

令和 3 年 5 月 17 日現在

機関番号：32689

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23427

研究課題名（和文）光で誘起される電子のおよび磁気的秩序に関する理論的研究

研究課題名（英文）Theoretical study on photo-induced electronic or magnetic orders in solids

研究代表者

田中 康寛（Tanaka, Yasuhiro）

早稲田大学・理工学術院・講師（任期付）

研究者番号：50541801

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 1,700,000円

研究成果の概要（和文）：光照射によって物質が持つ電子的、磁気的な秩序が増強されたり生成されたりする新しいタイプの光誘起相転移について理論的研究を行った。具体的には、励起子絶縁体（伝導帯と荷電子帯の混成により励起ギャップが開いた絶縁体）における光照射による励起子秩序の増大と、スピン軌道相互作用のある電子系における円偏光誘起磁化について、時間依存シュレディンガー方程式やフロケ理論を用いた解析で調べた。その結果から、それぞれの物理的機構を明らかにし、実験での観測可能性について議論した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

固体における光誘起相転移研究では、近年光技術の進展に伴い多くの新しい現象が発見されている。本研究では、そのような現象のうちのいくつかに着目し、その物理的起源を明らかにすることを目的とした理論構築を行った。これにより、光照射によって固体の持つ様々な秩序が増大したり生成したりするといった、これまでにならぬタイプの光誘起相転移が起こる機構を理解することができた。得られた研究成果は、光と物質の相互作用による新しい現象への理解を得るといった学術的意義のみならず、将来的に物質の機能制御に向けた応用への道を拓くという意味でも重要な知見であると考えられる。

研究成果の概要（英文）：I have theoretically investigated a novel type of photo-induced phase transitions in which electronic or magnetic orders in solids are enhanced or created by irradiation of light. Specifically, I studied (i) photo-induced enhancement of excitonic order in excitonic insulators and (ii) spin polarization in electron systems with spin-orbit interactions by irradiation of circularly polarized light. By using numerical simulations based on the time-dependent Schrodinger equation and analytical calculations by the Floquet theory, physical mechanisms for these photo-induced phenomena have been obtained. Also, I have discussed the possibility of experimental observations for these phenomena in several materials.

研究分野：物性理論

キーワード：光誘起相転移 励起子絶縁体 スピン軌道相互作用

### 1. 研究開始当初の背景

物質へ光を照射することによって相転移を引き起こす光誘起相転移は、古くから理論実験ともに研究されてきた。近年、光技術の進展に伴い、より強い光を照射し短時間で測定することが可能になったことで、新しいタイプの光誘起現象が次々に観測され興味を持たれている。従来の光誘起相転移では、多くの場合光によって秩序の融解が起こり、その初期過程を解明することが研究の主眼となっていた。しかし、ここで研究対象とするのはそれとは顕著に異なり、光照射によって物質の電子的、磁氣的秩序が増強したり生成したりする現象である。具体例としては、励起子絶縁体  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  における光照射による励起子ギャップの増大[S. Mor *et al.*, Phys. Rev. Lett. 119, 086401 (2017)]や、有機導体における電荷の局在化[T. Ishikawa *et al.*, Nat. Commun. 5, 5528 (2014)]が挙げられる。このような、非従来型の光誘起相転移の機構解明に向けた研究が、国内外で精力的に進められつつある状況にあった。

### 2. 研究の目的

本研究では「光照射で現れる物質の秩序の起源、物理的な発生機構は何か？」をテーマとしていくつかの具体例を考え理論研究を行った。特に、その秩序のもつ個性がどのように非従来型の光誘起現象に寄与しているかや、そこで鍵となるパラメータや相互作用を特定することを中心課題とした。具体的には、以下の3つの課題を考えた。

#### (A) 光照射による励起子ギャップの増大機構の解明

励起子絶縁体における光によるギャップ増大については、研究代表者による先行研究[Y. Tanaka *et al.*, Phys. Rev. B 97, 115105 (2018)]があり、二軌道ハバードモデルに対する数値計算から、光照射前の基底状態が BEC 型の励起子絶縁体か、相図上でそれに近い半導体であるとき、励起子ギャップ増大が現れることが分かっていた。また、光の振動数が基底状態の励起子ギャップ近傍であることが必要なことも示されていた。しかし、これらは数値シミュレーションによる結果であり、その物理的起源は明らかではなかった。そこで、二軌道ハバードモデルの原子極限を考え、先行研究をさらに詳細に検討し、光誘起ギャップ増大の物理的機構を解明することを目指した。

#### (B) 三角格子上の近藤格子モデルにおける光誘起磁気構造(スカーミオン)の理論

近藤格子モデルは、伝導電子と局在スピンの結合した系を記述し、重い電子系の物性を理解するために有用なモデルである。特に三角格子では、フラストレーションに起因して、様々なスピン構造の拮抗が生じることが知られている。そこで、この系に光照射することにより、新しい非平衡系特有のスピン状態が現れるかどうかを解明することを目的とした。実際、正方格子上の近藤格子モデルに対する先行研究[A. Ono and S. Ishihara, Phys. Rev. Lett. 119, 207202 (2017)]では、光照射によりスピン状態が顕著に変化することが示されている。ここでは特異な磁気構造のひとつとして、トポロジカルなスピン構造であるスカーミオン格子が現れるかどうかに着目して研究を行う。

#### (C) スピン軌道相互作用に起因する光誘起強磁性の理論

近年、半導体への大きな電流注入により、ほとんど純粋な右あるいは左円偏光が得られることが発見され注目を集めている[N. Nishizawa *et al.*, PNAS 114, 1783 (2017)]。しかし、この物理的機構は明らかになっていない。本研究では、この解明へ向けた一歩として、半導体に円偏光を照射した際の電子系のスピン偏極を理論的に調べる。GaAs などの典型的な半導体では、結晶構造に由来するスピン軌道相互作用が存在する。これにより、電子の軌道運動がスピンに変換される機構を解明することを目指す。

### 3. 研究の方法

本研究では、時間依存シュレディンガー方程式による実時間発展の数値計算、およびフロケ理論を用いた解析計算を主な計算手法として用いた。前者では、光照射下でのダイナミクスを追うことができ、後者では光照射による非平衡定常状態を扱うことができる。電子間相互作用のあるモデルを扱う際には、基本的に平均場近似を用いたが、場合により電子相関を取り込むため少数系に対する厳密対角化法も用いた。以下では、実際に本研究で成果が得られた課題(A),(C)について、研究の方法をより詳細に述べる。

(A) 二軌道ハバードモデルに対し、光照射の効果を双極子遷移項で考慮して系の時間発展を計算した。その際、光誘起ダイナミクスの物理的機構を明らかにする目的で、まず電子の遷移積分がゼロの極限(原子極限)を考えた計算を行った。この極限では、モデルの各サイトが独立になり、平均場近似の範囲では二準位系の問題に帰着される。このモデルを時間依存シュレディンガー方程式で解析した。さらに、原子極限でない通常の二軌道ハバードモデルに対す

る時間発展計算も行い、二準位系で行った解析を適用することで、この系での光誘起ギャップ増大機構を詳細に調べた。

- (C) 正方格子上の自由電子系にスピン軌道相互作用を導入したモデルを考え、円偏光照射下での光誘起ダイナミクスを計算した。時間依存シュレディンガー方程式により系の全スピン(磁化)の時間発展を計算し、誘起される磁化の光電場振幅依存性や周波数依存性を求めた。また、電子密度を変化させて結果がどう変わるか調べた。さらに、フロケ理論の高周波展開を用いて有効ハミルトニアンを導出し、それに基づく解析的な計算から、円偏光電場によって磁化が現れる物理的機構を調べた。その結果から、実時間ダイナミクスで得られた結果の解釈を行った。

#### 4. 研究成果

本研究で得られた成果は、2. で述べた(A)と(C)に関するものである。(B)については本研究期間内で発表できる成果は得られなかったが、引き続き研究を行っている。以下では、(A)と(C)に関して具体的な研究成果を述べる。

- (A) 研究代表者による先行研究[Y. Tanaka *et al.*, Phys. Rev. B 97, 115105 (2018)]をもとに、光照射による励起子ギャップの増大について、その物理的機構を詳細に調べた。ここでは、まず先行研究で用いた二軌道ハバードモデルの原子極限を考えることで、その光誘起ダイナミクスが二準位系でよく知られたラビ振動で記述できることを示した。これにより、励起子ギャップの増大が起こる機構を明確にすることができた。次に、この機構が原子極限でない一般の場合でも成り立つかどうかを検討した。具体的には、各軌道の電子密度やエキシトニック秩序変数の大きさが、光照射によってどのように変化するかを計算し、その結果がラビ振動の観点から理解できるか調べた。そして実際に、それらの物理量の振る舞いがラビ振動の現れとして理解できることを示した。これにより、先行研究では明らかになっていなかった励起子ギャップ増大の物理的起源を理解することができた。

以上の結果は、電子自由度のみを持つ二軌道ハバードモデルに対し、平均場近似を用いた場合の結果である。本研究ではこれに加えて、電子格子相互作用の効果と電子相関効果も考慮した場合の計算も行った。電子格子相互作用のあるモデルに対しては、格子自由度を古典的に扱い、電子系に対する時間依存シュレディンガー方程式と格子系に対する古典的な運動方程式を組み合わせて時間発展を計算した。また、電子相関については、二軌道ハバードモデルのクラスター(12 サイト)に対して厳密対角化法を用いて基底状態の波動関数を計算し、それに基づく時間発展を計算した。いずれの計算でも、結果としては光照射によるダイナミクスがラビ振動として解釈できることが分かった。この結果から、先行研究で得られた結果は、電子格子相互作用や平均場近似で無視している電子相関効果を取り入れても定性的には変わらないことが示唆された。

- (C) まず、時間依存シュレディンガー方程式を用いた時間発展計算によって、二次元面に垂直に円偏光を照射すると、この照射方向(面に垂直)に磁化が生じることが分かった。また、光電場の振幅と周波数を変化させて光誘起磁化を計算し、その依存性を明らかにした。さらに、得られる光誘起磁化は電子密度に敏感であり、絶対値と符号が変化するという結果が得られた。これらを物理的に解釈するために、フロケ理論を用いた計算を行った。フロケ理論では、周期的な光電場を通して時間依存する問題を、フロケハミルトニアンと呼ばれる時間に依存しない有効モデルを用いた問題に置き換えて解析を行う。ここでは光の周波数が大きい極限での有効ハミルトニアンを導出することで、非平衡定常状態における円偏光電場の効果を調べた。その結果、円偏光電場はスピン軌道相互作用を介して電子に有効磁場をもたらすこと、その有効磁場が波数依存性を持つことが分かった。そして円偏光電場によって生じる磁化は、この波数依存した有効磁場と、系が持つフェルミ面との相互関係で決まることを明らかにした。より具体的には、光誘起磁化は、スピン軌道相互作用により分裂したふたつのフェルミ面に囲まれた領域で生じる。したがって、この囲まれた領域内で有効磁場の符号が揃いかつ絶対値が大きい場合に、大きな光誘起磁化が現れることになる。これにより、電子密度によって光誘起磁化が変化する機構を理解することができ、時間依存シュレディンガー方程式を用いた計算結果の解釈を得ることができた。また、光誘起磁化の光電場振幅および周波数依存性についても、フロケ理論を用いた解析的な計算から理解できることが分かった。これらの結果を踏まえて、これまで知られている半導体やいくつかの物質において、円偏光誘起磁化の観測可能性について議論した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Tanaka Yasuhiro, Inoue Takashi, Mochizuki Masahito	4. 巻 22
2. 論文標題 Theory of the inverse Faraday effect due to the Rashba spin-orbit interactions: roles of band dispersions and Fermi surfaces	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 New Journal of Physics	6. 最初と最後の頁 083054, 1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1088/1367-2630/aba5be	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 Tanaka Yasuhiro, Yonemitsu Kenji	4. 巻 102
2. 論文標題 Photoinduced dynamics of excitonic order and Rabi oscillations in the two-orbital Hubbard model	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 075118, 1-20
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.075118	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3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 田中康寛, 米満賢治
2. 発表標題 二軌道ハバードモデルにおけるエキシトニック秩序の光誘起ダイナミクスとラビ振動
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中康寛, 望月維人
2. 発表標題 スピン軌道相互作用のある電子系における円偏光誘起スピン偏極の理論: 数値計算とフロケ解析
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 田中康寛, 望月維人
2. 発表標題 有機導体 -(BEDT-TTF)2I3における円偏光誘起トポロジカル状態の性質
3. 学会等名 日本物理学会75回年次大会
4. 発表年 2020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
---------	---------