光学応答の非局所理論

大阪大学基礎工学部　張　紀久夫（豊中4650）

要　旨

任意の大きさの物質による光学応答を正しく取り扱うために、シュレディンガー方程式と微視的マクスウェル方程式をセルフコンシステントに解く方式を与えた。その際、座標表示による分極率が一般に分離型積分核になることから、マクスウェルの微積分方程式が連立代数方程式に帰着される。この代数方程式の次数は分極率をどこまで正しく表現するかによって決まり、線形応答では１次、*n*次までの非線形応答では*n*次の方程式になる。この方法の特徴は、電磁気学として表面での境界条件が不要であること、応答電場の中に放射寿命の効果が（系の形や大きさを反映して）正しく含まれること、局所場のとりかたに応じて物質系ハミルトニアンの選び方を具体的に与えられることにある。

１．はじめに

これまで我々が学生として習い、研究者として使ってきた光学応答理論の基礎はいったいどこまできちんと出来ているのか、という疑問を抱いたことがないだろうか。例えば、

1）物質にはそれぞれに固有の誘電率というものがあって、それにより光学応答が記述されるが、そのような考え方は物質をいくら小さく（細く、薄く）しても使えるのだろうか、あるいは、巨視的マクスウェル（M）方程式でなく、微視的M方程式だけで光学応答理論を作れないものであろうか。

2）電磁気学では物質表面における境界条件というものがあって、それによって応答場の強度が計算されるが、ミクロな物質では表面がはっきりとは定義されないので、境界条件の議論は意味を失うのではなかろうか。

3）励起された物質は自然放出をしてより低いエネルギー状態に移るが、この過程はフォトン描像によってしか記述できないと多くの教科書に書いてある。しかし表面における固有モードのなかには放射減衰するものがあって、それは古典的なマクスウェル方程式で記述されている。

4）物質中の誘起分極のもととなる電場を考えるときに、外場と局所場が違うという厄介な問題にはすっきりした処方箋が与えられていないが、「物質系のハミルトニアンと外場（入射場）を与えて、それに対する局所場はこれこれ」、または「局所場という考えを一切用いないで応答を記述する」という具合いには定式化できないものか、

などのなかには、思い当たるものがあるのではなかろうか。

最近、薄膜、微粒子、量子井戸（細線、箱）など、いわゆるメゾスコピック系が研究対象として熱い視線をあびるようになってきたことに伴って、ミクロ・メゾ・マクロのサイズ領域を一貫して記述できるような理論が求められるようになった。この要請と上に述べた年来の諸疑問とを動機とし、以前われわれが展開したABC-free理論(1)をさらに発展させたものが以下に述べる非局所応答理論である。

2．非局所応答理論[2]

物質と光の相互作用は、当然のことながら荷電粒子と電磁場が共存する系の問題であり、両者は互いに他者の存在を反映した運動を行なう。すなわち、（微視的）M方程式を解くとベクトルポテンシャルAは電流密度j（または分極密度P、$j=\dot{P}$）の汎関数として

$$A=F[j]+A_0 \tag{1}$$

のように表され、一方量子力学により電流密度演算子の期待値を計算すると、jがAの汎関数として

$$j=G[A] \tag{2}$$

のように与えられる。A_0は自由場のベクトルポテンシャルで、実験的に外部からかける電磁場を表す。（このとき、通常の考え方に従ってクーロンゲージをとり荷電粒子間の瞬間的なクーロン相互作用は物質系のハミルトニアンに含ませておく。）この２つの関係式を連立方程式として解けば、物質と電磁場の運動が正しく求められる。これは何も新しいことを要求しているわけではなく、これら２つの基本方程式が本来含んでいる要請を、物質と電磁場のどちらに重みを置くということなく表現したに過ぎない。（Aも量子化した）完全な量子論では、物質や電磁場の演算子に対するハイゼンベルク運動方程式に互いに他の演算子が混ってくるので、両者が連立方程式になることは当然であるが、半古典論においてもそれは全く同様で、この点について半古典論が不完全ということはなく、もし従来の半古典論に不完全性があったとすれば半古典論としての定式化が不完全であったということに過ぎない。ここまでの段階ではなにも近似を含まないので、上述の連立方程式を解けばあらゆる電磁気的応答が求められるはずである。光学応答に付いても、共鳴吸収、散乱、回折など全てが(1)、(2)のなかに含まれている。

(2)の答えは一般にAの複雑な関数なので、そのままでは連立方程式を解くことが難しい。そこで(2)の表式を近似的に書き換えて、(1)と連立させる。このような近似的な連立方程式はいろいろなレベルでたてることができる。即ち、上述の(2)において、j（または分極P）をA（または電場E）の何次まで正しく取り入れて表現するかによって、その次数までの範囲でセルフコンシステントな方程式になる。線形応答の場合をPとEで表現すると、

$$P(x)=\int \chi(x,\ x')E(x')\,dx' \tag{3}$$

となる。ここで、χは座標表示の分極率である。このような非局所理論が単に絵にかいた餅でなく実行可能な理論であるのは、一般にχが分離型積分核になっているからである。ここで問題になるのは始めに述べた疑問４）で、上式のEとして何をとるべきかということである。この答えは実は一通りではなく、少なくとも次の二つがある。即ち、$E=(-1/c)\dot{A}$とするか、またはそれに反電場（Pが瞬間的につくる双極子場）を加えた電場をとるか、である。どちらをとるかに応じて（外場のないときの）物質系のハミルトニアンの形が違う。前者の場合は、荷電粒子間の相互作用として完全なクーロン相互作用をとるが、後者の場合には、そこから誘起分極の自己相互作用を差し引いておかねばならない。この自己相互作用の形は、物質系のハミルトニアンが与えられればその固有関数により具体的に書くことができる。どちらの立場をとるにしろ、微積分方程式としてのM方程式は線形連立方程式に帰着される。

その係数は、物質系のモデルを決めると、すべて既知の量になるので、その解から必要な物理量がすべて決まる。むろんこの定式化は任意のサイズと形状の物質に当てはまる。

非線形応答の場合、分極率は３つ以上の位置座標の関数となるが、積分核として分離型であることには変わりがないので、線形応答の場合と同様の取扱により、M方程式が n 次連立方程式に帰着される（n は考えている最高次の非線形の次数）。この場合、方程式を解くための数値計算の規模がかなり大きくなるが、ミクロなモデルから非局所性を正しく考慮して非線形応答が計算できるというメリットを考えると、十分にやりがいのある計算である[3]。

この定式化によれば物質系の情報は、量子力学的な境界条件を含めて、すべて分極率に反映されており、電磁気学としての境界条件は原理的に必要ない。普通、物質の電磁気学で境界条件が必要になるのは、分極率を場所によらない一定値と近似するために、物質が占める空間を（分極率の定義とは全く独立に）定義するためである。分極率を非局所的に定義すれば、境界の情報はその中に自動的に含まれるので、マクスウェルの境界条件はむろんのこと、付加的境界条件（ＡＢＣ）も不要になる。実際問題としては、共鳴準位の寄与だけを非局所的に表すことが多いが、その場合でも残りの準位による下地分極率を完全直交系展開の有限項で近似すれば、分極率に関する分離型積分核の性質を保った上で数値計算を実行できる[4]。

このセルフコンシステントな取扱の最大の特徴は、半古典論でありながら、応答電場の振動数依存性の中に、自然放出による幅とシフトを正しく（フォトン描像による結果と同じものを）含んでいることである。この幅とシフトは上述の線形連立方程式の係数行列の行列式のゼロ点から得られるので、任意の形状やサイズをもつ試料に対して放射寿命やそれに伴う共鳴ピークシフトを求めることができる。文献（４）では、同一の半導体球を直線状にならべていったとき、その共鳴散乱スペクトルに現われる自然放出の幅とシフトが初めサイズ増大し、やがて飽和してゆく様子が示されている。またマイクロキャビティによる自然放出の制御やフォトニックバンドの計算にも容易に応用できる。

参考文献

(1) K. Cho: J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 4113.

(2) K. Cho: Prog. Theor. Phys. Suppl. **106** (1991) 225.

(3) H. Ishihara and K. Cho: J. Nonlinear Opt. Phys. **1** (1992) 287.
石原　一：博士論文［大阪大学基礎工学部，１９９０年］

(4) Y. Ohfuti and K. Cho: Proc. Int. Symp. on Science and Technology of Mesoscopic Structures (Springer Verlag, 1992) in print.