全量子論的な微視的非局所理論における Green 関数法

馬場 基彰 [A,C], 石原 一 [B,C]

[A] 大阪大学大学院 基礎工学研究科, [B] 大阪府立大学大学院 工学研究科, [C]CREST-JST

Green's function techniques in full-quantum microscopic nonlocal theory

Motoaki Bamba[A,C], Hajime Ishihara[B,C]

[A] *Graduate School of Engineering Science, Osaka University*,

[B] *Graduate School of Engineering, Osaka Prefecture University*, [C] *CREST-JST*

Abstract

We have constructed full-quantum theory for optical processes of excitons in arbitrary structured dielectrics with considering microscopic nonlocality caused by their center-of-mass motion. This theory enables us to discuss quantum mechanical properties of exciton-polaritons not only in bulk materials but also in nano-structures where excitons are weakly confined. And this theory has a good correspondence with the perturbation techniques for Green's functions of many-particle systems.

1 はじめに

凝縮系の光学応答を議論する際には，物質系は量子的に，光は古典的に扱う半古典的な理論がよく成功しているが，最近話題になっている励起子分子状態を介した量子もつれ光子対生成などの議論には光の量子論的記述が不可避であり [1]，凝縮系における量子電磁気学 (QED) 理論の必要性が高まってきている．分散と吸収のある誘電媒質中での QED に関しては盛んに研究が行われているが [2, 3]，物質系の扱いが巨視的であり，励起子の重心運動などに由来する微視的な非局所性まで考慮した議論はほとんど行われていない．そのような研究は主に半古典的枠組みの中で議論されており，付加的境界条件 (ABC) を用いる手法のほかに，非局所性をあからさまに考慮した議論などがなされている [4]．我々は [1] の理論研究を行うにあたり，[2, 4] の理論に基づくことで電磁場の量子性と微視的非局所性の両方を考慮できる理論を構築した．本論文ではその理論の詳細と，いわゆる多粒子系の量子論における Green 関数の摂動展開との対応について報告する．

2 全量子論的な微視的非局所理論と Green 関数の関係

物質系として励起子と局所的な感受率しか持たない背景媒質を考え，後者と輻射場からなる系については [2] に基づいて記述し，その系と励起子との相互作用によって輻射過程を，励起子と相互作用する熱浴を導入することで非輻射過程を記述する．ただし，励起子はその Bohr 半径に比べて十分大きい領域で重心運動すると考える．励起子系の Hamiltonian を $H_{\rm mat}$，[2] で議論されているものを $H_{\rm em}$，それらの相互作用を $H_{\rm int}$ と書くことにし，$H = H_{\rm em} + H_{\rm int} + H_{\rm mat}$ を議論する．相互作用は

$$H_{\rm int} = -\int {\rm d}\boldsymbol{r} \left[\boldsymbol{I}_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) \cdot \boldsymbol{A}(\boldsymbol{r}) - \frac{1}{2} N_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) \boldsymbol{A}^2(\boldsymbol{r}) \right] + \int {\rm d}\boldsymbol{r}\ \phi_{\rm bg}(\boldsymbol{r}) \rho_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) + \frac{1}{2} \int {\rm d}\boldsymbol{r}\ \phi_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) \rho_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) \quad (1)$$

と表され，始めの 2 項は励起子と輻射場間の相互作用であり，$\boldsymbol{A}(\boldsymbol{r})$ はベクトルポテンシャル，$\boldsymbol{I}_{\rm ex}(\boldsymbol{r})$ は励起子による電流密度から輻射場の寄与を除いたもの，$N_{\rm ex}(\boldsymbol{r})$ はその寄与の係数であり，全電流密度は $\boldsymbol{J}_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) = \boldsymbol{I}_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) - N_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) \boldsymbol{A}(\boldsymbol{r})$ と表される [4]．また，第 3 項は背景媒質と励起子間の，最終項は励起子自身の誘起電荷間 Coulomb 相互作用であり，$\rho_{\rm ex}(\boldsymbol{r})$ は励起子による電荷密度，$\phi_{\rm ex}(\boldsymbol{r}) \equiv \int {\rm d}\boldsymbol{r}'\ \rho_{\rm ex}(\boldsymbol{r}')/4\pi\epsilon_0|\boldsymbol{r} - \boldsymbol{r}'|$ はそれによる Coulomb ポテンシャルであり，$\phi_{\rm bg}(\boldsymbol{r})$ は背景媒質によるポテンシャルである．最終項は電子正孔間交換相互作用すなわち励起子の縦横分裂を与えるもの

であり，本来 $H_{\rm mat}$ に含めるべきであるが，励起子分極と電場の縦場間相互作用とも見なすことができるため，ここでは $H_{\rm int}$ に含めて議論する．一方，励起子系については

$$H_{\rm mat} = \sum_{\mu} \hbar\omega_{\mu} b_{\mu}^{\dagger} b_{\mu} + \sum_{\mu} \int_{0}^{\infty} {\rm d}\Omega \big\{ \hbar\Omega \; d_{\mu}^{\dagger}(\Omega) d_{\mu}(\Omega) + \big[b_{\mu} + b_{\mu}^{\dagger} \big] \, \big[g_{\mu}(\Omega) d_{\mu}(\Omega) + g_{\mu}^{*}(\Omega) d_{\mu}^{\dagger}(\Omega) \big] \big\} \quad (2)$$

を扱う．ここで，$\hbar\omega_{\mu}$, b_{μ} は μ 状態励起子の固有振動数と消滅演算子であり，交換関係 $[b_{\mu}, b_{\mu'}^{\dagger}] = \delta_{\mu,\mu'}$, $[b_{\mu}, b_{\mu'}] = 0$ を満たす．ただし，電子正孔間交換相互作用を $H_{\rm int}$ に含めたため，$\hbar\omega_{\mu}$ には縦横分裂が含まれていないものとする．$d_{\mu}(\Omega)$ は Ω で振動する熱浴の振動子を表し，μ 状態励起子と結合係数 $g_{\mu}(\Omega)$ で相互作用し，交換関係 $[d_{\mu}(\Omega), d_{\mu'}^{\dagger}(\Omega')] = \delta_{\mu,\mu'}\delta(\Omega - \Omega')$, $[d_{\mu}(\Omega), d_{\mu'}(\Omega')] = 0$ を満たす．

系を構成する種々の演算子に対する Heisenberg 方程式を導き，それらを [2] と同様に Laplace 変換した後に，代数的な演算をすることで，電場 $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = -\dot{\boldsymbol{A}}(\boldsymbol{r},t) - \boldsymbol{\nabla}\phi_{\rm bg}(\boldsymbol{r},t) - \boldsymbol{\nabla}\phi_{\rm ex}(\boldsymbol{r},t)$ の正の ω-Fourier 成分 $\hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r},\omega) = (2\pi)^{-1} \int_{-\infty}^{\infty} {\rm d}t \; \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) \; {\rm e}^{{\rm i}\omega t}$ に対する Maxwell 波動方程式

$$\boldsymbol{\nabla} \times \boldsymbol{\nabla} \times \hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r},\omega) - (\omega^2/c^2) \; \epsilon_{\rm bg}(\boldsymbol{r},\omega) \hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r},\omega) = {\rm i}\mu_0\omega \hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r},\omega) + \mu_0\omega^2 \hat{\boldsymbol{P}}_{\rm ex}^{+}(\boldsymbol{r},\omega) \quad (3)$$

が得られる．ここで，背景媒質の誘電関数 $\epsilon_{\rm bg}(\boldsymbol{r},\omega)$ によってその空間構造が反映され，励起子分極 $\hat{\boldsymbol{P}}_{\rm ex}^{+}(\boldsymbol{r},\omega)$ によって励起子の運動が記述される．この波動方程式は古典的な Maxwell 方程式と同じ形式をしており，右辺に現れるノイズ電流密度 $\hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r},\omega)$ によって電磁場の量子性が記述される．この演算子は，いわゆる Langevin 方程式におけるノイズ演算子に対応し，方程式 (3) を導くにあたって自動的に現れるものであり，その交換関係は，系を構成する種々の演算子の基本的な交換関係から導かれ，

$$[\hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r},\omega), \{\hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r}',\omega')\}^{\dagger}] = \delta(\omega-\omega')\delta(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}') \frac{\epsilon_0\hbar\omega^2}{\pi} {\rm Im}[\epsilon_{\rm bg}(\boldsymbol{r},\omega)] \boldsymbol{1}, \quad [\hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r},\omega), \hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r}',\omega')] = \boldsymbol{0} \quad (4)$$

を満たす．これは局所的な媒質と輻射場のみを議論した [2] における同様の演算子の交換関係と全く同じ形式をしており，誘電関数の虚部によって特徴づけられる．Maxwell 波動方程式 (3) は，方程式 $\boldsymbol{\nabla} \times \boldsymbol{\nabla} \times \mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega) - (\omega^2/c^2) \; \epsilon_{\rm bg}(\boldsymbol{r},\omega) \mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega) = \delta(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')\boldsymbol{1}$ を満たす Green 関数 $\mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)$ を用いることで，電場について解くことができ，

$$\hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r},\omega) = {\rm i}\mu_0\omega \int {\rm d}\boldsymbol{r}' \; \mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega) \cdot \hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r}',\omega) + \mu_0\omega^2 \int {\rm d}\boldsymbol{r}' \; \mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega) \cdot \hat{\boldsymbol{P}}_{\rm ex}^{+}(\boldsymbol{r}',\omega) \quad (5)$$

が得られる．第 2 項は励起子によって誘起された場であり，第 1 項は励起子と相互作用する前の電場つまり背景場と見なすことができ，以後 $\hat{\boldsymbol{E}}_0^{+}(\boldsymbol{r},\omega)$ と書くことにする．この背景場は古典論においては波動方程式 (3) の斉次解として通常与えられるが，[2] に基づいて電磁場の量子性を記述する際にはノイズ電流密度 $\hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r},\omega)$ によって表され，その交換関係 (4) と [3] の (1.54) で示されている関係 $\int {\rm d}\boldsymbol{s} \; (\omega^2/c^2) \; {\rm Im}[\epsilon_{\rm bg}(\boldsymbol{s},\omega)] \mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{s},\omega) \cdot \mathsf{G}^{*}(\boldsymbol{s},\boldsymbol{r}',\omega) = {\rm Im}[\mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)]$ から，$\hat{\boldsymbol{E}}_0^{+}(\boldsymbol{r},\omega)$ 自身の交換関係

$$[\hat{\boldsymbol{E}}_0^{+}(\boldsymbol{r},\omega), \hat{\boldsymbol{E}}_0^{-}(\boldsymbol{r}',\omega')] = \delta(\omega-\omega') \; (\mu_0\hbar\omega^2/\pi) \; {\rm Im}[\mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)], \quad [\hat{\boldsymbol{E}}_0^{+}(\boldsymbol{r},\omega), \hat{\boldsymbol{E}}_0^{+}(\boldsymbol{r}',\omega')] = \boldsymbol{0} \quad (6)$$

が得られる．ここで，${\rm Im}[\epsilon_{\rm bg}(\boldsymbol{r},\omega)] \to 0$ の極限においては，$\hat{\boldsymbol{J}}_0(\boldsymbol{r},\omega)$ が自身と交換できることが (4) から分かるが，背景場の交換子 (6) については値が残り，それは輻射場の真空揺らぎに対応する．特に $\epsilon_{\rm bg}(\boldsymbol{r},\omega) \to 1$ の極限においては，(6) は一般的な QED 理論における真空中での交換関係を再現し，(5) に対して新たに斉次解を付け加える必要のないことが分かる．一方，交換関係 (6) は背景電場に対する遅延 Green 関数 $\mathfrak{D}^{{\rm R}(0)}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',t-t') \equiv -{\rm i}\theta(t-t') \, \langle [\boldsymbol{E}_0(\boldsymbol{r},t), \boldsymbol{E}_0(\boldsymbol{r}',t')] \rangle$ の ω-Fourier 成分と Maxwell 波動方程式に対する Green 関数 $\mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)$ が等価であることを意味している，すなわち $\mathfrak{D}^{{\rm R}(0)}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega) = -(\mu_0\hbar\omega^2/2\pi)\mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)$ である．この等価性は一般によく知られたものであり，背景場の交換関係 (6) が自然な形をしていることが分かる．

次に Maxwell 波動方程式 (3) もしくは (5) に現れる励起子分極 $\hat{\boldsymbol{P}}^{+}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\omega)$ の運動を記述する．分極演算子は励起子演算子を用いて展開することができ，回転波近似を用いれば，その正の ω-Fourier 成分は $\hat{\boldsymbol{P}}^{+}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\omega)=\sum_{\mu}\boldsymbol{\mathcal{P}}_{\mu}(\boldsymbol{r})\,\hat{b}_{\mu}(\omega)$ と表される．ここで，励起子の相対運動がバルク中と等価であると見なせば，展開係数 $\boldsymbol{\mathcal{P}}_{\mu}(\boldsymbol{r})=\mathcal{P}_{\mu}\boldsymbol{e}_{\mu}G_{\mu}(\boldsymbol{r})$ は励起子の重心運動波動関数 $G_{\mu}(\boldsymbol{r})$ と分極方向の単位ベクトル $\boldsymbol{e}_{\mu}$ に比例し，$\mathcal{P}_{\mu}$ は縦横分裂 $\Delta^{\mu}_{\rm LT}=|\mathcal{P}_{\mu}|^{2}/\epsilon_{0}\epsilon_{\rm bg}$ によって見積もることができる．励起子と熱浴振動子に対する Heisenberg 方程式を導き，[2] と同様に Laplace 変換の手法を用いれば，励起子演算子の ω-Fourier 成分が $\omega\sim\omega_{\mu}$ において

$$[\hbar\omega_{\mu}-\hbar\omega-{\rm i}\gamma_{\mu}(\omega)/2]\,\hat{b}_{\mu}(\omega)=\int{\rm d}\boldsymbol{r}\;\boldsymbol{\mathcal{P}}^{*}_{\mu}(\boldsymbol{r})\cdot\hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r},\omega)+\hat{\mathcal{D}}_{\mu}(\omega)\tag{7}$$

と表されることを導くことができる．ここで，$\gamma_{\mu}(\omega)$ は非輻射的なエネルギー緩和の速さを表しており，励起子と熱浴振動子との結合定数 $g_{\mu}(\Omega)$ によって決定される．右辺に現れる $\hat{\mathcal{D}}_{\mu}(\omega)$ は熱浴による揺らぎを表す演算子であり，Maxwell 波動方程式 (3) における $\hat{\boldsymbol{J}}_{0}(\boldsymbol{r},\omega)$ と同様に，(7) を導くにあたって自動的に現れてくる．その交換関係を計算すれば，$\hat{\boldsymbol{J}}_{0}(\boldsymbol{r},\omega)$, $\hat{\boldsymbol{E}}^{+}_{0}(\boldsymbol{r},\omega)$ とは交換し，自身との関係は

$$[\hat{\mathcal{D}}_{\mu}(\omega),\{\hat{\mathcal{D}}_{\mu'}(\omega')\}^{\dagger}]=\delta_{\mu,\mu'}\delta(\omega-\omega')\;(\hbar/2\pi)\gamma_{\mu}(\omega),\quad[\hat{\mathcal{D}}_{\mu}(\omega),\hat{\mathcal{D}}_{\mu'}(\omega')]=0\tag{8}$$

のように $\gamma_{\mu}(\omega)$ によって特徴づけられることが分かる．(7) を分極の表式に代入すれば，電場に依存する項は $\hat{\boldsymbol{P}}^{+}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\omega)=\epsilon_{0}\int{\rm d}\boldsymbol{r}'\;\boldsymbol{\chi}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)\cdot\hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r}',\omega)+\cdots$ となり，励起子が非局所的な感受率

$$\boldsymbol{\chi}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)\equiv{\epsilon_{0}}^{-1}\textstyle\sum_{\mu}\boldsymbol{\mathcal{P}}_{\mu}(\boldsymbol{r})\;\boldsymbol{\mathcal{P}}^{*}_{\mu}(\boldsymbol{r}')\;\;[\hbar\omega_{\mu}-\hbar\omega-{\rm i}\gamma_{\mu}(\omega)/2]^{-1}\tag{9}$$

を持つことが分かる．

次に，以上の Maxwell 波動方程式と励起子の運動方程式を連立して解くことで，交換関係が既知の演算子 $\hat{\boldsymbol{J}}_{0}(\boldsymbol{r},\omega)$, $\hat{\boldsymbol{E}}^{+}_{0}(\boldsymbol{r},\omega)$, $\hat{\mathcal{D}}_{\mu}(\omega)$ を用いて，未知の演算子 $\hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r},\omega)$, $\hat{\boldsymbol{P}}^{+}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\omega)$, $\hat{b}_{\mu}(\omega)$ を表現する．電場の表式 (5) を励起子演算子の表式 (7) に代入すれば，線形な連立方程式

$$\sum_{\mu'}S_{\mu,\mu'}(\omega)\;\hat{b}_{\mu'}(\omega)=\int{\rm d}\boldsymbol{r}\;\boldsymbol{\mathcal{P}}^{*}_{\mu}(\boldsymbol{r})\cdot\hat{\boldsymbol{E}}^{+}_{0}(\boldsymbol{r},\omega)+\hat{\mathcal{D}}_{\mu}(\omega)\tag{10}$$

$$S_{\mu,\mu'}(\omega)\equiv[\hbar\omega_{\mu}-\hbar\omega-{\rm i}\gamma_{\mu}(\omega)/2]\,\delta_{\mu,\mu'}-\mu_{0}\omega^{2}\int{\rm d}\boldsymbol{r}\int{\rm d}\boldsymbol{r}'\;\boldsymbol{\mathcal{P}}^{*}_{\mu}(\boldsymbol{r})\cdot\mathbf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)\cdot\boldsymbol{\mathcal{P}}_{\mu'}(\boldsymbol{r}')\tag{11}$$

が得られる．ここで，係数行列 $\mathbf{S}(\omega)$ の逆行列は共鳴に対応する極を含んでおり，電磁場を介した励起子間相互作用を表す (11) の最終項によって励起子の固有振動数 ω_{μ} が補正されている．この線形連立方程式 (10) は半古典的な理論 [4] における自己無撞着方程式と呼ばれるものと同じ形式をしており，それを解くことで得られる励起子演算子は，$\hat{\boldsymbol{E}}_{0}(\boldsymbol{r},\omega)$ および $\hat{\mathcal{D}}_{\mu}(\omega)$ の交換関係 (6), (8) から，

$$[\hat{b}_{\mu}(\omega),\{\hat{b}_{\mu'}(\omega')\}^{\dagger}]=\delta(\omega-\omega')\;(\hbar/{\rm i}2\pi)\left\{[\mathbf{S}^{-1}(\omega)]_{\mu,\mu'}-[\mathbf{S}^{-1}(\omega)]^{*}_{\mu',\mu}\right\},\quad[\hat{b}_{\mu}(\omega),\hat{b}_{\mu'}(\omega')]=0\tag{12}$$

を満たす．これは励起子に対する遅延 Green 関数 $\mathfrak{G}^{\rm R}_{\mu,\mu'}(t-t')=-{\rm i}\theta(t-t')\langle[b_{\mu}(t),b^{\dagger}_{\mu'}(t')]\rangle$ の ω-Fourier 成分と $\mathbf{S}^{-1}(\omega)$ との等価性 $\mathfrak{G}^{\rm R}(\omega)=-(\hbar/2\pi)\mathbf{S}^{-1}(\omega)$ を意味している．ここで，半古典的枠組みでも議論されてきたように，$\det[\mathbf{S}(\omega_{\lambda})]=0$ で決定される複素振動数 $\{\omega_{\lambda}\}$ の実部は励起子ポラリトンの共鳴振動数に，虚部は輻射および非輻射を含めた緩和の速さを意味している．この $\{\omega_{\lambda}\}$ は $\mathfrak{G}^{\rm R}(\omega)$ における極に対応しており，励起子演算子の交換関係 (12) が自然な形をしていると理解できる．

自己無撞着方程式 (10) を解くことで得られる励起子演算子を，$\hat{\boldsymbol{P}}^{+}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\omega)=\sum_{\mu}\boldsymbol{\mathcal{P}}_{\mu}\hat{b}_{\mu}(\omega)$ に代入すれば分極の表式が得られ，(5) に代入すれば電場 $\hat{\boldsymbol{E}}(\boldsymbol{r},\omega)$ の表式が得らる．その交換関係を計算すれば，

$$[\hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r},\omega),\hat{\boldsymbol{E}}^{-}(\boldsymbol{r}',\omega')]=\delta(\omega-\omega')\;(\mu_{0}\hbar\omega^{2}/{\rm i}2\pi)\left[\mathbf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)-\{\mathbf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{r}',\boldsymbol{r},\omega)\}^{\rm t*}\right],\tag{13}$$

$[\hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r},\omega),\hat{\boldsymbol{E}}^{+}(\boldsymbol{r}',\omega')]=\boldsymbol{0}$ となり，背景場の交換関係 (6) と同じ形式をとることが分かる．ただし，

$$\mathsf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)=\mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)+\mu_0\omega^2\sum_{\mu,\mu'}\left[\int \mathrm{d}\boldsymbol{s}\ \mathsf{G}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{s},\omega)\cdot\boldsymbol{\mathcal{P}}_{\mu}(\boldsymbol{s})\right][\mathsf{S}^{-1}(\omega)]_{\mu,\mu'}\left[\int \mathrm{d}\boldsymbol{s}'\ \boldsymbol{\mathcal{P}}^{*}_{\mu'}(\boldsymbol{s}')\cdot\mathsf{G}(\boldsymbol{s}',\boldsymbol{r}',\omega)\right] \quad (14)$$

である．この $\mathsf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)$ は励起子による非局所感受率 $\boldsymbol{\chi}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)$ を含む波動方程式

$$\boldsymbol{\nabla}\times\boldsymbol{\nabla}\times\mathsf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)-\frac{\omega^2}{c^2}\epsilon_{\rm bg}(\boldsymbol{r},\omega)\mathsf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)-\frac{\omega^2}{c^2}\int \mathrm{d}\boldsymbol{s}\ \boldsymbol{\chi}_{\rm ex}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{s},\omega)\cdot\mathsf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{s},\boldsymbol{r}',\omega)=\delta(\boldsymbol{r}-\boldsymbol{r}')\mathbf{1} \quad (15)$$

を満たすことから，励起子の線形光学過程まで繰り込んだ Maxwell 波動方程式に対する Green 関数と見なすことができる．一方，この Green 関数の表式 (14) は，非局所感受率 (9) が $\boldsymbol{r}$, $\boldsymbol{r}'$ について分離していることを利用すれば，方程式 (15) から直接導くこともできる [5]．また，交換関係 (13) から $\mathsf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)$ は，電場演算子に対する遅延 Green 関数 $\mathfrak{D}^{\rm R}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',t-t')\equiv-\mathrm{i}\theta(t-t')\langle[\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t),\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r}',t')]\rangle$ の ω-Fourier 成分と等価と見なせる，すなわち $\mathfrak{D}^{\rm R}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)=-(\mu_0\hbar\omega^2/2\pi)\mathsf{G}_{\rm ren}(\boldsymbol{r},\boldsymbol{r}',\omega)$ である．

以上の議論は非輻射的なエネルギー緩和まで含めた励起子の線形光学過程を記述しており，非線形過程などを扱っていくには，なんらかの摂動を加えて議論していく必要がある．一般的な Fermi 粒子や Bose 粒子とは異なり，励起子に対してはそれが全くいない状態が基底状態となるので，因果 Green 関数 $\mathfrak{G}_{\mu,\mu'}(t-t')=\theta(t-t')\langle b_{\mu}(t)b^{\dagger}_{\mu'}(t')\rangle+\theta(t'-t)\langle b^{\dagger}_{\mu'}(t')b_{\mu}(t)\rangle$ は遅延 Green 関数と等価になり，Feynman 図形などによる摂動展開が可能である．無摂動の Green 関数は $-(2\pi/\hbar)\mathfrak{G}(\omega)=[\mathsf{S}(\omega)]^{-1}$ で与えられるので，摂動展開により自己エネルギー $\boldsymbol{\Sigma}(\omega)$ が得られたならば，摂動まで含めた Green 関数は Dyson 方程式から $-(2\pi/\hbar)\mathfrak{G}'(\omega)=[\mathsf{S}(\omega)+(\hbar/2\pi)\boldsymbol{\Sigma}(\omega)]^{-1}$ と与えられる．このように自己エネルギーは，(11) の最終項に現れた電磁場を介した励起子間相互作用と同様に，励起子固有振動数に対する補正項として振舞うことが分かる．また，非局所 Maxwell 波動方程式に対する Green 関数 (14) は，相互作用の Hamiltonian (1) を $H_{\rm int}\sim-\int \mathrm{d}\boldsymbol{r}\ \boldsymbol{P}_{\rm ex}(\boldsymbol{r})\cdot\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})$ と近似すれば，Feynman 図形からも簡単に導くことができる．以上のことから，全量子論的な微視的非局所理論が Green 関数の摂動展開法によく馴染むことが分かる．

3　まとめ

本研究では電磁場の量子性，励起子の微視的非局所性，非輻射的なエネルギー緩和，物質系の空間構造を総合的に扱うことのできる理論を構築した．これにより，励起子を弱く閉じ込めたナノ領域からバルクまでの現実的な誘電媒質における電磁場の量子性を議論することができる．また，計算の過程で励起子や電場に対する Green 関数が得られるため，Feynman 図形などによる摂動計算によって，高次の非線形光学過程などを記述できると考えられる．

参考文献

[1] K. Edamatsu, G. Oohata, R. Shimizu, and T. Itoh, Nature **431**, 167 (2004).

[2] L. G. Suttorp and M. Wubs, Phys. Rev. A **70**, 013816 (2004).

[3] L. Knöll, S. Scheel, and D.-G. Welsch, in *Coherence and Statistics of Photons and Atoms*, edited by J. Peřina (Wiley-Interscience, 2001), Wiley Series in Lasers and Applications, chap. 1.

[4] K. Cho, *Optical Response of Nanostructures: Microscopic Nonlocal Theory*, Springer Series in Solid-State Sciences (Springer-Verlag, 2003).

[5] K. Cho, J. Lumin. **102-103**, 232 (2003).