

令和 4 年 6 月 3 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03695

研究課題名(和文) 光と強結合したトポロジカル物質の非平衡状態・励起状態における物性と制御

研究課題名(英文) Physical properties and control of topological materials strongly coupled with light in non-equilibrium and excited states

研究代表者

日野 健一 (Hino, Ken-ichi)

筑波大学・数理物質系・教授

研究者番号：90228742

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：近年、トポロジカル物質といわれる新規機能を有する物質群の広範な探索と応用へ向けた追究が世界中で精力的に行われている。この物質の物性は、バルクバンドの反転によるバンド構造のねじれによって物質の対称性を反映したトポロジカル秩序が形成されることに起因する。本研究では、従来の平衡状態におけるトポロジカル物性解明とは異なり、光誘起された非平衡状態における擬2次元および3次元トポロジカル半金属相のトポロジカル秩序および相転移の理論的解明を行った。具体的には、光制御された表面状態、カイラリティ、磁気特性などの新規な現象を見い出した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

連続波レーザーのような周期的外場によって様々な結晶の状態を制御する研究領域はフロケエンジニアリングと呼ばれ、平衡系では到達困難な多彩な物質相の発現および新規物性の実現が期待される。光照射により生成したトポロジカル半金属相に関する本研究はその一環であり、トポロジーと対称性をキーワードとする非平衡系物理における未知な学理の探究は学術的に大いに意義がある。さらに、超高速な光制御による新規デバイスの開発に向けた応用研究に関しても潜在的な意義がある。

研究成果の概要(英文)：Recently, the studies toward the exploration and applications of topological materials with novel features have been conducted widely and vigorously in the world. Physical properties of these materials are attributed to topological order protected by symmetry that results from bulk band inversion leading to twisted band structures. Differing from conventional studies of topological properties in equilibrium, in this study, one makes theoretical investigations of topological order and the associated phase transitions formed in laser-driven quasi-two-dimensional and three-dimensional topological semimetals in non-equilibrium. To be specific, one finds novel phenomena of optically controlled surface states, chirality, magnetic properties, and so on.

研究分野：光物性理論

キーワード：トポロジカル物質 トポロジカル絶縁体 ディラック半金属 ワイル半金属 フロケ状態 フロケエンジニアリング 光制御 非平衡系ダイナミクス

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

トポロジカルな絶縁体、半金属、磁性体、超伝導体などのトポロジカル物質には、物質の対称性（時間反転、パリティ、鏡映等の対称性）を反映したトポロジカル秩序が内在し、それに伴い表面には直線的なバンド分散の交差（ディラック交差）が生じる。これは対称性で保護された擾乱に対して頑強であるため、通常の固体中の電子では不可能な物性を引き起す。さらに、バルクバンド反転を制御することにより、エッジ状態の発現・消失を伴うトポロジカル相転移を誘起することができる。

これまでのトポロジカル物質研究の対象は主として平衡状態であり、非平衡状態におけるトポロジカル物性は未開拓領域である。非平衡状態を形成するための最も有効な手段は「光」であり、連続波レーザー（1ピコ秒程度の長パルス）を照射することでバンド反転を誘起し発現するトポロジカル秩序を解明する研究が増えつつある。光に備わった自由度（強度、周波数、偏光など）を基に非平衡における物質状態を制御する研究はフロケエンジニアリングと呼ばれるが、この観点からのトポロジカル物質の研究は緒に就いたところであり、更なる理解の深化が必要である。

2. 研究の目的

従来、光誘起されたトポロジカル物質研究の多くは、バンドギャップに対して非共鳴な連続波レーザー照射によってトポロジカル物質（フロケトポロジカル物質）相を生成し付随する物性を調べることを主要な目的としていた。本研究では、バンド間光共鳴遷移を誘起することによって実励起を伴うフロケトポロジカル物質相を生成し付随する新規物性を調べることを目的とする。特に、レーザー強度が大きくなるに従い、ac シュタルク効果が優勢になり、バンド分裂したフロケサイドバンド間のバンド反転および交差が引き起こされる。

(1) 半導体量子井戸（井戸層HgTe および障壁層CdTe）は擬2次元のバルクバンド構造を形成し、井戸層の膜厚が臨界幅より大きくなると、トポロジカルに自明な相からトポロジカルに非自明な相（時間反転対称性が保持されたトポロジカル絶縁体）へと相転移する。自明相にある上記半導体を直線偏光レーザーによって駆動してフロケバンドを生成し、レーザー強度の変化に対するトポロジカル相転移および付随する表面状態を調べる。

(2) ナローギャップ半導体Zn₃As₂に（時間に関して左巻きの）円偏光レーザーを照射し、生成するフロケワイル半金属相および付随する表面状態を調べる。円偏光レーザー照射により時間反転対称性が破れるため、フロケバンドはスピン分裂する。しかるに、共鳴励起の場合、ダウンスピン間遷移がアップスピンバンド間遷移より優勢であるため、それぞれのフロケバンド構造には顕著な相違が生じると考えられる。その相違に起因するトポロジカル物性を明らかにする。

3. 研究の方法

上記目的における両物質系は、*p*軌道から成る価電子帯（重い正孔バンド）と*s*軌道から成る伝導帯（電子バンド）から構成される2バンドモデルで近似する。これらにバンドギャップ E_g に近接する周波数 ω ($\leq E_g$) の連続波レーザーを照射してフロケバンドを生成する。 n 個の光子が着衣した $b(=s, p)$ 軌道に由来するフロケバンドを $b(n)$ と記すことにする。図1に、レーザーのピーク電場の強さ F_x の変化に対してフロケバンド（ブロッホ運動量 k 、擬エネルギー E) が変調する様子を模式図で示す。左図はレーザー照射前のバンドの配置を示している。中央図は、レー

レーザー照射による s - p 軌道間双極子遷移に起因する ac シュタルク効果によりラビ周波数 Ω_R 程度のエネルギーで分裂したフロケバンド対 $s(0)$ と $p(1)$ および $s(-1)$ と $p(0)$ を示す。 F_x が増加すると Ω_R が増大して、右図のように $s(-1)$ と $p(1)$ のフロケバンドが反転（反交差）するかもしれない交差してトポロジカル相転移が引き起こされると考えられる。以下に目的

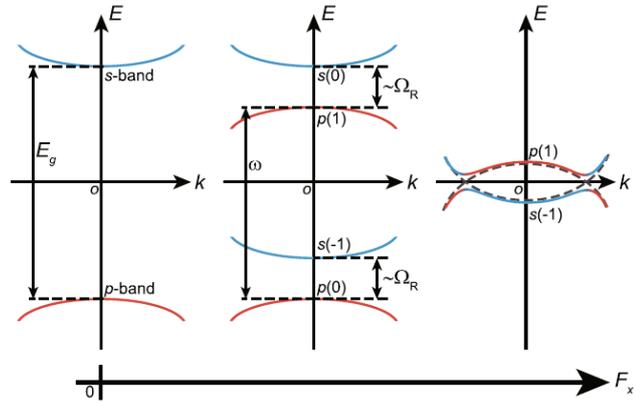


図1. レーザーのピーク電場の強さ F_x に対する生成するフロケバンド（ブロッホ運動量 k 、擬エネルギー E ）の模式図。詳細は本文を参照。

(1) および (2) に対する具体的な研究方法を記す。

(1) 半導体量子井戸のハミルトニアン

は Bernevig-Hughes-Zhang (BHZ) 模型[1]を採用する。これに直線偏光レーザーと電子の相互作用を導入してフロケハミルトニアンを構築して、その擬エネルギー固有値を数値計算することによりバルクのフロケバンドを求める。さらに、周期的境界条件の代わりに結晶の一方向 (y 軸方向) に関いた境界条件を課すことにより、 x 方向の表面状態バンドを計算する。また、 ω 領域にフーリエ変換された系の誘起分極を計算することにより、ブリュアン域内のフロケバンド変調と表面状態発現の間のバルク-エッジ対応を解析することができる。

(2) ナローギャップ半導体 Zn_3As_2 の結晶構造を正方晶 (空間群 $P4_2/nbc$) として、 kp 摂動模型により対応するハミルトニアンを求める[2]。この際、スピンフリップを伴うスピン軌道相互作用は高次項の寄与になるため無視する。よって、アップスピンとダウンスピンごとに分離したハミルトニアンを扱うことが可能になる。(1)と同様にこれに円偏光レーザーと電子の相互作用を導入し、適切な境界条件を課すことにより、バルクおよび表面のフロケバンドを計算する。この物質は平衡状態では非トポロジカル相にあるが、 c 軸 (z 軸) 方向に4回回転対称性を有するため、特定のレーザー周波数領域においてバンドギャップを負値に変調することにより、サイドバンド間の反転によって k_z 軸上にバンド交差 (フロケワイル相) が発現し得ると考えられる。さらに、当該のフロケハミルトニアンを近似計算することによりフロケバンドの解析的な表式を求め、数値計算に内在する物理の理解を深化することが可能になる。

4. 研究成果

(1) 半導体量子井戸 (HgTe/CdTe) 系 :

① 印加レーザーのピーク電場 F_x の増大に伴い、フロケバンド構造に ac シュタルク分裂が顕著になり、分裂したバンド間のバンド反転が引き起こされることが分かった。 F_x が特定の大きさのとき、第1ブリュアンゾーン (k_x, k_y) の高対称点 X_1 点 ($\pi, 0$)、 X_2 点 ($0, \pi$)、 Γ 点 ($0, 0$) においてバンド4重縮退 (偶然縮退) が生じ、2次元バルクにおけるディラック錐が形成されることを見出した。これは時間反転対称性に保持されたフロケディラック半金属相の発現を示している。この起

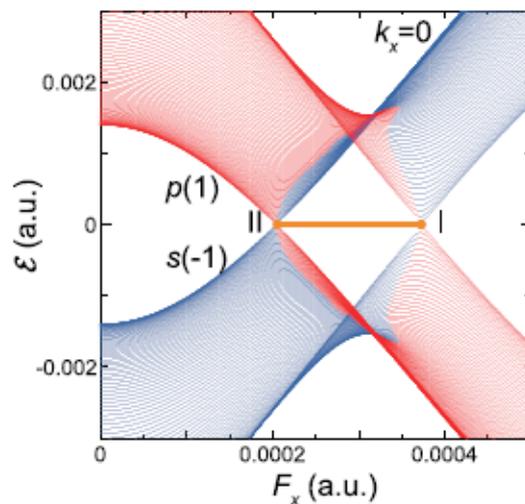


図2. F_x に対する $p(1)$ と $s(-1)$ バンドの擬エネルギー変化。詳細は本文を参照。

因の詳細を系の対称性を基に明らかにした。図2は F_x に対する $p(1)$ と $s(-1)$ バンドの擬エネルギー ($k_x=0$) の変化の様子を示す数値計算結果である。これより、 F_x が点II (X_2 に対応) および点I (Γ に対応) の特定な値のときにバンド交差することが分かる。

② フロケディラック半金属相の表面状態にディラック交差が形成されることを見出した。さらにレーザー強度を変化することによって、表面状態が非自明相 (トポロジカル状態) (図2のI-II間の $E=0$ の黄色実線) と自明相 (タム状態) の間に秩序相転移が誘起されることが分かった。このような特異性は、レーザー強度の一定の領域において、高対称点以外のバルクブリュアンゾーン内に近接的な4重縮退が複数個安定に存在することに起因する。これらの縮退ノードを介することによって、様々な形態のエッジ状態が発現し得ることが分かった。また、これらの表面状態は明確な境界条件依存性 (直線偏光の電場方向依存性) を示すことを見出した。

③ ω 領域における誘起分極 $P(k_x, k_y)$ を数値計算し、バルクブリュアン域における $P(k_x, k_y)=0$ の等高線の k_x 軸方向への射影と表面状態の発現領域に密接な相関があることを示した。これはフロケトポロジカル系におけるバルク-エッジ対応を示すと理解される。

(2) ナローギャップ半導体 Zn_3As_2 系:

① この物質は平衡状態では自明絶縁体相 (非トポロジカル相) にあるが、 c 軸方向に4回回転対称性を有するため、円偏光レーザー照射によりサイドバンド間の反転が生じ k_z 軸上にバンド交差が発現することを見出した。この場合時間反転対称性が破れるため、ワイル半金属相にはアップスピンとダウンスピンに帰属したフロケバンドが生成する。 k_z 軸上のワイル点近傍における k_x, k_y 方向のエネルギー分散に関して、後者は線形であるが前者は二次的になる。さらに、図3に示すように、 $k_z=0$ におけるエネルギー分散を調べると、前者には後者と異なりバンドギャップがほぼ閉じた円環上の交線が発現し、ノーダルライン半金属相の特徴を有している。この結果は当該結晶において、光照射によりワイル半金属相とノーダルライン半金属相が共存することを示している。フロケバンドの解析的な表式を導出することによって、以上の数値計算+結果に関する物理的起因を明らかにすることができた。

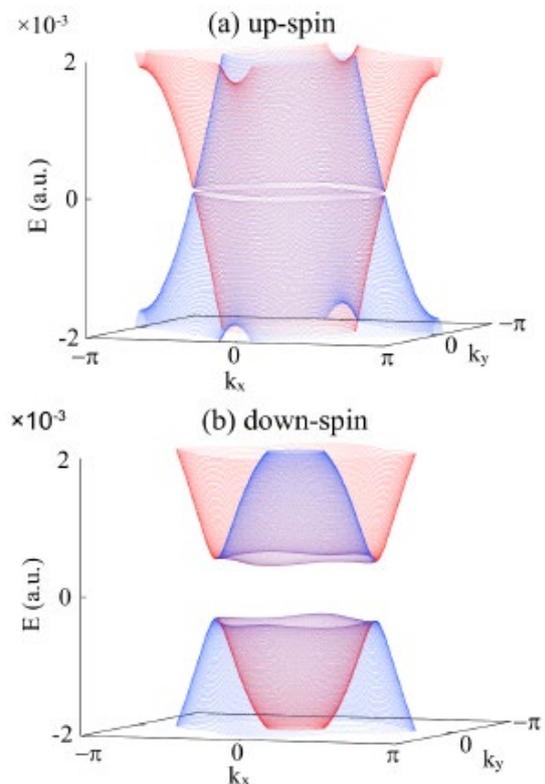


図3. $k_z=0$ におけるフロケワイルエネルギー分散。(a) アップスピンバンド、(b) ダウンスピンバンド。詳細は本文を参照。

② 両スピンのフロケワイル半金属相はレーザー周波数およびピーク電場強度に依存して発現および消滅し、レーザーによるトポロジカル秩序転移を示すことを見出した。フロケワイル半金属相が消失する際、ワイル対のカイラリティは対消滅するはずである。それを調べるために、上記の解析的表式からワイルハミルトニアンを導出して、 k_z 軸上の4つのワイル点のヘリシティを計算して、隣接するすべてのワイル点でのカイラリティが異符号であることを確認した。

③ 両スピンのフロケワイル半金属相にはフェルミアークを有する表面状態が発現することを見出した。しかるに、電子励起はダウンスピン状態間が優先的に起こるため表面状態にはダウンスピンに偏極した状態が支配的になる。よって、当該の非平衡状態には過渡的な磁化が発現す

ることになる。さらに、円偏光照射により系の過渡的磁化には逆ファラデー効果による軌道磁化が有意に寄与すると考えられる。このような表面の光誘起磁化の測定は、当該の円偏光強励起レーザーのほかにプローブ光として線偏光弱励起レーザー照射を行い、縦磁気カー効果を利用することによって可能と考える。

(3) 成果の位置づけ・インパクト、今後の展望：これまで、非共鳴な照射光に対してトポロジカル絶縁相を誘起して関連する物性を調べることが、主なフロケトポロジカル物質の研究対象であった。2010年代半ばからトポロジカル半金属に関連したフロケトポロジカル物質の研究が徐々に始まり、この1、2年の間フロケワイル半金属相の様々な観点からの研究の増加が顕著になってきている。この意味において本研究は時宜を得たものといえる。とりわけ、本研究で対象としたバンド間共鳴励起により誘起されるトポロジカル半金属相は、キャリアの実励起を伴うものであるため、その物性を理解するためには、単なるフロケバンドの理解に留まらず、光照射後の一連の非平衡系ダイナミクスを扱うことが不可避である。これは未開の研究領域であるため、今後の探究により更なる学術的な展開や新規な学理の確立、光による高速スイッチングを伴うデバイスに関する応用研究への進展などが期待される。

<引用文献>

- [1] B. A. Bernevig, T. L. Hughes, and S. C. Zhang, “Quantum spin Hall effect and topological phase transition in HgTe quantum wells”, *Science* **314**, 1757-1761 (2006).
- [2] Z. Wang, H. Weng, Q. Wu, X. Dai, and Z. Fang, “Three-dimensional Dirac semimetal and quantum transport in Cd₃As₂”, *Phys. Rev. B* **88**, 125427(6 pages) (2013).

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Runnan Zhang, Ken-ichi Hino, and Nobuya Maeshima	4. 巻 accepted for publication
2. 論文標題 Floquet-Weyl semimetals generated by an optically resonant interband-transition	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Zhang, B., Maeshima, N. & Hino, Ki	4. 巻 11
2. 論文標題 Edge states of Floquet Dirac semimetal in a laser-driven semiconductor quantum-well	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 2952-2962
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1038/s41598-021-82230-3	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 Yohei Watanabe, Ken-ichi Hino, Nobuya Maeshima, Hrvoje Petek, and Muneaki Hase	4. 巻 99
2. 論文標題 Ultrafast asymmetric Rosen-Zener-like coherent phonon responses observed in silicon	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Phys. Rev. B	6. 最初と最後の頁 174304_1-9
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.99.174304	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Yuhei Komaki, Yuma Iwase, Shogo Yanagimatsu, Yoshiyuki Muta, Nobuya Maeshima, and Ken-ichi Hino	4. 巻 88
2. 論文標題 Dynamical Charge Structure Factor of a One-Dimensional Ionic Hubbard Model in the Low-Energy Region	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn.	6. 最初と最後の頁 054709_1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JPSJ.88.054709	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 1件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 張潤南、前島展也、日野健一
2. 発表標題 フロケットポロジカル半金属におけるレーザー誘起ディラック分散とワイルノードおよび線ノードII
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会（オンライン）
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 日野健一
2. 発表標題 バンド間光共鳴励起によるフロケワイル半金属状態の生成
3. 学会等名 第2回 有機無機スピンエレクトロニクス研究会（オンライン）（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 張潤南、前島展也、日野健一
2. 発表標題 レーザー誘起バンド間共鳴遷移によるフロケットポロジカル半金属物質の創成および表面状態の解析
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会（オンライン）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 前島展也、日野健一
2. 発表標題 サイト依存ポテンシャル下の $S=1/2$ スピン梯子系における多トリプロン状態II
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会（オンライン）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 張博源, 前島展也, 日野健一
2. 発表標題 フロケットボロジカル絶縁体におけるディラック半金属状態
3. 学会等名 日本物理学会 2020年秋季大会 (オンライン開催)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 張博源, 日野健一, 前島展也
2. 発表標題 フロケディラック半金属におけるエッジ状態の境界条件依存性
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会 (オンライン)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 張潤南, 前島展也, 日野健一
2. 発表標題 フロケットボロジカル半金属におけるレーザー誘起ディラック分散とワイルノード
3. 学会等名 日本物理学会 第76回年次大会 (オンライン)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Boyuan Zhang, Nobuya Maeshima, and Ken-ichi Hino
2. 発表標題 Laser-induced band inversion in a Floquet topological insulator
3. 学会等名 NTTI2019 and BEC2019, PP-24, Hiroshima, Japan (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Boyuan Zhang, Nobuya Maeshima, and Ken-ichi Hino
2. 発表標題 Laser-induced band inversion in a Floquet topological insulator
3. 学会等名 Topomat2019, PB-57, Kyoto, Japan (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関