

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 30 年 6 月 5 日現在

機関番号：82108

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K04704

研究課題名(和文) 時間反転対称性の破れに対応した非線形光学理論の構築

研究課題名(英文) nonlinear optical response from broken time reversal symmetry systems

研究代表者

井上 純一 (Inoue, Jun-ichi)

国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主幹研究員

研究者番号：90323427

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：物質の新たな特性を発現させる方法として、光照射で電子バンドのトポロジーに起因する性質を制御しようとする方法が盛んに議論されている。そこでは、時間反転対称性の破れが発端となって、エネルギー縮退がとけることが重要な要素であり、散逸のない電流が発現することが予言されている。それに対し本研究では、対象とする物質系の空間的対称性に依存して、時間反転対称性を破っただけではそのような挙動を示さない系があることを発見し、その条件を明らかにした。これらの系では、従来の方法論はそのまま適用できないことから、従来方法を一般化して、これらの系でも散逸の電流が記述できる方法を新たに構築した。

研究成果の概要(英文)：In recent extensive studies of emergent phenomena in solid-state systems, alteration of the symmetry inherent to a given system by applying an external time-dependent field is a central issue. We have found that how the time reversal symmetry is broken is not solely determined by temporal aspects, but also committed to spatial symmetry of the system. This connection between spatial and temporal symmetries induces various interesting phenomena that have not yet been discussed. This work reports one of these: symmetry-protected band sticking together in an effective-energy band structure of periodically driven electron systems. However, this, in turn, leads to another difficulty that conventional topological numbers cease to be well-defined. As such, we propose an alternative that is a natural extension of the previous one. To show validity, we confirmed firm consistency with well-established concepts.

研究分野：光物性理論

キーワード：光誘起現象 トポロジー 量子ホール効果

1. 研究開始当初の背景

物質中に新たな状態を造ろうとする方法の1つに、外部刺激の利用がある。例えば、温度変化させ、物質に相転移を発生させることがその典型である。また、圧力を印可することで結晶構造を変え、それに伴って応答を制御するなどの方法も知られている。

近年、その方法の自然な拡張として、光照射によって通常では得がたい状態を物質中に生成しようとするアイデアが注目を集めている。この研究の源流としては、光誘起相転移として中性イオン性転移などがこれまで議論されてきた。これに対して、ここで対象とする現象は、トポロジカル状態として括られるものである。

光照射によって物質中に発現が期待される新たな状態を議論しようとする場合、理論的には時間に依存する問題となり、このままでは、エネルギーバンドという固体物理の強力な概念が適用できない。これと折り合いをつける方法として、時間依存が周期性であることに注目して、Floquet の定理の適用する。これにより、擬エネルギーバンドという概念が正当化され、これを下敷きとしてこれまでの蓄積に基づいた議論を展開することが可能になった。この理論的アプローチを中心とした理論的枠組みは Floquet engineering という新規分野を形成するに至った。

この方法で議論されてきた非自明なトポロジカル状態の典型はグラフェン周辺系の異常量子ホール効果である。円偏光照射が系の時間反転対称性を破り、それに伴って、時間反転対称性によって守られていたディラック点での縮退が解け、結果として価電子帯が非自明なトポロジカル数を持ち量子ホール状態として観測される。円偏光を照射しながらの線形応答という意味において、これは非線形現象であると言える。

この現象の要点は、円偏光照射によってバンドにギャップが生じたことにある。もともとの縮退が時間反転対称性によって守られていたのであるから、これを破る外場を印可すれば縮退が解けると考えるのは、極めて自然であって、これについて特に議論も無いまま一般的に事実として受け入れられるようになっていた。

しかし、相対論的議論に立ち返れば、時間と空間の対称性が相互に関連し合い、時間部分の対称のみで物事が決しない場合もありえると考えられる。

2. 研究の目的

上述の問題意識を固体系にあてはめると、対象とする結晶構造によっては、円偏光照射するだけではエネルギー縮退が解けきれず、特異なバンド構造をもち続ける場合があると予想できる。本研究ではこのような特徴を持つ系の具体例を構成する。また、そのような系に対しても適用可能なトポロジカル状態の特徴量の構築を行い、これに基づいてトポ

ロジカル状態での観測可能な現象を議論する。ここで見いだされた系を、異常量子ホール効果を発現する典型例であるトポロジカル Haldane 模型と比較し、特徴を際立たせることで、今後の研究展開の方向性を検討する。

3. 研究の方法

(1). 2次元格子でのダイトバイディング模型を考える。光照射前のバンド構造がエネルギー縮退を持ち、かつ、円偏光照射による時間反転対称性の破れによってもなお、縮退を保ち続ける系を探す。この目的を実現には数学的戦略に基づくよりも、網羅的に調べ上げる方が近道であると考えられる。検索する候補格子群に含まれるパラメータは可能な限り少なくする方が効果的である。そこで、格子定数が全て等しい2次元タイリング格子全てを最初に調べ尽くす。これらの格子はアルキメデス格子として分類されているもので、全11種類であることが知られている。この11種類の格子がつくるタイトバイディングバンドを計算する。

次に、各々のアルキメデス格子に対して円偏光照射下での準エネルギーバンドを議論する。この方法には幾通りかがあるが、周波数の逆数を展開パラメータとする、時間に依存しない有効ハミルトニアンを構成する処方箋に従う。得られた有効ハミルトニアンから有効エネルギーバンドを計算し、円偏光照射によっても解けない頑強な縮退が残っている格子系を特定する。

(2). (1)の過程で候補に残った格子系があれば、時間反転対称性を破ったにも拘わらず、縮退が残り続けている理由を検討する。これらは、偶然縮退などの要素ではなく、格子系由来の対称性に基づいた議論になることが必要である。

(3). 量子ホール効果の特徴付けるトポロジカル数は、完全に孤立したバンドに対してよく定義されている。従って、(1)で見いだされた格子系に対しては、縮退が残っているという理由で、そのままでは適用できない。そこで、今議論している系に対しても適用可能なトポロジカル数を提案する。この提案が意味のあるものとなるためには、数学的証明が与えられることが理想であるが、取り組んでいる系が特定の格子系であるため、一般的証明が困難であること予想される。そこで、量子ホール状態の特徴付けるトポロジカル数が満たすべき特徴がすべて引き継がれているか否かの確認を行う。具体的には次の3つを検証する。① 縮退に与るバンドの分散冪と、そこで発現する非自明なバンド構造の変化によってもたらされるトポロジカル数の変化量が一致していること。② リボン形状で形成されるカイラルエッジ状態の数が、トポロジカル数と一致していること(バルクエッジ対応)。③ 光照射前の縮退点周りの巻き付き数が、縮退に与るバンド分散冪に一致していること。

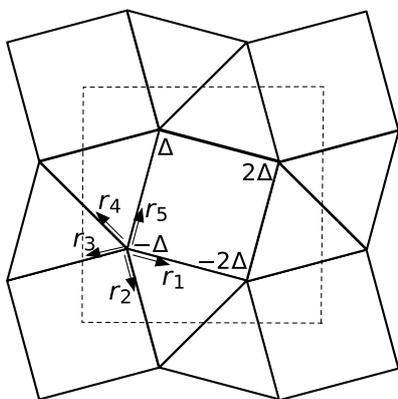
(4). トポロジカル Haldane 模型との比較のため、時間反転対称性の破れに加え、空間反転対称性を破る要素を導入する。ここから、時間反転対称性を破る要素の強度を横軸に、空間反転対称性を破る要素の強度を縦軸にとった相図の作成が可能になる。この結果をトポロジカル Haldane 模型の相図と比較する。

4. 研究成果

アルキメデス格子 11 種類に対し、タイトバインディング模型が与えるバンド構造を求める。その結果から、エネルギー縮退を生じない格子については、以下の議論から除外する。

次に、光照射した場合の擬エネルギーバンドを計算する。これには時間に依存しない有効ハミルトニアンを用いる。この有効ハミルトニアン構成方法は確立しており、周波数の逆数での展開形として表現される。この処方箋を各格子に対して機械的に適用すれば、有効ハミルトニアンの表現を得ることが出来る。しかしながら、展開の各項の計算は煩雑であり、本研究の出発点である、「目的の格子を見つける」作業を効率的に行うことには適さない。そこで、まずは、時間に依存しない有効ハミルトニアンを得る簡便な方法として、図形的な方法を構成した。これにより、展開の各項を得る為の代数計算が省略可能となり、格子の図から直ちに有効ハミルトニアンが得られるようになった。この過程を通じて、従来は、単位胞に複数サイト存在することが、いわゆる創発磁場の項を得るために必要であるとされてきた。しかし、単位胞に複数サイト有るだけでは十分ではなく、サイト反転対称性が破れているという条件も必要であることが明らかになった。これは Floquet engineering を行う上で重要な知見である。

この図形的方法を駆使し、アルキメデス格子全てについて、時間に依存しない有効ハミルトニアンを求め、その結果から、図 1 に示す snub square 格子が本研究の目的に合致したものであることがわかった。



[図 1]

円偏光照射しない場合に、この格子が与える

タイトバインディングバンドは、4 枚からなり、エネルギー準位の低い 2 枚、および高い 2 枚が、それぞれブリルアンゾーンの外縁(正方形)で線縮退していることに加え、2 枚目と 3 枚目のバンドがガンマ点で点縮退している。前者の線縮退は band sticking together と呼ばれる縮退に分類される。点縮退、線縮退いずれも時間反転対称性が重要な役割を果たしている。

ここに、円偏光を照射して時間反転対称性を破った場合の有効エネルギーバンドは、ガンマ点の点縮退は解けるものの、ブリルアンゾーンの外縁にある線縮退は残る。これまでの知見に基づけば、時間反転対称性を失っているのだから全ての縮退が解けると期待されるが、そうはならない。

そこで、線縮退を守っているのは偶然なのか、何らかの対称性なのかを明らかにする必要がある。理論的検討の結果、この線縮退を守っているのは、時間と空間の 2 つの対称性が協働する、いわば時間空間協働対称性であることがわかった。この協働対称性は、空間群操作単独では不変ではなく、また時間反転操作単独でも不変ではないが、両者を合わせた操作に対しては系が不変に保たれるような対称性を意味する。snub square 格子の場合、格子ベクトルにそって $1/2$ 進んだあと、反転する映進操作が空間群の操作にあたる。この結果を補強するために、時間空間協働対称性が破れた場合に、線縮退が解ける事を確認する必要がある。そのために、単位胞に含まれている 4 つのサイトの電子準位に勾配 Δ をつけた場合を計算したところ、確かに 4 枚のバンドの全ての縮退が解けた。

ここまで、snub square 格子は円偏光を照射して時間反転対称性を破っても、解けない縮退を持つ系であることがわかったが、これは次の新たな問題を提起する。例えば蜂の巣格子のように、円偏光照射で 2 つの点縮退が解ける場合は、結果として全てのバンドが孤立しているので、バンド毎のトポロジカル数(チャーン数)が定義できる。従ってチャーン数を計算することで、系がトポロジカルに非自明である可否かが判定できる。

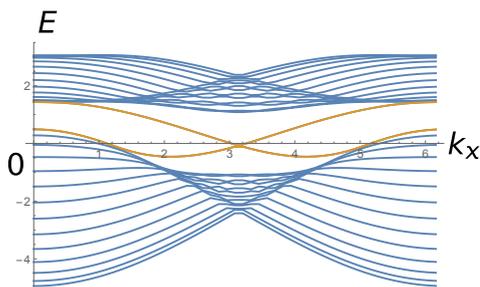
同じ論法を円偏光照射下の snub square 格子に適用しようとする、縮退した 2 枚のバンドが 2 つ存在するバンド構造を有することから、そもそもバンド毎のチャーン数が定義できず、トポロジカル物性の議論が出来ない。そこで、単位胞に含まれる 4 つのサイトのエネルギー準位を異なる値に設定して空間反転対称性を意図的に破ることを出発点に取った。これにより 4 つのバンドの全ての縮退が解けるので従来通りのチャーン数がバンド毎に定義できる。その後、空間反転対称性を破るパラメータ Δ をゼロにする極限で、線縮退が復活する過程でのチャーン数の振る舞いを議論すると、バンド毎のチャーン数はもはや定義されない、数値計算上は非整数となるが、線縮退を生じるバンドの組が持

つチャーン数の和は整数値に保たれていることがわかった。このことは、線縮退をおこす2つのバンドを1つのバンドと捉え直し、関与するチャーン数の和を1つのチャーン数と考えれば良いことを示唆している。ここから、線縮退する2つのバンドをバンド房と称し、バンド房チャーン数を提案した。円偏光照射下での snub square 格子が与えるトポロジカルに非自明な状態のバンド房チャーン数 C は $C=1$ であった。

しかし、これは数値計算上示唆される内容に留まっているので、従来のチャーン数で知られている性質をもみたいしていることを確認して補強する必要がある。

①まず、バンド構造の非連続変化とそれに伴うチャーン数の変化の関係を確認する。定理として、ハミルトニアンに含まれるパラメータの変化に伴ってチャーン数が変化した場合、エネルギーバンドでは不連続な変化が起こっている。ここで不連続な変化の典型は、エネルギーギャップが一旦閉じたあと、再び開くことである。このギャップの開閉に与えるエネルギーバンドの分散がチャーン数の変化量に等しいことが知られている。バンド房チャーン数がこれを満たしているか否かを確認する。照射している円偏光強度をハミルトニアンに含まれるパラメータと考えると、その変化によって誘起されるエネルギーバンドの不連続は、ガンマ点のエネルギーギャップの開閉である。これに与するバンドの分散は計算の結果2であることがわかった。これにより、バンド房チャーン数の変化量は2でなければならない。実際に数値計算すると、バンド房チャーン数の変化量は-1から+1と確かに2変化しており、整合している。これより、バンド房チャーン数を正当化するひとつの状況証拠が得られた。

②次に、バルクエッジ対応として知られる知見との整合性を確認する。チャーン数はバルクの性質を特徴付ける量であるが、リボン形状にしたときにエッジに現れるカイラルエッジ状態の本数にも等しいことが定理として与えられている。そこで、snub square 格子をリボン形状にした場合に現れるカイラルエッジ状態の本数を確認する必要がある。数値計算を行った結果、確かにエッジ状態は物理的な端1つに対して1本であり、得られたバンド房チャーン数と一致していることを確認した。リボン系での1次元バンド構造を図2に示す。

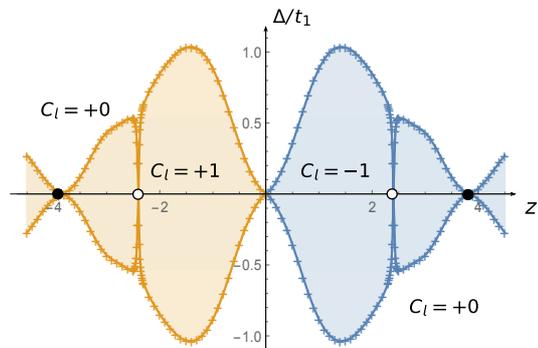


[図2]

③最後に、光照射前の点縮退をおこしている点の周りの巻き付き数を計算した。この量は、光照射後に発現するトポロジカルに非自明な性質の種が、光照射前に既に内包されていたことを示す量である。これを計算するためには4バンド系である元のハミルトニアンを、点縮退に関係する2つのバンドに対する縮約ハミルトニアンを構成する必要がある。射影演算子法を用いてこれを行い、巻き付き数 W を計算すると $W=2$ となった。以上から snub square 格子は $W=2, C=1$ という2つのトポロジカル数で特徴付けられることがわかった。これは、先行研究の「正方格子上の電子のうち、クーロン相互作用でトポロジカルに非自明な状態を与える系では $W=2, C=1$ である」例と整合している。

以上の3つの観点から整合性が確認できたことにより、バンド房チャーン数が有意な量であることを主張し、円偏光照射下での snub square 格子がトポロジカルに非自明な状態になり得ることを示した。

ここまで示した結果を総合的に俯瞰すると、トポロジカル Haldane 模型との類似性が見えてくる。トポロジカル Haldane 模型は、単位胞に2サイトを含む蜂の巣格子に対して、時間反転対称性の破れを与える要素を横軸に、空間反転対称性の破れを与える要素を縦軸にとって、トポロジカルに非自明な状態が存在する領域を示す相図を与えた。これにならない、本研究で対象にした系についても、同様の相図を図3のように作成した。



[図3]

相図全体の概形は類似していることから、明らかに本系はトポロジカル Haldane 模型の類似系であると言える。両系の差として、単位胞に含まれるサイト数が違うのは些細なこととして、重要な違いは、蜂の巣格子では点縮退がブリルアンゾーンに2つ現れ、それぞれが線形分散を持っていた事に対し、snub square 格子では、点縮退がブリルアンゾーン内に1つ存在し、そこに与るバンドの分散が放物型である、という点にある。前者では、チャーン数変化を1だけ与える点が2つあることで、全体として、 $C=-1$ から $C=+1$ の変化が可能になっていたが、後者ではチャーン数

変化を 2 与える点が 1 つあることで全体として $C=-1$ から $C=+1$ への変化が可能になった。相関中に表現されるチェーン数は同じ、つまりカイラルエッジ状態の数は同じであっても、その背後に存在する理由は大きな違いがある。この点が、本研究で取り上げた格子系が単に先行研究の焼き直しに留まらず、新しい機序に基づいていることを明確に示している。

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 3 件)

1. Jun-ichi Inoue,
“Floquet Engineered Quadri-partite Lattice System as an Extension of the Topological Haldane Model”,
J. Phys. Soc. Jpn, 87, 034711/1-8 (2018)
査読有り, <https://doi.org/10.7566/JPSJ.87.034711>

2. Jun-ichi Inoue,
“Space-time Cooperative Symmetry in a Periodically Driven Tight Binding Model”,
J. Phys. Soc. Jpn, 86, 024713/1-7 (2017)
査読有り 10.7566/JPSJ.86.024713.

3. K. Takazawa, J. Inoue, K. Mitsuishi,
“Optical Waveguiding Along a Sub-100-nm-Width Organic Nanofiber: A Significant Effect of Cooling on Waveguiding Properties”,
J. Phys. Chem. C 120, 1186-1192 (2016) 査読有り
10.1021/acs.jpcc.5b10125

[学会発表] (計 2 件)

1. 井上純一,
「光駆動された電子系での時間と空間の協働対称性」, 第 72 回日本物理学会年次大会, 大阪大学 2017/3/17-3/20

2. Jun-ichi Inoue,
“Emergence of cooperative time-reversal and glide symmetry in a laser driven system,”
18th International Conference on Physics of Light-Matter Coupling in Nanostructures (2017), Germany

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：

種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者
井上 純一 (INOUE Jun-ichi)
国立研究開発法人物質・材料研究機構・国際ナノアーキテクトニクス研究拠点・主幹研究員
研究者番号：90323427

(2) 研究分担者
()

研究者番号：

(3) 連携研究者
()

研究者番号：

(4) 研究協力者
()