有振動数の近い2つの振動子が相互作用すると両者が混じりあって新しい混成モードを生じる。これ

は一方が電磁場のキャビティモード，他方が物質の共鳴準位であっても同じである．今簡単のために物質準位は1つだけでキャビティ電磁場と相互作用しているとす．物質の励起エネルギーを E_0 ，この励起準位の輻射補正を A_0 とすれば，(分極を起こす電磁場と分極によって放射される電磁場が同じになるという) 自律モード生成の条件は $E_0 - \hbar\omega + A_0 = 0$ である(1.5章の固有モード条件)．ここで A_0 はキャビティ内の電磁場を媒介とする輻射補正で，

$$A_0 = -\frac{1}{c^2} \int dr dr' I(r) \cdot G(r, r', \omega) \cdot I(r')^* \quad (7)$$

と与えられる．ここで $I(r)$ は物質準位の共鳴励起に伴う誘起電流密度である．キャビティグリーン関数は前節で示したようにキャビティモードの振動数 ω_0 を極に持っているから，その極の付近では A_0 は ω の関数として $a_0/(\omega_0 - \omega)$ という形をしている．従って上記の自律モードの条件は $(E_0 - \hbar\omega)(\omega_0 - \omega) + a_0 = 0$ という2次方程式になり，2つの混成モードが生じることがわかる．一般に E_0 は非輻射寿命， ω_0 は輻射寿命の効果を含んでいて複素数で表されているので，混成に伴って実数部分(共鳴振動数)と虚数部分(共鳴の幅)の両方が混じりあったモードになる．このような扱いは物質励起に際して電磁場を真空場として扱う黄金則の計算では不可能であり，キャビティグリーン関数の特徴がうまく発揮される例である．

2.4 多層膜キャビティポラリトンの変調効果

半導体多層膜キャビティに量子井戸を入れた系で，量子井戸励起子とキャビティモードが混成してできるキャビティポラリトンは基礎物性からデバイス応用まで広い範囲に興味深い性質を示す[4]．キャビティポラリトンは「キャビティ電磁場の共鳴」と「量子井戸感受率の共鳴」の2つを同時に用いているので，付加的な変調効果をきわめて敏感に映し出す．これまで付加的な (i) 一定波数の表面音響波[5]，(ii) 面内周期構造(以下LPSと略記)によって変調を加えたときのキャビティポラリトンの分散曲線や応答スペクトルを考察した．(i) については前回の報告書[5]に詳しく書いたので，(ii) に関する最近の進展を述べておく．

この問題は(1)式の J_{res} として量子井戸の励起子共鳴項による成分 J_{QW} と量子井戸の近傍層に置いたLPSによる成分 J_{LPS} の2つがあるときの光学応答で，LPS

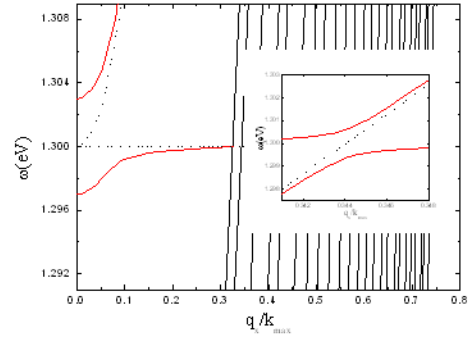


図1 LPS を含まないキャビティポラリトンの分散曲線

のためにキャビティポラリトンの分散がどのように変化するか，またその結果として応答スペクトル構造がどのように変化するかが問われている．図1は(LPSが無いときの)キャビティポラリトンの分散曲線である．波数の大きいところでは励起子共鳴といわゆる leaky modes の混成も見えている．図2は leaky modes がLPSの周期に合わせて Brillouin 域の内部に折り返されている様子を表し，キャビティモードとの相互作用を取り入れて(励起子の無い状態での)固有モードを面内波数の小さな領域で図示したのが図3である．これに量子井戸励起子の共鳴を加えれば，キャビティポラリトンをLPSで変調した系の分散曲線になる．

この問題を見通しよく扱うためには，前節で扱ったキャビティグリーン関数をさらに一歩進めて，キャビティポラリトンのグリーン関数を定義するのが便利である．そのためには先ず，今考えている問題では，(1)の右辺の J が J_{cav} ，LPSの(局所的)誘起電流密度 J_{LPS} および量子井戸励起子の(非局所的な)誘起電流密度 J_{QW} の和になっていることに注意する．その上で， J のうち J_{cav} と J_{QW} を左辺に移すと，

$$\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{A}}{\partial t^2} - \nabla \times \nabla \times \mathbf{A} - \frac{4\pi}{c} (\mathbf{J}_{\text{cav}} + \mathbf{J}_{\text{QW}}) = \frac{4\pi}{c} \mathbf{J}_{\text{LPS}} \quad (8)$$

という方程式になる． J_{cav} は局所的な感受率で， J_{QW} は非局所的な感受率で \mathbf{A} と関係づけられているので，これは J_{LPS} を源の項とする微積分方程式である．前の報告書[5]に詳述したように，この方程式の左辺の(微積分)演算子を用いて新しいグリーン関数を定義することができる．これがキャビティポラリトンのグリーン関数で，積分演算子も含むので一見複雑のように思われるが，積分核が分離型であるためキャビティグリーン関数

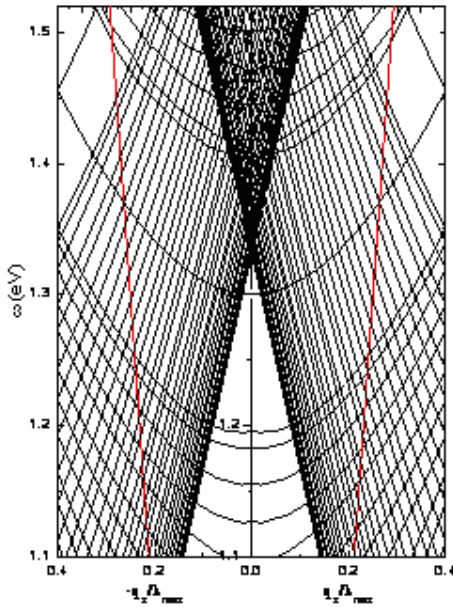


図2 折り返されたキャビティモードの分散曲線を LPS の周期に従って折り返したもの．量子井戸を含まない場合．

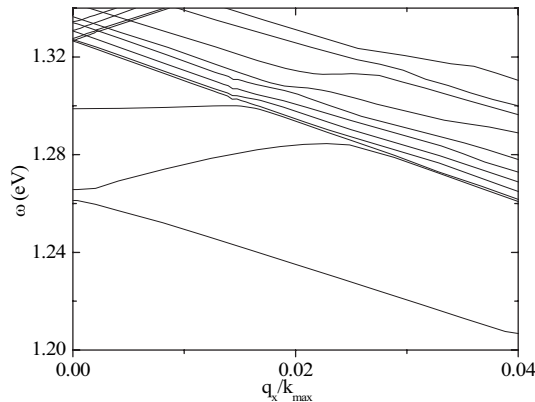


図3 LPS があるときのキャビティモードの分散関係．

を用いて解析的な形に求めることができる．これが求められれば，(8) の解はこのグリーン関数と J_{LPS} の畳み込み積分で書ける．

与えられた面内波数 k_{\parallel} と振動数 ω に対するキャビティポラリトンのグリーン関数 $G_{cp}(z, z'; k_{\parallel}, \omega)$ を与える方法については [5] に詳しく示したので，ここでは面内周期構造に誘起される電流密度の波数 G 成分 $J_{LPS}(z, G)$ (G は面内逆格子ベクトル) によるキャビティポラリトンモード間の相互作用について述べる．

キャビティポラリトンは (連続的な) 面内波数 k_{\parallel} をモード指数に持つ．LPS の存在下ではその離散的周期性によりさまざまな逆格子ベクトル G だけ離れたキャビティポラリトン波 $k_{\parallel} + G$ が混じりあう．外部から波数 k_{\parallel} の波が入射したとき LPS の境界でさまざまな $k_{\parallel} + G$ の反射波と透過波が派生する．これらの波の振幅を正しく決めるのは LPS の界面における電磁波の境界条件で，以下のようにして決められる．

LPS に誘起電流密度 $J_{LPS}(z, k_{\parallel} + G)$ があるときの応答電磁場は次式で与えられる．(k_{\parallel} は保存されるので以下の表式では $k_{\parallel} + G \rightarrow G$ と書く．)

$$A(z, G) = A^{(0)}(z, G) + \int dz' G_{cp}(z, z'; \omega, G) J_{LPS}(z', G) \quad (9)$$

を満たす． J_{LPS} としては面内に周期性をもつ局所的電流密度を考えるので，その分極率のフーリエ成分によって

$$P_{LPS}(z, G) = \sum_{G'} \frac{\omega^2}{c} \chi_n(G - G') A(z, G') \quad (10)$$

と表される．ここで，面内周期構造は局所的分極率の異なる物質から作られるとした．このフーリエ級数展開を上記の積分方程式に代入すれば， z, z' を LPS 内部の座標として， $\{A(z, G)\}$ に対する連立方程式

$$A(z, G) = A^{(0)}(z, G) + \sum_{G'} \int dz' \frac{\omega^2}{c} \times G_{cp}(z, z'; \omega, G) \chi_n(G - G') A(z', G') \quad (11)$$

を得る．この積分方程式を解くために，この LPS の内部における電磁場の形を考える．この系はフォトニック結晶の一種と考えられるので，その内部の電場は平面波の重ねあわせで表現できる．これらの平面波は LPS を面法線方向に無限に重ねた 3 次元フォトニック結晶の解で， N 個の G を用いて面内波数 $k_{\parallel} + G$ を指定すると，面法線成分 k_m は N 個の進行波・減衰波とそれらの内部反射波 ($-k_m$) N 個からなる [6]．LPS の外部には反射波が N 個と透過波が N 個あるので，決めるべき波の振幅は合計 $4N$ 個であるが，界面での境界条件は各 G ごとに 2 つずつ，表裏合わせて合計 $4N$ 個あるので，任意の入射波に対して，全ての反射・透過・内部モードの $4N$ 個の振幅を一意的に定めることができる．

この場合の内部電磁場は

$$A(x, z, \omega) =$$

$$\sum_m \sum_G [A_m \exp(ik_m z) + B_m \exp(-ik_m z)] \alpha_m(G) \exp[iGx] \quad (12)$$

であるが、 $\alpha_m(G)$ はフォトニックバンドの計算から得られる。 $2N$ 個の振幅 A_m, B_m を決めるには、この展開式を (11) に代入し、 z の値として適当な 2 つを与える と、 $2N$ 元の連立 1 次方程式が得られるので、未知数を一意に決定することができる。この方程式の係数行列式がゼロになる条件から、LPS があるときの分散関係 $\omega(k_{\parallel})$ が求められる。また、入射条件を与えて A_m, B_m を決めた後では、同じ式 (11) を用いて任意の位置 z における電磁場を計算できるので、応答スペクトルの計算が可能になる。

この定式化に基づく数値計算は現在進行中で、分散関係やスペクトル構造についていくつかの結果が出始めている。新しい分枝構造はもとのキャピティポラリトンの (簡単な) 分枝構造とは違って $k = 0$ の近傍でも複雑な構造をしている。その主要な分枝をもとの分枝と比べれば、ラビ分裂が増大したと見ることができる。これは Pilozzi, D'Andrea の以前のスペクトル計算で推測された「LPS によって量子井戸位置に誘起された電場増強効果」[7] を分散曲線から裏付ける結果と言える [8]。詳細は別の機会に報告する。

3 巨視的 Maxwell 方程式の完全形

3.1 従来形式における問題点

Maxwell 方程式 (M-eqs.) には微視的な形と巨視的な形の 2 つがある。歴史的には量子力学も相対論も無い時代に巨視的な形が現象論として先に提案され、20 世紀になって物質の粒子像が確立されるとともに微視的な形が正しく推測されたという経緯がある [9]。微視的 M-eqs. の論理的完全性は量子力学や相対論と組み合わせられて、物理学の中でも最も精密な理論である量子電磁気学 (QED) にまで高められた。その後、物質の見方としては粒子像の方が基本的と考える立場から、微視的な形を基にして巨視的な形を導出しようという多くの試みがなされてきた。その標準的な考え方は以下の通りである。まず、微視的応答の起源になる電荷・電流密度を巨視的に平均化したものは電気分極 P と磁気分極 M によって表されるとして、(a) 電荷密度を真電荷密度と分極電荷密度に分け、(b) 電流密度の横成分を電気分極

および磁気分極による電流密度 (それぞれ $\partial P/\partial t$ および $c\nabla \times M$) に分ける。こうして導入された変数 P, M と $D = E + 4\pi P$ および $H = B - 4\pi M$ を用いれば、微視的 M-eqs. から巨視的 M-eqs. が導出される。

静電場や静磁場に対する巨視的な応答の場合には、 E と P は縦の場で B と M は横の場なので、それぞれの応答を独立に扱うことができる。従って P や M を使用するの自然で、そこから電気・磁気感受率 χ_e, χ_m および誘電率・透磁率 $\epsilon = 1 + 4\pi\chi_e, \mu = 1 + 4\pi\chi_m$ が導かれる。

時間に依存した電磁応答の場合にも ϵ, μ を使うことは普通に行われている。しかしこれは理論の一意性やつじつまに関して 2 種類の問題を発生させる。その第一は、上記 (a), (b) で述べた分割を一意に行う方法が分かっていないことである。第二に、なぜ微視的 M-eqs. と巨視的 M-eqs. の間では必要な構成方程式の数が違うのかという疑問がある。これは、ベクトルポテンシャル (A)、スカラーポテンシャル (ϕ) を用いた微視的 M-eqs. では電流密度 (J) と A の間の構成方程式が 1 つ決まれば十分であるのに対して、巨視的 M-eqs. では P と E の関係および M と H の関係を決める必要があるのは何故かという問題である [10]。微視的 M-eqs. から巨視的 M-eqs. を導く際に用いる巨視的平均化という操作が同時に構成方程式の数の増加を必要とするかどうかは自明ではない。巨視的 M-eqs. が今でも多くの研究分野 (フォトニック結晶 [11], 左手系物質 [12], 近接場光学 [13] など) で主要な道具になっていることと、物理教育の基礎科目としての重要性を考えると、巨視的 M-eqs. に論理的不完全性があるかもしれないということは、研究者、教師、学生にとって見過ごせないはずである。

3.2 微視的応答理論の長波長近似

微視的 M-eqs. から巨視的 M-eqs. を導く議論をしている電磁気学の教科書は [14, 15, 16] などたくさんあるが、上に述べた疑問について答えているものは筆者の知る限り存在しない。信頼できる答えを得るためにはミクロな応答理論に基づいたあいまいさの無い議論が必要である。そのために、ここでは物質 (荷電粒子系) と電磁場の相互作用系に対する一般的なラグランジアンを用いる。このラグランジアンによる最小作用の原理から「微視的 M-eqs.」と「ローレンツ力の下で運動する荷電粒子のニュートン運動方程式」が導かれることが知られて

おり，議論の出発点として十分信頼できるものである．このラグランジアンから導かれる「電磁場中の荷電粒子系」のハミルトニアンは（クーロンゲージで）

$$H_M = \sum_{\ell} \frac{1}{2m_{\ell}} \left[\mathbf{p}_{\ell} - \frac{e_{\ell}}{c} \mathbf{A}(\mathbf{r}_{\ell}) \right]^2 + \frac{1}{2} \sum_{\ell \neq \ell'} \sum_{\ell''} \frac{e_{\ell} e_{\ell'}}{|\mathbf{r}_{\ell} - \mathbf{r}_{\ell'}|} \quad (13)$$

である．ここで \mathbf{A} は電磁場のベクトルポテンシャルであり，荷電粒子間のクーロンポテンシャルの項はスカラーポテンシャル ϕ に関連する項（物質との相互作用＋縦の場の自己エネルギー）の総和として導かれる．このハミルトニアンに自由な電磁場のハミルトニアンを加えると，電磁場と物質の非相対論的なハミルトニアンとして完全に一般的なものになる．さらに必要ならば，スピン軌道相互作用，スピンゼーマン相互作用，質量速度の項，ダーウィン項などの相対論的補正項を加える．

感受率の計算に必要な電磁場と物質の相互作用は上記ハミルトニアンの2乗の項を展開したときの \mathbf{A} に依存する項である．以下では線形応答を考えるのでそのうちの \mathbf{A} 線形項をとれば

$$H'_{\text{int}} = -\frac{1}{c} \int d\mathbf{r} \mathbf{J}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}, t) \quad (14)$$

となる．ここで \mathbf{J} は電流密度の演算子で， ℓ -番目の粒子の電荷，座標，速度をそれぞれ e_{ℓ} , \mathbf{r}_{ℓ} , \mathbf{v}_{ℓ} と書いたとき $\mathbf{J}(\mathbf{r}) = \sum_{\ell} e_{\ell} \mathbf{v}_{\ell} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}_{\ell})$ で定義される．相対論的補正が必要なときには上記の H'_{int} にスピンゼーマン項を加えればよいが，これは (14) において \mathbf{J} を $\mathbf{I} = \mathbf{J} + \mathbf{J}_{\text{spin}}$ で置き換えることに相当する．ここで $\mathbf{J}_{\text{spin}} = c \nabla \times \mathbf{M}_{\text{spin}}$ はスピン磁化に誘起される電流密度である．この場合の物質のハミルトニアンは (13) で $\mathbf{A} = 0$ としたものに相対論的補正項の残りを加えたものである．このようにして，感受率を計算するための物質ハミルトニアンと相互作用項の一般形が用意されたことになる．

H'_{int} を相互作用とする摂動計算により，誘起電流密度 $\tilde{\mathbf{I}}(\mathbf{r}, \omega)$ の \mathbf{A} に線形な部分は（絶対0度の場合） $\tilde{\mathbf{I}}(\mathbf{r}, \omega) = \int d\mathbf{r}' \chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{r}', \omega)$ のように与えられる [1]．ここで

$$\chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega) = \frac{1}{c} \sum_{\nu} \left[g_{\nu}(\omega) \mathbf{I}_{0\nu}(\mathbf{r}) \mathbf{I}_{\nu 0}(\mathbf{r}') + h_{\nu}(\omega) \mathbf{I}_{0\nu}(\mathbf{r}') \mathbf{I}_{\nu 0}(\mathbf{r}) \right] \quad (15)$$

$g_{\nu}(\omega) = 1/(E_{\nu 0} - \hbar\omega - i0^+)$, $h_{\nu}(\omega) = 1/(E_{\nu 0} + \hbar\omega + i0^+)$ であり， $\mathbf{I}_{\nu\mu}(\mathbf{r})$ は \mathbf{I} の行列要素， $E_{\nu 0}$ は物質の励起エネルギーである．基底状態の電荷密度を反映する項もあるが，それを巨視的に平均したものは一定値になって (15) の非共鳴項に繰り込むことができるので，以下の議論では無視する．

誘起電流密度の表式を微視的 M-eqs. に代入すると，微視的応答を決めるための微積分方程式が得られる．この際積分核の役割を持つ感受率 $\chi(\mathbf{r}, \mathbf{r}'; \omega)$ が一般に分離型であるため，この微積分方程式は連立線型方程式に書き換えられて扱いが極めて容易になる．このような理論は微視的非局所応答理論として詳しく研究され，非線形応答も含めたさまざまな応用例と共に [1] にまとめられている．ここではその新しい応用として，巨視的 M-eqs. を導出するための新しい一般的方法論として利用する．

電磁応答の巨視的な描像が成り立つ条件下では，電磁場・電流密度の応答は空間的に緩やかに変化するので， \mathbf{A} や \mathbf{I} を表すのに任意の巨視的な点 $\bar{\mathbf{r}}$ の周りでテイラー展開して初めの1, 2項を取れば十分であろう．これを誘起電流密度の k フーリエ成分に対して行くと $\bar{\mathbf{I}}(\mathbf{k}, \omega) = \bar{\chi}_{\text{em}}(\mathbf{k}, \omega) \cdot \mathbf{A}(\mathbf{k}, \omega)$ を得るが，ここに現れる巨視的感受率は

$$\bar{\chi}_{\text{em}}(\mathbf{k}, \omega) = \sum_{\nu} \frac{N_{\nu}}{c} \times \left[g_{\nu}(\omega) (\bar{\mathbf{I}}_{0\nu} - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{Q}_{0\nu}) (\bar{\mathbf{I}}_{\nu 0} + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{Q}_{\nu 0}) + h_{\nu}(\omega) (\bar{\mathbf{I}}_{0\nu} + i\mathbf{k} \cdot \mathbf{Q}_{0\nu}) (\bar{\mathbf{I}}_{\nu 0} - i\mathbf{k} \cdot \mathbf{Q}_{\nu 0}) \right] \quad (16)$$

のように与えられる．導出の詳細は [17] に示してある．この中の行列要素 $\bar{\mathbf{I}}_{\mu\nu}$ および $\mathbf{Q}_{\mu\nu}$ は $\bar{\mathbf{I}}_{\mu\nu} = \int d\mathbf{r} \mathbf{I}_{\mu\nu}(\mathbf{r})$, $\mathbf{Q}_{\mu\nu} = \int d\mathbf{r} (\mathbf{r} - \bar{\mathbf{r}}) \mathbf{I}_{\mu\nu}(\mathbf{r})$ と定義されており，それぞれ各遷移の電気双極子および磁気双極子（＋電気4重極子）能率を表す．

ここで得られた巨視的感受率 $\bar{\chi}_{\text{em}}(\mathbf{k}, \omega)$ は電気分極（電気双極子）と磁気分極（磁気双極子）の寄与を同時に，分離し難い形で含んでいる．物質の対称性が低い場合を考えると，電気双極子遷移と磁気双極子遷移は混じり合うから，上記の感受率における k 線形項は生き残る．対称性が高ければ，電気・磁気双極子遷移は混じり合わないで， k 線形項は消える．この場合， ν の和を2つのグループに分けて $(c/\omega^2) \bar{\chi}_{\text{em}} = \bar{\chi}_{\text{e}} + \bar{\chi}_{\text{m}}$ と書くことができる．ここで $\bar{\chi}_{\text{e}}$ と $\bar{\chi}_{\text{m}}$ はそれぞれ電気，磁

気双極子活性な ν についての部分

$$\bar{\chi}_e = \sum_{\nu(e)} \frac{N_\nu}{\omega^2} [g_\nu(\omega) + h_\nu(\omega)] \bar{I}_{0\nu} \bar{I}_{\nu 0} \quad (17)$$

$$\bar{\chi}_m = \sum_{\nu(m)} \frac{N_\nu}{\omega^2} [g_\nu(\omega) + h_\nu(\omega)] \times (\mathbf{k} \cdot \mathbf{Q}_{0\nu}) (\mathbf{k} \cdot \mathbf{Q}_{\nu 0}) \quad (18)$$

である。

3.3 平面波の分散関係

ここで求めた巨視的な構成方程式を用いると、平面波の分散関係として $(ck/\omega)^2 = 1 + (4\pi c/\omega^2) \bar{\chi}_{em}$ を得るが、これは従来の巨視的 M-eqs. における分散関係 $(ck/\omega)^2 = \epsilon\mu$ とは明らかに違っている。しかし、物質の対称性が高く $\bar{\chi}_{em}$ が電気・磁気双極子遷移の寄与の和になる場合には、以下のようにして両者が一致することを示せる。

そのために重要なキーポイントとなるのは、透磁率 μ が $M = \chi_B B$ で定義される磁気感受率 χ_B によって $\mu = 1/(1 - 4\pi\chi_B)$ と書かれることである。すでに第一原理的な立場から議論したように、物質と電磁場の相互作用は (14) で与えられているので、相互作用を記述している磁場変数は H ではなく B である。従って磁気励起のエネルギーを極に持つような線形応答係数は $M = \chi_m H$ で定義される χ_m ではなく χ_B である。この点をきちんと示すには次のようにする。ラグランジアンに任意の関数の時間全微分を加えても最小作用の原理には影響が無いので、上で考えた電磁場と荷電粒子系のラグランジアンに次の時間全微分項を加える [18, 19, 20]。

$$F(t) = \frac{d}{dt} \frac{1}{c} \int d\mathbf{r} \mathbf{P} \cdot \mathbf{A} \quad (19)$$

これと相互作用項 (14) を加えると、

$$H'_{\text{int}} + F(t) = - \int d\mathbf{r} \{ \mathbf{P} \cdot \mathbf{E} + \mathbf{M} \cdot \mathbf{B} \} \quad (20)$$

という新しい相互作用項の形が得られるので、磁氣的相互作用項は B で書かれていることがわかる。対称性が高く電気・磁気双極子遷移が混じらないときには、 E は P だけを、 B は M だけを誘起するので、誘起磁化は B に比例する。

$\mu = 1/(1 - 4\pi\chi_B)$ を分散関係 $(ck/\omega)^2 = \epsilon\mu$ に代入

し整理すると

$$\left(\frac{ck}{\omega}\right)^2 = 1 + 4\pi\chi_e + 4\pi\left(\frac{ck}{\omega}\right)^2 \chi_B \quad (21)$$

となるが、ここでは電気・磁気遷移の寄与が和で表されており、 $(ck/\omega)^2 = 1 + (4\pi c/\omega^2) \bar{\chi}_{em}$ を単純化した場合の $(c/\omega^2) \bar{\chi}_{em} = \bar{\chi}_e + \bar{\chi}_m$ と同じであることがわかる。各感受率間の関係は $\mathbf{J} = \partial \mathbf{P} / \partial t + c \nabla \times \mathbf{M} = -i\omega \chi_e \mathbf{E} + i c \mathbf{k} \times \chi_B \mathbf{B}$ から $\chi_e = \bar{\chi}_e$ および $\chi_B = (\omega/ck)^2 \bar{\chi}_m$ となる。

3.4 結論

上の結果から、新しい方法で得た M-eqs. は従来のものより一般性があることがわかる。要点をまとめると以下の通りである。

- 上記の一般的な方法で得られる巨視的 Maxwell 方程式は ϵ および μ を用いる伝統的な $\{E, B, D, H\}$ 形式より一般性がある。電気・磁気双極子遷移が混じらない高い対称性の場合には両者が一致する。
- 電磁場と電荷・電流密度の長波長成分を関係付ける巨視的方程式は微視的な方程式と同じ形をしており、一つの感受率だけを含む。この感受率 $\bar{\chi}_{em}$ は電気・磁気分極の寄与を干渉効果まで含めて表しているのに対して、 ϵ と μ による記述では干渉効果を表すことは出来ない。
- 構成方程式の数は微視的 M-eqs. の場合と同様に 1 つだけである。 $\{E, D, B, H\}$ 方式の場合 (ϵ と μ を用いることからわかるように) 2 つの構成方程式が必要なことは対照的である。
- 電流密度を電気・磁気分極により誘起される成分に分けないので、分ける際の一意性欠如という問題は生じない。
- 平面波の分散関係は $(ck)^2/\omega^2 = 1 + (4\pi c/\omega^2) \bar{\chi}_{em}$ と与えられるが、対称性が高い系では従来から知られた形 $(ck)^2/\omega^2 = \epsilon\mu$ に帰する。
- 対称性が高い場合電気・磁気感受率が定義できるが、その場合、磁氣的励起に対する線形感受率は χ_B であって χ_m ではない ($\chi_m = \chi_B/(1 - 4\pi\chi_B)$)。2 つの分散関係の等価性を証明するにはこれを認識することが必須である。
- 電気・磁気感受率は独立な量ではない。対称性が高いときにきちんと定義される χ_e と χ_B は微視

的感受率を長波長近似でテイラー展開するときの
第1項, 第2項に対応している.

参考文献

- [1] K. Cho, *Optical Response of Nano-structures: Microscopic Nonlocal Theory*, (Springer Verlag, Heidelberg 2003); Errata, Web site of Springer Verlag for this book;
張紀久夫: ナノ構造物質の光学応答理論, シュプリンガー東京 2004 (上記の日本語版, 英語版の誤植リストを含む)
- [2] 石原一, 井須俊郎, 秋山浩一, 張紀久夫: 日本物理学会誌 **5** (2000) 701; H. Ishihara, K. Cho, K. Akiyama, N. Tomita, Y. Nomura, and T. Isu, Phys. Rev. Lett. **89** (2002) 017402
- [3] 張紀久夫, 第14回光物性研究会論文集(光物性研究会: 大阪市立大学理学部唐沢研究室刊行) 2003, Dec.
- [4] Semicond. Sci. Technol. **18** (2003), Special issue on microcavities (No.10) ed. by J. J. Baumberg and L. Viña
- [5] K. Cho, K. Okumoto, N. I. Nikolaev, and A. L. Ivanov: Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 226406; 張紀久夫: 豊田研究報告 **58** (2005) 27
- [6] K. Cho, J. Ushida, and M. Bamba: J. Phys. Soc. Jpn. **74** (2005) 3088
- [7] L. Pilozzi and A. D'Andrea, Phys. Rev. **B61** (2000) 4771
- [8] L. Pilozzi, A. D'Andrea and K. Cho: preprint
- [9] H. A. Lorentz, *The Theory of Electrons*, Teubner, Leipzig 1916
- [10] K. Cho, *Proc. 28th Int. Conf. on Physics of Semiconductors*, Wien, July 2006, in print
- [11] K. Inoue and K. Ohtaka, *Photonic Crystals*, Springer Verlag, Heidelberg 2004
- [12] V. G. Veselago, Soviet Phys. Uspekhs **10** (1968) 509; S. A. Ramakrishna, Rep. Prog. Phys. **68** (2005) 449
- [13] M. Ohtsu and H. Hori, *Near Field Nano-optics*, Springer Verlag, Heidelberg 1999
- [14] L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Electromagnetics of Continuous Media*, Pergamon Press, Oxford, 1960
- [15] J. H. van Vleck, *Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities*, Oxford University Press, 1932
- [16] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, Third Ed., J. Wiley & Sons, New York 1999
- [17] K. Cho, cond-mat/0611235
- [18] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and G. Grynberg, *Photons and Atoms*, (Wiley Interscience, New York 1989), Sec. IV.C
- [19] E. A. Power and S. Zienau, Philos. Trans. Roy. Soc. **A251** (1959) 427
- [20] R. G. Woolley, Proc. Roy. Soc. Lond. **A321** (1971) 557