

令和 3 年 5 月 13 日現在

機関番号：32663

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K03527

研究課題名（和文）時間反転対称性の破れたRashba電子系における非線形光学応答の理論的解析

研究課題名（英文）Theoretical analysis of nonlinear optical response in Rashba electron system with broken time inversion symmetry

研究代表者

柴田 絢也（Shibata, Junya）

東洋大学・理工学部・教授

研究者番号：20391972

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 1,500,000円

研究成果の概要（和文）：本研究の目的は、空間反転対称性の破れに伴う運動量依存スピン軌道相互作用が生じる系に着目し、その電気-磁気-光学応答を線形応答領域から非線形応答領域へと理論的に拡張し、これまでにない新たな交差相関効果に起因する光学現象を見出すことである。その為に、考察対象系の光学的電気伝導度、電流によるスピン分極率などの解析を全ての振動数領域に対して行なった。さらに、運動量依存スピン軌道相互作用に起因する特異な光学現象（負屈折現象、後進波現象、旋光性現象）に対する解析を行い、ある振動数領域において大きな応答（大きな負屈折角度や大きな偏光面の回転など）が得られることを示した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

近年、我々が扱う情報は日々増加しており、大量のデータ記録や高速処理、さらには、情報処理に伴うエネルギー消費量の抑制といった社会的要請に応えていくためには、新規デバイスの開発に必要な新たな物質特性の探索、その特性を活かした新たな機能の創出が必要とされる。本研究では、物質特性を探る上で欠かせない物質の電気-磁気-光学応答に関して、近年注目されている電磁交差相関効果を基軸に理論的に解析を遂行し、特に、空間反転対称性の破れに伴う運動量依存スピン軌道相互作用が生じる系の電流-スピン応答の特性を全ての振動数領域において明らかにすることができた。

研究成果の概要（英文）：The purpose of this study is to theoretically extend the electric-magnetic-optical response from the linear response regime to the nonlinear response regime, focusing on the system with momentum-dependent spin-orbit interaction due to the violation of the spatial inversion symmetry, and to find new optical phenomena caused by the cross-correlation effect. For this purpose, we analyze the optical conductivity and the spin polarizability of the system under consideration for all frequency regions. In addition, we analyzed the peculiar optical phenomena caused by the momentum-dependent spin-orbit interaction (negative refraction, backward wave, and optical activity), and showed that a large response (large negative refraction angle, large rotation of the polarization plane, etc.) can be obtained in a certain frequency region.

研究分野：物性理論物理学

キーワード：スピントロニクス 電磁交差相関現象 運動量依存スピン軌道相互作用 負屈折現象 後進波現象 旋光性現象

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。

1. 研究開始当初の背景

近年、我々が扱う情報量は日々増加している。この大量のデータを記録し高速に処理する為には、ハードディスクに代表される磁気記録媒体の高密度化・大容量化、コンピューターの処理能力の高速化が求められる。さらに、情報処理に伴うエネルギー消費量の増大も抑制していかなくてはならない。このような社会的な要請に応えられる新規デバイスを開発していく為には、これまでにない新たな物質特性の探索、その特性を活かした新たな機能の創出が必要とされる。この物質特性を探る上で欠かせないのが、物質の電気-磁気-光学応答をつぶさに調べることである。その中で、近年、電磁交差相関効果に起因する電気-磁気-光学応答に非常に注目が集まっている。電磁交差相関効果とは、これまでの物質に現れる電場による電流誘起、磁場による磁化誘起のような直接的な電磁応答ではなく、電場による磁化誘起、磁場による電気分極誘起のように、非対角的な応答を示す効果である。このような電気磁気特性は、マルチフェロイック物質と呼ばれる系で見出されている。さらに、特異な光学応答としてこの系は、巨大な光の方向二色性(光の入射方向によって光の吸収率が異なる現象)を示すなど、次世代デバイス開発の為の新たな機能創生に期待が持たれている。

一方、今世紀初めから目覚ましい発展を遂げているスピントロニクス分野(物質中の電子の電荷の自由度だけでなくスピン自由度を積極的直接的にデバイスへと応用する分野)においては、近年、Rashba 効果(系の空間反転対称性の破れに伴うスピン軌道相互作用により電子系のエネルギー分散が二つのスピン状態に分裂する効果)に起因する電磁交差相関効果に注目が集まっている。この Rashba 型スピン軌道相互作用により、電場により電子スピン分極を誘起することができ(Edelstein 効果)、さらに、磁場(の時間的変化)により電流を誘起することができる(Inverse Edelstein 効果)。このように、電磁交差相関効果の観点から、マルチフェロイック物質系とラッシュバ電子系は、非常に類似性があることが分かる。この観点に着目して、時間反転対称性の破れた Rashba 電子系の電気-磁気-光学応答を微視的観点から調べることは、新規デバイス開発に必要な新たな機能の創出の為に非常に意義のあることである。

2. 研究の目的

本研究の目的は、磁化と交換相互作用をする時間反転対称性の破れた Rashba 電子系に着目し、その電気-磁気-光学応答を線形応答領域から非線形応答領域へと拡張し、これまでにない新たな交差相関効果に起因する光学現象を見出すことである。さらに、非線形光学応答の理論的解析を通じて、光を用いた電流、スピン流生成及び磁化制御の理論(光スピントロニクスの理論)を構築していくことを目的とする。これまでの光磁気ディスクなどに代表される光を用いた磁気記録は、レーザ光照射による熱によって磁化状態を変化させているが、高速化や高密度化の観点から限界がある。したがって、次世代磁気記録媒体の開発には、光のコヒーレンス、スピンや軌道角運動量(光渦)を積極的に利用し磁化や電子スピンを制御していくことが求められる。しかしながら、この観点からの理論はこれまでほとんどないのが現状である。電磁交差相関効果を基軸にこれら光スピントロニクスの微視的理論を構築し、物質の新たな機能の創出を目指していく。また、本研究は、微視的観点からのパラメータを含まない理論を構築することを前提にしており、関連する実験及び理論を基礎づけさらに推進するための基礎理論として位置付けられる。

3. 研究の方法

本研究では、磁化と交換相互作用をする時間反転対称性の破れた Rashba 電子系に着目し、その電気-磁気-光学応答を線形応答領域から非線形応答領域へ理論的解析により拡張していく。その為に、先ず、磁化と相互作用していない Rashba 電子系から考察を行い、線形-非線形光学応答を表す相関関数を Green 関数法により微視的に解析し、期待される多彩な光学現象を明らかにしていく。この解析の中から得られた知見を元に、磁化と相互作用する系に関して同様の考察を行なっていく。具体的な解析手順は、以下の通りである。

(1) 微視的モデルハミルトニアンの設定

3つのタイプの運動量依存スピン軌道相互作用を $\mathcal{H}_X = \Omega_X(\mathbf{k}) \cdot \boldsymbol{\sigma}$ とする。ここで、 $\boldsymbol{\sigma}$ はパウリスピ行列であり、 $\Omega_X(\mathbf{k})$ はスピン軌道相互作用を特徴づける量で、それぞれ、Rashba 型(X=R): $\Omega^R(\mathbf{k}) = \alpha_R(k_y, -k_x, 0)$ 、Dresselhouse 型(X=D): $\Omega^D(\mathbf{k}) = \alpha_D(k_x, -k_y, 0)$ 、Weyl 型(X=W): $\Omega^W(\mathbf{k}) = \alpha_W(k_x, k_y, k_z)$ の3種類に分類される。このスピン軌道相互作用により、系のエネルギー分散は2つのスピンスプリットバンドで表される。これにより、相関関数を評価のため用いる1粒子グリーン関数が与えられる。

(2) 線形応答理論による電流-電流、及び、スピン-電流相関関数の評価

系の電磁波に対する電流、及び、スピン応答を解析するために、電流-電流、及び、スピン-電流相関関数を表式(1)、(2)のように線形応答理論によりグリーン関数で表し、これを全ての振動数領域について評価する。その際、系の不純物散乱に起因するヴァーテックス補正も考慮に入れる。

$$\mathcal{K}_{ij}^X(\omega) = \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\varepsilon}{2\pi i} \text{tr} \left[\tilde{v}_i^X G_{\mathbf{k}}^X(\varepsilon_+) \tilde{V}_j^X G_{\mathbf{k}}^X(\varepsilon_-) \right] < \quad (1)$$

$$\mathcal{M}_{ij}^X(\omega) = - \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\varepsilon}{2\pi i} \text{tr} \left[\Sigma_i G_{\mathbf{k}}^X(\varepsilon_+) \tilde{v}_j^X G_{\mathbf{k}}^X(\varepsilon_-) \right] < \quad (2)$$

- (3) 電流、及び、スピン応答から期待される光学現象の具体的な解析
式(1)、及び、式(2)の相関関数の評価により、系の誘電率が求められる。これにより系の電磁波(光)伝搬解析を行い、特異な光学現象を見出し解析する。

4. 研究成果

(1) Rashba-Dresselhouse 型における光学現象の解析

電流-電流相関関数の解析から系の誘電率を評価した。Rashba 型、及び、Dresselhouse 型のスピン軌道相互作用は2次元平面方向で効いてくることから、この場合、系の誘電率は1軸異方性を有し、誘電率は面内とそれに垂直方向で異なる振動数依存性を示す。図1に、各方向の誘電率の実部と虚部を示す。(無次元化された)振動数が2.5から2.75の範囲で(実際の振動数に換算すると、 2.4×10^{14} Hz から 2.7×10^{14} Hz の赤外領域)、2つの誘電率の実部の内、1つが正、1つが負となっている。これにより、系内の電磁波の分散関係はこの振動数領域においては、双極型となることが示唆される。この双極型分散関係を有する物質は特異な光学現象を示すことが知られており、1つは電磁波の負屈折現象(斜めに入射させた電磁波が通常とは反対の向きに屈折される現象)、もう1つは後進波現象(透過する電磁波の波面の進行方向がエネルギーの流れの向き(ポインティングベクトルの向き)と逆になる現象)である。双極型分散を有する物質は、ハイパボリック・メタマテリアルと呼ばれ、近年盛んに研究されており注目されている。したがって、本研究で明らかになったことは、Rashba-Dresselhouse 型の運動量依存スピン軌道相互作用を有する系はハイパボリック・メタマテリアルと電磁波応答の観点で等価であるということである。以下、負屈折現象、及び、後進波現象を具体的に解析した。

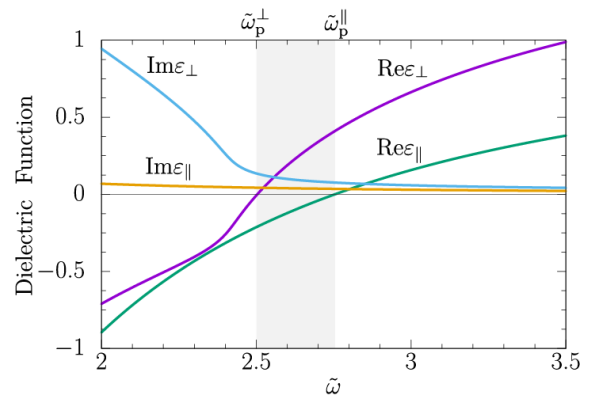


図1 Rashba-Dresselhouse型における誘電率の振動数依存性

① 負屈折現象(Negative Refraction)

厚さが有限(ここでは、およそ $1.0 \mu\text{m}$ とする)の媒質を想定し、真空中から斜めに負屈折現象が起こると想定される振動数領域の電磁波を入射させ、屈折角、透過率などをMaxwell方程式を具体的に解くことによって評価した。図2は、屈折角と透過率の入射角と振動数依存性に対するカラーマップである。図2(左)から、想定される振動数領域(2.4×10^{14} Hz から 2.7×10^{14} Hz)において、全ての入射角に対して負屈折現象が起こることが明らかとなった。しかしながら、図2(右)により、入射角が 30° を超えると透過率がほぼゼロとなる。したがって、負屈折現象が顕著に観測される入射角は 10° から 30° 付近であることが分かった。

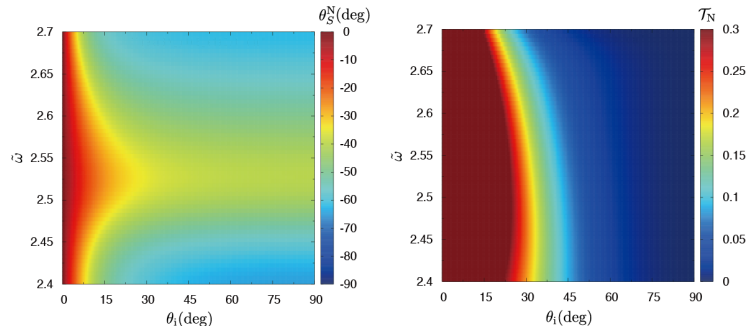


図2 屈折角(左図)、及び、透過率(右図)の入射角、振動数依存性

厚さが有限(ここでは、およそ $1.0 \mu\text{m}$ とする)の媒質を想定し、真空中から斜めに負屈折現象が起こると想定される振動数領域の電磁波を入射させ、屈折角、透過率などをMaxwell方程式を具体的に解くことによって評価した。図2は、屈折角と透過率の入射角と振動数依存性に対するカラーマップである。図2(左)から、想定される振動数領域(2.4×10^{14} Hz から 2.7×10^{14} Hz)において、全ての入射角に対して負屈折現象が起こることが明らかとなった。しかしながら、図2(右)により、入射角が 30° を超えると透過率がほぼゼロとなる。したがって、負屈折現象が顕著に観測される入射角は 10° から 30° 付近であることが分かった。

② 後進波現象 (Backward Wave)

電磁波を入射させる媒質の境界面を、負屈折現象の場合に対して 90° 回転させると、透過電磁波の進行方向に対する 2 つの誘電率の応答が逆転することによって、後進波現象が起こると期待される。図 3 は、屈折角と透過率の入射角と振動数依存性に対するカラーマップである。図 3(左)の赤い領域と青い領域の境界において、斜め入射した電磁波が媒質の境界面に沿って伝搬し、青い領域は屈折角が負となっており、一見すると、境界面で全反射されているように見えるが、ポインティングベクトルは正側に屈折され媒質内を透過している。したがって、電磁波は媒質内を透過しているが波面の進む向きがエネルギーの流れの向きとは反対に進んでいる後進波現象を示していることが確かめられた。

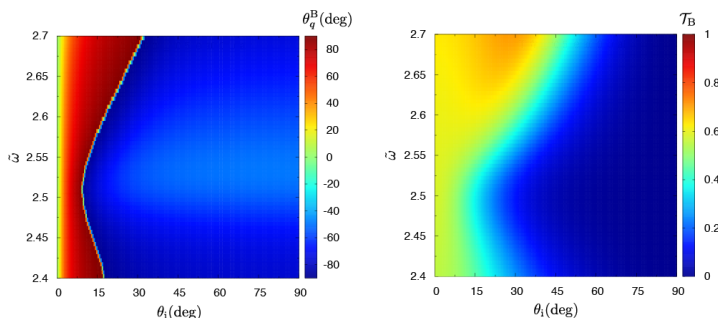


図3 屈折角(左図)、及び、透過率の入射角、振動数依存性

(2) Weyl 型における旋光性現象 (Optical Activity)

旋光性現象とは、媒質を透過する電磁波(光)の偏光面が回転する現象である。偏光面が回転する現象としては磁気光学効果として有名な Faraday 効果が挙げられるが、この現象は媒質に磁場を印加する、もしくは、媒質が強磁性体であるように時間反転対称性を破っている必要がある。本研究で考察している Weyl 型の系においては、空間反転対称性は破れているが、時間反転対称性は破れておらず、磁場によって偏光面を回転させることはできない。それにもかかわらず、偏光面が回転するのは、Weyl 型の運動量依存スピン軌道相互作用により、 $\mathbf{k} \times \mathbf{E}$ のような形の電流が誘起されるからである (\mathbf{k} は電子の波数、 \mathbf{E} は電場)。したがって、旋光性現象を微視的に解析する為に、まず、電流-電流相関関数の表式のグリーン関数に現れる波数 \mathbf{k} に対して 1 次のオーダーまでを評価した。この結果から誘電率を求め、(1)と同様に、有限幅の媒質に電磁波を入射させ、旋光性現象による偏光面の回転角の振動数依存性を評価した(図 4)。この場合も赤外領域の振動数において大きな応答が得られ、厚さ $1 \mu\text{m}$ ほどの媒質を電磁波が透過する際にその偏光面が約 2° 回転する結果となった。これは、充分観測可能な値である。また、この角度の大きさはスピン軌道作用の強さに依存することから、回転角を測定することにより、スピン軌道相互作用の強さを評価することができる。これまで、運動量依存スピン軌道相互作用の強さは、角度分解光電子分光法により、光電子の運動エネルギーを測定することにより得られてきたが、このような大掛かりな実験によらず、偏光面の角度を測定するだけでスピン軌道相互作用の強さを評価できることは、興味深い結果であり、本研究の成果の一つである。

次に、円偏光二色性の振動数依存性の解析を行った。円偏光二色性とは、左右の円偏光に対する吸収率の差であるが、図 5 のように、大きな偏光面の回転が生じる振動数を境に左右の円偏光の吸収率の大きさが逆転する結果となった。この結果は、新たな光学素子などの応用につながる重要な成果の一つであると考えられる。

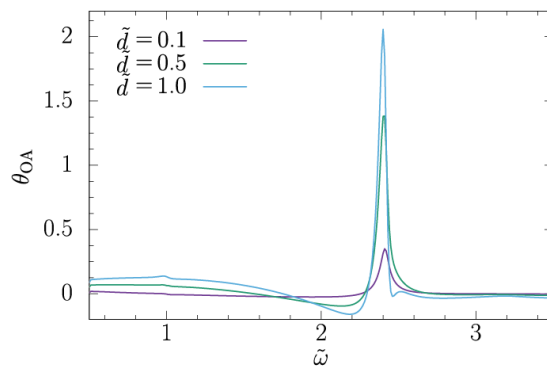


図4 旋光性現象による偏光面の回転角の振動数依存性

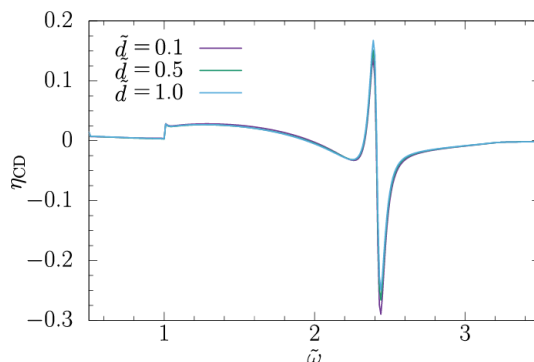


図5 円偏光二色性の振動数依存性

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔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
---------	---------