

# 磁性体における多彩なレーザー駆動高速物性制御法の提案

## Proposals for ultrafast ways of controlling magnetic natures with laser

佐藤 正寛

Masahiro Sato

茨城大学 理学部

Department of Physics, Ibaraki University

日本磁気学会第 227 回研究会「X 線とレーザーの融合による磁性ダイナミクス」資料

### Abstract

Recently, laser science and technology have been developed and we can apply those techniques to study materials and their microscopic dynamics from both fundamental and engineering viewpoints. Several theoretical methods have also been proposed and developed to analyse such laser-driven nonequilibrium phenomena. Motivated by these backgrounds, we have theoretically studied/proposed new laser-driven phenomena and new ways of controlling magnetic properties with laser, especially, focusing on magnets. In this short article, I review our results of laser-driven phenomena emphasizing their essential aspects. The keywords discussed here are terahertz laser, Floquet engineering, topological light waves such as vortex beams, DC spin-current rectification with laser (spin-current version of solar cell), and high harmonic generation in magnetic insulators.

### 1. はじめに

レーザー科学・技術は物性研究を促進し続けている。コヒーレントな高強度光により、それまで不可能であった物質中の励起状態を選択的に発生させられるようになり、特に固体結晶中の準粒子の理解や制御は飛躍的に深化している。近年は、準粒子を励起させるだけでなく、高強度レーザーを照射することで平衡状態とは質的に異なる非平衡状態を生成・制御することが光物性研究の中心テーマの 1 つとなっている。このような潮流の中で、我々は、幅広い周波数帯のレーザーや電磁波を利用して磁性体の磁気秩序・磁気構造・スピントロニクス(角運動量の流れ)を高速制御する方法を理論的に探索している。これは電磁波を活用したスピントロニクスと呼べる研究とも言えるだろう。

電磁波と物質の相互作用の中で、最も強い結合は電場と電荷のそれであり、それゆえ光物性研究では、磁性よりも電荷ダイナミクスの研究が盛んである。しかしながら、ファラデー効果やカー効果のように長い研究の歴史を持つ磁気光学効果も知られており、磁性体の光制御の研究には大きな可能性がある。また、磁性体の光制御の理論研究者が稀有であることは、むしろ理論家にとっては広大な未開拓領域が存在し、実験家が興味を持ち得る新しい予言を与えられるチャンスがあることを意味する。非平衡現象は一般に平衡系の現象に比べて圧倒的に解析が難しく、それ故、磁性体の光誘起非平衡現象を微視的に理解しようという潮流はこれまで大きく進歩してこなかった。しかし、ここ 10 年ほどの間に、非平衡物理学や光物性科学の発展により、非平衡物理現象を扱う解析方法が大きく発展している<sup>[1]-[3]</sup>。さらに、最近、磁気励起エネルギー(特に反強磁性体の励起)に匹敵する周波数であるテラヘルツ (THz)帯のレーザー科学が目覚ましい発展を遂げており、1MV/cm (磁場は 1 テスラ程度に相当)の高強度 THz レーザーパルス<sup>[4]-[6]</sup>が光物性研究室で実装可能となっている。既存のエレクトロニクスやスピントロニクスで利用する周波数は高々ギガヘルツ(GHz)程度であり、THz 波による物性制御法の発展は高速情報処理にもつながる。このような状況から、まさにいま、磁性体のレーザー駆動非平衡現象の理

論を進展させる好機を迎えていると言えよう。

本原稿では、我々が最近手掛けている「磁性体のレーザー駆動非平衡現象」に関わる成果を、その本質的な部分に焦点を当てて、解説する。キーワードとなるのは、フロケ・エンジニアリング<sup>[7]-[10]</sup>、トポロジカル光波(代表例が光渦レーザー)<sup>[11]-[14]</sup>、レーザーによるスピン流整流(スピン流版太陽電池)<sup>[15],[16]</sup>、磁気励起による高次高調波<sup>[17]</sup>である。

## 2. フロケ・エンジニアリング (THz 逆ファラデー効果とスピнкаイラリティ生成)

近年、高強度レーザーによる物質のフロケ・エンジニアリング<sup>[18]-[20]</sup>が盛んに研究されている。特にフロケ理論が物性分野に広く浸透し、その応用の容易さから、多くの理論的提案が為されている。

まず、フロケ・エンジニアリングを簡単に解説する。以下、適宜 $\hbar = 1$ の単位系を考える。レーザーに代表される周期外場中の量子系を考える。外場の周期を $T = 2\pi/\Omega$ とすると( $\Omega$ は外場の角周波数)、この量子系のハミルトニアンは $H(t+T) = H(t)$ という周期性を持つ。フロケの定理は、このような時間方向に周期的な系のシュレディンガー方程式の解が $\Psi(t) = e^{-i\epsilon t} \Phi(t)$ と書いて、 $\Phi(t)$ が周期関数 $\Phi(t+T) = \Phi(t)$ であることを主張する。ここで実数 $\epsilon$ はフロケの擬エネルギーと呼ばれる。これは、固体結晶中で良く知られたブロッホの定理の時間版と呼べる結果である。 $H(t)$ と $\Phi(t)$ が周期的であることから、そのフーリエ級数表示 $H(t) = \sum_n e^{-in\Omega t} H_n$ と $\Phi(t) = \sum_n e^{-in\Omega t} \phi_n$ を定義することができる( $n$ は整数)。シュレディンガー方程式をこれらフーリエ成分 $H_n$ と $\phi_n$ を用いて表現すると、時刻 $t$ をあらわに含まない擬エネルギー $\epsilon$ についての固有値問題を求めることができる。このフロケ変換後の固有値問題は、周期外場をエネルギー $\hbar\Omega$ の光子(フォトン)から成るレーザーとみなすと理解し易い。このとき、 $\phi_{-2}, \phi_{-1}, \phi_0, \phi_{+1}, \phi_{+2}$ は各々フォトン数 2,1,0,-1,-2 個の部分空間の波動関数と解釈され、フォトン数 $m$ の部分空間の有効ハミルトニアンは $H_0 + m\hbar\Omega$ で与えられる。フォトン数が $n$ 個だけ離れた部分空間はハミルトニアンのフーリエ成分 $H_{\pm n}$ で結合している。この描像を図で表したのが Fig.1 である。フロケの定理により、周期外場中の非平衡系の問題は時間依存性が消えた固有値問題に置換出来た訳である。静的な固有値問題は平衡統計力学の多彩な方法を用いて解析可能であり、この意味で問題が簡単化されたと言える。しかし、その代償として、フォトン数 $m$ という新しい指標が導入され、これを新しい空間方向の添え字と考えると、対象とする問題の空間次元が1次元分増加してしまったことになる。

この固有値問題から、元のヒルベルト空間に対する静的有効ハミルトニアンを得る近似法として、フロケ・マグナス(高周波数)展開法が知られている。フォトンエネルギー $\hbar\Omega$ が系の他のエネルギースケールより十分大きい場合を考えよう。このとき、フォトン数が異なる部分空間の「距離」 $\hbar\Omega$ は非常に大きく、部分空間をつなぐフーリエ成分 $H_{\pm n}$  ( $n \neq 0$ )はフォトン数を固定した空間に対する摂動と考えてよい。この摂動展開( $1/\Omega$ 展開)の結果、次の有効ハミルトニアンを得ることができる。

$$H_{eff} = H_0 + \sum_{n(\neq 0)} \frac{1}{2n\Omega} [H_{-n}, H_n] + O(\Omega^{-2}) \quad (1)$$

第1項 $H_0$ は時間平均化されたハミルトニアンであり、しばしば周期外場印加前のハミルトニアンと一致する。第2項以降の $1/\Omega$ のべき乗項は周期外場によって発生する。 $\Omega^{-2}$ 以上の高次項を効率的に得

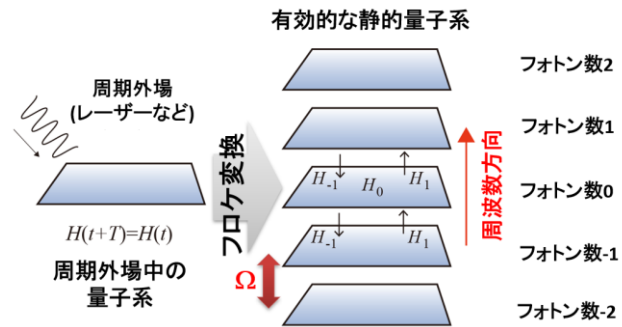


Fig.1 周期外場中の量子系のフロケ・エンジニアリングの概念図。 $\hbar = 1$ の単位系を考えている。

るには、上の摂動論とは別の系統的な計算が必要であり、例えば文献<sup>[21]</sup>を見てほしい。この結果は、外場の種類・波形・周波数などを調整することで有効ハミルトニアンを制御できることを示している。すなわち、ふつう系(物質)を1つ選択すればハミルトニアンは固定されてしまうが、高周波数の外場を巧く印加すれば、外場印加中だけハミルトニアン(系の性質)を変化させられる訳である。この性質を利用して、周期外場で系の性質を制御することをフロケ・エンジニアリングと呼ぶ。

我々は、このフロケ・エンジニアリングの考え方を現実的な磁性絶縁体(量子スピン系)に応用し、磁性体のフロケ・エンジニアリング<sup>[7][10]</sup>について先駆的な成果を得ている。我々の成果の本質を伝えるために、Fig.2の円偏光レーザー中の2スピン模型を考えよう。最も基本的な磁性体と電磁場の相互作用は、レーザーのAC磁場 $\mathbf{B}(t)$ と電子スピン $\mathbf{S}$ の間のゼーマン相互作用 $-g\mu_B\mathbf{B}(t)\cdot\mathbf{S}$ である( $g$ は電子の $g$ 因子、 $\mu_B$ はボーア磁子)。一方、近年、電子スピン自由度と電気分極 $\mathbf{P}$ が強く結合したマルチフェロイクス(強誘電磁性体)<sup>[22]</sup>と呼ばれる磁性絶縁体が精力的に研究されている。この物質群では、多様な電気分極とスピンの間の電気磁気(ME)結合が知られているが、ここでは2スピン模型に典型的なME結合の1つである逆ジャロシンスキー・守谷(逆DM)型<sup>[22],[23]</sup>の結合 $\mathbf{P} = g_{me}\mathbf{e}_{12}\times(\mathbf{S}_1\times\mathbf{S}_2)$ が存在するとしよう( $g_{me}$ はME結合定数)。この電気分極はAC電場 $\mathbf{E}(t)$ と結合し、ハミルトニアンに $-\mathbf{E}(t)\cdot\mathbf{P}$ を加える。従って、2スピン模型のハミルトニアンは $H(t) = H_0 - g\mu_B\mathbf{B}(t)\cdot(\mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2) - \mathbf{E}(t)\cdot\mathbf{P}$ で与えられる。 $H_0$ はレーザー印加前の2スピン間の相互作用(典型的には交換相互作用 $J\mathbf{S}_1\cdot\mathbf{S}_2$ )である。また、 $z$ 軸方向へ進む円偏光レーザーのAC電磁場は $\mathbf{E}(t) = E_0(\pm\cos(\Omega t), -\sin(\Omega t), 0)$ と $\mathbf{B}(t) = -c^{-1}E_0(\sin(\Omega t), \pm\cos(\Omega t), 0)$ である。 $E_0$ は電場強度、 $c$ は光速、符号 $\pm$ は左右円偏光を表している。この2スピン模型に高周波数展開を適用すると、有効ハミルトニアン<sup>[8]</sup>

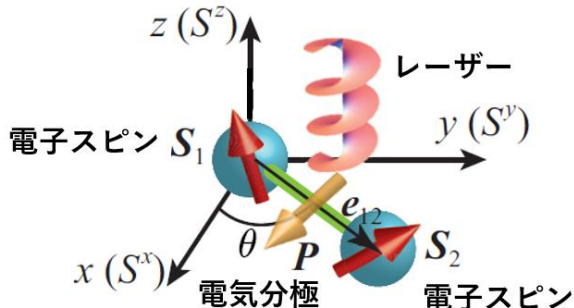


Fig.2 円偏光レーザー中の2スピン模型。2つのスピン $\mathbf{S}_1$ と $\mathbf{S}_2$ を $x-y$ 面に配置し、レーザーを $z$ 軸に平行に伝搬させる。 $\mathbf{S}_1$ と $\mathbf{S}_2$ を結ぶ方向の単位ベクトルを $\mathbf{e}_{12}$ とする。

結合 $\mathbf{P} = g_{me}\mathbf{e}_{12}\times(\mathbf{S}_1\times\mathbf{S}_2)$ が存在するとしよう( $g_{me}$ はME結合定数)。この電気分極はAC電場 $\mathbf{E}(t)$ と結合し、ハミルトニアンに $-\mathbf{E}(t)\cdot\mathbf{P}$ を加える。従って、2スピン模型のハミルトニアンは $H(t) = H_0 - g\mu_B\mathbf{B}(t)\cdot(\mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2) - \mathbf{E}(t)\cdot\mathbf{P}$ で与えられる。 $H_0$ はレーザー印加前の2スピン間の相互作用(典型的には交換相互作用 $J\mathbf{S}_1\cdot\mathbf{S}_2$ )である。また、 $z$ 軸方向へ進む円偏光レーザーのAC電磁場は $\mathbf{E}(t) = E_0(\pm\cos(\Omega t), -\sin(\Omega t), 0)$ と $\mathbf{B}(t) = -c^{-1}E_0(\sin(\Omega t), \pm\cos(\Omega t), 0)$ である。 $E_0$ は電場強度、 $c$ は光速、符号 $\pm$ は左右円偏光を表している。この2スピン模型に高周波数展開を適用すると、有効ハミルトニアン<sup>[8]</sup>

$$H_{eff}^{(spin)} = H_0 \pm \frac{\alpha\beta}{2\Omega}\mathbf{e}_{12}\cdot(\mathbf{S}_1\times\mathbf{S}_2) \pm \frac{\beta^2}{2\Omega}(\mathbf{S}_1 + \mathbf{S}_2) + O(\Omega^{-2}) \quad (2)$$

を得る。 $\alpha = g_{me}E_0$ と $\beta = g\mu_B E_0/c$ はそれぞれ磁性体と電場と磁場の結合定数である。式(2)は、逆DM結合を持つ磁性体全般のフロケ・エンジニアリング公式と呼んでよいだろう。

右辺第2項は、電場と磁場の交差相関により、系に新しいDM相互作用(2スピンの外積)が発生することを示している。DM相互作用は隣接スピン間の角度を90度にしようとし、一方元々多くの磁性体に存在する交換相互作用は隣接スピンを共線的(平行または反平行)にしようとする。従って、バルク磁性体においてレーザー誘起DM相互作用を生成できれば、磁気構造が共線的な秩序から非共線的なスパイラル秩序に(またはその逆プロセス)変化することが期待できる(Fig.3(a)を見よ)。我々は具体的な逆DM相互作用を持つ量子スピン模型に円偏光レーザーを印加した系の数値解析を行い、実際Fig.3(b)に示したようにベクトルスピカイラリティ $V_{tot}^\alpha = \sum_j(\mathbf{S}_j\times\mathbf{S}_{j+1})^\alpha$ の期待値が高周波数展開の有効ハミルトニアンから予言される向きに発生することを示した<sup>[8]</sup>。

一方、上式(2)の右辺第3項はACゼーマン相互作用から発生する新たなDCゼーマン項である。これはME結合を持たない磁性体全般で現れる項であり、円偏光のカイラリティに応じて結合定数の符号も変化する。この項は一樣磁化を誘導する効果を持つはずであり、これを利用すれば電子スピンと

直接結合する THz レーザーによる逆ファラデー効果が実現可能と考えられる。我々は、周波数を徐々に増加させながら(周波数の変化させることをチャージングという) 円偏光 THz レーザーを磁性体に照射することで大きな磁化を発生させる方法を提案<sup>[7]</sup>し、この方法を幾つかの量子スピン模型において数値的に実践した。Fig. 3 (c)は、反強磁性スピン鎖模型にチャージされた円偏光レーザーを照射すると、時間の関数として磁化曲線が描けることを示している。よく知られている逆ファラデー効果<sup>[23]</sup>は、可視光領域(高周波数)円偏光レーザーを磁性体に印加して磁化を増減させる現象を指している。可視光の周波数は電子スピンの集団運動に比べると速すぎる為、スピンは直接レーザーと結合できない。可視光レーザーによる逆ファラデー効果はスピン軌道相互作用を介した幾分複雑な微視的プロセスを伴う磁気光学現象であり、いまだに定量的に十分信頼できる微視的理論が確立しているとは言えない。一方で、我々がここで提案する THz レーザーによる逆ファラデー効果は、スピンとレーザーの直接的なゼーマン結合を介した現象であり、上で解説した通り、フロケ理論や比較的容易な数値解析で微視的理解が得られる点を強調したい。

我々はこれらのフロケ・エンジニアリングの他に、磁歪型の ME 結合を持つハニカム・キタエフ模型に円偏光レーザーを印加しトポロジカルスピン液体を誘導する方法<sup>[9]</sup>、モット絶縁体に絶縁破壊が起きない程度の強い AC 電場を印加し交換相互作用を増強する方法<sup>[10]</sup>の理論も構築している。

### 3. 光渦を含むトポロジカル光波によるスピネクスタチャーの制御法

光学分野では、光渦レーザーに代表される幾何学的に特異な性質をもつトポロジカル光波<sup>[25-29]</sup>の生成法や応用が活発に研究されている。しかしながら、これら特異な光源を物性研究に応用しようという潮流は十分進展していない。多様な光源が物性研究を進展させてきた歴史を踏まえれば、これは非常に「もったいない」状況であり、逆に研究開拓地が広がっていることも意味する。我々は、光渦<sup>[11],[12],[14],[25],[27]-[29]</sup>やベクトルビーム<sup>[13],[14],[26]</sup>という典型的なトポロジカル光波を磁性体・金属・半導体などに照射して、その物性を高速制御する方法を提案している。ここでは光渦に関わる成果を紹介する。

光渦ビームとは軌道角運動量をもつレーザービームを指す。左右の円偏光は光子のスピン $S^z = \pm 1$ の

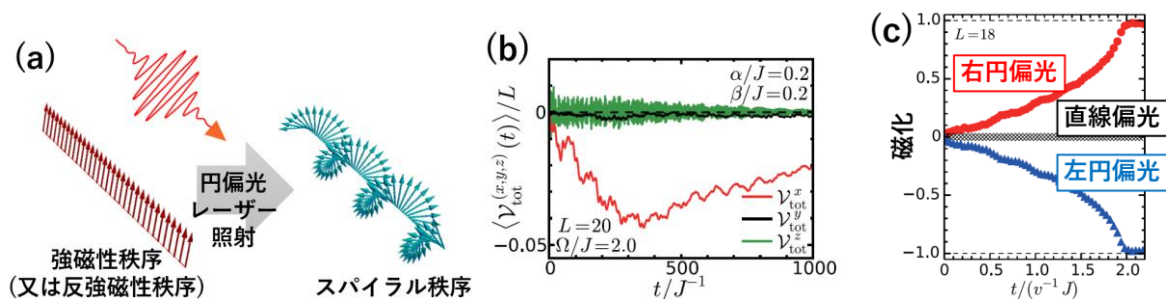


Fig.3 磁性体のフロケ・エンジニアリング。(a)逆 DM 結合を持つマルチフェロイクスにおける円偏光レーザーによるフロケ・エンジニアリングのイメージ図<sup>[8]</sup>。レーザーが誘起する DM 相互作用によりスパイラル秩序を誘導できる。(b)円偏光レーザー照射下の逆 DM 結合を持つ 1 次元量子スピン模型の数値計算結果<sup>[8]</sup>。ベクトルスピカイリティ  $V_{tot}^\alpha = \sum_j (\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_{j+1})^\alpha$  期待値の時間発展を示している。この系の高周波数展開の予言と合致して  $V_{tot}^x$  のみがレーザーにより大きく成長する。(c)1 次元  $S = 1/2$  反強磁性ハイゼンベルグ模型にチャージされた(周波数を徐々に増加させた)左右円偏光または直線偏光 THz レーザーを印加した際の磁化の時間発展<sup>[7]</sup>。初期状態は磁化ゼロの基底状態としている。高周波数展開に現れる有効ゼーマン項の形と一致して、円偏光のカイリティを変えると発生する磁化の向きも反転している。

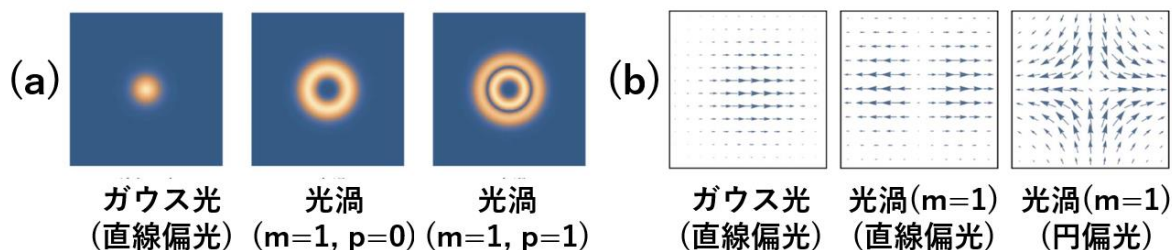


Fig.4 光渦レーザーの集光面における幾何学的特徴。(a)集光面における電磁場エネルギー強度分布。ガウス光は当然集光の中心で強度が最大値を取るが、光渦は中心強度がゼロである。動径方向の構造を特徴づける量子数 $p$ (非負整数)の増加とともに節の数が増えて多重リング構造になる。(b)各ビームの集光面における電場(または磁場)分布のスナップショット。各点における矢印が電場の向きを表し、矢印の大きさが電場の強さを表している。

自由度に対応しており、各時空点で局所的に定義される。一方、光の軌道角運動量は、原子中の電子軌道の軌道角運動量と同様に、波面全体で大域的に定義される量である。しかし、レーザーは、原子中の電子と違って、ある方向( $z$ 軸方向とする)に伝搬する場である為、レーザーは軌道角運動量の $z$ 成分のみを持ち、量子化された値 $\hbar m$ ( $m$ は整数)が許される。光渦は軌道角運動量以外に伝搬方向と垂直な動径方向の電磁場分布を決める量子数 $p$ を持つ。Fig. 4 (a)に量子数 $(m, p)$ を持つビームの集光面における時間平均化された電磁場エネルギー強度分布を描いた。 $(m, p) = (0, 0)$ が標準的なガウス光であり、この場合、当然集光面の中心で強度が最大値を取る。一方、電子軌道が軌道角運動量を持つ( $s$ 軌道以外)とき原子中心での電子の存在確率が消失するのと同様に、有限の角運動量 $m$ を持つ光渦は集光面中心の位相特異性を避ける為に中心で電磁場強度が消失する。従って Fig. 4 (a)に示したように、光渦の強度分布は常にリング型になる。もう一つの量子数 $p$ は動径方向の節の数を与え、 $p$ が増える毎にリングの枚数も2重3重と増える。このリング状強度分布が一つ目の光渦の特徴である。もう一つの特徴は、Fig. 4 (b)の集光面における電場(または磁場)のスナップショットから読み取ることができる。ガウス光では、集光面内のあらゆる点で電場が同じ方向を向いているが、光渦の場合、方位角の変化とともに電場の向きも回転している。この集光面内の電磁場の方位角依存性も光渦の大きな特徴である。

光渦と固体中の電子やスピンなどの微視的自由度との相互作用を考えると、微視的自由度に光渦の最大の特徴である軌道角運動量を転写させることを連想したくなるが、光渦がその中心を暗点とするリング状強度分布を持つという事実は、光渦の角運動量が微視的自由度に転写される確率は非常に低いことを示唆している。そこで、我々は、光渦のリング状分布と電磁場の方位角依存性という古典電磁場としての幾何学的特徴を活かした新しい光誘起現象を探索している。

ここでは、光渦による磁性体のスピントクスチャー制御の提案<sup>[11],[12]</sup>に焦点を当てよう。まず、光渦と磁性絶縁体のスピンドイナミクスの時空間スケールを比較する。光渦を含む電磁波一般の特徴として、集光できる最小のサイズは波長程度(回折限界)であることが良く知られている。紫外や可視光では、マイクロメートル( $\mu\text{m}$ )以下に集光できるが、THz 光を $\mu\text{m}$ スケールに集光するのは一般に困難である。一方、第1節でも述べたように、磁性体のスピンドイナミクスの時間スケールはGHz から THz 帯程度であり、可視光以上の高周波数の電磁場に磁性体中のスピンは追従できない。この事実を踏まえて我々は別して2つの光渦の応用方法を提案している。

一つ目は集光した高種波数(紫外や可視光)光渦を磁性体に照射する戦略である<sup>[11]</sup>。この際、スピンは直接光渦の電磁場を感じ取れないが、固体中の電子などは光渦と相互作用し高エネルギー励起が発生し、そして緩和過程が起きる。その結果、磁性体は光渦の強度分布に従ってリング状に加熱されると考

えられる。この加熱過程はスピンにとって一瞬の出来事であり、このリング状の温度上昇を当然スピンは感じることができる。そこで我々は、この $\mu\text{m}$ スケールのリング状加熱で生じる新現象を探索した。特に Fig. 5 (a)に示したスキルミオンやスキルミオニウムなどのトポロジカル磁気欠陥<sup>[30]</sup>が現れるカイラル強磁性体薄膜(MnSi、B20 化合物、 $\text{Cu}_2\text{OSO}_3$  など)を記述する DM 相互作用を持つ 2 次元ハイゼンベルグ強磁性模型<sup>[30]</sup>に焦点を当て、磁気欠陥の生成・制御をより容易にする為に、スキルミオン結晶相と強磁性相の間の相転移周辺のスキルミオン相側において準安定な強磁性状態(水で言えば過冷却水に対応)を初期状態として用意した。この強磁性状態において高周波数光渦由来のリング状加熱痕の生成前後のスピンダイナミクスをランダウ・リフシッツ・ギルバート(LLG)方程式<sup>[30]</sup>を用いて数値解析した結果、光渦の加熱効果でトポロジカル欠陥を系統的に生成できることを示した<sup>[11]</sup>。Fig. 5 (b)は典型的な加熱効果によるトポロジカル磁気欠陥生成過程を描いている。(b1)のような小さな光渦を照射すると、中心暗点の効果が消えてしまい、点状構造を持つスキルミオンが生成する。(b2)のある程度大きなリングを持つ光渦の場合は、リング構造を持つスキルミオニウムが生成する。さらに(b3)のような多重リング光渦を巧く照射すると、多重リングのトポロジカル欠陥を生成することができる。

2 つ目の方法は、低周波数の THz 光渦を出来る限り集光し、磁気共鳴を起こす方法である<sup>[12]</sup>。Fig. 5(c)は磁気共鳴周波数をもつz方向に伝搬する光渦をx-y面上の強磁性体模型(スピンはz方向に分極)に照射した際に生じる各点のスピンx成分(光渦誘起スピン波の振幅)のスナップショットである。これも LLG 方程式に基づく解析の結果である。光渦の軌道角運動量 $m$ の増加とともに、生成するスピン波のスパイラルな波面における方位角方向の節の数も増加することが確認できる。すなわち、光渦の軌道角運動量の情報がスピン波の形状に転写されている<sup>[12]</sup>と言える。

これらの光渦駆動高速スピントクスチャー制御法の他に、ベクトルビームによる金属フェルミ面の測定方法の提案<sup>[13]</sup>、ベクトルビームによる 2 次元電子系のエッジ電流の検出法<sup>[14]</sup>、ベクトルビームによるフロケ・エンジニアリング<sup>[14]</sup>などの提案も行っている。

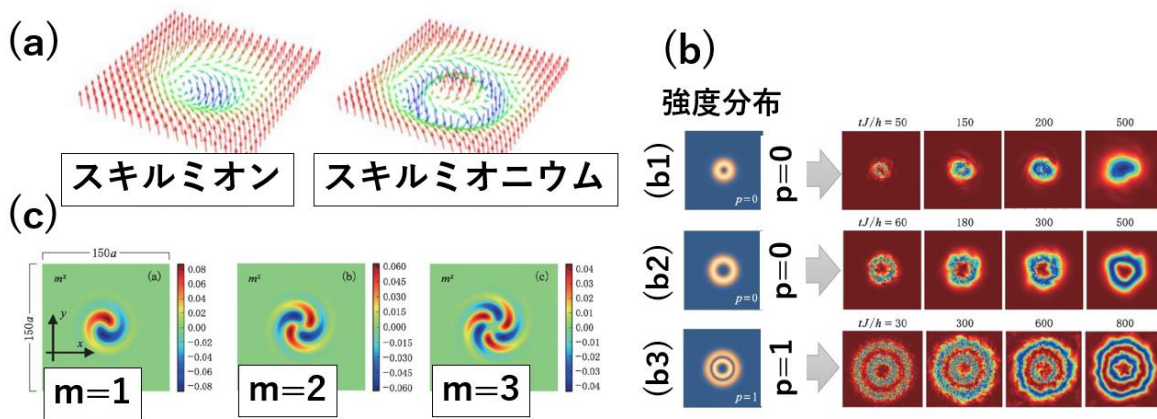


Fig.5 光渦レーザーを強磁性体とカイラル磁性体薄膜に照射した際のスピントクスチャーの生成・制御の例。(a) 2次元カイラル強磁性体における典型的なトポロジカル磁気欠陥であるスキルミオンとスキルミオニウムの構造。(b)紫外から可視光帯の $\mu\text{m}$ 以下まで集光した光渦を 2次元カイラル強磁性体に照射した際に光渦の加熱効果で生じるトポロジカル磁気欠陥の生成過程。一様な暗い領域が強磁性状態( $S^z = +S$ )を表し、加熱によりスピンがある領域、または、リング領域で反転( $S^z = -S$ )している。(b1), (b2), (b3)の光渦により、各々、スキルミオン、スキルミオニウム(単一リング欠陥)、2重リング欠陥が生成している。これらは熱・量子揺らぎに対して安定で、長寿命をもつ。(c)磁場中 2次元強磁性体における集光 THz 光渦誘起磁気共鳴のスナップショット。一様な薄暗い領域が強磁性状態( $S^z = +S$ )を表し、らせん状の模様は磁気共鳴で生じた横磁化 $S^x$ の大きさを表している。

#### 4. スピン流版の太陽電池(スピン流版シフトカレント)の提案

太陽電池<sup>[31]</sup>は光を利用した AC 外場から DC 流を生成するデバイスの代表と言えよう。可視光(AC 電磁場)を摂動ととらえれば、DC 電流の光による生成(光電流の生成)では、2 次の非線形光学過程が最低次の寄与である。様々な太陽電池のメカニズムが提案されているが、その基本的構造のひとつは、p 型と n 型の異なる半導体の接合系である。振動する電磁場である可視光には電子やホールを特定の方向に整流させる能力は存在せず、照射対象の太陽電池本体が空間反転対称性を破っていることにより、整流効果が現れる。異なる半導体の接合は明らかに反転非対称な構造である。しかし、最近、微視的な結晶構造が反転対称性を破った単一物質の光電流効果も盛んに研究されている。これを説明する微視的理論も発展しつつあり、反転対称性の破れに伴い、キャリア(電子とホール)が光で励起される際にキャリアの結晶の単位胞内における重心がシフトすることが整流効果の基本メカニズムとして提案されている。この電流はシフトカレント<sup>[32],[33]</sup>と呼ばれる。

これらことを踏まえて、我々は、反転非対称な磁性絶縁体においてスピン流版のシフトカレントの実現可能性を理論的に考察している<sup>[15],[16]</sup>。すなわち、太陽電池における電流(電子流とホール流)、可視光、反転非対称な半導体の組み合わせを、スピン流(マグノン流やスピノン流)、THz レーザー(または GHz 波)、反転対称性が破れた磁性絶縁体で置き換えられる可能性を解析している。電磁波の 2 次項を取り込んだ非線形応答理論<sup>[34]</sup>を応用し、反転対称性が破れた 1 次元  $S = 1/2$  量子スピン鎖模型とフェリ磁性(または反強磁性)秩序を持つ磁性絶縁体模型の 2 種の系において、十分高強度の直線偏光 THz または GHz 波を照射することで、それぞれ DC スピノン流<sup>[15]</sup>とマグノン流<sup>[16]</sup>が生成可能であることを明らかにした。量子スピン鎖模型はジョルダン・ウィグナー(JW)変換によってフェルミオン模型に厳密

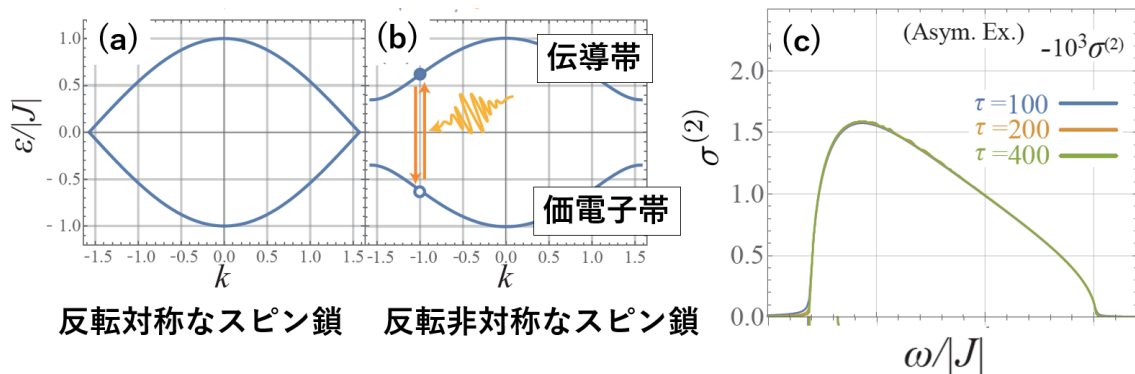


Fig.6 (a)反転対称な XY 量子スピン鎖と(b)ボンド交替とスタガード磁場により反転対称性が破れた XY 量子スピン鎖模型を JW 変換でフェルミオン化した際に得られるバンド構造。(b)の場合、半導体と同じように、系は価電子帯と伝導帯の 2 つのバンドを持ち、バンドギャップが現れる。(b)の模型に THz レーザーを印加すると、粒子ホール対(粒子は JW フェルミオンを指す)が生成する。(c)逆 DM 結合<sup>[22],[23]</sup>を持つ反転対称性の破れたスピン鎖(b)に THz レーザーによる AC 電場を印加した際の非線形 DC スピン流伝導度  $\sigma^{(2)}$  のレーザー周波数  $\omega$  依存性。周波数  $\omega$  が粒子ホール対を生成させるエネルギー領域(パネル(b)のバンド幅で決まる)の中にあれば有限の伝導度  $\sigma^{(2)}$  が生じている。フェルミオンの緩和時間  $\tau$  を変化させてもほぼスピン流伝導度の値が変わらず、得られた DC スピン流がシフトカレント的であることが確認できる。逆 DM 結合の他、模型(b)が通常のゼーマン結合、または、磁歪型 ME 結合<sup>[22]</sup>を持つ場合も、レーザー印加により有限の伝導度  $\sigma^{(2)}$  が現れ、そのスピン流がシフトカレント的であることが示される。今考えているスピン-光子結合による粒子ホール対の生成は、系の全粒子数を変化させない。スピンの言葉に換言すれば、模型(b)ではスピン-光子結合は  $S^z$  を保存している。すなわち、光子からスピンへの角運動量の転写なしで DC スピン流が生成している。

に変換することができて(Fig.6(a)(b))、電子系の太陽電池の理論との類似性と差異を明確に議論することが可能である。Fig.6(c)に示しているように、得られたスピンはシフトカレント的であり、光誘起DC スピン流伝導度の leading 項が準粒子(スピノンやマグノン)の緩和時間の 0 次の項であることも数値的に示した。従って、我々が提案するスピンは不純物散乱や熱揺らぎなどに対してある程度安定であると期待できる。また、この方法は電流を伴わない為、ジュール熱を電子デバイスのそれに比べて抑制できる可能性が高い。

我々の提案する光スピン流生成法は、代表的な電磁波による DC スピン流生成法であるスピンプンプ効果<sup>[35],[36]</sup>とは本質的に異なる現象である。両者のイメージをFig.7に描いている。Fig.6(c)でも説明しているように、前者は電磁波(光子)から磁性体への角運動量の転写を必要としない現象であり、実際、我々は電磁波との結合も含めてスピンの z 成分が保存するモデルで DC スピン流が生成することを示している。磁性

体の結晶構造によりスピ流が流れる方向が確定していることも特徴である。一方、スピンプンプは磁気共鳴現象に基づいた現象であり、電磁波によりスピンの歳差運動を促進し、その運動が拡散的なスピ流を生成している。これをマグノンの言葉で換言すれば、光子の角運動量がスピン角運動量  $\hbar$  をもつマグノン生成に使われ、多量に生成されたマグノンが拡散のかつ等方的に広がることでスピ流が生じている、となる。これまでのスピンプンプの実験で検出されたスピ流の一部が我々の提案するスピ流を含んでいる可能性もあり得るだろう。

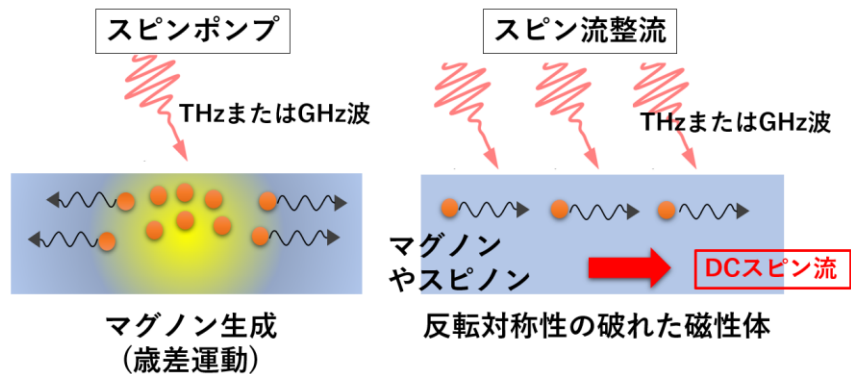


Fig.7 スピンプンプと我々の光スピン流整流現象のイメージ図。スピンプンプでは、電磁波により磁気共鳴を起こし、マグノンを大量発生させ、そのマグノンが全方向に拡散することでスピ流を生成している。我々の光スピン流整流法では、一様な電磁波を反転対称性の破れた磁性体に照射すれば、反転対称性の破れた結晶構造で決定される向きにスピ流が流れる。

### 5. 磁性絶縁体における高次高調波発生 (半導体・超伝導体とのアナロジー)

高次高調波発生 (high harmonic generation: HHG) とは、周波数  $\omega$  の電磁波を物質に照射して  $\omega$  の整数倍  $n\omega$  の周波数 ( $n = 2, 3, 4, \dots$ ) の電磁波が発生する非線形光学現象を指す(Fig.8)。周波数  $n\omega$  の電磁波が検出されることは、通常、物質中でも周波数  $n\omega$  のダイナミクスが生じていることを意味する。HHG はこれまで原子や気体などに高強度レーザーを照射して観測されてきたが、近年、固体電子系である半導体<sup>[37]</sup>や超伝導体<sup>[38]</sup>における HHG が盛んに研究されている。

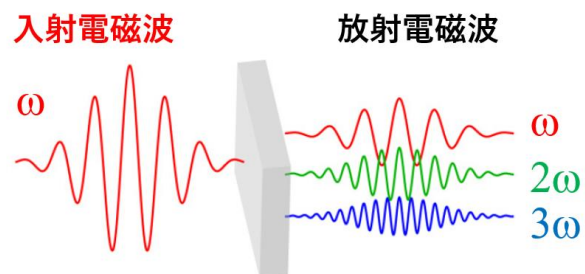


Fig.8 高次高調波発生(HHG)のイメージ図。周波数  $\omega$  の外場に対して同じ周波数  $\omega$  の応答は、線形応答である。  $2\omega, 3\omega, 4\omega, \dots$  の応答が HHG に対応する。



る。これらの場合、周波数 $n\omega$ の電流や電気分極が物質中で生じ、それが HHG を生み出している。 $n$ が大きい場合ほど高次の光学過程であるから、その実現確率は一般に減少するが、レーザー(電磁波)と電荷の結合が非常に強い為、半導体にバンドギャップより光子エネルギーが小さい赤外レーザーを高強度で照射すると、 $n = 10, 20, 30$ 程度の HHG スペクトルまで観測できる。このような高次の光学過程を含む HHG の特性を基礎科学的観点から研究する潮流が最近高まっている。また、奇数次または偶数次 HHG の有無は系の対称性(特に反転対称性)にしばしば依存しており、対称性の破れを間接検出する上でも利用される。一方、HHG は実験設定と観測の両面から考えて、最も簡単な非線形光学現象の 1 つと言えよう。この意味で、対象となる物質において多彩な非線形光学効果が起こる可能性を検証する上で「まず HHG を測定する」という戦略もあり得るだろう。

このような研究の発展を受けて、我々は最近、簡単かつ現実的な磁性絶縁体模型といえる数種の  $S = 1/2$  量子スピン鎖における HHG を理論的に解析した<sup>[17]</sup>。4 節でも述べたように、量子スピン鎖は JW 変換を介してフェルミオン化することができ、フェルミオン系(電子系)である半導体や超伝導体の HHG と磁性体のその明確な比較が可能となる。例えば、Fig.6(b)にも示したように、反転対称性の破れた XY スピン鎖は反転対称性の破れた自由フェルミオン鎖模型にマップされ、後者の分散関係は、半導体と同様に、価電子帯と伝導帯の 2 バンドで構成される。

電磁波と電荷の結合に比べて電磁波と磁性絶縁体の結合は一般に弱い、それでも周波数 $\omega$ の高強度電磁波の照射により磁性体内の磁化や電気分極が周波数 $n\omega$ で振動すれば磁性体の HHG が起こり得る。ただし結合の弱さを反映して、電子系のような  $n = 10$  を超える HHG が磁性体で観測にかかる可能性は極めて低い。例えば、論文<sup>[39]</sup>では、磁性絶縁体に高強度 THz レーザーパルスを与えて微小な 2 次高調波が観測されているが、高次の HHG は観測されていない。しかし、低次の HHG から系の新しい情報や特性を得られることを強調したい。我々は、THz 領域で実現可能なレーザーパルス強度(現在 1-10MV/cm 程度が上限)<sup>[4]-[6]</sup>を考慮に入れて、AC 磁場と電子スピンの間の標準的なゼーマン相互作用に加えて、磁歪型 ME 効果<sup>[22]</sup>による電気分極と電子スピンの結合も模型に取り込み、これらのスピン-光子結合が誘導する電気分極 $P(t)$ 、磁化 $M(t)$ 、スピン流 $J_{spin}(t)$ の時間発展を量子マスター方程式<sup>[40]</sup>の数値解析から計算した。例えば、レーザー駆動される電気分極と磁化のフーリエ成分を $P(\omega)$ と $M(\omega)$ と表せば、これらによる HHG スペクトルは $|\omega^2 P(\omega)|^2$ と $|\omega^2 M(\omega)|^2$ で与えられる<sup>[41]</sup>。我々は実験で観測され得る低次の HHG ( $n = 2, 3, 4$ ) に焦点を当てて解析を実行した。周期外場系の量子多体系の時間発展の数値計算では、しばしば環境との結合が考慮されていないが、我々の解析する量子スピン鎖模型は JW 変換後に自由フェルミオン模型にマップされるため量子マスター方程式による解析が可能となり、環境との結合によるスピンの緩和効果を容易に取り込むことが可能である。その結果、しばしば理論研究で行われる人工的操作なしで、自然な HHG スペクトルを得ることができる。

以下では、量子イジング鎖模型  $H_{QI} = 2J \sum_j S_j^x S_{j+1}^x - HS_j^z$  において AC 縦( $S^z$  方向)磁場ゼーマン項  $H_{Zeeman}(t) = H(t) \sum_j S_j^z$  が引き起こす磁化  $M = \sum_j S_j^z$  のダイナミクス<sup>[17]</sup>に焦点を当てよう。当然  $M$  の非線形な振動が HHG を誘起

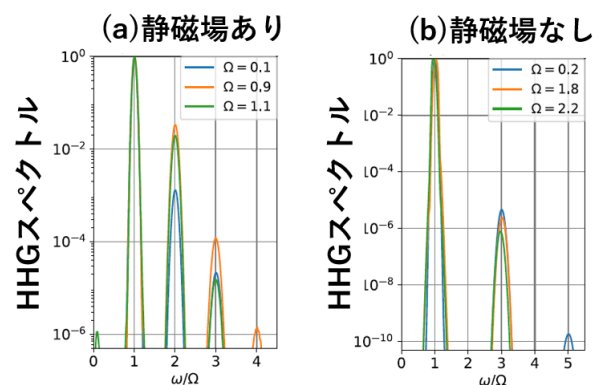


Fig.9 量子イジング鎖模型の HHG スペクトル。フェルミオン化した模型を量子マスター方程式に基づいて数値解析した結果である。照射レーザーパルスの周波数を $\Omega$ とし、観測する HHG の周波数を $\omega$ としている。

する。ここで、 $S_j^{x,y,z}$ は $j$ 番サイトに住む電子スピン、 $J$ はイジング型交換相互作用の強さ、 $H = g\mu_B B$ と $S_j^z$ の積は縦静磁場によるゼーマン項、 $H(t)$ は照射するレーザーパルスのAC磁場(結合定数も含めて)を表している。このモデルはJW変換を介して、AC外場と結合した超伝導のBCSハミルトニアンにマップすることができる。反転対称な超伝導体におけるTHzレーザーパルスによるHHGでは、2次(偶数次)のHHGが観測されず、3次のHHGがヒッグスモードに由来する<sup>[38]</sup>。さらに、反転対称性が破れるよう定常電流を印加した超伝導体のHHGでは、2次のHHGも発生する<sup>[42]</sup>。我々は、量子イジングモデルにおいても超伝導体と類似のHHGについてのある種の対称性(動的対称性と呼ぶ)を見つけている。すなわち、Fig.9に示したように、静磁場を印加していないイジングモデルでは偶数次HHGは現れず(Fig.9 (b))、静磁場中の同モデルでは偶数次HHGが現れる(Fig.9 (a))。我々は、この性質が量子イジングモデルを含む広い1次元量子磁性体で成り立つことも示している。静磁場とAC磁場の方向が平行であることが、この動的対称性の発現のポイントである。

磁性体のHHGには未知の領域が広く、かつ、上述のようにHHGが比較的単純な非線形光学現象であることから、磁性体のHHGにおいて実験と理論研究が互いに進展を促進することが期待できる。

## 謝辞

本原稿で解説した成果は、多くの研究者との共同研究に基づくものである。特に、池田達彦氏、石塚大晃氏、岡隆史氏、高吉慎太郎氏、東川翔氏、藤田浩之氏(50音順)に深く感謝する。またこれらの成果は、科研費(No. 15H02117, No. 17K05513)および新学術領域「ナノスピン変換科学」(No. 17H05174)と「量子液晶の物性科学」(No. 19H05825)の支援を受けて行われた。

## 引用文献

- [1] 例えば、G. Stefanucci and R. v. Leeuwen, *Nonequilibrium Many-Body Theory of Quantum Systems* (Cambridge Univ. Press, 2013).
- [2] 例えば、H-P. Beruer, *The Theory of Open Quantum Systems* (Oxford Univ. Press, 2007).
- [3] 例えば、*Thermodynamics in the Quantum Regime* edited by F. Binder, L. A. Correa, C. Gogolin, J. Anders, and G. Adesso (Springer, 2019).
- [4] Y. Mukai, H. Hirori, T. Yamamoto, H. Kageyama, and K. Tanaka, *New J. Phys.* **18**, 013045 (2016).
- [5] B. Liu, H. Bromberger, A. Cartella, T. Gebert, M. Först, and A. Cavalleri, *Opt. Lett.* **42**, 129 (2017).
- [6] M. Sato, T. Higuchi, N. Kanda, K. Konishi, K. Yoshioka, T. Suzuki, K. Misawa, and M. Kuwato-Gonokami, *Nature Photo.* **7**, 724 (2013).
- [7] S. Takayoshi, M. Sato, and T. Oka, *Phys. Rev. B* **90**, 214413 (2014).
- [8] M. Sato, S. Takayoshi, and T. Oka, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 147202 (2016).
- [9] M. Sato, Y. Sasaki, and T. Oka, arXiv:1404.2010.
- [10] K. Takasan and M. Sato, *Phys. Rev. B* **100**, 060408(R) (2019).
- [11] H. Fujita and M. Sato, *Phys. Rev. B* **95**, 054421 (2017).
- [12] H. Fujita and M. Sato, *Phys. Rev. B* **96**, 060407(R) (2017).
- [13] H. Fujita and M. Sato, *Sci. Rep.* **8**, 15738 (2018).
- [14] H. Fujita, Y. Tada, and M. Sato, *New J. Phys.* **21**, 73010 (2019).
- [15] H. Ishizuka and M. Sato, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 197702 (2019).
- [16] H. Ishizuka and M. Sato, *Phys. Rev. B* **100**, 224411 (2019).

- [17] T. N. Ikeda and M. Sato, *Phys. Rev. B* **100**, 214424 (2019).
- [18] A. Eckardt, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 011004 (2017).
- [19] T. Oka and S. Kitamura, *Ann. Rev. Cond. Matt. Phys.* **10**, 387 (2019).
- [20] 佐藤、高吉、岡：日本物理学会誌 vol. **72**, No. 11, 783 (2017).
- [21] T. Mikami, S. Kitamura, K. Yasuda, N. Tsuji, T. Oka, and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **93**, 144307 (2016).
- [22] Y. Tokura, S. Seki, and N. Nagaosa, *Rep. Prog. Phys.* **77**, 076501 (2014).
- [23] H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 057205 (2005).
- [24] P. S. Pershan, J. P. Van Der Ziel, and L. D. Malmstrom, *Phys. Rev.* **143**, 574 (1966).
- [25] *The Angular Momentum of Light*, edited by D. L. Andrews and M. Babiker (Cambridge University Press, 2012).
- [26] Q. Zhan, *Adv. Opt. Photon.* **1**, 1 (2009).
- [27] 藤田、佐藤：固体物理2018年9月号(通巻631号), p.457 (アグネ技術センター、2018).
- [28] 佐藤、藤田：光学第42巻第4号, p.162 (日本光学会、2018).
- [29] 佐藤：パリティ Vol.34 No.03, p.54 (丸善、2019).
- [30] S. Seki and M. Mochizuki, *Skyrmions in Magnetic Materials* (Springer, 2015).
- [31] P. Wurfel and U. Wurfel, *Physics of Solar Cells: 3rd edition* (Wiley-VCH, 2016).
- [32] V. Belinicher, E. L. Ivcheriko, and B. Sturman, *J. Exp. Theor. Phys.* **56**, 359 (1982).
- [33] J. E. Sipe and A. I. Shkrebtii, *Phys. Rev. B* **61**, 5337 (2000).
- [34] W. Kraut and R. von Baltz, *Phys. Rev. B* **19**, 1548 (1979); *ibid.* **23**, 5590 (1981).
- [35] Y. Kajiwara, K. Harii, S. Takahashi, J. Ohe, K. Uchida, M. Mizuguchi, H. Umezawa, H. Kawai, K. Ando, K. Takanashi, S. Maekawa, and E. Saitoh, *Nature (London)* **464**, 262 (2010).
- [36] B. Heinrich, C. Burrowes, E. Montoya, B. Kardasz, E. Girt, Young-Yeal Song, Yiyan Sun, and M. Wu, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 066604 (2011).
- [37] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, *Nature Phys.* **7**, 138 (2011).
- [38] R. Matsunaga, N. Tsuji, H. Fujita, A. Sugioka, K. Makise, Y. Uzawa, H. Terai, Z. Wang, H. Aoki, and R. Shimano, *Science* **345**, 1145 (2014).
- [39] J. Lu, X. Li, H. Y. Hwang, B. K. Ofori-Okai, T. Kurihara, T. Suemoto, and K. A. Nelson, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 207204 (2017).
- [40] H.-P. Breuer and F. Petruccione, *The Theory of Open Quantum Systems* (Oxford University Press, Oxford, 2007).
- [41] 例えば、J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics* 3<sup>rd</sup> edition (Wiley, 1998).
- [42] S. Nakamura, Y. Iida, Y. Murotani, R. Matsunaga, H. Terai, and R. Shimano, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 257001 (2019).

日本磁気学会第 227 回研究会「X 線とレーザーの融合による磁性ダイナミクス」資料