

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「トポロジカル材料科学に基づく革新的機能
を有する材料・デバイスの創出」
研究課題「トポロジカル非線形光学の新展開」

研究終了報告書

研究期間 2019年10月～2025年03月

研究代表者：島野 亮
(東京大学 低温科学研究センター 教授)

§1 研究実施の概要

(1)実施概要

近年、物質中の電子の波動関数の位相がなす幾何学的な構造(トポロジー)に起因する新しい量子相の探求や外場応答が物性研究の大きな潮流として発展している。本研究は、その中で物質のトポロジーに起因する非線形光学応答:「トポロジカル非線形光学」に着目し、新たな動作原理に基づく光エレクトロニクスへの応用の可能性を拓くことを目指した。非線形光学応答は大別すると摂動論的な応答と非摂動論的な応答に分類することができる。前者では例えば 2 次の非線形光学応答として第 2 高調波発生による波長変換や光起電力効果、シフト電流が挙げられる。後者を代表するのが振動光外場による量子状態操作であり、フロッケ理論に基づいて定式化されることから近年ではフロッケエンジニアリングと呼ばれている。本研究では、この二つの側面からトポロジカル非線形光学を探求した。特に、円偏光照射下にある 3 次元ディラック半金属が示す新規な光電変換現象、光誘起輸送現象の探求を本研究チーム共通の研究課題と位置づけ協働して基礎原理の解明に取り組んだ。さらに、対象を広範な量子物質(磁性ワイル半金属、従来型及び非従来型超伝導体、原子層物質、磁性体、マルチフェロイクス物質、強誘電体)に拡張することで、それらの物質に内在するトポロジカル非線形光学応答を顕在化させ、新たな機能の開拓に資することを目指した。各グループが主として実施した研究課題を以下に記す。

島野 Gr は林 Gr,理論 Gr と協働して、半金属 Bi における円偏光誘起光電流現象をテラヘルツ(THz)領域に拡張し新たな原理に基づく簡便な THz 放射の手法を実現した。領域内連携(塚崎チーム)を通して、強磁性ワイル半金属の室温常磁性ディラック電子相においてフロッケ理論の予測に基づくディラック-ワイル変換の実証実験を行い、フロッケワイル半金属状態生成につながるバンド構造の超高速変調を、光誘起異常ホール効果の観測から実証することに成功した。また、岡 Gr との連携により、従来のフロッケ理論では見落とされていた新たなフロッケワイル状態が一光子共鳴点に発現することを明らかにした。さらに強磁性ワイル半金属相において、全光学的かつ不揮発な磁化反転・カイラリティの反転現象を発見し、光による磁性ワイル半金属の制御に道を拓いた。続いて光書き込みと輸送現象測定と融合し、強磁性ワイル半金属の巨大な反対称磁壁抵抗の観測に成功した。超伝導体において巨大化する非線形テラヘルツ光学応答の開拓を進めた。電流注入下にある超伝導体の非相反非線形光学応答の観測、超伝導体における超高速ピコ秒時間領域での磁束量子の運動の可視化と磁束量子の質量の決定、電子ネマティック秩序を示す鉄セレン系超伝導体の集団励起モードの観測による秩序変数対称性の検証、トポロジカル光波を用いた超伝導ヒッグスモードへの軌道角運動量の転写など、超伝導体における非線形光学の新たな領域を開拓した。

岡 Gr はレーザー電場の効果を摂動及び非摂動的に取り込んだ理論研究を行い、幾何学的トンネル効果やフロケットポロジカル相の発現、光誘起カイラルゲージ場生成、3 次元ディラック半金属における円偏光誘起異常ホール効果や円偏光誘起光電流、光誘起シフト電流などに関する基礎学理を構築した。

林 Gr は半金属 Bi における円偏光誘起光電流現象の機構解明を主として、薄膜試料作成と光輸送測定を進めた。本研究により分子線エピタキシー製膜装置を導入し、高品質の Bi 系薄膜成長設備を整備した。これにより、系統的な試料作製に基づく光輸送現象測定が可能となり、円偏光誘起光電流現象の起源として円偏光誘起逆スピンホール効果が主たる要因であることを示唆する結果を得た。円偏光誘起逆スピンホール効果の直接的な検証となる表面スピン蓄積の観測に向けて、磁気光学測定の高感度化を進め、Pt,W,Bi 等スピン軌道相互作用の大きな金属におけるスピン蓄積の光学的観測を可能にした。

森本 Gr はシフト電流の理論を磁性体、超伝導体へと拡張した。遷移金属ダイカルコゲナイド系のヘテロ構造におけるシフトカレント、磁性体におけるマグノンシフトカレント、超伝導体におけるシフトカレントなど、トポロジカル非線形光学の研究対象を大幅に拡張し、可視光からテラヘルツ、さらにマイクロ波領域に亘る光電変換現象の提案・実証を進めた。銅酸化物高温超伝導体への円偏光照射によるトポロジカル超伝導の発現について、強電子相関効果を理論計算に実装し、フロケットポロジカル超伝導状態の理論的実証に成功した。また、多バンド超伝導体

における集団励起モード(レグットモード)の理論予言を行った。

以上を総合して、本研究では物質中のトポロジに起因して発現する非線形光学効果の解明、フロケエンジニアリングに基づく物質のトポロジの外場による操作・制御手法の探求を広範な量子物質に対して展開し、「トポロジカル非線形光学」の基礎学理を創出した。これらの研究を遂行する中で、実験、理論を問わず若手メンバーが自由に議論する環境が醸成され、密接なチーム内連携協力体制が構築された。

(2)顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. 3次元ディラック電子系のフロケエンジニアリングの基礎を確立

概要:3次元ディラック電子系に円偏光を照射すると、光の照射中にワイル半金属状態に変化することがフロケ理論により予測されていた。このフロケワイル状態の前駆状態であるディラックバンドのスピン分裂を、光誘起異常ホール効果の観測から実証した。室温で3次元ディラック電子の性質を示す化合物 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ の薄膜試料に中赤外円偏光のパルス照射することで生じる異常ホール効果の観測に成功し、異常ホール伝導度がフロケ理論から予想される光電場強度(E)および光角周波数(Ω)に対する依存性($\propto E^2/\Omega^3$)を示すことを明らかにした。この結果は、光により瞬時にワイル半金属状態を創出する新たな手法を提供するものであり、フロケエンジニアリングの今後の発展の重要な基盤となる成果である。

2.円偏光誘起フロケトポロジカル超伝導状態の理論的実証

概要:銅酸化物高温超伝導体を念頭に、電子相関を取り入れた超伝導フロケ理論を構築し、d波超伝導状態に円偏光を照射することでトポロジカル超伝導体を実現できることを理論的に実証することに成功した。さらに、時間依存グッツヴィラー近似により円偏光照射d波超伝導体の時間発展シミュレーション法を構築し、遠赤外領域の励起波長において実験可能な電場強度の範囲で、時間反転対称性の破れたフロケトポロジカル超伝導状態が実現することを理論的に明らかにした。

3. シフト電流の理論の超伝導体・磁性体への拡張

概要:これまで主にバンド絶縁体に対して研究がなされてきたシフト電流の理論を相互作用する電子系に拡張することで、バンドギャップ以下の準粒子励起や集団励起モードによるシフト電流発生の理論構築を行った。特に、マルチフェロ磁性体において、電気分極を伴う磁気励起であるエレクトロマグノン光を駆動することで、シフト電流機構によりテラヘルツ及び、サブテラヘルツ帯において直流電流が現れることを明らかにした。さらに、マルチフェロイック磁性体である希土類マンガ酸化物 RMnO_3 において、高強度テラヘルツ照射下において光起電力効果が実験的に観測され、マグノンシフト電流機構により実験結果をよく再現することを示した。

<科学技術イノベーションに大きく寄与する成果>

1. 円偏光照射によるディラック電子系の偏光依存光起電流の発見とテラヘルツ波発生素子への応用

概要:ディラック半金属 Bi 薄膜を対象として、円偏光照射により光のヘリシティに依存する光起電流効果が巨大化することを明らかにした。さらに用いる光をフェムト秒光パルスにすることで、ヘリシティ依存の瞬時光起電流から生じる高効率のテラヘルツ波放射現象の観測に成功した。その微視的機構として円偏光照射によるスピン流生成と逆スピンホール効果によるスピン流電流変換がピコ秒時間領域で生じていると解釈できることを示した。これらの成果は円偏光のヘリシティに依存する光電変換素子や新原理に基づくテラヘルツ波光源への応用が期待される。

2.テラヘルツ帯時間分解磁気光学計測手法の開発による光誘起異常ホール効果の観測及び超高感度磁気光学測定によるスピン・軌道磁気モーメントの光検出

概要:

- ・高感度テラヘルツ時間分解磁気光学計測手法の開発:サブピコ秒の時間分解能で異常ホール効果を観測する高感度テラヘルツ時間分解磁気光学計測手法を開発した。円偏光照射によって生じるトポロジカル相の特異な輸送特性を超高速かつ高感度に検出することを可能にした。
- ・スピン・軌道磁気モーメントの光検出:磁気光学効果を応用して、スピンホール効果、軌道ホール効果によって生じる伝導電子由来のスピン・軌道磁気モーメントの蓄積を光で検出する手法を確立した。入射光と反射光の偏光面の向きの違い(回転角)を 1 nrad 程度の精度で決定できる超高分解の光学系を用いることで、電流によって誘起される金属表面でのスピン・軌道磁気モーメントの蓄積を計測できることを実証した。

3. 円偏光パルスによる強磁性ワイル半金属の全光学的不揮発磁化・カイラリティ反転の実証

概要:強磁性ワイル半金属 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 薄膜に円偏光パルスを照射することで、磁化とワイル電子が有するカイラリティを全光学的かつ不揮発に反転、制御することに成功した。さらに、強磁性ワイル半金属に光で磁気構造を書き込むことで、光によるカイラリティドメインの生成とドメイン壁抵抗の測定に成功した。ワイル強磁性体を用いた光書き込みメモリーへの応用、カイラルドメインを利用した電子素子応用への新たな可能性を拓いた。

<代表的な論文>

1. "Light-induced anomalous Hall conductivity in the massive three-dimensional Dirac semimetal $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ ", Naotaka Yoshikawa, Shun Okumura, Yoshua Hirai, Kazuma Ogawa, Kohei Fujiwara, Junya Ikeda, Akihiro Ozawa, Takashi Koretsune, Ryotaro Arita, Aditi Mitra, Atsushi Tsukazaki, Takashi Oka, and Ryo Shimano, *Phys. Rev. B* **111**, 245104 (2025). (*Editors' Suggestion*)

概要:3 次元ディラック電子系に円偏光を照射すると、光の照射中にワイル半金属状態に変化することがフロッケ理論により予測されていた。このフロッケワイル状態の前駆状態であるディラックバンドのスピン分裂を、光誘起異常ホール効果の観測から実証した。室温で 3 次元ディラック電子の性質を示す化合物 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ の薄膜試料に中赤外円偏光のパルスを照射することで生じる異常ホール効果の観測に成功し、異常ホール伝導度がフロッケ理論から予想される光電場強度(E)および光周波数(Ω)依存性($\propto E^2/\Omega^3$)を示すことを明らかにした。この結果は、光により瞬時にワイル半金属状態を創出する新たな手法を提供するものであり、フロッケエンジニアリングの今後の発展の重要な基盤となる成果である。

2. "Non-volatile chirality switching by all-optical magnetization reversal in ferromagnetic Weyl semimetal $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ ", Naotaka Yoshikawa, Kazuma Ogawa, Yoshua Hirai, Kohei Fujiwara, Junya Ikeda, Atsushi Tsukazaki, and Ryo Shimano, *Commun. Phys.* **5**, 328 (2022).

概要:強磁性ワイル半金属 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 薄膜に円偏光パルスを照射することで、全光学的かつ不揮発に磁化を反転させることに成功した。時間分解磁気光学顕微鏡を開発し、磁化反転を時間・空間分解して観察することで、反転の微視的機構を解明した。さらに強磁性ワイル半金属において磁化とワイル電子のカイラリティの符号が結合していることにより、磁化反転に伴ってワイル電子のカイラリティも反転していることを、テラヘルツ波を用いた異常ホール効果の測定から明らかにした。強磁性ワイル半金属の全光学的磁化・カイラリティ反転の実証は世界初であり、ワイル磁性体の光制御に道を拓く成果である。

3. "Nonadiabatic nonlinear optics and quantum geometry — Application to the twisted Schwinger effect", Shintaro Takayoshi, Jianda Wu, Takashi Oka, *SciPost Phys.* **11**, 075 (2021).

概要:外部電磁場によって系を駆動する際の非摂動的な過程を記述する枠組みとして、フロッケ理論とトンネル理論が広く知られているが、後者では、量子幾何学的効果に関する研究は、Berry による 1990 年の先駆的な研究を除いて、これまで十分に発展してこなかった。本研究では、「量子幾何に基づく非断熱的な非線形光学」の理論を構築することを目指し、特に Berry の量子幾何学的トンネル公式を幾何学的振幅項(シフトベクトル)に関して高次まで拡張し、これにより新たに「幾何学的完全トンネル効果」を発見した。さらに、この新しいトンネル

公式を用いて、ディラック電子におけるトンネル励起現象であるシュウィンガー効果における幾何学的効果を研究した。特に、従来の光学過程において光学選択則が果たす役割を、トンネル領域においては量子幾何学的トンネル公式が担うことを示した。本研究は、量子幾何学的効果を用いた新しい非線形光学理論の構築に寄与するとともに、トンネル現象における幾何学的側面の理解を深めるものであり、今後の量子物質や光学系への応用が期待される。

§2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

本研究チームは実験2グループ(島野、林)、理論1グループ(岡)による実験・理論協力体制のもとで研究を展開した。2023年度からは理論グループから森本グループが独立し、実験2グループ、理論2グループ体制となり、より機動力の高い密接な実験・理論協力連携体制に変更した。それぞれのグループが担当した課題を以下に記す。

① 島野グループ

研究代表者: 島野 亮(東京大学低温科学研究センター 教授)

研究項目

- ・テラヘルツ帯非線形光エレクトロニクス
- ・超伝導体における非線形光学応答
- ・フロッケエンジニアリング

② 林グループ

主たる共同研究者: 林 将光(東京大学理学系研究科 准教授)

研究項目

- ・ヘテロ構造光電変換
- ・光誘起非線形スピン流

③ 岡グループ

主たる共同研究者: 岡 隆史(東京大学物性研究所 教授)

研究項目

- ・ディラック電子系の円偏光光誘起電流の非摂動的理解
- ・ディラック半金属、ワイル半金属のフロッケ操作の理論

④ 森本グループ

主たる共同研究者: 森本 高裕(東京大学工学系研究科 准教授)

- ・フロッケトポロジカル超伝導の理論
- ・マグノンシフト電流の理論
- ・フォノン励起によるシフト電流の理論

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

本研究は多くの国内、国外研究者との共同研究、連携研究として進められ、連携研究ネットワークの形成に大きく貢献した。本研究に関連する主な共同研究者を以下に示す。

○共同研究(国内)

東北大学金属材料研究所 塚崎敦教授(現 東京大学大学院工学系研究科 教授)

東北大学金属材料研究所 高梨弘毅教授

東京大学大学院理学系研究科 小形正男教授

東京大学総合文化研究科 前田京剛教授

東京大学大学院工学系研究科 岩佐義宏教授(現 理化学研究所)

東京大学大学院工学系研究科 中野匡規准教授(現 芝浦工業大学 教授)

東京大学大学院工学系研究科 高橋陽太郎准教授

東京大学物性研究所 井手上敏也准教授(トポロジー領域さがけ)

大阪大学大学院理学研究科 新見康洋教授

情報通信機構未来 ICT 研究所 寺井弘高室長

○共同研究(国外)

ドイツ Peter Grünberg Institute Frank Freimuth 博士

アメリカ ニューヨーク大学 Aditi Mitra 教授

ドイツ ドルトムント工科大学 Zhe Wang 教授

ドイツ マックスプランク複雑物理学研究所 Roderich Moessner 所長

ドイツ マックスプランク固体物理学研究所 Dirk Manske 教授

ドイツ ドレスデン工科大学 Stefan Kaiser 教授

フランス パリ大学 Yann Gallais 教授

ポーランド ヴロツワフ工科大学 Piotr Surówka 准教授

アメリカ オハイオ州立大 Alexandra Landsman 准教授

アメリカ カリフォルニア大学バークレー校 Joel Moore 教授

アメリカ カリフォルニア大学バークレー校 Alessandra Lanzara 教授

台湾 国立台湾大学 Guang Yu Guo 教授

研究期間の最終年度には 2025 年 2 月 19-21 日の日程で、本研究で主題としたトポロジカル非線形光学に関する国際ワークショップ“Topological Nonlinear Optics in Quantum Materials”を東京大学物性研究所で開催した。海外からの招待講演者 7 名、国内招待講演者、国内若手研究者、大学院生によるポスター発表を合わせて、参加者は 85 名に達した。トポロジカル物質における特異な光学応答や非線形光学現象の基礎的理解、将来的なデバイス応用や新機能材料創出に向けて活発な討論がなされた。海外の気鋭の若手研究者を含めた国際交流、国際研究ネットワーク形成の面からも有意義なワークショップとなった。