

平成 30 年 5 月 15 日現在

機関番号：12601

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2016～2017

課題番号：16H06717

研究課題名(和文)量子駆動系の非線形輸送現象における相関効果の理論研究

研究課題名(英文)Theoretical study on the nonlinear electromagnetic response in noncentrosymmetric systems

研究代表者

石塚 大晃(Ishizuka, Hiroaki)

東京大学・大学院工学系研究科(工学部)・助教

研究者番号：00786014

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,000,000円

研究成果の概要(和文)：空間反転対称性の破れた物質に特有の物理現象である異常光起電効果および二次高調波発生をゼロギャップ半導体から絶縁体までの異なる性質を持つ物質系を対象として理論的に研究した。そして、ゼロギャップ半導体では、絶縁体とは異なる機構による異常光起電効果および二次高調波発生が見られることを見出した。また、絶縁体における研究では、Rice-Mele模型における異常光電流を非平衡Green関数法を用いて解析した。そして、従来のpn接合系における光起電効果と異なり、異常光起電効果が光電子の励起位置によらないことを確認した。これらの成果は今後の異常光起電効果の実験的研究に対して指針を提供することが期待できる。

研究成果の概要(英文)：Photogalvanic effect and second-harmonic generation in non-centrosymmetric materials are theoretically studied in a wide range of materials from zero-gap semiconductors (Weyl semimetals) to non-centrosymmetric insulators. In zero-gap semiconductors, we find a new mechanism that contributes to the photogalvanic effect and second-harmonic generation that appears only in the zero-gap semiconductors. In the insulators, we studied the light-position dependence of the locally-excited photocurrent using an unbiased non-equilibrium Green function method. We find that the magnitude of photocurrent induced in the non-centrosymmetric systems does not depend on the position of the light, in contrast to what is generally expected in the conventional mechanism. These results potentially contribute to experimental studies on the photogalvanic effects in topological materials, which is an emerging topic in the condensed matter physics.

研究分野：物性理論

キーワード：シフト電流 Berry位相 ワイル半金属 二次高調波発生

1. 研究開始当初の背景

固体中の電子のバンド構造に由来する Berry 位相効果は輸送現象や誘電分極などの固体物質の基本的性質と関連した重要な概念であるとともに、物質中でみられる量子効果の代表例として精力的な研究が進められてきた。特に遍歴電子系においては、トポロジカル・ホール効果などの非自明な磁気構造との結合による輸送現象や、トポロジカル絶縁体、磁気秩序やスピン軌道相互作用由来の Weyl 半金属相など様々な電子状態において、その物質の基本的な性質に大きな影響を与えることが理論的に予想されている。さらに、こうした電子状態をもつ物質が実験的にも発見され、実験・理論の両面で精力的な研究が進められている。

一方で最近、物質に強い光を照射することによって実現される非平衡状態の物性が盛んに研究されている。光などの電磁波によって周期的に駆動される非平衡系では、Thouless の断熱ポンプのトポロジカルな性質が古くから知られている他、Floquet トポロジカル絶縁体の提案など非平衡系に特有のトポロジカルな性質の発現が指摘されている。また、バンドの Berry 曲率に由来して、非平衡系に特有な新奇な電磁応答の発現が半古典論を用いた解析から理論的に指摘されている。このように、量子位相は周期駆動された系や非平衡系の物性の理解にも重要な役割をなす。

非磁性物質においては、こうした非平衡状態に特有のトポロジカルな性質や量子位相と関連した輸送現象は空間反転対称性の破れが重要な役割をなす。時間反転対称性と空間反転対称性の両方を持つ物質では、バンドの非自明な性質を記述する Berry 曲率がゼロとなることが知られており、量子位相に関連した効果の多くは禁止されてしまう。実際、物質中では以上のようなトポロジカルな性質に由来する輸送現象は光起電

力(シフト電流)などのような空間反転対称性の破れを必要とする非線形応答として発現することが様々な場合において指摘されている。しかしながら、物質のトポロジカルな性質と関連した非線形応答の研究は未だ黎明期にあり、Berry 曲率などの性質と関連した非自明な非線形応答が生じうることはいくつかの具体例で指摘されているものの、その空間依存性やパルス光の照射に伴う光電流の実時間発展などに関してはほとんど研究例が無かった。

さらに、Weyl 半金属などのゼロギャップ半導体は波数空間の Berry 曲率に特徴的な構造を有することから、上述の Berry 位相と関連した非線形応答の研究においては興味深い対象となる。特に近年、ディラック半金属やワイル半金属といったゼロギャップ半導体が発見されたことから、これらの物質に特有の電子構造が輸送現象や光学応答を含めた幅広い物性にもたらす影響が実験的にも注目を集めていた。しかし、これまでの光電流の研究は半導体や絶縁体を主な対象としたものが多く、ゼロギャップ半導体と関連した非線形応答に関する理解はほとんど得られていない状態にあった。中でもワイル半金属は特徴的な線形分散を持つだけでなく、Berry 曲率の特異点となっている(伝導帯と価電子帯の交差点(ワイル点)において Berry 曲率が発散する)など、そのトポロジカルな性質にも極めて特徴的な点があることが知られている。その為、上で議論した Berry 位相と関連した光電流にも特徴的な振る舞いが見られる可能性があるが、本研究計画の立案時にはほとんど研究がなされていなかった。このように、Berry 位相と関連した光電流や高調波発生はいくつかの例で指摘されていたものの、その基本的性質を含めて多くの基礎的性質が未だ理解されていない。

2. 研究の目的

本研究課題は特に空間反転対称性の破れた結晶構造を持つ物質に見られる異常光起電効果に注目して、外場による周期的駆動によって発現する光電流などの特異な非線形応答の空間依存性や実時間発展の理論的理解を目的とした。上述の様に、空間反転対称性の破れた系ではバンドの Berry 曲率が有限に残る。この為、Berry 位相を起源とした光の照射による光電流や二次高調波発生などの空間反転対称性の無い系に特有の非線形応答が生じる可能性がある。この現象は、波動関数のトポロジカルな構造や変形を起源とした輸送現象である点において従来の光励起された準粒子の準古典的運動に由来する輸送現象と大きく異なる。その為、この光電流の光照射位置依存性やパルス光に由来する実時間伝搬の振る舞いは従来の機構によるそれとは異なると考えられる。本研究では空間および時間依存性を信頼性の高い理論手法である非平衡グリーン関数法をもちいて数値的に研究した。

また、ゼロギャップ半導体に関する研究では、ゼロギャップ半導体のうち最も基本的な電子構造をもつワイル半金属を対象としてゼロギャップ半導体における光電流や高調波発生の可能性及びそれらの性質を調べた。前述のとおり、ゼロギャップ半導体に関する光電流などの研究はほとんど手つかずであった為、本研究課題ではその発生機構および絶縁体や半導体における光電流との違いに焦点をあて、その基本的な性質の理解を目指した。

3. 研究の方法

本研究課題では異常光起電効果におけるシフト電流を調べる為、最も基本的なモデルとして空間反転対称性の破れた一次元フェルミオン鎖 (Rice-Mele 模型) を対象として非平衡グリーン関数法を用いた解析を

行った。光の照射などによって実現される非平衡状態については未解明な点が多く、電子の分布などについて物理的に合理的かつ信頼のおける仮定を導入することが困難である。その為、微視的に電子の分布を含むすべての情報を計算することが望ましい。本研究で用いた非平衡グリーン関数法は、電子の分布関数を含むすべての情報を微視的に計算できる手法となっており、これまで量子細線の研究などで用いられてきた。また、本研究ではシフト電流の光の照射位置に関する解析を行う為、このグリーン関数法を周期的に外場によって駆動される系に適応したものをを用いた。また、最大 1000 サイトまでの大規模な計算を行う為、左右固有ベクトルを用いた数値計算アルゴリズムの改良を行った。

次にシフト電流の実時間発展の解析を行った。この研究はデラウェア大学の B. K. Nikolic 教授と協力して、デラウェア大学が開発した数値計算手法による解析を行った。この手法は、電子系の密度行列の時間発展を数値的にシミュレーションする手法となっており、上の方法と異なり実時間発展を解析できる点に大きな利点がある。

最後に、ゼロギャップ半導体に対する Berry 位相と関連した光電流の基本的性質の解析を行う為、Berry 位相効果を考慮した準古典理論とボルツマンの輸送方程式を組み合わせた方法により、キャリアがドーピングされたゼロギャップ半導体の光電流および高調波発生の解析を行った。

4. 研究成果

【計算アルゴリズムの改良】 本研究課題では光に由来する縦伝導度の計算を行う必要が出てくるが、伝導度の数値計算は一般に大きな有限サイズ効果を伴うことから、信頼性の高い計算を行う為には大きな系を用いる必要がある。今回用いる非平衡グリーン関数法による計算では行列の対角化が

必要となる為、この部分を高速化することが必要となる。そこで本課題では、左右固有行列を用いた固有値分解法を用いて伝導度の計算量を大幅に削減した。その結果、最大で1000サイト程度の系での計算が可能となった。この高速化手法は非平衡グリーン関数法に一般に応用できることから、ヘリカル磁性体の伝導特性の研究など、近年伝導特性が注目を集めている他の系にも応用されることが期待される。

【シフト電流の光位置依存性】 上述の伝導度の計算用コードを用いて Rice-Mele 模型を対象として、光をサンプルの一部に照射した場合の光の照射位置に対するシフト電流の依存性を数値的に調べた。その結果、この模型では光電流の強度が光位置に依存しないことを見出した。具体的には、サンプルの中央に光を照射した場合と端付近に照射した場合に同じ強度の光電流が生じることを見出した。また、光電流の強度の光位置に対する依存性をより詳細に解析し、(1) 光の照射位置によらずほぼ一定の光電流を生じること、(2) 光電流の強度を照射位置 x の関数とした場合、これがサンプルの中心に対して遇対称となることを確認した。これらの振る舞いは、サンプルの端付近で強い強度の光電流が生じ、またサンプルとリードとの界面の効果に由来して奇対称な成分が生じると期待される従来の光電流とは大きく異なる振る舞いである。この著しい特徴から、光の照射位置に対する光電流の依存性が光電流の発生機構を検証する方法となりうることを意味する。また、この特徴的な振る舞いは、その後空間反転対称性の破れた有機誘電体で実験的にも確認された。

【シフト電流の実時間発展】 以上の光電流の光位置依存性に加えて、強誘電体における光電流の実時間発展を数値的に解析した。この解析には密度行列の実時間発展を

数値的にシミュレーションする方法を用い、デラウェア大学の B. K. Nikolic 教授らの研究グループと共同で行った。その結果、シフト電流が従来の ballistic/diffusive な伝搬ではなく、super-ballistic な伝搬をすることを見出した。加えて、従来の1つのフォトンの吸収による光電流以外に2つのフォトンを経た光電流が生じることを見出した。

【ワイル半金属における光電流】 次に、我々はゼロギャップ半導体における光起電効果を調べる為、ワイル半金属を念頭においた低エネルギー有効模型を対象としてゼロギャップ半導体における光電流の発生機構に関する研究を行った。その結果、従来の半導体の場合と異なり、ワイル半金属では Thouless の断熱ポンプと関連した Berry 曲率 (Berry 電場) による寄与があることを見出した。この効果は光によるワイル点の移動に由来する波数空間の電磁誘導現象として理解することが可能であることを見出した。この結果は、バンド交差がある系では従来の半導体とは大きく異なる機構に由来する特異な輸送現象が生じることを意味している。

さらに、ワイルノードの傾きや分散の非線形項などを考慮した模型の詳細な解析から、この光電流の発生には非線形項や傾きが重要な役割を成していることを見出した。このワイルノードの傾きや非線形項は固体物質に見られるワイル電子に特有の性質であり、我々のこの結果はこうした固体物質のワイル電子に特有の性質が従来のワイル・ハミルトニアンを超えた興味深い物理現象に寄与することを示唆する。

【第一原理計算による光電流の解析】 以上の結果は、ワイル半金属においてはワイル・ノードの傾きなどの物質中のワイル電子に特有の性質が従来のワイル電子とは異なる興味深い性質をもたらすことを示唆す

る。加えて、光電流の論文の発表後、海外のグループからワイル半金属として知られる TaAs において光起電効果の実験が報告されたため、より物質に即したモデルに沿った解析を行う為、ワイル半金属の候補物質である TaAs における光電流を第一原理計算に基づく光電流の解析を行った。そして、ワイルノードを構成する伝導帯および価電子帯を起源として円偏光に対する光電流が見られることを確認した。この結果は上述のモデル計算による予想と一致する。さらに、この第一原理計算では従来のワイル半金属のモデル計算では存在しないとされていたシフト電流が生じることを確認し、この起源としてこれまで考慮されていなかった光遷移過程があることを見出した。この計算結果は報告されている実験ともよく一致しており、今後の理論研究だけでなく実験研究にも貢献することが期待される。

【ワイル半金属における高調波発生】 上述の Berry 電場由来する輸送現象への影響は二次高調波発生にも見られる可能性がある。二次高調波発生への Berry 位相効果の影響を調べる為、我々は上述の光電流の研究で用いたボルツマン理論に基づく手法を応用して二次高調波発生についても調べ、縦偏光の光に対してワイルノードの Berry 電場を起源とする二次高調波発生が見られることを確認した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 7 件)

高嶋 梨菜, 石塚 大晃, Leon Balents, Quantum skyrmions in two-dimensional chiral magnets, Phys. Rev. B, 94 巻, 2016, 134415.

石塚 大晃, 早田 智也, 上田 正仁, 永長 直人, Emergent electromagnetic induction and adiabatic charge pumping in Weyl semimetals, Phys. Rev. Lett., 117 巻, 2016, 216601.

石塚 大晃, 永長 直人, Local photo-excitation of shift current in

noncentrosymmetric systems, New. J. Phys., 19 巻, 2016, 033015.

石塚 大晃, Temperature-dependent magnetic anisotropy from pseudo-dipolar interactions, Phys. Rev. B, 95 巻, 2017, 184413.

石塚 大晃, 早田 智也, 上田 正仁, 永長 直人, Momentum-space electromagnetic induction in Weyl semimetals, Phys. Rev. B, 95 巻, 2017, 245211.

石塚 大晃, 永長 直人, Noncommutative quantum mechanics and skew scattering in ferromagnetic metals, Phys. Rev. B, 96 巻, 2017, 165202.

石塚 大晃, 永長 直人, Spin chirality fluctuation and skew scattering in chiral magnets, Sci. Adv., 4 巻, 2018, eaap9962.

[学会発表](計 23 件)

菊竹 航, 石塚 大晃, 江澤 雅彦, 永長 直人, Berry electric field in Weyl semimetals, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 13 日, 金沢大学, 石川県, 口頭講演.

石塚 大晃, 早田 智也, 上田 正仁, 永長 直人, Nonlinear response from emergent electromagnetic field in Weyl semimetals, 日本物理学会 2016 年秋季大会, 2016 年 9 月 13 日, 金沢大学, 石川県, 口頭講演.

石塚 大晃, 早田 智也, 上田 正仁, 永長 直人, Emergent electromagnetic induction in Weyl semimetals, International conference on Physics of Bulk-Edge Correspondence and its Universality, 2016 年 9 月 27 日, 京都大学, 京都府, 口頭講演.

石塚 大晃, Leon Balents, "Mott is Different" -How an interface with a Mott insulator is different from one with a band insulator, 2016 Materials Research Society Fall Meeting and Exhibit 2016 年 11 月 28 日, ボストン市, アメリカ合衆国, 招待講演.

石塚 大晃, 早田 智也, 上田 正仁, 永長 直人, Electromagnetic induction in Momentum space, 第 2 回「トポロジジーが紡ぐ物質科学のフロンティア」領域研究会, 2016 年 12 月 17 日, 東北大学, 宮城県, ポスター発表.

石塚 大晃, Photocurrent in Weyl semimetals from electromagnetic induction in momentum space, International symposium on Topological Phases and Functionality of Correlated Electron Systems, 2017 年 2 月 22 日, 東京大学, 千葉県, 口頭講演.

石塚 大晃, 早田 智也, 上田 正仁, 永長 直人, Momentum-space electromagnetic

induction in Weyl semimetals, 平成 28 年度スピン変換年次報告会, 2017 年 3 月 2 日, 東京工業大学 東京都, ポスター発表.
石塚 大晃, 早田 智也, 上田 正仁, 永長 直人, Emergent electromagnetic induction in Weyl semimetals, March meeting 2017 of American Physical Society, ニューオリンズ市, アメリカ合衆国, 口頭講演.

石塚 大晃, 永長 直人, 異常光起電効果における光励起位置依存性, 日本物理学会第 72 回年次大会, 2017 年 3 月 18 日, 大阪大学, 大阪府, 口頭講演.

石塚 大晃, 永長 直人, Local excitation of photocurrent in noncentrosymmetric systems, International conference on Topological Materials Science 2017, 2017 年 5 月 11 日 東京工業大学 東京都, ポスター発表.

石塚 大晃, 早田 智也, 上田 正仁, 永長 直人, Momentum-Space Electromagnetic Induction and Adiabatic Charge Pumping in Weyl Semimetals, 28th International conference on Low Temperature Physics, 2017 年 8 月 10 日, ヨーテボリ, スウェーデン王国, ポスター発表.

石塚 大晃, Magnetic anisotropy from Kitaev interactions, 28th International conference on Low Temperature Physics, 2017 年 8 月 12 日, ヨーテボリ, スウェーデン王国, ポスター発表.

石塚 大晃, Magnetic anisotropy due to pseudo-dipolar interactions in iridates and other heavy transition metal oxides, 1st Asia Pasific Workshop on Quantum Magnetism 2017 年 8 月 29 日, ソウル市, 大韓民国, 招待講演.

石塚 大晃, 永長 直人, Skew scattering and anomalous Hall effect by spin chirality fluctuations, Nano-Spin Conversion summer workshop, 大阪大学, 大阪府, ポスター発表.

石塚 大晃, 永長 直人, 強磁性金属における非可換量子力学と skew 散乱, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 24 日, 岩手大学, 岩手県, 口頭講演.

石塚 大晃, 永長 直人, スピンカイラリティ揺らぎによる skew 散乱, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 22 日, 岩手大学, 岩手県, 口頭講演.

石塚 大晃, 永長 直人, Kitaev 相互作用に由来する磁気異方性の理論, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 2017 年 9 月 23 日, 岩手大学, 岩手県, 口頭講演.

石塚 大晃, 永長 直人, Local excitation of photocurrent in noncentrosymmetric systems, CEMS symposium on trends in condensed matter physics, 2017 年 11 月 7 日, 理化学研究所, 埼玉県, ポスター発表.

石塚 大晃, 永長 直人, Skew scattering by spin-chirality fluctuation and anomalous Hall effect in magnetic metals, Novel quantum states in condensed matter 2017, 2017 年 11 月 8 日, 京都大学, 京都府, 口頭講演.

石塚 大晃, 永長 直人, Local excitation of photocurrent in noncentrosymmetric systems, 第 11 回物性科学領域横断研究会, 2017 年 11 月 17 日, 東京大学, 千葉県, ポスター発表.

⑳ 石塚 大晃, Magnetic anisotropy due to Kitaev interaction: an experimental probe for the anisotropic interactions, New developments in the study of quantum spin liquids, 2017 年 12 月 15 日, 東京大学, 東京都, 招待講演.

㉑ 石塚 大晃, Effect of spin fluctuation and disorder in spin-chirality induced anomalous Hall effect, International workshop on Bulk-Edge correspondence 2018, 2018 年 1 月 5 日, 筑波大学, 茨城県, 口頭講演.

㉒ 石塚 大晃, Magnetic anisotropy due to pseudo-dipolar interactions in Kitaev-Heisenberg model, March meeting 2018 of American Physical Society, 2018 年 3 月 5 日, ロサンゼルス市, アメリカ合衆国, 口頭講演.

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
取得・出願ともなし

〔その他〕
なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者
石塚 大晃 (ISHIZUKA, Hiroaki)
東京大学・工学系研究科・助教
研究者番号: 00786014

(2) 研究分担者
なし

(3) 連携研究者
なし

(4) 研究協力者
なし