

レーザー照射による共鳴励起でワイル半金属相を創成 ～スピン偏極したトポロジカル表面状態を理論的に予見～

原子の構成要素である電子は、飛び飛びのエネルギーの値（エネルギー準位）を取ります。そして、非常に多くの原子から成る結晶では、電子は多数のエネルギー準位が束になった帯（バンド）状のエネルギー構造を持つようになります。その中でも、相異なるバンドが交差することによって円錐状のバンド構造が対を成して現れる結晶群をワイル半金属と呼びます。数学の位相幾何学（トポロジー）の概念を適応することにより、トポロジカル物質と呼ばれる物質群が相次いで発見されるようになりました。ワイル半金属もトポロジカル物質の一種です。その物理的起源を探る基礎研究や、外部磁場によって電気抵抗が大きく変化する巨大磁気抵抗効果など特異な電気伝導性を生かした新機能デバイス開発などの応用研究が、世界レベルで精力的に行われています。

本研究では、結晶にレーザーを照射してワイル半金属状態を生成することにより生じる物理現象について、理論的に追及しました。具体的には、砒化亜鉛（ Zn_3As_2 ）という半導体（一種の絶縁体）にバンドギャップ（電子が存在できない領域）と共鳴する周波数を持つ強い円偏光レーザーを照射し、光と電子が一体化した量子状態について、数値計算を行いました。

その結果、レーザーの周波数と強度がある一定の範囲においては、絶縁体相が二種類のワイル半金属相に相転移することを理論的に示しました。電子にはスピンと呼ばれる磁石の性質があり、上向きと下向きの二つの方向があります。今回のような条件下での光照射においては、上向きと下向きスピンのうち一方のみが優先的に励起されます。例えば左円偏光で励起された電子は下向きスピン状態が偏極した表面状態を形成し、磁化を発現することを見出しました。もう一方の上向き電子スピン状態では、環状のバンド交差が現れ、ワイル半金属というよりむしろ線ノード半金属といわれるトポロジカル状態が発現することが分かりました。

本研究は、レーザー照射によって非磁性半導体表面に磁化を誘起する可能性を示したのですが、母結晶を電子同士の相互作用が強い強相関電子系やさまざまなトポロジカル物質とし、同様の光制御を行うことによって、さらに多様な物性を光創成することができると期待されます。

研究代表者

筑波大学数理物質系

日野 健一 教授

研究の背景

結晶は非常に多くの原子で構成されています。原子の構成要素である電子は飛び飛びのエネルギー準位（軌道）を取ります。同じ軌道にはスピンの異なる電子が二つ入れるだけなので、少しずつエネルギーの異なる電子状態に分かれます。その結果、とても多くのエネルギー準位が狭い間隔で束になった帯状のエネルギー構造を持ちます。これをエネルギーバンド（または単にバンド）と言います。さらに、バンド同士はあるエネルギー間隙（バンドギャップ）で隔てられて並んでいます（参考図 1 a）。

バンドのエネルギー値は結晶内の電子の運動量（速さに相当する物理量、以下ベクトル (k_x, k_y, k_z) と表記）によって決まります。これを結晶運動量（以下運動量）と言います。ある条件下で、運動量の変化に対してエネルギーバンドが反転し、円錐状に交差（ディラック交差）する場合があります。このような物質はディラック半金属^{注1)}といわれるトポロジカル物質^{注2)}の一つです。例えば、正方晶系の構造を持つ結晶では正方形面に関して4回回転軸（ z 軸とします）が存在し、この軸方向の運動量 k_z が特定の値になる2点（ディラック点）でディラック交差が生じることが分かっています（参考図 1 b）。この交差点近傍において電子の有効質量はゼロとみなせます。

ディラック半金属に磁場を印加すると、時間反転対称性^{注3)}が破られます。その結果、各ディラック点は二つに分裂し、カイラリティ^{注4)}が相異なる一対のワイル半金属^{注1)}と呼ばれるトポロジカル物質になります。カイラリティとは、有効質量ゼロの電子の進行方向に対して、スピンの右巻きか左巻きかに対応する内部自由度です。ワイル半金属には巨大磁気抵抗効果、カイラル異常（負の磁気抵抗効果）、異常ホール伝導度などさまざまな興味深い電気伝導特性が見出されており、基礎物理の解明ならびに新機能の探索に向けた広範な研究が活発に行われています。

これまでトポロジカル物質の研究は、主として基底状態^{注5)}を対象に行われており、レーザー照射により生成する電子の励起状態^{注5)}および非平衡状態^{注5)}におけるトポロジカル秩序^{注6)}を有する物性は未開拓な領域でした。しかし、レーザー照射によってディラック半金属状態ならびにワイル半金属状態を生成することも可能であり、これら半金属相の電子状態を光制御することにより、新奇なトポロジカル物性を創成する研究報告がここ数年急増しています。

本研究では、理論物理ならびに計算物理の観点から、光制御によるワイル半金属状態の創成と新しい物性発現の可能性を追及しました。具体的には、正方晶系の結晶構造を有する通常の非磁性半導体である砒化亜鉛にバンドギャップにほぼ共鳴する強い円偏光レーザーを照射し、光と電子が強く結合して一体化するフロケ状態^{注7)}といわれる量子状態を誘起することにより、ワイル半金属（フロケワイル半金属）相が創成できることを理論的に予見しました。さらに、カイラリティ、光誘起されるトポロジカルな相転移^{注6)}、付随する表面磁化物性などを調べました。

研究内容と成果

本研究では、強束縛近似という結晶の電子状態を表すモデルを基に、 xy 面内に円偏光した（ピーク電場の強さが 1.5 MV/cm 程度の）強い連続波レーザー^{注8)}を砒化亜鉛結晶に照射した系に関して数値計算を行いました。ここで、レーザーの偏光を左巻き（偏光ベクトルの時間変化が反時計回り）とし、結晶のバンドギャップとほぼ等しくなるようなレーザー周波数（共鳴周波数）を設定しました。これにより、励起状態に対応するフロケ状態の価電子帯と伝導帯のバンド（フロケバンド）が反転します。さらにこの結晶が4回回転軸を有するため、運動量 k_z が特定の値になる2点でバンド交差が生じます。ここで、円偏光の光は磁場と同様に時間反転対称性を破るので、各ディラック点では電子のスピン状態が分裂してそれぞれ一対のフロケワイル半金属相が発現することが可能になります。ここで、分裂したディラック点をフロケワイル点と呼ぶことにします（参考図 2c,2d）。

フロケワイル点近傍において、 k_z 軸方向ではどちらのスピ由来のバンドも直線的に交差します（参考図 2c,2d）が、これと垂直な k_x および k_y 軸方向では下向きスピバンドは直線的に交差する一方で上向きスピバンドは 2 次関数的に交差します（参考図 2a,2b）。フロケワイル点から離れた運動量の領域（ $k_z=0$ ）では、下向きスピ由来の価電子帯と伝導帯のフロケバンドはエネルギーギャップを形成して反転します（参考図 3b）。一方、上向きスピのフロケバンドでは、（1meV 程度の）微小なエネルギーギャップを形成しますが、ほぼ円環状に交差し線ノード半金属^{注1)}に類する特徴を示します（参考図 3a）。よって、円偏光照射で生成するフロケ状態には、ワイル半金属相と線ノード半金属相が共存すると理解できます。以上のように、スピ状態によってフロケバンドの形状が異なることは、下向きスピの電子のみが円偏光レーザーと強く相互作用して優先的に光励起されるからであると理解されます。

各フロケワイル点に付随するカイラリティを示す表式を導出することもできました。レーザーの周波数および強度を変えていくと、ある特定の値を境とする領域において右巻きおよび左巻きの一对のカイラリティが現れ、フロケワイル半金属相が安定に存在することを示しました。さらに、この領域外において、フロケワイル点の相異なる各対のカイラリティが対消滅し、通常の絶縁体相もしくはトポロジカル絶縁体相^{注2)}に相転移^{注6)}することが分かりました。

実際の結晶には表面が存在するため、ディラック半金属やワイル半金属の表面状態には特徴的な電子状態が現れることが知られています。本研究のフロケワイル半金属相における表面状態の物理を調べるため、 y 軸に垂直な二つの表面に挟まれた擬 2 次元結晶に対するフロケバンドの数値計算を行いました。

下向きスピバンドにおいては、両フロケワイル点に挟まれた k_z 領域でバンドギャップ内に表面状態を示すバンド構造が現れました（参考図 4：2 本の直線状の表面バンドは各表面に起因するので、以下ではいずれか一つのバンドのみを考えることにします）。上向きスピバンドに関しては、バンドギャップが微小であるため表面バンド構造は不明確になります。両スピバンドにおいて、各 $k_z n$ における表面バンドのスライスを k_z に関して連続的に繋ぐと、二つのフロケワイル点でピン留めされた一葉の表面構造が現れます（参考図 5）。この系では下向きスピ状態の電子が優先的に光励起されるので、表面状態には主に下向きスピ電子が分布することになります。よって、結晶表面にはスピ偏極して磁化が発生すると考えられます。さらに、円偏光レーザー照射においては、このようなスピ磁化のほか、逆ファラデー効果^{注9)}という軌道由来の磁化が表面に発生すると考えられます。

本研究では以上のように、円偏光レーザーによる電子状態の量子制御を基に、フロケワイル半金属相創成の可能性を理論的に示し、付随するさまざまな新しい物性を予見しました。とりわけ、非磁性結晶から表面磁化が誘起する可能性を示しました。

今後の展開

今回の研究結果は、円偏光レーザーを用いた光共鳴励起によって通常非磁性半導体にフロケワイル半金属相を創成することができる可能性を示したものです。ただし、母結晶を強相関電子系や他のトポロジカル物質とし、同様な光制御を行うことによって、多様性に富んだフロケトポロジカル状態を創成できると考えられます。共鳴遷移によって電子は励起状態に有限時間滞在することになるため、このようなフロケトポロジカル状態の物性を解明するには、フロケバンド構造の解析のみならず、レーザー照射後の電子状態の時間変化の解析が必要になります。実験による検証を行う上でも、高密度で励起された電子間の多体相互作用を考慮した量子ダイナミクス^{注10)}理論模型の構築と、より定量的なレベルでの評価が要求されます。理論と実験の緊密な連携によって、フロケ状態を介したトポロジカル物性に関して、さらに豊富な物理的知見が開拓されることが期待されます。

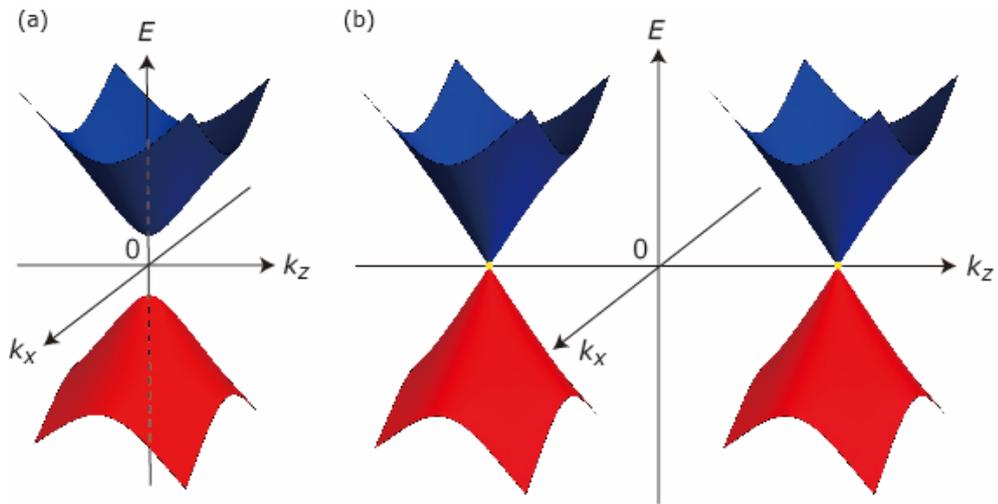


図 1. 3次元における運動量(k_x, k_y, k_z)に対するエネルギーバンド E の模式図。ただし、 $k_y=0$ とする。
 (a) 絶縁体のバンド図。バンドギャップを隔てて二葉のバンドが存在する。
 (b) ディラック半金属のバンド図。二葉のバンドが反転して k_z 軸上の2点（ディラック点：黄色の丸点）で円錐交差する。

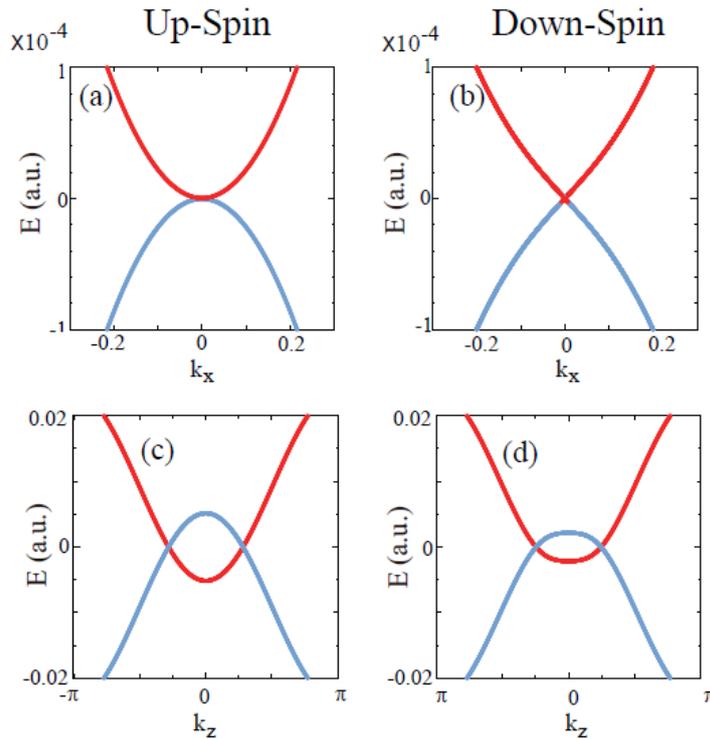


図 2. 上向きスピン(up-spin)および下向きスピン(down-spin)のフロケ状態のエネルギーバンド E (理論計算値)。赤実線および青実線はそれぞれ伝導帯および価電子帯に由来するフロケバンドを示す。a.u.は原子単位系を表す。

- (a) k_z 軸上のフロケワイル点近傍における k_x に関する上向きスピンバンド。ただし、 $k_y=0$ とする。
- (b) k_z 軸上のフロケワイル点近傍における k_x に関する下向きスピンバンド。ただし、 $k_y=0$ とする。
- (c) k_z に関する上向きスピンバンド。ただし、 $k_x=k_y=0$ とする。
- (d) k_z に関する下向きスピンバンド。ただし、 $k_x=k_y=0$ とする。

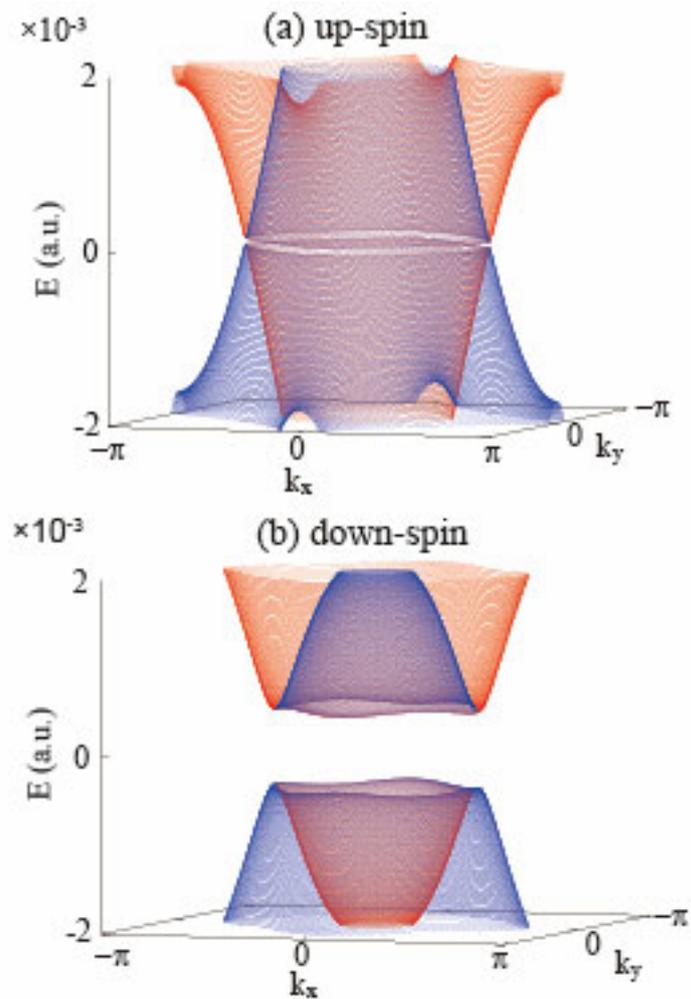


図 3. 上向きスピン(up-spin)および下向きスピン(down-spin)のフロケ状態のエネルギーバンド E (理論計算値)。赤色および青色のバンドはそれぞれ伝導帯および価電子帯に由来するフロケバンドである。 $k_z = 0$ とする。a.u. は原子単位系を表す。

(a) 上向きスピンのフロケバンド。 k_x - k_y 面においてバンドギャップがほぼ消失して円環状の交差を形成している。

(b) 下向きスピンのフロケバンド。 k_x - k_y 面においてバンドギャップを形成している。

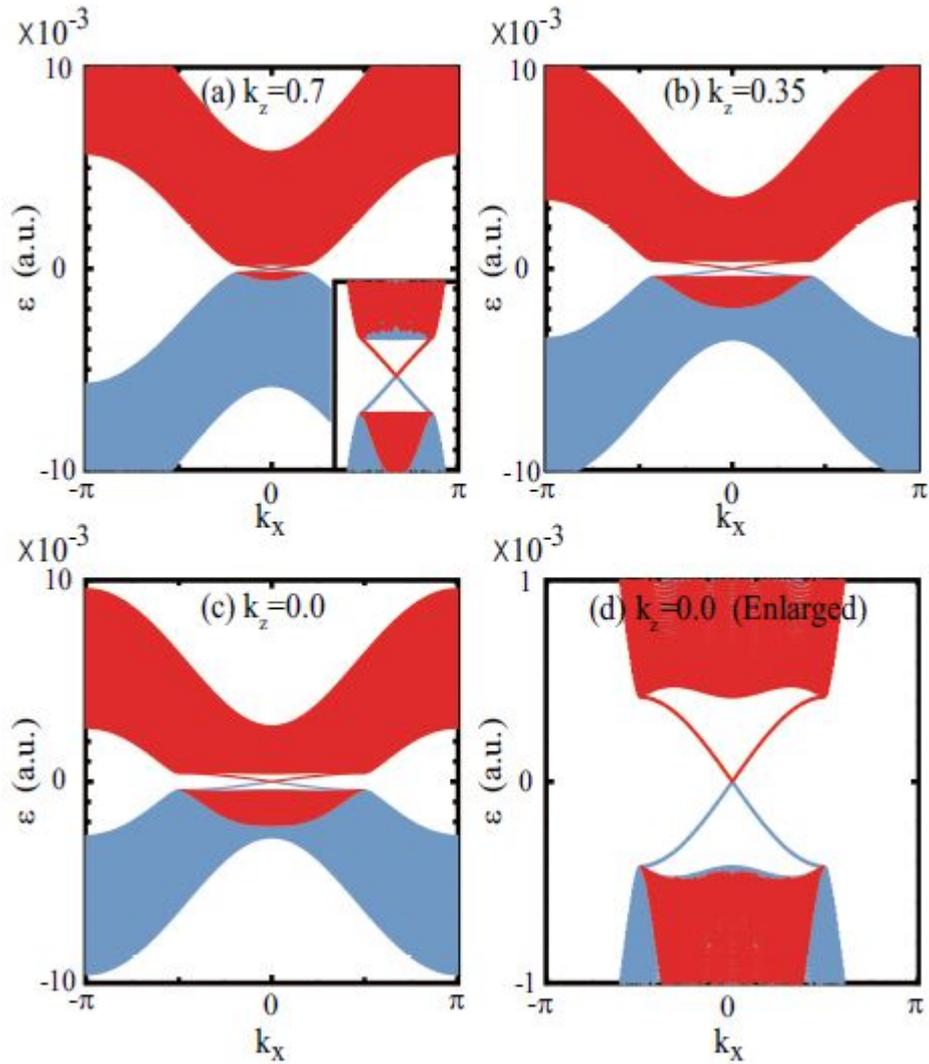


図 4. 結晶の y 軸に垂直な二つの面（表面に対応）に閉じ込められた擬 2 次元電子系の下向きスピンの状態のエネルギーバンド ε （理論計算値）。バンドギャップ内のエネルギーは表面バンドを示す。赤色および青色のバンドはそれぞれ伝導帯および価電子帯に由来するフロケバンドである。a.u. は原子単位系を表す。

- (a) $k_z = 0.7$ （フロケワイル点 $k_z = 0.775$ 近傍）におけるフロケバンド。挿入図は $\varepsilon=0$ 近傍の表面バンドの拡大図である。
- (b) $k_z = 0.35$ におけるフロケバンド。
- (c) $k_z = 0$ におけるフロケバンド。
- (d) $k_z = 0$ におけるフロケバンドの $\varepsilon=0$ 近傍の拡大図。

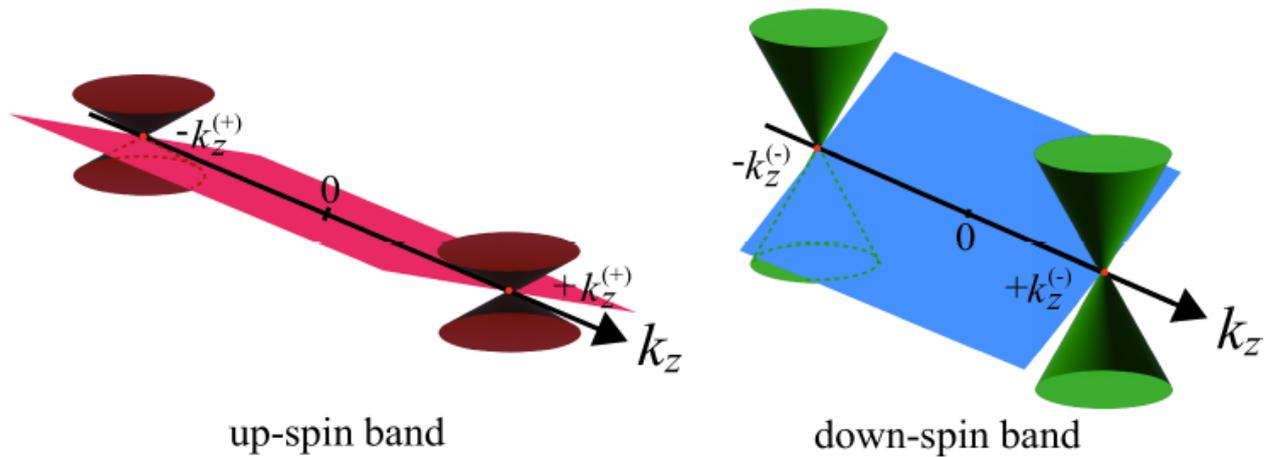


図5. 結晶の y 軸に垂直な二つの面（表面に対応）に閉じ込められた擬二次元電子系におけるフロケバンド ε の k_z 依存性の模式図。上向きスピンバンド (up-spin band) においては、一対のフロケワイル点 $\pm k_z^{(+)}$ でピン留めされた表面状態が生成する。ただし、バンドギャップが微小であるため、表面バンドはバルクバンドに融合している。また、フロケバンドはワイル点の極近傍で円錐交差するが、それから離れると k_x - k_y 面内では 2 次関数的な交差をする（参照：参考図 2a）。一方、下向きスピンバンド (down-spin band) においては、一対のフロケワイル点 $\pm k_z^{(-)}$ でピン留めされた明確な一葉の表面バンドが生成し、 k_x - k_y 面内では直線的な交差をする（参照：参考図 2b）。

用語解説

注1) ディラック半金属、ワイル半金属、線ノード半金属

バンドギャップはないが、交差しないエネルギーバンドを結晶内部に持つ物質群を半金属と言う。一方、結晶内部にエネルギーバンドの交差が現れる物質群をトポロジカル半金属と総称する。結晶のさまざまな対称性（物質構造に由来する幾何学的な対称性の他に時間的並びに空間的な対称性など）に応じてバンド交差の様子が異なり、ディラック半金属、ワイル半金属、線ノード半金属と区別される。ディラック半金属は上記の対称性が高い物質で、現れるバンドは円錐交差するが、時間的もしくは空間的な対称性が低下するとワイル半金属に転移してバンドは複数の円錐交差に分裂する。線ノード半金属はバンドが点交差ではなく線上に交差する。

注2) トポロジカル物質

エネルギーバンドの構造にトポロジカル秩序（参照：下記注 6）と言われる性質を有する物質群をトポロジカル物質と言う。代表的なものにトポロジカル絶縁体、トポロジカル半金属がある。トポロジカル絶縁体は、エネルギーバンドが電子の運動量のある領域で反転することにより、結晶内部においてバンドギャップで隔てられた絶縁体相を示す物質群である。トポロジカル半金属は、エネルギーバンドが円錐交差する物質群である（参照：上記注 1））。

注3) 時間反転対称性

物理系における時間 t を $-t$ に反転する操作を時間反転という。この操作によって運動量も反転する。エネルギーはこのような座標と運動量の関数になるので、これに時間反転操作を行ったとき、エ

エネルギーが不変の場合を時間反転対称性不変と言う。この時、量子状態は偶数もしくは奇数によって区別化され、対応するパリティという量子数 (+1 もしくは -1) が存在する。

注4) カイラリティ

右手と左手は鏡像の関係にあり、向かい合わせにすると重なり合うが同じ向きだと決して重なり合わない。このように、ある現象とその鏡像が同一にはならないような性質をカイラリティ (または掌性) いう。例えば、立体構造が鏡像関係にある一対の有機分子 (構造異性体) はカイラリティを有している。粒子のカイラリティは、進行方向に対するそのスピンによって定義することができる。

注5) 基底状態、励起状態、非平衡状態

エネルギー的に最も安定な量子力学的な状態を基底状態という。それ以外の、エネルギー的に高い状態を励起状態という。基底状態にある物質に光や電子線などを照射して励起状態への遷移を誘起すると、系は再び基底状態に戻るまで、さまざまな過渡的時間的変化を示す。このような動的状態を非平衡状態という。

注6) トポロジカル秩序、トポロジカル相転移

数学に位相幾何学 (トポロジー) という分野があり、何らかの空間を連続変形 (伸ばしたり縮めたり曲げたりはするが、切ったり貼り付けたりはしない変形) した時の不変的な性質 (位相不変性、トポロジカル不変性) を研究対象とする。例えば、メビウスの輪は一つの面と一つの辺から成るので、二つの辺と表裏二つの面から成る通常のリボンとは、トポロジーでは区別される。また、空間内に穴が一つあるコーヒーカップはドーナツ状に連続変形できるので、両者はトポロジーでは同等な空間となる。エネルギーバンドを電子の運動量の空間とみなすと、運動量の変化に対して二つのバンドが反転する前後でこれらは必ず交差して、その微分係数が発散する特異な振る舞いが現れる (この特異性は、この交差点でディラックモノポールとよばれる仮想的な磁気単極子が生成することに相当し、上記のドーナツやコーヒーカップの穴に対応)。この特異性は位相不変性を表示するトポロジカル指数という整数で表すことができる。また、この指数に対応して現れる物性をトポロジカル秩序と言う。通常絶縁体のトポロジカル指数は 0 だが、トポロジカル絶縁体では 1 となり、明確に区別されて理解される。トポロジカル相転移とは、何らかの外部パラメータの変化によって引き起こされる、トポロジカル指数が異なる物質相間の相転移である。

注7) フロケ状態

時間的に変動する外場 (レーザーや変動磁場など) 下で運動する粒子のエネルギーは保存されないが、この外場が時間的な周期性を有している場合、エネルギーに替わって擬エネルギーと言われる物理量が保存する (フロケの定理)。このような系における量子力学的な状態をフロケ状態と呼ぶ。時間的周期性を有する外場の一例として、連続波レーザー (参照: 下記注 8)) がある。レーザー強度が大きい時、光と電子は強く結合して一体化し、電子はあたかも光の衣を纏った状態 (このようなフロケ状態を (光) 着衣状態と言う) として振舞う。

注8) 連続波レーザー

レーザーはパルス幅 (電磁波の包絡線の振幅が有限な時間幅) によって連続波レーザーとパルスレーザーに大別される。連続波レーザーは一般にはパルス幅が数ピコ秒 (ピコは 1 兆分の 1) より長い場合で、単色の周波数をもった電磁波が文字通り連続して伝搬する。それ以外の数フェムト秒 (フェムトは 1000 兆分の 1) から数ピコ秒程度の短いパルス幅を持つレーザーをパルスレーザーと言う。

注9) 逆ファラデー効果

物質に静磁場を印加し、その平行方向に進行する直線偏光が物質を透過する時、照射光の偏光面が回転する現象をファラデー効果という。直線偏光は右巻きおよび左巻きの円偏光が合成されたも

のである。この現象は、磁場が印加されることによって、右巻きと左巻きの円偏光に対する物質の屈折率に違いが生じるため、透過後の直線偏光の偏光面が変化するからと理解される。逆ファラデー効果は、文字通りファラデー効果とは逆の現象であり、円偏光を物質に透過すると物質に静磁化が発生する現象のことを言う。

注10) 量子ダイナミクス

時間的に変動する外場を平衡状態（定常状態）に印加すると、系の量子力学的状態（非平衡状態）は励起や緩和などの過程によって時間変化する（参照：上記注5）。このような系の時間変化を記述する理論的枠組みを量子ダイナミクス（量子動力学）と言う。

研究資金

本研究は、科研費プロジェクト（Grant No. JP19K03695）の一環として実施されました。

掲載論文

- 【題名】 Floquet-Weyl semimetals generated by an optically resonant interband transition
(光共鳴バンド間遷移によって生成するフロケワイル半金属)
- 【著者名】 Runnan Zhang, Ken-ichi Hino, and Nobuya Maeshima
- 【掲載誌】 Physical Review B
- 【掲載日】 2022年8月22日
- 【DOI】 10.1103/PhysRevB.106.085206

問合わせ先

【研究に関すること】

日野 健一（ひの けんいち）

筑波大学数理物質系 教授

URL: https://www.ims.tsukuba.ac.jp/~hino_lab/index.html

【取材・報道に関すること】

筑波大学広報局

TEL: 029-853-2040

E-mail: kohositu@un.tsukuba.ac.jp