

基礎工学部・物性物理工学科・固体理論講座



研究室紹介

張 紀久夫*

Faculty of Engineering Science, Department of Material Physics, Solid State Theory

Key Words : メゾスコピック系, 非局所性, 光学応答, サイズ・形状依存性
mesoscopic system, nonlocality, optical response, size and shape dependence

1. はじめに

私たちの理論研究室の内容がこの雑誌にふさわしいかどうか少し心許ないが、同じ学科の同様な先輩の方々もかつてここに紹介記事を書かれたことがあるというので、この原稿をお引き受けすることにした。

私たちの研究グループの成り立ちを私が関係した範囲でさかのぼってみると、1976年に吉森教授が東大物性研から、翌年初め私がドイツのマックスプランク固体研から助教授として、更にその4月以降に馬越・永吉両助手がそれぞれ着任して始まった研究グループである。吉森教授の時代には「固体表面の理論」が研究室の中心的テーマで、各メンバーがそれぞれの興味に関連させた表面物理の研究を展開していた。その後1988年に永吉氏が鹿児島大学に助教授として転出し、代わりに大淵助手が着任した。1990年に吉森教授が定年退官された後私がその研究室を引継ぎ、研究室の看板を表面物理から「メゾスコピック系などの量子閉じ込め系の

物理」へとシフトすることにした。昨1995年には研究室のメンバーにも大きな変化が起こり、4月に馬越氏が姫路工業大学に教授として転出、6月には石原助手が着任、11月には大淵氏が電気通信大学に助教授として転出した。更に今年2月には石原氏が助教授に昇任するとともに、4月からは新たに安食助手が着任している。

メゾスコピック系の物理は学問的興味に溢れた分野であるが、同時にわれわれの基礎工学部の建部の理念「科学と技術の融合」という面から言っても適切な研究テーマである。即ち、従来科学の対象としては存在しなかった「サイズ、形状、内部構造がnmスケールで制御された」物質相が技術の進歩によって再現性よく実現されるようになり、それにとまって従来の科学としては想定していなかった「試料のサイズがコヒーレンスの長さより小さい」という条件が普通に実現されるようになった。この条件下での物理量の研究は、従来はほとんど無視されてきた固体物理の新局面であると同時に、その研究を通して物質開発における新しい指導原理の発見という応用への可能性もはらんでいるため、上述の理念によく適合するわけである。

2. 研究の内容

ここでは現在の研究室のテーマ「メゾスコピック系の光学応答理論」について紹介させていただくことにする。このテーマは私自身の問題としては1980年代初めには既に手がけていたものであるが、その発端は半導体・絶縁体の励起

* Kikuo CHO
1940年11月1日生
1964年東京大学理学系大学院物理
コース修士課程修了
現在、大阪大学基礎工学部、物性
物理工学科、固体理論講座、教授、
理学博士、固体理論
TEL 06-850-6400
FAX 06-845-4632
E-Mail cho@mp.es.osaka-u.
ac.jp



子ポラリトンにおける付加的境界条件(ABC)の問題にある。これは一見したところかなり特殊な問題とみられがちであったが、実はその後の発展により次第に明らかになってきたことは、これが「固体の電磁応答における微視的理論の建設」という極めて普遍的であるが未発達の問題に直接につながっているということであった。

このあたりの事情がはっきりしてきた動機はメゾスコピック系という新しい物質群が物理研究の対象として出現してきたところにある。輸送現象にしる光学応答にしるメゾスコピック系に共通する基本的特徴は「物質系の量子力学的コヒーレンスが観測量に直接的に現れる」ということである。これは電気伝導や光学応答の計算に当たっては量子力学が与えるコヒーレンスをそのまま残した形で結果を導くべきであって、(巨視的応答理論でよくやるような)「原子よりは十分大きく、巨視的にみれば十分小さい領域にわたって場の量を平均する」といった単純化をしてはならないということの意味する。

メゾスコピック系というものが出てくる以前には、凝縮系のすべての物理量は示強性(intensive)の量と示容性(extensive)の量に分類されていたが、それは物質としては暗にマクロなものだけを想定しており、観測量に上述の巨視的平均化を施した上での考え方と言える。しかし物質系の大きさをミクロからマクロへと広い範囲で変えて考えてみると、例えばその物質系の感受率と言った量が系のサイズに依存して増大や飽和を示すことになり、もはや示強性とも示容性とも言えないことになる。

有名な Van Vleck の電氣的磁氣的感受率の理論¹⁾という本の冒頭の部分に「感受率のミクロな理論というものはマクロな測定量を説明するためのもので、新しい概念をつけ加えるためのものではないと考えられてきたし、また今もそう考えられている」とあるが、これはメゾスコピック系というものが、現実の試料としても理論家の頭の中にも、なかった時代のことである。このような考え方が定着していたためか、固体の光学応答を扱う巨視的な局所応答理論と量子電磁気学(QED)の間にあるはずの「微視的・非局所的な応答を扱う半古典論」はほとん

ど手をつけられずにいた。これがABC問題の研究とメゾスコピック系の出現を契機としてはっきりと意識されるようになったと言うわけである。

[ABC問題とABC-free理論]

結晶の誘電率 ϵ は光の振動数 ω の関数として表されるのが普通であるが、励起子共鳴の近くでは更に波数ベクトル \mathbf{k} に対する依存性も考慮する必要がある。このとき結晶中の電磁場の平面波の解($\exp[i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}-i\omega t]$)は $(ck/\omega)^2=\epsilon(\mathbf{k},\omega)$ から決まる分散関係を満たし、ポラリトンと呼ばれる固有連成モードになる。誘電率に波数依存性があるとこの方程式は一般に(1つの ω に対して)2つ以上の解 $\{k_j, j=1, 2, \dots\}$ を持ち、波数依存性のないときの解の数(=1)より媒質中で許される波の数が多いことになる。そうすると媒質の外と中とで波の数が異なるため、電磁気学で用いる通常の境界条件だけでは内外の波の振幅と位相を一意的に決定することができなくなる。その解決のためには何か余分の条件が必要と考えられるが、その条件がABCである。

この問題は1957年にPekar²⁾が言い出し、その後30年近くにわたってあれこれ議論されてきた³⁾。私たちも1982年頃からこの問題を手がけ始め、結局この問題の根本は、有限系(表面のある誘電体)の話と無限系の言葉で表現するところに生じる見かけ上の矛盾であり、物質に表面があることをあらわに考慮した誘電関数を用いてマクスウェル方程式を解けばABCに言及することなく応答が計算できることがわかった⁴⁾。我々はこの方法をABC-free理論と呼んでいるが、ここに現れる誘電関数は有限サイズの試料の中の座標 $(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ と ω に依存する関数である。この座標依存性は \mathbf{r}' に印加された電場が \mathbf{r} の位置に(分極または)電束密度を作るという非局所的な関係を表現しており、 \mathbf{r}, \mathbf{r}' がともに量子力学的コヒーレンスの範囲(励起状態の波動関数が覆う範囲)内にあることを反映している。ここで系のサイズを無限大にし並進対称を仮定した上で、 $\mathbf{r}-\mathbf{r}'$ についてフーリエ変換すると初めに述べた誘電関数の波数依存性が導かれる。

〔微視的・非局所応答理論〕

ABC問題はマクロな物質系の問題であるが、(上述の巨視的平均化をしていない) 微視的電磁場に対する誘電率(または分極率)を量子力学的に計算すると必ず上述の意味で非局所的になるので、ABC-free理論の枠組みはマクロからマイクロまでの非常に広い範囲になるように拡張することができる。とりわけ系の共鳴応答を扱うときには、共鳴に寄与する特定の励起状態の波動関数だけが(r, r')依存性を決める主因になるので、はっきりした非局所性が応答に現れる。メゾスコピック系の光学応答が関心を持たれているのは正にこのような状況下であり、これを通して応答の「サイズ・形状・内部構造(配列)」依存性が導かれる。

ABC-free理論のこのような拡張は極めて一般的な形で行うことができ、物質と輻射場の与えられた初期条件のもとで、誘起電流(または分極)密度と輻射場のベクトルポテンシャル(または電場)をセルフコンシステントに決めるという定式化がなされている⁵⁾。これは線形応答のみならず非線形応答にも適用できる。更に線形・非線形の感受率が場所の関数として(良い近似で)分離型積分核になることが一般的に示されるので⁶⁾、解くべき連立積分方程式は連立代数方程式に還元される。代数方程式の次数は考慮すべき非線形過程の次数に一致して、例えば線形応答の場合は連立1次方程式を解けば良い。

こうして作られた理論は「微視的かつ非局所的な(光学)応答理論」(以下、非局所理論)とでも呼ばれるものであるが、大局的な位置づけとしては従来の「巨視的で局所的な応答理論」(以下、局所理論)と「QED」の間に置かれるべきものである。従ってこれは局所理論を1つの極限として含む。またQEDとの比較では一般に場のゼロ点振動の扱いの差に依存する本質的な優劣があるが、これが個々の物理量としてどこにどれだけ現れてくるかはまだ十分な議論がされているとは言えない。

この非局所理論は以下のような特徴をもっている。

・感受率の座標依存性が物質の表面・界面の情

報を含んでいるので、応答を計算するとき(局所理論でやるような)物質表面での境界条件の議論が(ABCも含めて)要らない。

- ・感受率の中の共鳴エネルギーや行列要素を通じて試料の「サイズ・形状・内部構造(配列)」に対する依存性が応答に反映される。
- ・共鳴準位の放射寿命幅およびシフトが応答に含まれるが、幅はQEDによる自然放射の幅と同じ表式になる。
- ・周期配列を持つ系に対してはBragg散乱の効果が自然に含まれる。即ち共鳴吸収と回折が同じ形式で記述されている。
- ・外場と局所場の定義がはっきりしており、また局所場には外場と異なる波長成分も含まれる。

これを用いるとマクロからマイクロの系まで、従来の巨視的・局所的応答理論では扱えなかった問題に手が届くことになる。これまでに我々が取り上げた問題の主なものを以下に略述する。

1. 半導体微粒子系における輻射補正の配列依存性⁷⁾: 1個の微粒子のサイズを大きくするとその量子状態の振動子強度がサイズに比例して増大すること⁸⁾はよく知られているが、同じ大きさの微粒子を集めた系でも、全系のサイズや配列の仕方に応じて輻射場との結合強度が顕著に変化する。これを輻射寿命幅やシフトの試料サイズ・配列依存性として調べたもので、サイズとともに輻射補正が増大してやがて飽和するという合理的な振舞が示された。
2. 半導体薄膜におけるポンププローブ過程の膜厚依存性⁹⁾: 基底・第一励起状態間の遷移をポンプしたときの第一・第二励起状態間の遷移の共鳴スペクトルの変化を計算し、特にポンプ条件に応じた非線形信号の共鳴増大が存在することを理論的に予言した。これは非線形感受率の共鳴条件と内部電場の共鳴増大条件の2つを最適化するような二重共鳴条件に対応し、実験的には試料サイズと光エネルギーの2つを最適化することにより非線形信号を共鳴増大させるといふ、物質開発における新しい指導原理を示している。

3. 半導体薄膜における光学的シュタルク効果¹⁰⁾: 前項とは逆に第一・第二励起状態間をポンプしたとき基底・第一励起状態間の共鳴スペクトルに現れる非線形信号を計算した. ポンプ光による物質準位のシュタルクシフトの他に準位幅の増大や2光子吸収が同時に現れる. 膜厚をナノスケールから増大させると, サイズ量子化準位間の遷移において波数保存則が次第にはっきりと成立するようになる様子が明瞭に示された. スペクトル形状はプローブ光の内部電場の空間分布とその大きさにより大勢が決まっているということもわかった.
4. マイクロ共振器 DBR 中の量子井戸励起子の放射寿命¹¹⁾: 共振器の輻射モードと強く結合した励起子の放射寿命幅を面内波数ベクトル k および共振器の Q 値の関数として計算した. 特定の k の値で結合が強まること, Q 値が大きいと二つのモードが強く混合し k の変化に対して両者の間に乗り移りが起こることなどがわかった.
5. マイクロ共振器中の薄膜励起子による非線形信号強度: 共振器の強い電場と結合させることにより大きな非線形信号を得るための条件を考察した. 最低励起子準位への遷移のみを考える場合には, 内部電場と感受率の両方の共鳴増大条件が合わないため期待されるほどの信号強度は得られないこと, またこれを避ける方策として1励起子準位から励起子分子への遷移を利用すればよいことを示した.
6. 共鳴条件下の近接場光学顕微鏡 (SNOM) の理論¹²⁾: 細く尖らせた光ファイバーの先端を通して光を出し入れする SNOM を共鳴光で行うことにより, 試料に誘起される分極の (r, ω) 分布を描き出すことは, 単に試料の像を見る以上に電子構造についての情報も与える. そのような分布の計算をモデル系について行うとともに, もっと定性的な側面として, 反射モード SNOM では電気双極子遷移も高次多重極子遷移も同程度の強度で現れることを示した.
7. フォトニックバンドの理論: 周期場中の輻

射場のバンド構造を計算するための新しい方法を提案し, 実際いくつかの単位胞構造モデルに対して数値計算を行った. 標準的に用いられている平面波展開法に比べて収束性がよく, 従ってさまざまな構造に対する計算ができることがわかった.

8. Mössbauer 共鳴回折や optical lattice 中の原子による Bragg 散乱: 回折と共鳴が共存する問題で, 物質と輻射場の相互作用の強さを表す輻射寿命幅が Bragg 条件下で大きくなる性質を一般的に導く試みを行っている.

これらの仕事の邦文によるまとめや紹介記事は¹³⁾を参照されたい.

3. おわりに

固体のミクロな電磁気学としてやるべきことはまだまだありそうであるが, もう一本の脚である応用指向の研究としては, 上述の2で述べた結果の他にも有効な物質開発の指導原理を見いだす努力と, 現実的な物質のモデルを用いた信号強度の見積を行うことが今後の重要な課題である. その点では, 理論家ながら企業(三菱電機)の研究所で5年間しっかりと経験を積んできた石原助教授の活躍が期待される.

現在の物理学では基礎的な部分は殆ど研究され尽くしてしまっていて, 残る問題は難しいことばかりと言う人もいるが, 物質系のコヒーレンスをまじめに考慮した応答の理論は基礎的問題として残された数少ない楽園の一つかも知れないので, 楽しみながら研究を続けたいと思っている.

文 献

- 1) J. H. Van Vleck : *Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities* (Oxford, 1932) p.1
- 2) S. I. Pekar : *Sov. Phys. JETP* 6 (1957) 785
- 3) J. L. Birman : *Excitons*, ed. E. I. Rashba and M. D. Sturge (North Holland, 1982) pp.72, P. Halevi : *Spatial Dispersion in Solids and Plasmas*, ed. P. Halevi

- (Elsevier, 1992) pp.339
- 4) K. Cho : J. Phys. Soc. Jpn. 55 (1986) 4113
 - 5) K. Cho : Prog. Theor. Phys. Suppl. 106 (1991) 225
 - 6) Y. Ohfuti and K. Cho : Phys. Rev. B52 (1995) 4828, : Proc. DPC' 95, J. Luminescence (to be published)
 - 7) Y. Ohfuti and K. Cho : Phys. Rev. B51 (1995) 14379
 - 8) E. Hanamura : Phys. Rev. B37 (1988) 1273
 - 9) H. Ishihara and K. Cho : Phys. Rev. B48 (1993) 7960, : Solid State Commun. 89 (1994) 837
 - 10) N. Matsuura and K. Cho : J. Phys. Soc. Jpn. 64 (1995) 651
 - 11) K. Odani, Y. Ohfuti and K. Cho : Solid State Commun. 87 (1993) 507
 - 12) K. Cho, Y. Ohfuti, and K. Arima : Jpn. J. Appl. Phys. Suppl. 34-1 (1995) 267, : *Proc. Int. Symp. on Dynamical Quantum Processes on Solid Surfaces*, to be published in Surf. Sci. (Elsevier)
 - 13) 張紀久夫 : 数理科学 No. 352-10 (1992) p.22 ; 応用物理 62(1993)902 ; 「レーザー光学物性」(丸善, 1993)第四章, 石原 一, 張紀久夫 : 固体物理 27(1992)34, 大淵泰司, 張紀久夫 : 固体物理 30 (1995) 781

