

## 磁気光学効果の基礎理論<sup>1</sup>

佐藤勝昭 (独)科学技術振興機構

### はじめに

磁気光学効果は、光磁気記録(MO, MD)、光アイソレータ、電流磁界センサ、空間光変調器、非接触磁気観察などに幅広く応用されている磁気付随の物理現象である。磁気光学効果のマクロな起源は、磁化を有する物質における誘電率テンソルの非対角成分に求めることができる。また、そのミクロな起源は、磁性体の電子構造にある。

### 1. 光と磁気概説

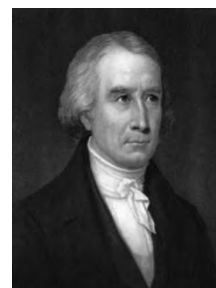
光と磁気の間には、物質の光応答に磁気が寄与する「磁気光学効果」と物質の磁性に光が影響する「光磁気効果」がある。磁気光学効果には、おなじみのファラデー効果、磁気カー効果などいわゆる狭義の磁気光学効果と、ゼーマン効果、磁気共鳴、マグネトプラズマ効果など磁気が電磁波の応答に影響を与える広義の磁気光学効果とが含まれる。

光磁気効果には、光誘起磁気効果、光誘起磁化(逆ファラデー効果)、光誘起スピン再配列、熱磁気効果が含まれる。光磁気ディスクの記録には、レーザー光の熱を用いた熱磁気効果が使われている。

この講義では、主として磁気光学効果に焦点を当てる。

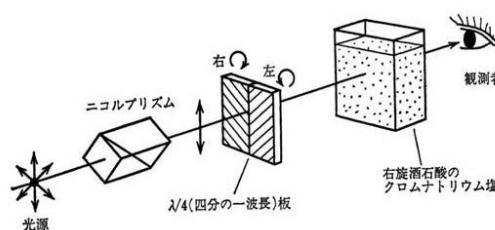
#### ・ 旋光性の発見

物質の旋光性を始めて見つけたのは、フランスの Arago (1786-1853) で、1811年に、水晶においてこの効果を発見した。Arago は天文学者としても有名で、子午線の精密な測量を Biot (1774-1862) とともにやり、スペインでスパイと間違われて逮捕されるなど波瀾に満ちた一生を送った人である。Arago の発見は Biot に引きつがれ、旋光角が試料の長さに比例することや、旋光角が波長の二乗に反比例すること(旋光分散)等が発見された。



#### ・ 円二色性

酒石酸の水溶液などでは、右円偏光と左円偏光とに対して吸光度が違うという現象がある。これを円二色性という。この効果を発見したのは Cotton というフランス人で 1869年のことである。彼は図2.4のような装置をつくらせると左と右の円偏光に対して明るさが違うことを発見した。後で説明するが、円二色性がある物質に直線偏光を入射すると透過光は楕円偏光になる。



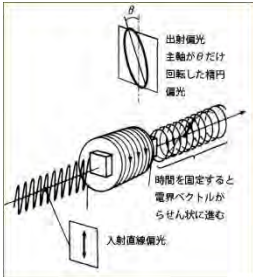
#### ・ 光学活性とは?

旋光性と円二色性をあわせて光学活性という。物質本来の光学異方性による光学活性を「自然活性」とよぶ。電界(電気分極)によって誘起される光学活性を電気光学効果という。電気光学効果には、ポッケルス効果、電気光学カー効果がある。磁界(磁化)によって誘起される光学活性を磁気光学効果という。応力による光学活性をピエゾ光学効果または光弾性という。

<sup>1</sup> 佐藤勝昭「光と磁気」改訂版 (朝倉書店、2001) による

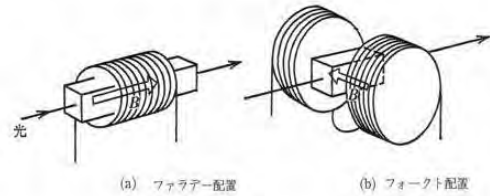
・ **ファラデー効果と磁気光学配置**

ガラス棒にコイルを巻き電流を通じるとガラス棒の長手方向に磁界ができる。このときガラス棒に直線偏光を通すと磁界の強さとともに偏光面が回転する。この磁気旋光効果を発見者 Faraday に因んでファラデー効果という。



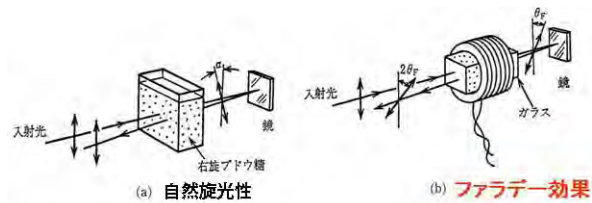
光の進行方向と磁界とが同一直

線上にあるときをファラデー配置といい、進行方向と磁界の向きが直交するような場合をフォークト配置という。ファラデー配置において直線偏光が入射したとき出射光が楕円偏光になり、その主軸が回転する効果をファラデー効果という。



・ **ファラデー効果の非相反性**

ファラデー効果においては磁界を反転すると逆方向に回転が起きる。つまり回転角は磁界の方向に対して定義されている。ここが自然活性と違うところである。図に示すように、ブドウ糖液中を光を往復させると戻ってきた光は全く旋光していないが、磁界中のガラスを往復した光は、片道の場合の2倍の回転を受ける。



・ **ヴェルデ定数**

強磁性を示さない物質の磁気旋光角を  $\theta_F$ 、磁界を  $H$ 、光路長  $l$  とすると、

$$\theta_F = V l H$$

と表される。  $V$  はヴェルデ定数と呼ばれ、物質固有の比例定数である。

・ **強磁性体のファラデー効果**

ガラスのファラデー効果に比べ、強磁性体、フェリ磁性体は非常に大きなファラデー回転を示す。磁氣的に飽和した鉄のファラデー回転は 1 cm あたり  $380,000^\circ$  に達する。この旋光角の飽和値は物質定数である。 1 cm もの厚さの鉄ではもちろん光は透過しないが薄膜を作ればファラデー回転を観測することが可能である。例えば 30 nm の鉄薄膜では光の透過率は約 70 % で、回転角は約  $1^\circ$  となる。

・ **磁気カー効果**

磁気カー効果は、反射光に対するファラデー効果といってもよい。Kerr という人は電気光学効果の研究でも有名で一般にカー効果というと電気光学効果のほうをさすことが多いので区別のため磁気カー効果と呼んでいる。

ヴェルデ定数

物質	V [min/A]	物質	V [min/A]
酸素	$7.598 \times 10^{-6}$	NaCl	$5.15 \times 10^{-2}$
プロパン	$5.005 \times 10^{-5}$	ZnS	$2.84 \times 10^{-1}$
水	$1.645 \times 10^{-2}$	クラウンガラス	$2.4 \times 10^{-2}$
クロロホルム	$2.06 \times 10^{-2}$	重フリントガラス	$1.33 \times 10^{-1}$

代表的な磁性体のファラデー回転角

物質名	旋光角 (deg/cm)	性能指数 (deg/dB)	測定波長 (nm)	測定温度 (K)	磁界 (T)
Fe	$3.825 \cdot 10^5$		578	室温	2.4
Co	$1.88 \cdot 10^5$		546	"	2
Ni	$1.3 \cdot 10^5$		826	120 K	0.27
$Y_3Fe_5O_{12}$ *	250		1150	100 K	
$Gd_2BiFe_5O_{12}$	$1.01 \cdot 10^4$	44	800	室温	
MnSb	$2.8 \cdot 10^5$		500	"	
MnBi	$5.0 \cdot 10^5$	1.43	633	"	
YFeO <sub>3</sub>	$4.9 \cdot 10^3$		633	"	
NdFeO <sub>3</sub>	$4.72 \cdot 10^4$		633	"	
CrBr <sub>3</sub>	$1.3 \cdot 10^5$		500	1.5K	
EuO	$5 \cdot 10^5$	104	660	4.2 K	2.08
$CdCr_2S_4$	$3.8 \cdot 10^3$	35(80K)	1000	4K	0.6

代表的な磁性体の極カー一回転角

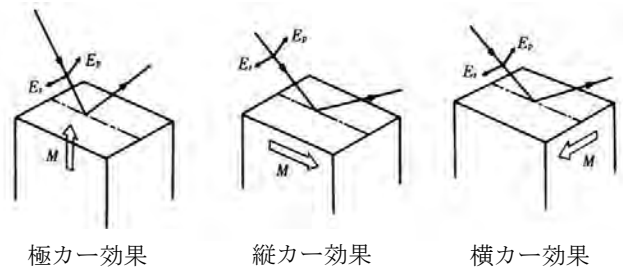
物質名	カー一回転角 (deg)	測定光エネルギー (eV)	測定温度 (K)	磁界 (T)
Fe	0.87	0.75	室温	
Co	0.85	0.62	"	
Ni	0.19	3.1	"	
Gd	0.16	4.3	"	
Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	0.32	1	"	
MnBi	0.7	1.9	"	
CoS <sub>2</sub>	1.1	0.8	4.2	0.4
CrBr <sub>3</sub>	3.5	2.9	4.2	
EuO	6	2.1	12	
$USb_{0.8}Te_{0.2}$	9.0	0.8	10	4.0
$CoCr_2S_4$	4.5	0.7	80	
a-GdCo*	0.3	1.9	298	
PtMnSb	2.1	1.75	298	1.7

・ 3つの磁気カー効果

極カー効果 (磁化が反射面の法線方向、直線偏光は傾いた楕円偏光となる)

縦カー効果 (磁化が試料面内&入射面内、直線偏光は傾いた楕円偏光となる)

横カー効果 (磁化が試料面内、入射面に垂直偏光の回転はないが磁界による強度変化)

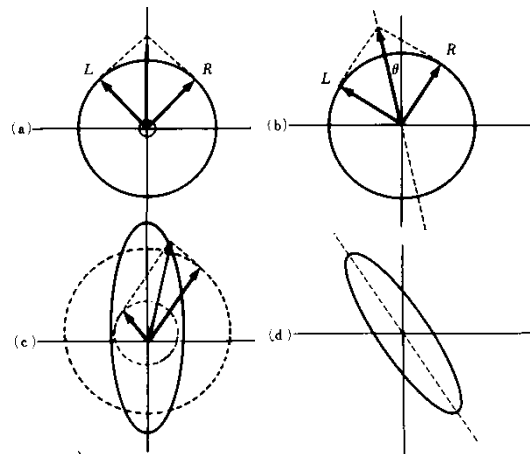


2. 光の伝搬と磁気光学効果

ここでは磁気光学効果が物質のどのような性質に基づいて生じるかを述べる。この章では物質のミクロな性質には目をつぶって、物質を連続体のように扱い、偏光が伝わる様子を電磁波の基本方程式であるマクスウェルの方程式によって記述する。物質の応答は誘電率によって表す。この章ではこのようなマクロな立場に立って磁気光学効果がどのように説明できるかについて述べる。

・ 円偏光と磁気光学効果

ここでは旋光性や円二色性が左右円偏光に対する物質の応答の差に基づいて生じることを説明する。直線偏光の電界ベクトルの軌跡は (a) のように、振幅と回転速度が等しい右円偏光と左円偏光との合成で表される。透過後の光の左円偏光が (b) のように右円偏光よりも位相が進んでいたとするとこれらを合成した電界ベクトルの軌跡は、もとの直線偏光から傾いたものになる。これが旋光性である。(c) のように右円偏光と左円偏光のベクトルの振幅に差が生じたとき、それらの合成ベクトルの軌跡は楕円になる。これを円二色性という。一般には、旋光性と円二色性が共存し、(d) のようになる。



・ ファラデー効果の現象論

直線偏光は右円偏光と左円偏光に分解できる。この光が長さ  $l$  の物質を透過した後、左右円偏光の位相が異なっておれば両者を合成した軌跡は入射光の偏光方向から傾いた直線偏光となり、その傾き  $\theta_F$  は、

$$\theta_F = -(\theta_R - \theta_L)/2 = -\Delta\theta/2 \quad (1)$$

となる。

ここに  $\theta_R$  は右円偏光の位相、 $\theta_L$  は左円偏光の位相である。

一方、円二色性は左右円偏光に対する振幅の差から生じる。その結果、合成ベクトルの軌跡は楕円偏光となる。楕円率  $\eta_F$  は、

$$\eta_F = \tan^{-1}\{(E_R - E_L)/(E_R + E_L)\} \quad (2)$$

で与えられる。 $E_R$  は右円偏光の振幅、 $E_L$  は左円偏光の振幅である。

・ 左右円偏光に対する光学定数の差とファラデー効果

旋光性をもたらす位相の差は、右円偏光に対する屈折率  $n_+$  と右円偏光に対する屈折率  $n_-$  に差があれば生じる。

$$\theta_F = -\Delta\theta/2 = -\omega(n_+ - n_-)l/2c = -\pi\Delta n l/\lambda \quad (3)$$

これに対し、円二色性は左右円偏光に対する吸光度の違いがあれば生じる。

右円偏光の消光係数を  $\kappa_+$ , 左円偏光の消光係数を  $\kappa_-$  とすると,

$$\eta_F = \frac{\exp(-\omega\kappa_+ \ell/c) - \exp(-\omega\kappa_- \ell/c)}{\exp(-\omega\kappa_+ \ell/c) + \exp(-\omega\kappa_- \ell/c)} \approx -\pi\Delta\kappa\ell/\lambda \quad (4)$$

となる. 次式のように複素旋光角  $\Phi_F$  を定義すると式の取り扱いが簡便になることがある.

$$\Phi_F = \theta_F + i\eta_F = -\pi(\Delta n + i\Delta\kappa)/\lambda = -\pi\Delta N/\lambda \quad (5)$$

ここに,  $\Delta N = \Delta n + i\Delta\kappa$  は, 右左円偏光に対する複素屈折率の差である.

### Maxwell の方程式

Maxwell は, Faraday の電磁誘導の法則と, 電流による磁界発生の Ampere の法則を組み合わせ, 電磁気の基礎方程式を作った. 現在の電磁気学はこの方程式がもとになっている.



$$\begin{aligned} \text{rot } \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \\ \text{rot } \mathbf{H} &= \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \mathbf{J} \\ \text{div } \mathbf{D} &= \rho \\ \text{div } \mathbf{B} &= 0 \end{aligned} \quad (6)$$

伝導電流  $\mathbf{J}$  を変位電流に押し込め, 誘電率と透磁率を用いて  $\mathbf{D}$ ,  $\mathbf{B}$  をそれぞれ  $\mathbf{E}$ ,  $\mathbf{H}$  で表すと, 媒体中の光の伝搬は, SI 単位系で次式で記述される.

$$\begin{aligned} \text{rot } \mathbf{E} &= -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} = -\mu_0 \tilde{\mu} \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \\ \text{rot } \mathbf{H} &= \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} = \varepsilon_0 \tilde{\varepsilon} \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \end{aligned} \quad (7)$$

ここに  $\tilde{\varepsilon}$  および  $\tilde{\mu}$  は, それぞれ, 比誘電率テンソルおよび比透磁率テンソルである.  $\varepsilon_0$  は真空の誘電率で  $\varepsilon_0 = 8.85 \times 10^{-12}$  F/m,  $\mu_0$  は真空の透磁率で  $\mu_0 = 1.257 \times 10^{-6}$  H/m である.

### 比誘電率テンソルと比透磁率テンソル

磁界  $\mathbf{H}$  と磁束密度  $\mathbf{B}$  の関係を与えるのが透磁率です. 光の振動数 ( $10^{14}$ - $10^{15}$ Hz) くらいの高い周波数になると巨視的な磁気モーメントは, 磁界に追従できなくなるため, 比透磁率テンソルは

$$\tilde{\mu} = \mu_0 \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (8)$$

となる.

一方, 電界  $\mathbf{E}$  と電束密度  $\mathbf{D}$  の関係を与えるのが誘電率である.  $\mathbf{E}$  も  $\mathbf{D}$  もベクトルなので, 誘電率はテンソルになる. 一般的な場合, 誘電率テンソルは, 下記のような 9 個のテンソル要素で表すことができる. 各要素は複素数で  $\varepsilon_{ij} = \varepsilon'_{ij} + i\varepsilon''_{ij}$  と書かれる.

$$\tilde{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{zx} & \varepsilon_{zy} & \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} \quad (9)$$

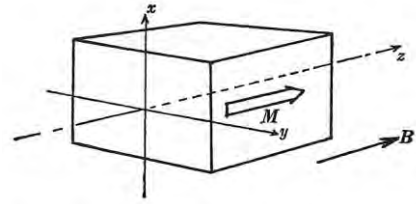
### 等方性の媒体の誘電率テンソル

媒体中の光の伝搬のしかたが光の進行方向によらないとき, その媒体は光学的に等方であるという. そのときの誘電率テンソルは, スカラーと同じなので, 等しい 3 つの対角成分  $\varepsilon_{xx}$  のみで表すことができる. すなわち,

$$\tilde{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{xx} \end{pmatrix} = \epsilon_{xx} \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (10)$$

・ 等方性物質が磁化をもつと

磁化をもたないとき等方性の媒質が、z 軸に平行な磁化  $M$  をもったとすると、比誘電率テンソルは z 軸のまわりの 任意の角度の回転に対して不変であるから、90° の回転、すなわち、回転  $C_4$  に対し不変でなければならない。



$$\tilde{\epsilon}' = C_4^{-1} \tilde{\epsilon} C_4 = \tilde{\epsilon} \quad (11)$$

回転の演算子

$$C_4 = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 0 \\ -1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

を用いて

$$\tilde{\epsilon}' = C_4^{-1} \tilde{\epsilon} C_4 = \begin{pmatrix} \epsilon_{yy} & -\epsilon_{yx} & -\epsilon_{yz} \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & \epsilon_{xz} \\ -\epsilon_{zy} & \epsilon_{zx} & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & \epsilon_{xz} \\ \epsilon_{yx} & \epsilon_{yy} & \epsilon_{yz} \\ \epsilon_{zx} & \epsilon_{zy} & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}$$

各要素を比較して

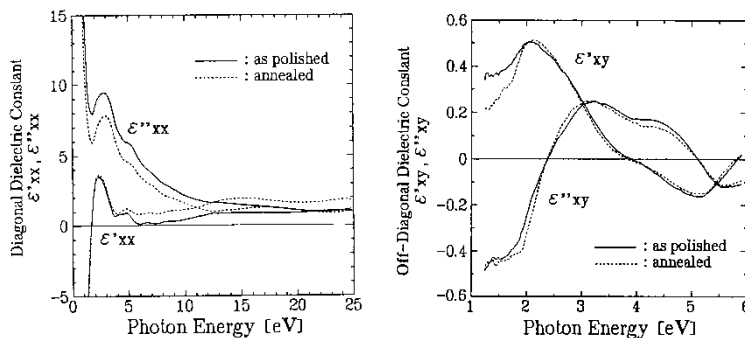
$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \epsilon_{yy} \\ \epsilon_{yx} &= -\epsilon_{xy} \\ \epsilon_{xz} = \epsilon_{yz} = \epsilon_{zx} = \epsilon_{zy} &= 0 \end{aligned}$$

この結果、等方性媒質に磁化を付与したときの比誘電率テンソルは  $\epsilon_{xx}$ 、 $\epsilon_{xy}$ 、 $\epsilon_{zz}$  の 3 つの要素だけを使って、次のように簡単に書ける。

$$\tilde{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix}$$

・ 誘電率のスペクトル

誘電率テンソルの対角・非対角成分の一例として、強磁性体 PtMnSb のバルク結晶において筆者等が測定したものを示す。 $\epsilon_{xx}$  も  $\epsilon_{xy}$  も光子エネルギーに依存する。左の図は放射光を用いて測定した反射スペクトルから Kramers-Kronig 解析で得られた 1~25eV における  $\epsilon_{xx}$  の実数部と虚数部のスペクトルである。右図は、光学遅延変調法により測定した磁気光学カー効果から求めた  $\epsilon_{xy}$  の 1~6eV のスペクトルである。



・ 磁化  $M$  の関数としての比誘電率

さて、磁気光学効果における各成分は  $M$  の関数なので、比誘電率テンソルは次式のように表せるはずである。

$$\tilde{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx}(M) & \varepsilon_{xy}(M) & 0 \\ -\varepsilon_{xy}(M) & \varepsilon_{xx}(M) & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz}(M) \end{pmatrix} \quad (13)$$

$\varepsilon_{ij}(M)$  を次式のように  $M$  でべき級数展開する。

$$\varepsilon_{ij}(M) = \varepsilon_{ij}^{(0)} + \sum_n \frac{1}{n!} \varepsilon_{ij}^{(n)} M^n \quad (14)$$

・ オンサガーの式

ノルウェーの化学者 Onsager は、誘電率は、磁化がある場合、誘電率テンソルの要素は非相反になるとした。すなわち、

$$\varepsilon_{ij}(-M) = \varepsilon_{ji}(M) \quad (15)$$

この Onsager の式を適用すると、対角成分は

$$\varepsilon_{xx}(M) = \varepsilon_{xx}(-M)$$

となり  $M$  について偶関数であることがわかる。一方、非対角成分については

$$\varepsilon_{xy}(M) = \varepsilon_{yx}(-M) = -\varepsilon_{xy}(-M)$$

が成り立つので、 $M$  について奇関数であることがわかる。

対角成分は  $M$  の偶数次のみ、非対角成分は  $M$  の奇数次のみで展開できる。

$$\begin{aligned} \varepsilon_{xx}(M) &= \varepsilon_{xx}^{(0)} + \sum_n \varepsilon_{xx}^{(2n)} M^{2n} / (2n)! \\ \varepsilon_{xy}(M) &= \sum_n \varepsilon_{xy}^{(2n+1)} M^{2n+1} / (2n+1)! \\ \varepsilon_{zz}(M) &= \varepsilon_{zz}^{(0)} + \sum_n \varepsilon_{zz}^{(2n)} M^{2n} / (2n)! \end{aligned} \quad (16)$$

$\varepsilon_{xy}(M)$  がファラデー効果やカー効果をもたらし、 $\varepsilon_{xx}(M)$  と  $\varepsilon_{zz}(M)$  の差が磁気複屈折（コットン・ムートン効果）の原因となる。

・ 誘電率と導電率

電流密度と電界の関係は次式であらわされる。

$$\begin{aligned} J &= \tilde{\sigma} E \\ J_i &= \sigma_{ij} E_j \end{aligned}$$

導電率（電気伝導率）のテンソルは

$$\tilde{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{yx} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \\ \sigma_{zx} & \sigma_{zy} & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \quad (17)$$

で表される。

誘電率と導電率には次の式で表される関係がある。



$$\varepsilon_{ij} = \delta_{ij} + i \frac{\sigma_{ij}}{\omega \varepsilon_0} \quad (18)$$

これを成分で書くと、対角成分、非対角成分は

$$\varepsilon_{xx} = 1 + i \frac{\sigma_{xx}}{\omega \varepsilon_0} \quad (19)$$

$$\varepsilon_{xy} = i \frac{\sigma_{xy}}{\omega \varepsilon_0}$$

誘電率と導電率の間には簡単な関係が成り立つので、媒質の光応答を表すときに、いずれを用いて記述してもよいが、一般には、金属を扱うときは $\sigma$ を、絶縁体であれば $\varepsilon$ を用いる。金属の $\varepsilon$ は、 $\omega \rightarrow 0$ の極限すなわち直流においては自由電子の遮蔽効果のために発散してしまうのに対し、 $\sigma$ は有限の値に収束するので都合がよいからである。

#### ・ マクスウェル方程式を解く

次のステップでは、誘電率テンソルをマクスウェルの方程式に代入して複素屈折率  $N$  の固有値を求める。ここで、電界、磁界の波動関数として

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= \mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t) \cdot \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) \\ \mathbf{H} &= \mathbf{H}_0 \exp(-i\omega t) \cdot \exp(i\mathbf{K} \cdot \mathbf{r}) \end{aligned} \quad (20)$$

を仮定し、マクスウェル方程式

$$\begin{aligned} \text{rot} \mathbf{E} &= -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \\ \text{rot} \mathbf{H} &= \tilde{\varepsilon} \varepsilon_0 \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \end{aligned} \quad (21)$$

に代入して、 $\mathbf{K}=(\omega/c)(n+i\kappa)$ の固有値と固有関数を求める。(21)の第2式を  $t$  で1回偏微分し  $\partial/\partial t$  と  $\text{rot}$  の順番を入れ替え、 $\partial \mathbf{H}/\partial t$  に第1式を代入し、 $\exp(-i\omega t+i\mathbf{K}r)$ の形の波動式を代入し、 $\mathbf{E}$  についての2次方程式を得る。

$$\text{rot} \left( \frac{1}{\mu_0} \text{rot} \mathbf{E} \right) = \tilde{\varepsilon} \varepsilon_0 \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2}$$

ここで  $\varepsilon_0 \mu_0 = \frac{1}{c^2}$  を用いると、次の式を得る。

$$\text{rot rot} \mathbf{E} = -\frac{\tilde{\varepsilon}}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} \quad (22)$$

をマクスウェルの方程式ということがある。ここで、 $\text{rot}$ 、 $\text{grad}$ 、 $\text{div}$  の間に成り立つ

$$\text{rot rot} \mathbf{E} = \text{grad div} \mathbf{E} - \nabla^2 \mathbf{E}$$

という公式を用いと、

$$\text{grad div} \mathbf{E} - \nabla^2 \mathbf{E} = -\frac{\tilde{\varepsilon}}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2}$$

ここに式(20)を代入すると

$$(\mathbf{E} \cdot \mathbf{K}) \mathbf{K} - |\mathbf{K}|^2 \mathbf{E} + (\omega/c)^2 \tilde{\varepsilon} \mathbf{E} = 0 \quad (23)$$

波数ベクトルの向きに平行で長さが  $N$  であるような屈折率ベクトル  $\hat{N}$  を用いると、(20)の第1式は

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp\{-i\omega(t - \hat{\mathbf{N}} \cdot \mathbf{r}/c)\} \quad (24)$$

となり、固有方程式(23)は、

$$\hat{N}^2 \mathbf{E} - (\mathbf{E} \cdot \hat{\mathbf{N}}) \hat{\mathbf{N}} - \tilde{\varepsilon} \mathbf{E} = 0 \quad (25)$$

によって記述できる。

#### ・ ファラデー配置の場合

磁化が z 軸方向にあるとして、z 軸に平行に進む波( $\hat{\mathbf{N}}//z$ )に対して式(24)は

$$E = E_0 \exp\{-i\omega(t - \hat{N}z/c)\} \quad (26)$$

と表される。固有方程式(25)は

$$\begin{pmatrix} \hat{N}^2 - \varepsilon_{xx} & -\varepsilon_{xy} & 0 \\ \varepsilon_{xy} & \hat{N}^2 - \varepsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & -\varepsilon_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} = 0 \quad (27)$$

と書ける。この式は下の 2 式に分けられる。

$$\begin{pmatrix} \hat{N}^2 - \varepsilon_{xx} & -\varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{xy} & \hat{N}^2 - \varepsilon_{xx} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix} = 0 \quad (28)$$

$$-\varepsilon_{zz} E_z = 0$$

第 2 式より光の進行方向の電界成分が存在するのは  $\varepsilon_{zz} = 0$  つまりプラズモンの存在する場合のみである。

第 1 式が有限の電界において成立するには、

$$\begin{vmatrix} \hat{N}^2 - \varepsilon_{xx} & -\varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{xy} & \hat{N}^2 - \varepsilon_{xx} \end{vmatrix} = 0 \quad (29)$$

が成立しなければならない。これより、 $\hat{N}$  の固有値として

$$\hat{N}_{\pm}^2 = \varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy} \quad (30)$$

を得る。 $\hat{N}_{\pm}$  に対応する固有関数は、

$$E_{\pm} = \frac{E_0}{2} (i \pm j) \exp\{-i\omega(t - \frac{\hat{N}_{\pm}}{c} z)\} \quad (31)$$

となる。 $\mathbf{E}_+$ 、 $\mathbf{E}_-$  は、それぞれ、右円偏光、左円偏光に対応する。

#### ・ ファラデー効果の現象論

テンソルの非対角成分が存在すると、(30)より、物質の左右円偏光に対する光学応答  $\hat{N}_{\pm}$  の違いを生じ、その結果ファラデー効果が生じる。式(30)より右左円偏光に対する複素屈折率の差  $\Delta\hat{N}$  は、比誘電率テンソルの対角・非対角成分を使って次式のように表すことができる

$$\Delta\hat{N} = \hat{N}_+ - \hat{N}_- = \sqrt{\varepsilon_{xx} + i\varepsilon_{xy}} - \sqrt{\varepsilon_{xx} - i\varepsilon_{xy}} \approx i\varepsilon_{xy} / \sqrt{\varepsilon_{xx}} \quad (32)$$

これを式(5)に代入すると、複素ファラデー回転角  $\Phi_F$  は



$$\Phi_F = -\frac{\omega}{2c} \cdot \frac{i\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}} l \quad (33)$$

となり、複素ファラデー回転角は比誘電率の非対角成分 $\varepsilon_{xy}$ に比例し、対角成分 $\varepsilon_{xx}$ の平方根に反比例することがわかる。これより、ファラデー回転角、ファラデー楕円率として次式を得る。

$$\begin{aligned} \theta_F &= -\frac{\omega}{2c} \cdot \frac{\kappa\varepsilon'_{xy} - n\varepsilon''_{xy}}{n^2 + \kappa^2} l \\ \eta_F &= -\frac{\omega}{2c} \cdot \frac{n\varepsilon'_{xy} + \kappa\varepsilon''_{xy}}{n^2 + \kappa^2} l \end{aligned} \quad (34)$$

#### ・ 極カー効果の現象論

極カー効果は直線偏光が入射したとき、反射光が楕円偏光となり、その楕円の長軸の向きが入射光の偏光方向に対して回転する現象である。この回転をカー回転角 $\theta_K$ で表し、楕円の長軸と短軸の比を楕円率 $\eta_K$ で表す。カー回転角は右円偏光と左円偏光に対する移相量の差に対応し、楕円率は左右円偏光に対する反射率の違いから生じる。

右円偏光および左円偏光に対する垂直振幅反射率 $\hat{r}_\pm$ は

$$\hat{r}_\pm = \frac{\hat{N}_\pm - n_0}{\hat{N}_\pm + n_0} \quad (35)$$

によって表すことができる(ここに $n_0$ は入射側媒体の屈折率)。

カー回転角 $\varphi_K$ は、複素振幅反射率(フレネル係数)を右円偏光に対して $r_+ \exp(i\theta_+)$ 、左円偏光に対して $r_- \exp(i\theta_-)$ とすると、

$$\varphi_K = \frac{\theta_+ - \theta_-}{2} \equiv \frac{\Delta\theta}{2} \quad (36)$$

で与えられる。また、カー楕円率 $\eta_K$ は次式で与えられる。

$$\eta_K = -\frac{|r_+| - |r_-|}{|r_+| + |r_-|} \equiv -\frac{1}{2} \frac{\Delta r}{r} = -\frac{1}{4} \frac{\Delta R}{R} \quad (37)$$

磁気カー回転角 $\varphi_K$ と磁気カー楕円率 $\eta_K$ をひとまとめにした複素カー回転 $\Phi_K$ を考える。

$$\Phi_K = \varphi_K + i\eta_K = \frac{\Delta\theta}{2} - i\frac{\Delta r}{2r} = -i\frac{1}{2} \left( \frac{\Delta r}{r} + i\Delta\theta \right) = -i\frac{\Delta\hat{r}}{2\hat{r}} \approx i\frac{1}{2} \ln \left( 1 - \frac{\Delta\hat{r}}{\hat{r}} \right) \approx i\frac{1}{2} \ln \left( \frac{\hat{r}_-}{\hat{r}_+} \right) \quad (38)$$

式(35)の $\hat{N}_\pm$ に $\varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy}$ を代入すると、若干の近似を使うことにより

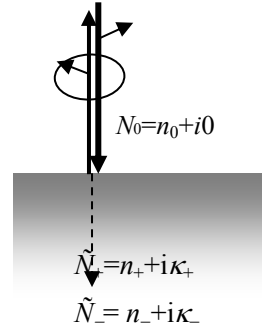
$$\hat{r}_\pm = \frac{\hat{N}_\pm - n_0}{\hat{N}_\pm + n_0} = \frac{\sqrt{\varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy}} - n_0}{\sqrt{\varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy}} + n_0} \approx \frac{\sqrt{\varepsilon_{xx}} (1 \pm i\varepsilon_{xy}/2\varepsilon_{xx}) - n_0}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} (1 \pm i\varepsilon_{xy}/2\varepsilon_{xx}) + n_0} \approx \hat{r} \left\{ 1 \mp \frac{i n_0 \varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} (n_0^2 - \varepsilon_{xx})} \right\} \quad (39)$$

ここに $\hat{r} = (\sqrt{\varepsilon_{xx}} - n_0) / (\sqrt{\varepsilon_{xx}} + n_0)$ は、偏光を考えないときのフレネル係数である。

式(39)の $\hat{r}_+$ 、 $\hat{r}_-$ を式(38)に代入して、若干の近似を使うと、複素極カー回転角は次式で表される。

$$\Phi_K = i\frac{1}{2} \ln \left( \frac{\hat{r}_-}{\hat{r}_+} \right) \approx i\frac{1}{2} \ln \left( 1 + \frac{i2n_0\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}(n_0^2 - \varepsilon_{xx})} \right) \approx \frac{n_0\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}(n_0^2 - \varepsilon_{xx})} \quad (40)$$

この式から、カー効果が誘電率の非対角成分 $\varepsilon_{xy}$ に依存するばかりでなく、分母に来る対角成分 $\varepsilon_{xx}$ にも



依存することがわかる．ここで、 $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{xx}' + i\varepsilon_{xx}'' = n^2 - \kappa^2 + i2n\kappa$ を使うと

$$\begin{aligned}\theta_\kappa &= n_0 \frac{n(n_0^2 - n^2 + 3\kappa^2)\varepsilon_{xy}' + \kappa(n_0^2 - 3n^2 + \kappa^2)\varepsilon_{xy}''}{(n^2 + \kappa^2)\left\{(n_0^2 - n^2 - \kappa^2)^2 + 4\kappa^2\right\}} \\ \eta_\kappa &= n_0 \frac{-\kappa(n_0^2 - 3n^2 + \kappa^2)\varepsilon_{xy}' + n(n_0^2 - n^2 + 3\kappa^2)\varepsilon_{xy}''}{(n^2 + \kappa^2)\left\{(n_0^2 - n^2 - \kappa^2)^2 + 4\kappa^2\right\}}\end{aligned}\quad (41)$$

という式を得る．ファラデー効果の場合と同様、カー回転角、カー楕円率は、 $\varepsilon_{xy}$ の実数部と虚数部の1次結合で表されるが、その係数は光学定数  $n, \kappa$  の複雑な関数で与えられることがわかった．

### 3. 磁気光学効果の電子論

#### 3.1 磁気光学効果の古典電子論

ここでは、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する．

#### ・ 誘電率と電気分極

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

$$\mathbf{D} \equiv \tilde{\varepsilon} \varepsilon_0 \mathbf{E} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (41)$$

一般に、電気分極  $\mathbf{P}$  は印加電圧に依存し、電気感受率テンソル  $\tilde{\chi}$  を用いて、次式のように表せる．

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \tilde{\chi} \mathbf{E} \quad (42)$$

比誘電率テンソルは  $\tilde{\chi}$  を用いて、

$$\tilde{\varepsilon} = 1 + \tilde{\chi} \quad (43)$$

成分で書くと

$$\varepsilon_{ij} = \delta_{ij} + \chi_{ij} \quad (44)$$

電気分極  $\mathbf{P}$  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  $\pm q$ 、相対変位ベクトル  $\mathbf{u}$ ) 密度を  $n$  とすると、 $\mathbf{P}$  は次式であらわされる．

$$\mathbf{P} = nq\mathbf{u} \quad (45)$$

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

#### ・ 電界・磁界のもとにおける荷電粒子の運動

電界  $\mathbf{E}$ 、静磁界  $\mathbf{B}$  のもとでの電荷  $q$  [C]、質量  $m$  [kg] の荷電粒子の運動を考える．荷電粒子の変位  $\mathbf{u} = (x, y, z)$  [m] について古典力学の運動方程式を立てると、

$$m \frac{d^2 \mathbf{u}}{dt^2} + m\gamma \frac{d\mathbf{u}}{dt} + m\omega_0^2 \mathbf{u} = q \left( \mathbf{E} + \frac{d\mathbf{u}}{dt} \times \mathbf{B} \right) \quad (46)$$

となる．ここに左辺第1項  $m d^2 \mathbf{u} / dt^2$  は慣性力を、第2項  $m\gamma d\mathbf{u} / dt$  は摩擦力、第3項  $m\omega_0^2 \mathbf{u}$  は復元力を表し、右辺  $q(\mathbf{E} + v \times \mathbf{B}) = q(\mathbf{E} + d\mathbf{u} / dt \times \mathbf{B})$  はローレンツ力を与える．ここで、 $\mathbf{B}$  は  $z$  軸に平行であるとする．すなわち、 $\mathbf{B} = (0, 0, B)$ ．また、 $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t)$ 、 $\mathbf{u} = \mathbf{u}_0 \exp(-i\omega t)$  という振動解を仮定すると運動方

程式は簡単になって

$$-m\omega^2 \mathbf{u} - im\omega\gamma \mathbf{u} + m\omega_0^2 \mathbf{u} = q(\mathbf{E} - i\omega \mathbf{u} \times \mathbf{B}) \quad (47)$$

これを  $x, y, z$  各成分について書くと、

$$\begin{aligned} m(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)x - i\omega qBy &= -qE_x \\ i\omega qBx + m(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)y &= -qE_y \\ m(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)z &= -qE_z \end{aligned} \quad (48)$$

という連立方程式が得られる。

連立方程式を解いて、変位  $\mathbf{u}=(x, y, z)$  を求めると、

$$\begin{aligned} x &= -\frac{q}{m} \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} E_x - \frac{q}{m} \frac{i\omega \omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} E_y \\ y &= \frac{q}{m} \frac{i\omega \omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} E_x - \frac{q}{m} \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} E_y \\ z &= -\frac{q}{m} \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2} E_z \end{aligned} \quad (49)$$

これより、 $\mathbf{P}=nq\mathbf{u}$  により分極  $\mathbf{P}$  を求めると、

$$\begin{aligned} P_x &= -\frac{nq^2}{m} \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} E_x - \frac{nq^2}{m} \frac{i\omega \omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} E_y \\ P_y &= \frac{nq^2}{m} \frac{i\omega \omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} E_x - \frac{nq^2}{m} \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} E_y \\ P_z &= -\frac{nq^2}{m} \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2} E_z \end{aligned} \quad (50)$$

式(50)を  $\mathbf{P}=\tilde{\chi}\varepsilon_0 \mathbf{E}$  すなわち、

$$\begin{aligned} P_x &= \varepsilon_0 (\chi_{xx} E_x + \chi_{xy} E_y) \\ P_y &= \varepsilon_0 (-\chi_{xy} E_x + \chi_{xx} E_y) \\ P_z &= \varepsilon_0 \chi_{zz} E_z \end{aligned} \quad (51)$$

と比較することにより電気感受率  $\tilde{\chi}$  のテンソル要素は、次式のように求められる。

$$\begin{aligned} \chi_{xx}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} \\ \chi_{xy}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{i\omega \omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} \\ \chi_{zz}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2} \end{aligned} \quad (52)$$

ここで、 $\omega_c=|qB/m|$  はサイクロトロン角振動数である。さらに、 $\varepsilon_{ij}=\delta_{ij}+\chi_{ij}$  を用いて、誘電率テンソルに変

換すると

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\
 \varepsilon_{xy}(\omega) &= -\frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{i\omega\omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\
 \varepsilon_{zz}(\omega) &= 1 - \frac{nq^2}{m\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}
 \end{aligned} \tag{53}$$

これより、非対角線分  $\varepsilon_{xy}$  は  $\omega_c$  に比例、従って、 $B$  に比例することがわかる。導電率テンソルで書くと

$$\begin{aligned}
 \sigma_{xx} &= i\omega\varepsilon_0(1 - \varepsilon_{xx}) = i\omega\varepsilon_0\omega_p^2 \frac{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\
 \sigma_{xy} &= -i\omega\varepsilon_0\varepsilon_{xy} = i\omega\varepsilon_0\omega_p^2 \frac{i\omega\omega_c}{(\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\
 \sigma_{zz} &= i\omega\varepsilon_0(1 - \varepsilon_{zz}) = i\omega\varepsilon_0\omega_p^2 \frac{1}{\omega^2 + i\omega\gamma - \omega_0^2}
 \end{aligned} \tag{54}$$

ここに、 $\omega_p$  は次式で表されるプラズマ角振動数である。

$$\omega_p = \sqrt{\frac{nq^2}{m\varepsilon_0}}$$

**磁界がかかっており束縛項がない場合**

$\omega_0=0$ 、とすると式(53)は

$$\begin{aligned}
 \varepsilon_{xx}(\omega) &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2 - \omega_c^2} \\
 \varepsilon_{xy}(\omega) &= -i \frac{\omega_p^2\omega_c}{\omega(\omega^2 - \omega_c^2)} \\
 \varepsilon_{zz}(\omega) &= 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}
 \end{aligned} \tag{55}$$

これより

$$N_{\pm}^2 = \varepsilon_{xx} \pm i\varepsilon_{xy} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega^2 - \omega_c^2)} (\omega \pm \omega_c) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega \mp \omega_c)} \tag{56}$$

これが、マグネトプラズマ共鳴である。

**ホール効果**

直流に対しては、式(55)において  $\omega \rightarrow 0$  とすればよく、

$$\begin{aligned}
 \sigma_{xx}(0) &= \varepsilon_0 \frac{\gamma\omega_p^2}{\gamma^2 + \omega_c^2} = \sigma_0 \frac{1}{1 + (\omega_c/\gamma)^2} \\
 \sigma_{xy}(\omega) &= i \varepsilon_0 \frac{\omega_c\omega_p^2}{\gamma^2 + \omega_c^2} = i\sigma_0 \frac{\omega_c}{1 + (\omega_c/\gamma)^2} \\
 \sigma_{zz}(\omega) &= \varepsilon_0 \frac{\omega_p^2}{\gamma} = \sigma_0
 \end{aligned} \tag{57}$$

ここに  $\sigma_0$  は直流伝導率である。

抵抗率テンソルに変換すると次式になる。

$$\rho_{xx} = \rho_{zz} = \frac{1}{\sigma_0}, \quad \rho_{xy} = R_H B$$

$$\hat{\rho} = \begin{pmatrix} 1/\sigma_0 & -R_H B & 0 \\ R_H B & 1/\sigma_0 & 0 \\ 0 & 0 & 1/\sigma_0 \end{pmatrix} \quad (58)$$

ここに  $R_H$  はホール係数である。

Fe の磁気光学効果は古典電子論で説明できるか？

Fe の比誘電率テンソルの非対角成分は、 $\epsilon_{xy} \approx 5$  程度なので

$$|\epsilon_{xy}(\omega_0)| = \left| \frac{\omega_p^2 \omega_c}{\omega_0(\gamma^2 + \omega_c^2)} \right| = 5$$

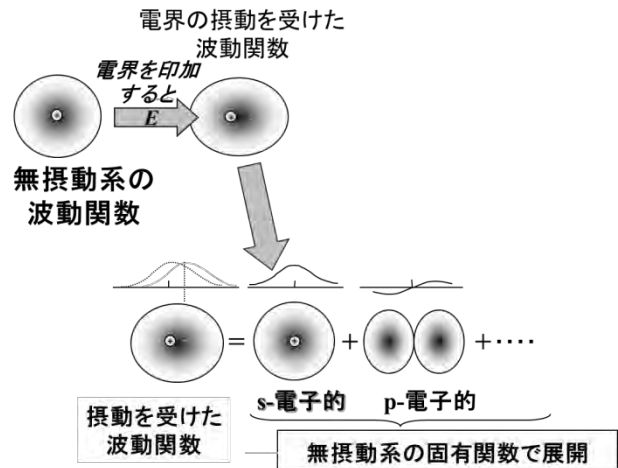
として、プラズマ周波数  $\hbar\omega_p = 2eV$ 、 $\hbar\omega = \hbar\omega_0 = 2eV$ 、 $\hbar\gamma = 0$  を代入すると、 $\hbar\omega_c = 0.4eV$  となり、

$B \approx 5000 \text{ T}$  という大きな内部磁界を仮定しなければならない。

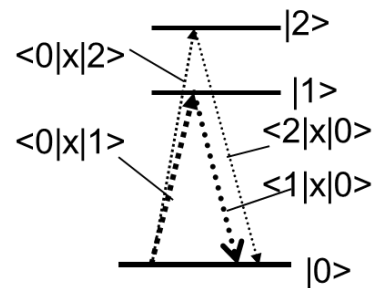
これを解決するには、次に述べる量子論によらなければならない。

### 3.2 磁気光学効果の量子論

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る。誘電率とは、物質に電界が加わったときの分極のしやすさを表す物理量である。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する。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る。この変化の様子を説明するのが「摂動論」である。



$$\begin{aligned} \chi_{xx}(\omega) &= \frac{2Nq^2}{\hbar\epsilon_0} \sum_j \omega_{j0} |\langle j|x|0 \rangle|^2 \left[ \frac{1}{\omega_{j0}^2 - \omega^2} \right] \\ &= \frac{2Nq^2}{\hbar\epsilon_0} \left( \frac{\omega_{10} |\langle 1|x|0 \rangle|^2}{\omega_{10}^2 - \omega^2} + \frac{\omega_{20} |\langle 2|x|0 \rangle|^2}{\omega_{20}^2 - \omega^2} + \dots \right) \end{aligned} \quad (59)$$



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」として扱う。「摂動を受けた場合の波動関数」を「無摂動系の固有関数」の 1 次結合として展開。この波動関数を用いて「電気双極子の期待値」を計算する。

## 時間を含む摂動論(1)

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

$$H_0\phi_0(\mathbf{r}) = \hbar\omega_0\phi_0(\mathbf{r}) \quad (60)$$

$$H_0\phi_j(\mathbf{r}) = \hbar\omega_j\phi_j(\mathbf{r})$$

$H_0$  は無摂動系のハミルトン演算子である.  $\hbar\omega_j$  は  $j$  番目の固有状態  $\phi_j(\mathbf{r})$  に対する固有エネルギーを表す.

$$\text{光の電界 } \mathbf{E}(t) = \mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t) + \text{c.c.} \quad (\text{c.c.} = \text{共役複素数}) \quad (61)$$

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ある.

摂動のハミルトニアン

$$H' = q\mathbf{r} \cdot \mathbf{E}(t) \quad (62)$$

摂動を受けた系のシュレーディンガー方程式

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = H\psi(\mathbf{r}, t) \equiv [H_0 + H']\psi(\mathbf{r}, t) \quad (63)$$

この固有関数を, 無摂動系の固有関数のセット ( $\phi_n$ ;  $n=0, 1, 2, \dots$ ) で展開する. 時間を含めるために  $\exp(-i\omega_n t)$  を付ける.

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \phi_0(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_0 t) + \sum_j c_j(t) \phi_j(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_j t) \quad (64)$$

この式を式(63)に代入し, 無摂動系の波動関数について成立する式(60)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る.

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

左から  $\phi_j^*(\mathbf{r}) \exp(i\omega_j t)$  をかけて,  $\mathbf{r}$  について積分すると次式がえられる.

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{dc_j(t)}{dt} &= \int d\mathbf{r} \phi_j^*(\mathbf{r}) \exp(i\omega_j t) H' \phi_0(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_0 t) \\ &\quad + \sum_{j'} c_{j'} \int d\mathbf{r} \phi_j^*(\mathbf{r}) \exp(i\omega_j t) H' \phi_{j'}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_{j'} t) \\ &= \langle j | H' | 0 \rangle \exp\{i(\omega_j - \omega_0)t\} + \sum_{j'} c_{j'} \delta_{j'j} \langle j | H' | j \rangle \exp\{i(\omega_j - \omega_{j'})t\} = \langle j | H' | 0 \rangle \exp(i\omega_{j_0} t) \end{aligned} \quad (65)$$

ここに  $\langle j | H' | 0 \rangle$  はディラックの表示で  $\int d\mathbf{r} \phi_j^*(\mathbf{r}) H' \phi_0(\mathbf{r})$  の積分を表している. また,  $\phi_j$  と  $\phi_{j'}$  の間の遷移行列は無視した.

$$i\hbar \frac{dc_j(t)}{dt} = \langle j | H' | 0 \rangle \exp(i\omega_{j_0} t) \equiv q \langle j | \mathbf{r} | 0 \rangle \cdot \mathbf{E}(t) \exp(i\omega_{j_0} t) \quad (66)$$

式(66)を積分することにより式(64)の展開係数  $c_j(t)$  が求められる.

$$\begin{aligned} c_{xj}(t) &= (i\hbar)^{-1} \int_0^t q \langle j | x | 0 \rangle E_{0x} [\exp(i\omega t) + \text{c.c.}] \exp(i\omega_{j_0} t) dt \\ &= q E_{x0} \langle j | x | 0 \rangle \left[ \frac{1 - \exp(i(\omega + \omega_{j_0})t)}{\hbar(\omega + \omega_{j_0})} + \frac{1 - \exp(i(-\omega + \omega_{j_0})t)}{\hbar(-\omega + \omega_{j_0})} \right] \end{aligned} \quad (67)$$

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る. (67) の  $c_{xj}(t)$  を (64) に代入して波動関数は

$$\psi(\mathbf{r}, t) = \phi_0(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_0 t) + \sum_j c_j(t) \phi_j(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_j t) \quad (68)$$

と求められる。これを用いて、分極が次のように求められる。

$$\begin{aligned} \langle P_x \rangle &= \langle Nq\dot{x}(t) \rangle = Nq \int \Psi^* \dot{x} \Psi dx \\ &= Nq \sum_j \left[ \langle 0|x|0 \rangle + \langle j|x|0 \rangle c_{xy}(t) \exp(i\omega_{j0}t) + \langle 0|x|j \rangle c_{xy}^*(t) \exp(-i\omega_{j0}t) + \dots \right] \\ &= Nq^2 \left[ \sum_j \frac{|\langle j|x|0 \rangle|^2}{\hbar} \cdot \left( \frac{1}{\omega_{j0} - \omega} + \frac{1}{\omega_{j0} + \omega} \right) \right] E_x(t) \end{aligned} \quad (69)$$

$P_x(\omega) = \chi_{xx}(\omega) \varepsilon_0 E_x$  より、感受率を求めると

$$\chi_{xx}(\omega) = \frac{Nq^2}{\hbar \varepsilon_0} \sum_j |\langle j|x|0 \rangle|^2 \left[ \frac{1}{\omega_{j0} - \omega} + \frac{1}{\omega_{j0} + \omega} \right] \quad (70)$$

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

$$\chi_{xx}(\omega) = \frac{Nq^2}{m\varepsilon_0} \sum_j m |\langle j|x|0 \rangle|^2 \left[ \frac{1}{\hbar(\omega_{j0} - \omega - i\gamma)} + \frac{1}{\hbar(\omega_{j0} + \omega + i\gamma)} \right] = \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \sum_j f_{xy} \frac{1}{\omega_{j0}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \quad (71)$$

ここに  $f_{xy} = 2m\omega_{j0} |\langle j|x|0 \rangle|^2 / \hbar$  は直線偏光の振動子強度である。

誘電率に変換すると、対角成分は次式のようになる。

$$\varepsilon_{xx}(\omega) = 1 + \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \sum_j f_{xy} \frac{(\omega_{j0}^2 - \omega^2 + \gamma^2) + 2i\gamma\omega}{(\omega_{j0}^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + 4\gamma^2\omega^2} \quad (72)$$

同様な手続きで、電気感受率の非対角成分は

$$\chi_{xy}(\omega) = \frac{\chi_{xy}(\omega) + \chi_{xy}^*(-\omega)}{2} = \frac{Nq^2}{2} \sum_j \left( \frac{\langle 0|y|j \rangle \langle j|x|0 \rangle}{\hbar(\omega_{j0} - \omega)} + \frac{\langle 0|x|j \rangle \langle j|y|0 \rangle}{\hbar(\omega_{j0} + \omega)} \right) \quad (73)$$

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

$$\chi_{xy}(\omega) = \frac{Nq^2}{2i\varepsilon_0\hbar} \sum_j \omega_{j0} \frac{|\langle 0|x^+|j \rangle|^2 - |\langle 0|x^-|j \rangle|^2}{\omega_{j0}^2 - \omega^2} \quad (74)$$

となる。ここに、 $|\langle 0|x^\pm|j \rangle|^2$  は右および左円偏光により基底状態 $|0\rangle$ から励起状態 $|j\rangle$ に遷移する確率である。

円偏光についての振動子強度を  $f_{j0}^\pm = m\omega_{j0} |\langle j|x^\pm|0 \rangle|^2 / \hbar$  と定義すると

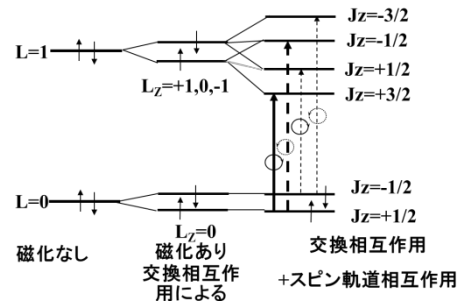
$$\varepsilon_{xy} = \chi_{xy}(\omega) = -i \frac{Nq^2}{2m\varepsilon_0} \sum_j \frac{f_{j0}^+ - f_{j0}^-}{\omega_{j0}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \quad (75)$$

が得られる。

### 磁化の存在がどう寄与するか

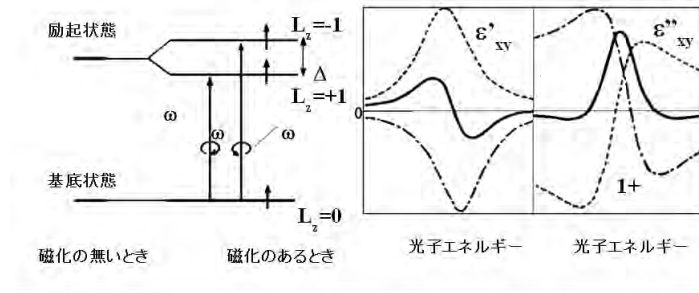
磁化が存在するとスピン状態が分裂する。しかし左右円偏光の選択則には影響しない。スピン軌道相互作用があつて初めて軌道状態の分裂に結びつく。右(左)回り光吸収は右(左)回り電子運動を誘起する。

単純な2準位系を考え、基底状態は $L=0$ 、励起状態が $L=1$ とすると、図のように磁化だけでは、軌道状態の分裂にはつながらない。また、 $T_c$  に比べ十分低温では最低準位にのみ分布すると仮定すると、図の太線で表す遷移のみとなる。図のようにスピン軌道相互作用で分かれた2つの電子準位への遷移からなる場合は、伝統的に反磁性項と呼ぶ。



#### 4. 磁気光学スペクトルの形(1)局在電子系 反磁性型スペクトル

左図のように単純化した電子構造を考え、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ると、誘電率の非対角成分の実数部・虚数部は右図のように表される。非対角成分の実数部のスペクトルは分散型、虚数部は両サイドに翼のあるベル形のスペクトルを示す。



#### 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  $\epsilon_{xy}''$  のピーク値は

$$\epsilon_{xy}'' \Big|_{\text{peak}} = \frac{Ne^2 f_0 \Delta_{SO}}{4m\epsilon_0 \omega \gamma^2} \quad (76)$$

となります。鉄の場合： $N=10^{28}\text{m}^{-3}$ ,  $f_0=1$ ,  $\hbar\Delta_{SO}=0.05\text{eV}$ ,  $\hbar\omega_0=2\text{eV}$ ,  $\hbar\gamma=0.1\text{eV}$  という常識的な値を代入  $\epsilon_{xy}'' \Big|_{\text{peak}}=3.5$  が得られ、観測値をほぼ説明できます。

この式から、大きな磁気光学効果を持つ条件は、

- ・ 光学遷移の振動子強度  $f$  が大きい
- ・ スピン軌道相互作用  $\Delta_{SO}$  が大きい
- ・ 遷移のピーク幅  $\gamma$  が狭い

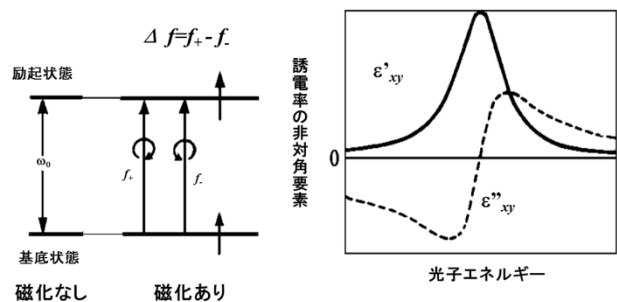
であることがわかります。

#### 常磁性型スペクトル

図に示すように、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  $\Delta f$  がある場合を考える。

$$\begin{aligned} \epsilon'_{xy} &= \frac{Ne^2 \Delta f}{m\epsilon_0 \tau} \cdot \frac{\omega_0}{(\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2 \gamma^2} \\ \epsilon''_{xy} &= \frac{-Ne^2 \Delta f}{2m\epsilon_0} \cdot \frac{\omega_0 (\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2)}{\omega \{ (\omega_0^2 - \omega^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2 \gamma^2 \}} \end{aligned} \quad (77)$$

この場合は、比誘電率テンソルの非対角成分の実数部はベル形、虚数部が分散型のスペクトルを示す。



#### 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しなければならない。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。

局在電子系では、各原子の応答は等しいものとして単位体積あたりの原子の数  $N$  をかけた。金属の場合は、 $k$ -空間の各点においてバンド計算から遷移エネルギーと遷移行列を求め、すべての  $k$  についての和をとる必要がある。電子状態がバンドで記述できる系について久保公式に基づいて誘電率テンソルの成分を求める式は Wang, Callaway により導出された。



運動量演算子 $\Pi$ を次のように定義する。

$$\Pi = p + \frac{\pi}{4mc^2} \sigma \times \nabla V(r) \quad (78)$$

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は、

$$\begin{aligned} \sigma_{\alpha\beta} = & \frac{iNq^2}{\omega + i\gamma} \left( \frac{1}{m^*} \right)_{\alpha\beta} - \frac{2iq^2}{m^2\hbar} \\ & \times \sum_{l,k}^{occunocc} \sum_{n,k} \left( \frac{\omega + i\gamma}{\omega_{nl}} \text{Re}(\langle l|\Pi^\alpha|n\rangle\langle n|\Pi^\beta|l\rangle) + i \text{Im}(\langle l|\Pi^\alpha|n\rangle\langle n|\Pi^\beta|l\rangle) \right) \frac{1}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \end{aligned} \quad (79)$$

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

となる。遷移行列要素はブロッホ関数の格子周期成分  $u(k, r)$  を用いて、

$$\langle l|\Pi^\alpha|n\rangle = \frac{(2\pi)^3}{\Omega} \int u_l^*(k, r) \left[ p^\alpha + \frac{\hbar}{4mc^2} (\sigma \times \nabla V(r))_\alpha \right] u_n(k, r) d^3r \quad (80)$$

と表される。

対角成分の実数部は、散乱寿命を無限大とすると、

$$\sigma'_{xx} = \text{Re}(\sigma_{xx}) = \frac{\pi q^2}{m^2\hbar} \sum_{l,k}^{occunocc} \sum_{n,k} |\langle l|\Pi^x|n\rangle|^2 \delta(\omega - \omega_{ln,k}) \quad (81)$$

非対角成分の虚数部は、

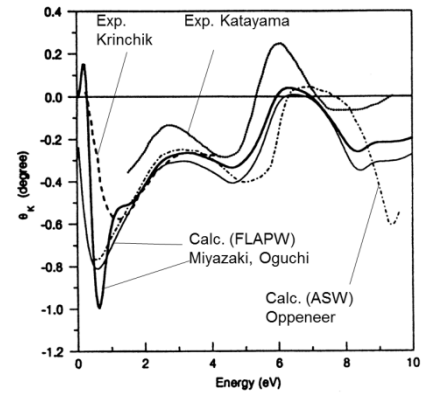
$$\begin{aligned} \sigma''_{xy}(\omega) = \text{Im}(\sigma_{xy}) &= \frac{2q^2}{\hbar m^2} \sum_{l,k}^{occunocc} \sum_{n,k} \frac{\text{Im}(\langle l|\Pi^x|n\rangle\langle n|\Pi^y|l\rangle)}{\omega_{nl}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \\ &= \frac{\pi q^2}{m^2\hbar\omega} \sum_{l,k}^{occunocc} \sum_{n,k} \text{Im}(\langle l|\Pi^x|n\rangle\langle n|\Pi^y|l\rangle) \delta(\omega - \omega_{nl,k}) \end{aligned} \quad (82)$$

$\Pi^\pm = \Pi^x \pm i\Pi^y$  によって  $\Pi^\pm$  に置き換えると、

$$\sigma''_{xy}(\omega) = \text{Im}(\sigma_{xy}) = -\frac{\pi q^2}{2m^2\hbar\omega} \sum_{l,k}^{occunocc} \sum_{n,k} \left( |\langle l|\Pi^+|n\rangle|^2 - |\langle l|\Pi^-|n\rangle|^2 \right) \delta(\omega - \omega_{nl,k}) \quad (83)$$

$\sigma_{xy}$  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  $\omega_{nm}$ 、および、 $\Pi^+$  と  $\Pi^-$  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。実際、そのような手続きは Wang と Callaway によって Fe, Ni についておこなわれた。最近、バンド計算技術が発展し、多くの物質で第1原理計算に基づく磁気光学スペクトルの計算がなされ、実験ときわめてよい一致を示すことが明らかになった。

Fe については、図に示すように、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る。



## おわりに

磁気光学効果は、誘電率テンソルの非対角成分により生じること、量子論にもとづいて非対角成分の実数部、虚数部を導くことにより、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明らかになった。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んだ。