

# Berry 位相による動力的回折理論と新しい光学現象

澤田 桂 理化学研究所 播磨研究所 〒679-5148 兵庫県佐用郡佐用町光都 1-1-1

**要旨** 電磁波と物質のベクトル場との相互作用という観点から、現代的な理論手法による動力的回折の取り扱いを紹介し、X線と光の新奇な振舞いについて理論の立場からの予言・物理的解釈を述べる。動力的回折理論に基づいてX線の波束の運動方程式を導出すると幾何光学への補正項がBerry曲率と呼ばれる形で現れ、例えば歪みをもつ結晶中ではBerry曲率の寄与により波束が歪みの大きさの100万倍ものシフトを示すことがわかった。また、磁性と誘電性をあわせもつマルチフェロイクスと呼ばれる物質群における光の伝播の様子についても述べる。

## 1. はじめに

結晶構造解析などでは、物質の情報を知ることが興味の対象であり、X線は物質の多彩な性質を調べる手段として使われる。そこで、本稿では発想を転換してX線を主役に置き、X線が物質の情報を感じ取ることで波動としておもしろい振舞いをしないかを調べることを念頭においてX線回折理論を展開する。X線回折理論の運動学的回折と動力的回折について、それぞれの特徴および物理的イメージを考えてみよう。

運動学的理論では、X線は結晶で1回だけ散乱されるとみなす。つまり、結晶が散乱体となってX線が粒子のように跳ね返されると解釈できる。このようにX線が粒子のように散乱されるという見方は、小学校から親しんでいるレンズで光が曲げられるような光線概念、つまり幾何光学に通じるものである。

一方、動力的理論では、X線が波動として振舞うことを全面的に取り入れて結晶中で何度も散乱されることを考慮するため、X線を粒子のようにイメージすることは困難であり、また、幾何光学のように波面の伝播の様子を記述するのも単純にはいかない。

以上のように、運動学的理論ではX線は粒子のようにみなすため直観的にはわかりやすく、動力的理論では波動性が本質的な役割を果たすため理論としては精密であるが結果を直観的にはイメージしにくくなっている。そこで本稿では筆者らの最近の研究結果から、動力的理論を幾何光学のように直観的に理解する方法として、Berry位相を用いたX線波束の運動方程式を紹介する<sup>1)</sup>。動力的理論に基づいて波束の運動方程式を導出すると、幾何光学から予測される項だけではなく、波動性の名残りから来る補正項(Berry曲率<sup>2-4)</sup>)が加わり、その補正項がX線波束の

挙動に非自明な影響を及ぼす。このようにX線波束のBerry位相で伝搬の様子を記述する手法は、波束の伝搬の様子がわかりやすく有用であるにも関わらず従来のX線光学では全く認識されていなかったため、今後のX線光学の研究への新たな切り口となれば幸いである。

本稿の構成としては、数式を用いて議論した結果を定性的に考察するという流れになっている。数式はやや複雑になってしまうので、場合によっては定性的な話を先に読んでから数式を眺めた方が理解しやすいかもしれない。

## 2. 予備知識

この節では、今後使用する文字・記号の説明を兼ねて、完全結晶に対するX線の動力的回折理論を復習する。

Maxwell方程式は、

$$\begin{aligned}\nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) &= -\mu_0 \mu(\vec{r}) \frac{\partial \vec{H}(\vec{r}, t)}{\partial t}, \\ \nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) &= \epsilon_0 \epsilon(\vec{r}) \frac{\partial \vec{E}(\vec{r}, t)}{\partial t}.\end{aligned}$$

この2つの式から $\vec{E}$ や $\vec{H}$ に関する波動方程式を作るわけだが、波動方程式がエルミートではなくなるので、数学的な都合により、電場・磁場の代わりに新しく

$$\begin{aligned}\vec{F}^E(\vec{r}, t) &= \sqrt{\epsilon(\vec{r})} \vec{E}(\vec{r}, t), \\ \vec{F}^H(\vec{r}, t) &= \sqrt{\mu(\vec{r})} \vec{H}(\vec{r}, t),\end{aligned}$$

を定義する。ここで透磁率を $\mu(\vec{r})=1$ として、時間変化を $\vec{F}^{E,H} \propto e^{-i\omega t}$ とすると、 $\vec{F}^{E,H}$ に関する波動方程式は、

$$\frac{1}{\sqrt{\varepsilon(\vec{r})}} \nabla \times \left[ \nabla \times \frac{1}{\sqrt{\varepsilon(\vec{r})}} \vec{F}^E(\vec{r}) \right] = \frac{\omega^2}{c^2} \vec{F}^E(\vec{r}),$$

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

とエルミートな形で書ける。ここで、電場ベクトルと磁場ベクトルを分けて書くのは煩わしいので、まとめて

$$\vec{F}(\vec{r}) \equiv \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} \vec{F}^E(\vec{r}) \\ \vec{F}^H(\vec{r}) \end{pmatrix}$$

として6次元ベクトルで波動関数を書いておく。

簡単のため、2波近似を考える。結晶では誘電率は格子と同じ周期性をもち、 $\varepsilon(\vec{r}+\vec{a})=\varepsilon(\vec{r})$ を満たすので、単位格子ベクトル $\vec{a}$ に対応する逆格子ベクトル $\vec{G}$ に対して誘電率(の逆数)をFourier変換して、

$$\frac{1}{\varepsilon(\vec{r})} = \zeta_0 + \zeta_1 e^{i\vec{G}\cdot\vec{r}} + \zeta_1^* e^{-i\vec{G}\cdot\vec{r}}$$

と書くと、波動関数は2波近似で、

$$\vec{F}_k(\vec{r}) = \vec{F}_0 e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} + \vec{F}_1 e^{i(\vec{k}-\vec{G})\cdot\vec{r}}$$

$$= e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} (\vec{F}_0 + \vec{F}_1 e^{-i\vec{G}\cdot\vec{r}}) \equiv e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \vec{U}_k(\vec{r}),$$

と平面波が結晶で補正を受けている形に書くことができる。ここで、 $\vec{U}_k(\vec{r})$ は格子と同じ周期性をもつ周期関数ベクトルであり、結晶の情報はこの中に含まれている。従って、 $\vec{F}_k(\vec{r}) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} \vec{U}_k(\vec{r})$ は、ちょうど固体中の電子のBloch関数 $\psi(\vec{r}) = e^{i\vec{k}\cdot\vec{r}} u_k(\vec{r})$ と同じ形であり、結晶中ではX線もBloch状態として振舞うことを意味する。

2波近似の範囲で、分散関係を求めてみよう。簡単のため $\sigma$ 偏光の場合に分散関係を求めると、

$$\frac{\omega^2}{c^2} = \frac{\zeta_0}{2} [\vec{k}^2 + (\vec{k} - \vec{G})^2]$$

$$\pm \frac{1}{2} \sqrt{|\zeta_1|^2 [\vec{k}^2 + (\vec{k} - \vec{G})^2]^2 + \zeta_0^2 [\vec{k}^2 - (\vec{k} - \vec{G})^2]^2},$$

と書いて、Fig. 1のようなになる( $\vec{G}$ を $k_y$ の方向にとった)。原点と $\vec{G}$ の点から出る光円錐がちょうどBragg条件のところで接近し、エネルギーが反発してギャップがあいている。この分散関係を2通りの切り口から眺めてみよう。

まずは、Fig. 1の曲面を $\omega = \omega_0$ (一定)の平面で切ると、断面図はFig. 2のようなよく知られた分散面になり、Bragg条件のところで波数 $\vec{k}$ に対するギャップが生じる。このギャップ中では、結晶中では対応する波数が存在しないため、全反射する。

一方、今度は $k_x = k_0$ (一定)の平面で切ってみると、断

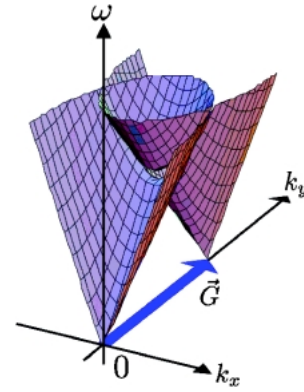


Fig. 1 Dispersion relation in  $(k_x, k_y, \omega)$  space.

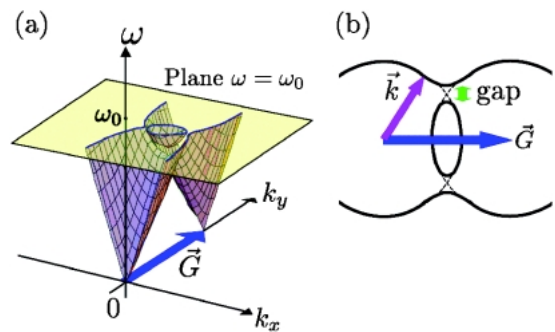


Fig. 2 (a) Dispersion surface and a plane  $\omega = \omega_0$ . (b) Cross section of the dispersion relation by the plane with a gap at the Bragg condition.

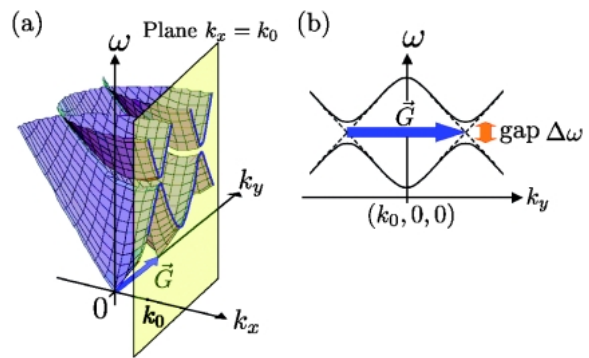


Fig. 3 (a) Dispersion surface and a plane  $k = k_0$ . (b) Cross section of the dispersion relation, which is analogous to the band structure of electrons in a semiconductor.

面はFig. 3のようになり、Bragg条件のところに周波数 $\omega$ に対してギャップ $\Delta\omega$ が存在する。このとき、ギャップの大きさ $\Delta\omega$ に関して、ギャップ端での周波数の値との比は、誘電率のFourier展開した係数を用いて

$$\frac{\Delta\omega}{\omega} \Big|_{\text{gapedge}} \simeq \frac{|\zeta_1|}{\zeta_0} \sim 10^{-6}, \quad (1)$$

と計算できる。この値は後の議論で重要な役割を果たす。

このように分散関係にギャップが生じる様子は、半導体中の電子のエネルギーギャップと似ている。つまり、電子の物性理論（特にバンド理論）も X 線動力的回折理論も、対象は違えど背後にある物理は同じであるから、両者のアイデアをつなごうという立場で理論を構築することは自然な考えである。従って、X 線の新現象を見つけるためには、固体の電子論で研究されている手法からヒントを得るのが得策であろう。結晶中の X 線の物理は Bloch 関数ベクトルの周期部分  $\bar{U}_{\vec{k}}(\vec{r})$  が担っているわけだが、電子物性理論でも同様に電子の Bloch 関数の周期部分  $u_{\vec{k}}(\vec{r})$  が興味深い物性をもたらすことが知られているので、Fig. 3 の描像を念頭において X 線の Bloch 関数の性質をみてみることにしよう。

### 3. 波束の解析力学

以上の準備の下で、結晶中での X 線の様子を見やすくするために波束を作って伝搬の仕方を調べてみよう。

X 線の波動関数  $\bar{I}_{\vec{k}}(\vec{r})$ （つまり電場・磁場ベクトル）が求まったものとして、それらの解を重ね合わせて次のように波束を作る：

$$\bar{W}(\vec{r}) = \int \frac{d\vec{k}}{(2\pi)^3} w(\vec{k}, \vec{k}_c, t) \bar{I}_{\vec{k}}(\vec{r}),$$

ここで、 $w(\vec{k}, \vec{k}_c, t)$  は重心波数  $\vec{k}_c$  に鋭いピークをもち、その幅  $\Delta k$  は逆格子ベクトルの大きさ  $\pi/a$  より十分小さいとし、実空間の波束の幅  $\Delta r$  は不確定原理により格子間隔  $a$  よりも大きく広がっている (Fig. 4 参照)。また、 $z_c$  は偏光の自由度を示す。

このような波束のダイナミクスを解析力学で眺めてみる。波束の運動を記述する Lagrangian は次式で与えられる：

$$L(\vec{r}_c, \dot{\vec{r}}_c, \vec{k}_c, \dot{\vec{k}}_c, z_c, \dot{z}_c) = \left\langle \bar{W} \left| i \frac{d}{dt} - \omega \right| \bar{W} \right\rangle.$$

ここで、波束は実空間と波数空間の両方に有限の分布をもっているため、全微分が

$$\frac{d}{dt} = \frac{\partial}{\partial t} + \dot{\vec{r}}_c \cdot \nabla_{\vec{r}_c} + \dot{\vec{k}}_c \cdot \nabla_{\vec{k}_c}$$

と書けることに注意して計算する。ただし、

$$\nabla_{\vec{r}_c} = \left( \frac{\partial}{\partial r_{cx}}, \frac{\partial}{\partial r_{cy}}, \frac{\partial}{\partial r_{cz}} \right),$$

$$\nabla_{\vec{k}_c} = \left( \frac{\partial}{\partial k_{cx}}, \frac{\partial}{\partial k_{cy}}, \frac{\partial}{\partial k_{cz}} \right),$$

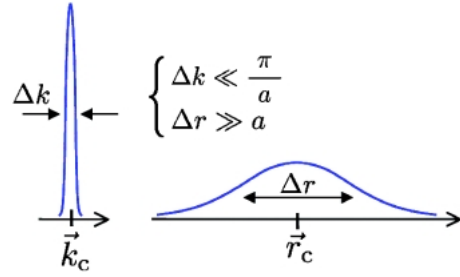


Fig. 4 Wave packet with a sharp peak in the momentum space and a broad one in the real space.

である。実際に Lagrangian を計算すると、次の形に書ける：

$$L(\vec{r}_c, \dot{\vec{r}}_c, \vec{k}_c, \dot{\vec{k}}_c, z_c, \dot{z}_c) = -\omega + \vec{k}_c \cdot \dot{\vec{r}}_c + \langle \bar{U}_{z_c} | i \partial_t \bar{U}_{z_c} \rangle + \dot{\vec{r}}_c \cdot \langle \bar{U}_{z_c} | i \nabla_{\vec{r}_c} \bar{U}_{z_c} \rangle + \dot{\vec{k}}_c \cdot \langle \bar{U}_{z_c} | i \nabla_{\vec{k}_c} \bar{U}_{z_c} \rangle$$

この Lagrangian は、大雑把にいうと第 1 項と第 2 項が運動学的理論あるいは幾何光学を反映しており、第 3 項から第 5 項は Bloch 関数の周期部分  $\bar{U}_{z_c}(\vec{r})$  が含まれていることからわかるように動力学の理論を考えたことから来る寄与である。そこで、解析力学での手順に従って Euler-Lagrange 方程式をたてると、波束の運動方程式は、重心の位置  $\vec{r}_c$ 、波数の重心  $\vec{k}_c$ 、偏光  $z_c$  に関する連立方程式として、次のようになる：

$$\dot{\vec{k}}_c = -\nabla_{\vec{r}_c} \omega + \dot{\vec{r}}_c \cdot \Omega_{rr} + \dot{\vec{k}}_c \cdot \Omega_{rk} - \Omega_{tr}, \quad (2)$$

$$\dot{\vec{r}}_c = \nabla_{\vec{k}_c} \omega - \dot{\vec{k}}_c \cdot \Omega_{kk} - \dot{\vec{r}}_c \cdot \Omega_{kr} + \Omega_{tk}, \quad (3)$$

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

ここで、 $\Omega$  と書いたものは Berry 曲率と呼ばれるある種の磁場のようなものであり<sup>5-7)</sup>、 $\bar{A}_{r,k}$  は Berry 接続と呼ばれてベクトルポテンシャルに対応するもので、

$$(\Omega_{kr})_{\alpha\beta} \equiv \Omega_{k,r\beta} \equiv \frac{\partial}{\partial k_{c\alpha}} A_{r\beta} - \frac{\partial}{\partial r_{c\alpha}} A_{k\alpha},$$

$$(\Omega_{tr})_{\alpha} \equiv \Omega_{tr\alpha} \equiv \frac{\partial}{\partial t} A_{r\alpha} - \frac{\partial}{\partial r_{c\alpha}} i \langle \bar{U} | \partial_t \bar{U} \rangle,$$

$$[\bar{A}_r]_{\eta\eta'} \equiv i \langle \bar{U}_{\eta, \vec{k}_c, \vec{r}_c} | \nabla_{\vec{r}_c} \bar{U}_{\eta', \vec{k}_c, \vec{r}_c} \rangle,$$

$$[\bar{A}_k]_{\eta\eta'} \equiv i \langle \bar{U}_{\eta, \vec{k}_c, \vec{r}_c} | \nabla_{\vec{k}_c} \bar{U}_{\eta', \vec{k}_c, \vec{r}_c} \rangle,$$

などと定義される。また、 $|z_c\rangle$  は 2 つの成分をもつ Jones ベクトルに対応するものであり、 $\eta$  は偏光状態を示す指数である。式(4)は偏光の変化を表す運動方程式で、例えば光ファイバーでの偏光面の回転<sup>8-10)</sup>などを表す。ここでは偏光状態そのものが変化する状況は扱わないので式(2)と式(3)について考察する。添え字がいろいろあって複雑に見えるが、各項を順番に考えて理解していくことにしよう。

式(2)は、重心波数  $\vec{k}_c$  の運動方程式であり、波束の進む向きつまり屈折現象の時間変化を記述している。第1項はエネルギーの空間微分であり、屈折率が空間的に変化すると光が屈折するという Snell の法則つまり幾何光学を表す。第2項以降が幾何光学に対する補正項となっており、Berry 曲率に関係している。まず第2項について、完全反対称テンソル  $\epsilon_{\alpha\beta\gamma}$  を用いて  $\Omega_{r,\alpha\beta} = \epsilon_{\alpha\beta\gamma} B_\gamma$  と書くと (同じ添え字に関しては和をとる)、この  $\vec{B} = \nabla_{\vec{r}_c} \times \vec{A}_r$  は磁場を表し、 $(\dot{\vec{r}}_c \cdot \Omega_{rr})_\alpha = \dot{r}_{c\beta} \epsilon_{\alpha\beta\gamma} B_\gamma = (\dot{\vec{r}}_c \times \vec{B})_\alpha$  となり、Lorentz 力に対応することがわかる。従って、Berry 曲率  $\Omega_{rr}$  はベクトルポテンシャル  $\vec{A}_r$  の微分 (rotation) として磁場に対応していることがわかった。次に第3項について、Berry 曲率  $\Omega_{kr}$  は2つのベクトルポテンシャル  $\vec{A}_{r,k}$  から得られるものであり、位相空間の実効的な「磁場」に対応する。この項については後で議論する。最後の第4項の  $\Omega_{tr}$  は、誘電率があからさまに時間変化しない場合はゼロなので今は考えない。

式(3)は、波束の重心位置  $\vec{r}_c$  の時間変化つまり速度を表す。右辺第1項は群速度  $\vec{v}_g = \nabla_{\vec{k}_c} \omega$  である。第2項以降が Berry 曲率に関連しており、実際の速度は群速度に対して補正が付き、波束の位置は群速度の方向からシフトすることを示している。第2項の  $\Omega_{kk}$  は「逆磁場」と呼ばれ、波数空間の中での磁場のような役割を果たす。現象としては、光学では光線が横ズレをするという“光のホール効果”を引き起こし<sup>6,7)</sup>、固体電子論では異常ホール効果<sup>11)</sup> やスピホール効果<sup>12)</sup> の起源となる。第3項は式(2)の第3項と  $(\Omega_{kr})_{\alpha\beta} = -(\Omega_{rk})_{\alpha\beta}^t$  の関係にあり、歪みのある結晶中で現れるもので、後で詳しく述べる。第4項は媒質が時間変化しなければゼロなのでここでは考えないことにする。

このように、X線の動力的回折理論により波束の運動方程式を作ると、Bloch 関数としての性質が幾何光学への補正として現れ、その補正は Berry 曲率という一種の磁場に対応することがわかった。しかし、実はこの Berry 曲率は多くの場合にはゼロである。具体的には、誘電率があからさまに時間変化しない場合は  $\Omega_{tr} = 0$ 、 $\Omega_{tk} = 0$ 。また、時間反転と空間反転の両方の対称性をもつ系では  $\Omega_{rr} = 0$ 、 $\Omega_{kk} = 0$  である。残りの  $\Omega_{kr} = -\Omega_{rk}^t$  は、歪んだ結晶の場合に有限となるので、次の節で詳しく調べてみる。

#### 4. 歪んだ結晶における波束の巨大シフト

この節では、Berry 曲率が実際に物理現象に現れる例として、歪みをもつ結晶中では Berry 曲率  $\Omega_{kr}$  の寄与によって波束が歪みの100万倍もの大きさのシフトを示す。

結晶が空間反転・時間反転の両方の対称性をもつとし、誘電率の時間変化は無いものと仮定する。 $\Omega_{rr}$ 、 $\Omega_{kk}$ 、 $\Omega_{tr}$ 、 $\Omega_{tk}$  はすべてゼロであるから、波束の運動方程式は

$$\dot{\vec{k}}_c = -\nabla_{\vec{r}_c} \omega + \dot{\vec{k}}_c \cdot \Omega_{rk}, \quad (5)$$

$$\dot{\vec{r}}_c = \vec{v}_g - \dot{\vec{r}}_c \cdot \Omega_{kr}, \quad (6)$$

と書ける。ここでまず式(5)の右辺第1項について、分散関係は場所には依存しないので  $\nabla_{\vec{r}_c} \omega = 0$  であるから、第1近似として第1項のみ考えたと  $\dot{\vec{k}}_c = 0$ 。よって、第2項も ( $\Omega_{rk}$  の値に関わらず) ゼロとなるので、結局全体として  $\dot{\vec{k}}_c = 0$  であるから重心波数は時間的に一定である。従ってあとは重心の位置  $\vec{r}_c$  に関する運動方程式(6)を考えればよい。

Berry 曲率  $\Omega_{kr}$  は、波数空間と実空間の両方 (位相空間) の性質を反映したものであり、有限の値にするには波数空間では Bragg 条件近傍を考え、実空間では結晶歪みを導入すればよい。そこで、結晶の原子の位置が  $\vec{r} \rightarrow \vec{r} + \vec{u}(\vec{r})$  と  $\vec{u}(\vec{r})$  だけ歪んだ場合を考える。いま考えている波束は、実空間での幅  $\Delta r$  は格子間隔  $a$  より十分広がっているため、波束が感じる結晶歪みは波束の重心位置での歪みの値で代表させてよい。従って、X線の波動関数は  $\vec{F}(\vec{r}) \rightarrow \vec{F}(\vec{r} - \vec{u}(\vec{r}_c))$  と変更を受ける。このとき、ベクトルポテンシャル (Berry 接続) のうち  $\vec{r}_c$  微分に関するものは、

$$\begin{aligned} \vec{A}_r &= \langle \vec{U}_z[\vec{r} - \vec{u}(\vec{r}_c)] | i \nabla_{\vec{r}_c} \vec{U}_z[\vec{r} - \vec{u}(\vec{r}_c)] \rangle \\ &= -\frac{\partial u_\beta}{\partial \vec{r}_c} \left\langle \vec{U}_z(\vec{r}) \left| i \frac{\partial}{\partial r_\beta} \vec{U}_z(\vec{r}) \right. \right\rangle \equiv -\frac{\partial u_\beta}{\partial \vec{r}_c} A_{r\beta}^0(\vec{k}_c). \end{aligned}$$

と書くことができる。ここで、同じ添え字の  $\beta$  で和をとっていることも再度注意しておく。一方、 $\vec{k}_c$  微分に関する Berry 接続については、

$$\begin{aligned} \vec{A}_k &= \langle \vec{U}_z[\vec{r} - \vec{u}(\vec{r}_c)] | i \nabla_{\vec{k}_c} \vec{U}_z[\vec{r} - \vec{u}(\vec{r}_c)] \rangle \\ &= \langle \vec{U}_z(\vec{r}) | i \nabla_{\vec{k}_c} \vec{U}_z(\vec{r}) \rangle \equiv \vec{A}_k^0(\vec{k}_c). \end{aligned}$$

となって  $\vec{r}_c$  には依存しない。従って Berry 曲率は、

$$\Omega_{k,r\beta} = \frac{\partial A_{r\beta}^0(\vec{k}_c)}{\partial k_{c\alpha}} - \frac{\partial A_{k\alpha}^0(\vec{k}_c)}{\partial r_{c\beta}} = -\frac{\partial u_\gamma}{\partial r_{c\beta}} \frac{\partial A_{r\gamma}^0}{\partial k_{c\alpha}},$$

となり、実空間の歪み  $\vec{u}$  の空間変化と、波数空間の profile からくる  $\vec{A}_r$  の波数微分の積の形をしている。これより、運動方程式を時間積分すると、

$$\begin{aligned} r_{c\alpha} - r_{0\alpha} &= v_{g\alpha} t + \frac{\partial A_{r\beta}^0}{\partial k_{c\alpha}} \int \dot{r}_{c\gamma} \frac{\partial u_\beta}{\partial r_{c\gamma}} dt \\ &= v_{g\alpha} t + \frac{\partial A_{r\beta}^0}{\partial k_{c\alpha}} \int du_\beta \\ &= v_{g\alpha} t + \frac{\partial A_{r\beta}^0}{\partial k_{c\alpha}} [\vec{u}(\vec{r}_c) - \vec{u}(\vec{r}_0)], \end{aligned}$$

ただし、初期条件を  $\vec{r}_c(t=0) = \vec{r}_0$  とした。あとは  $\partial \vec{A}_r^0 / \partial k_{c\alpha}$



を求めればよいのだが、2波近似の範囲で Bragg 条件近傍では初等的な計算により、

$$\frac{\partial \bar{A}_r^0}{\partial k_{\alpha}} \Big|_{|\bar{k}| \approx |\bar{k}-\bar{G}|} \simeq \pm \frac{\bar{G}}{2} \frac{G_{\alpha}}{|\bar{k}|^2} \frac{\omega}{\Delta\omega}$$

と求まる。ここで±は Fig. 3 での下側バンド・上側バンドに対してそれぞれ+、-となるが、異なるバンドでは群速度の向きも逆になるので実際には符号の違いは観測には関係ない。また、 $\Delta\omega$  は Fig. 3 のエネルギーギャップの大きさである。従って、運動方程式の解は Bragg 条件近傍では以下の形にかける：

$$\bar{r}_c - \bar{r}_0 \simeq \bar{v}_g t \pm \bar{G} \{ \bar{G} \cdot [\bar{u}(\bar{r}_c) - \bar{u}(\bar{r}_0)] \} \frac{1}{|\bar{k}|^2} \frac{\omega}{2\Delta\omega}. \quad (7)$$

この波束の重心の軌跡の式が今回の重要な結果である。式(7)は、波束が伝搬する際に重心位置が群速度から期待されるのとは異なる場所を伝わることを意味しており、そのズレが Berry 曲率として記述されている。ズレの大きさには  $\omega/\Delta\omega$  という因子がかかっており、式(1)より

$$\frac{\omega}{\Delta\omega} \simeq \frac{\zeta_0}{|\zeta_1|} \sim 10^6$$

であるから、100万倍の増強因子になっている。従って、例えば歪みの大きさが  $|\bar{u}| \sim 0.1 \text{ nm}$  とすると波束は  $100 \mu\text{m}$  シフトすると見積られる。シフトの向きは逆格子ベクトル  $\bar{G}$  の向きであるから、Fig. 5 のように波束が移動する。ここで、偏光依存性にも言及しておく。一般には  $\pi$  偏光の方がギャップが小さいので増強因子  $\omega/\Delta\omega$  の値は  $\pi$  偏光の方が大きく、従って、Fig. 5 に示したように  $\pi$  偏光の方が大きくシフトする。言い換えると、無偏光の X 線波束を入射して結晶歪みを加えることで、ビームが偏光ごとに分離できることを示している。波束の軌跡の式(7)には歪みが一般的な形  $\bar{u}(\bar{r}_c)$  として入っているため、任意の歪み形状に対応できる。実験で観測するには、完全結晶で透過した波束の場所を調べておき、その結晶を曲げるなどして歪みを入れて、ビームの重心の位置のシフトを見ればよいであろう。

このように、波束の運動方程式を作ることによって幾何光学への補正として Berry 曲率が現れることがわかったわけだが、理論の筋書きを見直してみよう。Berry 曲率を用いた手法は、従来の動力的回折理論に新しい効果を加えているのではなく、全ては Maxwell 方程式の中に入っている。完全結晶の場合については波動関数を厳密に求めて、結晶歪みなどによって完全結晶から少し外れた寄与を摂動として考えることで Berry 曲率が現れる。今回の歪んだ結晶中の波束の伝搬に関して言うと、まず歪みの無い完全

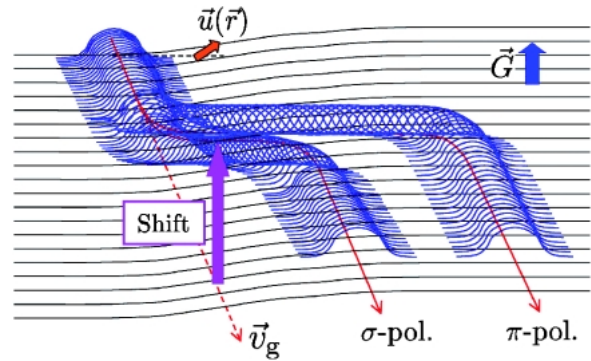


Fig. 5 Schematic picture of the shift of the wave packet propagating through a deformed crystal. An unpolarized beam splits into two beams for each polarization state.

結晶について波動関数と分散関係  $\omega(\bar{k})$  を求めておき、その後で歪みを導入する。歪みがあると Bragg 条件が変わるわけだが、完全結晶の分散関係に拘束した立場で眺めると、その Bragg 条件の変化が Berry 曲率となって波束の運動方程式に現れるというシナリオになっている。従ってこの理論の適応範囲は、結晶歪みによる Bragg 条件の変化がエネルギーギャップ  $\Delta\omega$  よりも小さい範囲で成立する。直観的には、ベクトルポテンシャルは「流れ」のような役割をしていて今の場合は逆格子ベクトル  $\bar{G}$  の方向に流れがあり、波束自身はまっすぐ進んでいるつもりでも実は  $\bar{G}$  の方向に流されていると解釈できる。

歪んだ結晶における X 線の動力的理論として、Takagi-Taupin 理論<sup>13,14</sup>やアイコナル理論<sup>15</sup>との対応も述べておこう。これらの理論では X 線は球面波あるいは Bloch 波として表されている。どのアプローチであれ Maxwell 方程式を解いているわけなので、(適応範囲などの差はあるとしても) 結果は基本的には同じである。言い換えると、線形の方程式である限りは重ね合わせできるので、例えば Takagi-Taupin 方程式で球面波として解いた結果を重ね合わせて波束としてみると実は波束がシフトしていた、ということになる。しかし、実際に球面波の伝搬の様子を調べるには数値計算に頼らざるを得ず、波束が歪みの100万倍ものシフトしていることを見出すのは全く自明でない。Berry 位相による取り扱い運動方程式を考えているので物理的意味がすっきりしており、そして何より、一般的な歪み  $\bar{u}$  に対して解析的に結果が得られたことが大きな利点である。

## 5. Berry 曲率・Berry 接続と位相

これまで、Berry 曲率は磁場のような役割を果たし、波束の伝搬に非自明な寄与を及ぼすことをみてきた。この節では話を少し戻して、なぜ磁場と曲率が結びつくのか？なぜ  $\Omega$  を曲率と呼んでベクトルポテンシャル  $\bar{A}_{r,k}$  を接続と呼ぶのか？ を説明する。簡単のため、荷電粒子の波束

を例にとって説明するが、もちろん X 線でも全く同様である。

磁場中の荷電粒子の量子力学を考える。磁場の存在は Schrödinger 方程式にはベクトルポテンシャルを通して取り入れられる：

$$\frac{1}{2} (\vec{p} - \vec{A})^2 \psi(\vec{r}) = E \psi(\vec{r}),$$

ただし、 $m = \hbar = e = 1$  とした。この方程式は、自由粒子の運動量を  $\vec{p} \rightarrow \vec{p} - \vec{A}$  とすることで磁場の寄与を入れられたと解釈できる。このとき、次のような変数変換 (gauge 変換)，

$$\Psi(\vec{r}) = \psi(\vec{r}) \exp \left[ i \int_{\vec{r}_0}^{\vec{r}} \vec{A}(\vec{R}) \cdot d\vec{R} \right],$$

をして波動関数の位相をずらすと、 $\Psi(\vec{r})$  に関する方程式は

$$\frac{\vec{p}^2}{2} \Psi(\vec{r}) = E \Psi(\vec{r}),$$

となり、自由粒子の Schrödinger 方程式に帰着される。従って、元の波動関数は

$$\psi(\vec{r}) = C e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \cdot e^{-i \int_{\vec{r}_0}^{\vec{r}} \vec{A}(\vec{R}) \cdot d\vec{R}} \equiv C e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \varphi(\vec{r}),$$

と求まる。ただし  $C$  は規格化定数である。この形は平面波が変調を受けていることを表しており、Bloch 関数と似ている。 $\varphi(\vec{r})$  から逆にベクトルポテンシャル  $\vec{A}$  を求めると、 $\vec{A} = i \langle \varphi | \nabla_{\vec{r}} \varphi \rangle$  と書くことができる。ベクトルポテンシャルは数学的には接続と呼ばれ、近くの関数どうしを結びつける役目をする。実際、 $\vec{r}$  から  $\delta\vec{r}$  だけ微小変化したときの関数の内積は

$$\begin{aligned} \langle \varphi(\vec{r}) | \varphi(\vec{r} + \delta\vec{r}) \rangle &\simeq \langle \varphi(\vec{r}) | \varphi(\vec{r}) \rangle + \delta\vec{r} \cdot \langle \varphi(\vec{r}) | \nabla_{\vec{r}} \varphi(\vec{r}) \rangle \\ &= 1 - i \delta\vec{r} \cdot \vec{A} \end{aligned}$$

として  $\vec{A}$  が出てくることからわかる。

次に、 $\Omega$  あるいは磁場を「曲率」と呼ぶ理由を考える。磁場  $\vec{B} = \nabla_{\vec{r}} \times \vec{A}$  中の粒子は通常の運動量  $\vec{p}$  は物理量ではなくなり、正準運動量  $\vec{\pi} \equiv \vec{p} - \vec{A}$  が観測にかかる速度に他ならない。この正準運動量の交換関係を計算してみると、

$$[\pi_x, \pi_y] = \pi_x \pi_y - \pi_y \pi_x = i (\nabla_{\vec{r}} \times \vec{A})_z = i B_z,$$

となって磁場が出てくる。正準運動量はベクトルポテンシ

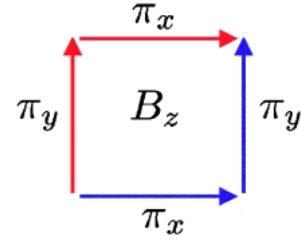


Fig. 6 Schematic illustration of non commutativity in the canonical momentum. Different path in  $\vec{\pi}$  space gives different result due to the magnetic field penetrating the loop.

ヤルの補正を受けた微分演算子 (共変微分) であるから、交換関係は微分の順序により結果が異なることを示している。つまり、Fig. 6 に示すように  $y$  方向  $\rightarrow$   $x$  方向と進む場合 (赤) と、 $x$  方向  $\rightarrow$   $y$  方向の場合 (青) とで結果が違い、その差が囲む部分を貫く磁場と関係していることを意味する。このように、進む方向順序によって結果が異なるのはその空間が曲がっている場合に起こりうるものであり、そうした意味で磁場は曲率を表していると解釈できる。

次に古典力学に移って運動方程式を考えてみよう。磁場中の荷電粒子の運動方程式は、

$$\dot{\vec{p}} = \dot{\vec{r}} \times \vec{B},$$

となって右辺は Lorentz 力を表す。この磁場を波動関数を用いて書くと、 $\vec{B} = \nabla_{\vec{r}} \times i \langle \varphi | \nabla_{\vec{r}} \varphi \rangle$  と表せることを考えると、波束の運動方程式で Bloch 関数から作った Berry 曲率が磁場のような寄与をすることを実感できるだろう。

それでは、もし運動量 (波数) だけではなく位置に関してもベクトルポテンシャルが存在したらどうなるであろうか？ そこで、

$$\begin{aligned} \vec{k} &= \vec{K} - \vec{A}_r, \\ \vec{r} &= \vec{R} - \vec{A}_k, \end{aligned}$$

として波数空間にも実空間にもベクトルポテンシャルの存在を仮定する。このとき、波数空間と実空間を合わせて 6 次元の位相空間として考えることになる。また、波数と位置を同等に扱うわけだから、波動性と粒子性を併せもつ波束を想定することは自然である。ベクトルポテンシャルの微分 (rotation) が磁場となるわけであるが、今は 2 種類のベクトルポテンシャルがあり、微分のとり方も  $\vec{k}$  と  $\vec{r}$  の 2 種類あるので、それらの組み合わせとして 4 種類の「磁場」の存在が示唆され、さらに時間微分も入れると 6 種類の磁場が現れることが期待される。実際に波束の運動方程式を作ると 6 種類の Berry 曲率  $\Omega$  が現れて式 (2), (3) が得られるわけである。

## 6. マルチフェロイクス中の光の伝搬とベクトルポテンシャル

これまで見てきた波束の Berry 曲率による現象は、誘電率  $\epsilon(\vec{r})$  が空間変化することだけから全てが出てきており、対象とする物質を特定しない一般的なものであった。しかし、例えば磁性体や強誘電体でそれぞれの物質の個性が光学応答にどう反映されるのかも興味深い話題である。物質の個性という観点から、筆者は磁性と誘電性を併せもつマルチフェロイクスと呼ばれる物質群に着目した研究も行っているのでここで簡単に紹介したい。

マルチフェロイクス (multiferroics) とは、時間反転対称性と空間反転対称性の両方の破れた物質の総称である。マルチフェロイクスの光学応答としては、光学的電気磁気効果 (optical magnetoelectric effect, 以下 OME 効果) が特徴的である<sup>16-18)</sup>。OME 効果は偏光に依存しない光学効果で、光の進行に応じて物質の屈折率が異なり、大雑把に言うと物質の表と裏とで色が違うという性質である。具体的には、Fig. 7 に示すように、自発分極  $\vec{P}$  と自発磁化  $\vec{M}$  に対して両方に垂直な方向にトロイダルモーメント (toroidal moment)  $\vec{T} \propto \vec{P} \times \vec{M}$  を考えると  $\vec{T}$  に対して光の進行方向が平行か反平行かで屈折率が変わる現象として、

$$n = n_0 + \alpha_0 \hat{k} \cdot \vec{T}$$

と書くことができる。ただし、 $\hat{k}$  は波数の単位ベクトルである。つまり、物質自身が光に対してベクトル場の働きをしている。従って、この  $\vec{T}$  がベクトルポテンシャルの役割を果たすのではないかと期待される。実際に調べてみると確かにそうであることを証明することができて、 $\nabla_{\vec{r}} \times \vec{T}$  のが「磁場」のような影響を与えて、Fig. 8 に示すように光が「Lorentz 力」を受けて、元来た経路をたどれず一方通行になることがわかる<sup>19)</sup>。実は光に対する Lorentz 力は、光学などの教科書には「存在しない」と書かれているものであり<sup>20,21)</sup>、光とベクトル場とを相互作用させることは単に媒質の性質がスカラー的である場合の光学からは想像できない結果をもたらしている。

また、マルチフェロイクスを加工してフォトリック結晶を作ることで OME 効果は回折現象にも顔を出し、1000 倍にも増強されることも付記しておく<sup>22,23)</sup>。

## 7. まとめと展望

X 線の波束のシフトや、マルチフェロイクス中の光の伝搬の様子をみてきたが、両者を貫くのは電磁波が物質中のベクトル場を感じることでおもしろい現象が起きるという点である。特に X 線に関していうと、動力的回折では Bragg 散乱がベクトルポテンシャルを引き起こし、Berry 曲率へとつながる。このような Bragg 散乱から生

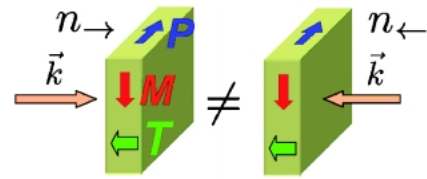


Fig. 7 Optical magnetoelectric effect described by the difference in the refractive index whether the propagation direction is parallel or anti-parallel to the toroidal moment  $\vec{T} \propto \vec{P} \times \vec{M}$ .

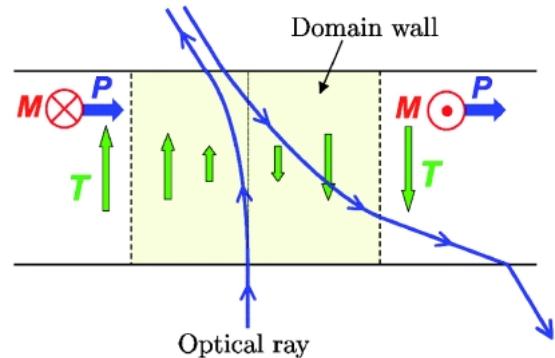


Fig. 8 One-way propagation of light through the toroidal domain wall.

じる Berry 曲率は一般にエネルギーギャップに反比例し、X 線の場合には特に  $\Delta\omega$  が小さいので巨大な光学応答が得られるため、Berry 曲率による取り扱いは X 線光学がまさにうってつけであるといえる。また、X 線動力的回折理論は固体中の電子のバンド理論と密接な関係にあり、波束の運動方程式としては X 線も電子も同じ形になるのであるが、X 線の場合は電子と違って準位に詰めるという作業がないため、運動方程式の解がそのまま軌跡として現象にあらわれることが利点である。さらに、軌跡が解析的に求まるため、物理的意味が明確で考察しやすいことも大きなメリットである。

歪んだ結晶中の波束シフトは物質の詳細にはよらない現象であり、一方でマルチフェロイクス中の光学現象はまさに物質の個性に特化したものである。従って将来課題としてはこれらを組み合わせて、磁性・誘電性をもつ物質中で Bragg 散乱や結晶歪みなどによる Berry 曲率を考慮することで新たな現象も期待できる。また、今回は位置と波数の位相空間  $(\vec{r}, \vec{k})$  を念頭において媒質の時間変化に関してはあからさまには考えなかったが、時間方向も考えて Berry 曲率を議論することも興味深い話題である。Berry 位相による光学理論で時間分解を取り入れることは、自由電子レーザーなどの新しい光源での実験に対して現象を予言するための指針になる。

こうしたアプローチは、物性理論と光学という 2 つの分野のアイデアを行き来することで、両者の境界領域から新しい物理現象が生まれることを示唆している。歴史的に

も、例えば量子力学の建設には光学との analogy が欠かせないものであったことを考えると電子物性と光学を相互に結びつけることは自然であるはずだが、現在ではそうしたアプローチは少ない。異なる分野での現代的な理論手法のアイデアを組み合わせるだけでなく、自由電子レーザーなどの新しい光源を視野に入れた実験のアイデアをも結びつけることで豊かな物理が広がっていくと期待される。

#### 謝辞

本稿で述べた話題は、東京大学の村上修一先生と永長直人先生との共同研究に基づくものです。有益なご指摘をいただいた理化学研究所の石川哲也先生、東京大学の雨宮慶幸先生、東北大学の有馬孝尚先生に感謝いたします。

#### 参考文献

- 1) K. Sawada, S. Murakami and N. Nagaosa: Phys. Rev. Lett. **96**, 154802 (2006).
- 2) M. V. Berry: Proc. R. Soc. A **392**, 45 (1983).
- 3) A. Shapere and F. Wilczek: *Geometric Phases in Physics*, (World Scientific, 1989).
- 4) A. Bohm *et al.*: *The Geometric Phase in Quantum Systems*, (Springer, 2003).
- 5) G. Sundaram and Q. Niu: Phys. Rev. B **59**, 14915 (1999).
- 6) M. Onoda, S. Murakami and N. Nagaosa: Phys. Rev. Lett. **93**, 083901 (2004).
- 7) M. Onoda, S. Murakami and N. Nagaosa: Phys. Rev. E **74**, 066610 (2006).
- 8) R. Y. Chiao and Y. S. Wu: Phys. Rev. Lett. **57**, 933 (1986).
- 9) A. Tomita and R. Y. Chiao: Phys. Rev. Lett. **57**, 937 (1986).
- 10) M. V. Berry: Nature (London) **326**, 277 (1987).

- 11) N. Nagaosa: J. Phys. Soc. Jpn. **75**, 042001 (2006).
- 12) S. Murakami, N. Nagaosa and S.-C. Zhang: Science **301**, 1348 (2003).
- 13) S. Takagi: J. Phys. Soc. Jpn. **26**, 1239 (1969).
- 14) D. Taupin: Acta Crystallogr. **23**, 25 (1967).
- 15) N. Kato: J. Phys. Soc. Jpn. **18**, 1785 (1963).
- 16) M. Kubota *et al.*: Phys. Rev. Lett. **92**, 137401 (2004).
- 17) J. H. Jung *et al.*: Phys. Rev. Lett. **93**, 037403 (2004).
- 18) T. Arima *et al.*: J. Phys. Soc. Jpn. **74**, 1419 (2005).
- 19) K. Sawada and N. Nagaosa: Phys. Rev. Lett. **95**, 237402 (2005).
- 20) M. Born and E. Wolf: *Principles of Optics* 7th edition, (Cambridge University Press, 1999).
- 21) S. Datta: *Electronic Transport in Mesoscopic Systems*, (Cambridge University Press, 1995).
- 22) K. Sawada and N. Nagaosa: Appl. Phys. Lett. **87**, 042503 (2005).
- 23) N. Kida *et al.*: Phys. Rev. Lett. **96**, 167202 (2006).

#### ● 著者紹介 ●



#### 澤田 桂

理化学研究所播磨研究所基礎科学特別研究員

E-mail: sawada@spring8.or.jp

専門：光学理論

#### 【略歴】

2007年3月東京大学大学院工学系研究科物理工学専攻博士課程修了。博士(工学)。2007年4月より現職。

## Berry Phase Theory for Dynamical Diffraction and Its Application to Optical Phenomena

Kei SAWADA RIKEN SPring-8 Center 1-1-1, Kouto, Sayo-cho, Sayo-gun, Hyogo 679-5148 Japan

**Abstract** We develop a modern theory of dynamical diffraction, in which the Berry phase correction to the conventional geometrical optics is taken into account. The Berry curvature gives rise to an enhanced shift of an X-ray wave packet in deformed crystals. We also discuss an anomalous behavior of light propagating through a multiferroic material, in which time-reversal and space-inversion symmetries are simultaneously broken.