

# レーザー駆動超高速スピントロニクスとフロケエンジニアリング



佐藤 正寛

茨城大学理学部物理領域及び  
理工学研究科量子線科学専攻  
masahiro.sato.phys@vc.ibaraki.ac.jp



高吉 慎太郎

ジュネーブ大学  
shintaro.takayoshi@unige.ch



岡 隆史

マックスプランク研究所  
oka@pks.mpg.de

「磁性体の磁化の向きを限界まで素早く変えたい。」これは次世代情報素子のコアとなりうるスピントロニクス技術であるのみならず、多数スピンの非平衡統計力学として基礎物理学的にも重要な概念である。近年この問題に対して、光を用いた戦略が盛んに議論されている。レーザーパルスの整形・変調、メタマテリアルやプラズモニクスなど光科学分野の実験の進展は目覚ましい。そのような最先端の光技術を上手に使えば、スピンの集団運動にとっての量子力学的な限界速度であるピコ ( $10^{-12}$ ) 秒という時間スケールで磁化を制御できるのだ。

この「超高速スピントロニクス」の実現には、磁性体と光との結合様式（光・物質結合）や時間変化する外場中における量子系の時間発展（量子ダイナミクス）を理解する必要がある。しかし、多自由度を取り扱う固体物理分野では量子ダイナミクス研究の進歩が遅れていた。その一因として、多自由度の協調現象を扱う基本的な枠組みが整備途上であり、平衡系で慣れ親しんだエネルギーや固有状態などの議論の足がかりを失うことが挙げられる。レーザー中の多体系の解析では「非平衡系の相転移とは何か？ それをどう特徴付けるべきか？」などの疑問の解消が望まれる訳である。

実はこの問題は、磁気共鳴、量子化学、量子光学などのダイナミクスとの関わりが避けて通れない分野においては限定的ながら解決されている。レーザー電磁場を時間について周期的な外場とみなすと、系は離散的な時間並進対称性を持つ。このときエネルギーや固有状態といった概念が復活するのだ。この「フロケ理論」、そして回転枠などへの「ユニタリ変換の方法」を使う

と、時間依存ハミルトニアンが駆動する多体系ダイナミクスを静的な有効ハミルトニアンで理解できるのである。望みの物性が実現するような動的状況を与える外場をフロケ理論の有効モデルからさかのぼって設計することを、物性を操るという意味を含めて「フロケエンジニアリング」と呼ぶ。

多体系のフロケエンジニアリングは、冷却原子系や電子系で発展してきたが、近年磁性体の制御にも適用されはじめている。例えば、標準的な磁性絶縁体に円偏光レーザーを照射し磁化を生成・成長させる方法が提案されている。これはレーザー周波数のエネルギースケールに対応する大きな静磁場が有効モデルに現れることに由来する。

レーザーによるスピン流生成は超高速スピントロニクスの主要テーマの一つであり、特異な光・物質結合を持つマルチフェロイクス（強誘電磁性体）が注目されている。この系ではスピンはレーザーの磁場成分だけでなく電場にも応答する。あるクラスのマルチフェロイクスに円偏光レーザーを照射するとベクトルスピカイラリティ（またはジャロシンスキー・守谷相互作用）が生じることが有効モデル・数値計算から示唆される。これを利用したスピン流の生成、およびその検出方法について、現実的な実験セットアップの理論提案もなされている。

レーザーを用いた物性制御は従来型秩序にとどまらず、系のトポロジカル秩序をも変化させられる。その具体例としてキタエフモデルへの円偏光レーザー印加の研究がある。有効モデルに生じるホッピング項がスピン液体基底状態にギャップをもたらし、系をエッジ状態を持つトポロジカルな状態へと変化させることが予言される。

## —Keywords—

**フロケエンジニアリング：**  
フロケの定理はプロックホの定理の時間版で、周期外場中の量子系の波動関数が時間周期関数と動的な位相項の積で書けることを主張する。これを用いると周期外場系を定常系に写像することが可能で、平衡統計力学や固有値問題で確立している戦略が適用できるようになる。特に望ましい性質を持つ有効ハミルトニアンが得られるような周期外場系を考案することをフロケエンジニアリングと呼ぶ。

**スピントロニクス：**  
エレクトロニクスが電子の電荷やその流れ（電流）を活用するのに対し、電荷だけでなくスピン自由度もうまく活用した高速高効率情報処理法の開発を目指す学問分野。この分野で重要な概念の一つがスピン流、すなわちスピン角運動量（より広く角運動量全般）の流れである。電流を伴わないスピン流はジュール発熱の抑制が期待されるので、その生成・制御方法が活発に研究されている。

**テラヘルツレーザー：**  
テラヘルツ周波数帯のレーザーの波形制御・強度増強技術が発展している。この周波数帯に対応するエネルギーは磁気励起、フォノン、超伝導ギャップなどのエネルギーに相当するため、これらの自由度に関する光物性研究が活発に行われている。

**ジャロシンスキー・守谷相互作用：**  
スピン軌道相互作用に由来する磁性絶縁体の磁気異方的相互作用の一つ。隣接スピン同士の外積で定義され、対称性の低い磁性結晶でしばしば現れる。本記事で解説するように、このような磁気異方的相互作用をレーザーで制御することが可能である。

# 1. はじめに

## 1.1 レーザー光による磁性体制御

光と物質の相互作用は基礎から応用まで様々な物理現象を提供している。レーザーポインタや発光ダイオード(LED)に代表されるように、私たちの身のまわりには光とエレクトロニクスが融合された機器がたくさんある。半導体はバンドギャップ制御が可能で、それが発光スペクトルを決めるため多彩な光デバイスにつながる。逆に光を受けて物質の状態が変化することもある。太陽電池では発光デバイスの逆過程が起こり、バンドギャップ以上のエネルギーを持つ光が吸収され、電流が取り出される。このように電子の個別励起と関連した光誘起現象は広く研究が進んでいる。

一方で私たちは電子が集団で運動する現象もよく知っている。例えば磁石の中ではアボガドロ数個の電子のスピンの揃っている。そのためマクロな磁化の運動は遅く、少しぐらいの光の照射では磁化はほとんど変わらないように思える。ところがレーザーを用いて磁石を制御する研究で最近いくつかの興味深い進展がある。例えばマルチフェロイック強磁性物質(詳細は後述)であるDyFeO<sub>3</sub>やフェリ磁性体のGdFeCoにレーザー光を照射して、0.2ピコ(10<sup>-12</sup>)秒程度で磁化を変化させる実験が実現している。<sup>1-3)</sup> 図1(a)にスピン運動に関連した時間スケールの典型的な値を載せているが、0.2ピコ秒といえば個々のスピンの交換相互作用を通じて量子論的に反転するのに要する時間の数倍

程度である。これはまさに磁化過程の限界速度であり、磁石にとっての超高速現象である。また図1(b)では、レーザーの偏光を変えることで磁区構造が自在に制御されている。すなわち量子論の限界に近い時間領域で、マクロなスピン構造を操る技術が確立しつつある。これは例えば電流などで磁壁を動かす場合とは比較にならないほど早い。

そもそもこの実験ではなぜスピンの動くのだろうか？電磁波の磁場成分がスピンの向きを揃えるのであろうか？実験では光子エネルギーが約 $\hbar\Omega=1.5$  eV(周期は約2.5フェムト(10<sup>-15</sup>)秒)の中赤外レーザーを用いており、パルス幅0.2ピコ秒の間に磁場は80回程度振動している。このように高速で振動する磁場にスピンは追従できず、しかも外場の時間平均はゼロなので、スピンはレーザーの影響を受けないように思える。しかし実は速い振動外場中の系は外場の時間平均以外にも様々な効果を感じる。これらの効果は後で説明するように有効ハミルトニアンという形で表現できる。今の場合、円偏光レーザーは偏光面に垂直な有効磁場を誘起することが知られており、これがスピン反転の要因の一つと考えられている。逆ファラデー効果<sup>4,5)</sup>と呼ばれる機構で生じる有効磁場は今の場合数テスラ(T)に相当する。<sup>1-3)</sup> この有効磁場が0.2ピコ秒の間に存在し、その方向に磁化させるのである。なお、レーザーには上記の電磁場による効果のほかに、物質を加熱する効果<sup>3)</sup>もあり、これが引き起こす多彩な高速現象もあることを注意したい。

本解説では超高速スピントロニクスと呼ばれる分野の中でも「磁性絶縁体にレーザーを照射して磁化・スピンのラリリティ・スピン流などを生成・制御する」ことを目指した研究について概説する。<sup>3,6-9)</sup> 超高速という言葉にはレーザー(パルス)照射によって物性を瞬時に変化させるという意味が込められている。近年の光物性実験で利用されている赤外やテラヘルツ(THz=10<sup>12</sup> Hz)周波数領域のレーザーパルスを磁性絶縁体に照射するとき、電子の直接励起はバンドギャップにより抑制され、スピン自由度がレーザー電磁場をピコからナノ秒という非常に短い時間だけ感じることになる。一方、スピントロニクス<sup>5,10-13)</sup>とは、スピンに関連した物理量のダイナミクスや輸送現象を主要な研究テーマとする分野を指す。超高速スピントロニクスではこれら両分野が融合して、磁性体・強相関係・マルチフェロイック系などが持つ従来にない機能がからみあうことになる。

関連するテーマとして、固体の超高速分光や冷却原子系を含めた非平衡分野で平衡系にはない新しい相を非平衡外場によって実現したり[図1(c)], ランダウパラダイムなどとは異なる非平衡相転移の原理を発見・理解することが挙げられる。この方向性の研究はまだ途上であるが、本稿で解説する諸概念は非平衡物理の系統的な理解に役に立つのではないかと期待している。

## 1.2 固体中のレーザー光の影響

それでは固体へのレーザー照射について考察しよう。固

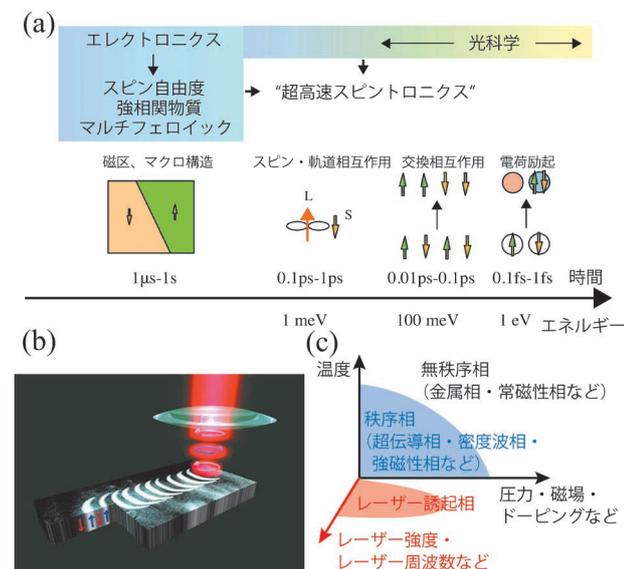


図1 (a) エレクトロニクスと光科学の対比。エレクトロニクスでは新機能の発現を目指して多彩な物質開発が行われている。一方、光科学では精力的な研究が続くフェムト秒領域を中心に、より速い(高エネルギー)、あるいはより遅い(低エネルギー)現象にも興味移っている。(b) 円偏光レーザーを用いた磁化の反転実験(文献2より)。偏光の右・左回りを交互に変えて照射すると強磁性体試料(GdFeCo)は逆ファラデー効果により有効磁場を感じる。この有効磁場が偏光に応じて上あるいは下方向を向くため、磁化が反転する。図では黒色が下向き、白色が上向きにスピンの揃っている磁区である。(c) レーザーを用いて平衡系では実現できない物質の機能が出現する可能性を示した概念図。黒い縦横軸で示された平衡状態相図はこれまでの固体物性研究において精密に研究されている。赤い軸方向のレーザーが誘起する新物性には大きな開拓地が広がっていると期待される。

体中には電荷、スピン、フォノンなど様々な自由度があり、レーザーの影響は多岐にわたる。<sup>14,15)</sup>ここでは、レーザー中の磁性体を考察する際に重要となるいくつかの概念や現象について簡単な解説を与える。

**電磁波の磁場成分：**電磁波の磁場成分はゼーマン効果を通じて直接スピン励起（マグノンなど）を誘起する。特にスピニングがレーザーに追従可能なTHz領域<sup>16)</sup>で磁場の効果は顕著である。試料上にメタマテリアル構造<sup>17-19)</sup>を構築して磁場（および電場）を数十から百倍まで増強することも可能で、THz領域で約1Tの振動磁場によるマグノン励起も実現している。<sup>20)</sup>またTHz領域レーザーの波形整形技術も発展している。<sup>21)</sup>

**レーザーによる自由度選択加熱：**レーザー中の物質では電荷・スピン励起、格子振動などが複雑にからみあっており、時間が経てば各励起は熱分布に近づくと思われている。しかし分布を特徴づける有効温度は自由度ごとに異なってもよく、例えばレーザーと直接結合する自由度の温度はそれ以外より高くなるだろう。このように平衡系と異なる分布が実現し、新たな秩序や状態が現れることもある。<sup>3)</sup>

**コヒーレント振動：**レーザーで格子や磁性などの秩序を系全体でコヒーレントに振動させることが可能である。近年では超伝導体のヒッグスモード励起<sup>22)</sup>が注目されているが、さらに格子をコヒーレントに回転振動させることで格子起源の逆ファラデー効果を誘起する試み<sup>23)</sup>などがある。

**フロケエンジニアリング：**時間周期的な外場中の量子状態はフロケ状態と呼ばれ、それに対応する静的有効ハミルトニアンを考えることができる（詳細は次節で述べる）。レーザーはまさに周期外場の典型と言える。量子系を周期外場で揺さぶることは、外場を調整して有効ハミルトニアンを望みの形に制御するという意味を込めて、フロケエンジニアリングと呼ばれている。この用語自体は新しいが、時間依存外場の効果を静的な有効場としてとらえる方法は古くから知られており、逆ファラデー効果や逆ラマン散乱などはその代表例である。近年では電子系や冷却原子系でフロケトポロジカル絶縁体の研究が盛んであり、<sup>24-26)</sup>多体系に対する理論の整理や検証が進んでいる。電子系では有機導体を絶縁体化したという報告もある。<sup>27)</sup>

次節では、レーザー中の量子系を理論解析する上で有用なフロケエンジニアリングの基本的枠組み<sup>28,29)</sup>とユニタリ変換の方法を説明する。3-4節で、それらの方法を磁性体やスピントロニクス系へ応用し、具体的なレーザー誘起現象を解説する。

## 2. フロケエンジニアリング

### 2.1 フロケ理論

物質に照射されているレーザーを古典的外場ととらえ、連続レーザー（あるいは十分長いパルスレーザー）を考えると、系は時間周期的なハミルトニアン

$$\mathcal{H}(t+T) = \mathcal{H}(t) \quad (1)$$

によって記述される。フロケの定理とは、固体結晶中（周期ポテンシャル中）の電子の問題で登場するブロッホの定理の時間版である。ブロッホの定理における波数  $k = 2\pi n/L$  ( $L$ は系のサイズ、 $n$ は整数)のように、フロケの定理では  $n\Omega = 2\pi n/T$  ( $T$ は振動外場の周期)が重要なパラメータとなる。時間依存シュレディンガー方程式  $i(\partial/\partial t)|\Psi(t)\rangle = \mathcal{H}(t)|\Psi(t)\rangle$  の解は、周期性  $|\Phi_\alpha(t)\rangle = |\Phi_\alpha(t+T)\rangle$  を持つフロケ状態  $|\Phi_\alpha(t)\rangle$  とフロケの擬エネルギー  $\epsilon_\alpha$  を用いて、 $|\Psi_\alpha(t)\rangle = e^{-i\epsilon_\alpha t} |\Phi_\alpha(t)\rangle$  ( $\alpha$ は解を特徴づける添字) という形に書ける。すなわち非周期性は位相因子にしか現れない。これがフロケの定理である。フロケ状態は  $|\Phi_\alpha(t)\rangle = \sum_m e^{-im\Omega} |\Phi_\alpha^m\rangle$  と離散フーリエ展開できて、ハミルトニアンのフーリエ変換も  $\mathcal{H}(t) = \sum_m e^{-im\Omega} H_m$  で定義できる。これらを元のシュレディンガー方程式に代入すると、

$$\sum_m (H_{n-m} - m\Omega\delta_{mn}) |\Phi_\alpha^m\rangle = \epsilon_\alpha |\Phi_\alpha^n\rangle. \quad (2)$$

という固有値問題を得る。注目すべきはこの方程式には時間依存性が見た目上含まれていないということである。式(2)を行列で表現し直すと、物理的意味がより明快になる。レーザー中の系を想定して  $\Omega$  はレーザー周波数（光子エネルギー）とする。このとき、固有値方程式(2)はブロック構造を持つ無限次元行列を用いて書くことができる。

$$\begin{pmatrix} \ddots & & & & & \\ & H_0 - \Omega & H_{+1} & H_{+2} & & \\ & H_{-1} & H_0 & H_{+1} & & \\ & H_{-2} & H_{-1} & H_0 + \Omega & & \\ & & & & \ddots & \end{pmatrix} \Phi_\alpha = \epsilon_\alpha \Phi_\alpha \quad (3)$$

ここで固有ベクトルは  $\Phi_\alpha = (\dots, |\Phi_\alpha^1\rangle, |\Phi_\alpha^0\rangle, |\Phi_\alpha^{-1}\rangle, \dots)$  で定義され、 $|\Phi_\alpha^{-n}\rangle$  は  $n$  個の光子をまとった光子数確定状態と解釈できる。これは式(3)の行列の対角成分が  $H_0 + n\Omega$  となることから理解できる。式(3)は、光子の吸収・放出過程を表す非対角要素  $H_{\pm m} (m \neq 0)$  によって、光子数確定状態同士が相互作用することを意味している。この固有値問題の拡張されたヒルベルト空間は、図2のような層状構造で表現できる。各層は元のヒルベルト空間と同じ構造を持っており、フロケ軸に沿ってエネルギーが  $m\Omega$  だけシフトしている。層内はハミルトニアン  $H_0$  によって記述され、異なる層の間は  $H_{\pm m}$  で相互作用している。一体問題であれ

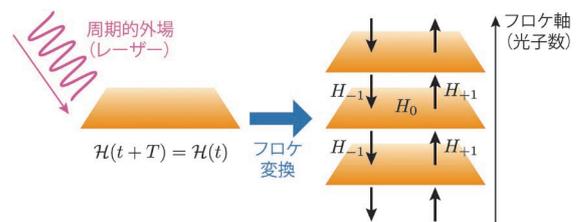


図2 周期的外場中の量子系からあらわには時間依存性を持たない静的有効系への変換を表す図。

ばフロケハミルトニアンは層状物質，例えばグラファイトの面と垂直に電場 $\Omega$ をかける問題と等価である。ただし層間ホッピング $H_{\pm m}$ は光学選択則を反映した特殊なものとなる。一方，多体問題ではフロケ軸を擬スピンなどの内部自由度とみなせて， $m\Omega$ は擬似的なゼーマンエネルギーの形をとる。フロケ理論の重要性は，**時間に依存する問題を静的な固有値問題に帰着できた点**にある。さらに固有状態であるフロケ状態は完全正規直交基底を張る。直交性は時間平均を伴う内積

$$\langle\langle\Phi_\alpha|\Phi_\beta\rangle\rangle\equiv\int_0^T\frac{dt}{T}\langle\Phi_\alpha(t)|\Phi_\beta(t)\rangle=\sum_m\langle\Phi_\alpha^m|\Phi_\beta^m\rangle=\delta_{\alpha\beta}\quad(4)$$

によって定義され，物理量の評価にもこの内積を用いる。またフロケ状態は $\epsilon_\alpha\sim\epsilon_\alpha+n\Omega$ という周期性を持つが，これはシュレディンガー方程式の解を $|\Psi_\alpha(t)\rangle=e^{-i\epsilon_\alpha t}|\Phi_\alpha(t)\rangle=e^{-i(\epsilon_\alpha+n\Omega)t}|\Phi_\alpha(t)\rangle e^{in\Omega t}$ と2通りに分解したことに対応するだけで，同一の状態である。

## 2.2 有効ハミルトニアンと注意点

フロケ理論を用いて，時間に依存する問題を時間依存性のない固有値方程式(3)に変換できたが，同方程式では無限次元行列の固有値問題を解く必要がある。もし元のヒルベルト空間に作用する静的な有効ハミルトニアンを構築できれば問題は非常に簡単になる。代表的な有効ハミルトニアンの構成法は，単位時間の発展を記述する演算子(ストロボスコーピック発展演算子)からエルミート演算子

$$\mathcal{H}_{\text{eff}}^{\text{st}}=\frac{i}{T}\ln\hat{T}e^{-i\int_0^T\mathcal{H}(s)ds}\quad(5)$$

を定義することである。<sup>29)</sup> さらにマグナス展開を併用することで $1/\Omega$ の摂動展開(フロケ・マグナス展開)を得る。この方法では有効ハミルトニアンは時間原点 $t=0$ に依存してしまうが，ヴァン=ヴレック展開では

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_{\text{eff}}^{\text{V}}&=H_0+\sum_{m\neq 0}\frac{[H_{-m},H_m]}{2m\Omega}+\sum_{m\neq 0}\frac{[[H_{-m},H_0],H_m]}{2m^2\Omega^2} \\ &+\sum_{m\neq 0}\sum_{n\neq 0,m}\frac{[[H_{-m},H_{m-n}],H_n]}{3mn\Omega^2}+\mathcal{O}(\Omega^{-3})\end{aligned}\quad(6)$$

のように依存性をなくすことができる。ほかにもブリュアン・ウィグナー展開という方法では，射影すべき部分空間を指定することで，ヴァン=ヴレック展開などの $1/\Omega$ 展開では記述できない多光子共鳴状態( $1/(n\Omega-\Delta E)$ )の形が必要)などが高精度に記述できる。複数の有効ハミルトニアンの構築方法とそれらの関係性については文献30を参照されたい。

フロケエンジニアリングの基本は逆問題であり，磁性，超伝導などの秩序やトポロジなど，望みの性質を持つ有効ハミルトニアンの動的作成法を考えるが，実際の運用には注意が必要である。特に平衡系の延長で摂動展開された有効ハミルトニアンの基底状態を考えたいが，それには多くの問題がある。そもそも上に述べたように摂動展開の方法は一意的でなく，一般論の構築は難しい。さらに根

深い問題として $\mathcal{H}(t)$ の表示はユニタリ変換 $U(t)$ で

$$\tilde{\mathcal{H}}(t)=U^\dagger(t)\mathcal{H}(t)U(t)-iU^\dagger(t)\frac{\partial}{\partial t}U(t)\quad(7)$$

のように変化し，採用する表示・摂動展開によって有効モデルは定性的にも異なったものとなる。ユニタリ変換の例として回転外場に対する回転座標への変換があり，これを用いると時間依存性が消えることもある。ほかにも電子系のゲージ変換や強相関係で重要なシュリーファー・ウルフ変換などがある。もちろんユニタリ変換で物理が変わってはおかしい。では展開を高次まで取りきれば表示によらない普遍的な議論ができるだろうか？ 残念ながら孤立多体系では，答は否である。摂動展開の発散という平衡系と共通の困難もあるが，さらに通常の孤立多体系を励起し続けたら加熱するという問題がある。有効ハミルトニアンの基底状態を調べる背景には，フロケ版の固有値熱力学仮説(eigenstate thermalization hypothesis)がある。<sup>31)</sup> あえて式で書くと多体系のフロケ状態 $|\Phi(t)\rangle$ に対する物理量 $\mathcal{O}$ の期待値が

$$\langle\langle\Phi|\mathcal{O}|\Phi\rangle\rangle="=\text{Tr}[e^{-\beta_{\text{eff}}\mathcal{H}_{\text{eff}}}\mathcal{O}]\quad(8)$$

と有効ハミルトニアンの熱分布期待値で与えられるというものである。しかしこの右辺は正しく定式化できず，あえて書けば $\beta_{\text{eff}}=0$ という無限温度状態に対応する。これには様々な説明があるが，例えば擬エネルギーは周期性 $\epsilon\sim\epsilon+n\Omega$ のために明確な上下関係がないのでエネルギーの低い状態に緩和しないのである。

では多体系のフロケ理論はどのようなときに意味を持つだろうか？ 一例は孤立系であっても短時間しか周期外場をかけない場合である。そのとき適当な状態 $|\psi\rangle$ からの時間発展が有限次(例えば $m$ 次)で切断されたフロケ・マグナス展開による有効ハミルトニアンで近似される

$$\hat{T}e^{-i\int_0^T\mathcal{H}(s)ds}|\psi\rangle=e^{-i\mathcal{H}_{\text{eff}}^{(m)}T}|\psi\rangle\quad(9)$$

ことが示されている。<sup>32)</sup> 他にも十分強い乱れによって多体局在状態(many-body localization)になれば，加熱が抑えられて孤立系でも無限時間のフロケ状態が存在すると主張されている。<sup>33)</sup> また熱浴との結合で非平衡定常状態が実現する場合もあるが，このときも一般には式(8)のような熱分布にはならず，外場による励起と緩和プロセスの詳細釣り合いで決まる状態が実現する。

以上のような問題はあるものの，多くの研究者は，適当な状況の下(例えば上記の短時間だけ周期外場下にある系や十分環境と相互作用している系)では，有効ハミルトニアンの熱平衡状態に近い状態が実現すると期待している。以下，具体的なレーザー照射下の磁性体を解析することで，このフロケの方法の有効性を見ていく。

## 2.3 レーザー中の量子磁性体の有効ハミルトニアン

本稿後半の第3節からレーザー中に置かれた量子磁性体の解析を行うが，ここでその有効ハミルトニアンを導出し

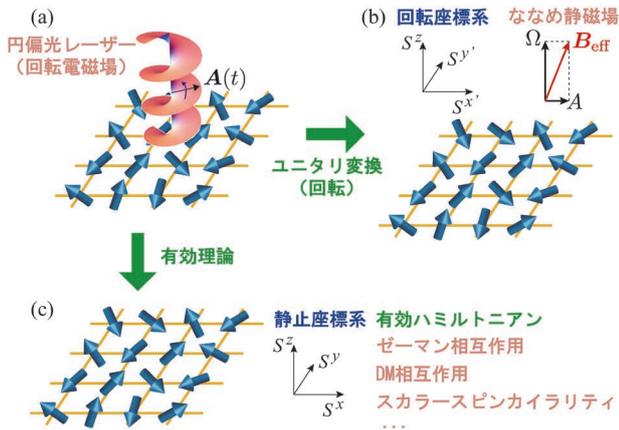


図3 (a) 円偏光レーザー中の量子磁性体。偏光は $xy$ 面内にある。(b) 回転座標系に移った場合の有効理論。 $z$ 方向に静磁場があるとともに元々の円偏光レーザーは静止する。(c) 回転座標系に移らずに、フロケ理論を応用することで有効理論を構成することもできる。

ておく。実験 [図1(b)] にならって円 (より一般に楕円) 偏光レーザーが磁性体に照射されている状況を考える。ただし、電子励起は無視してスピン自由度のみに注目し、次のハミルトニアンで記述される系を考える。

$$\mathcal{H}(t) = \mathcal{H}_0 - g\mu_B \mathbf{B}(t) \cdot \mathbf{S} - \mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{P} \quad (10)$$

ここで  $\mathcal{H}_0$  は元の磁性体が持つスピン間相互作用で、 $\mathbf{S}$  は系の全スピンを表す。スピンの関数で与えられる電気分極  $\mathbf{P}$  は後述するマルチフェロイクスにおいて重要な役割を果たす。 $-\mathbf{E}(t) \cdot \mathbf{P}$  はレーザー電場と分極  $\mathbf{P}$  の間の電気磁気 (ME) 結合を、 $-g\mu_B \mathbf{B}(t) \cdot \mathbf{S}$  はレーザー磁場によるゼーマン相互作用を表している。 $g$  は電子スピンの  $g$  因子、 $\mu_B$  はボーア磁子である。楕円偏光レーザーを考えると、電場  $\mathbf{E}(t)$  と磁場  $\mathbf{B}(t)$  は  $\mathbf{E}(t) = E_0(\cos(\Omega t + \delta), -\sin(\Omega t), 0)$ 、 $\mathbf{B}(t) = E_0 c^{-1}(-\sin(\Omega t), -\cos(\Omega t + \delta), 0)$  の時間依存性を持つ。ここで  $E_0$  は電場強度、 $c$  は光速、 $\delta$  は偏光度である。 $\delta = 0, \pi, \pi/2$  が各々右円偏光、左円偏光、直線偏光に対応する。第3および4節では、以下の2つの戦略 (図3) でレーザー中の磁性体 (10) の有効ハミルトニアンを導き、その物性を解析してゆく。さらに同系のダイナミクスを数値解析することにより、この2つの戦略の正当性も検証する。  
**回転座標系と擬磁場 (3節)**：楕円ではなく円偏光レーザーを考えた場合、回転座標系に移ることで系の時間依存性を消し去ることができる<sup>6,7,34</sup> [図3(a)(b)]。実際、ME結合がない磁性体 (10) において、 $S^z$  軸周りのスピン回転変換  $U(t) = \exp(i\Omega S^z t)$  を式(7)に代入すると

$$\mathcal{H}_{\text{eff}} = \mathcal{H}_0 - \Omega S^z - g\mu_B B S^x \quad (11)$$

を得る。静止したレーザーとの結合項  $-g\mu_B B S^x$  に加えて、 $z$  方向に大きさ  $\Omega$  の擬磁場 (ゼーマン項) が生じていることに注意する。

**高周波数展開と有効相互作用 (4節)**：系 (10) に高周波数展開であるヴァン=ヴレック展開 (6) を第一項まで適用す

ると、レーザー誘起相互作用として<sup>9)</sup>

$$\mathcal{H}_{\text{eff}}^{(1)} = -\frac{i \cos \delta}{2\Omega} \{ \alpha^2 [\tilde{P}^x, \tilde{P}^y] + \alpha \beta ([\tilde{P}^x, S^x] + [\tilde{P}^y, S^y]) + \beta^2 [S^x, S^y] \} \quad (12)$$

を得る [図3(a)(c)]。ここで無次元化された電気分極  $\tilde{P} = \mathbf{P}/g_{\text{me}}$  を導入した。 $g_{\text{me}}$  は、分極とスピンを結びつけるME結合定数である。 $\alpha = g_{\text{me}} E_0$  と  $\beta = g\mu_B E_0 c^{-1}$  は、各々、電場項と磁場項の相互作用の大きさを表す定数である。最後の項はスピン交換関係を使うことで $z$ 方向の擬磁場 (ゼーマン項) になるが、その大きさは先ほどと異なりレーザーの磁場強度  $\beta^2$  によって与えられる。式(12)右辺が直線偏光 ( $\delta = \pi/2$ ) で消滅すること、あるいは  $t \rightarrow -t$  とすることが  $\Omega \rightarrow -\Omega$  という変換に対応することから、この展開で周波数  $\Omega$  の奇数べきの項は時間反転対称性を破ることが確認できる。

本節最後に、模型 (10) の注意点を述べておく。スピン自由度のみを含む模型 (10) に基づいてレーザー光による物性制御を解析する方法は、レーザー周波数が電荷励起のギャップより小さい状況 (物質によるがTHzから中赤外領域) では悪くないアプローチであろう。しかし、高周波領域では双極子遷移などにより直接的な電荷励起が光の吸収・放出過程として効いてくる。例えば、従来の逆ファラデー効果<sup>4,5)</sup> ではそのような仮想的な電荷励起を考えると擬磁場 (ゼーマン項) が生じることを、スピン・軌道相互作用や結晶場分裂を考慮に入れながら半ば現象論的に導いてきた。その意味で我々が以下で考える問題は、スピン自由度に特化した低エネルギー光子による磁気光学効果と言える。固体電子系では光子エネルギーが高くなるにつれ複雑な光学遷移過程が起こり、全ての過程を取り込んだ有効模型の構築は困難になる<sup>3)</sup> のに比べて、本稿で扱う低エネルギー領域では定量的な予言も可能であると期待している。

### 3. 量子磁性絶縁体におけるレーザー誘起磁化曲線

この節ではTHz円偏光レーザーによる磁性絶縁体の磁化の制御方法について解説する。<sup>6,7)</sup> 前節で円偏光レーザー  $\mathbf{B} = B(\cos(\Omega t), \sin(\Omega t), 0)$  中の局在電子スピン系のハミルトニアン

$$\mathcal{H}(t) = \mathcal{H}_0 - g\mu_B \mathbf{B}(t) \cdot \mathbf{S}_{\text{tot}} \quad (13)$$

がスピンの回転座標系に移ることにより有効ハミルトニアン

$$\mathcal{H}_{\text{eff}} = \mathcal{H}_0 - \Omega S_{\text{tot}}^z - A S_{\text{tot}}^x \quad (14)$$

に変換されることを見た ( $A = g\mu_B B$ )。ここで  $\mathbf{S}_{\text{tot}}$  は磁性体の全スピンを表している。本節では電場と分極の結合は考えないものとする。レーザーと同じ周波数で回転する系に移ったことで、レーザーは「止まって」見えるため、有効ハミルトニアン (14) は、静的なゼーマン相互作用  $-A S_{\text{tot}}^x$

を含む。一方、回転軸方向に新たなゼーマン相互作用  $-\Omega S_{\text{tot}}^z$  が登場することに注意したい。その磁場の大きさはレーザー周波数  $\Omega$  に等しく、偏光を逆にすると逆向き ( $\Omega \rightarrow -\Omega$ ) になる。現在の技術では THz レーザーの強度  $A$  を強磁場実験施設で用意できる静磁場強度 (1-100 T (テスラ)) まで強くすることは大変困難である。しかし、レーザー周波数を磁場エネルギーに換算すると、1 THz がおよそ電子スピンにとって 30-40 T に対応するので、式(14)は円偏光 THz レーザー中の磁性体が高磁場中の磁性体と等価であることを示唆している。強磁場中の磁性体は当然磁化すると考えられるので、円偏光レーザーによる磁化制御が期待できる。ただし、大きな磁化生成には円偏光をただ照射するだけでなく動的な磁化過程の詳細を工夫する必要がある。以下ではこれを数値計算を交えて確認していく。なお回転と磁場の相似性は古くはアインシュタイン・ドハース効果やバーネット効果に遡るものであるが、最近ではスピントロニクス分野でも注目されている。<sup>35)</sup> この節で示すレーザーによる磁化生成は光によるバーネット効果と呼んでも良いだろう。

### 3.1 磁化発現のための最適な条件

円偏光 THz レーザー中に磁性体を置くと、本当に磁性体の電子スピンは整列するだろうか？ 実はそう単純ではない。ハミルトニアン  $\mathcal{H}_0$  の対称性とレーザー中の磁性体で生じるダイナミクスを考察することで、レーザーで磁化を生成・制御するために必要な条件が見えてくる。

例えば、スピンハミルトニアン  $\mathcal{H}_0$  が SU(2) スピン回転対称性を持つ場合を考えてみよう。典型的には  $\mathcal{H}_0$  がハイゼンベルク模型  $\mathcal{H}_{\text{Hei}} = \sum_{\langle r, r' \rangle} J_{r, r'} \mathbf{S}_r \cdot \mathbf{S}_{r'}$  で与えられる場合である。ここで  $\mathbf{S}_r = (S_r^x, S_r^y, S_r^z)$  はサイト  $r$  のスピン演算子、 $J_{r, r'}$  がボンド  $(r, r')$  の交換相互作用の強さである。この場合、回転座標系での有効ハミルトニアンは、ハイゼンベルク模型  $\mathcal{H}_{\text{Hei}}$  に磁場  $\mathbf{B}_{\text{eff}} = (A, 0, \Omega)$  を印加したものとなる。一見この有効磁場が磁化を発生しそうであるが、 $S_{\text{tot}}^z$  と  $\mathcal{H}_0$  が可換なので、 $S_{\text{tot}}^z$  に対するハイゼンベルク方程式に  $\mathcal{H}_0$  は何の影響も及ぼさず、 $S_{\text{tot}}^z$  は  $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  の一様磁場下で歳差運動するため、磁化は振動するだけで成長しない。このことから、磁化をレーザーで成長させるには、**SU(2) 対称性を破る磁気異方性が必要であることが分かる**。ただし回転変換  $U = \exp(iS_{\text{tot}}^z t)$  における  $\mathcal{H}_0$  の不変性を要請すると、 $S^z$  軸周りの U(1) 対称性を保つ異方性が望ましい。異方性によって  $S_{\text{tot}}^z$  と  $\mathcal{H}_0$  は非可換となり、 $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  方向の磁化が非保存になるため、磁化の成長が許される。平衡系の磁化過程では、ハミルトニアンが静磁場によるゼーマン相互作用と可換な場合をしばしば考えるが、そのときは静磁場を非常にゆっくり増加させ、理論模型には含まれていない微小な摂動や熱揺らぎによって各時刻で系が模型の熱平衡状態に緩和しつつ発展することを暗に仮定している。しかしレーザー照射のような短い時間スケールの場合には、理論ハミルトニアンに磁気異方性などの磁化を変化させる仕組みが含まれ

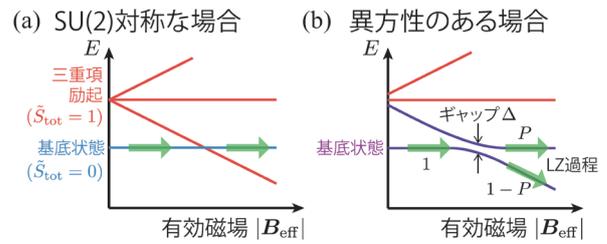


図4 レーザー中の磁性体に対する回転座標系での有効ハミルトニアン  $\mathcal{H}_{\text{eff}}$  の低エネルギー励起構造の有効磁場  $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  依存性。(a)  $\mathcal{H}_0$  が SU(2) 対称性を持つ場合。(b)  $\mathcal{H}_0$  が磁気異方性を含み  $S_{\text{tot}}^z$  が非保存の場合。

ていなければならないわけである。実際の磁性体にはたいして磁気異方性が含まれており、磁気異方性が交換相互作用より大きな磁性体も存在する。従って、レーザー誘起磁化を実験で実現するために磁気異方性を要求することは、それほど厳しい条件ではない。

さて初期状態として磁化のない基底状態 (または熱平衡状態) にある磁性体を考えよう。ここに突然 1 THz のレーザーを印加して、有効ハミルトニアン  $\mathcal{H}_{\text{eff}}$  から期待される 30-40 T の高磁場中に対応した大きな磁化を持つ基底 (熱平衡) 状態が実現するだろうか？ 磁化は徐々に成長すると考えられるので、 $\mathcal{H}_{\text{eff}}$  中の有効磁場  $\mathbf{B}_{\text{eff}} = (A, 0, \Omega)$  を適切な速度で変化させた方が磁化の成長を効率的に促進できるのではないだろうか？ 先に述べたようにレーザー強度  $A$  に比べて周波数  $\Omega$  の方が大きく変化させやすく、さらに一つのレーザーパルス中で周波数を変調するチャーピングと呼ばれる技術が現在応用可能になりつつある。そこで上の疑問に答えるため、 $\Omega$  をゆっくりと増加させた際の有効ハミルトニアン  $\mathcal{H}_{\text{eff}}$  の励起構造の変化を見てみよう。

まず  $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  方向を  $z$  軸とする新しいスピン演算子  $\tilde{\mathbf{S}}$  を定義しておこう。スピンハミルトニアン  $\mathcal{H}_0$  がスピン SU(2) 対称の場合、エネルギー固有状態は全スピン  $\tilde{S}_{\text{tot}}^z$  と  $z$  成分  $S_{\text{tot}}^z$  の量子数で分類できる。図4(a)のように、レーザー印加前の基底状態の磁化がゼロの場合、大抵その上の励起状態は  $\tilde{S}_{\text{tot}}^z = 1$  の三重項 ( $\tilde{S}_{\text{tot}}^z = 1, 0, -1$ ) で構成されている。レーザー周波数  $\Omega$ 、すなわち有効磁場  $\mathbf{B}_{\text{eff}}$  を徐々に大きくすると、三重項のうち  $\tilde{S}_{\text{tot}}^z = 1$  の状態の固有エネルギーがゼーマン効果で低下し、やがて基底状態と準位交差する。しかし  $\tilde{S}_{\text{tot}}^z$  が保存量であるため、交差後も系は  $\tilde{S}_{\text{tot}}^z = 0$  の高エネルギー状態に留まり、磁化は発生しない。上の節でハイゼンベルク方程式に基づいて SU(2) 対称な系にレーザーを印加しても磁化が生成しないことを述べたが、エネルギー準位に基づいた議論からも同じ結論に到達したわけである。一方系が磁気異方性を持つ場合、もはや一般に  $\tilde{S}_{\text{tot}}^z$  や  $S_{\text{tot}}^z$  は良い量子数ではない。その結果、 $\tilde{S}_{\text{tot}}^z$  や  $S_{\text{tot}}^z$  の異なる状態が接近すると、図4(b)のように準位反発が生じる。この図の最低2準位にだけ注目し、レーザー周波数がある速度  $v$  (チャーピング速度と呼ぶ) で増加させる場合を考えると ( $\Omega = vt$ )、これはランダウ・ゼナー (Landau-Zener: LZ) のトンネル過程と呼ばれる量子力学の時間発展過程に等し

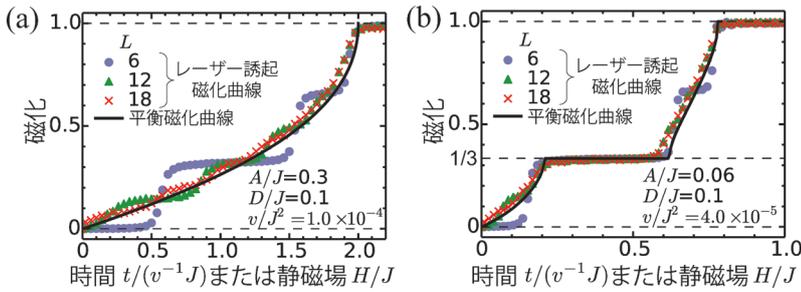


図5 (a)  $S=1/2$ ハイゼンベルク鎖模型と(b)3倍周期スピ  
ン鎖模型における円偏光レーザー誘起磁化曲線。黒実線が  
平衡磁化曲線であり、横軸は静磁場の強さ  $H/J$  に対応する。  
それ以外の印は各サイズ  $L$  の系でのレーザー誘起磁化曲線  
であり、横軸はレーザー印加時間  $\Omega/J = vt/J$ 、縦軸は飽和磁  
化で規格化された磁化である。サイズ  $L$  の増加とともに、  
レーザー磁化曲線は平衡磁化曲線に漸近する。系には微小  
な交替型DM相互作用  $\sum_j (-1)^j D (\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_{j+1})^z$  を導入している。

い。LZ過程では準位反発後のトンネル効果による励起状態への遷移確率  $P$  は

$$P = \exp(-c_0 \Delta^2 / v) \quad (15)$$

で与えられることが知られている。ここで  $\Delta$  は準位反発のエネルギーギャップの大きさ、 $c_0$  は系の微視的情報で決まる定数である。最低エネルギー準位に留まる確率は当然  $1-P$  で与えられる。準位反発後は基底状態が  $\tilde{S}_{\text{tot}}=1$  の重みを多く含むため、トンネル確率  $P$  が小さいほどレーザー誘起磁化は大きくなる。このためには、式(15)から明らかかなように、チャージング速度  $v$  をできるだけ小さくする、すなわち断熱過程に近づける必要がある。さらに計算は省略するが、磁気異方性の結合定数を  $D$  とすると、LZ過程のエネルギーギャップ  $\Delta$  について

$$\Delta \propto AD \quad (16)$$

の関係を得ることができる。<sup>7)</sup> よって十分遅いチャージング速度  $v$  に加えて、大きな磁気異方性  $D$  とレーザー磁場強度  $A$  が磁化生成に有利であるといえる。異方性  $D$  とレーザー磁場  $A$  の両方が存在してはじめて系の  $SU(2)$  対称性が破れて磁化の成長が許されることから、関係式(16)はもっともな結果である。多スピン系では、 $\tilde{S}_{\text{tot}}=1$  状態の上に  $\tilde{S}_{\text{tot}}=2, 3, \dots$  を持つ状態があり、これらが  $\Omega$  の上昇に伴い次々と LZ 過程を発生させ、逐次磁化が成長することになる。

まとめると、レーザーで磁化を制御するための必要条件は以下の3つである。(1) 十分高強度  $A$  の円偏光 THz レーザー、(2) 十分な大きさの磁気異方性、(3) なるべく遅いレーザーチャージング。(1)(2)の条件は必須であり、(3)の条件はできるだけ大きな磁化を出すのに有利な条件である。実際、チャージングをしない円偏光レーザーにより微小な磁化が発現することが数値的に示されている。<sup>6)</sup>

### 3.2 レーザー誘起磁化曲線：数値解析

これまで円偏光 THz レーザーで磁化を誘起するための必要条件が出揃った。これらの条件は普遍性が高く、多くの磁性絶縁体に適用できる。条件を満たすときにどの程度磁化が成長するかを調べるには、具体的な系における微視的解析が有効である。我々は単純かつ現実的な対象として (i)  $S=1/2$  ハイゼンベルク反強磁性鎖模型  $\mathcal{H}_{\text{HAF}} = \sum_{j=1}^L \mathbf{J} \mathbf{S}_j \cdot \mathbf{S}_{j+1}$  と (ii)  $S=1/2$  ハイゼンベルク3倍周期鎖模型

$\mathcal{H}_{\text{FFAF}} = \sum_{j=1}^{L/3} (-J_F \mathbf{S}_{3j-2} \cdot \mathbf{S}_{3j-1} - J_F \mathbf{S}_{3j-1} \cdot \mathbf{S}_{3j} + J_{AF} \mathbf{S}_{3j} \cdot \mathbf{S}_{3j+1})$  を採用し、円偏光レーザー中のハミルトニアン(13)に対する時間依存シュレディンガー方程式を直接数値的に解析した。<sup>7)</sup>  $\mathbf{S}_j$  はサイト  $j$  の  $S=1/2$  演算子であり、 $J>0$ ,  $J_F>0$ ,  $J_{AF}>0$  は交換相互作用の強さである。我々のアイデアは一般に3次元磁性体の表面や2次元および1次元磁性体に適用できるが、大きなサイズの系を数値解析するために1次元系を扱う。模型(i)は、多数の銅酸化物をはじめとする擬1次元反強磁性体を記述する模型である。<sup>36)</sup> 静磁場中では、ゼロ磁場から飽和磁場までスピン相関関数がべき減衰するようなスピン液体状態が実現し、朝永ラッティンジャー液体と呼ばれる。一方、模型(ii)は強磁性-強磁性-反強磁性ポンドという3周期構造を持ち、 $\text{Cu}_3(\text{P}_2\text{O}_7)_2$  の磁性を記述する。<sup>37)</sup> 模型(ii)の静磁場磁化過程では、磁化が飽和磁化の1/3のとき、磁場を増加させても磁化が成長しない磁化プラトー領域が現れる。

図5が2つの模型の円偏光レーザー誘起磁化曲線の数値計算結果である。チャージング速度  $v$  は十分小さく設定し、必要な異方性として隣接スピンの外積  $\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_{j+1}$  で定義されるジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用<sup>38)</sup>を導入している。DM相互作用は反転対称性のない磁性結晶などでしばしば現れる磁気異方性であり、多くの擬1次元量子磁性体においても実験的にその存在が検証されている。<sup>39)</sup> 系のサイズを大きくするにつれて両模型ともにレーザー誘起磁化曲線が平衡系磁化曲線に漸近している。模型(ii)ではレーザー誘起プラトー状態も実現している。すなわち、チャージングにより時間の関数として磁化曲線を再現できることが明らかになった。チャージング速度  $v$  を上昇させたり、磁気異方性  $D$  とレーザー強度  $A$  を減少させれば、レーザー誘起磁化は平衡系のもより減少していく。より詳しい解析結果は原論文<sup>7)</sup>を参照してほしい。

### 4. マルチフェロイクスの超高速スピントロニクス

近年では強誘電性も兼ね備えた磁性絶縁体が合成・発見されており、マルチフェロイクス(強誘電磁性体)と呼ばれている。この系では電子スピンの電気分極の自由度と強く結合しており、これを電気磁気(ME)結合と呼ぶ。電気分極は外部電場に応答するので、マルチフェロイクスにレーザーを印加すると磁場成分と電場成分の両方がスピン自由度と結合し、標準的な磁性絶縁体よりも豊かな機能的

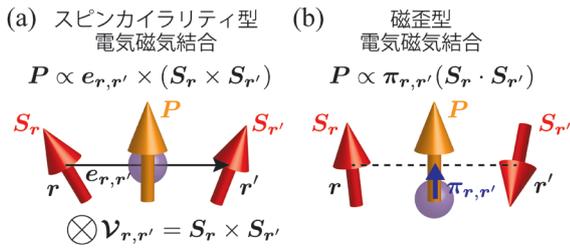


図6 (a) ベクトルカイラリティ型ME結合と(b)磁歪型ME結合.  $S_{r(r')}$ はサイト $r(r')$ の電子スピンを,  $P$ は $r$ と $r'$ を結ぶボンダにおいて定義される電気分極をそれぞれ表している.<sup>40)</sup>

が期待できる.<sup>8,9)</sup> 前節では磁化生成を理解する上で回転座標系の有効模型が重要な役割を果たしたが, 本節で扱う系では回転座標系に移っても時間依存性を消去できない. そのような場合にはフロケ・マグナス展開による静的有効ハミルトニアンが活躍する.

マルチフェロイック物質に対する微視的理論や対称性に基づく考察から多種類のME結合が解明・提案されているが,<sup>40-42)</sup> 代表的なものとして(a)ベクトルカイラリティ型(スピントレ型や逆DM相互作用型などとも呼ばれる)ME結合<sup>43,44)</sup>と(b)磁歪型ME結合を挙げることができる. 図6に示すように(a)では隣接するスピン間のボンダ( $r, r'$ )に存在する電気分極 $P$ がスピンの外積 $S_r \times S_{r'}$ (ベクトルスピカイラリティと呼ぶ)に比例している.  $e_{r,r'}$ はボンダに平行な単位ベクトルである. 一方,(b)では $P$ がスピンの内積 $S_r \cdot S_{r'}$ , すなわち局所的な交換相互作用の大きさに比例している. 結合定数ベクトル $\pi_{r,r'}$ の向きは系の微視的な情報で決まる. これら(a)(b)のME結合の存在は, 多数の強誘電磁性体において実験的に確認されている. 以下ではこれらの機構を持つマルチフェロイクスにレーザーを印加して生じる現象について解説する.

#### 4.1 スピカイラリティ型ME結合とスピン流

レーザー電磁場と結合したマルチフェロイクスの基本模型(10)を楕円偏光レーザー $E(t) = E_0(\cos(\Omega t + \delta), -\sin(\Omega t), 0)$ ,  $B(t) = E_0 c^{-1}(-\sin(\Omega t), -\cos(\Omega t + \delta), 0)$ の場合について考察する.

まず簡単化のため, 図7のように $xy$ 面内の2スピンからなるマルチフェロイクスに $z$ 方向から楕円偏光レーザーを照射する状況を考える. カイラリティ型ME結合[図6(a)]を考え, 系には電気分極

$$P = g_{\text{me}} e_{12} \times (S_1 \times S_2) \quad (17)$$

が存在すると仮定する.  $e_{12} = (\cos \theta, \sin \theta, 0)$ は2スピンを結ぶ線に平行な単位ベクトルである. 公式(12)を用いると, 2スピン系におけるレーザー誘起有効ハミルトニアンとして

$$\mathcal{H}_{\text{eff}}^{(1)} = \frac{\alpha\beta}{2\Omega} \cos \delta (e_{12} \cdot \mathbf{V}_{12}) + \frac{\beta^2}{2\Omega} \cos \delta (S_1^z + S_2^z) \quad (18)$$

が得られる.<sup>9)</sup> 右辺第1項はベクトルスピカイラリティ $\mathbf{V}_{12} = S_1 \times S_2$ に比例しており, DM相互作用にほかならな

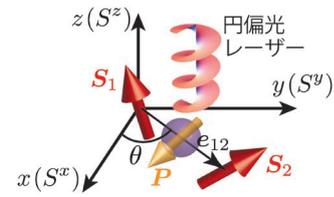


図7 円偏光レーザー中のカイラリティ型ME結合を持つ2スピン・マルチフェロイクス.

い, すなわち, レーザーによってマルチフェロイクスは新たなジャロシンスキー・守谷(DM)相互作用を獲得するわけである. 結合定数が $\alpha\beta$ に比例することから, このDM項は電場と磁場の協力によって生じることがわかる. 一方, 第2項の $z$ 方向のゼーマン相互作用は $\beta^2$ に比例しており, ME結合を必要としない.

この結果の多スピン系への拡張は容易である. 例えば,  $x$ 軸方向に延びる1次元磁性体が各ボンダにカイラリティ型ME結合を持つ場合, 円偏光レーザーのもとでの有効ハミルトニアンは

$$\mathcal{H}_{\text{eff}}^{\text{1D}} = \mathcal{H}_0^{\text{1D}} \pm \sum_j \frac{\alpha\beta}{2\Omega} \mathbf{V}_{j,j+1}^x \pm \sum_j \frac{\beta^2}{2\Omega} S_j^z \quad (19)$$

で与えられる.  $\mathbf{V}_{j,j+1} = \mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_{j+1}$ はボンダ( $j, j+1$ )のカイラリティであり, 符号 $\pm$ は右・左円偏光に対応する.  $\mathcal{H}_0^{\text{1D}}$ は元々の磁性体のハミルトニアンであり, 標準的には短距離交換相互作用で構成される. 一般に交換相互作用は隣接スピンを平行・反平行にしようとし, DM相互作用は隣接スピンが垂直になることを好む. これらの競合により, 系(19)ではスパイラル磁気秩序の発生が期待される. すなわち式(19)は, 多スピンからなるマルチフェロイクスの磁気構造がレーザーによって変化することを予言している.

さて, 式(18)や(19)は普遍的な結果であるが,  $\Omega$ が大きい場合にのみ正当化されるという弱点がある. 実際の実験でME結合 $g_{\text{me}}$ が有意になるのは, 交換相互作用と同程度のエネルギースケールに対応するGHzからTHz領域である. そこで $\mathcal{H}_0^{\text{1D}}$ として $S = 1/2$ のXXZ鎖模型 $\mathcal{H}_{\text{XXZ}} = \sum_j (JS_j \cdot S_{j+1} - J\Delta_x S_j^x S_{j+1}^x - HS_j^z)$ を採用し, 円偏光レーザー下のシュレディンガー方程式を数値的に解析した. 模型にイジング異方性 $-J\Delta_x S_j^x S_{j+1}^x$ と静磁場 $H$ によるゼーマン相互作用を導入している理由は,  $\mathcal{H}_0^{\text{1D}}$ の対称性を低下させて $S_{\text{tot}}^z$ と非可換にするためである. 3節でも述べたが, この非可換性は本質的に必要である. 図8(a)はイジング異方性を持つスピン鎖のレーザー誘起ベクトルスピカイラリティ $x$ 成分 $\mathbf{V}_{\text{tot}}^x = \sum_j \mathbf{V}_{j,j+1}^x$ の時間依存性を表す. 右円偏光( $\delta = 0$ ), 左円偏光( $\delta = \pi$ ), 直線偏光( $\delta = \pi/2$ )について,  $\langle \mathbf{V}_{\text{tot}}^x \rangle$ は負, 正, ほぼゼロの値を示す. これは $1/\Omega$ 展開からの予想(19)と合致する. 一方, 図8(b)は静磁場 $H$ 中のXXX模型におけるレーザー誘起カイラリティの時間平均のレーザー周波数 $\Omega$ 依存性を表している. 注目すべきは $\Omega = H$ のまわりでカイラリティが符号反転し大きな値をとることである. これは $1/\Omega$ 展開からは予想できない結果で

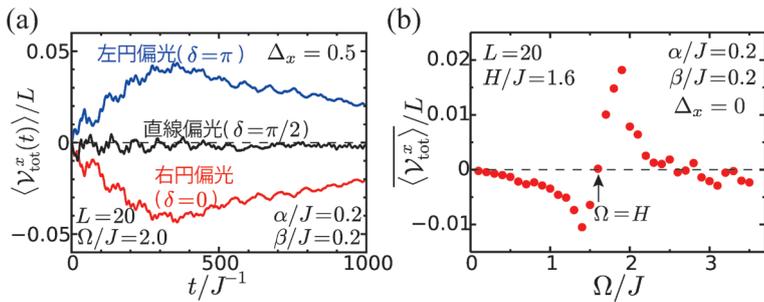


図8 (a) 円偏光レーザー中の  $S=1/2$  XXZ 鎖模型 ( $\Delta_x=0.5$ ) におけるベクトルスピカイリティ  $x$  成分の時間発展. 時刻  $t=0$  でレーザー印加を開始している. (b) 静磁場  $H$  中のハイゼンベルク (XXX) 鎖模型に円偏光レーザーを印加した際に発生するベクトルカイリティ  $x$  成分の時間平均値  $\langle \mathcal{V}_{\text{tot}}^x \rangle = 1/T \int_0^T dt \langle \mathcal{V}_{\text{tot}}^x(t) \rangle$  のレーザー周波数  $\Omega$  依存性.

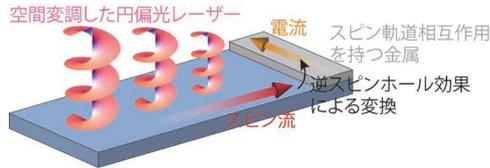


図9 円偏光レーザーが誘起するDM相互作用からスピンを生成する実験セットアップ. レーザー強度の空間変調が必要であるが, プラズモニクスや近接場の技術を用いて実現可能である.

ある. この模型に限らず他のマルチフェロイック模型でも,  $\Omega \sim H$  において同じような共鳴的現象を確認している.<sup>9)</sup> 磁場  $H$  や周波数  $\Omega$  は実験において制御可能な量であることから, 図8(b)の結果は, 実験的に大きなカイリティを得るための処方箋を与えている.

最後にマルチフェロイクスにおけるレーザー誘起DM相互作用やカイリティの実験的な検出方法を述べる. 上と同じように, XXZ 模型を用いて議論する. ハミルトニアンの中で元々のマルチフェロイクスが持つ交換相互作用が支配的であれば, 電子スピンのハイゼンベルク方程式は

$$i(dS_j^x/dt) \approx [S_j^x, \mathcal{H}_{\text{XXZ}}] = iJ(\mathcal{V}_{j-1,j}^x - \mathcal{V}_{j,j+1}^x) \quad (20)$$

と近似できて,  $S_j^x$  の時間変化はベクトルスピカイリティ  $\mathcal{V}_{j,j+1}^x$  の局所的な差に比例する. 図8(a)に示したように,  $\langle \mathcal{V}_{j,j+1}^x \rangle$  はレーザーで誘起可能なので, もし空間的に強度が変調するレーザーを印加すれば  $\langle \mathcal{V}_{j-1,j}^x - \mathcal{V}_{j,j+1}^x \rangle$  は有限になり, スピン流  $d\langle S_j^x \rangle / dt$  が発生する. 空間的に変調したレーザーはプラズモニクスや近接場の技術<sup>17-19)</sup>により生成可能になりつつある. 図9がレーザー誘起スピンの検出方法を説明している. これはレーザー誘起DM相互作用の検出方法の提案であるとともに, **超高速スピンの生成方法の提案**ともいえる.

#### 4.2 磁歪型ME結合とトポロジカルスピン液体

次に局所的な電気分極が交換相互作用  $\mathbf{S}_r \cdot \mathbf{S}_{r'}$  に比例するような磁歪型ME結合を持つマルチフェロイクスを考える. この系でレーザーが誘起する新しい相互作用は, スカラースピカイリティ (スピン3重積) である.<sup>8)</sup> このことは, 例えば1サイトを共有する2つの局所交換相互作用の交換関係  $[S_1 \cdot S_2, S_2 \cdot S_3] = iS_2 \cdot (S_1 \times S_3)$  から理解できる. 以下ではハニカム格子上のキタエフ模型<sup>45)</sup>

$$\hat{\mathcal{H}}_{\text{Kitaev}} = \sum_{\alpha=x,y,z} J_\alpha \sum_{\langle r,r' \rangle_\alpha} \sigma_r^\alpha \sigma_{r'}^\alpha \quad (21)$$

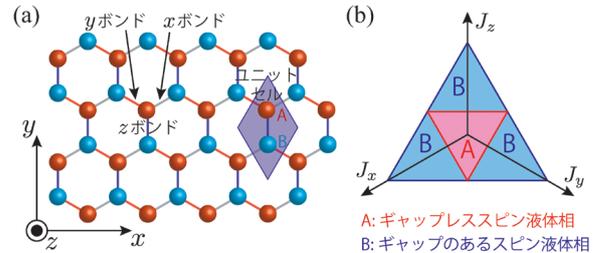


図10 (a) ハニカム格子のキタエフ模型. ハニカム格子の3種のボンドに異なるイジング相互作用が存在する. (b)  $(J_x, J_y, J_z)$  空間におけるキタエフ模型の基底状態相図. ギャップレススピン液体相とギャップのあるスピン液体相が存在する.

におけるレーザー誘起量子相を考える.  $\sigma_r^\alpha$  はサイト  $r$  のスピンを表すパウリ行列である. キタエフ模型では, 図10(a)のように, ハニカム格子の3種の  $x$ ,  $y$ ,  $z$  ボンドに各々  $S^x$ ,  $S^y$ ,  $S^z$  方向のイジング型相互作用が設定されている. この模型は当初キタエフが数理物理的な視点から導入したものであり, 基底状態がフェルミオン励起を持つスピン液体状態であることを厳密に示すことができる.<sup>45)</sup> その後, この模型がスピン軌道相互作用の強いモット絶縁体の有効模型に成り得ることが指摘され,<sup>46)</sup> 多くの物性研究者がこの系の研究に着手した. キタエフ模型に近い磁性体の発見・合成を目指した研究は精力的に続いている.<sup>47,48)</sup> 図10(b)は  $(J_x, J_y, J_z)$  空間における基底状態相図であり, 中央のギャップレス相ではディラックコーン分散を持つフェルミオンが低エネルギー励起となる.

文献8では, 3種のボンドに電気分極  $\mathbf{P}_\alpha = \pi_\alpha \sigma_r^\alpha \sigma_{r'}^\alpha$  を仮定し,  $z$  方向から楕円偏光レーザーを印加した状況を理論的に考察している. 公式(12)において, 分極同士の交換関係から  $\sigma_1^x \sigma_2^y \sigma_3^z$  のような3スピン積が発生し, これはフェルミオン化を介してハニカム格子上の同一副格子間を結ぶホッピング項に変換される.<sup>8)</sup> この項はディラックコーンにギャップを与えて, 系をトポロジカル量子相 (トポロジカル  $p$  波超伝導体と等価) に変化させ, 系の端にギャップレスマヨラナエッジ流が流れる. すなわち, **レーザー誘起トポロジカルスピン液体相** が実現する. 円偏光レーザーを2次元ディラック電子系に照射することでトポロジカル絶縁相が実現することが知られており,<sup>24-26)</sup> フロケットトポロジカル絶縁体と呼ばれているが, 上記のシナリオはこれの量子スピン版と言える. キタエフ模型に静磁場を印加しても同様のトポロジカル相が発生することが知られているが,

トポロジカル相の超高速生成・消滅が可能であるところがレーザーによる方法の特徴である。

## 5. おわりに

本解説記事では、マルチフェロイクスを含む磁性絶縁体に焦点を当て、レーザー照射により系の磁気的物理量(磁化, スピンカイラリティ, スピン流など)を超高速で生成・制御する方法について解説した。前半の1-2節では、この分野の概要や周期外場系で有効な理論的方法について議論した。後半の3-4節では、著者らの最近の研究成果<sup>6-9)</sup>に基づき、いくつかの磁性体におけるレーザー誘起現象の予言を解説した。マルチフェロイクスの解説はやや駆け足になったが、重要なアイデアは全て説明したつもりである。この分野の研究はまだ始まったばかりであり、多くの基礎的な問題が潜んでいる。例えば本記事ではレーザー照射による系のヒーティングについて詳しく触れなかったが、これは実際の実験を定量的に予言する上で避けられないと同時に非平衡統計力学の基礎論とも密接に関係した大切な問題である。多くの新規参入者が活躍できる舞台が存在することを強調して結びとしたい。

本稿の一部は、青木秀夫氏と佐々木勇輝氏との共同研究成果に基づいている。

## 参考文献

- 1) A. V. Kimel et al., *Nature* **435**, 655 (2005).
- 2) C. D. Stanciu et al., *Phys. Rev. Lett.* **99**, 047601 (2007).
- 3) A. Kirilyuk et al., *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731 (2010).
- 4) P. S. Pershan et al., *Phys. Rev.* **143**, 574 (1966).
- 5) 佐藤琢哉, *応用物理学会誌* **85**, 14 (2016).
- 6) S. Takayoshi, H. Aoki, and T. Oka, *Phys. Rev. B* **90**, 085150 (2014).
- 7) S. Takayoshi, M. Sato, and T. Oka, *Phys. Rev. B* **90**, 214413 (2014).
- 8) M. Sato, Y. Sasaki, and T. Oka, arXiv:1404.2010.
- 9) M. Sato, S. Takayoshi, and T. Oka, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 147202 (2016).
- 10) *Spin Current*, ed. S. Maekawa, S. O. Valenzuela, E. Saitoh, and T. Kimura (Oxford Univ. Press, Oxford, UK, 2012).
- 11) 齊藤英治, 村上修一, 『スピン流とトポロジカル絶縁体』(共立出版, 2014).
- 12) 江藤幹雄, 大岩 顕, 大谷義近, 齊藤英治, 村上修一, 編, 固体物理特集号(スピントロニクスの新展開) **50** (アグネ技術センター, 2015年 No. 11 通巻 597号).
- 13) 水上成美, *日本物理学会誌* **70**, 406 (2015).
- 14) 腰原伸也, 『光誘起構造相転移』(共立出版, 2016).
- 15) 岩井伸一郎, 『多電子系の超高速光誘起相転移』(共立出版, 2016).
- 16) T. Kampfrath, K. Tanaka, and K. A. Nelson, *Nat. Photo.* **7**, 680 (2013).
- 17) D. Bossini et al., *Acs Photo.* **3**, 1385 (2016).
- 18) M. F. Ciappina et al., *Rep. Prog. Phys.* **80**, 054401 (2017).
- 19) T. Arikawa, S. Morimoto and K. Tanaka: *Opt. Exp.* **25**, 13728 (2017).
- 20) Y. Mukai et al., *New J. Phys.* **18**, 013045 (2016).
- 21) M. Sato et al., *Nat. Photo.* **7**, 724 (2013).
- 22) R. Matsunaga et al., *Phys. Rev. Lett.* **111**, 057002 (2013).
- 23) T. F. Nova et al., *Nat. Phys.* **13**, 132 (2017).
- 24) T. Oka and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **79**, 081406 (R) (2009).
- 25) T. Kitagawa et al., *Phys. Rev. B* **84**, 235108 (2011).
- 26) N. H. Lindner et al., *Nat. Phys.* **7**, 490 (2011).
- 27) T. Ishikawa et al., *Nat. Commun.* **5**, 5528 (2014).
- 28) 岡 隆史, 北川拓也, 固体物理特集号 **46**, 45 (アグネ技術センター, 2011年 No. 11 通巻 549号)—光誘起トポロジカル相転移の理論.
- 29) A. Eckardt, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 011004 (2017).
- 30) T. Mikami et al., *Phys. Rev. B* **93**, 144307 (2016).
- 31) J. M. Deutsch, *Phys. Rev. A* **43**, 2046 (1991).
- 32) T. Kuwahara et al., *Ann. Phys.* **367**, 96 (2016).
- 33) A. Lazarides et al., *Phys. Rev. Lett.* **115**, 030402 (2015).
- 34) A. Abragam, *The Principles of Nuclear Magnetism* (Oxford Univ. Press, 1983).
- 35) 松尾 衛, 齊藤英治, 前川禎通, *日本物理学会誌* **72**, 641 (2017).
- 36) T. Giamarchi, *Quantum Physics in One Dimension* (Clarendon Press, 2004).
- 37) M. Hase et al., *Phys. Rev. B* **73**, 104419 (2006).
- 38) 例えば, 芳田 圭, 『磁性』(岩波書店, 1991).
- 39) I. Affleck and M. Oshikawa, *Phys. Rev. B* **60**, 1038 (1999).
- 40) Y. Tokura et al., *Rep. Prog. Phys.* **77**, 076501 (2014).
- 41) 有馬孝尚, 『マルチフェロイクス』(共立出版, 2014).
- 42) 木村 剛, *日本物理学会誌* **71**, 144 (2016).
- 43) H. Katsura et al., *Phys. Rev. Lett.* **95**, 057205 (2005).
- 44) Y. Takahashi et al., *Nat. Phys.* **8**, 121 (2012).
- 45) A. Kiatev, *Ann. Phys.* **321**, 2 (2006).
- 46) G. Jackeli and G. Khaliullin, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 017205 (2009).
- 47) 山地洋平, 今田正俊, *日本物理学会誌* **71**, 146 (2016).
- 48) 求 幸年, 那須讓治, *固体物理* **52**, 199 (アグネ技術センター, 2017年 No. 4 通巻 614号).

## 著者紹介

佐藤正寛氏: 専門は物性理論。最近、スピントロニクス、マルチフェロイクス、非平衡量子系、磁気光学などをキーワードとする学際領域の開拓に興味を持ち研究を進めている。

高吉慎太郎氏: 専門は物性理論。量子スピン系におけるダイナミクスやトポロジカル相の問題に解析・数値計算を組み合わせる取り組みをしている。

岡 隆史氏: 専門は非平衡量子多体系。相転移を非平衡外場でコントロールする方法を探している。

(2017年4月3日原稿受付)

## Theoretical Study towards Ultrafast Spintronics Masahiro Sato, Shintaro Takayoshi, and Takashi Oka

abstract: In this article, we explain our theoretical proposals, ultrafast ways of controlling magnetic properties of solid (magnetization, spin chirality, spin currents, etc.) by laser. We first review the Floquet theorem, which is useful for the prediction of novel laser-induced phenomena, then we turn to our recent results. We cover the following topics: laser-induced magnetization growing process, laser-driven spin chirality and spin current in multiferroics, and topological spin liquid state realized by laser in the honeycomb Kitaev model.