

**Dynamical Diffraction Theory for Optical Wave Propagation
in Condensed Matter Systems**
(凝縮系における光の動的回折理論)

氏名 澤田 桂

フォトニック結晶による光の制御や高輝度 X 線自由電子レーザーの開発により、新しい光学現象の開拓が望まれている。そこで本研究では、こうした実験技術の進展に立脚した光学理論の構築を目的とする。

光は電磁波であり、Maxwell 方程式から導かれる次の波動方程式に従う：

$$\nabla \times \left[\frac{1}{\epsilon(\vec{r})} \nabla \times \vec{H}(\vec{r}) \right] = \frac{\omega^2}{c^2} \vec{H}(\vec{r}).$$

ここで $\epsilon(\vec{r})$ は媒質の誘電率、 $\vec{H}(\vec{r})$ は磁場、 ω は周波数で、 c は真空中の光速である。この方程式から、電磁波の挙動は誘電率 $\epsilon(\vec{r})$ の情報によって支配されることがわかる。従って、新現象予言のための指針としては、誘電率 $\epsilon(\vec{r})$ が特殊な性質をもつ物質を考えればよい。そこでまず特殊な物質の例として、時間反転対称性と空間反転対称性の両方が同時に破れたマルチフェロイックな物質に着目する。このような物質において発現する、光の進行方向に応じて屈折率が異なる光学効果 (光学的電気磁気効果) がもたらす新現象を開拓する。また、誘電率が周期的に変化する場合に電磁波の Bloch 波がもたらす性質として、歪みのある結晶における波束の伝搬の様子を調べる。本論文で得られた結果は、次の 3 つである：

- (a) フォトニック結晶における光学的電気磁気効果の増強
- (b) 光に作用するローレンツ力
- (c) 歪んだ結晶における X 線波束の巨大シフト

それぞれについて以下に詳しく述べる。

(a) フォトニック結晶における光学的電気磁気効果の増強

結晶の対称性の破れは光学効果と密接に関連している。例えば、chiral な系では光学活性が、時間反転対称性の破れた系では磁気光学効果が、これらは光の偏光状態に依存した効果である。一方、偏光に依存しない光学効果は、空間反転と時間反転の両方の対称性の破れを要求する。両方の対称性の破れたマルチフェロイクスと呼ばれる物質群では、光学的電気磁気 (Optical Magneto-Electric, OME) 効果と呼ばれる偏光に依存しない光学効果が存在し、光の進行方向に応じて屈折率が異なる。OME 効果では、 $\vec{T} \equiv \sum_i \vec{r}_i \times \vec{S}_i$ で表されるトロイダルモーメントが重要な役割を果たし、屈折率が $n = n_0 + \alpha \hat{k} \cdot \vec{T}$ と書ける。ここで $\hat{k} \equiv \vec{k}/|\vec{k}|$ は光の伝搬方向の単位ベクトルである。このトロイダルモーメントは物質の表と裏を区別する量であり、特に、強誘電かつ強磁性の物質に対しては、電気分極 \vec{P} と磁化 \vec{M} を用いて $\vec{T} \propto \vec{P} \times \vec{M}$ と考えることができるため、以下では簡単のためこのような場合で議論を進める。

OME効果は一般に非常に小さい。物質の表と裏の屈折率の差は高々 $n_{\rightarrow} - n_{\leftarrow} \sim 10^{-3}$ 程度であり、垂直入射の反射率の差に換算すると、 $R_{\rightarrow} - R_{\leftarrow} \sim 10^{-5}$ となって測定が困難である。そこで、本研究ではフォトニック結晶を使った OME 効果の増強法を提案する。

図 1(a) に示すように、トロイダルモーメントを周期性のある方向へ向けさせたフォトニック結晶(回折格子)を作り、垂直入射光を考えた。このとき、OME 効果は 1 次の回折光における左右の強度差として現れる。左右の回折光の反射率差 $R_{\rightarrow} - R_{\leftarrow}$ の周波数依存性を図 1 (b) に示す。反射率差は、回折格子の厚さ L と格子の周期 a の比率によって異なるが、 $R_{\rightarrow} - R_{\leftarrow} \sim 10^{-2}$ を示し、バルクの場合の反射率差と比べて 1000 倍にも増強されることがわかった。

このように、磁性と誘電性をあわせもつ物質の光学応答を増強させることは、応用に対しても有用である。外部磁場などで磁化 \vec{M} の向きを変えることでトロイダルモーメント \vec{T} の向きを制御することができる。従って、図 1 において磁場をかけて磁化を反転させることにより、 R_{\rightarrow} と R_{\leftarrow} の大きさを反転させられる。さらに、OME 効果は偏光によらない光学効果であるから、このようなマルチフェロイクスによるフォトニック結晶は、無偏光の光に対して波長分解のみならずスイッチとしての機能も果たすことができる。

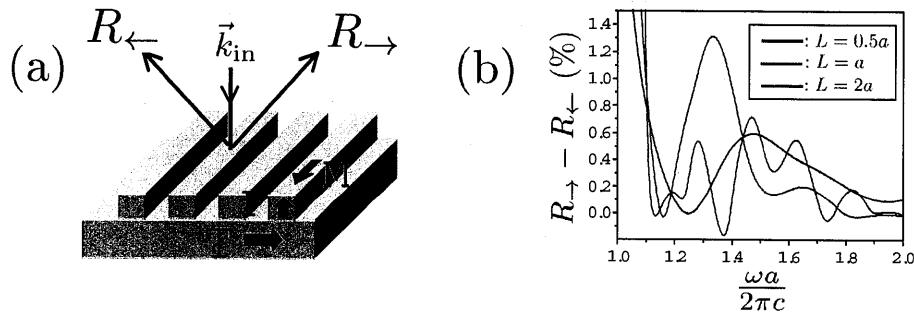


図 1: (a) マルチフェロイクスで作ったフォトニック結晶。周期性のある方向と \vec{T} の方向を一致させる。回折格子の周期を a 、厚さを L とする。(b) $R_{\rightarrow} - R_{\leftarrow}$ の周波数依存性。

(b) 光の「ローレンツ力」

電子と光のアナロジーは古くから知られている。しかし、光子は電荷をもたないため、磁場中の荷電粒子に働くローレンツ力に対応するような力は、知られていなかった。本研究では、OME 効果を用いることで、光線の進行方向に対して横向きに作用する「ローレンツ力」が実現できることを理論的に示す。

OME 効果は偏光によらない光学効果であるから、光の伝搬を記述するには幾何光学が有用である。トロイダルモーメントが空間変化するとき、幾何光学における光線の方程式 $\frac{d}{ds} \left[n(\vec{r}) \frac{d\vec{r}}{ds} \right] = \text{grad } n(\vec{r})$ に OME 効果の表式: $n = n_0 + \alpha \hat{k} \cdot \vec{T}(\vec{r})$ を代入すると、

$$n_0 \frac{d\hat{k}}{ds} + \alpha \frac{d}{ds} \left[(\hat{k} \cdot \vec{T}(\vec{r})) \hat{k} \right] = \text{grad } n_0 + \alpha (\hat{k} \cdot \nabla) \vec{T}(\vec{r}) + \alpha \hat{k} \times \text{rot } \vec{T}(\vec{r}) \quad (1)$$

が得られる。 \vec{T} をベクトルポテンシャルとみなせば、右辺第 3 項はローレンツ力に他ならない。従って、 \vec{T} の空間変化が光に対するローレンツ力を生み出す。このような空間変化をもつトロイダルモーメントは図 2 のようなドメイン壁で実現され、ドメイン壁を通過する光は向きを逆

転させても元の軌跡をたどれなくなる。図2における曲がり具合 δ は、ドメイン壁の幅を h 、厚さを l 、OME 効果の大きさを $a = (n_{\rightarrow} - n_{\leftarrow})/n_0$ とすると、 $\delta \sim \frac{l^2}{h^2} a$ と評価できる。典型的な物質として GaFeO_3 では、 $\delta \sim 1\mu\text{m}$ と見積もれる。従って、ドメイン壁を通る光による濃淡 (図2) は、光学顕微鏡で見えるオーダーであると期待される。

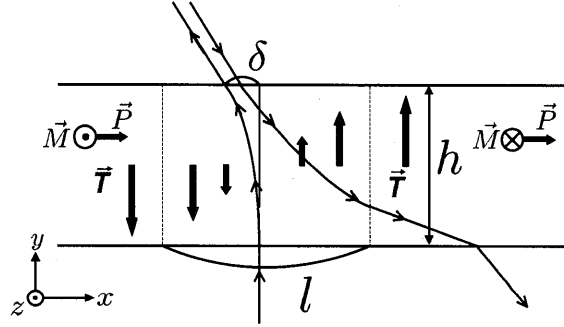


図2: トロイダルモーメントのドメイン壁における光の屈折。

(c) 歪んだ結晶における X 線波束の動的回折理論

X 線回折理論において、結晶中で多重散乱過程を考慮する X 線回折理論は動的回折理論と呼ばれる。動的理論では X 線は Bloch 波として記述される。

周期性のある誘電率をもつ物質中を伝搬すると電磁波は Bloch 状態として振舞う。誘電率の周期を \vec{a} であらわすと、 $\epsilon(\vec{r} + \vec{a}) = \epsilon(\vec{r})$ である。このとき、電磁場ベクトルは周期関数 $\vec{U}(\vec{r}) = \vec{U}(\vec{r} + \vec{a})$ を用いて $\vec{\Gamma}(\vec{r}) \equiv \frac{1}{\sqrt{2}}(\sqrt{\epsilon(\vec{r})}\vec{E}(\vec{r}), \sqrt{\mu(\vec{r})}\vec{H}(\vec{r})) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}}\vec{U}(\vec{r})$ と表される。この Bloch 状態を重ね合わせて、波数空間に鋭いピークをもつような波束を作り、波束の重心運動に対する解析力学を考える。波束は実空間と波数空間の両方に広がりをもつため、波束の力学を記述するには、重心の位置 \vec{r}_c と波数の重心 \vec{k}_c に関する運動方程式が便利である。そこでこれらに関する運動方程式を立てると、次式を得た。

$$\dot{\vec{k}}_c = -\frac{\partial\omega_n}{\partial\vec{r}_c} + \Omega_{\vec{r}\vec{k}} \cdot \dot{\vec{k}}_c + \Omega_{\vec{r}\vec{r}} \cdot \dot{\vec{r}}_c - \Omega_{t\vec{r}}, \quad (2)$$

$$\dot{\vec{r}}_c = \frac{\partial\omega_n}{\partial\vec{k}_c} - \Omega_{\vec{k}\vec{k}} \cdot \dot{\vec{k}}_c - \Omega_{\vec{k}\vec{r}} \cdot \dot{\vec{r}}_c + \Omega_{t\vec{k}}, \quad (3)$$

$$|\dot{z}_c\rangle = i\dot{\vec{r}}_c \cdot \vec{A}_r|z_c\rangle + i\dot{\vec{k}}_c \cdot \vec{A}_k|z_c\rangle, \quad (4)$$

ここで $\Omega_{\vec{r}\vec{k}}$ などは Berry 曲率と呼ばれ、 $(\Omega_{\vec{r}\vec{k}})_{\alpha\beta} \equiv i\langle\partial_{r_\alpha}\tilde{U}_{z_c}|\partial_{k_\beta}\tilde{U}_{z_c}\rangle - i\langle\partial_{k_\beta}\tilde{U}_{z_c}|\partial_{r_\alpha}\tilde{U}_{z_c}\rangle$ 。 $\vec{A}_{r,k}$ は Berry 接続と呼ばれ、波束を構成する Bloch 波の偏光を λ で指定すると、次式で定義される: $[\vec{A}_{r,k}]_{\lambda\lambda'} \equiv i\langle\tilde{U}_{n\lambda\vec{k}_c\vec{r}_c}|\nabla_{\vec{r}_c,\vec{k}_c}\tilde{U}_{n\lambda'\vec{k}_c\vec{r}_c}\rangle$ 。 また、 $|z_c\rangle$ は波束の偏光状態を表す。 (2) 式と (3) 式の右辺第 1 項が波面の伝播を表し、通常の幾何光学を再現する。右辺第 2 項以降および (4) 式が今回新しく得られたもので、Bloch 波で波束を作ったことにより幾何光学に補正が加わることを示している。この補正は数学的には Bloch 関数のもつ Berry 曲率に起因する。

実際に Berry 曲率が有限になる場合として、ここでは図3のように結晶格子において原子の位置が \vec{r} から $\vec{r} + \vec{u}(\vec{r})$ へと歪んだ場合を考えた。このとき、波束の運動方程式は \vec{r}_c に関する方程式が非自明な意味をもち、次式のように書ける: $\dot{\vec{r}}_c = \vec{v}_g - \Omega_{\vec{k}\vec{r}} \cdot \dot{\vec{r}}_c$ 。 右辺第 1 項 $\vec{v}_g = \nabla_{\vec{k}}\omega$ は

群速度を表す。第2項が今回新しく得られた群速度への Berry 位相による補正項であり、結晶歪みと関係している。Bragg 条件近傍で 2 波近似により運動方程式を解いた結果、次式を得た:

$$\vec{r}_c = \vec{v}_{gt} \pm \vec{G} \left[\vec{G} \cdot \vec{u}(\vec{r}_c) \right] \frac{\omega}{2\Delta\omega k^2} \equiv \vec{v}_{gt} \pm \Delta\vec{r}_c.$$

ここで、 $\Delta\omega$ は Bragg 散乱による分散関係のギャップの大きさである。この結果は、歪んだ結晶中を伝搬する波束の重心は群速度から予測される位置からシフトし、そのシフトは Berry 曲率で記述されることを意味する。 $\Delta\vec{r}_c$ の大きさは、ギャップの大きさ $\Delta\omega$ に反比例し、特に X 線の場合には $\omega/\Delta\omega \sim 10^6$ であるから、100 万倍もの増強因子を与える。従って、例えば 0.1nm の歪みに対して波束がその 100 万倍の 0.1mm シフトする。つまり、ミクロな歪みの情報が、波束のマクロなシフトとして観測できることを示している。

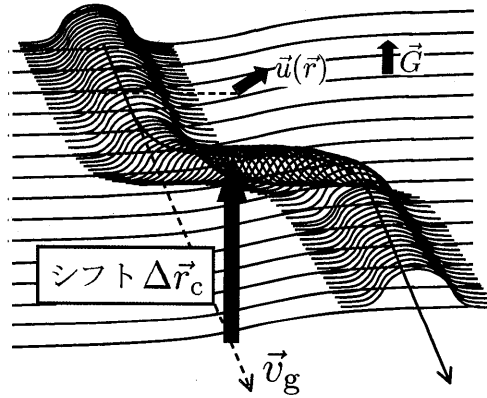


図 3: 歪みのある結晶中を伝わる X 線波束。波束は群速度から期待される位置から \vec{G} の方向へシフトし、シフトの大きさは歪みの 100 万倍に及ぶ。

まとめ

本論文では、時間・空間の対称性の破れた物質での光学効果を用いた新現象と、物質の周期構造を反映した新現象を理論的に発見した。

空間反転と時間反転の両方の対称性の破れたマルチフェロイクスにおける光学現象では、光の進行方向に応じて屈折率が異なるという光学的電気磁気 (OME) 効果に着目し、フォトニック結晶を工夫することで、OME 効果が数桁増強できることを見出した。

さらに、OME 効果で物質の裏表を規定するトロイダルモーメントの光学的意味を考察し、光にとってのベクトルポテンシャルの役割を果たすことを示した。特に、トロイダルモーメントのドメイン壁では光が同じ軌跡を逆にはたどれないという現象が起きることを発見した。

また、結晶の周期性に着目した現象として、X 線波束の運動方程式を導き、Bloch 関数のもたらす Berry 曲率が幾何光学の方程式に補正として加わることを指摘した。特に、歪みのある結晶中ではこのような Berry 曲率の影響で波束の重心位置がシフトし、その大きさは歪みの 100 万倍にも及ぶことを見出した。このような Berry 曲率は分散関係におけるギャップに反比例するので、X 線では Berry 曲率のもたらす現象が巨大な応答として得られ、X 線光学における理論的手法として Berry 位相によるアプローチが有用であることを示唆する。