

トポロジカル磁性体の磁気光学応答

高橋陽太郎

東京大学大学院工学系研究科附属量子相エレクトロニクス研究センター
理化学研究所創発物性科学研究センター

1. はじめに

磁気光学効果は物質中、または物質の界面で光の偏光が回転する現象である。マイケル・ファラデーによって発見された磁気光学効果は、現在ではアイソレーターや光磁気デバイスとして利用されている。トポロジカル物質では、その電子構造を反映した電磁気応答が生じることがあり、本ゼミではその例として磁気光学効果を取り扱う。磁性トポロジカル物質に特有の現象として量子化異常ホール効果、巨大な異常ホール効果や非線形光学効果が知られている。異常ホール効果は、強磁性体において生じる自発的なホール効果であり、その起源の一つがバンド構造に由來した内因性機構である[1]。近年の研究で、トポロジカルな電子構造によって、異常ホール効果が増大されることが明らかになり、トポロジカル物質の一つの特徴であると認識されている[2-4]。通常、異常ホール効果はゼロ周波数極限(DC)の輸送現象として観測されるが、それらは有限周波数の応答に拡張することが可能である。光の電磁場に対する異常ホール効果は磁気光学効果として観測される。例えば量子化異常ホール状態では、磁気光学効果による偏光回転角が量子化値を取る量子化磁気光学効果が観測される[5]。また、磁気光学効果スペクトルは、異常ホール効果の起源となるバンド構造を反映したものとなる。例えば、ワイル点や線ノードと呼ばれるバンドの特異点(線)付近の光学遷移では、特に大きな磁気光学効果が生じる。本ゼミでは、磁気光学効果の観測原理と、トポロジカル物質における磁気光学応答の代表例を紹介する。

2. 磁気光学効果

磁気光学効果とは、磁気的性質が光に影響を与える効果の総称であるが、その代表例は物質中を透過する光の偏光が回転するファラデー効果である。図1(a)のように物質中で磁化と平行に進む直線偏光の光を入射すると、磁化に比例した偏光回転が生じる。光吸収がある場合には、橢円偏光が生じる。ファラデー効果は左右円偏光に対する応答

の差によって生じる。図1(b)のように、直線偏光は左右円偏光の和で表現できる。左右円偏光に屈折率の差があるときには偏光方向が回転した直線偏光となる(図1(c))。一方で、左右円偏光に対して異なる光吸収が存在する場合には楕円偏光となる(図1(d))。回転角 θ_F と楕円率 η_F はKramers-Kronigの関係式で結びついており独立な量ではない。反射配置における磁気光学効果は磁気カーポラリゼーションと呼ばれ、ファラデー効果の場合と同様に反射光の偏光回転角と楕円率が観測量となる。これらの磁気光学効果は、物質の誘電率テンソルや電導度テンソルの非対角成分に由来している。例えばz方向に進む光に対して、等方的な比誘電率の対角成分 ε_{xx} を持つ物質の応答を考えると、回転角 θ_F と楕円率 η_F と誘電率テンソルの関係は次のようになる。

$$\theta_F + i\eta_F = -\frac{\omega}{2c} \frac{i\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}}} l$$

ここで c は光速、 ω は光の角周波数、 l は物質中を伝播する距離であり、 ε_{xy} は比誘電率の非対角項である。 θ_F 、 η_F に加えて、反射率から求まる ε_{xx} から、 ε_{xy} を導出することができる。また、比誘電率と電導度には以下の関係が成り立つ。

$$\varepsilon_{ij} = \delta_{ij} + i \frac{\sigma_{ij}}{\omega\varepsilon_0}$$

ここで δ_{ij} はクロネッカーデルタである。本ゼミで取り扱うトポロジカル物質の磁気光学効果は、異常ホール効果の光学応答への拡張ともいえるものであり、輸送測定で求まるDCホール電導度 σ_{xy} との定量的な比較が重要な意味を持つ。このため、偏光回転角や楕円率だけではなく、ホール電導度スペクトル $\sigma_{xy}(\omega)$ を実験的に導出すると、トポロジカル電子構造との対応関係を議論することができる。

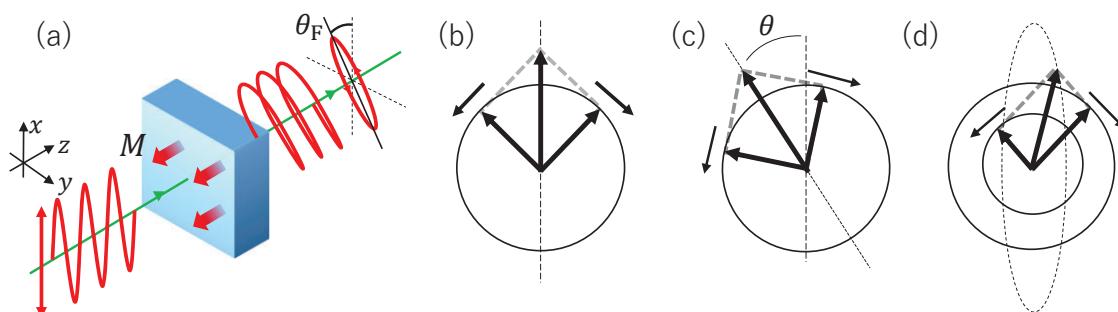


図1：(a) ファラデー効果の概念図。磁化 M に平行に直線偏光を入射すると旋光し、楕円偏光となる。(b) 直線偏光は左右の円偏光に分解できる。(c) 左右の円偏光に対する屈折率が異なると、位相がずれるため傾いた直線偏光となる。(d) 左右の円偏光に対する吸光度が異なると楕円偏光になる。

3. 異常ホール効果

磁場中におかれた金属や半導体で、電流と磁場に垂直方向に電場が生じる現象はホ

ール効果と呼ばれる。電子のサイクロトロン運動により生じる正常ホール効果とは別に、磁性体では物質の磁化に比例したホール効果が生じる。これは異常ホール効果(anomalous Hall effect)と呼ばれており、磁場 B と磁化 M の方向を z とすると、ホール抵抗率 ρ_{yx} は以下のように表せる。

$$\rho_{yx} = R_0 B + R_A M$$

ここで R_0 は正常ホール係数、 R_A は異常ホール係数である。この磁化に依存する異常項の起源については、外因性のものと内因性のものが存在する[1]。外因性機構は不純物散乱を起源とする機構である。スピンが逆向きの電子が異なる散乱を受ける skew 散乱や side jump 機構が提案されている。一方で内因性機構は、不純物には依らない機構であり、Karplus と Luttinger によって提唱された。彼らの説は、異常項がバンド構造とスピン軌道相互作用に由来するものであるというものであるが、近年更に研究が進み固体中の電子の波動関数に付与されるベリー曲率と密接な関係があることが指摘されている。線形応答理論では久保公式からホール電導度は以下のように表すことができる[6]。

$$\sigma_{xy} = i \frac{e^2}{\hbar} \sum_n \sum_k f(\varepsilon_n(k)) \times \sum_{m \neq n} \frac{\langle nk | \hat{v}_y | mk \rangle \langle mk | \hat{v}_x | nk \rangle - \langle nk | \hat{v}_x | mk \rangle \langle mk | \hat{v}_y | nk \rangle}{[\varepsilon_n(k) - \varepsilon_m(k)]^2}$$

ここで $f(x)$ はフェルミ分布関数、 $\varepsilon_n(k)$ はバンド n の分散、 $|nk\rangle$ はバンド n の波数 k を持つ状態のケット、 $\hat{v}_{x/y}$ は速度演算子を表している。この式からホール電導度 σ_{xy} は最終的に以下のように書かれる。

$$\sigma_{xy} = \frac{e^2}{\hbar} \sum_{mk} f(\varepsilon_m(k)) [\nabla_k \times \mathbf{A}_m]_z$$

ここで \mathbf{A}_m はベリー接続と呼ばれる量で、

$$\mathbf{A}_m = -i \langle mk | \nabla_k | mk \rangle$$

と表される。また、

$$\nabla_k \times \mathbf{A}_m$$

はベリー曲率と呼ばれる。ベリー接続は波数空間におけるベクトルポテンシャルとみなせ、その回転であるベリー曲率は仮想的な磁場とみなすことができる。この仮想磁場を創発磁場と呼び、これによって異常項が生み出されると考えられる。

ここで簡単なモデルを使って、DC の輸送現象として観測される異常ホール効果と磁気光学効果として観測される光学ホール電導度の対応関係を考える。2次元で2バンドからなる磁性トポロジカル絶縁体の表面状態のハミルトニアンは、次のように表すことができる。

$$H = -\mu + \hbar v_F (\sigma_x k_y - \sigma_y k_x) + \Delta \sigma_z$$

ここで σ_x 、 σ_y 、 σ_z はパウリ行列である。この式は、ディラック点でギャップ 2Δ が開いた図2 (a) のようなバンドを表している。ここで、 μ はディラック点とフェルミレベルの差に対応する化学ポテンシャルである。このバンドから生じるホール電導度スペクトルは以下のようになる[7,8]。

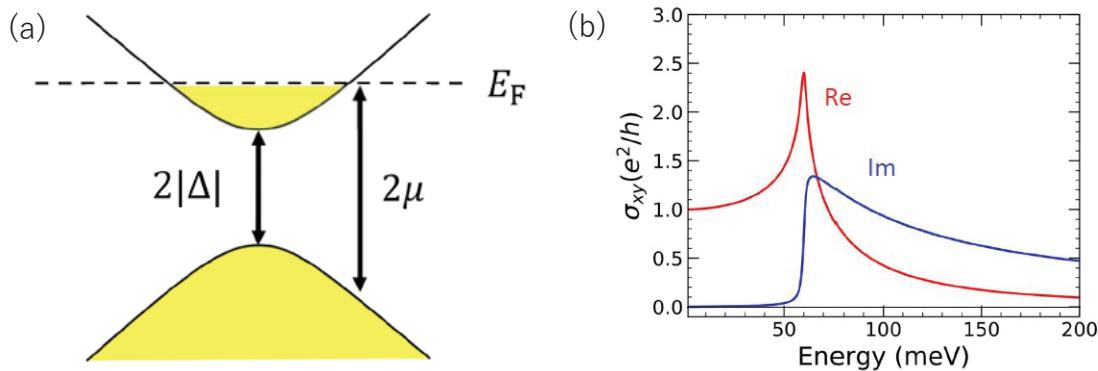


図2：(a)質量を持ったディラック分散。(b)ホール電導度スペクトルの例。赤が実部、青が虚部を表している。用いたパラメーターは $\mu = 30$ meV、 $\Delta = 30$ meV、 $\delta = 1$ meV。

$$\sigma_{xy}(\omega) = \frac{e^2}{h} \frac{\Delta}{\hbar\omega + i\delta} \ln \left| \frac{-\hbar\omega - i\delta + 2\mu}{\hbar\omega + i\delta + 2\mu} \right|,$$

ここで、 δ は共鳴の広がりを与えるパラメーターとして導入した。この複素スペクトルは図2(b)のような構造を持つ。フェルミレベルがディラック点にあるとき、系は絶縁体となり量子化異常ホール効果が実現する。質量ギャップの遷移エネルギー 2Δ で共鳴構造が現れる。実部のゼロ周波数極限は輸送測定で観測されるホール電導度に対応する。一方、位相遅れを表す虚部は $\omega = 0$ では必ずゼロとなる。虚部のスペクトルを見ると、質量ギャップ間の遷移のエネルギー以下ではほぼゼロとなっているが、それ以上のエネルギーでは有限の値を取っている。これは虚部のスペクトル構造が、異常ホール効果を生み出すバンド間の遷移に対応しているということを意味している。また、対角項 $\sigma_{xx}(\omega)$ のスペクトルとの違いとして、電導度が正負両方の値を取ることができるという点が挙げられる。

ホール電導度スペクトルの実部と虚部は Kramers-Kronig の関係式から導かれる以下のような総和則を満たしている。

$$\text{Re}\sigma_{xy}(\omega) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\omega' \text{Im}\sigma_{xy}(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega'$$

ここで $\omega = 0$ とすると、

$$\text{Re}\sigma_{xy}(0) = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\text{Im}\sigma_{xy}(\omega')}{\omega'} d\omega'$$

となる。DC で観測されるホール電導度は、虚部のスペクトルを全周波数帯で積分したものから与えられると理解できる。更に、分母にある ω' から、より低エネルギーの共鳴構造がより大きな異常ホール効果を出すということがわかる。

近年トポロジカル物質と呼ばれ盛んに研究がおこなわれているワイル半金属やノーダルライン半金属などは、フェルミレベル付近にバンド交差点や交差線を持つために、極めて大きな異常ホール効果を示すことが知られている。例えば磁性ワイル半金属であ

る $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ では、異常ホール電導度が $1000 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ 、ホール角 (σ_{xy}/σ_{xx}) が 20 %にも到達する巨大な異常ホール効果が観測されている[3]。これらは、トポロジカルバンドの特異点や線に由来した大きなベリー曲率に由来していると考えられている。このようなバンド間の光学遷移はホール電導度スペクトルに共鳴構造を生じさせることが期待でき、実験的に異常ホール効果の起源となるバンドを特定することが可能となる。もう一点興味深い点は、共鳴により増強された磁気光学効果が生じるという点である。これまでに、トポロジカル物質では巨大な非線形光学効果が観測されるなど、光学効果という観点で既存の物質では得られない機能性の存在が示唆されているが、磁気光学効果はその候補となりうる。

4. 時間領域テラヘルツ分光とFTIRを用いた偏光分光

通常の光学測定では、物質の反射光や透過光の強度を測定することが多い。これに対して、磁気光学測定では反射光や透過光の偏光を測定する必要がある。トポロジカルな電子構造は、フェルミレベルから見て数百 meV 以内に位置していることが多い。そこでこれらの光学遷移を観測するためには低エネルギーの磁気光学分光測定が必要となる。

時間領域テラヘルツ分光法は近年大きく進歩を遂げた分光手法であり、主に 1-20 meV、波長で 60-1000 μm の領域の分光を行う手法である。多くの場合は、100 fs 程度の幅を持つ近赤外領域のパルスレーザーを光源とし、いくつかの手法で

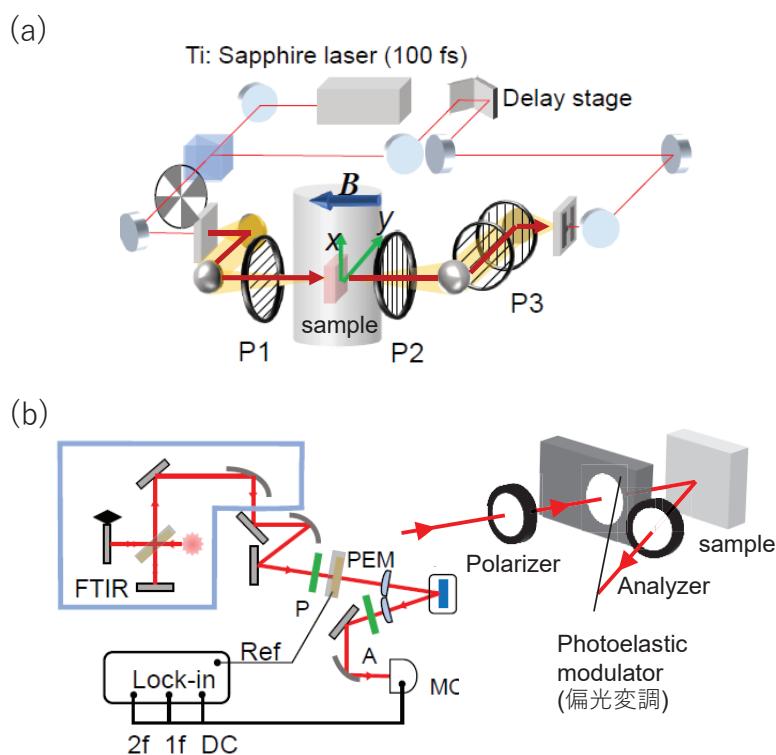


図 3 : (a) 時間領域テラヘルツ分光を用いた偏光分光の光学系。P1-3 はワイヤーグリッド偏光子を示す。光は P1 から P2 方向に進んでいる。偏光回転を測定するときには、P1 と P2 を、縦電導度 σ_{xx} を測定するときには P1 と P3 を用いる。(b) FTIR を用いた偏光分光の概念図。反射配置で磁気カーポリ効果の測定を行う。PEM で偏光変調を行うことで、回転角 (2f) と橋円率 (1f) の測定を行う。

テラヘルツ光の発生と検出を行う。高エネルギー帯の分光法と大きく異なる点は、光の電場成分を直接観測することができるという点であり、偏光測定においても大きなメリットとなる。図3(a)のように試料の前後に直交した偏光子を配置し透過光の電場を測定すると、透過光の偏光回転成分の波形が観測される。これを、偏光子対を平行に置いたときの波形と比較すると、電場波形の振幅と位相という2つの情報から回転角と楕円率の両者を独立に求めることができる[9, 10]。

フーリエ変換型赤外分光器(FTIR)は赤外領域の光強度の測定に一般的に用いられる手法である。干渉計から得られるインターフェログラムをフーリエ変換することで、光の強度が得られる。FTIRを用いた偏光測定は、いくつかの手法が知られているが、光弾性変調器(PEM)と組み合わせることで、回転角と楕円率の測定が可能となる。実験装置を図3(b)に示す。直線偏光の赤外光を高速に左右の円偏光に変調し、その変調周波数と2倍の周波数に同期した光強度から、回転角と楕円率が独立に求まる[11]。測定可能なエネルギー範囲は、用いる光学素子や検出器によって決まる。例えばZnSeを用いたレンズやPEMを使用する場合には、80 meV程度が測定の下限のエネルギーとなる。

5. 磁性ワイル半金属の巨大磁気光学効果

実際のトポロジカル物質を例にとり、その磁気光学応答について説明する。 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ は近年見出された磁性ワイル半金属である[3, 12]。図4(a)のように、 Co_3Sn 層内のCo原子がカゴメネットワークを形成しており、キュリー点が175 Kの強磁性転移を示す物質である。スピン軌道相互作用が無い場合のバンドを見ると(実線、図4(b))、 Γ -L、L-U方向でフェルミレベルの上下にバンド交差点が見られる。スピン軌道相互作用を考

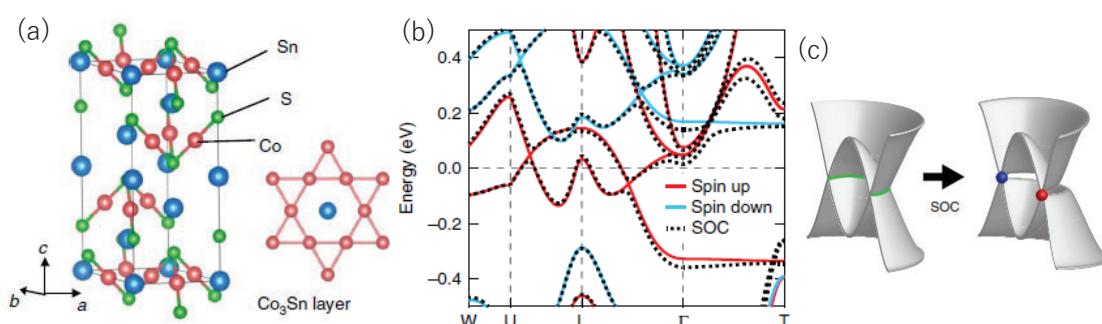


図4：(a) $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ の結晶構造。(b) $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ のバンド構造。実線はスピン軌道相互作用がない場合の分散。 Γ -L、L-U方向でフェルミレベル付近にバンド交差点が存在するのがわかる。スピン軌道相互作用を入れると(点線)、ワイル点を除く交差線上でギャップが開く。エネルギーがゼロの位置がフェルミレベルである。(c)トポロジカル電子構造の概念図の断面。スピン軌道相互作用がない場合(左)は交差線となるが、スピン軌道相互作用によってワイル点を除く線上でギャップが開く。[10]

慮すると、ワイル点のペアを除くラインノード上でギャップが開く（図4(c)）。この物質のトポロジカルな電子構造は角度分解光電子分光を用いて確認されており、 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ が磁性ワイル半金属であることが明らかになっている。 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ では巨大な異常ホール効果が観測されており、最低温では $1300 \Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ に達するホール電導度が観測されている。

磁気光学効果のスペクトル測定には薄膜とバルク単結晶試料の両方を用いた。金属のバルク試料では透過光が得られないため、反射配置での磁気カーポー効果が用いられる。一方で、薄膜試料を用いると、金属試料であっても透過測定が可能であり、ファラデー効果を用いた測定が可能となる。特にテラヘルツ帯の磁気光学分光に薄膜試料を用いると、非常に高い感度で低エネルギー極限の分光を行うことができる。図5は薄膜試料におけるテラヘルツ帯のファラデー効果、遠・中赤外領域での磁気カーポー効果の測定結果である[10]。テラヘルツ帯では最大で 150 mrad（約 9 度）の偏光回転が観測された（図5(a)）。スペクトルには目立った構造は無く、おおよそ平坦である。キュリー点以下で有限の偏光回転が生じ、120 K で最大となったのち、最低温に向かって徐々に減少する振る舞いが見られている。薄膜では、おおよそ縦電導度と横電導度の比が回転角となるが、テラヘルツ帯では伝導電子のドリーデ応答が低温で大きくなるため、回転角が小さくなっている。一方で、楕円率（図5(b)）は、ゼロ周波数に向かって単調に小さくなっている。次に、100 meV 以上の磁気カーポー効果のスペクトルを見ると、明確な共鳴構造が 400 meV 以下に現れる。図5(c)は回転角スペクトルであるが、低エネルギーに向かって大きく立ち上がり、100 meV 付近で最大振幅を持つ。一方で、500 meV 以上では回転角、楕円率ともにフラットであり、特徴的な構造は観測されていない。また、回転角の最大値は -60 mrad 程度であり、強磁性金属の中で極めて大きな値である。

これまで、磁気光学効果のスペクトルを見てきたが、異常ホール効果との定量的な比較や、電子構造との対応関係を見るために光学電導度と光学ホール電導度スペクトルに注目する（図5）。図5(a)と(b)はそれぞれテラヘルツ帯と赤外域の光学電導度スペクトル $\sigma_{xx}(\omega)$ である。テラヘルツ帯では伝導電子のドリーデ応答の寄与が支配的であり、低エネルギーに向かって実部が増大する金属の典型的な振る舞いが観測されている。虚部のピーク位置が伝導電子の散乱レートに対応し、今回用いた $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 薄膜では約 1 ps (4 meV) と良い金属であることがわかる。一方で、赤外域ではバンド間遷移による共鳴構造が観測されている。特に 0.2 eV と 0.6 eV には明確なピーク構造が見られており、これは第一原理計算で得られたバンド間遷移の構造と一致している[10]。

次に、光学ホール電導度スペクトル $\sigma_{xy}(\omega)$ を見ると、テラヘルツ帯では実部はほぼ 0 と等しく、平坦な構造が見られる（図5(c)）。これに対し、虚部はほぼゼロである。これは、テラヘルツ帯には異常ホール効果の起源となる共鳴が存在しないことを意味している。 $\sigma_{xx}(\omega)$ に現れる伝導電子のピーク構造（図5(a)）は、光学ホール電導度 $\sigma_{xy}(\omega)$

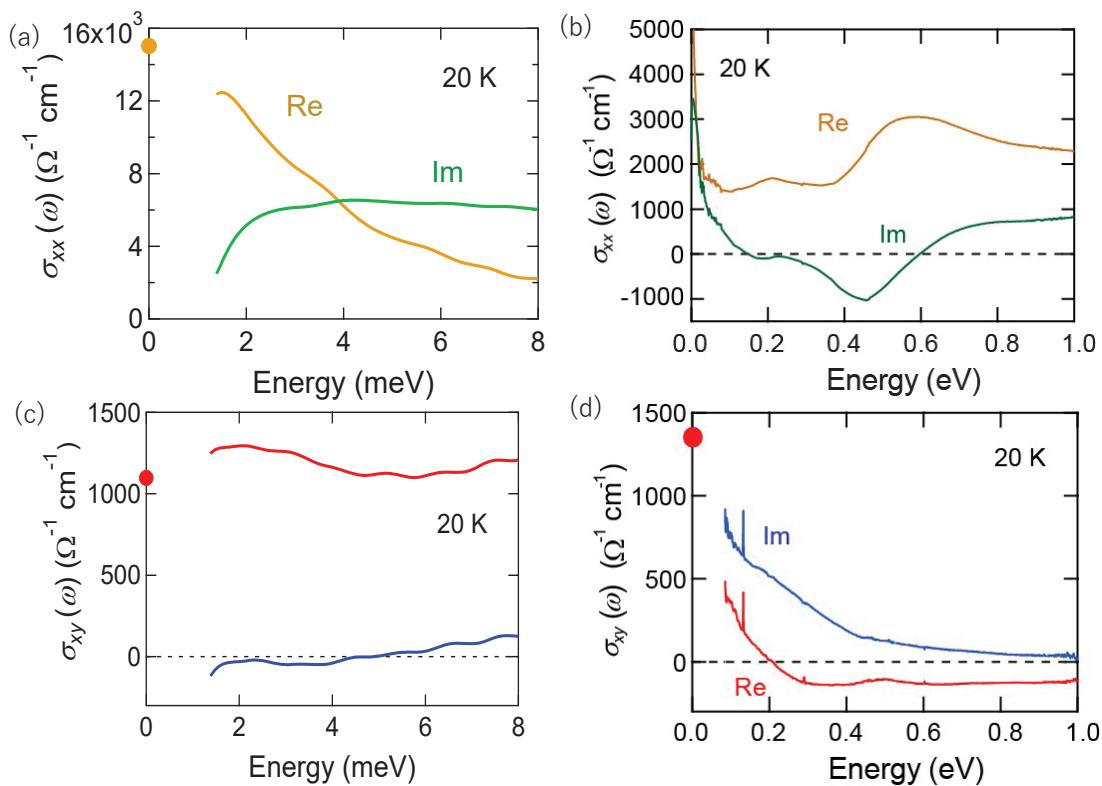


図 5:(a) $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 薄膜のテラヘルツ帯の光学電導度スペクトル $\sigma_{xx}(\omega)$ 。(b) $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ バルク単結晶の赤外領域の光学電導度スペクトル。(c) $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ 薄膜のテラヘルツ帯の光学ホール電導度スペクトル $\sigma_{xx}(\omega)$ 。(d) $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ バルク単結晶の赤外領域の光学ホール電導度スペクトル。(a)(c)(d)のゼロエネルギーの点は DC の測定によって得られた値。[10]

には反映されておらず、散乱メカニズムによって異常ホール効果が生じる外因性機構の可能性は、これらの光学スペクトルの観点からも排除できる。赤外領域では(図 5(d))明確な共鳴構造が観測されている。0.4 eV 以下で実部、虚部ともに立ち上がる振る舞いがみられるが、このエネルギーースケールの構造はバンド間遷移に由来するものである。実際にバンド間遷移のみを評価した第一原理計算から得られた光学ホール電導度のスペクトルとも良い一致を示すことが明らかになっている。光学電導度 $\sigma_{xx}(\omega)$ とその形状を比較すると、両者には大きな差があることがわかる。例えば $\sigma_{xx}(\omega)$ で 0.6 eV に見られる巨大なピーク構造は、 $\sigma_{xy}(\omega)$ では全く観測されず、同エネルギー帯では平坦かつ小さな値を取っている。このように、光学ホール電導度スペクトルはどのバンド間遷移が異常ホール効果に寄与するかを明確に示してくれる。

では、 $\sigma_{xy}(\omega)$ で観測された共鳴構造をどのように理解できるかについて考察する。2 次元のバンド反交差点のモデルでは図 2(b)のように、ギャップエネルギーを持つ共鳴が存在する。実際にテラヘルツ帯の $\sigma_{xy}(\omega)$ スペクトルで観測されたように、低周波極限

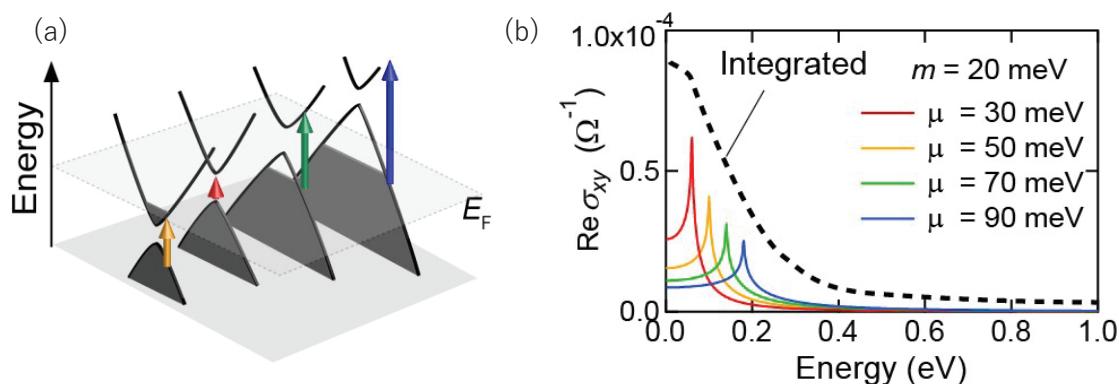


図6：(a)分散を持つノーダルライン近傍における光学遷移の概念図。図2(a)の光学遷移の化学ポテンシャルを変化させたものの和と見なすことができる。(b)いくつかの化学ポテンシャル μ を持つ共鳴をプロットしたもの。化学ポテンシャルの異なるバンド反交差点における光学遷移の積分が、ワイル点とノーダルラインを持つ電子構造の光学ホール電導度スペクトルになると考えられる。[10]

と考えられるこの帯域では共鳴は観測されず、少なくとも数テラヘルツ以上のギャップの開いたバンド間遷移が異常ホール効果に寄与していることが示唆される。 $\text{Co}_3\text{Sn}_2\text{S}_2$ ではワイル点のペアとそれらをつなぐラインノード周辺のバンド間遷移が異常ホール効果に寄与していると考えられる。ラインノードに分散がある場合には、図6(a)のように波数空間の位置によって異なるギャップエネルギーを持つことが期待される。この構造を化学ポテンシャル μ の異なる2次元反交差点を持つ電子構造の足し合わせであると見なすことができる。例えば図6(b)にいくつかの化学ポテンシャルを持つ電子構造のもので生じる光学ホール電導度スペクトルをプロットしたが、このようなノーダルライン上の光学遷移を積分することによって、低エネルギーへ向かって立ち上がる $\sigma_{xy}(\omega)$ が生じると考えられる。この結果は、異常ホール効果と低エネルギーで観測された巨大な磁気光学効果が、ワイル点に加えて、それらをつなぐノーダルラインに起因していることを示している。また、ワイル点やノーダルライン付近にフェルミレベルが位置することで、図6(b)のように低エネルギーの共鳴が増大し、総和則の式からもわかるようにDCの異常ホール効果も巨大化する。一般的に強磁性金属の磁気カーポロジカル電子構造はバンド特異点近傍の低エネルギー帯に共鳴を持つ。これは磁気光学効果の観点で見たときに、トポロジカル物質が低エネルギー光の光機能性を持ちうることを示唆している。

6. まとめと展望

以上では、トポロジカル物質の磁気光学効果に焦点を当て、背景と実験手法、磁性ワイル半金属における実例について解説した。内因性機構の異常ホール効果の研究において、磁気光学スペクトルが重要な役割を果たすだけではなく、トポロジカル電子構造が巨大な磁気光学効果の実現という点でも有用であることを示した。これまで、トポロジカル物質の光応答については非線形光学効果[13]や光起電力効果[14,15]が注目を集めることが多かったが、今後は磁気光学効果の観点からも研究が進むことが期待できる。

7. 参考文献

- [1] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. MacDonald, and N. P. Ong, Rev. Mod. Phys. **82**, 1539 (2010).
- [2] S. Nakatsuji, N. Kiyohara and T. Higo, Nature **527**, 212 (2015).
- [3] E. Lie, et al., Nature Physics **14**, 1125–1131(2018).
- [4] Q. Wang, et al., Nature Communications **9**, 3681 (2018).
- [5] K. N. Okada, et al., Nature Communications **7**, 12245 (2016).
- [6] M. Onoda and N. Nagaosa, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 19 (2002).
- [7] S. Iguchi, et al., Phys. Rev. Lett. **103**, 267206 (2009).
- [8] R. Shimano, et al., Europhys. Lett. **95**, 17002 (2011).
- [9] Y. Ikebe, et al., Phys. Rev. Lett. **104**, 256802 (2010).
- [10] Y. Okamura, et al., Nature Communications **11**, 4619 (2020).
- [11] 佐藤勝昭、「光と磁気[改訂版]」朝倉書店.
- [12] D. F. Liu, et al., Science **365**, 1282 (2019).
- [13] L. Wu, et al., Nature Physics **13**, 350-355 (2016).
- [14] N. Ogawa, et al., Nature Communications **7**, 12246 (2016).
- [15] G. B. Osterhoudt, et al., Nature Materials **18**, 471-475 (2019).