

# 研究終了報告書

## 「トポロジカル物質の非線形応答および非平衡現象の理論的研究」

研究期間：2019年3月～2023年3月

研究者：森本 高裕

### 1. 研究のねらい

近年の物性研究において、物質中の電子を記述する波動関数の位相が示す幾何学的な(トポロジカルな)性質に着目することにより、物質の示す量子相についての深い知見が得られることが明らかになってきた。量子物質のトポロジカルな側面に着目し、多様な量子相の対称性の観点からの理解できることがトポロジカル物質の分類理論として知られ、現在では新機能物質探索の指針となっている。また近年注目されているペロブスカイト酸化物における高効率の光起電力効果の起源としてシフト電流と呼ばれるメカニズムが提案されているが、シフト電流は物質中電子のベリー位相により記述され、幾何学位相に立脚した現代分極理論と密接に関連した現象である。さらに非平衡定常系では、基底状態では決して実現できない新種のトポロジカル相が実現することがわかり興味を集めている。

これら近年の物性研究の進展に鑑みて、本研究では非線形光学効果や非平衡現象などに対して、非自明な波動関数の位相の構造がどのような物性現象として発現するかに着目することにより、トポロジカル現象・物質を基盤とした革新的な新機能創出のための学理構築を目的とした。具体的には、

- 非線形効果と超高速現象
- 対称性に基づいたトポロジカル物質の分類学と物質探索
- 非平衡系で現れる新しいトポロジカル相

について研究を行った。これらの研究を通じて、将来的には (i) バルク物質の幾何学的な性質に立脚した高効率太陽電池・光検出器の創成につながる新しいメカニズムの予言、(ii) 超伝導体の超高速ダイナミクスを調べることで、超伝導体の発現メカニズムへの洞察やトポロジカル超伝導相の誘起に関する知見をえる、(iii) 非平衡トポロジカル相について理解が深めることで、系を外場で制御し物質のトポロジー操作の学理構築、などに研究を展開していくことをねらいとした。

### 2. 研究成果

#### (1) 概要

物質中電子に特有なベリー位相に駆動された幾何学的な光起電力効果であるシフト電流の概念を、相互作用する電子系に拡張することで、強相関係特有の集団励起モードがどのような新しい非線形応答を引き起こすか、また非線形応答が巨大化するかについて理論研究を行った。特に、光励起された電子正孔対の束縛状態である励起子のシフト電流、マルチフェロ磁性体におけるマグノン・シフト電流、電子格子相互作用の強い系におけるフォノン・シフト電流について理論解析を行った。さらに、励起子シフト電流およびフォノンシフト電流については実験グループと共同してその実証を行った。また、遷移金属ダイカルコゲナイドの

原子層ヘテロ接合系を念頭において準周期系の電子構造のモデル構築を行い、極性を持つヘテロ界面が電気分極やシフト電流を生じることを実験との共同研究を通じて明らかにした。

非平衡トポロジカル現象については、周期とカイラリティが異なる二つの円偏光の重ね合わせである二周期外場が時間の軌跡として空間回転対称性を有するパターンを描くことに着目し、二周期外場による回転対称性制御・トポロジー制御について研究を行った。具体的には、二周期外場に駆動された系をフロッケ理論に基づき有効ハミルトニアンを得ることで、系の回転対称性とバンドトポロジーが制御でき、それに伴って電気分極の誘起および方向の動的制御が可能であることを理論的に明らかにした。さらに二周期外場駆動によるトポロジー制御を通じて反転対称性を破らない系においても光電流発生が可能であることも示した。

## (2) 詳細

研究テーマ A「非線形応答と超高速現象」

### マグノン・シフト電流

マルチフェロイック物質を舞台とした非線形光学応答の理論研究を行った。マルチフェロイック物質における磁気励起（エレクトロマグノン）は、電場と磁場の交差相関のために分極が伴うことが知られている。このことから、電子正孔対の励起よりもはるかにエネルギーの低いマグノンを光励起することで、分極を定常的に誘起しシフト電流機構により dc 電流が発生することが可能となる。一次元のマルチフェロイクスのモデルを用いて、実際にマグノン励起によりシフト電流が発生することを示した（図 1） [Morimoto, Nagaosa, PRB (2019)]。これは、自由な電子正孔対を生成することなく、集団励起を通じてシフト電流を誘起することが可能であることを示している。さらに、私たちは、スピンハミルトニアンに基づいて、電気分極をスピン演算子により記述し、マグノン表示と非線形光学応答のファインマン・ダイアグラム法を組み合わせることにより、一般のスピンモデルにおいて非線形光学応答を系統的に記述する方法論を構築した。これにより、RMnO<sub>3</sub> などの反転対称性を破った磁性体においてマグノン励起により光電流が発生すること（マグノン・シフト電流）を明らかにした [Morimoto et al. PRB (2021)].。さらに、この方法論を光誘起によるスピン流生成に応用することで、コリニアなマルチフェロ磁性体においては、非線形スピン流（シフトスピン流）がマグノンバンドのベリー接続を直接反映した幾何学的な非線形現象であることを示した [Fujiwara et al. PRB (2023)]。

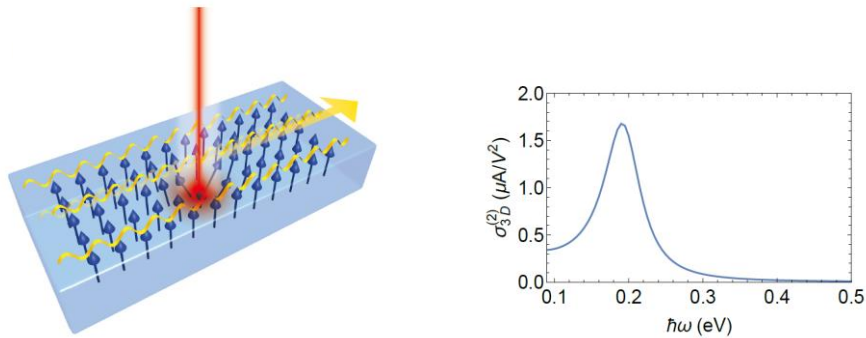


図 1、マルチフェロイック磁性体におけるマグノン・シフト電流

#### 原子層ヘテロ接合系の非線形応答

遷移金属ダイカルコゲナイド(TMD)と黒リン(BP)からなる原子層ヘテロ接合系においては、それぞれの原子層のもつ回転対称性が接合により不整合となり、極性をもった系が実現する。さきがけポロジニー領域の井手上准教授(東大・物性研)らによって TMD/BP 接合系で光起電力効果が観測されたことをうけ、私たちは準周期接合系の理論解析を行い、井手上さんとさきがけ内共同研究を行った。接合系が極性をもつことにより電気分極とシフト電流が発生することを示し、実験との比較により観測された光起電力効果がシフト電流に由来するものであることを明らかにした[Akamatsu, et al. Science 372, 68 (2021).]. さらにバルクの MoS2 において歪を加えることにより光起電力効果が巨大化することを井手上さんが発見し、これについても共同研究を行った。ホッピングを変調した MoS2 の tight binding 模型から導いたシフト電流の結果と照らし合わせ、歪みによりシフト電流が誘起されていると解釈できることを示した[Dong et al. Nat. Nanotechnol. (2022)].

#### 超伝導体の非線形光学効果

超伝導体の励起モードは、近年のヒッグスモードが3次高調波発生により観測[Matsunaga et al. Science (2014)]以降、多くの興味を集めている。一方、マルチバンド超伝導体では、ギャップ関数のバンド間の相対位相に対応する励起モード(レゲット・モード)が現れることが知られている。私たちは、反転対称性の破れたマルチバンド超伝導体において集団励起モードの光学応答について理論解析を行った。BdG ハミルトニアンに基づいたグリーン関数法による記述法と集団励起を乱雑位相近似を組み合わせ、超伝導体中集団励起モードの(非線形)光学応答を計算した。これにより、一般にマルチバンド超伝導体ではレゲットモードは光学許容であり、線形の光学応答に特徴的なピーク構造があらわれることを見出した[Kamatani et al. PRB (2022)]. 今後 THz 領域の光学測定などを通じてレゲットモードが観測するための実験提案を模索する。

#### フォノン・シフト電流

シフト電流機構による光起電力効果は従来バンド絶縁体における電子正孔対の生成にともなって光電流が発生する。一方、励起子励起によるシフト電流などが発見され、電子正孔対以外の他の素励起の場合でも素励起が分極を伴う場合にはシフト電流機構により光起電力効果が現れることが期待される。今回は、コンデンサなどにも利用されている強誘電体  $\text{BaTiO}_3$  のソフトフォノン励起に着目し、テラヘルツ光照射時におけるフォノン励起によるシフト電流発生を東大・高橋研と共同研究により実証した[Okamura, et al. PNAS 119, e2122313119 (2022)]。この光電流は、フォノンモードに対して顕著な依存性を示す上、光電流の大きさが外部電圧にも依存しないという従来の光起電力効果とは大きく異なる性質を持つことを明らかにした。また、シフト電流機構に基づいた理論モデルを新たに構築し第一原理計算を行ったところ、観測された光電流の大きさについてもおおよそ説明できることがわかった。

#### 研究テーマ B「トポロジカル物質探索」

ワイル半金属は物質の示すトポロジカルな量子相の一種であり、線形分散の低エネルギー励起が波動関数の幾何学構造により安定的に存在する。ワイル半金属の物性はこれまで線形応答現象を中心に調べられてきたが、私たちは円偏光光起電力効果という非線形光学応答を調べると、線形分散励起を安定化する幾何学構造(ワイル点の周りでのベリー曲率積分の量子化)のために、物質の詳細によらず量子化するというを以前理論予言した [de Juan et al. Nat. Commun (2017)]。さらに、ワイル半金属の高スピン表現による一般化である多重ワイル半金属というトポロジカル量子相が、 $\text{RhSi}$  といった物質中にあらわれることが知られています。私たちは多重ワイル半金属でも同様に円偏光光起電力効果が量子化を示すことを提案し、実験と共同してその兆候である円偏光光起電力効果の周波数プラトー構造を見出した(図2)[Rees et al. Sci. Adv. 6, eaba0509, (2020)]。

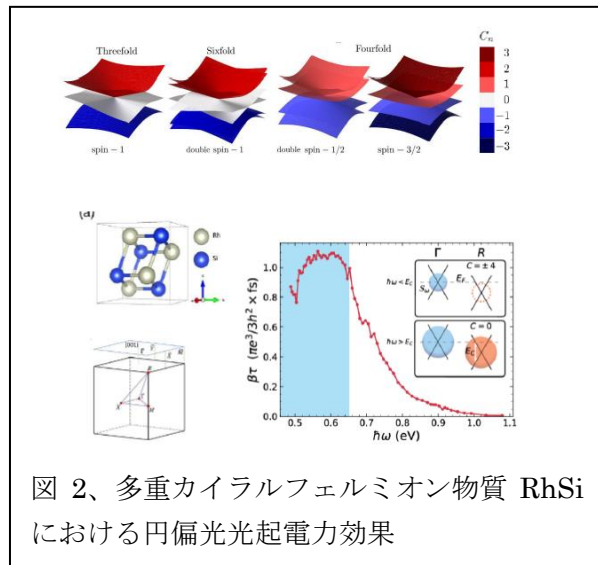


図 2、多重カイラルフェルミオン物質  $\text{RhSi}$  における円偏光光起電力効果

#### 研究テーマ C「非平衡トポロジカル相」

時間について周期的な外場により駆動された非平衡定常状態はフロッケ理論と呼ばれる実効的なバンド理論により記述できることが知られている。特に、フロッケ理論による有効バンド描像は、外場と物質の組み合わせによって新機能物性を開拓したり、物質のトポロジー制御が可能となるため、フロッケ・エンジニアリングとして精力的に研究がなされている。

従来のフロッケ・エンジニアリングの研究においては照射する外場が円偏光などの限定的な場合に限られていた。そこで私たちは、周期とカイラリティが異なる二つの円偏光の重ね合わせである二周期外場(Bicircular light, BCL)が時間の軌跡として空間回転対称性を有

するパターンを描くことに着目し、空間回転対称性を有した系に特定の BCL を照射することで、系の空間回転対称性を破るようなセットアップ(回転対称性制御)について研究を行った。具体的には、BCL に駆動された系をフロケ理論に基づき有効ハミルトニアンを得ることで、系の回転対称性が制御でき、それに伴って電気分極の誘起および方向の動的制御が可能であることを理論的に明らかにした[Ikeda, et al. Prog. Theor. Exp. Phys. ptab127 (2021).].

さらに、BCL 照射による空間回転対称性制御を用いて、新奇な光起電力効果の誘起・制御について研究を行った。単色光照射によるシフト電流などの非線形光学応答の研究では伝導帯と光励起した価電子帯の 2 バンドの情報から理論を展開しているが、これをフロケ多バンドモデルへと拡張することで BCL 照射の場合において非線形光学効果を調べた。具体的には、反転対称な一次元鎖や高温超伝導体を念頭に置いた d-p 模型などにおいて、BCL 駆動によって回転対称性を制御することで、injection current とよばれる緩和時間に比例するような光電流が発生することを明らかにした [Ikeda, et al. arXiv: 2303.01796].

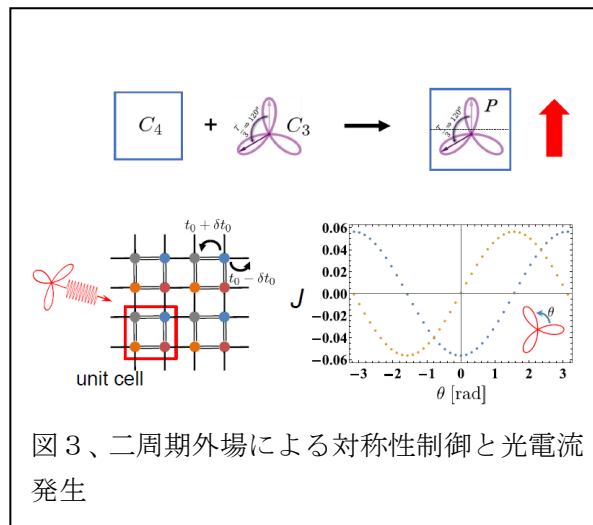


図 3、二周期外場による対称性制御と光電流発生

### 3. 今後の展開

トポロジカル非線形光学理論について、電子間相互作用が重要になる系、特に超伝導体や磁性体を対象として、さらに理論研究を展開していく予定である。超伝導体については集団励起モードの光学応答の理論枠組みを構築したので、これにもとづき非線形応答が超伝導ペアリング対称性のプローブとなる可能性について探索する。特に超伝導ペアリングにおける時間反転対称性の破れの効果を非線形応答により検出する理論提案などが期待できる。磁性体についてはマグノン・シフト電流の理論をさらに拡張していきたい。スキルミオンなど実空間でトポロジカルな磁気秩序を有する系の非線形応答を解析し、実空間トポロジカル構造が大きな非線形機能を生む可能性を探索する。さらには磁気秩序と軌道秩序の絡み合った系のシフト電流応答などへの展開も考えられる。これらについては今後2、3年をめどに進めていきたい。

2周期外場によるフロケ・トポロジー制御、特に回転対称性の制御を通じた分極操作についてこれまで提案してきた。電気分極の直接検出はやや困難であるため、今後はより実験検出のしやすいセットアップにおいて光起電力効果を2周期外場により生成・制御することについて理論解析を行っていきたい。さらに高調波発生など非摂動的な光応答について研究を展開していきたい。これについても今後3年程度で進めたい。

シフト電流、円偏光光起電力効果を用いた光電変換は、広帯域光検出素子や円偏光セ

ンサ、広帯域 THz 波光源などの幅広い応用展開が期待される。超伝導体の外場誘起相制御の実現は理論・実験両面で挑戦的な研究であるが、将来的には量子情報処理分野への応用につながると期待される。

#### 4. 自己評価

非線形光学効果や非平衡現象を中心に物質中トポロジ概念に基づいた理論研究を行うという当初の研究目的は概ね達成したと考える。特に、シフト電流について従来の弱相関バンド電子から強相関系や準周期系へと研究が展開したことが大きな成果であった。研究費についてはクラスター計算機購入、大学院生の RA 雇用、旅費などについておおむね計画に沿った形で支出した。研究成果であるフォノンシフト電流やワイル半金属の円偏光光起電力効果などを通じた光電変換は、将来的には広帯域光検出素子や円偏光センサなどの応用展開が期待される。

#### 5. 主な研究成果リスト

##### (1) 代表的な論文(原著論文)発表

研究期間累積件数:32件

1. Takahiro Morimoto, Sota Kitamura, Shun Okumura: “Electric polarization and nonlinear optical effects in noncentrosymmetric magnets” Phys. Rev. B **104**, 075139 (2021).

スピンハミルトニアンに基づいて、電気分極をスピン演算子により記述し、マグノン表示と非線形光学応答のファインマン・ダイアグラム法を組み合わせることにより、一般のスピン模型において非線形光学応答を系統的に記述する方法論を構築した。これにより、RMnO<sub>3</sub>などの反転対称性を破った磁性体においてマグノン励起により光電流が発生すること(マグノン・シフト電流)を明らかにした

2. Takumi Kamatani, Sota Kitamura, Naoto Tsuji, Ryo Shimano, Takahiro Morimoto: “Optical response of the Leggett mode in multiband superconductors in the linear response regime” Phys. Rev. B **105**, 094520 (2022).

マルチバンド超伝導体では、ギャップ関数のバンド間の相対位相に対応する励起モード(レゲット・モード)が現れることが知られている。私たちは、反転対称性の破れたマルチバンド超伝導体において集団励起モードの光学応答について理論解析を行った。BdG ハミルトニアンに基づいたグリーン関数法による記述法と集団励起を乱雑位相近似を組み合わせ、超伝導体中集団励起モードの(非線形)光学応答を計算した。これにより、一般にマルチバンド超伝導体ではレゲットモードは光学許容であり、線形の光学応答に特徴的なピーク構造があらわれることを見出した。

3. Yuya Ikeda, Sota Kitamura, Takahiro Morimoto: “Floquet engineering of electric polarization with two-frequency drive” Prog. Theor. Exp. Phys. ptab127 (2021).

従来のフロケ・エンジニアリングの研究においては照射する外場が円偏光などの限定的な場合に限定されていた。そこで私たちは、周期とカイラリティが異なる二つの円偏光の重ね合わせである二周期外場(Bicircular light, BCL)が時間の軌跡として空間回転対称性を有するパタ

ーンを描を描くことに着目し、空間回転対称性を有した系に特定の BCL を照射することで、系の空間回転対称性を破るようなセットアップ(回転対称性制御)について研究を行った。具体的には、BCL に駆動された系をフロッケ理論に基づき有効ハミルトニアンを得ることで、系の回転対称性が制御でき、それに伴って電気分極の誘起および方向の動的制御が可能であることを理論的に明らかにした。

## (2) 特許出願

研究期間全出願件数: 0 件(特許公開前のもも含む)

## (3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

1. 招待講演 ”Geometrical nonlinear optical effects in noncentrosymmetric crystals” Workshop on “New trends in nonequilibrium many-body systems” at Max Planck Institute 2022/08/04
2. 招待講演 ” Geometrical nonlinear optical effects of correlated electron systems” APS 2023 at Las Vegas 2023/03/09
3. 令和 4 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞 (2022 年 4 月 8 日)
4. プレスリリース 「電気的な偏りのない 2 次元結晶を重ねるだけで面内に電荷の偏りと光発電機能を実現」 JST 発表 2021 年 4 月 2 日
5. 新聞掲載「磁場で電荷を運ぶってどういうこと? トポロジー由来の現象を初観測」朝日新聞 2023/02/09