

キタエフ磁性体における非線形光学応答とフロッケ・エンジニアリング —スピン液体と光物性の境界領域—

佐藤 正寛¹ and 金賀 穂¹

¹ 千葉大学大学院理学研究院*

(Dated: March 10, 2023)

I. はじめに

本解説記事では、我々の理論研究成果「キタエフ磁性体にレーザーを照射した際の光学応答」[1, 2]について解説する。多くの方は、光学応答というと赤外・可視光・紫外領域の電磁波[3-5]を物質に照射した際の物質の応答を想像するかもしれないが、ここでは、より低周波数のテラヘルツ ($1 \text{ THz} = 10^{12} \text{ Hz}$) 帯の電磁波をキタエフ磁性体に照射する状況を考える。赤外や可視光領域のレーザー科学・技術に比べると、THz 帯レーザー (ここでは $0.1\text{-}10 \text{ THz}$ の周波数帯のレーザーを指している)[5-7]の生成・制御は難易度が高く、それゆえ、高周波数帯レーザー装置を備えている研究室に比べると、THz レーザー技術を持つ研究室は少ない。にもかかわらず、THz レーザーを磁性体に照射する状況を考えたい理由は、磁性体の (特に反強磁性体や高エネルギー領域の) 磁気励起エネルギーがちょうど THz 帯にあり、THz レーザーを使えば、それらを直接励起してその特性を検出できるからである。もちろん、赤外や可視光領域レーザーを使った磁気光学[8, 9]には長年の歴史があり、ファラデー効果、カー効果、コットン・ムートン効果をはじめとする多彩な磁気光学現象が現在も盛んに研究されている。しかし、高周波数レーザーを固体結晶に照射した際に生じる素過程 (フェムト秒オーダー) は光子による電子遷移であり、その遷移の後に複雑なプロセス (ピコ秒以上) や熱化を経て磁性が顔を出すことになる。従って、磁性体の基礎物性解明を目的として光学応答に焦点を当てるとき、高周波数レーザーによる応答を見るよりも、圧倒的に明瞭な磁気励起の特徴を炙り出すことができるのが THz レーザーの大きな利点といえる。実際、ここ 10 年

の程度の間、THz レーザーや THz 波を用いた物性研究により、様々な新しい非平衡・非線形磁気ダイナミクスが明らかにされている[10-19]。理論的観点からも、高周波数レーザーによる複雑な光学過程を解析して定量的な予言を与えることは一般に容易ではなく、それと比較すると、THz レーザーによって磁気励起を直接たたいて生じるダイナミクス[1, 2, 20-32]は定量的に解析できる可能性が高い。

THz レーザーの照射対象であるキタエフ磁性体[33-38]は、本特集号の主題である。ハニカム格子上のキタエフ模型は、2006年にKitaev氏[33]が数理科学的な動機から提案したスピン模型である。その基底状態は磁気秩序を持たない量子スピン液体状態であり、その上にスピンの「分数化された」励起を持つ。多くの物性研究者は、このような人工的な模型が固体結晶中で実現するとは考えていなかったが、2009年にJackeli氏とKhaliullin氏[39, 40]が、スピン軌道相互作用が強いあるクラスの本質的絶縁体において、その低エネルギー有効理論がキタエフ模型と等価になり得ることを理論的に指摘し、その後爆発的にキタエフ磁性体の探索と実験・理論研究が行われ、現在に至る。特に、 $\alpha\text{-RuCl}_3$ [41-48]は、最も精力的に研究されているキタエフ候補物質である。一般にキタエフ候補物質の磁性を定量的に記述するには、キタエフ模型に幾つかの摂動項を加えた模型が必要となる。キタエフ模型周辺を含めた系全般を指して「キタエフ磁性体」と呼ぶことが多い。

我々の理論研究は、THz レーザーという横串を使って、これまであまり接点のなかった光物性科学と量子スピン液体[49-53] (より広くはフラストレート磁性) の2分野に架け橋を構築することを目指している。通常、2-3次元系の量子スピン液体相を理論的に取り扱うとき、その基底状態の記述でさえ難問であるが、キタエフ模型は、例外的に可

* sato.phys@chiba-u.jp

解で、かつ、現実性のある模型である為、レーザー照射下の非平衡スピン液体状態を扱う上で格好の題材となる。

まず、II章で、THzレーザーと磁性体の励起構造について解説する。磁性体の応答を見る上で、どの周波数で、どの程度の強度のレーザー(または電磁波)が最適であるかを説明する。III章でキタエフ模型の基本的な事項についてまとめる。IV章とV章が本解説記事の中心である。IV章では、高強度THzレーザーをキタエフ磁性体に照射し、照射レーザー周波数の整数倍の周波数の放射光が発生する非線形光学現象である高次高調波発生 (high harmonic generation: HHG) [1] の研究成果について解説する。HHGスペクトルから、キタエフ磁性体のフェルミオン励起構造や対称性に関する多くの情報が引き出せることを予言する。V章は、高強度THzレーザーを照射してキタエフ磁性体の静的物性を制御するフロッケ・エンジニアリング [2] について解説する。磁歪型の電気磁気結合をもつキタエフ磁性体に円偏光THzレーザーを照射することで、カイラルエッジ流を持つトポロジカルスピン液体相を高速生成できることを示す。最後に、VI章で解説全体についてまとめる。

II. THzレーザーと磁気励起

光物性科学や光学で頻りに用いられるレーザーの周波数帯は、赤外・可視光・紫外領域である。より高周波数の高輝度X線レーザーも大規模施設で利用可能である。一方、エレクトロニクスやスピントロニクスで考えるダイナミクスの時間スケールはメガヘルツ (MHz=10⁶ Hz) やギガヘルツ (GHz=10⁹ Hz) 周辺、またはそれ以下の低周波数領域である。この中間域に位置するのがテラヘルツ (THz) 帯である。THz帯のレーザーで長時間持続する連続波 (continuous wave: CW) を生成するのは容易ではなく、通常、半周期、1周期、数周期程度の長さのレーザーパルスが光物性の研究では利用される。レーザーを圧縮しパルス化して強度を上昇させることはTHz帯に限らず他の周波数帯でも行われており、特に高強度レーザーによる非線形光学現象に興味がある場合、レーザーパルスが良く利用される。THzレーザーに限らず、高強度レーザーと

呼ぶ際のレーザーの振動電場強度の基準値として

$$1 \text{ MV/cm} = 10^6 \text{ V/cm} = 10^{-1} \text{ V/nm} \quad (1)$$

という値が挙げられる。真空中では、対応する振動磁場強度はおよそ0.3T(テスラ)となる。可視光領域では1-10 MV/cmのレーザーを生成できる研究室は多数存在するが、THz帯で1 MV/cmの高強度レーザーパルスを保有する研究室は限られている。

ここで、1 MV/cmという強度の理解を深めてみよう。原子分子や固体結晶中の典型的な長さスケールはボーア半径や結晶格子間隔であり、0.1-1 nmである。この領域で電子が上記の振動電場を感じれば、電子のエネルギーは0.01-0.1 eVだけ変化する。一方、原子分子や固体中の電子の束縛エネルギーは1-10 eV程度であることから、高強度レーザーは物質中の電子に束縛エネルギーの0.1-10%に達するエネルギーの変化をもたらす。対応する磁場強度の0.3 Tについても考えよう。0.3 Tの磁場による電子のゼーマンエネルギーは温度換算すると0.1 K(ケルビン)程度である。一方、磁性体の電子スピン間の交換相互作用の大きさは典型的に1-100 K程度である。従って、電場と同じように、0.3 Tの振動磁場は電子スピン間相互作用の0.1-10%程度のエネルギーを電子スピンに与えることになる。以上の粗い見積もりから、詳細な計算をせずとも、1 MV/cmのレーザーを固体結晶に照射すれば線形応答を超えた非線形現象が起こると期待できる。

一方、理論研究では、しばしばレーザー強度の見積もりを怠り、無謀なレーザー強度の設定で光学応答を解析している場合がある。10-100 MV/cmのレーザーを照射して非線形光学現象を理論予言しても、実際にはそのような光源は準備できず、かつ、その高強度波を物質に照射すると物質が燃焼してしまう。光物性の理論研究成果はレーザー強度に注意して読むことがお勧めである。

続いて、磁気励起について簡単に解説する。スピントロニクスや強磁性共鳴で登場する強磁性体のスピン波(マグノン)励起は1-10 GHz周辺に存在する。一方で、反強磁性体 [18, 54] やマルチフェロイクス(強誘電磁性体) [55-57] や量子スピン液体 [38, 50, 52] の磁気励起は10 GHz程度から10 THzまで存在する。0.1-10 THz帯のレーザーは現

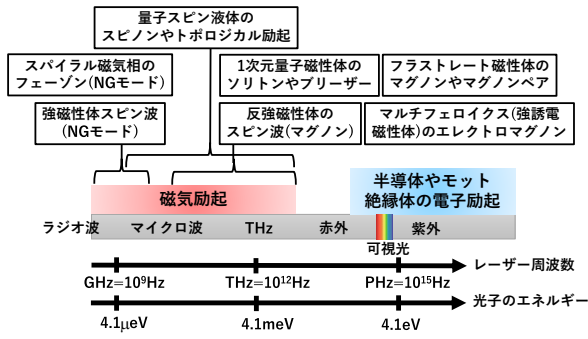


FIG. 1. THz 帯周辺のレーザー周波数と典型的な磁気励起。文献 [5, 58, 59] も見よ。

在の THz レーザー技術で生成・制御が可能であり、多くの磁性体の磁気ダイナミクスを THz レーザーにより生成することができる。図 1 にレーザーの周波数と対応する典型的な磁気励起を示している。

III. キタエフ模型

本記事では、レーザー照射下のキタエフ模型を考える。キタエフ模型の基本物性を解説した優れたレビューが存在する [34–38]。本章ではのちに必要となるキタエフ模型の基本事項をまとめる。キタエフ模型を理解している読者は、本章を読み飛ばして頂きたい。

ハニカム格子上的キタエフ模型 [33] のハミルトニアン

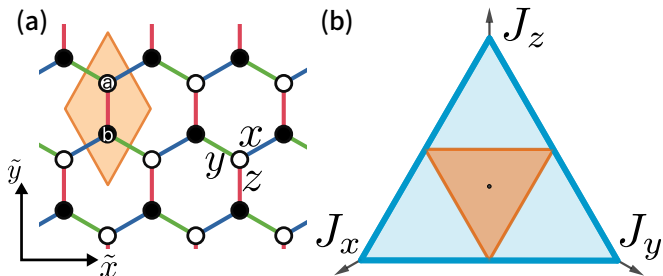


FIG. 2. (a) ハニカム格子上的キタエフ模型。青・緑・赤の線はそれぞれ $x \cdot y \cdot z$ ボンドに対応し、各 α ボンドにイジング相互作用 $\sigma_r^\alpha \sigma_{r'}^\alpha$ が存在する。2 サイトを含むオレンジ色のひし形が unitcell (単位胞) である。白と黒のサイトは 2 つの副格子を表している。(b) キタエフ模型における (J_x, J_y, J_z) 空間の基底状態相図。オレンジ・青の領域はそれぞれ gapless・gapped 励起を持つ量子スピン液体相である。 $J = J_{x,y,z}$ 点は gapless 相の中心に位置する。

は以下で定義される。

$$\hat{H}_K = - \sum_{\alpha, \langle \mathbf{r}, \mathbf{r}' \rangle_\alpha} J_\alpha \sigma_r^\alpha \sigma_{r'}^\alpha \quad (2)$$

ここで、 σ_r^α ($\alpha = x, y, z$) はサイト $\mathbf{r} = (\tilde{x}, \tilde{y})$ に住む電子スピン (正確には各サイト内の強いスピン軌道相互作用の結果生じた擬スピンの自由度) $S_r^\alpha = \frac{1}{2} \sigma_r^\alpha$ を表すパウリ行列である。ここで $\hbar = 1$ の単位系を採用している。図 2(a) のように、ハニカム格子上的 3 種類の $x \cdot y \cdot z$ ボンドに異なるイジング相互作用が配置されている。各ボンドの相互作用の強さが $J_{x,y,z}$ である。この異種のイジング相互作用が磁氣的フラストレーションを生み、基底状態が磁気秩序を持たない量子スピン液体となる。本解説記事では、主に最も対称性の高い点 $J = J_{x,y,z}$ に着目する。キタエフ候補物質の多くは (キタエフ相互作用以外の項を持つものの) $J = J_{x,y,z}$ 周辺にいと考えられている。

図 2(b) は、 (J_x, J_y, J_z) 空間におけるキタエフ模型の基底状態相図である。 $J = J_{x,y,z}$ 点を中心とするオレンジ領域が gapless スピン液体相であり、空間異方性の強い青の領域が gapped スピン液体相である。以下で説明するように、キタエフ模型は「フェルミオン化」することでそのエネルギー固有状態 (励起スペクトル) を正確に求めることができる。このフェルミオンの言葉を使うと、キタエフ模型の励起は、遍歴フェルミオンと局在フェルミオンの組み合わせで記述できる。gapless 相は、局在フェルミオンが gap を持ち、遍歴フェルミオンが gapless のバンド構造を持つ相である。一方、gapped 相は、遍歴および局在フェルミオンの両方が有限の励起 gap を持つ相であり、この gapped 相は、toric code 模型の Z_2 トポジカル秩序相 [33, 52, 60] と定性的に等価である。図 2(b) は $J_{x,y,z} > 0$ の強磁性領域の相図であるが、 $J_{x,y,z} < 0$ の反強磁性領域の相図は、 $|J_{x,y,z}|$ を強磁性模型の $J_{x,y,z}$ に置換した相図と同形である。

キタエフ模型のフェルミオン化を数式を使って説明しよう。フェルミオン化模型は、主題であるレーザー中のキタエフ模型を解析する際の出発点となる。代表的なキタエフ模型のフェルミオン化の方法として、(i) 元のヒルベルト空間を拡張してフェルミオン自由度を導入し拘束条件を課す

方法 [33] と (ii)1次元スピン系で良く知られているジョルダン・ウィグナー (JW) 変換を応用する方法 [61] がある。以下ではフェルミオン化 (ii) を説明する。最終的には、(i) と (ii) で等価なフェルミオン模型にたどり着く。

JW 変換 [61] をすると、各サイトのスピン 1/2 の自由度は複素フェルミオン 1 つの自由度で表される。この A と B 副格子の複素フェルミオン c_r^a と c_r^b は以下のように 2 つのマヨラナフェルミオン (実フェルミオン) $\chi_r^{a,b}$ と $\xi_r^{a,b}$ の線形結合に分解できる: $c_r^a = \frac{1}{2}(\chi_r^a + i\xi_r^a)$ と $c_r^b = \frac{1}{2}(\xi_r^b + i\chi_r^b)$ 。これをキタエフハミルトニアンに代入すると、ハミルトニアンの中の $\chi_r^{a,b}$ で記述される部分が局所的な保存量であり、分散を持たない局在フェルミオン励起に対応することが分かる。その局所保存量をすべて固有値 ± 1 で数値に置き換えれば、ハミルトニアンは遍歴フェルミオン $\xi_r^{a,b}$ のみで記述される。新しい複素フェルミオンを $d_r = \frac{1}{2}(\xi_r^b + i\xi_r^a)$ で定義すると、これはひし形の単位胞あたりに 1 つ存在するフェルミオンと解釈される。基底状態では、全ての局所保存量が $+1$ をとることが知られており [33, 61, 62]、このときの有効ハミルトニアンは

$$\hat{H}_{K,\text{eff}} = \sum_{k_x > 0} \left[\epsilon_k^0 \left(\tilde{d}_k^\dagger \tilde{d}_k - \tilde{d}_{-k}^\dagger \tilde{d}_{-k} \right) - i\Delta_k^0 \left(\tilde{d}_k^\dagger \tilde{d}_{-k}^\dagger - \tilde{d}_{-k} \tilde{d}_k \right) \right] \quad (3)$$

となる。ここで、 $\tilde{d}_k = N^{-1/2} \sum_r d_r e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{r}}$ は d_r のフーリエ変換 (N は単位胞の総数) であり、波数ベクトル $\mathbf{k} = (k_x, k_y)^\top$ の各成分 k_x と k_y はそれぞれ図 2(a) の \hat{x} と \hat{y} 方向の波数を表している。等方的な ($J_{x,y,z} = J$) 場合、パラメータ ϵ_k^0 と Δ_k^0 は、 $\epsilon_k^0 = -2J(1 + \cos(\mathbf{k}\cdot\hat{e}_1) + \cos(\mathbf{k}\cdot\hat{e}_2))$ と $\Delta_k^0 = 2J(\sin(\mathbf{k}\cdot\hat{e}_1) + \sin(\mathbf{k}\cdot\hat{e}_2))$ と計算される。 $\hat{e}_{1,2}$ はひし形単位胞の 2 辺を表す基本ベクトル、 $\hat{e}_1 = \frac{\sqrt{3}}{2}(1, \sqrt{3})$ 、 $\hat{e}_2 = \frac{\sqrt{3}}{2}(-1, \sqrt{3})$ である (x, y, z ボンドの長さを 1 としている)。ハミルトニアン (3) の右辺の和が $k_x > 0$ の領域に限られているのは、右辺を \tilde{d}_k と \tilde{d}_{-k} の両方が存在する形式で表現している為である。以降 $\sum_{k_x > 0}$ を \sum'_k と略記する。

続いて、磁性体における最も基本的な摂動である静磁場

によるゼーマン相互作用

$$\hat{H}_{\text{Zeeman}} = -g\mu_B \mathbf{B} \cdot \sum_r \frac{1}{2} \boldsymbol{\sigma}_r \quad (4)$$

の効果を考える。 g と μ_B はそれぞれ系の g 因子とボーア磁子である。 $\mathbf{B} = (B_x, B_y, B_z)$ は外部静磁場であり、以下では $\mathbf{h} = g\mu_B \mathbf{B}$ を静磁場と呼ぶことにする。今考えているキタエフ模型が、Jackeli 氏と Khaliullin 氏 [39, 40] の提案するメカニズムで生じているならば、図 2(a) のハニカム格子に垂直方向に印加した静磁場が $h_{x,y,z} \neq 0$ に対応する。

キタエフ模型はスピン空間の対称性が低いため、ゼーマン相互作用の理論的取り扱いが容易ではない。しかし、ゼーマン相互作用を摂動論的に取り扱うことで、その本質的效果を抽出できる [33]。キタエフ模型の gapless スピン液体相を考えよう。ここでは局在フェルミオンが有限の励起ギャップを持つ。そこで、この局在フェルミオンがいない部分空間に注目した縮退摂動論を用いてゼーマン相互作用を解析しよう。ゼーマン相互作用項の 1 次摂動はスピン演算子の期待値で、これはゼロである。2 次摂動項は 2 スピンのテンソル積を部分空間の射影演算子で挟んだ項であるが、これは時間反転対称な項であり、もともとのゼーマン相互作用がもつ時間反転対称性を破る効果が 2 次摂動からは生じない。3 次摂動は時間反転 odd な項であり、この中で最も重要な項が以下の隣接 3 スピン相互作用である。

$$\hat{H}_\kappa = -\kappa \sum_{\langle\langle \mathbf{r}, \mathbf{r}', \mathbf{r}'' \rangle\rangle} \sigma_r^x \sigma_{r'}^y \sigma_{r''}^z \quad (5)$$

3 次摂動から生じる相互作用なので、結合定数 κ は $h_x h_y h_z$ に比例する。右辺の和は、ハニカム格子の各プラケット当たり 6 種類の隣接 3 サイトについての和である。どのようにスピンの各成分を 3 サイトで配置するかについては、図 3(a) を見ていただきたい。

図 3(b) のように、この 3 スピン項をフェルミオン化すると、純虚数の振幅を持つ隣接副格子間の遍歴フェルミオンのホッピング項に書き換えられる。虚数振幅が時間反転対称性の破れを表しており、このホッピングが gapless スピン液体相に追加されると、遍歴フェルミオンバンドに有限の励起ギャップが生じる量子相転移が起きる。この gapped

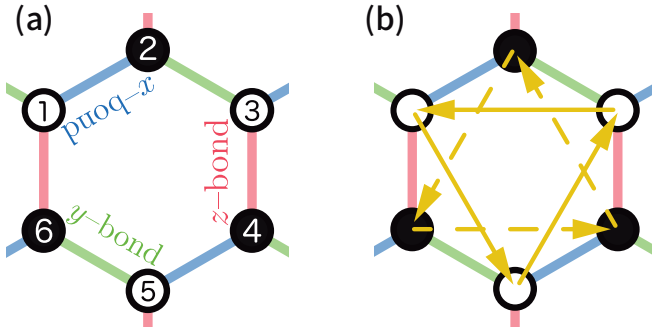


FIG. 3. (a) キタエフ模型の六角形プラケット。3 スピン相互作用項 (5) の和は、1つのプラケット当たり6種類の隣接3サイトのスピンの積 $\{1, 2, 3\} \cdot \{2, 3, 4\} \cdot \{3, 4, 5\} \cdot \{4, 5, 6\} \cdot \{5, 6, 1\} \cdot \{6, 1, 2\}$ を含む。隣接3サイト上の σ^x , σ^y , σ^z の配置の仕方は以下の通り：3サイトの中の中心サイト \mathbf{r} 、2つの隣接サイトを \mathbf{r}' と \mathbf{r}'' とすると、ボンド $\langle \mathbf{r}, \mathbf{r}' \rangle$ が α ボンドであれば、 \mathbf{r}' にスピン $\sigma_{\mathbf{r}'}^\alpha$ を配置し、ボンド $\langle \mathbf{r}, \mathbf{r}'' \rangle$ が β ボンドであれば、 \mathbf{r}'' にスピン $\sigma_{\mathbf{r}''}^\beta$ を配置する。最後に残りの \mathbf{r} サイトに $\sigma_{\mathbf{r}}^\gamma$ ($\gamma \neq \alpha, \beta$) を配置する。例えば、 $\{1, 2, 3\}$ の3サイトには $\sigma_1^x \sigma_2^z \sigma_3^y$ が配置される。(b) 各プラケットの3スピン相互作用 (5) をすべてフェルミオン化して生じる次近接ホッピング項 (黄色のライン)。各3スピン項は純虚数のファクターを持ったマヨラナフェルミオンの次近接ホッピングにマップされる。純虚数が時間反転対称性の破れを示唆している。

相は、2次元スピinless・カイラル超伝導体 [63] と同じクラスの相であり、系の端に gapless のカイラルエッジ流が流れている。キタエフ磁性体には保存する粒子は存在しないので、端に流れているのは粒子流ではなくエネルギー流である。高磁場中のキタエフ候補物質 α -RuCl₃ の熱ホール伝導度測定では、このエッジ流の存在を示唆する熱ホール伝導度が観測されている [44, 45]。このフェルミオン化された3スピン項を $\tilde{d}_{\mathbf{k}}$ を用いて表すと

$$\hat{H}_{\kappa, \text{eff}} = \sum_{\mathbf{k}} \Delta_{\mathbf{k}}^{\kappa} \left(\tilde{d}_{\mathbf{k}}^{\dagger} \tilde{d}_{-\mathbf{k}} + \tilde{d}_{-\mathbf{k}} \tilde{d}_{\mathbf{k}} \right) \quad (6)$$

と書ける。ここで右辺のパラメータは $\Delta_{\mathbf{k}}^{\kappa} = 4\kappa[\sin(\mathbf{k} \cdot (\hat{e}_1 - \hat{e}_2)) - \sin(\mathbf{k} \cdot \hat{e}_1) + \sin(\mathbf{k} \cdot \hat{e}_2)]$ である。

以上より、磁場中 (または磁場なし) のキタエフ模型における遍歴フェルミオンの有効ハミルトニアン $\hat{H}_{K, \text{eff}} + \hat{H}_{\kappa, \text{eff}}$ は、以下のように行列表示できる。

$$\hat{H}_{K, \text{eff}} + \hat{H}_{\kappa, \text{eff}} = \sum_{\mathbf{k}} D_{\mathbf{k}}^{\dagger} M_{\mathbf{k}} D_{\mathbf{k}} \quad (7)$$

ここで、 2×2 行列 $M_{\mathbf{k}}$ は、パウリ行列 $\tau^{x, y, z}$ を用いて、

$$M_{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} \epsilon_{\mathbf{k}}^0 & \Delta_{\mathbf{k}} \\ \Delta_{\mathbf{k}}^* & -\epsilon_{\mathbf{k}}^0 \end{pmatrix} = \Delta_{\mathbf{k}}^{\kappa} \tau^x + \Delta_{\mathbf{k}}^0 \tau^y + \epsilon_{\mathbf{k}}^0 \tau^z \quad (8)$$

と与えられ、列ベクトル $D_{\mathbf{k}}$ は $(\tilde{d}_{\mathbf{k}} \ \tilde{d}_{-\mathbf{k}}^{\dagger})^{\top}$ である。行列中のパラメータ $\Delta_{\mathbf{k}}$ は $\Delta_{\mathbf{k}} = -i\Delta_{\mathbf{k}}^0 + \Delta_{\mathbf{k}}^{\kappa}$ で定義した。これはまさにスピinlessのBCSハミルトニアン [63] に等しい。超伝導の場合と異なり、平均場近似でBCS模型が登場したわけではなく、近似なしの厳密な計算で、キタエフ模型がBCS模型に書き換えられたのである。このハミルトニアンは、適当なユニタリー変換 $U_{\mathbf{k}}$ により定義される新しいフェルミオン $(f_{\mathbf{k}} \ f_{-\mathbf{k}}^{\dagger})^{\top} = U_{\mathbf{k}}^{\dagger} D_{\mathbf{k}}$ を介して対角化され、

$$\hat{H}_{K, \text{eff}} + \hat{H}_{\kappa, \text{eff}} = \sum_{\mathbf{k}} E_{\mathbf{k}} (f_{\mathbf{k}}^{\dagger} f_{\mathbf{k}} - f_{-\mathbf{k}} f_{-\mathbf{k}}^{\dagger}) \quad (9)$$

を得る。エネルギー分散は $E_{\mathbf{k}} = \sqrt{(\epsilon_{\mathbf{k}}^0)^2 + |\Delta_{\mathbf{k}}|^2}$ である。図4に、この遍歴フェルミオンのバンド構造を示した。図4(a)は等方的な強磁性キタエフ模型の gapless スピン液体相のバンド図であり (反強磁性でも同じバンドを得る)、波数空間の K と K' 点にディラックコーン型の gapless 点を持つ。図4(b)は静磁場による3スピン相互作用を反強磁性キタエフ模型に印加した際のバンド図で、gapless ディラックコーンが消失し gapped 相が生じている。この状態が既に述べたカイラルエッジ流を持つトポロジカル相に対応している。本解説記事の本丸であるIVとV章では、このフェルミオン化されたハミルトニアン $\hat{H}_{K, \text{eff}}$ や $\hat{H}_{\kappa, \text{eff}}$ を出発点として解析を進める。

ゼーマン相互作用の非摂動的な解析から、強磁性キタエフ模型では小さな静磁場がスピン液体相を壊し強磁性相へ相転移してしまい、一方、反強磁性キタエフ模型はある程度の磁場の大きさまでスピン液体相が持続することが知られている [64–66]。それゆえ、以下では、基本的には強磁性キタエフ模型に焦点を当てた解析を行うが、静磁場依存性を議論する際は、反強磁性キタエフ模型を考える。

IV. キタエフ磁性体における高次高調波発生

準備が長くなったが、1つ目のテーマであるキタエフ模型における高次高調波発生 (high harmonic generation: HHG) の研究について解説する。HHGとは、周波数 Ω のレーザーを物質に照射し、物質と光子の非線形な相互作用

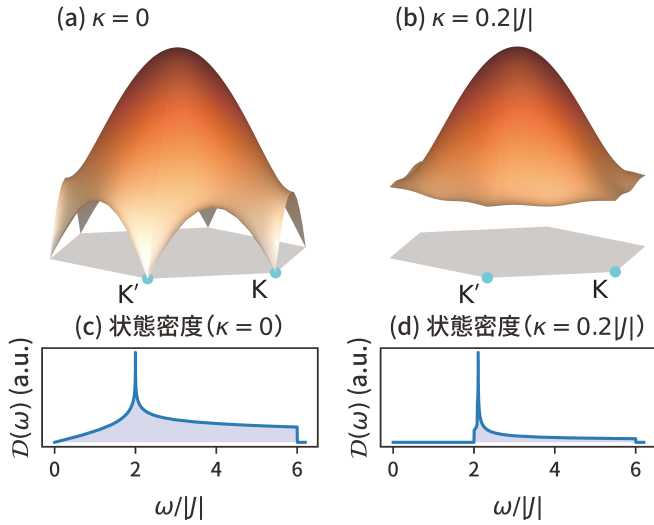


FIG. 4. (a) $J_{x,y,z} = J$ の強磁性キタエフ模型におけるギャップレスな遍歴フェルミオンバンド E_{k_0} . (c) は対応するフェルミオンの状態密度である。 J の符号を変えた反強磁性キタエフ模型も同じバンド構造と状態密度を持つ。(b) 磁場中 (3 スピン項の結合定数 $\kappa = 0.2|J|$) の反強磁性 $J_{x,y,z} = J < 0$ キタエフ模型におけるギャップのある遍歴フェルミオンバンド E_{k_0} . (d) が対応する遍歴フェルミオンの状態密度である。

の結果、レーザー周波数 Ω の整数倍の周波数 $n\Omega$ から成る合成波が生成される現象を指す。この実験は、高強度電磁波を注目する物質に印加し、その応答をやはり電磁波として観測するものであり、最も単純な非線形光学効果の実験の 1 つといえる。

電磁波と物質の相互作用の中で最も強いものは電場と電荷の間の結合であり、それゆえ、原子分子ガスや金属・半導体系において電子の電荷とレーザー電場の相互作用を介して生じる HHG がこれまで広く研究されている [67–72]。強い電場-電荷結合を介して $n = 10$ や 20 を超える高次の高調波が観測されている。特に、第 2 高調波 ($n = 2$) は、光物性分野に限らず広い物性科学領域で利用されている。一方、電子スピンと電磁波の結合は上記の電荷-電場の結合に比べて圧倒的に弱いため、磁気的な HHG は困難と推測できる。しかし、既に述べたように、磁気励起を直接たたくことができる THz 帯の高強度レーザーが近年普及し、レーザー駆動磁気励起による HHG が測定可能となりつつある。まだ実証例は少ないが、数例の磁気的な HHG が観測されている [16, 17, 73]。但し、結合の弱さから、電子系とは違い、2、3 次程度の低次高調波のみがなんとか観測可能であることに注意すべきである。ここでは、レーザー

を照射する対象として等方的な点 ($J_{x,y,z} = J$) 近傍のキタエフ・スピン液体を考え、低次の HHG スペクトルから、キタエフ・スピン液体のどのような特徴が観測されるかについて理論的に考察する。

A. レーザーパルスと磁歪型相互作用

本節では、レーザーによって付け加わる時間依存した相互作用の設定について解説する。

第 II 章で述べたように、THz 帯の高強度レーザーは通常パルス波である。HHG 実験でも通常パルスが使われるため、本理論研究でも THz レーザーパルスモデル化する。一般に、磁気励起が追従できる程度の振動電磁場 (つまり THz レーザー) とスピン系の最も基本的な相互作用は、磁場とスピンの間のゼーマン相互作用である。しかし、既に III 章で述べたように、キタエフ模型では磁場の効果を正確に扱うことは数値計算を使っても難しい問題である。特に、THz レーザー (振動電磁場) の効果の解析が本研究の主役である為、静磁場の場合のように振動磁場に対して摂動論を使うことは避けたい。そこで我々は、キタエフ模型が電気磁気結合をもち、磁場だけでなく電場にも応答する状況を考える。磁性絶縁体における電気磁気結合とは、磁性体の電子スピン自由度と同系に内在する局所的な電気分極自由度との間の結合を指しており、一連のマルチフェロイクス (強誘電磁性体) [55–57] の研究で精査され、現在では多彩なタイプの結合が知られている。ここでは、その中で結合定数が強くなり易い磁歪型の電気磁気結合を考える。磁歪型相互作用 [56, 57] とは、局所的スピン間相互作用 (エネルギー) が主にフォノン自由度を介して電気分極と結合する場合を指す。我々は、 \hat{x} 方向の電気分極 \hat{P} が以下のようにキタエフ模型の x と y ボンド上のイジング相互作用の交替成分 (ボンドの伸び縮み) に比例する状況を考える：

$$\hat{P} = \eta_{\text{ms}} \left(- \sum_{\langle \mathbf{r}, \mathbf{r}' \rangle_x} \sigma_{\mathbf{r}}^x \sigma_{\mathbf{r}'}^x + \sum_{\langle \mathbf{r}, \mathbf{r}' \rangle_y} \sigma_{\mathbf{r}}^y \sigma_{\mathbf{r}'}^y \right) \quad (10)$$

η_{ms} は電気磁気結合定数である。この電気分極のイメージを図 5(a) で与えている。このようなフォノンを介した磁

歪型電気分極はマルチフェロイクスをはじめとする様々な磁性体で確認されている。 \hat{x} 方向に静電場 E_{dc} を印加すれば、ハミルトニアンには

$$\hat{H}_{\text{ms}} = -E_{\text{dc}}\hat{P} \quad (11)$$

が加わる。ここで有効的な静電場 $\mathcal{E}_{\text{dc}} = E_{\text{dc}}\eta_{\text{ms}}$ を定義しておく。等方的な ($J_{x,y,z} = J$) キタエフ模型を出発点とするとき、このボンド交替項はフェルミオン化されたキタエフ模型の空間反転対称性を破る効果を持つ。すなわち、この項は系を相図 2(b) の中心点から左右にずらす作用を持つ。電気分極をフェルミオン化すると、キタエフ模型の有効ハミルトニアン $\hat{H}_{K,\text{eff}}$ と同様の 2 次形式の表式を得る：

$$\hat{P} = \sum_{\mathbf{k}}' \hat{P}_{\mathbf{k}} = \sum_{\mathbf{k}}' \mathbf{D}_{\mathbf{k}}^{\dagger} p_{\mathbf{k}} \mathbf{D}_{\mathbf{k}} \quad (12)$$

ここで、 $\hat{P}_{\mathbf{k}} = \mathbf{D}_{\mathbf{k}}^{\dagger} p_{\mathbf{k}} \mathbf{D}_{\mathbf{k}}$ は波数分解した分極であり、 $p_{\mathbf{k}}$ は 2×2 行列

$$p_{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} \epsilon_{\mathbf{k}}^p & \Delta_{\mathbf{k}}^p \\ (\Delta_{\mathbf{k}}^p)^* & -\epsilon_{\mathbf{k}}^p \end{pmatrix} \quad (13)$$

で、その行列要素は $\epsilon_{\mathbf{k}}^p = -2\eta_{\text{ms}}(\cos(\mathbf{k} \cdot \hat{e}_1) - \cos(\mathbf{k} \cdot \hat{e}_2))$ 、 $\Delta_{\mathbf{k}}^p = 2\eta_{\text{ms}}(\sin(\mathbf{k} \cdot \hat{e}_1) - \sin(\mathbf{k} \cdot \hat{e}_2))$ で与えられる。フェルミオン化された静電場によるボンド交替項は $\hat{H}_{\text{ms,eff}} = -E_{\text{dc}} \sum_{\mathbf{k}}' \hat{P}_{\mathbf{k}}$ である。この項は、静電場を印加しなくとも、結晶が空間反転対称を破っていれば発生し得ることも注意したい。実際、キタエフ候補物質 $\alpha\text{-RuCl}_3$ では、ある温度-磁場領域で、ダイマー化が起きている可能性が指摘されている [48]。図 5(c) に静電場中のキタエフ模型のフェルミオンバンドを載せている。ボンド交替による反転対称性の破れを反映して、波数 k_x 方向についてバンド構造が反転非対称になっていることが分かる。図 5(d) は対応する状態密度であり、ボンド交替 (ダイマー化) により状態密度のピークが分裂している。

この静電場項を加えたキタエフ模型の基底状態エネルギーを電場 \mathcal{E}_{dc} の関数として表示したのが図 5(b) である。図から、静電場の関数として基底エネルギーが減少していることが分かる。従って、エネルギー論的視点からも、このような電場依存の項が存在し得ることが支持される。

さて、THz レーザーパルスの時間依存電場について解説する。いま我々は電気磁気結合をもつキタエフ模型を考え

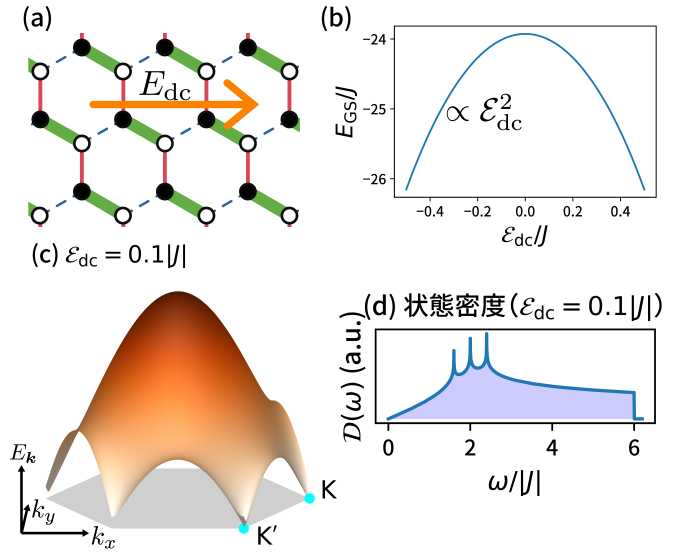


FIG. 5. (a) 磁歪型電気磁気結合のイメージ図。 \hat{x} 方向の静電場 E_{dc} によって生じたキタエフ模型の x と y ボンドのダイマーを表した模式図。(b) キタエフ模型 $\hat{H}_K + H_{\text{ms}}$ の基底状態エネルギー E_{GS} の \mathcal{E}_{dc} 依存性。(c) 静電場 $\mathcal{E}_{\text{dc}} = 0.1|J|$ を印加したキタエフ模型の遍歴フェルミオンバンド。 k_x 方向の非対称性 $E_{k_x, k_y} \neq E_{-k_x, k_y}$ が分かる。(d) バンド (c) に対応する遍歴フェルミオン状態密度。静電場 (ボンド交替) により、状態密度のピークが 3 つに分裂している。

ている。精密に解析をするのであれば、「振動電場と電気分極の相互作用」と「振動磁場とスピンの AC ゼーマン相互作用」を両方考慮に入れるべきだが、上記のように AC ゼーマン相互作用の理論的取り扱いが容易ではない。そこで、ゼーマン項に比べて電気磁気結合の方が大きいと仮定して、THz レーザーの効果として、その主要項となる電気磁気結合のみを以下考える。さらに簡単のために、THz レーザーパルスの振動電場は \hat{x} 方向に平行な場合にのみ注目する。角周波数 Ω の THz レーザーパルスの振動電場はガウシアン型

$$E_{\text{ac}}(t) = E_{\text{ac}} \cos(\Omega t) f(t) \quad (14)$$

とする。ここで、包絡線関数 $f(t)$ は $f(t) = \exp[-2(\ln 2)t^2/t_{\text{FWHM}}^2]$ とし、 t_{FWHM} は $E_{\text{ac}}(t)^2$ の半値全幅 (full width at half-maximum) である。有効的な AC 電場強度を $\mathcal{E}_{\text{ac}} = E_{\text{ac}}\eta_{\text{ms}}$ で定義し、以下では $t_{\text{FWHM}}/T = 5$ の 5 サイクルパルスを考える。 $T = 2\pi/\Omega$ はレーザーの周期である。包絡線関数により、このレーザーパルスは、角周波数 Ω まわりの周波数成分を含んでいることを注意したい。この振動電場により、ハミルト

ニアンには時間依存項 $\hat{H}_{\text{ms}}(t) = -E_{\text{ac}}(t)\hat{P}$ が追加される。よって全系のハミルトニアンは

$$\hat{H}_{\text{tot}}(t) = \hat{H}_K + \hat{H}_\kappa + \hat{H}_{\text{ms}} + \hat{H}_{\text{ms}}(t) \quad (15)$$

である。マルチフェロイクスの研究から、強い電気磁気結合をもつ磁性体における振動電場とスピンの結合エネルギースケールは、対応する振動磁場とスピンのゼーマンエネルギーに匹敵する程度であることが知られている [11–13, 20, 22, 56, 57, 74, 75]。また、II 章で述べたように、高強度 THz レーザーの電場と磁場強度の基準値はそれぞれ 1 MV/cm と 0.3 T 程度である。0.3 T の磁場による電子スピンのゼーマンエネルギーは、温度換算すると、0.1–1 K(ケルビン) 程度であり、一方、キタエフ模型を含む磁性体の交換相互作用の典型的な大きさは 10–100 K 程度である。よって、今考えているキタエフ模型の電気磁気結合エネルギーに相当する有効 AC 電場 \mathcal{E}_{ac} を $10^{-2}|J_{x,y,z}|$ から $10^0|J_{x,y,z}|$ 程度に設定することが強い電気磁気結合をもつキタエフ模型に 1–10 MV/cm 強度の THz レーザーパルスを押加していることに対応する。

最後に、最も大事な HHG 実験の観測を説明する。THz レーザーパルス照射することで系の電気分極が振動し、その振動が放射光を生成する。古典電磁気学に従えば、電気分極の振動によって生じる角周波数 ω の放射光の放射強度 $I(\omega)$ は

$$I(\omega) = |\omega^2 \tilde{P}(\omega)|^2 \quad (16)$$

で与えられる [76]。 $\tilde{P}(\omega)$ は電気分極の期待値 $P(t) = \langle \hat{P} \rangle_t$ のフーリエ変換である。レーザーを押加する前の初期時刻 $t = t_{\text{ini}}$ で電気分極を持つ状況もあるため、正確には、 $I(\omega)$ の右辺の $\tilde{P}(\omega)$ を計算する際、 $P(t)$ の代わりに $\Delta P(t) = P(t) - P(t_{\text{ini}})$ を用いる。 Ω が入射 THz レーザーパルスの角周波数であり、 ω が観測する HHG スペクトルの角周波数である。以降、しばしば角周波数を周波数と略す。 ω の関数としての $I(\omega)$ を HHG スペクトルと呼ぶ。 $I(\Omega)$ 、 $I(2\Omega)$ 、 $I(3\Omega)$ 、... を基本波、2 次高調波、3 次高調波と呼ぶ。

B. 量子マスター方程式と散逸の効果

上記 IV A 節より、HHG スペクトル $I(\omega)$ を知るには、電気分極 \hat{P} の期待値の時間依存性を計算すればよいことが分かった。今考えているレーザー照射下のキタエフ模型が孤立量子系とみなせるならば、時間依存ハミルトニアンに対するシュレディンガー方程式を解いて分極の時間依存性を求めればよい。しかし、通常の実験系では、周りの環境の効果を無視できない。特に今注目しているような外場によりエネルギーが注入されている非平衡系のダイナミクスを考えると、実際の実験系に近い物理量の時間発展を再現するには、環境による散逸の効果を取り込むことは非常に重要である。今考えているキタエフ模型であれば、モデルに取り込まれていないフォノン散乱、長距離の双極子相互作用、多様なスピン軌道相互作用などの影響でレーザー駆動スピンドイナミクスには緩和が生じるはずである。実際、孤立系のシュレディンガー方程式を解いて HHG スペクトルを計算する際は、電気分極を計算した後に「窓関数」と呼ばれる人工的な関数を作用させる処理を施さないと、非現実的なスペクトルを得てしまうことが知られている。これは、孤立系では、レーザーによりエネルギーが時々刻々系に注入されて、系の状態がどんどん高エネルギー状態に遷移してしまうためである。何らかの方法で現実的な散逸の効果を取り込めれば、非現実的な時間発展を避けることができる。

以上の考察から、本研究では、マルコフ過程の現象論的緩和を取り込んだ密度行列の運動方程式である量子マスター方程式 (Lindblad 方程式、または、GKSL 方程式) [77–81] を活用して電気分極の時間発展を計算する。

まず、レーザー中のキタエフ模型を表す時間依存ハミルトニアン $\hat{H}_{\text{tot}}(t)$ から出発する。局在フェルミオン励起を固有値で置き換えた低エネルギーハミルトニアンを 2×2 行列形式で $\hat{H}_{\text{tot,eff}}(t) = \sum_{\mathbf{k}} D_{\mathbf{k}}^\dagger h_{\mathbf{k}}(t) D_{\mathbf{k}}$ と書いたとき、行列 $h_{\mathbf{k}}(t)$ は以下のように静的部分とレーザーによる時間依存部分の和に分離できる：

$$h_{\mathbf{k}}(t) = M_{\mathbf{k}} - E_{\text{ac}}(t)p_{\mathbf{k}} \quad (17)$$

行列 $M_{\mathbf{k}}$ は

$$M_{\mathbf{k}} = \begin{pmatrix} \epsilon_{\mathbf{k}} & \Delta_{\mathbf{k}} \\ \Delta_{\mathbf{k}}^* & -\epsilon_{\mathbf{k}} \end{pmatrix} \quad (18)$$

であり、各行列要素は $\epsilon_{\mathbf{k}} = \epsilon_{\mathbf{k}}^0 - E_{\text{dc}}\epsilon_{\mathbf{k}}^p$ 、 $\Delta_{\mathbf{k}} = -i\Delta_{\mathbf{k}}^0 + iE_{\text{dc}}\Delta_{\mathbf{k}}^p + \Delta_{\mathbf{k}}^e$ で与えられる。式 (8) に比べて、式 (18) の $M_{\mathbf{k}}$ は、静電場項も加えた一般形で定義していることを注意したい。この時間依存非平衡系には、解析する上で重要な性質が 2 つある。第 1 点目は、レーザーによる振動項 $-E_{\text{ac}}(t)\hat{P}$ も含めて、有効ハミルトニアン全ての項が遍歴フェルミオンのみで構成されていることである。この性質より、局在フェルミオン励起がない基底状態から出発する場合、レーザー駆動をしたとしても、やはり局在フェルミオンは励起されない為、我々は常に遍歴フェルミオン励起のみを含む部分空間を考えれば任意の物理量の時間発展を捉えられる (むしろ、そうなるように、単純かつ現実的な磁歪型電気磁気結合を採用したのである)。第 2 に、THz レーザーが空間一様であることを仮定している為 (THz レーザーの空間的広がり通常その波長以上であり、それは結晶格子間隔に比べて圧倒的に大きい)、レーザー項も含めて有効ハミルトニアンが波数空間で対角的であることが挙げられる。すなわち、波数ベクトル \mathbf{k} で指定される小さな部分空間での波動関数 (または物理量) の時間発展を $k_x > 0$ の全領域について足し合わせることで、全系の時間発展が表現できる訳である。

これらの性質に則り、各波数ベクトルで指定される部分空間ごとの時間発展方程式を考えよう。波数ベクトル \mathbf{k} 空間の密度行列 $\hat{\rho}(\mathbf{k}, t)$ の時間発展を表す運動方程式として、以下の量子マスター方程式を考える：

$$\begin{aligned} \frac{d\hat{\rho}(\mathbf{k}, t)}{dt} = & -i \left[\hat{H}_{\mathbf{k}}(t), \hat{\rho}(\mathbf{k}, t) \right] \\ & + \gamma \left(\hat{L}_{\mathbf{k}}\hat{\rho}(\mathbf{k}, t)\hat{L}_{\mathbf{k}}^\dagger - \frac{1}{2} \left\{ \hat{L}_{\mathbf{k}}^\dagger\hat{L}_{\mathbf{k}}, \hat{\rho}(\mathbf{k}, t) \right\} \right) \end{aligned} \quad (19)$$

ここで、 $\hat{H}_{\mathbf{k}}(t) = \mathbf{D}_{\mathbf{k}}^\dagger h(\mathbf{k}, t) \mathbf{D}_{\mathbf{k}}$ である。右辺第 1 項はハミルトニアンによる系のユニタリ時間発展を表し、第 2 項がジャンプ演算子 (または Lindblad 演算子) $\hat{L}_{\mathbf{k}}$ を介した散逸の効果によるノンユニタリな時間発展を表している。この量子マスター方程式は、(i) 密度行列のトレース (すなわち確率) が保存する、(ii) 時間発展がマルコフ的である (次

の瞬間が直前の情報だけで決まり、履歴に依らない)、などの解析する上で有難い性質を備えた運動方程式である。量子マスター方程式の詳しい解説は [79–81] などを見たい。密度行列が分かれば、電気分極の時間発展は

$$P(t) = \left\langle \hat{P} \right\rangle_t = \sum_{\mathbf{k}}' \text{Tr} \left[\hat{\rho}(\mathbf{k}, t) \hat{P}_{\mathbf{k}} \right] \quad (20)$$

と計算出来て、HHG スペクトル $I(\omega) = |\omega^2 \tilde{P}(\omega)|^2$ を求められる。

量子マスター方程式の第 2 項の微視的な導出法は確立しているが、基本的にこの項は現象論レベルで系と環境の弱い相互作用による散逸の効果を表していると考えるのがよい。パラメータ γ と Lindblad 演算子 $\hat{L}_{\mathbf{k}}$ の選択の仕方での散逸項に物理的な意味を持たせることができる。

まずは、 $\hat{L}_{\mathbf{k}}$ について考えよう。例えば、密度行列が熱平衡分布 (カノニカル分布) に緩和するように $\hat{L}_{\mathbf{k}}$ を調整する方法がしばしば採用される。本研究では、レーザー印加前のキタエフ模型の初期状態を基底状態に選択し、レーザー印加後の緩和先も基底状態にとろう。これは、極低温中のキタエフ磁性体に THz レーザーを照射する実験に近い状況と考えられる。この絶対零度への緩和を実現するには、 $\hat{L}_{\mathbf{k}}$ を

$$L_{\mathbf{k}} = |g_{\mathbf{k}}\rangle \langle e_{\mathbf{k}}| \quad (21)$$

とすればよい。ここで、 $|g_{\mathbf{k}}\rangle$ と $|e_{\mathbf{k}}\rangle$ は波数ベクトル \mathbf{k} の部分空間におけるレーザー印加前の基底状態と励起状態に対応する。既に述べているように、レーザー印加前のキタエフ模型の低エネルギーハミルトニアンは BCS 型であった。これを反映して、2 状態 $|g_{\mathbf{k}}\rangle$ と $|e_{\mathbf{k}}\rangle$ は $|g_{\mathbf{k}}\rangle = (u_{\mathbf{k}} - v_{\mathbf{k}}\tilde{d}_{\mathbf{k}}^\dagger\tilde{d}_{-\mathbf{k}}^\dagger)|0_{\mathbf{k}}\rangle$ 、 $|e_{\mathbf{k}}\rangle = (v_{\mathbf{k}}^* + u_{\mathbf{k}}\tilde{d}_{\mathbf{k}}^\dagger\tilde{d}_{-\mathbf{k}}^\dagger)|0_{\mathbf{k}}\rangle$ と表現できる。ここで、 $|0_{\mathbf{k}}\rangle$ はフェルミオンがゼロ個の真空状態であり、右辺の係数は $u_{\mathbf{k}} = \sqrt{(1 + \epsilon_{\mathbf{k}}/E_{\mathbf{k}})/2}$ 、 $v_{\mathbf{k}} = \frac{\Delta_{\mathbf{k}}}{|\Delta_{\mathbf{k}}|} \sqrt{(1 - \epsilon_{\mathbf{k}}/E_{\mathbf{k}})/2}$ である。有効ハミルトニアン $\hat{H}_{\mathbf{k}}(t)$ のありがたい性質として、レーザーによる振動項が印加されても、上の $|g_{\mathbf{k}}\rangle$ と $|e_{\mathbf{k}}\rangle$ で張られる空間から波動関数がはみ出ないことに注意したい。これは、今考えるレーザー項の波数がゼロ ($\mathbf{k} = \mathbf{0}$) でレーザーが系に運動量を付与しないことと関係している。実際、ハミルトニアン各項を $|g_{\mathbf{k}}\rangle$

と $|e_{\mathbf{k}}\rangle$ に作用しても、 $|0_{\mathbf{k}}\rangle$ と $\tilde{d}_{\mathbf{k}}^\dagger \tilde{d}_{-\mathbf{k}}^\dagger |0_{\mathbf{k}}\rangle$ 以外の状態は生成されない。この性質から、密度行列 $\hat{\rho}(\mathbf{k}, t)$ は $|g_{\mathbf{k}}\rangle$ と $|e_{\mathbf{k}}\rangle$ で張られる空間で表現可能であり、 2×2 行列で表されることになる。初期時刻での密度行列は $\hat{\rho}(\mathbf{k}, t_{\text{ini}}) = |g_{\mathbf{k}}\rangle \langle g_{\mathbf{k}}|$ である。

続いて、緩和項の係数 γ について考える。次元解析から、 \hbar/γ が典型的な緩和過程の時間スケールである。これまでの膨大な磁気光学・磁気共鳴・スピントロニクスなどの研究から、電子スピンの典型的な緩和時間はピコ秒 (10^{-12} 秒) からナノ秒 (10^{-9} 秒) 程度であることが知られている [9, 82–89]。一方、交換相互作用 J の典型的な値は温度換算で 10–100 K 程度であり、この交換相互作用による時間発展の典型的なスピード $\hbar/|J|$ はピコ秒 (10^{-12} 秒) 程度となる。これらの実験事実と、量子マスター方程式のユニタリ時間発展が主にキタエフ模型のイジング交換相互作用で引き起こされていることを考えれば、 \hbar/γ を $\hbar/|J_{x,y,z}|$ より 1 桁以上大きな値に設定すると妥当であると予想できる。以上の考察から、以降は $\gamma = 0.1|J|$ に固定する。図 6 に、量子マスター方程式におけるレーザーによる励起とジャンプ演算子による緩和のイメージを示している。

実際の固体結晶における電子スピンの緩和過程は当然より複雑で、フォノンや電子や他のスピンとの散乱を介して、異なる波数の準粒子が相互作用をしながら進んでいくだろう。しかし、波数分解した量子マスター方程式による解析の範囲内で、スピンの緩和時間を現実的な値に設定しておけば、レーザーで誘導されるマクロな物理量の時間発展の本質的な部分は十分記述できると考えられる。

以下の節では、波数分解された量子マスター方程式 (19) を数値的に解いて得られた電気分極および HHG スペクトルの特徴について解説してゆく。

c. HHG の偶奇性と動的対称性

ここからの 3 節で、数値解析で得られたキタエフ模型の HHG スペクトルの特徴について解説してゆく。本節では、静磁場なしの系 ($\kappa = 0$) の HHG の静電場依存性に焦点を当てる。

図 7(a) は $\mathcal{E}_{\text{dc}} = 0$ および $\mathcal{E}_{\text{dc}} = 0.1J$ の強磁性 ($J > 0$)

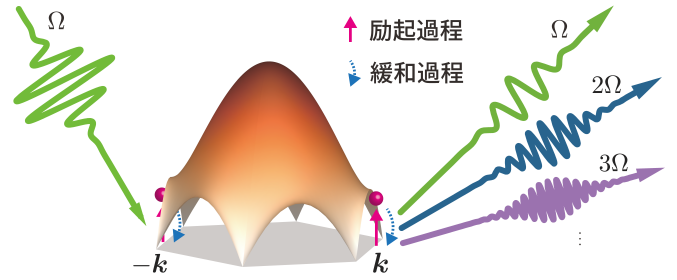


FIG. 6. キタエフ模型における入射・放射 THz 光と量子マスター方程式による光励起状態の緩和のイメージ。

キタエフ模型における典型的な HHG スペクトル $I(\omega)$ の数値計算結果である。静電場がない系では、偶数次高調波 $I(2n\Omega)$ ($n = 0, 1, 2, \dots$) が消失しており、一方、静電場が印加されバンド交替が現れると、偶数次奇数次すべての次数の高調波が生じていることが分かる。図 7(b) と (c) はそれぞれ第 2 高調波 (second harmonic generation: SHG) と第 4 高調波 (fourth harmonic generation: FHG) の $(\mathcal{E}_{\text{ac}}, \mathcal{E}_{\text{dc}})$ 依存性をカラープロットで示している。この図からも、やはり、 $\mathcal{E}_{\text{dc}} \neq 0$ によりダイマー化が強まると徐々にスペクトル強度が高まっていることが読み取れる。以上の結果から、偶数次高調波は静電場 E_{dc} によるダイマー化でコントロールできると言える。

このような特定の n 次高調波の消失の背後には、動的対称性 (dynamical symmetry) [90, 91] が潜んでいることが多い。理想化された無限の過去から未来まで続く周期外場が印加され (つまり $t_{\text{FWHM}} \rightarrow \infty$)、ハミルトニアンが $\hat{H}(t+T) = \hat{H}(t)$ ($T = 2\pi/\Omega$ は外場の周期) の周期性を持つ周期駆動量子系において、適当な時間並進操作 $t \rightarrow t+t_0$ ($t_0 < T$ とする) と適当な対称操作 \hat{U} を組み合わせ、 $U^\dagger \hat{H}(t+t_0) U = \hat{H}(t)$ が成り立つとき、この周期駆動系は動的対称性を持つという。動的対称な系では、しばしばある物理量の異なる時刻での期待値が等式関係で結ばれる。「ある物理量」が電気分極であれば、動的対称性が特定の次数の高調波の有無についての情報を提供する訳である。この動的対称性について 1 つ注意点がある。上の議論では、照射レーザーが連続波 ($t_{\text{FWHM}} \rightarrow \infty$) であるという理想化を行っている。しかし、実験で使われるレーザーパルスは高々数サイクルしか含まないことが多い。例えば、1 サイクルしか含まない極短パルスによる HHG 実

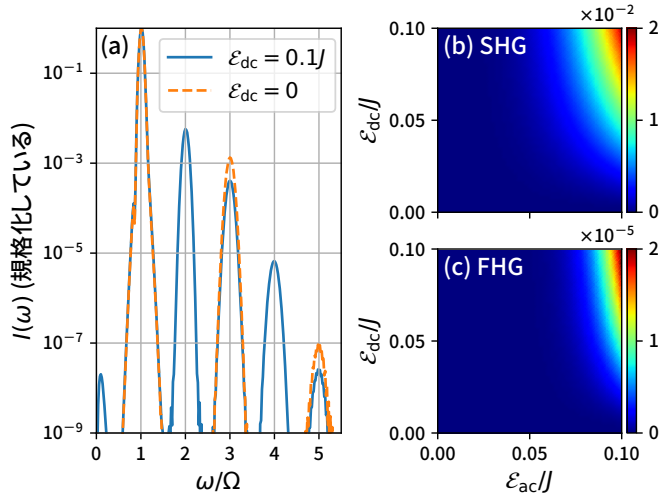


FIG. 7. 周波数 $\Omega = 2.0J$ の THz レーザーで生じる等方的 ($J_{x,y,z} = J$) な強磁性キタエフ模型の HHG スペクトル $I(\omega)$ 。静磁場なし ($\kappa = 0$) の状況で、静電場 E_{dc} (つまりボンド交替あり・なしの系を比較している)。(a) レーザー強度 $\mathcal{E}_{ac} = 0.1J$ の THz レーザーパルスに対する $I(\omega)$: 静電場なし ($\mathcal{E}_{dc} = 0$) とあり ($\mathcal{E}_{dc} = 0.1J$) の結果を同時プロットしている。 $I(\omega)$ は自身の最大値で規格化されている。(b) 2 次高調波 $I(2\Omega)$ (second harmonic generation: SHG) の (E_{ac}, E_{dc}) 依存性。(c) 4 次高調波 $I(4\Omega)$ (fourth harmonic generation: FHG) の (E_{ac}, E_{dc}) 依存性。パネル (b) と (c) のスペクトル強度は $\mathcal{E}_{ac} = \mathcal{E}_{dc} = 0.05J$ のときの $I(\Omega)$ の値で規格化されている。

験では、動的対称性の予言からずれたスペクトルが生じる可能性がある。

さて、本研究では、レーザーが印加された等方的な ($J_{x,y,z} = J$) キタエフ模型は動的対称性を持ち、それが HHG スペクトルの選択則を決定することを明らかにしている。先にこの動的対称性についてまとめておこう。ダイマー化していない ($E_{dc} = 0$) 等方的な場合、ハミルトニアン $\hat{H}_K + \hat{H}_{ms}(t)$ は、ユニタリー変換

$$\hat{U} = \hat{U}_I \times \hat{U}_{\pi/2}^z \quad (22)$$

と半周期の時間並進 $t \rightarrow t + T/2$ の組み合わせ (図 8 を見よ) に対して不変である。ここで、 \hat{U}_I は \hat{y} 軸回りの空間反転操作、 $\hat{U}_{\pi/2}^z$ はスピン空間における S^z 周りの大域的な $\pi/2$ 回転操作である。分極 \hat{P} はこの操作 \hat{U} に対して odd であることから、

$$P(t + T/2) = -P(t) \quad (23)$$

を導くことができる。これより、 $P(t)$ の n 次高調波成分は

$$\tilde{P}(n\Omega) = \int_0^T \frac{dt}{T} P(t) e^{in\Omega t} \quad (24)$$

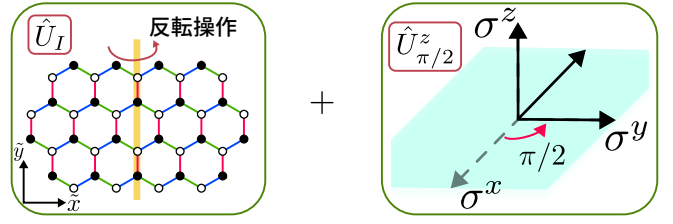


FIG. 8. レーザー中の等方的キタエフ模型の動的対称性で登場する対称操作。 \hat{y} 軸周りの反転操作と S^z 軸周りのスピンの 90 度回転。

$$= \int_{-T/2}^{T/2} \frac{dt}{T} P(t + T/2) e^{in\Omega(t+T/2)} = -e^{in\pi} \tilde{P}(n\Omega)$$

を満たし、ここから $\tilde{P}(2m\Omega) = 0 (m \in \mathbb{Z})$ が結論できる。すなわち、等方的キタエフ模型では、偶数次高調波が消滅することが予言され、それは図 7 の数値計算結果と合致している。

以下では、キタエフ模型の動的対称性と式 (23) を証明する。上記のように、照射レーザーは連続波であることを仮定して話を進める。静電場・静磁場のない等方的 ($J_{x,y,z} = J$) なキタエフ模型のハミルトニアンには対称性 $\hat{U} \hat{H}_K \hat{U}^\dagger = \hat{H}_K$ がある。ユニタリ演算子 $\hat{U} = \hat{U}_I \hat{U}_{\pi/2}^z$ は

$$\hat{U}_I \sigma_r^\alpha \hat{U}_I^\dagger = \sigma_{r'}^\alpha \quad (25)$$

$$\hat{U}_{\pi/2}^z \sigma_r^\alpha (\hat{U}_{\pi/2}^z)^\dagger = \begin{cases} \sigma_r^y & (\alpha = x) \\ -\sigma_r^x & (\alpha = y) \\ \sigma_r^z & (\alpha = z) \end{cases} \quad (26)$$

を満たす。ここで $\mathbf{r} = (\tilde{x}, \tilde{y})^\top$ 、 $\mathbf{r}' = (-\tilde{x}, \tilde{y})^\top$ である。遍歴フェルミオンの言葉を使えば、この対称操作は $\hat{U} d_r \hat{U}^\dagger = d_{r'}$ 、および $\hat{U} \tilde{d}_k \hat{U}^\dagger = \tilde{d}_{k'}$ と等価と言える。波数は $\mathbf{k} = (k_x, k_y)^\top$ 、 $\mathbf{k}' = (-k_x, k_y)^\top$ で定義されている。したがって、フェルミオン化したハミルトニアン $\hat{H}_{K,\text{eff}} = \sum'_{\mathbf{k}} \hat{H}(\mathbf{k})$ の各波数成分 $\hat{H}_{\mathbf{k}} = \mathbf{D}_{\mathbf{k}}^\dagger M_{\mathbf{k}} \mathbf{D}_{\mathbf{k}}$ は変換則 $\hat{U} \hat{H}_{\mathbf{k}} \hat{U}^\dagger = \hat{H}_{\mathbf{k}'}$ を満たす。同じような議論により、電気分極 $\hat{P} = \sum'_{\mathbf{k}} \hat{P}_{\mathbf{k}}$ の各波数成分 $\hat{P}_{\mathbf{k}}$ は $\hat{U} \hat{P}_{\mathbf{k}} \hat{U}^\dagger = -\hat{P}_{\mathbf{k}'}$ に従う。よって、THz レーザー照射されたキタエフ模型の有効ハミルトニアン $\hat{H}_{K,\text{eff}} - E_{ac}(t) \hat{P} = \sum'_{\mathbf{k}} \hat{H}_{\mathbf{k}}(t)$ が

$$\hat{U} \hat{H}_{\mathbf{k}}(t) \hat{U}^\dagger = \hat{H}_{\mathbf{k}'}(t + T/2) \quad (27)$$

を満たすことが分かる。これで、等方的キタエフ模型の動的対称性 $\hat{U} \hat{H}_{\text{tot,eff}}(t) \hat{U}^\dagger = \hat{H}_{\text{tot,eff}}(t + T/2)$ が証明された。

次に、この動的対称性に由来する電気分極の期待値の規則性（つまり HHG スペクトルの選択則）を見る為に、密度行列の運動方程式の対称操作に対する変換性を考えよう。リウヴィルの超演算子 $\mathcal{L}_{\mathbf{k}}(t)$ を用いて量子マスター方程式 (19) を

$$\frac{d}{dt}\hat{\rho}(\mathbf{k}, t) = \mathcal{L}_{\mathbf{k}}(t)\hat{\rho}(\mathbf{k}, t) \quad (28)$$

と表現しよう。本キタエフ磁性体のリンドブラッド演算子が $\hat{U}\hat{L}_{\mathbf{k}}\hat{U}^\dagger = e^{i\theta_{\mathbf{k}}}\hat{L}_{\mathbf{k}'}(\theta_{\mathbf{k}} \in \mathbb{R})$ を満たすことと式 (27) より、 $\frac{d}{dt}\hat{\rho}(\mathbf{k}', t+T/2) = \mathcal{L}_{\mathbf{k}'}\hat{\rho}(\mathbf{k}', t+T/2) = U\mathcal{L}_{\mathbf{k}}U^\dagger\hat{\rho}(\mathbf{k}', t+T/2)$ を得る。これより、

$$\frac{d}{dt}\left[\hat{U}^\dagger\hat{\rho}(\mathbf{k}', t+T/2)\hat{U}\right] = \mathcal{L}_{\mathbf{k}}\left[\hat{U}^\dagger\hat{\rho}(\mathbf{k}', t+T/2)\hat{U}\right] \quad (29)$$

が成立する。よって、式 (28) と (29) を比較すれば、

$$\hat{U}\hat{\rho}(\mathbf{k}, t)\hat{U}^\dagger = \hat{\rho}(\mathbf{k}', t+T/2) \quad (30)$$

を得る。この関係から、電気分極の波数成分の期待値が

$$\begin{aligned} p(\mathbf{k}, t) &= \text{Tr}\left[\hat{\rho}(\mathbf{k}, t)\hat{P}_{\mathbf{k}}\right] = -\text{Tr}\left[\hat{\rho}(\mathbf{k}', t+T/2)\hat{P}_{\mathbf{k}'}\right] \\ &= -p(\mathbf{k}', t+T/2) \end{aligned} \quad (31)$$

を満たす。よって、全系の電気分極について $P(t) = \sum_{\mathbf{k}} P_{\mathbf{k}}(t) = -P(t+T/2)$ が示される。これより、HHG スペクトルの選択則 $\tilde{P}(2m\Omega) = 0$ が結論される。

系に静電場 E_{dc} を印加すると、ハミルトニアンは $\hat{H}(t) = H_K - E_{\text{dc}}\hat{P} - E_{\text{ac}}(t)\hat{P}$ と変更される。第 2 項の発生により、 $\hat{U}\hat{H}(t)\hat{U}^\dagger \neq \hat{H}(t+T/2)$ となり、動的対称性は破れてしまう。したがって、ダイマー化した（異方的な）キタエフ模型では、偶数次の電気分極 $\tilde{P}(2m\Omega)$ は一般に禁止されない。図 7(a) の $E_{\text{dc}} \neq 0$ の青色のスペクトルは静電場の印加によって $\tilde{P}(2m\Omega)$ が有限に生じることを示している。

一方、静磁場を印加して 3 スピン相互作用項 ($\kappa \neq 0$) を加えた等方的キタエフ模型では、対称操作 \hat{U} に時間反転操作 \hat{V} を追加することで、動的対称性が実現し、偶数次高調波の消失が証明される（詳しくは論文 [1] を見よ）。

以上のような動的対称性による偶数次高調波の消失は、固体結晶中の電子系 [92–103] において良く議論されてきた。電子系では、反転対称性と時間並進の組み合わせが系

に動的対称性を与え、偶数次高調波が消失する。また電子系では、静電場で電流を流し、反転対称性を破ることができ。実際、電流印加下の電子系で偶数次高調波を観測する実験が実現している [93, 95–98, 101]。スピン系では動的対称性があまり議論されてこなかったが、我々は数年前に 1 次元量子スピン系 [29] における動的対称性を発見している。図 7 の結果は、2 次元量子スピン系における最初の動的対称性による HHG スペクトルの選択則の例と言える。静電場をキタエフ模型に印加すると、電子系と異なり電流は流れないものの、電気磁気結合を介して反転対称性が破れ、電子系と類似の動的対称性から HHG スペクトルの選択則が導かれる訳である。

D. レーザー周波数と強度依存性

本節では、HHG スペクトルの照射 THz レーザー周波数依存性および強度依存性を議論する。レーザーの周波数と強度は、光物性実験で最も調整しやすい外部パラメータと言える。奇数次高調波に加えて、偶数次高調波—特に観測にかかりやすい 2 次や 4 次高調波—も調べる為に、静電場を印加して偶数次高調波が発生する状況に焦点を当てる。

図 9(a) と (b) は、それぞれ、弱い THz パルス ($\mathcal{E}_{\text{ac}} = 10^{-3}J$) と強いパルス ($\mathcal{E}_{\text{ac}} = 0.1J, 0.15J, 0.2J$) を照射した際の基本波スペクトル $I(\Omega)$ のレーザー周波数 Ω 依存性を描いている。点で表した量子マスター方程式の数値計算結果に加えて、線形応答理論（久保公式）の結果（詳細は [1] を参照）に基づく解析結果もプロットしている。同図の (c) と (d) には、遍歴フェルミオン状態密度 $\mathcal{D}(\Omega/2)$ を描いている。まず、図 9(a) から、レーザー強度が弱いときは量子マスター方程式の結果が線形応答理論と合致することが分かる。これは、量子マスター方程式の数値計算が信頼できる（バグがない）ことも示唆している。続いて、パネル (a) [(b)] と状態密度 (c) [(d)] を比較すると、ちょうど状態密度 $\mathcal{D}(\Omega/2)$ が有限に存在する領域で基本波スペクトル $I(\Omega)$ も有限の値を持つことが分かる。このことから、基本波を生成している主要なプロセスは遍歴フェルミオン 2 粒子生成であることが読み取れる。これは AC 電場と結合する電気分極がフェルミオンの 2 次形式で表現できること

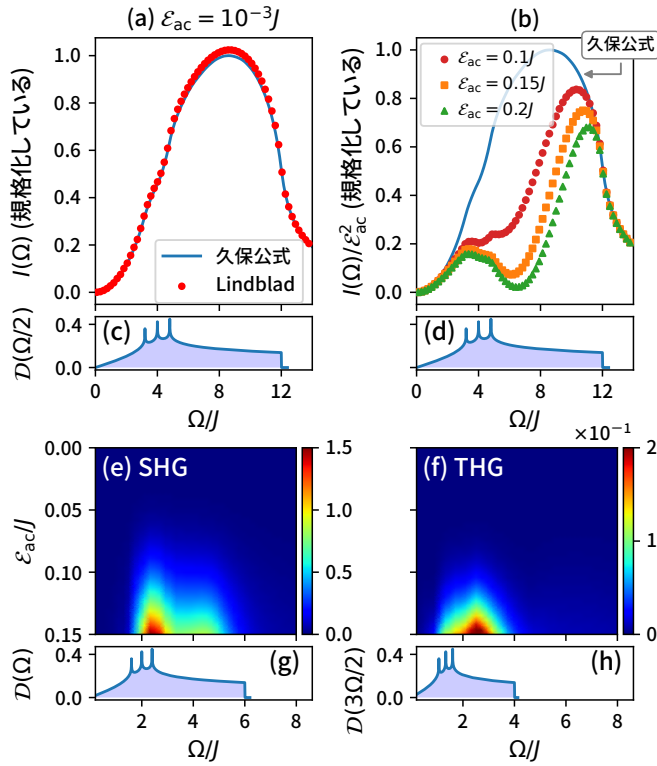


FIG. 9. $J_{x,y,z} = J$ かつ $\mathcal{E}_{ac} = 0.1J$ のキタエフ模型において (a) 低強度 $\mathcal{E}_{ac}/J = 10^{-3}$ と (b) 高強度 $\mathcal{E}_{ac}/J = 0.1, 0.15, 0.2$ レーザーを照射した際の基本波 (第 1 高調波) $I(\Omega)$ のレーザー周波数 Ω 依存性。青い線と赤い点はそれぞれ線形応答理論 (久保公式) と量子マスター方程式の数値解の結果を表している。 $I(\Omega)$ は久保公式の結果の最大値で規格化されている。パネル (c) と (d) はそれぞれパネル (a) と (b) に対応する遍歴フェルミオン状態密度である。(e) と (f) は、それぞれ上記と同じキタエフ模型における 2 次高調波 (SHG) $I(2\Omega)$ と 3 次高調波 (third harmonic generation: THG) $I(3\Omega)$ スペクトルの $(\mathcal{E}_{ac}, \Omega)$ 依存性。強度は $(\mathcal{E}_{ac}, \Omega) = (0.05J, 2J)$ における $I(\Omega)$ の強度で規格化されている。(g) と (h) はそれぞれパネル (e) と (f) に対応する状態密度。

からも納得できる。また、レーザー周波数 Ω の関数として $I(\Omega)$ が「連続」スペクトルを示すことは、キタエフ・スピン液体の大きな特徴といえる。通常の磁気秩序を持つ磁性体ではマグノンが基本的な低エネルギー励起であり、磁気秩序相では THz 波により単一マグノンによるデルタ関数的なピークが観測されることは磁気共鳴実験でよく知られている。図 9(b) の高強度レーザーの結果は、レーザー強度が増加するとともに線形応答理論からのずれが大きくなり、さらにレーザーが十分高強度になると、 $\Omega_0 \sim 4J$ まわりに $I(\Omega)$ の新しいブロードピークが生じることが分かる。高強度レーザーにおいて、系の光学応答が線形応答からずれることは予想通りと言える。一方、ブロードピーク

は数値解析をしてはじめて明らかにされた結果であり、そのピークの位置がちょうど状態密度 $D(\Omega/2)$ のピーク位置と一致している。このことから、高強度レーザーを用いて $I(\Omega)$ の Ω 依存性を観測すれば、キタエフ・スピン液体のフェルミオン励起の状態密度のピーク構造が推測できると言える。高周波数側により大きなピーク構造が現れているが、これは、スペクトル公式 $I(\Omega) = |\Omega^2 \tilde{P}(\Omega)|^2$ の右辺の Ω^4 因子により、 $I(\Omega)$ が高周波数側で大きくなり易い傾向がある為と考えられる。

図 9(e) と (f) は、それぞれ、2 次高調波 $I(2\Omega)$ と 3 次高調波 $I(3\Omega)$ のレーザー周波数 Ω および強度 \mathcal{E}_{ac} 依存性である。対応する遍歴フェルミオン状態密度を (g) と (h) に載せている。基本波の場合ほど明瞭ではないが、やはり 2 次 3 次高調波が大きな値を持つ周波数帯とフェルミオン状態密度の存在領域 (さらにはピーク位置) がある程度対応していることが分かる。 $I(2\Omega)$ と $I(3\Omega)$ の大きな位置が若干対応する状態密度のピーク位置より高周波数側にずれているのも、HHG スペクトル $I(\omega)$ の Ω^4 因子が原因であると推察される。

以上の結果から、低次の HHG スペクトルのレーザー周波数および強度依存性を観測することで、キタエフ・スピン液体の特徴である「連続スペクトル」と「フェルミオン状態密度のピーク構造」という微視的な情報を抽出できることが予言された。

E. 静磁場依存性

キタエフ磁性体の HHG 研究の最後の節である本節で、HHG スペクトルの静磁場依存性について簡潔に解説する。既に III 章で述べたように、強磁性模型より反強磁性キタエフ模型のスピン液体相の方が静磁場に対して安定であり [64–66]、キタエフ模型がスピン液体相にある限り、静磁場を摂動的に扱い、その効果を 3 スピン相互作用で近似することが正当化される。したがって、本節では反強磁性キタエフ模型 ($J_{x,y,z} = J < 0$) に注目する。

既に述べているように、3 スピン相互作用は遍歴フェルミオンにギャップをもたらす。有効静磁場 κ を増加させてゆき、ちょうど $\kappa = 0.2|J|$ になると、ゼロ磁場キタエフ模

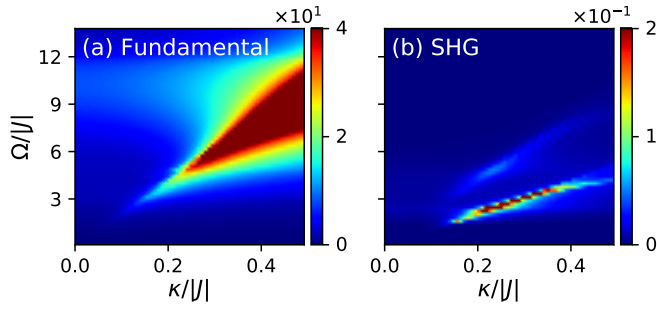


FIG. 10. 強 THz レーザーパルス ($\mathcal{E}_{ac} = 0.1|J|$) を印加した等方的反強磁性キタエフ模型の (a) 基本波スペクトル $I(\Omega)$ と (b) 2 次高調波 $I(2\Omega)$ スペクトルの (κ, Ω) 依存性。静電場 $\mathcal{E}_{dc} = 0.1|J|$ を印加することで SHG を発生させている。パネル (a) と (b) のスペクトル強度は $(\kappa, \Omega) = (0.05|J|, 2|J|)$ における $I(\Omega)$ で規格化している。

型の状態密度のピーク位置と κ によって生じるギャップの大きさが等しくなる (図 4(b)(d) を見よ)。このとき、状態密度のピーク位置での値は非常に大きくなる。 $\kappa > 0.2|J|$ の強磁場領域では、磁場増加と共に状態密度のピーク位置はさらに高周波数側に移動する。この状態密度の κ 依存性から、HHG スペクトル特に基本波 $I(\Omega)$ のピーク位置が κ と共に高周波数側に移動することが予想される。図 10(a) と (b) は、それぞれ、基本波と 2 次高調波スペクトルの (κ, Ω) 依存性を示している。予想通り、基本波スペクトル $I(\Omega)$ のピーク位置 Ω_0 がほぼ κ に線形で単調増加していることが確認できる。高周波数側のピークほど強度が大きいのは、スペクトル公式 $I(\Omega) = |\Omega^2 \tilde{P}(\Omega)|^2$ の中の因子 Ω^4 のためだと考えられる。図 10(b) では、2 次高調波のピーク位置が基本波のピーク位置の半分の周波数の位置にあることが分かる。これは、2 光子吸収で生じるフェルミオン励起が 2 次高調波発生の主要プロセスであることを示唆している。図 10(b) には、うっすらと基本波のピークと同じ周波数あたりにもピークが見えているが、これは多光子による非線形光学効果の現れと考えられる。

κ の増加と共に $I(\Omega)$ のピーク位置も線形に高周波数側にシフトすることが、最も特徴的な HHG スペクトルの磁場依存性といえる。摂動論から、 κ とともとの静磁場 $h_{x,y,z}$ が $\kappa \sim |h_x h_y h_z|$ の関係で結ばれていたことを思い出すと、高磁場領域 ($\kappa > 0.2|J|$) で、 $I(\Omega)$ のピーク周波数 Ω_0 が静磁場の 3 乗のみに比例するということである。通常の磁気秩序相では磁気共鳴周波数 Ω はゼーマン効果に

より磁場の 1 次比例することから、 $\Omega_0 \sim |h_x h_y h_z|$ はキタエフ・スピン液体の極めて特徴的な結果といえる。

V. キタエフ磁性体におけるフロッケ・エンジニアリング

前章では、キタエフ磁性体における HHG の理論研究について解説した。HHG の実験では、照射する高強度電磁波の周波数を系の素励起 (準粒子) を直接たたくように調整することが重要である。典型的には照射電磁波の周波数を共鳴が起こる周波数に調整する。一方、本章で議論するフロッケ・エンジニアリング (Floquet engineering : FE) では、むしろ共鳴条件からやや離れた周波数のレーザーを注目する系に印加し、直接的な励起は起こさずに、系の静的な (レーザー周期に比べて遅い) 物性を制御することを目指す。非共鳴なレーザーの効果を考える為、当然、ある程度高強度のレーザーが必要となる。HHG では高次高調波 (非線形応答) を観測する為に高強度レーザーが必要であったが、対照的な理由により FE でもやはり高強度レーザーが好ましい訳である。

FE [5, 27, 58, 59, 104–110] とは、時間方向の周期外場を物理系に印加して、その周期外場の周期よりも十分長い時間スケールでの系の物性を巧く制御する、または変化させる方法を指している。次節で説明する周期駆動系に対する静的な有効ハミルトニアン (フロッケ・ハミルトニアン) を構成することで、周期外場により静的物性がどう変化するのが明らかとなる。この FE は、周期的な線形微分方程式に対するフロッケ理論 (フロッケの定理) に基づいており、この理論自体は非常に古い数学の成果である。そのため、フロッケ理論を物理系に応用する研究は長い歴史をもつが、2009-2010 年ごろに理論的に提案されたフロッケ・トポロジカル絶縁体 [111–113] が 1 つのきっかけとなり、量子多体系における FE の研究 (特に理論研究) が爆発的に実行され、現在、多くの物性研究者に FE が認識される状況に至っている。

フロッケ・トポロジカル絶縁体とは、2 次元格子上のディラック電子系 (典型的にはグラフェン) に高周波数・高強度の円偏光レーザーを印加することで生じる、系の端にカ

イラルエッジ電流が流れる量子ホール相 (チャーン絶縁体) を指している。円偏光レーザーにより有効的に時間反転対称性が破れて、ディラックコーン型の gapless 分散に励起ギャップが生じ、量子ホール状態が実現している。2次元電子系としてグラフェンを採用すれば、円偏光レーザー下のグラフェンの有効フロッケ・ハミルトニアンはいわゆるハニカム格子上のハルデン模型 [114] と等価になる。

本章で我々は、適当な電気磁気結合をもつキタエフ模型に円偏光 (または楕円偏光) レーザーを印加して時間反転対称性を破ると、フロッケ・トポロジカル絶縁体のスピ版に当たる「フロッケ・トポロジカルスピン液体」と呼んでよい状態が生成出来ることを紹介する [2]。このフロッケ・トポロジカルスピン液体は既に登場しているキタエフ模型に3スピン相互作用項を加えて現れるカイラルエッジ電流が流れるトポロジカル相と等価である。3スピン相互作用項を持つキタエフ模型は、キタエフ磁性体に静磁場を印加すれば実現できるので、わざわざFEをする必要はないのでは? という自然な疑問が湧いてくる。これに対する1つの回答として以下のようなことが言える: レーザーのスイッチオン・オフによりフロッケ・トポロジカル相を超高速 (典型的にはピコ秒オーダー) で生成・制御することは、平衡系のトポロジカル相では不可能なことであり、かつ、FE特有の性能である。以下では、フロッケ・トポロジカルスピン液体が生じるメカニズムについて解説する。

A. フロッケ・ハミルトニアン

本節では、フロッケ・エンジニアリングの肝であるフロッケの定理とフロッケ・ハミルトニアンについて簡潔に解説する。既にFEの優れたレビューや文献 [5, 27, 58, 59, 106–110] は存在する為、ここでは式変形などは省いて本質的な要点だけを抽出する。

FEの出発点は、無限の過去から未来にかけて理想的な周期外場 (レーザーであれば連続波) を印加された周期駆動孤立量子系である (外場を印加されている意味では孤立していない)。この系のハミルトニアン $\hat{H}(t)$ が、時間方向の周期性 $\hat{H}(t+T) = \hat{H}(t)$ をもつとしよう。ここで $T = 2\pi/\Omega$ は周期外場の周期であり、周期外場がレーザーであれば Ω

はレーザー角周波数である。この系のシュレディンガー方程式は $i\frac{\partial}{\partial t}\Psi(t) = \hat{H}(t)\Psi(t)$ である。 $\hbar = 1$ としており、 $\Psi(t)$ が波動関数である。 $\hat{H}(t)$ の周期性から、この方程式は周期的な線形微分方程式とみなして良く、フロッケの定理が適用できる。フロッケの定理は、この方程式の解が

$$\Psi(t) = e^{-i\epsilon t}\Phi_\epsilon(t) \quad (32)$$

と書けることを主張する。ここで、 ϵ は擬エネルギーと呼ばれる $\text{mod } 2\pi$ の実数であり、 $\Phi_\epsilon(t)$ は周期関数である: $\Phi_\epsilon(t) = \Phi_\epsilon(t+T)$ 。すなわち、周期駆動孤立系の波動関数は常に (時間方向の平面波) \times (周期関数) で記述できることがフロッケの定理の結論である。時間方向を空間方向に置き換えれば、この結論は物性分野でよく知られた結晶格子系のブロッホの定理 [115, 116] と同じである。ただし、フロッケの定理の方が歴史的に古く、フロッケの定理を (波数) 空間版がブロッホの定理である、が正しい。

平衡系の固体電子系では、ブロッホの定理に基づき実空間から波数空間に乗り移ることで、エネルギーバンドをはじめとするミクロな情報を得ることができた。同様のことを周期駆動量子系で実行してみよう。すなわち、フロッケの定理に基づき、時間方向のフーリエ変換を介して周波数空間で系を捉えなおしてみる。まず、ハミルトニアン $\hat{H}(t)$ と関数 $\Phi_\epsilon(t)$ は周期関数なので、これらのフーリエ変換を以下のように定義できる:

$$\hat{H}_m = \int_0^T \frac{dt}{T} e^{im\Omega t} \hat{H}(t), \quad \Phi_m = \int_0^T \frac{dt}{T} e^{im\Omega t} \Phi_\epsilon(t) \quad (33)$$

m は任意の整数である。これらと式 (32) をシュレディンガー方程式に代入し整理すれば、フーリエ成分 $\{\hat{H}_m\}$ と $\{\Phi_m\}$ が満たす一般化固有値方程式

$$\sum_{n \in \mathbb{Z}} (\hat{H}_{m+n} - m\Omega \delta_{m,n}) \Phi_n = \epsilon \Phi_m \quad (34)$$

を得る。 m と n は任意の整数である。ハミルトニアン $\{\hat{H}_m\}$ が与えられていれば、この方程式 (34) は、関数列 $\{\Phi_m\}$ と擬エネルギー ϵ を決定する固有値方程式といえる。実数 ϵ は、結晶運動量と同じように、「ブリルアン」ゾーン $-\frac{\pi}{T} = -\frac{\hbar\Omega}{2} \leq \epsilon < \frac{\hbar\Omega}{2} = \frac{\pi}{T}$ の中でのみ有意である。この方程式は時刻 t をあらわに含まない「静的」な方程式である。

ルギースケール)/ $(\hbar\Omega)$ が無次元パラメータである) になっており、高周波数展開 [106–109] と呼ぶことも多い。1次摂動は対角成分の時間平均ハミルトニアン \hat{H}_0 そのものであり、2次摂動からより非自明な項が現れる。2次までの摂動計算での有効ハミルトニアン (フロッケ・ハミルトニアンと呼ぶ) は

$$\hat{H}_{\text{eff}} = \hat{H}_0 - \sum_{m=1}^{\infty} \frac{[\hat{H}_{+m}, \hat{H}_{-m}]}{m\hbar\Omega} + \mathcal{O}((\hbar\Omega)^{-2}) \quad (36)$$

で与えられる。自明な光子エネルギーは既に取り除いている。より高次の項も原理的には計算可能である [106–109, 117, 118]。また、同様のフロッケ・ハミルトニアンは別の展開方法でも求められる [109]。 \hat{H}_{eff} は周期外場を印加する前の系のハミルトニアンからは一般にずれており、逆に外場の種類・強度・周波数や外場印加前のハミルトニアンを巧く選択することで非自明な有効ハミルトニアンを生成することがFEの醍醐味と言える。この有効ハミルトニアンに基づいて、次節でフロッケ・トポロジカルスピ液体の生成方法を解説する。

このフロッケ・ハミルトニアンに関して注意すべき事項がある [58, 59]。周期外場を十分長く印加すれば、 \hat{H}_{eff} の熱平衡状態が実現することを想像したくなるが、現実はそのままで単純ではない。周期外場を孤立量子系に印加し続けると、系の量子状態は一般に(可積分系などの保存量が多数あるトイ模型でない限り) 温度無限大の無秩序状態に漸近すると考えられている [119, 120]。有効ハミルトニアン \hat{H}_{eff} は、レーザーなどの周期外場を注目する系に印加した際の短時間 (レーザー周期よりは十分長時間) の時間発展演算子とみなして良い [121, 122]。その短時間内では、 \hat{H}_{eff} による時間発展で、波動関数が \hat{H}_{eff} の平衡状態に近づく(熟化)と予想される。この意味で、 \hat{H}_{eff} をどんなFEが起こるのかを表す指標と考えて良いだろう。レーザー周波数についても注意すべき点がある。 $\hbar\Omega$ が非常に大きく、一方で、レーザーと系の結合定数が小さい場合、 \hat{H}_{eff} に現れる $1/\Omega$ 項やさらに高次の項はほぼ無視できて、FEされた系は元のレーザー印加前の系とほとんど変わらないことになる。したがって、効果的にFEを行うには、高周波数展開の収束性を犠牲にしても、 $\hbar\Omega$ をある程度低めに設定

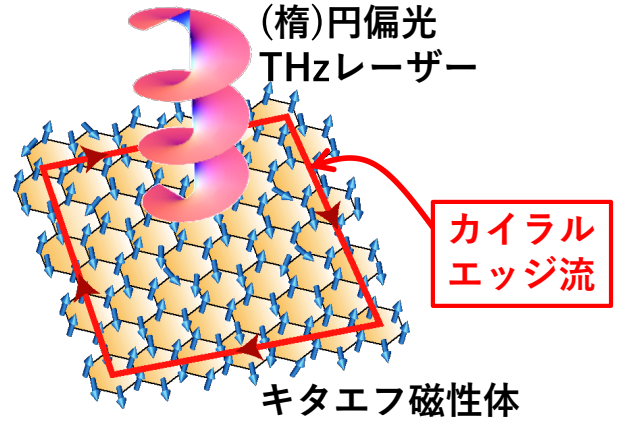


FIG. 12. 磁歪型電気磁気結合をもつキタエフ模型に(楕)円偏光 THz レーザーを照射して生じるフロッケ・トポロジカルスピ液体のイメージ図。(楕)円偏光により、カイラルエッジ流(エネルギー流)が発生する。

する必要がある。

B. フロッケ・トポロジカルスピ液体

前節でFEの基本的事項を解説した。本節では、これを THz レーザー中のキタエフ模型に応用し、V章の本丸であるフロッケ・トポロジカルスピ液体を解説する [2]。

本章でもIV章のHHGの研究と同様に、THz レーザー電磁場とキタエフ模型の相互作用として、磁歪型の電気磁気相互作用を考える。ただしIV章の相互作用とはやや異なり、 x, y, z の各ボンドのイジング相互作用が局所的な電気分極と結合している状況を考えよう。各ボンド $(\mathbf{r}, \mathbf{r}')_{\alpha}$ で定義される電気分極を

$$\mathbf{P}_{(\mathbf{r}, \mathbf{r}')_{\alpha}} = \pi_{\alpha} \sigma_{\mathbf{r}}^{\alpha} \sigma_{\mathbf{r}'}^{\alpha}, \quad (37)$$

で定義する。 π_{α} は α ボンドの電気磁気結合定数ベクトルである。 π_{α} に空間依存性を持たせることは可能だが、ここでは最も簡単な空間一様な結合定数を考える。系全体の電気分極は

$$\mathbf{P}_{\text{tot}} = \sum_{\alpha} \mathbf{P}_{\text{tot}, \alpha} = \sum_{\alpha} \sum_{\langle \mathbf{r}, \mathbf{r}' \rangle_{\alpha}} \mathbf{P}_{(\mathbf{r}, \mathbf{r}')_{\alpha}} \quad (38)$$

と書ける。 x - y 面に置かれたキタエフ磁性体に z 方向から楕円偏光 THz レーザーが入射するとき、レーザー電場は

$$\mathbf{E}(t) = E_{\text{ac}}(\cos(\Omega t + \delta), \sin(\Omega t), 0) \quad (39)$$

と書ける。 E_{ac} が電場強度、 Ω がレーザー角周波数である。 δ が偏光の楕円度を表しており、 $\delta = 0$ と $\pi/2$ がそれぞれ円偏光と直線偏光である。 $\Omega \rightarrow -\Omega$ の変換で右(左)円偏光から左(右)円偏光に乗り移ることができる。この電場と電気分極(38)の相互作用は当然

$$\hat{H}_{me}(t) = -\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{P}_{tot}. \quad (40)$$

で与えられる。したがって、静的なキタエフ模型のハミルトニアンも加えた全系のハミルトニアンは $\hat{H}_{tot}(t) = \hat{H}_K + \hat{H}_{me}(t)$ である。この周期駆動量子系に対して高周波数展開を実行し、フロッケ・ハミルトニアン(36)を求めよう。ハミルトニアン(36)の時間方向のフーリエ成分は $\hat{H}_0 = \hat{H}_K$ 、 $\hat{H}_{\pm 1} = -\frac{E_{ac}}{2}(e^{\mp i\delta}, \pm i, 0) \cdot \mathbf{P}_{tot}$ と計算される。 $\hat{H}_{|n| \geq 2}$ は全てゼロである。フロッケ・ハミルトニアンの初項はキタエフ模型 \hat{H}_K そのものである。これに続く Ω^{-1} に比例する第2項 $\hat{H}_\Omega = -[\hat{H}_{+1}, \hat{H}_{-1}]/\Omega$ で生き残る交換子を考えよう。 $\hat{H}_{\pm 1}$ は各ボンドの電気分極、つまりイジング相互作用の和で構成されている。局所的イジング相互作用項の交換子の中で生き残るのは、異なるボンド上の項 $\sigma_{r_1}^\alpha \sigma_{r_2}^\alpha$ と $\sigma_{r_3}^\beta \sigma_{r_4}^\beta$ ($\alpha \neq \beta$)の交換子で、2つのボンド $\langle \mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2 \rangle_\alpha$ と $\langle \mathbf{r}_3, \mathbf{r}_4 \rangle_\beta$ で1つのサイトを共有している場合である。例えば、 x と y ボンド上のイジング相互作用が1つのサイトを共有し $\mathbf{r}_2 = \mathbf{r}_3$ のとき、これらの交換子は

$$[\sigma_{r_1}^x \sigma_{r_2}^x, \sigma_{r_3}^y \sigma_{r_4}^y] = \sigma_{r_1}^x [\sigma_{r_2}^x, \sigma_{r_2}^y] \sigma_{r_4}^y = 2i \sigma_{r_1}^x \sigma_{r_2}^z \sigma_{r_4}^y$$

と計算できる。すなわち、 \hat{H}_Ω の交換子は3つの異なる成分のスピンの積を産み出す。生き残る項をすべて拾い上げれば

$$\begin{aligned} \hat{H}_\Omega = & \frac{1}{\Omega} E_{ac}^2 \cos \delta \left[G_{12} \left(\sum_{r_5 \in A} \sigma_{r_4}^x \sigma_{r_5}^z \sigma_{r_6}^y + \sum_{r_2 \in B} \sigma_{r_1}^x \sigma_{r_2}^z \sigma_{r_3}^y \right) \right. \\ & + G_{23} \left(\sum_{r_3 \in A} \sigma_{r_2}^y \sigma_{r_3}^x \sigma_{r_4}^z + \sum_{r_6 \in B} \sigma_{r_5}^y \sigma_{r_6}^x \sigma_{r_1}^z \right) \\ & \left. + G_{31} \left(\sum_{r_1 \in A} \sigma_{r_6}^z \sigma_{r_1}^y \sigma_{r_2}^x + \sum_{r_4 \in B} \sigma_{r_3}^z \sigma_{r_4}^y \sigma_{r_5}^x \right) \right] \quad (41) \end{aligned}$$

を得る。ここで、パラメータ $G_{\alpha\beta}$ は $G_{\alpha\beta} = \hat{z} \cdot (\boldsymbol{\pi}_\alpha \times \boldsymbol{\pi}_\beta)$ で定義され、 $\hat{z} = (0, 0, 1)$ はレーザーの伝搬方向の単位ベクトル、記号 \times は外積を意味している。 $\sum_{r \in A(B)}$ はA(B)副格子すべてのサイトについての和を表している。1行目が x と y ボンドから、2行目が y と z ボンドから、3行目が

z と x ボンドの相互作用から生じる項である。サイト番号 $r_{1,2,3,4,5,6}$ は図3(a)のプラケットの1,2,3,4,5,6サイトと対応している。したがって、この3スピン相互作用は静磁場が誘導する3スピン κ 項(5)と基本的に等価といえる。直線偏光 $\delta = \pi/2$ のとき、または結合定数ベクトル $\boldsymbol{\pi}_{x,y,z}$ がすべて平行(反平行)のときは、このレーザーが誘導する $1/\Omega$ 項は消失してしまう。それ以外では、時間依存ハミルトニアンの中で印加レーザーを時間反転すること、つまり円偏光の分極(スピン)を逆にすることは、 $\Omega \rightarrow -\Omega$ で実現できる。 $\hat{H}_{-\Omega} = -\hat{H}_\Omega$ より、この項はスピン3つの積から成る時間反転 odd の項であることを強調したい。

イジング相互作用ではなく、ハイゼンベルグ相互作用を持つ磁性体において、上記キタエフ模型と同様の磁歪型電気磁気結合がある場合にも簡単に触れておく。この場合、高周波数展開から

$$[\mathbf{S}_{r_1} \cdot \mathbf{S}_{r_2}, \mathbf{S}_{r_2} \cdot \mathbf{S}_{r_3}] = -i \mathbf{S}_{r_1} \cdot (\mathbf{S}_{r_2} \times \mathbf{S}_{r_3}) \quad (42)$$

が生じる。右辺のスピン3重積はスカラースピカイラリティと呼ばれる量であり、時間反転と空間反転の破れを検出するオーダーパラメータである。すなわち、ハイゼンベルグ相互作用を持つ系においても磁歪型結合と円偏光の組み合わせにより、時間反転 odd 項が発生する。

以上のことから、磁歪型電気磁気結合(37)をもつキタエフ模型の gapless スピン液体に楕円偏光 THz レーザーを印加すると、(結合定数が消失しない限り)ピコ秒オーダーでカイラルエッジエネルギー流が流れるトポロジカルスピン液体相が生じることが予言される。この THz レーザー駆動フロッケ・トポロジカルスピン液体のイメージを図12に描いている。

簡単な状況である $G_{12} = G_{23} = G_{31} = G$ のとき、フェルミオン化された $1/\Omega$ 項は式(6)において係数 κ を $-\frac{1}{\Omega} E_{ac}^2 G \cos \delta$ で置換したものと等しい。THz レーザーを印加すると、この次近接ホッピングがレーザー周期より遅いダイナミクスを記述する有効ハミルトニアン \hat{H}_{eff} に加わり、カイラルエッジ流が流れ、バルクのフェルミオン励起にギャップを持つスピン液体状態に近い状態が実現すると期待される。キタエフ模型が $J_z \neq J_x = J_y = J$ の空間異方性を持つ場合のレーザー駆動非平衡相図を図13に

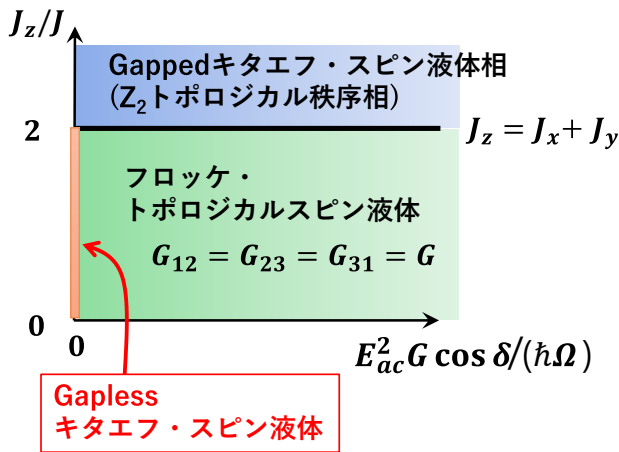


FIG. 13. 周波数 Ω の (楕) 円偏光 THz レーザー照射下の磁歪型電気磁気結合をもつキタエフ模型の非平衡相図。レーザー印加前にキタエフ模型は基底状態にあり、磁歪型結合は $G_{12} = G_{23} = G_{31} = G$ を満たす場合を考える。キタエフ模型に空間異方性 $J_z \neq J_x = J_y = J$ を導入している。縦軸は J_z/J 、横軸がレーザーによって発生するパラメータ $E_{ac}^2 G \cos \delta / (\hbar\Omega)$ である。レーザーを印加して十分短時間のうちにフロッケ・ハミルトニアン の基底状態に近い量子状態が実現することを仮定している。

描いた。gapless スピン液体相に楕円偏光レーザー印加した場合は、上記のフロッケ・トポロジカルスピン液体状態が実現すると期待される。一方、空間異方性を強めていくと、等方的な場合に K と K' 点にあった2つのディラックコーンが徐々に移動して近づいてゆき、やがて $J_z = 2J$ となると、2つのディラックコーンが1つに融合して量子相転移が生じる。 $J_z > 2J$ となると再びフェルミオン励起にギャップが生じ、この相はレーザー印加前の gapped スピン液体相と断熱的につながっていると考えられる。

実際の実験では、レーザーによる加熱の効果で様々な励起が生じ、期待通りの FE が (部分的に) 進まない可能性が考えられる。そのような効果はフロッケ・ハミルトニアンだけでは捉えきれない。周りの環境の効果を取り込んだ解析 [123–126] やレーザー照射中の多体系の時間発展の直接的な計算などを通じて、より現実的な設定下の FE の理論研究が進展中である。

VI. まとめと展望

本解説記事では、キタエフ模型に高強度 THz レーザーを印加した際に期待される非線形光学現象 2 つ—HHG ス

ペクトルとフロッケ・トポロジカルスピン液体—についての理論研究の内容を解説した。II 章と III 章が THz レーザーとキタエフ模型の基本事項の解説であり、IV 章と V 章が研究内容の解説である。

IV 章では、磁歪型電気磁気結合をもつキタエフ模型に高強度 THz レーザーパルスを印加して発生する基本波および高次高調波の特徴を量子マスター方程式に基づく大規模数値計算で解析した結果について紹介した [1]。レーザー強度と周波数・静電場・静磁場を制御することで、キタエフ磁性体のフェルミオン励起の微視的な情報 (バンド構造、状態密度、対称性など) が得られることを説明した。特に、動的対称性に基づく HHG スペクトルの選択則について詳しい解説を与えた。

V 章では、前章とはやや異なり、方向依存性のある磁歪型結合をもつキタエフ模型における FE を解説した [2]。楕円偏光 THz レーザーを印加することで、キタエフ模型に静磁場を印加したときに生じるチャーン絶縁体と等価なトポロジカルスピン液体状態が実現できることを予言した。静磁場を印加する場合と異なり、このフロッケ・スピン液体相は、レーザーのオン・オフにより超高速で生成・制御できる。

本解説で述べた HHG と FE は、典型的な非線形光学現象であり、高強度 THz レーザーが必須の物理現象と言える。はじめに述べたように近年 THz レーザー技術は非常に進歩しており、徐々に、そして確実に、新しい THz 波駆動の磁気現象が実現し観測されている [10–19]。今後も THz レーザーを用いて、これまで観測が困難であった固体中の THz 帯の励起 (磁気励起、フォノン、分子振動、超伝導体のヒッグスモードなど) による新現象の物理が進展していくことを期待する。

謝辞

本記事前半の非線形光学応答は池田達彦氏 (東大物性研) との共同研究、後半のフロッケ・エンジニアリングは佐々木勇輝氏 (当時青山学院大学院生) および岡隆史氏 (東大物性研) との共同研究に基づいている。これらの方に感謝したい。また、本記事作成及び関連する研究は、新学術研究領域

- [1] M. Kanega, T. N. Ikeda, and M. Sato, *Phys. Rev. Res.* **3**, L032024 (2021).
- [2] M. Sato, Y. Sasaki, and T. Oka, [arXiv:1404.2010](https://arxiv.org/abs/1404.2010).
- [3] 岩井 伸一郎, 「多電子系の超高速光誘起相転移—光で見る・操る・強相関電子系の世界—」(共立出版, 2016年).
- [4] 腰原 伸也, 「光誘起構造相転移: 光が拓く新たな物質科学」(共立出版, 2016年).
- [5] 固体物理特集号, 「高強度テラヘルツ・赤外パルスが拓く非平衡物性」(アグネ技術センター, 2019年11月号).
- [6] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, *Appl. Phys. Lett.* **98**, 091106 (2011).
- [7] B. Liu, H. Bromberger, A. Cartella, T. Gebert, M. Först, and A. Cavalleri, *Opt. Lett.* **42**, 129 (2017).
- [8] 佐藤 勝昭, *光と磁気* (朝倉書店, 2001).
- [9] A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and T. Rasing, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731 (2010).
- [10] M. Sato, T. Higuchi, N. Kanda, K. Konishi, K. Yoshioka, T. Suzuki, K. Misawa, and M. Kuwata-Gonokami, *Nat. Photon.* **7**, 724 (2013).
- [11] A. Pimenov, A. A. Mukhin, V. Y. Ivanov, V. D. Travkin, A. M. Balbashov, and A. Loidl, *Nat. Phys.* **2**, 97 (2006).
- [12] Y. Takahashi, R. Shimano, Y. Kaneko, H. Murakawa, and Y. Tokura, *Nat. Phys.* **8**, 121 (2012).
- [13] T. Kubacka, J. A. Johnson, M. C. Hoffmann, C. Vicario, S. de Jong, P. Beaud, S. Grubel, S. W. Huang, L. Huber, L. Patthey, Y. D. Chuang, J. J. Turner, G. L. Dakovski, W. S. Lee, M. P. Minitti, W. Schlotter, R. G. Moore, C. P. Hauri, S. M. Koohpayeh, V. Scagnoli, G. Ingold, S. L. Johnson, and U. Staub, *Science* **343**, 1333 (2014).
- [14] I. Kézsmárki, D. Szaller, S. Bordács, V. Kocsis, Y. Tokunaga, Y. Taguchi, H. Murakawa, Y. Tokura, H. Engelkamp, T. Rößm, and U. Nagel, *Nat. Commun.* **5**, 3203 (2014).
- [15] Y. Mukai, H. Hirori, T. Yamamoto, H. Kageyama, and K. Tanaka, *New J. Phys.* **18**, 013045 (2016).
- [16] S. Baiertl, J. H. Mentink, M. Hohenleutner, L. Braun, T.-M. Do, C. Lange, A. Sell, M. Fiebig, G. Woltersdorf, T. Kampfrath, and R. Huber, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 197201 (2016).
- [17] 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).
- [18] P. Némec, M. Fiebig, T. Kampfrath, and A. V. Kimel, *Nat. Phys.* **14**, 229 (2018).
- [19] A. A. Sirenko, P. Marsik, C. Bernhard, T. N. Stanislavchuk, V. Kiryukhin, and S.-W. Cheong, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 237401 (2019).
- [20] S. Miyahara and N. Furukawa, [arXiv:0811.4082](https://arxiv.org/abs/0811.4082).
- [21] M. Mochizuki and N. Nagaosa, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 147202 (2010).
- [22] M. Mochizuki, N. Furukawa, and N. Nagaosa, *Phys. Rev. Lett.* **104**, 177206 (2010).
- [23] S. Miyahara and N. Furukawa, *J. Phys. Soc. Japan* **81**, 023712 (2012).
- [24] S. Takayoshi, H. Aoki, and T. Oka, *Phys. Rev. B* **90**, 085150 (2014).
- [25] S. Takayoshi, M. Sato, and T. Oka, *Phys. Rev. B* **90**, 214413 (2014).
- [26] M. Sato, S. Takayoshi, and T. Oka, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 147202 (2016).
- [27] 佐藤 正寛, 高吉慎太郎, 岡 隆史, *日本物理学会誌* **72**, 783 (2017年).
- [28] H. Fujita and M. Sato, *Phys. Rev. B* **96**, 060407 (2017).
- [29] T. N. Ikeda and M. Sato, *Phys. Rev. B* **100**, 214424 (2019).
- [30] H. Ishizuka and M. Sato, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 197702 (2019); *Phys. Rev. B* **100**, 224411 (2019).
- [31] H. Ishizuka and M. Sato, [arXiv:2111.09007](https://arxiv.org/abs/2111.09007).
- [32] M. Sato and Y. Morisaku, *Phys. Rev. B* **102**, 060401 (2020).
- [33] A. Kitaev, *Ann. Phys.* **321**, 2 (2006).
- [34] S. Trebst and C. Hickey, *Phys. Rep.* **950**, 1 (2022).
- [35] M. Hermanns, I. Kimchi, and J. Knolle, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **9**, 17 (2018).
- [36] H. Takagi, T. Takayama, G. Jackeli, G. Khaliullin, and S. E. Nagler, *Nat. Rev. Phys.* **1**, 264 (2019).
- [37] Y. Motome and J. Nasu, *J. Phys. Soc. Japan* **89**, 012002 (2020).
- [38] 求 幸年, 那須譲治, *固体物理* **52**, 199 (2017年); *固体物理* **53**, 305 (2018年); *固体物理* **54**, 217 (2019年); *固体物理* **55**, 297 (2020年).
- [39] G. Jackeli and G. Khaliullin, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 017205 (2009).
- [40] J. Chaloupka, G. Jackeli, and G. Khaliullin, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 027204 (2010).
- [41] L. J. Sandilands, Y. Tian, K. W. Plumb, Y.-J. Kim, and K. S. Burch, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 147201 (2015).
- [42] Y. Kubota, H. Tanaka, T. Ono, Y. Narumi, and K. Kindo, *Phys. Rev. B* **91**, 094422 (2015).
- [43] D. Hirobe, M. Sato, Y. Shiomi, H. Tanaka, and E. Saitoh, *Phys. Rev. B* **95**, 241112 (2017).
- [44] Y. Kasahara, T. Ohnishi, Y. Mizukami, O. Tanaka, S. Ma, K. Sugii, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, *Nature* **559**, 227 (2018).
- [45] Y. Kasahara, K. Sugii, T. Ohnishi, M. Shimosawa, M. Yamashita, N. Kurita, H. Tanaka, J. Nasu, Y. Motome, T. Shibauchi, and Y. Matsuda, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 217205 (2018).
- [46] A. Banerjee, P. Lampen-Kelley, J. Knolle, C. Balz, A. A. Aczel, B. Winn, Y. Liu, D. Pajerowski, J. Yan, C. A. Bridges, A. T. Savici, B. C. Chakoumakos, M. D. Lumsden, D. A. Tennant, R. Moessner, D. G. Mandrus, and S. E. Nagler, *npj Quantum Mater.* **3**, 8 (2018).
- [47] H. Suzuki, H. Liu, J. Bertinshaw, K. Ueda, H. Kim, S. Laha, D. Weber, Z. Yang, L. Wang, H. Takahashi, K. Fürsich, M. Minola, B. V. Lotsch, B. J. Kim, H. Yavaş, M. Daghofer, J. Chaloupka, G. Khaliullin, H. Gretarsson, and B. Keimer, *Nat. Commun.* **12**, 4512 (2021).
- [48] O. Tanaka, Y. Mizukami, R. Harasawa, K. Hashimoto, K. Hwang, N. Kurita, H. Tanaka, S. Fujimoto, Y. Matsuda, E.-G. Moon, and T. Shibauchi, *Nat. Phys.* **18**, 429 (2022).

- [49] X.-G. Wen, *Quantum Field Theory of Many-Body Systems* (Oxford University Press, Oxford, 2007).
- [50] L. Balents, *Nature* **464**, 199 (2010).
- [51] C. Lacroix, P. Mendels, and F. Mila, *Introduction to Frustrated Magnetism* (Springer, Berlin, 2011).
- [52] L. Savary and L. Balents, *Rep. Prog. Phys.* **80**, 016502 (2017).
- [53] J. Knolle and R. Moessner, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **10**, 451 (2019).
- [54] V. Baltz, A. Manchon, M. Tsoi, T. Moriyama, T. Ono, and Y. Tserkovnyak, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 015005 (2018).
- [55] T. Kimura, T. Goto, H. Shintani, K. Ishizaka, T. Arima, and Y. Tokura, *Nature* **426**, 55 (2003).
- [56] Y. Tokura, S. Seki, and N. Nagaosa, *Rep. Prog. Phys.* **77**, 076501 (2014).
- [57] 有馬 孝尚, 「マルチフェロイクス-物質中の電磁気学の新展開-」 (共立出版, 2014 年).
- [58] M. Sato, Floquet theory and ultrafast control of magnetism, in *Chirality, Magnetism and Magnetoelectricity*, edited by E. Kamenetskii (Springer, Cham, 2021) pp. 265–286.
- [59] 佐藤 正寛, *物性研究・電子版* **10**, 101210 (2022 年).
- [60] A. Kitaev, *Ann. Phys.* **303**, 2 (2003).
- [61] H.-D. Chen and Z. Nussinov, *J. Phys. A Math. Theor.* **41**, 075001 (2008).
- [62] E. H. Lieb, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 2158 (1994).
- [63] 野村 健太郎, 「トポロジカル絶縁体・超伝導体」 (丸善, 2016 年).
- [64] H.-C. Jiang, Z.-C. Gu, X.-L. Qi, and S. Trebst, *Phys. Rev. B* **83**, 245104 (2011).
- [65] J. Nasu, Y. Kato, Y. Kamiya, and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **98**, 060416 (2018).
- [66] Z. Zhu, I. Kimchi, D. N. Sheng, and L. Fu, *Phys. Rev. B* **97**, 241110 (2018).
- [67] S. Ghimire, A. D. Dichiaro, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. Dimauro, and D. A. Reis, *Nat. Phys.* **7**, 138 (2011).
- [68] 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).
- [69] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, and R. Huber, *Nat. Photon.* **8**, 119 (2014).
- [70] H. A. Hafez, S. Kovalev, J.-C. Deinert, Z. Mics, B. Green, N. Awari, M. Chen, S. Germanskiy, U. Lehnert, J. Teichert, Z. Wang, K.-J. Tielrooij, Z. Liu, Z. Chen, A. Narita, K. Müllen, M. Bonn, M. Gensch, and D. Turchinovich, *Nature* **561**, 507 (2018).
- [71] B. Cheng, N. Kanda, T. N. Ikeda, T. Matsuda, P. Xia, T. Schumann, S. Stemmer, J. Itatani, N. P. Armitage, and R. Matsunaga, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 117402 (2020).
- [72] S. Kovalev, R. M. A. Dantas, S. Germanskiy, J.-C. Deinert, B. Green, I. Ilyakov, N. Awari, M. Chen, M. Bawatna, J. Ling, F. Xiu, P. H. M. van Loosdrecht, P. Surówka, T. Oka, and Z. Wang, *Nat. Commun.* **11**, 2451 (2020).
- [73] Z.-Y. Zhang, F. Sekiguchi, T. Moriyama, S. C. Furuya, M. Sato, T. Satoh, Y. Mukai, K. Tanaka, T. Yamamoto, H. Kageyama, Y. Kanemitsu, and H. Hirori, 論文投稿中.
- [74] D. Hüvonen, U. Nagel, T. Rööm, Y. J. Choi, C. L. Zhang, S. Park, and S.-W. Cheong, *Phys. Rev. B* **80**, 100402 (2009).
- [75] S. Furukawa, M. Sato, and S. Onoda, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 257205 (2010).
- [76] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics* (Wiley, Weinheim, Germany, 1998).
- [77] G. Lindblad, *Commun. Math. Phys.* **48**, 119 (1976).
- [78] V. Gorini, A. Kossakowski, and E. C. G. Sudarshan, *J. Math. Phys.* **17**, 821 (1976).
- [79] H.-P. Breuer and F. Petruccione, *The Theory of Open Quantum Systems* (Oxford University Press, Oxford, 2007).
- [80] R. Alicki and K. Lendi, *Quantum Dynamical Semigroups and Applications*, Lecture Notes in Physics, Vol. 717 (Springer, Berlin, 2007).
- [81] 沙川 貴大, 上田正仁, 「量子測定と量子制御 (第 2 版)」 (サイエンス社, 2022 年).
- [82] M. Oshikawa and I. Affleck, *Phys. Rev. B* **65**, 134410 (2002).
- [83] S. C. Furuya and M. Sato, *J. Phys. Soc. Japan* **84**, 033704 (2015).
- [84] E. Beaupaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
- [85] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 844 (2000).
- [86] K. Lenz, H. Wende, W. Kuch, K. Baberschke, K. Nagy, and A. Jánossy, *Phys. Rev. B* **73**, 144424 (2006).
- [87] C. Vittoria, S. D. Yoon, and A. Widom, *Phys. Rev. B* **81**, 014412 (2010).
- [88] E. A. Mashkovich, K. A. Grishunin, R. V. Mikhaylovskiy, A. K. Zvezdin, R. V. Pisarev, M. B. Strugatsky, P. C. M. Christianen, T. Rasing, and A. V. Kimel, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 157202 (2019).
- [89] C. Tzschaschel, T. Satoh, and M. Fiebig, *Nat. Commun.* **10**, 3995 (2019).
- [90] O. E. Alon, V. Averbukh, and N. Moiseyev, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 3743 (1998).
- [91] O. Neufeld, D. Podolsky, and O. Cohen, *Nat. Commun.* **10**, 405 (2019).
- [92] J. B. Khurgin, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 1113 (1995).
- [93] S. Wu, L. Mao, A. M. Jones, W. Yao, C. Zhang, and X. Xu, *Nano Lett.* **12**, 2032 (2012).
- [94] J. L. Cheng, N. Vermeulen, and J. E. Sipe, *Opt. Express* **22**, 15868 (2014).
- [95] O. A. Aktsipetrov, V. O. Bessonov, A. A. Fedyanin, and V. O. Val'dner, *JETP Lett.* **89**, 58 (2009).
- [96] B. A. Ruzicka, L. K. Werake, G. Xu, J. B. Khurgin, E. Y. Sherman, J. Z. Wu, and H. Zhao, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 077403 (2012).
- [97] A. Y. Bykov, T. V. Murzina, M. G. Rybin, and E. D. Obraztsova, *Phys. Rev. B* **85**, 121413 (2012).
- [98] Y. Q. An, F. Nelson, J. U. Lee, and A. C. Diebold, *Nano Lett.* **13**, 2104 (2013).
- [99] A. Moor, A. F. Volkov, and K. B. Efetov, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 047001 (2017).
- [100] S. Nakamura, Y. Iida, Y. Murotani, R. Matsunaga, H. Terai, and R. Shimano, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 257001 (2019).
- [101] S. Nakamura, K. Katsumi, H. Terai, and R. Shimano, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 097004 (2020).
- [102] K. Takasan, T. Morimoto, J. Orenstein, and J. E. Moore, *Phys. Rev. B* **104**, L161202 (2021).
- [103] M. Kanega and M. Sato, in preparation.
- [104] J. H. Shirley, *Phys. Rev.* **138**, B979 (1965).
- [105] H. Sambe, *Phys. Rev. A* **7**, 2203 (1973).
- [106] M. Bukov, L. D'Alessio, and A. Polkovnikov, *Adv. Phys.* **64**, 139 (2015).

- [107] A. Eckardt and E. Anisimovas, *New J. Phys.* **17**, 093039 (2015).
- [108] A. Eckardt, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 011004 (2017).
- [109] T. Mikami, S. Kitamura, K. Yasuda, N. Tsuji, T. Oka, and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **93**, 144307 (2016).
- [110] T. Oka and S. Kitamura, *Annu. Rev. Condens. Matter Phys.* **10**, 387 (2019).
- [111] T. Oka and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **79**, 081406 (2009).
- [112] T. Kitagawa, T. Oka, A. Brataas, L. Fu, and E. Demler, *Phys. Rev. B* **84**, 235108 (2011).
- [113] N. H. Lindner, G. Refael, and V. Galitski, *Nat. Phys.* **7**, 490 (2011).
- [114] F. D. M. Haldane, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2015 (1988).
- [115] 斯波 弘行, 「基礎の固体物理学」(培風館, 2007年).
- [116] 犬井 鉄郎, 田辺行人, 小野寺 嘉孝, 「応用群論」増補版(裳華房, 1980年).
- [117] F. Casas, J. A. Oteo, and J. Ros, *J. Phys. A: Math. Gen.* **34**, 3379 (2001).
- [118] E. S. Mananga and T. Charpentier, *J. Chem. Phys.* **135**, 044109 (2011).
- [119] A. Lazarides, A. Das, and R. Moessner, *Phys. Rev. E* **90**, 012110 (2014).
- [120] L. D'Alessio and M. Rigol, *Phys. Rev. X* **4**, 041048 (2014).
- [121] T. Kuwahara, T. Mori, and K. Saito, *Ann. Phys.* **367**, 96 (2016).
- [122] T. Mori, T. Kuwahara, and K. Saito, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 120401 (2016).
- [123] H.-P. Breuer, W. Huber, and F. Petruccione, *Phys. Rev. E* **61**, 4883 (2000).
- [124] T. N. Ikeda and M. Sato, *Sci. Adv.* **6**, eabb4019 (2020).
- [125] T. Ikeda, K. Chinzei, and M. Sato, *SciPost Phys. Core* **4**, 033 (2021).
- [126] N. Tsuji, T. Oka, and H. Aoki, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 047403 (2009).