

博士論文

光誘起高速スピンドYNAMIKSの理論

小野 淳

平成30年

目次

第 1 章	序論	1
1.1	光照射による高速スピンドYNAMICSと磁性制御	1
1.1.1	超高速消磁	1
1.1.2	磁性変化を伴う光誘起相転移	2
1.1.3	コヒーレント制御と Floquet エンジニアリング	3
1.2	遍歴磁性体への光照射効果に関する理論研究	6
1.2.1	二重交換系の光誘起ダイナミクス	7
1.2.2	光照射下の RKKY 相互作用	12
1.3	本研究の目的	14
1.4	単位系	15
第 2 章	非平衡 Green 関数法	17
2.1	Keldysh 形式	17
2.2	Floquet Green 関数	21
2.3	熱浴による自己エネルギー	22
2.4	非平衡応答関数	24
第 3 章	二重交換系における光誘起強磁性—反強磁性転移	27
3.1	理論模型	27
3.2	解析手法	28
3.2.1	実時間ダイナミクス	28
3.2.2	光学伝導度	30
3.3	結果	31
3.3.1	初期状態	31
3.3.2	実時間ダイナミクス	32
3.4	まとめ	41
第 4 章	光誘起過渡ダイナミクスにおけるトポロジカルスピン構造	43
4.1	理論模型	43
4.2	解析手法	45
4.3	結果	49
4.4	まとめ	54

第 5 章	遍歴磁性体の光誘起 Floquet 状態における磁気励起構造	55
5.1	定式化	55
5.1.1	理論模型	55
5.1.2	摂動展開	56
5.2	結果	60
5.3	まとめ	66
第 6 章	光誘起 Floquet 状態におけるスピン・電荷感受率	67
6.1	理論模型	68
6.2	定式化と一般論	68
6.2.1	Floquet Green 関数	68
6.2.2	スピン・電荷感受率	71
6.2.3	感受率の級数展開	73
6.3	具体例	74
6.3.1	二次元正方格子	74
6.3.2	一次元格子	81
6.4	まとめ	84
第 7 章	結論	85
補遺 A	感受率の近似的表式の導出	87
参考文献		99
研究業績		109
謝辞		113

第 1 章

序論

1.1 光照射による高速スピンドイナミクスと磁性制御

物質への光照射による物性の変化および制御に関する研究は、光伝導効果をその起こりとするならば一世紀近くの歴史を持ち [1, 2], その対象は実験技術の発展に伴って拡大と深化を続けてきた。固体中の物性現象の中でも磁性は普遍的かつ基本的な性質であり、同時に産業的・工業的にも多岐に渡って応用されるため、その光制御は重要な課題として広く認識されている。光による磁氣的性質の変化は光磁気効果または逆磁気光学効果と呼ばれ、光誘起磁気効果、光誘起磁化、光誘起スピン再配列等が古くから知られている [3, 4]。これらの磁性変化の時間スケールは短いものでナノ秒程度である。1990 年代以降、レーザー光源の発達を背景としてピコ秒やフェムト秒のオーダーの極めて高速な磁性変化が報告されるようになり、現在まで大きな進展を遂げている。ここではそのような極めて高速なスピンドイナミクスに関する研究の一部を概観する。

1.1.1 超高速消磁

磁性の高速光制御に関する先駆的な研究の一つは、Beaurepaire らにより 1996 年に報告された超高速消磁 (ultrafast demagnetization) である [5–7]。彼らは強磁性ニッケル薄膜に対して 60 fs のレーザーパルス照射し、磁気光学 Kerr 効果を利用してスピンドイナミクスのポンプ・プローブ測定を行った。図 1.1 はポンプ光とプローブ光の時間間隔の関数として磁化をプロットしたものであり、2 ps 以内の高速な磁化の減少ならびに長時間持続するプラトー (~ 0.65) へ向かう時定数 260 fs 程度の緩和が見られる。平衡状態における磁化の温度依存性との比較から過渡ダイナミクスにおけるスピン系の温度 (T_s) を見積もった結果が図 1.2(a) の丸点であり、透過率から見積もられた電子系の温度 (T_e) が四角点として併せて示されている。ポンプ光照射直後、1 ps 程度で電子系の温度は $T_e = 675$ K まで上昇し、その後 1 ps 程度の時定数で指数関数的に減少して $T_e = 550$ K で一定値となる。一方、スピン系の温度は 1 ps まで上昇し、2 ps 付近で最大値 $T_s = 580$ K を取る。その後、 T_e と同様の緩やかな変化を示す。現象論的に電子系、スピン系、および格子系をそれぞれ熱浴と見なした三温度モデル [6] の解析の結果が図 1.2(b) であり、 T_e および T_s は実験結果 [図 1.2(a)] をよく再現する。このことから、上記の高速な減磁はパルス光によって電子系の温度が急速に上昇した後、電子系とスピン系間の結合を介したスピン系の温度上昇によって磁化が減少したものと理解される。

この研究を端緒として金属磁性体や磁性半導体において多くの実験が行われ、超高速消磁 [8–19] のほか、コヒーレントな磁気歳差運動 [20–26] や光誘起磁気転移 [27–31]、磁化反転 [32–34] 等が報告され

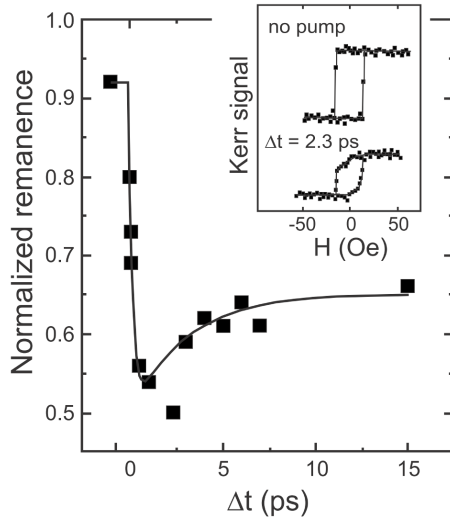


図 1.1 レーザーパルス照射後の磁化の時間変化. 右上の内挿図は定常状態および過渡状態において測定された磁気光学 Kerr 効果の信号のヒステリシスループであり, 外部磁場 $H = 0$ での値 (残留磁化) が normalized remanence である. 文献 [6] より許諾を得て転載. © 2010 American Physical Society.

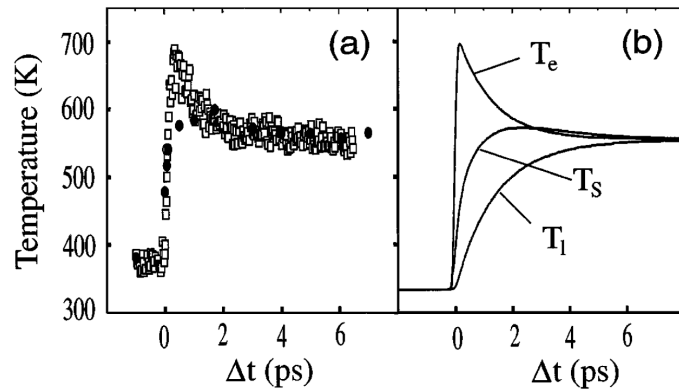


図 1.2 (a) 実験的に見積もられたスピン (T_S) および電子 (T_e) の温度. 四角が T_e , 丸が T_S を表す. 実験条件は図 1.1 と同一である. (b) 三温度モデルに基づいて計算されたスピン, 電子, および格子 (T_l) の温度. 文献 [5] より許諾を得て転載. © 1996 American Physical Society.

てきた. これらのスピンドYNAMIKSの多くは現象論的な三温度モデルや古典論的な Landau–Lifshitz–Gilbert (LLG) 方程式等により良く記述され, 光照射による温度上昇効果が本質的な役割を果たしていることが明らかにされている. また, 上記の超高速消磁に代表される熱的な光照射効果とは異なる非熱的な光磁気効果等を介した磁性制御も考えられ, 光誘起磁気歳差運動, 磁気異方性の変調, 磁化の増強・反転等が報告されている [6, 7].

1.1.2 磁性変化を伴う光誘起相転移

物質に入射した光子が多数の原子や分子と相互作用し結晶構造や電子状態が巨視的に変化する現象は光誘起相転移と呼ばれ, 1990年代から精力的に研究がなされてきた [35–48]. これは電子の持つ電荷, スピン, 軌道の各自由度や格子の自由度の間の結合が重要な役割を果たす協力現象であり, 構造相転移や絶縁体金属転移等の劇的な変化が光により誘起される. 特に磁気的な相転移を伴う場合には, これを光照射による磁性制御という観点から捉えなおすことができる.

電子間および電子格子間の相互作用が大きい強相関電子系と呼ばれる物質群は, 超伝導相や磁気・電荷秩序相等の多彩な相を持つ. これらが競合する相境界近傍では外場に対して劇的な応答を示すことから, そこでの光照射効果もこれまで盛んに調べられてきた. ペロフスカイト型マンガン酸化物 $R_{1-x}A_xMnO_3$ (R : 希土類元素, A : アルカリ土類金属) は典型的な強相関電子系の一つであり, 電荷自由度 (電気伝導性) とスピン自由度 (磁性) とが強く結合した物質である. この物質の平衡状態相図を図 1.3 に示す [49]. ここでは各相図の詳細には立ち入らないが, 例えば $La_{1-x}Sr_xMnO_3$ の場合, 低温では $x = 0$ 付近で絶縁体, $x \geq 0.16$ で強磁性金属となる. 後者は e_g 軌道にドーパされた正孔によって媒介される二重交換相互作用によって理解される [50–52]. t_{2g} 軌道の局在的な電子と e_g 軌道の伝導電子との間の Hund 結合が無

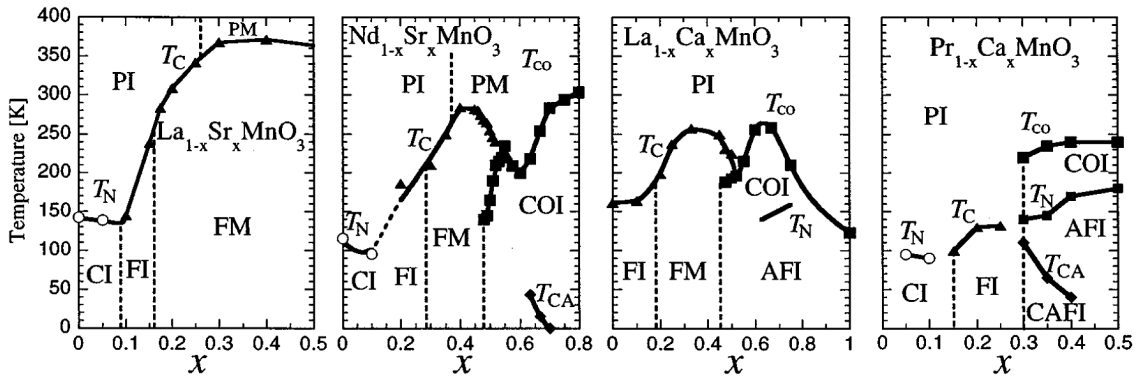


図 1.3 ペロフスカイト型マンガン酸化物 $R_{1-x}A_xMnO_3$ の電子相図. x はドーパ率を表す. 略語の対応は次の通り. PI: 常磁性絶縁体, PM: 常磁性金属, CI: スピンチャージ絶縁体, COI: 電荷秩序絶縁体, AFI: 反強磁性電荷秩序絶縁体, CAFI: チャージ反強磁性電荷秩序絶縁体. 文献 [49] より許諾を得て転載. © 1998 American Physical Society.

限大の極限では同一原子上の伝導電子と局在スピンは常に平行となり, 最近接サイト間の電子遷移積分の大きさはその局在スピン間の角度を θ として $\cos(\theta/2)$ 倍になる [51]. したがって, 局在スピンが反強磁性配置を取る場合には $\cos(\pi/2) = 0$, 強磁性配置を取る場合には $\cos(0) = 1$ となることから, 伝導電子の運動エネルギー利得のために強磁性状態が安定化する. 二重交換相互作用はペロフスカイト型マンガン酸化物に限らず多くの物質に見られる相互作用である. そのような二重交換系の例としては他に磁性半導体 [53–55] や f 電子系 [56], 分子磁性体 [57] が挙げられる. また, 二重交換相互作用は超巨大磁気抵抗効果 [58, 59] や異常 Hall 効果・トポロジカル Hall 効果 [60–65] と密接な関係を持つことが知られている.

ペロフスカイト型マンガン酸化物における光照射効果は, これまで反強磁性絶縁体相を中心に実験と理論の両面から精力的に研究されてきた [66–84]. 松原らは $R_{0.55}Sr_{0.45}MnO_3$ に対してポンプ・プローブ分光測定を行い, 光照射による絶縁体–強磁性金属転移を報告した [75]. この物質は希土類元素 R の置換によって平均イオン半径を制御することができ, 相図は図 1.4(a) のようになることが知られている. 特に低温 (10 K) では $R = Eu$ は強磁性金属であり, $R = Gd$ は絶縁体である. 図 1.4(b) はこれらの定常反射率スペクトルを示す. $R = Gd$ に対して, 10 K で光励起した際の光照射直後の過渡反射率スペクトルが図 1.4(c) の青色丸点であり, 実線で示された $R = Eu$ に対する差分反射率との良い一致が見られる. 図 1.5 は同じく低温における過渡反射率 $\Delta R/R$ ならびに磁気光学 Kerr 回転角変化 $\Delta\theta_{\text{Kerr}}$ の時間依存性を示したものである. 光照射直後 (≤ 0.2 ps) に見られる低エネルギー (0.12 eV) の反射率の増大は金属化, $\Delta\theta_{\text{Kerr}}$ の増加は強磁性成分の出現をそれぞれ示唆する. 0.12 eV における過渡反射率を二つの指数関数でフィットした結果が図 1.5(a) の水色の線で示されている. 最初の成分は時間分解能 200 fs 以内に立ち上がっており, 時定数 0.25 ps で減衰する. 二番目に現れる成分の時定数は 4.3 ps である. 以上の結果は光照射直後 200 fs の間に二重交換相互作用によって微視的な強磁性状態が生成し, その後 0.5 ps 程度に巨視的な強磁性状態が発達したものと解釈されている.

1.1.3 コヒーレント制御と Floquet エンジニアリング

近年, 従来の光伝導効果・光磁気効果や光誘起相転移等とは異なる, 新たな原理に基づく物性の光制御の可能性が議論されている [85–92]. 光を用いた電子・格子波動関数の振幅や位相の制御はコヒーレント制御と呼ばれ, 最近ではスピン分極・電気分極の制御 [6, 7, 85–87, 93] や電荷運動の抑制 [92, 94, 95],

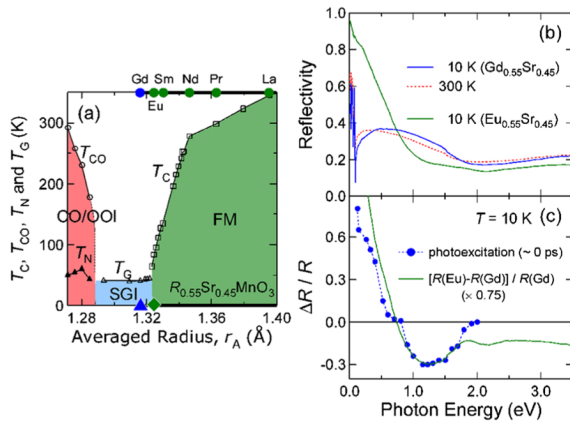


図 1.4 (a) ペロフスカイト型マンガン酸化物 $R_{0.55}\text{Sr}_{0.45}\text{MnO}_3$ の相図。略語の対応は次の通り。CO/OOI: 電荷・軌道秩序絶縁体, SGI: スピングラス絶縁体, FM: 強磁性金属。(b) $R = \text{Gd}$ および $R = \text{Eu}$ に対する定常反射率スペクトル。(c) 光照射直後の過渡反射率スペクトル。実線は $R = \text{Eu}$ と $R = \text{Gd}$ の差分である。文献 [75] より許諾を得て転載。© 2007 American Physical Society.

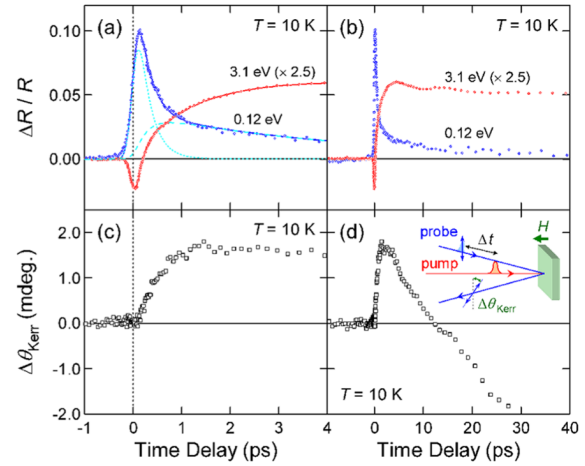


図 1.5 0.12 eV および 3.1 eV における過渡反射率 $\Delta R/R$ と Kerr 回転角変化 $\Delta\theta_{\text{Kerr}}$ の時間プロファイル。左列と右列は同じ励起密度であり、時間スケールのみ異なる。文献 [75] より許諾を得て転載。© 2007 American Physical Society.

電子波束の制御 [96–99] 等の様々な例が報告されている。これらの中でも連続波の光を用いた電子状態制御に関する研究が理論を中心に活発に進められており、そこでは Floquet 理論 [48, 89, 100–103] が重要な役割を果たしている。

時間周期的な外場により駆動された系は Floquet 理論により良く記述される^{*1}。外場の時間周期を $T \equiv 2\pi/\Omega$ とすると、時間 t に陽に依存するハミルトニアン $\mathcal{H}(t)$ は

$$\mathcal{H}(t+T) = \mathcal{H}(t) \quad (1.1)$$

の周期性を持つ。Floquet の定理によると、このとき Schrödinger 方程式

$$i\frac{\partial}{\partial t}|\Psi(t)\rangle = \mathcal{H}(t)|\Psi(t)\rangle \quad (1.2)$$

の解は、 $|\phi(t+T)\rangle = |\phi(t)\rangle$ を満たす状態 (Floquet 状態) $|\phi(t)\rangle$ を用いて

$$|\Psi_{\alpha}(t)\rangle = e^{-i\varepsilon_{\alpha}t}|\phi_{\alpha}(t)\rangle \quad (1.3)$$

と表される。ここで ε_{α} は擬エネルギーと呼ばれ、Bloch の定理における結晶運動量に対応する量である。結晶運動量と同様に擬エネルギーには冗長性があり、“Brillouin ゾーン”は $(-\Omega/2, \Omega/2]$ に取ることができる。時間周期性のために、ハミルトニアン $\mathcal{H}(t)$ および Floquet 状態 $|\phi(t)\rangle$ に関してそれぞれ次の離散 Fourier 級数展開が可能である。

$$\mathcal{H}(t) = \sum_n e^{-in\Omega t} \mathcal{H}_n, \quad \mathcal{H}_n = \int_0^T \frac{dt}{T} e^{in\Omega t} \mathcal{H}(t), \quad (1.4)$$

$$|\phi_{\alpha}(t)\rangle = \sum_n e^{-in\Omega t} |\phi_{\alpha}^n\rangle, \quad |\phi_{\alpha}^n\rangle = \int_0^T \frac{dt}{T} e^{in\Omega t} |\phi_{\alpha}(t)\rangle. \quad (1.5)$$

*1 本来の Floquet 理論 [104] は $df(t)/dt = A(t)f(t)$ ($A(t+T) = A(t)$) の形の線型微分方程式を対象とする。空間的な周期ポテンシャルが存在する Schrödinger 方程式を議論する場合には Bloch の定理 [105] と呼ばれる。

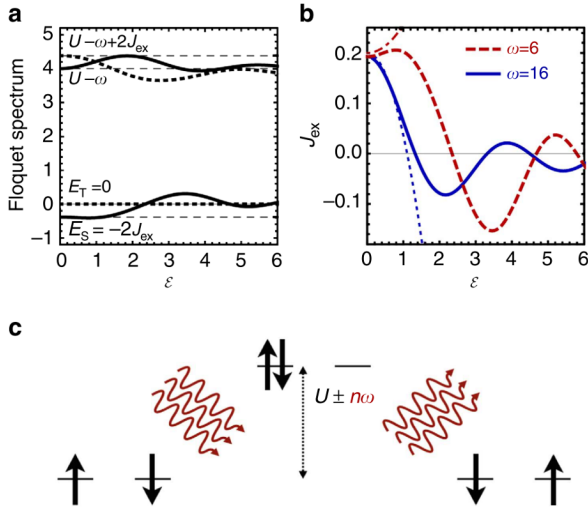


図 1.6 (a) 2 サイト Hubbard 模型における Floquet 擬エネルギーのベクトルポテンシャル振幅 \mathcal{E} 依存性. 細い破線は外場がない場合の値を示す. (b) スピン一重項状態とスピン三重項状態のエネルギー差から見積もられた交換相互作用の大きさ J_{ex} の \mathcal{E} 依存性. $U = 10$ である. (c) Floquet 描像に基づく J_{ex} の変調の模式図. 任意の数の“フォトン”を吸収または放出することでエネルギー $U \pm n\omega$ の中間状態が現れる. 文献 [130] より CC BY 4.0 ライセンスのもとに転載.

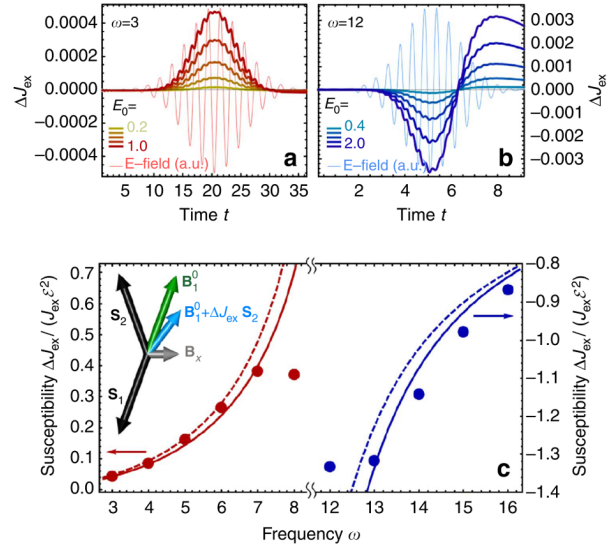


図 1.7 (a)(b) 非平衡動的平均場理論による数値計算から見積もられた交換相互作用の変化量 ΔJ_{ex} の時間変化. 薄い線は電場波形を表す. 光振動数は (a) $\omega = 3$ および (b) $\omega = 12$ であり, 相互作用は $U = 10$, 温度は $T = 0.025$ である. (c) 相互作用変化の感受率 $\Delta J_{\text{ex}} / (J_{\text{ex}} \mathcal{E}^2)$. $U = 10$ であり, ω と U の大小関係によって感受率の符号が異なる. 文献 [130] より CC BY 4.0 ライセンスのもとに転載.

述する [116, 143–152]. したがって, オンサイトの Coulomb 斥力を U としたとき交換相互作用の大きさ $J_{\text{ex}} \sim h^2/U$ が光照射によって変調されることが素朴には期待される. Mentink らは Hubbard 模型に対して詳細な検討を行い, Floquet 理論を用いて交換相互作用の大きさを

$$J_{\text{ex}} = \frac{2h^2}{U} + \frac{\mathcal{E}^2 h^2}{4} \left(\frac{1}{U + \omega} + \frac{1}{U - \omega} - \frac{2}{U} \right) \quad (1.10)$$

と評価した [130]. ここで h は最近接サイト間の電子遷移積分, U はオンサイト Coulomb 斥力, \mathcal{E} は無次元化された電場振幅 (ベクトルポテンシャル振幅), ω は光振動数である. これは図 1.6 に示されるように ω と U の大小関係によって有効的な J_{ex} は増加または減少することを意味する. 彼らは非平衡動的平均場理論を用いた数値計算によって上式を検証したほか [図 1.7], 光パルスの形状を制御することで磁化の時間発展を巻き戻せることも数値的に示した.

以上のような磁性体のコヒーレント制御や Floquet エンジニアリングに関する理論研究はこれまで反強磁性 Mott 絶縁体のような局在磁性体 (磁性絶縁体) を主に対象として行われてきたが, その一方で遍歴磁性体に対する研究は限られている.

1.2 遍歴磁性体への光照射効果に関する理論研究

磁性は, その起源に注目すると局在磁性と遍歴磁性の二つに分類することができる [153–155]. 前者は多くの絶縁体が示す磁性であり, 電子が原子に強く束縛されているためにスピンの自由度にのみ注目して議論することができる. 後者はエネルギーバンド内の電子の運動, すなわち電子の遍歴性に由来する

磁性である。

前節の最後で述べたように、磁性体の高強度光誘起ダイナミクスやそのコヒーレント制御に関する理論研究はこれまで局在磁性体を主に対象として行われてきたが、遍歴磁性体に対してはそのような研究は限られている。未だ議論されていない問題を明確にするために、ここでは遍歴磁性体における光照射効果に関するこれまでの理論研究を概観する。

1.2.1 二重交換系の光誘起ダイナミクス

二重交換系は遍歴磁性を示す系の一つであり、そこでは局在スピンの強磁性相互作用が媒介される。第 1.1.2 節で述べたペロフスカイト型マンガ氧化物における光誘起強磁性金属転移に関しては、実験と連携して多くの理論研究が行われてきた [157–164]。二重交換系は次のハミルトニアンで定義される二重交換模型^{*2}ならびにその拡張模型により記述される。

$$\mathcal{H}_{DE} = \sum_{ij} h_{ij} c_{is}^\dagger c_{js} - J \sum_{iss'} \mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_{ss'} c_{is}^\dagger c_{js'}. \quad (1.11)$$

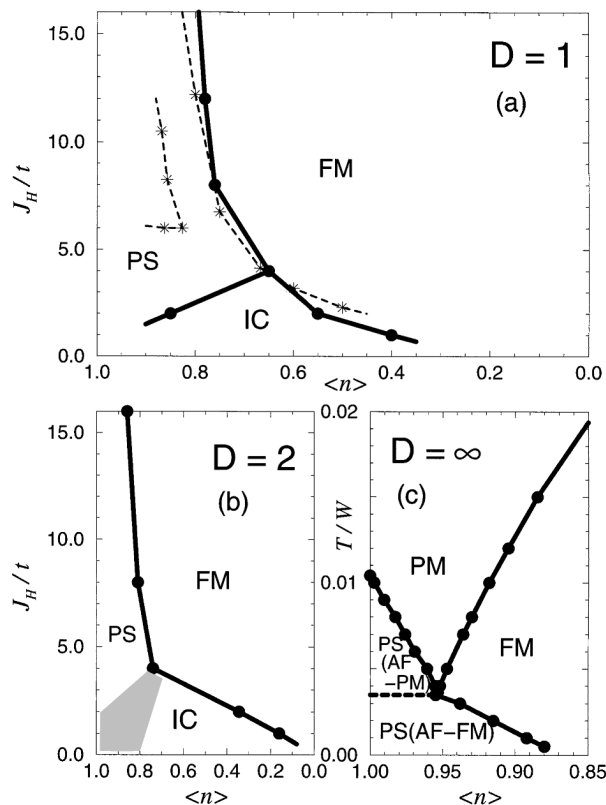


図 1.8 二重交換模型 [式 (1.11)] の平衡状態相図。局在スピン \mathbf{S}_i は古典的に取り扱われている。 J_H は Hund 結合の大きさ、 $\langle n \rangle$ は電子密度、 T は温度、 $W \propto t$ はバンド幅を表す。略語の対応は次の通り。 FM : 強磁性, PM : 常磁性, PS : 相分離, IC : 不整合相関。文献 [156] より許諾を得て転載。 © 1998 American Physical Society.

^{*2} これは形式的には強磁性近藤格子模型や s-d 模型等と呼ばれる模型と等価である。特に局在スピンを古典的に取り扱う場合には J の符号の正負は物理的な意味を持たない。

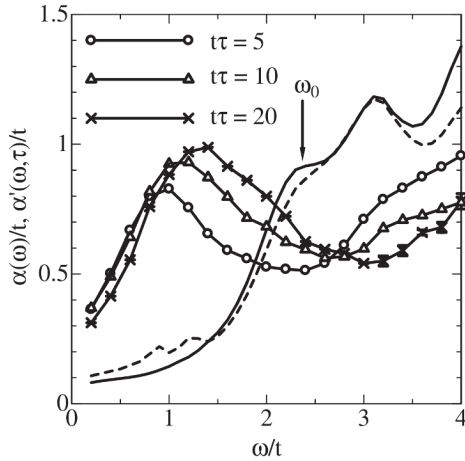


図 1.9 初期状態（実線）および過渡状態における光学吸収スペクトル． τ は時刻， t は最近接サイト間の電子遷移積分を表す．文献 [159] より許諾を得て転載．© 2007 The Physical Society of Japan.

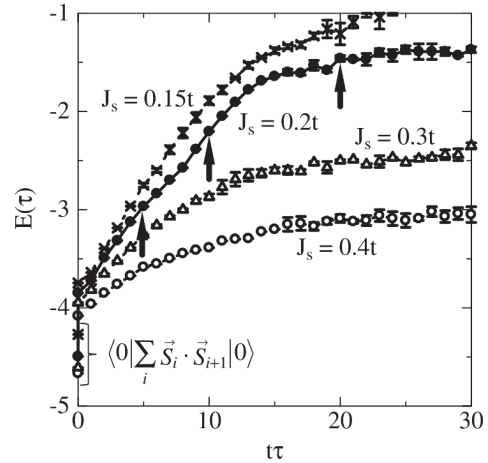


図 1.10 最近接サイト間のスピン相関 $E(\tau) = \langle \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_{i+1} \rangle$ の時間依存性．文献 [159] より許諾を得て転載．© 2007 The Physical Society of Japan.

ここで c_{is}^\dagger はスピン $s (= \uparrow, \downarrow)$ の電子をサイト i に生成する生成演算子であり， \mathbf{S}_i は大きさ S の局在スピン演算子， $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma^x, \sigma^y, \sigma^z)$ は Pauli 行列である．第一項は伝導電子の運動項であり， h_{ij} は電子遷移積分を表す．第二項は伝導電子スピンと局在スピンの間の強磁性的 Hund 結合項 ($J > 0$) である．式 (1.11) のハミルトニアンで表される系の平衡状態は精力的に調べられている [156, 165–175]．柚木らにより数値的に得られた相図を図 1.8 に示す [156]．Hund 結合が十分に大きく，かつ一定のキャリアが存在する領域において，基底状態は二重交換相互作用により強磁性状態となる．

松枝・石原は，次式のハミルトニアン

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{DE}} + U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow} + V \sum_{\langle ij \rangle} n_i n_j + J_s \sum_{\langle ij \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (1.12)$$

を考え，密度行列繰り込み群 (DMRG) 法を用いて一次元系の実時間ダイナミクスの解析を行った [159]．ここで $n_{is} = c_{is}^\dagger c_{is}$ ， $n_i = \sum_s n_{is}$ である．初期状態は反強磁性相関を持つ電荷秩序絶縁体相の基底状態であり，光パルスの振動数 ω_0 は光学エネルギーギャップに合わせて選ばれる．初期状態および過渡状態における光学吸収スペクトルを図 1.9 に示す．初期状態において $\omega = 2t$ に存在したエネルギーギャップは過渡状態において低エネルギー側へシフトしており，これは光照射による金属化を示唆する*³．図 1.10 は過渡状態における最近接スピン相関 $E(\tau)$ を示す．時間経過とともに $E(\tau)$ は正の方向へ向かって絶対値が減少しており，光キャリアの運動エネルギー利得のために反強磁性相関が弱められることを意味する．これらはペロフスカイト型マンガン酸化物における光誘起相転移の実験と整合する結果である．

大原・金森・石原は，式 (1.12) のハミルトニアンについて局在スピンを古典的に取扱い，DMRG 法を用いて光誘起ダイナミクスの解析を行った [162]．初期状態はキャント反強磁性絶縁体であり，パルスの振動数はエネルギーギャップに合わせて設定される．図 1.11(b) は電子のバンド幅および運動エネルギー，図 1.12 は最近接局在スピン相関の時間変化を表す．弱励起 $A_{\text{ph}} \leq 0.08$ の場合には反強磁性相関の減少とバンド幅の増加が見られる一方で， $A_{\text{ph}} \geq 0.2$ の強励起の場合には反強磁性相関が強められ，バンド幅が減少する振舞いが確認された．前者は文献 [159] 等と同様に光キャリアにより媒介される二重交

*³ 有限サイズ効果のために Drude ピークが有限のエネルギーを持つものと解釈される．

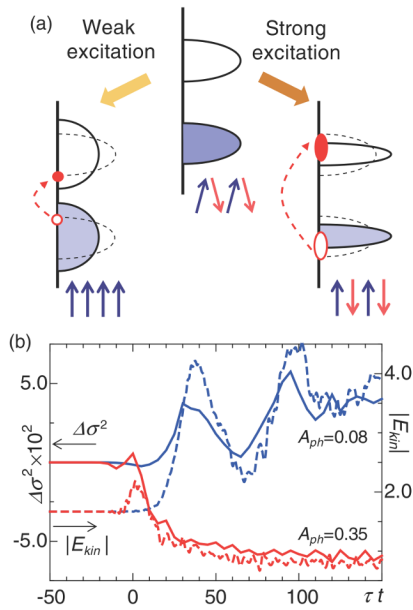


図 1.11 (a) 光照射による状態密度と磁気構造の変化の模式図。実線矢印が局在スピン，破線矢印が電子励起を表す。(b) バンド幅 $\Delta\sigma^2$ および運動エネルギー E_{kin} の時間変化。 A_{ph} はパルス光の振幅を表す。文献 [162] より許諾を得て転載。© 2013 American Physical Society.

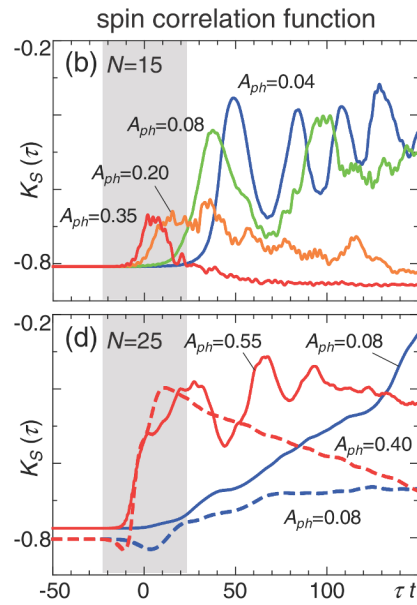


図 1.12 最近接サイト間の局在スピン相関 $K_S \propto \sum_{\langle ij \rangle} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ の時間変化。 A_{ph} はパルス光の振幅を表す。上段はサイト数 $N = 15$ ，下段は $N = 25$ 。文献 [162] より許諾を得て転載。© 2013 American Physical Society.

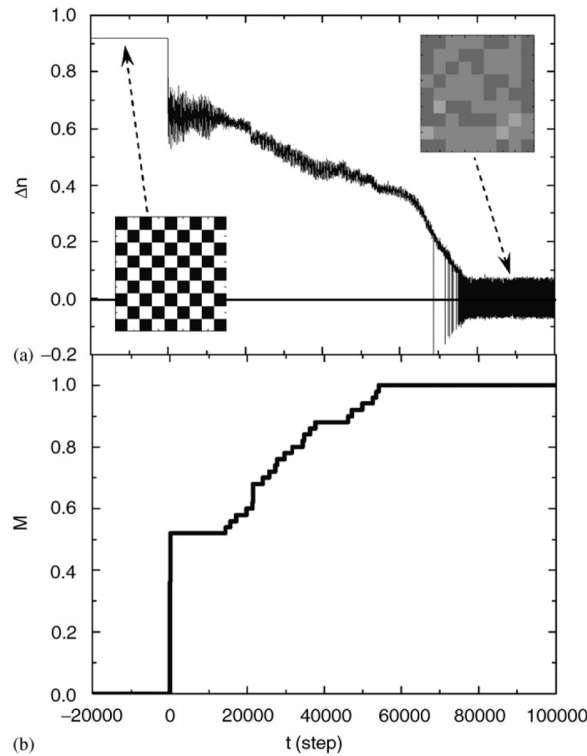


図 1.13 (a) 電荷不均一の大きさ Δn と (b) 磁化 M の実時間ダイナミクス。内挿図は実空間電荷密度を色の濃淡で示す。文献 [158] より許諾を得て転載。© 2007 Elsevier.

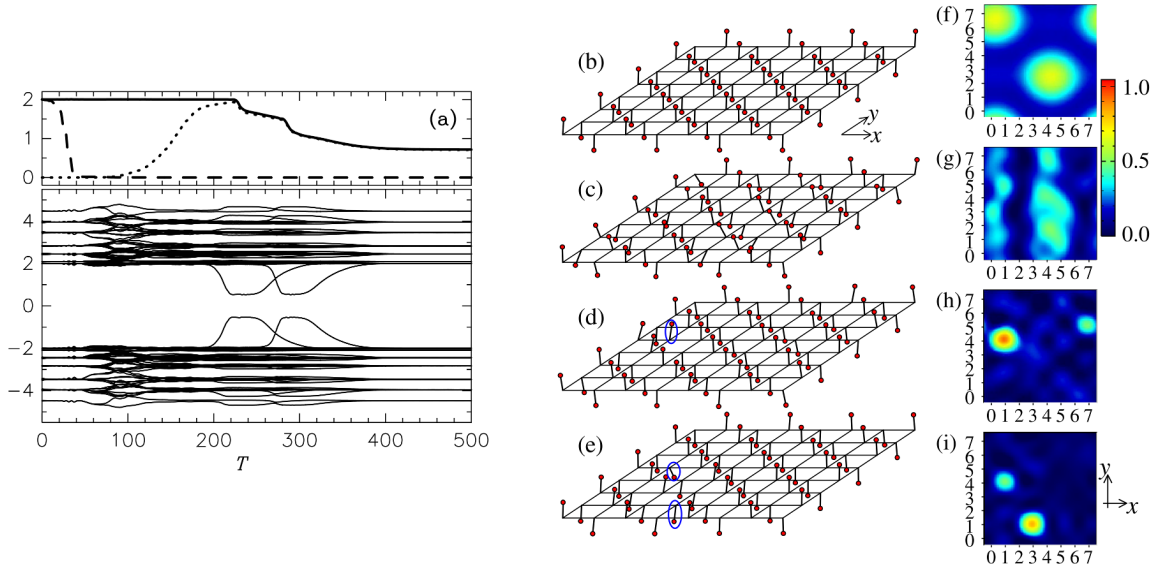


図 1.14 (a) 下段：一粒子エネルギー準位，上段：伝導バンド全体（実線），伝導バンドの最高エネルギー準位二つ（破線），伝導バンドの最低エネルギー準位（点線）の電子占有数．(b)–(e) 局在スピン配置の実空間スナップショットと (f)–(i) 実空間のエネルギー密度．時刻は上から順に $T = 28, 80, 224, 228$ である．Hund 結合の大きさは $J = 2$ ，Gilbert 緩和定数の大きさは $\alpha = 1$ である．文献 [163] より許諾を得て転載．© 2009 American Physical Society.

換機構の枠組みの中で理解されるが，後者の振舞いはこれと対照的であり，高強度の光照射下では二重交換相互作用が必ずしも強磁性的ではない可能性が指摘された．

佐藤・石原は，古典的な格子と結合した式 (1.12) の拡張二重交換模型に対して，局在スピンを古典的に取扱い，電子間相互作用項に対して Hartree–Fock 近似を適用することで大きなクラスターにおける実時間ダイナミクスの解析を行った [158]．初期状態として電荷秩序を伴った反強磁性状態を考え，光照射の効果は最高被占軌道（一粒子準位）から最低空軌道への一電子励起として取り入れられた．電荷不均一の大きさを表す $\Delta n = N^{-1} \sum_i (-1)^i n_i$ ，および一様磁化 $M = (3N/2)^{-1} \sum_i \langle \mathbf{S}_i \rangle$ の時間発展の様子を図 1.13 に示す．時刻 $t = 0$ において電子が励起された後， $t = 60000$ 程度まで磁化が徐々に発達し， $t = 80000$ において $\Delta n \approx 0$ の電荷が均一に存在する状態が実現する．これは二重交換機構によって電荷秩序状態から強磁性的ドメインが成長する過程を示しており，上の DMRG 法を用いた計算とも整合する結果である．

電子間相互作用を含まないハミルトニアン [式 (1.11)] は二重交換機構を記述する最小模型であり，その実時間ダイナミクスの詳細を明らかにすることは重要である．小椎八重・古川・永長は二重交換模型 [式 (1.11)] の反強磁性絶縁体相において価電子バンドから伝導バンドへ電子を励起した際の緩和ダイナミクスを解析した [163]．局在スピン系を古典的なベクトルとして取扱うことで，大きいサイズのクラスターに対して電子系の時間発展を精密に計算することができる．局在スピンの時間発展は LLG 方程式

$$\frac{\partial \mathbf{S}_i}{\partial t} = \mathbf{h}_i^{\text{eff}} \times \mathbf{S}_i + \alpha \mathbf{S}_i \times \frac{\partial \mathbf{S}_i}{\partial t} \quad (1.13)$$

に従う．ここで $\mathbf{h}_i^{\text{eff}}$ はスピン \mathbf{S}_i が感じる有効的な磁場であり，

$$\mathbf{h}_i^{\text{eff}} = -\langle \partial \mathcal{H} / \partial \mathbf{S}_i \rangle = \sum_{ss'} J \langle \sigma_{ss'} c_{is}^\dagger c_{is'} \rangle \quad (1.14)$$

により定義される． α は Gilbert 緩和定数であり，局在スピン系のエネルギーおよび角運動量の緩和を現象論的に与える．初期状態を反強磁性絶縁体とし，価電子バンドの最低エネルギー準位から伝導バン

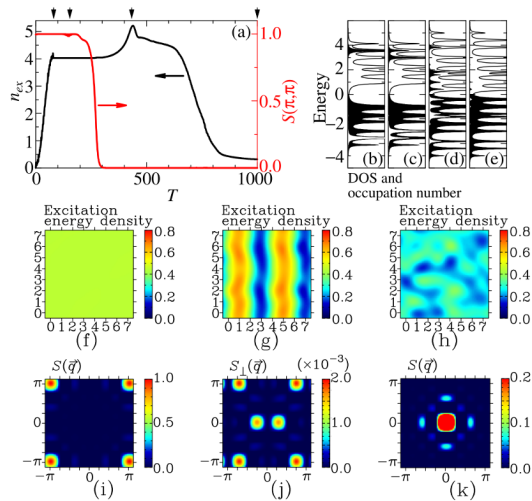


図 1.15 光誘起実時間ダイナミクス. 時刻 $T = 0-80$ において光が照射されている. (a) 伝導バンドに励起された全電子数 (黒線) および反強磁性のスピ構造因子 (赤線). 枠外の矢印は左から順に時刻 $T = 80, 152, 430, 1000$ を示す. (b)–(e) 一粒子状態密度. 時刻は左から順に $T = 80, 152, 430, 1000$ である. (f)–(h) 実空間の励起エネルギー密度および (i)–(k) 波数空間のスピ構造因子. 時刻は左から順に $T = 80, 152, 430$ である. 文献 [164] より許諾を得て転載.

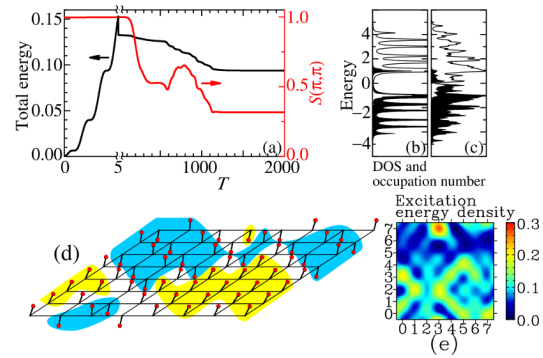


図 1.16 振動数 $\omega = 2SJ$ の光を時刻 $T = 0-5$ において印加した際の実時間ダイナミクス. (a) 全エネルギー密度 (黒線) および反強磁性スピ構造因子 (赤線). (b)(c) 一粒子状態密度. 時刻は (b) $T = 6$ および (c) $T = 2000$ である. (d) 時刻 $T = 2000$ における局在スピ配置. 反強磁性的領域を青色, 強磁性的領域を黄色で示している. (e) 時刻 $T = 2000$ における励起エネルギー密度. 文献 [164] より許諾を得て転載.

ドの最高エネルギー準位へ 2 電子を励起させた場合の実時間緩和ダイナミクスを図 1.14 に示す. 伝導バンドの最高エネルギー準位に励起された電子は時刻 $T = 20-40$ においてバンド内緩和を始め, 時刻 $T \sim 170$ までに伝導バンドの最低エネルギー準位に到達する. その後, 時刻 $T = 200-400$ の間にバンド間緩和が起き, ギャップ内状態が生成される. これは図 1.14(h)(i) のエネルギー密度が高い場所において, 図 1.14(d)(e) に青丸で示された局在スピが伝導電子スピとほぼ反平行になっていることに対応している. 時刻 $T \geq 400$ では再びほぼ完全な反強磁性状態が実現して緩和が終了する.

以上の結果 [163] は二重交換模型の反強磁性状態における緩和ダイナミクスに関するものであった. 同じく小椎八重・古川・永長により反強磁性状態への光照射効果の解析が行われている [164]. 電子系に多体相互作用がない場合には上と同じ手法 [163] を用いることができ, 古典局在スピ間相互作用や緩和を取り入れた光誘起実時間ダイナミクスを調べることができる. 初期状態として強磁性相近傍の反強磁性状態を選び, これにより強磁性状態と反強磁性状態がエネルギー的にほぼ縮退した状況を考える. 光照射の効果はベクトルポテンシャルに依存した Peierls 位相として電子遷移積分に取り入れられる. 光の振動数は二番目に高いエネルギー準位と二番目に低いエネルギー準位のエネルギー差として選ばれる. 図 1.15 は時刻 $T = 80$ まで光照射した際の実時間ダイナミクスを示す. 局在スピに関しては時刻 $T \sim 200$ まではほぼ反強磁性状態が保たれるが [図 1.15(a)], 時刻 $T = 152$ においてスピ構造因子はわずかに横成分を持ち, これに対応して伝導電子に関しては実空間でストライプ状の励起エネルギー密度分布が見られる [図 1.15(g)(j)]. 時刻 $T > 300$ になると強磁性状態へ転移し, 状態密度のギャップが閉じることで金属化する [図 1.15(d)(k)]. ただし伝導電子系は平衡状態には至らず高い励起状態が保たれる. 光照射時間に関する解析の結果, この強磁性金属状態への転移は伝導バンドの全電子数が一定値 (~ 2) を下回るような場合には見られないことが示された. 図 1.16 は, 光の照射時間を $T = 5$, 振動数を $\omega = 2SJ$

に変えた場合の実時間ダイナミクスを示す。この場合にも十分な光強度があれば強磁性金属状態への転移が生じる。光減衰後、十分に時間が経過したときの局在スピンの実空間スナップショットが図 1.16(d) であり、強磁性的な領域と反強磁性的な領域の相分離が確認できる。励起された電子は強磁性領域に閉じ込められるため、この領域で励起エネルギー密度が高くなっていることが図 1.16(e) から分かる。

ここまで示した理論研究はいずれも反強磁性絶縁体相における光照射効果や緩和ダイナミクスを議論したものであり、強磁性金属相における光照射効果については調べられていない。

1.2.2 光照射下の RKKY 相互作用

伝導電子と局在スピンの間の Hund 結合が強い極限において伝導電子が媒介する強磁性的相互作用が二重交換相互作用である。これに対し、弱結合領域において伝導電子が媒介する局在スピン間の相互作用は Ruderman–Kittel–Kasuya–Yosida (RKKY) 相互作用と呼ばれ、その大きさは伝導電子系のスピン感受率に比例することが知られている [176–178]。

RKKY 相互作用への光照射効果に関してもこれまでにいくつかの理論研究が行われている [142, 179–182]。Genkin は振動数 ω の円偏光の磁場成分 $H^+(t)$ が RKKY 相互作用に及ぼす影響を議論した [179]。位置 \mathbf{R}_i にある局在スピンを \mathbf{S}_i 、位置 \mathbf{r} における伝導電子のスピン密度を $\mathbf{s}(\mathbf{r})$ とする。円偏光磁場に対する局在スピンの応答は $H^+(t)$ により決まる回転成分 $S_i^+ = S_i^x + iS_i^y$ を持つ。伝導電子と局在スピンの間の接触ポテンシャルを $V = -AS_j^+ s^- \delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}_j)$ とすると、伝導電子は有効磁場 $H_{\text{eff}}(\mathbf{q}, \omega) = -AS_j(\omega)/(g\mu)$ を感じる。この有効磁場に対する伝導電子の応答は動的感受率の横成分 $\chi_{-+}(\mathbf{q}, \omega)$ により与えられ、これにより s^- が誘起される。最終的に、 \mathbf{S}_i と \mathbf{S}_j の間に働く相互作用は $\chi' = \text{Re } \chi$ を用いて

$$\mathcal{H}_{\text{RKKY}} = J(\omega, \mathbf{R}_{ij} \equiv \mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) S_i^+(\omega) S_j^-(\omega), \quad J(\omega, \mathbf{R}_{ij}) = -\frac{A^2}{g^2 \mu^2 V_0} \sum_{\mathbf{q}} \chi'_{-+}(\mathbf{q}, \omega) e^{i\mathbf{q} \cdot \mathbf{R}_{ij}} \quad (1.15)$$

と表される。すなわち、平衡状態における RKKY 相互作用が静的感受率に比例することに対して、円偏光照射下の RKKY 相互作用は動的感受率 $\chi_{-+}(\mathbf{q}, \omega)$ で与えられる。この振動数 ω に対する依存性により空間的な振動構造や長距離の冪依存性も ω に依存する。

Duan らはシリセンを念頭に次のハミルトニアンを与え、円偏光照射効果を議論した [142]。

$$\mathcal{H} = -t \sum_{\langle ij \rangle s} c_{is}^\dagger c_{js} + \frac{i\lambda_{\text{so}}}{3\sqrt{3}} \sum_{\langle\langle ij \rangle\rangle ss'} c_{is}^\dagger \boldsymbol{\sigma}_{ss'} \cdot (\mathbf{d}_i \times \mathbf{d}_j) c_{js'} + U \sum_{is} \mu_i c_{is}^\dagger c_{is}. \quad (1.16)$$

第一項は電子のホッピング、第二項はスピン軌道相互作用、第三項は外部電場に比例した交替ポテンシャルである。これを Dirac 点の周りで展開することで低エネルギー Dirac ハミルトニアンが得られる。円偏光を表すベクトルポテンシャルを $\mathbf{A}(t) = (A \sin \omega t, A \cos \omega t)$ とし、これを Peierls 位相として取り入れる。式 (1.9) より Floquet 有効ハミルトニアンを求め、このエネルギーバンドを用いて次式により RKKY 相互作用を評価した。

$$\mathcal{H}_{\text{RKKY}}^{\alpha\beta} = \frac{-\lambda^2}{\pi} \text{Im} \int_{-\infty}^{E_F} d\varepsilon \text{Tr} [(\mathbf{S}_1 \cdot \boldsymbol{\sigma}) G_{\alpha\beta}(\mathbf{R}, \varepsilon) (\mathbf{S}_2 \cdot \boldsymbol{\sigma}) G_{\beta\alpha}(-\mathbf{R}, \varepsilon)], \quad (1.17)$$

$$\equiv J_{\perp} (S_1^x S_2^x + S_1^y S_2^y) + J_z S_1^z S_2^z + J_{\text{DM}} (\mathbf{S}_1 \times \mathbf{S}_2)^z \quad \text{for } \alpha = \beta. \quad (1.18)$$

ここで α, β は不純物スピンの属する副格子 A, B を表す。上式における J_{\perp}, J_z を $\Omega = 3t^2 A^2 / (4\omega)$ の関数としてプロットしたものが図 1.17 であり、光照射によって局在スピン間の交換相互作用が変化することが分かる。図 1.18 は Ω および U に対する $J_z, J_{\perp}, J_{\text{DM}}$ の大きさと相関であり、光と外部電場を制御することでトポロジカル転移が生じることを示している。

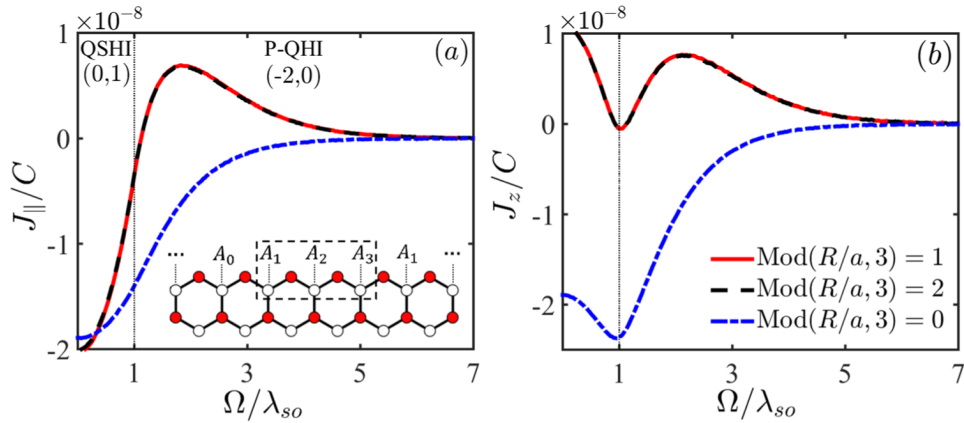


図 1.17 RKKY 交換相互作用の大きさのパラメータ $\Omega \propto A^2/\omega$ に対する依存性. QSHI は量子スピン Hall 絶縁体, P-QHI は光誘起量子 Hall 絶縁体を表す. 文献 [142] より CC BY 4.0 ライセンスのもとに転載.

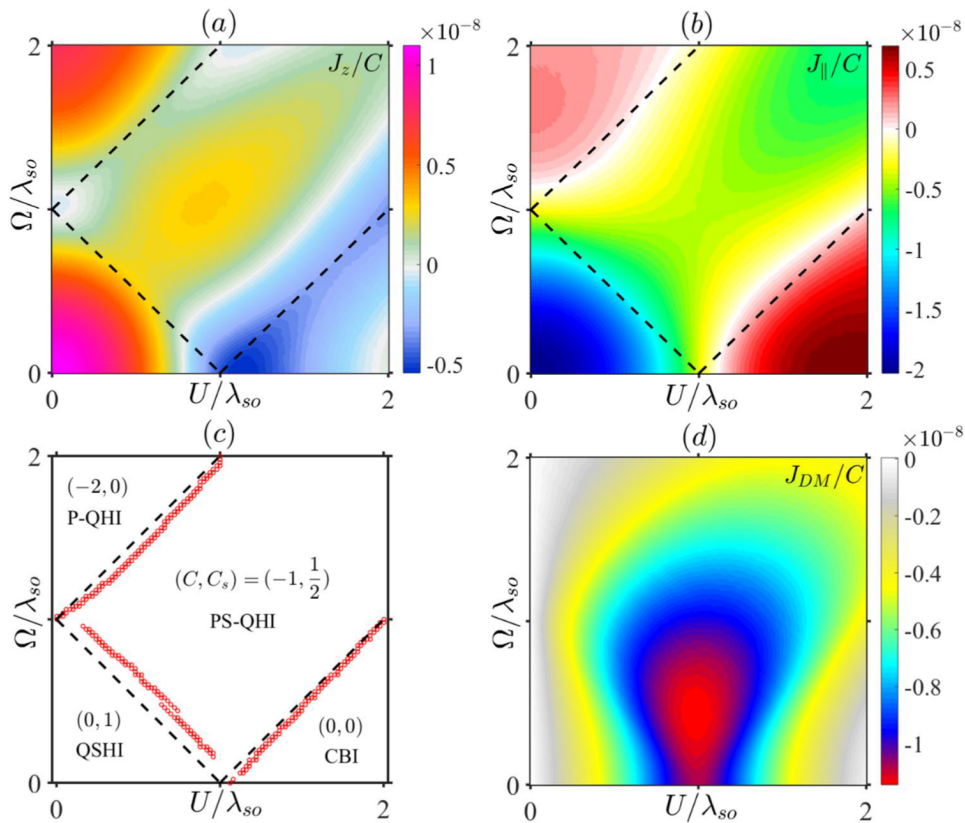


図 1.18 (a)(b)(d) $J_z, J_{\parallel}, J_{DM}$ の相図. (c) 電子状態相図. 破線は相境界, 赤点は (a) における J_z のディップの位置を示す. PS-QHI は光誘起スピン偏極量子 Hall 絶縁体, CBI は自明なバルク絶縁体を表す. 文献 [142] より CC BY 4.0 ライセンスのもとに転載.

RKKY 相互作用への光照射効果に関するこれまでの研究は光の磁場成分を取り入れたものが中心であった [179–182]. Duan ら [142] は電場成分を考えているが, 高振動数展開に基づく Floquet 有効ハミルトニアンを用いており, 低振動数領域も含めた RKKY 相互作用 (スピン感受率) の一般的な振舞いまでは議論されていない. 遍歴磁性体においては電荷運動の自由度が残されているために光の電場成分の効果が無視できないものと予想されるが, これに関する研究は以上のように限定的である.

1.3 本研究の目的

これまで多くの研究により超高速消磁や光誘起磁気相転移等の光による磁氣的性質の高速制御が議論され、その基本的な原理については理解が得られている。近年、レーザー光源技術等の著しい発展を受けて従来とは異なる原理に基づいた磁性の高速コヒーレント制御や Floquet エンジニアリングが盛んに議論されており、新たな研究分野として勃興しつつある。しかしながら、このような新たな潮流の中で遍歴磁性体に関する理論研究は未だ限られており、多くの発展の余地が残されている。本研究では遍歴磁性体における光誘起高速スピンドYNAMICSに注目し、以下の二点を明らかにすることを目的とする。

(1) 二重交換系の強磁性金属相における光照射効果 (第3章, 第4章, 第5章)

二重交換系は電荷とスピンの強結合しており、このために光照射によって磁性や伝導性が大きく影響を受けると期待される。二重交換系に関するこれまでの実験および理論研究は反強磁性絶縁体への光照射による強磁性金属化について議論したものが主であり、そこでは光キャリアにより媒介される二重交換機構のシナリオが広く受け入れられている。一方で強磁性金属状態への光照射効果に関しては実験・理論ともにほとんど調べられていないことから、本研究ではこれを明らかにする。特に式(1.11)で与えられる最も単純化された二重交換モデルを対象として、その強磁性金属状態への高強度の光照射効果を解析し、非平衡状態において二重交換相互作用がどのように現れるかを議論する。

(2) 光誘起定常状態におけるスピン感受率 (第6章)

伝導電子と局在スピンの強結合領域において伝導電子が媒介する相互作用が二重交換相互作用であり、RKKY 相互作用はその弱結合領域に対応する。RKKY 相互作用への光照射効果に関するこれまでの研究は光の磁場成分を議論するものが中心的であった。遍歴磁性体においては電場成分の影響が無視できないものと予想されるが、これに関する理論研究は限られており基礎的な理解が得られていない。そこで弱結合極限として自由電子系を考え、その光誘起定常状態におけるスピン感受率を議論する。

本論文の構成は以下の通りである。第2章において、本研究で用いる中心的な解析手法の一つである非平衡 Green 関数法を導入する。第3章では二重交換モデルにおける光誘起実時間ダイナミクスを解析を行い、高強度の光照射によって強磁性金属状態から反強磁性状態への転移が起こることを示す。第4章では、第3章の光誘起反強磁性転移の過渡ダイナミクスに注目し、スピンカイラリティを通してトポロジカルな磁気構造について議論する。第5章では光誘起反強磁性転移の微視的機構を明らかにするため、Floquet Green 関数法を用いて光照射下の強磁性金属状態における磁気励起構造の解析を行う。第6章では Hund 結合の弱結合領域からのアプローチとして自由電子系を考え、光照射下の定常状態におけるスピン・電荷感受率の一般的表式の導出ならびにその数値的評価を行う。最後に第7章において結論を述べる。

1.4 単位系

本論文では単位系として国際単位系 (SI) を採用する. SI 基本単位のうち, 本論文においては m, kg, s, A, K の 5 単位が現れる. 表記を簡略化するために, 物理定数のうち Dirac 定数 (換算 Planck 定数) \hbar , 電気素量 e , Boltzmann 定数 k_B の 3 定数に加えて, 結晶の単位胞の体積の立方根 (格子定数) a および最近接サイト間の電子遷移積分 h の 5 個の量を 1 とする. これらの積によって各物理量の単位が構成される. いくつかの物理量の単位を表 1.1 に示す.

表 1.1 主要な物理量の単位. 左から 3 列目は物理定数 (\hbar, e, k_B) の値を代入した数値. 参考として格子定数と電子遷移積分を $a = 0.5 \text{ nm}$, $h = 0.5 \text{ eV}$ とした場合の数値を第 4 列に付記した.

物理量	単位	数値	$a = 0.5 \text{ nm}, h = 0.5 \text{ eV}$
時間	\hbar/h	$0.658212h^{-1} \text{ eV fs}$	1.32 fs
角振動数	h/\hbar	$1.519267h \text{ eV}^{-1} \text{ fs}^{-1}$	0.760 fs^{-1}
温度	h/k_B	$11604.5h \text{ eV}^{-1} \text{ K}$	5802.3 K
速さ	ah/\hbar	$1.519267ah \times 10^6 \text{ nm}^{-1} \text{ eV}^{-1} \text{ m s}^{-1}$	$3.8 \times 10^5 \text{ m/s}$
電流密度	$eh/(\hbar a^2)$	$2.434135a^{-2}h \times 10^{10} \text{ nm}^2 \text{ eV}^{-1} \text{ A cm}^{-2}$	$4.9 \times 10^{10} \text{ A/cm}^2$
電気伝導度	$e^2/(\hbar a)$	$2.434135a^{-1} \times 10^3 \text{ nm S cm}^{-1}$	$4.87 \times 10^3 \text{ S/cm}$
電気抵抗率	$\hbar a/e^2$	$4.108236a \times 10^{-4} \text{ nm}^{-1} \Omega \text{ cm}$	$2.05 \times 10^{-4} \Omega \text{ cm}$
電場	$h/(ea)$	$10a^{-1}h \text{ nm eV}^{-1} \text{ MV cm}^{-1}$	10 MV/cm
電位	h/e	$1h \text{ eV}^{-1} \text{ V}$	0.5 V
磁束密度	$\hbar/(ea^2)$	$6.582119a^{-2} \times 10^2 \text{ nm}^2 \text{ T}$	$2.63 \times 10^3 \text{ T}$
ベクトルポテンシャル	$\hbar/(ea)$	$6.582119a^{-1} \times 10^{-7} \text{ nm T m}$	$1.32 \times 10^{-6} \text{ T m}$
電気双極子モーメント	ea	$1.602177a \times 10^{-28} \text{ nm}^{-1} \text{ C m}$	$8.01 \times 10^{-29} \text{ C m}$
磁気双極子モーメント	ea^2h/\hbar	$1.519267a^2h \times 10^{-3} \text{ nm}^{-2} \text{ eV}^{-1} \text{ eV T}^{-1}$	$1.90 \times 10^{-4} \text{ eV/T}$
誘電率	$e^2/(ah)$	$1.602177a^{-1}h^{-1} \times 10^{-10} \text{ nm eV F m}^{-1}$	$6.4 \times 10^{-10} \text{ F/m}$
透磁率	$\hbar^2/(e^2ah)$	$2.70409a^{-1}h^{-1} \times 10^{-3} \text{ nm eV H m}^{-1}$	$1.08 \times 10^{-2} \text{ H/m}$

第 2 章

非平衡 Green 関数法

量子多体系の非平衡状態を解析する手法の一つとして非平衡 Green 関数法が挙げられる。任意の初期状態に対して、その実時間発展を記述する最も一般的な枠組みは Keldysh により与えられた [183]。ここでは時間軸上を順方向に進む経路と逆方向に進む経路 (Schwinger–Keldysh 経路) の上で順序付けられた経路順序 Green 関数が自然に導入される。この手法は、初期状態がある種の直積状態やそれらの混合状態として与えられている場合には平衡系と同様に系統的な摂動展開を行うことが可能であり、線型応答理論 [184] を超えた非平衡非線型応答の議論にも適している*¹。

本章では文献 [48, 107, 113, 124, 185–196] 等に基づいて非平衡 Green 関数法ならびに Floquet Green 関数法を導入する。また、これを元に非平衡状態における応答関数 (感受率) の一般的表式を導く。Floquet Green 関数法は第 5 章において光照射下の定常状態における磁気励起構造を議論するために用いられる。非平衡応答関数については第 3 章における光学伝導度の計算ならびに第 6 章におけるスピン・電荷感受率の解析に応用される。

2.1 Keldysh 形式

規格化された初期状態を $|\Psi(-\infty)\rangle = |\Psi_0\rangle$ と表す。時刻 t における Heisenberg 描像の演算子 $O(t)$ の期待値は

$$\langle O(t) \rangle \equiv \langle \Psi_0 | O(t) | \Psi_0 \rangle = \langle \Psi_0 | U^\dagger(t, -\infty) O U(t, -\infty) | \Psi_0 \rangle \quad (2.1)$$

と表される。ここで $O = O(-\infty)$ は Schrödinger 描像の演算子であり、 U はユニタリ演算子

$$U(t, t') = \begin{cases} \mathcal{T}_{C_1} \exp \left[-i \int_{t'}^t d\bar{t} \mathcal{H}(\bar{t}) \right] & (t > t') \\ \mathcal{T}_{C_2} \exp \left[-i \int_{t'}^t d\bar{t} \mathcal{H}(\bar{t}) \right] & (t < t') \end{cases} \quad (2.2)$$

である。 \mathcal{T}_{C_1} (\mathcal{T}_{C_2}) は (反) 時間順序演算子であり、時間的に遅い演算子を左 (右) から順に並べ替える。ユニタリ演算子 $U(t, t')$ は次の性質を持つ。

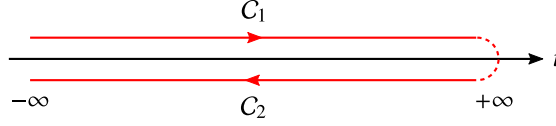
$$U(t, t) = 1, \quad U(t, t') U(t', t'') = U(t, t''), \quad U^\dagger(t, t') = U(t', t). \quad (2.3)$$

これを用いると、式 (2.1) の期待値は

$$\langle O(t) \rangle = \langle \Psi_0 | \mathcal{T}_C \exp \left[-i \int_C d\bar{t} \mathcal{H}(\bar{t}) \right] O(t) | \Psi_0 \rangle \quad (2.4)$$

と表される。 \mathcal{T}_C は Schwinger–Keldysh 経路 [図 2.1] 上の経路順序演算子である。

*¹ 熱平衡状態を始状態とする Green 関数の時間発展は Kadanoff–Baym の定式化により与えられるが、本論文では議論しない。

図 2.1 Schwinger-Keldysh 経路 $C = C_1 + C_2$.

経路順序 Green 関数を

$$G_{\mu\nu}(t, t') \equiv -i \langle \mathcal{T}_C \psi_\mu(t) \psi_\nu^\dagger(t') \rangle \quad (2.5)$$

と定義する．ここで ψ_ν^\dagger は量子数 ν のボゾンまたはフェルミオンの生成演算子である．経路順序 Green 関数の時間引数 t, t' は経路 C_1 と C_2 のどちらに含まれるかに対応する自由度を持つことから，次のような行列表現

$$\hat{G}_{\mu\nu}(t, t') = \begin{bmatrix} G_{\mu\nu}^{11}(t, t') & G_{\mu\nu}^{12}(t, t') \\ G_{\mu\nu}^{21}(t, t') & G_{\mu\nu}^{22}(t, t') \end{bmatrix} \quad (2.6)$$

を導入することができる．各成分を書き下すと

$$G_{\mu\nu}^{11}(t, t') = -i \langle \mathcal{T}_{C_1} \psi_\mu(t) \psi_\nu^\dagger(t') \rangle, \quad \text{因果（時間順序）Green 関数}, \quad (2.7)$$

$$G_{\mu\nu}^{12}(t, t') = -i \zeta \langle \psi_\nu^\dagger(t') \psi_\mu(t) \rangle, \quad \text{Lesser Green 関数}, \quad (2.8)$$

$$G_{\mu\nu}^{21}(t, t') = -i \langle \psi_\mu(t) \psi_\nu^\dagger(t') \rangle, \quad \text{Greater Green 関数}, \quad (2.9)$$

$$G_{\mu\nu}^{22}(t, t') = -i \langle \mathcal{T}_{C_2} \psi_\mu(t) \psi_\nu^\dagger(t') \rangle \quad \text{反因果（反時間順序）Green 関数} \quad (2.10)$$

となる．ボゾンの場合は $\zeta = +1$ ，フェルミオンの場合は $\zeta = -1$ である．Lesser および greater Green 関数 G^{12} , G^{21} はそれぞれ $G^<$, $G^>$ とも表される．これらの Green 関数は

$$G_{\mu\nu}^{11}(t, t') + G_{\mu\nu}^{22}(t, t') = G_{\mu\nu}^{12}(t, t') + G_{\mu\nu}^{21}(t, t') \quad (2.11)$$

の関係を満たす．この余分な自由度は，二つのユニタリ行列

$$L = \frac{1}{\sqrt{2}} \begin{bmatrix} 1 & -1 \\ 1 & 1 \end{bmatrix}, \quad \sigma^z = \begin{bmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{bmatrix} \quad (2.12)$$

を用いて次のように消去することができる．

$$\tilde{G} = L \sigma^z \hat{G} L^\dagger = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} G^{11} - G^{22} + G^{21} - G^{12} & G^{11} + G^{22} + G^{21} + G^{12} \\ 0 & G^{11} - G^{12} - G^{21} + G^{12} \end{bmatrix} \equiv \begin{bmatrix} G^R & G^K \\ 0 & G^A \end{bmatrix}. \quad (2.13)$$

この変換は Keldysh 回転と呼ばれる．ここで

$$G_{\mu\nu}^R(t, t') = G^{11} - G^{12} = G^{21} - G^{22} = -i\theta(t - t') \langle [\psi_\mu(t), \psi_\nu^\dagger(t')]_{\mp} \rangle, \quad \text{遅延 Green 関数}, \quad (2.14)$$

$$G_{\mu\nu}^A(t, t') = G^{12} - G^{22} = G^{11} - G^{21} = i\theta(t' - t) \langle [\psi_\mu(t), \psi_\nu^\dagger(t')]_{\mp} \rangle, \quad \text{先進 Green 関数}, \quad (2.15)$$

$$G_{\mu\nu}^K(t, t') = G^{11} + G^{22} = G^{12} + G^{21} = -i \langle [\psi_\mu(t), \psi_\nu^\dagger(t')]_{\pm} \rangle, \quad \text{Keldysh Green 関数} \quad (2.16)$$

である． $[\cdot, \cdot]_-$ は交換子， $[\cdot, \cdot]_+$ は反交換子を表し， θ は階段関数である．複号は上がボゾン，下がフェルミオンの場合に対応する．元の Green 関数の各成分 [式 (2.7)–(2.10)] は，遅延，先進，および Keldysh Green 関数を用いて

$$\begin{bmatrix} G^{11} & G^{12} \\ G^{21} & G^{22} \end{bmatrix} = \sigma^z L^\dagger \tilde{G} L = \frac{1}{2} \begin{bmatrix} G^K + G^R + G^A & G^K - G^R + G^A \\ G^K + G^R - G^A & G^K - G^R - G^A \end{bmatrix} \quad (2.17)$$

と表される。また、各 Green 関数は以下の性質を持つ。

$$G_{\mu\nu}^R(t, t')^* = G_{\nu\mu}^A(t', t), \quad G_{\mu\nu}^X(t, t')^* = -G_{\nu\mu}^X(t', t) \quad (X = <, >, K). \quad (2.18)$$

ハミルトニアン \mathcal{H} が無摂動項 \mathcal{H}_0 と摂動項 \mathcal{V} の和として

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{V}, \quad \mathcal{H}_0 = \sum_{\nu} \varepsilon_{\nu} \psi_{\nu}^{\dagger} \psi_{\nu} \quad (2.19)$$

と表される場合を考える。相互作用描像を導入することで、 \mathcal{V} に関する摂動展開を行うことができる。無摂動ハミルトニアン \mathcal{H}_0 による時間発展演算子を

$$U_0(t, t') = \begin{cases} \mathcal{T}_{C_1} \exp \left[-i \int_{t'}^t d\bar{t} \mathcal{H}_0(\bar{t}) \right] & (t > t') \\ \mathcal{T}_{C_2} \exp \left[-i \int_{t'}^t d\bar{t} \mathcal{H}_0(\bar{t}) \right] & (t < t') \end{cases} \quad (2.20)$$

として定義する。 $U(t, t')$ および $U_0(t, t')$ はそれぞれ

$$i \frac{\partial}{\partial t} U(t, t') = \mathcal{H}(t) U(t, t'), \quad i \frac{\partial}{\partial t} U_0(t, t') = \mathcal{H}_0(t) U_0(t, t') \quad (2.21)$$

を満たす。これらを用いて

$$S(t, t') = U_0^{\dagger}(t, t') U(t, t') \quad (2.22)$$

を定義する。この時間微分は

$$\begin{aligned} i \frac{\partial}{\partial t} S(t, t') &= - \left[-i \frac{\partial U_0^{\dagger}(t, t')}{\partial t} \right] U(t, t') + U_0^{\dagger}(t, t') i \frac{\partial U(t, t')}{\partial t} \\ &= -U_0^{\dagger}(t, t') \mathcal{H}_0(t) U(t, t') + U_0^{\dagger}(t, t') \mathcal{H}(t) U(t, t') \\ &= U_0^{\dagger}(t, t') \underbrace{[\mathcal{H}(t) - \mathcal{H}_0(t)]}_{\mathcal{V}(t)} \underbrace{U_0(t, t') U_0^{\dagger}(t, t') U(t, t')}_1 \\ &\equiv V_1(t) S(t, t') \end{aligned} \quad (2.23)$$

となる。 $V_1(t) \equiv U_0^{\dagger}(t, t') \mathcal{V}(t) U_0(t, t')$ は相互作用描像における摂動である。 $S(t, t')$ の形式解は

$$S(t, t') = \begin{cases} \mathcal{T}_{C_1} \exp \left[-i \int_{t'}^t d\bar{t} \mathcal{V}_1(\bar{t}) \right] & (t > t') \\ \mathcal{T}_{C_2} \exp \left[-i \int_{t'}^t d\bar{t} \mathcal{V}_1(\bar{t}) \right] & (t < t') \end{cases} \quad (2.24)$$

であり、式 (2.3) と同様の性質を持つ。 $t' = -\infty$ とすると、物理量の期待値 (2.1) は

$$\begin{aligned} \langle O(t) \rangle &= \langle \Psi_0 | U^{\dagger}(t, -\infty) U_0(t, -\infty) U_0^{\dagger}(t, -\infty) O U_0(t, -\infty) U_0^{\dagger}(t, -\infty) U(t, -\infty) | \Psi_0 \rangle \\ &= \langle \Psi_0 | S^{\dagger}(t, -\infty) O_I(t) S(t, -\infty) | \Psi_0 \rangle \\ &= \langle \Psi_0 | S^{\dagger}(\infty, -\infty) S(\infty, t) O_I(t) S(t, -\infty) | \Psi_0 \rangle \\ &= \langle \Psi_0 | S^{\dagger}(t, -\infty) O_I(t) S^{\dagger}(\infty, t) S(\infty, -\infty) | \Psi_0 \rangle \\ &\equiv \langle \Psi_0 | \mathcal{T}_C S_C O_I(t) | \Psi_0 \rangle \end{aligned} \quad (2.25)$$

と表される。ここで $O_I(t) \equiv U_0^{\dagger}(t, -\infty) O U_0(t, -\infty)$ は相互作用描像の演算子であり、 S_C は S 行列

$$S_C = \mathcal{T}_C \exp \left[-i \int_C d\bar{t} \mathcal{V}_1(\bar{t}) \right] \quad (2.26)$$

である。初期状態 $|\Psi_0\rangle$ が例えば単一 Slater 行列式として表される場合には、相互作用描像の経路順序 Green 関数

$$G_{\mu\nu}(t, t') = -i\langle \mathcal{T}_C S_C \psi_{\mu}(t) \psi_{\nu}^{\dagger}(t') \rangle \quad (2.27)$$

において S 行列を \mathcal{V}_1 に関して展開し、Wick の定理を適用することができる*2。

ハミルトニアンが式 (2.19) のように表されるとき、経路順序 Green 関数の運動方程式は

$$i\partial_t G_{\mu\nu}^{11}(t, t') = \delta_{\alpha\beta}\delta(t-t') + \varepsilon_{\mu} G_{\mu\nu}^{11}(t, t') - i\langle \mathcal{T}_{C_1} [\psi_{\mu}, \mathcal{V}](t) \psi_{\nu}^{\dagger}(t') \rangle, \quad (2.28)$$

$$i\partial_t G_{\mu\nu}^{12}(t, t') = \varepsilon_{\mu} G_{\mu\nu}^{12}(t, t') - i\zeta \langle \psi_{\beta}^{\dagger}(t') [\psi_{\mu}, \mathcal{V}](t) \rangle, \quad (2.29)$$

$$i\partial_t G_{\mu\nu}^{21}(t, t') = \varepsilon_{\mu} G_{\mu\nu}^{21}(t, t') - i\langle [\psi_{\mu}, \mathcal{V}](t) \psi_{\beta}^{\dagger}(t') \rangle, \quad (2.30)$$

$$i\partial_t G_{\mu\nu}^{22}(t, t') = -\delta_{\alpha\beta}\delta(t-t') + \varepsilon_{\mu} G_{\mu\nu}^{22}(t, t') - i\langle \mathcal{T}_{C_2} [\psi_{\mu}, \mathcal{V}](t) \psi_{\nu}^{\dagger}(t') \rangle \quad (2.31)$$

となる。ここで $\partial_t = \partial/\partial t$ である。裸の inverse Green 関数と自己エネルギー $\Sigma_{\mu\nu}(t, t')$ をそれぞれ

$$\mathcal{G}_{\mu\nu}^{-1}(t, t') = \delta_{\mu\nu}\delta_C(t, t')(i\partial_t - \varepsilon_{\nu}), \quad [\Sigma \circ G]_{\mu\nu}(t, t') = -i\langle \mathcal{T}_C [\psi_{\mu}, \mathcal{V}](t) \psi_{\nu}^{\dagger}(t') \rangle \quad (2.32)$$

により定義する。ここで δ_C は Schwinger–Keldysh 経路上のデルタ関数であり、任意の関数 $f(t)$ に対して

$$\int_C d\bar{t} \delta_C(t, \bar{t}) f(\bar{t}) = \int_C d\bar{t} f(\bar{t}) \delta_C(\bar{t}, t) = f(t) \quad (2.33)$$

を満たす。シンボル \circ は two-time 関数 $A(t, t'), B(t, t')$ に対して

$$[A \circ B]_{\mu\nu}(t, t') = \sum_{\lambda} \int_C d\bar{t} A_{\mu\lambda}(t, \bar{t}) B_{\lambda\nu}(\bar{t}, t') \quad (2.34)$$

で定義される二項演算子であり、この行列表現は

$$[\hat{A} \circ \hat{B}]_{\mu\nu}(t, t') = \sum_{\lambda} \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} \hat{A}_{\mu\lambda}(t, \bar{t}) \sigma^z \hat{B}_{\lambda\nu}(\bar{t}, t'), \quad (2.35)$$

$$[\tilde{A} \circ \tilde{B}]_{\mu\nu}(t, t') = \sum_{\lambda} \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} L \sigma^z \hat{A}_{\mu\lambda}(t, \bar{t}) \underbrace{L^{\dagger} L}_{1} \sigma^z \hat{B}_{\lambda\nu}(\bar{t}, t') L^{\dagger} = \sum_{\lambda} \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} \tilde{A}_{\mu\lambda}(t, \bar{t}) \tilde{B}_{\lambda\nu}(\bar{t}, t') \quad (2.36)$$

となる。式 (2.35) における Pauli 行列 σ^z は経路 C_2 が時間を遡るために現れる。この記法を用いると、運動方程式は

$$[(\mathcal{G}^{-1} - \Sigma) \circ G]_{\mu\nu}(t, t') = \delta_{\mu\nu}\delta_C(t, t'), \quad (2.37)$$

$$[(\hat{\mathcal{G}}^{-1} - \hat{\Sigma}) \circ \hat{G}]_{\mu\nu}(t, t') = \delta_{\mu\nu}\sigma^z\delta(t-t'), \quad (2.38)$$

$$[(\tilde{\mathcal{G}}^{-1} - \tilde{\Sigma}) \circ \tilde{G}]_{\mu\nu}(t, t') = \delta_{\mu\nu}\delta(t-t') \quad (2.39)$$

と表される。繰り込まれた inverse Green 関数 $G^{-1} \equiv \mathcal{G}^{-1} - \Sigma$ は、形式的に

$$\begin{bmatrix} G^R & G^K \\ 0 & G^A \end{bmatrix}^{-1} = \begin{bmatrix} G^R & G^K \\ 0 & G^A \end{bmatrix}^{-1} - \begin{bmatrix} \Sigma^R & \Sigma^K \\ 0 & \Sigma^A \end{bmatrix} \quad (2.40)$$

*2 一般に、初期状態 $|\Psi_0\rangle$ の密度行列 $\rho_0 = |\Psi_0\rangle\langle\Psi_0|$ が非負実数 p_{ν} を用いて $\rho_0 = \prod_{\nu} [(\sum_{n_{\nu}} |n_{\nu}\rangle p_{\nu}^{n_{\nu}} \langle n_{\nu}|) / (\sum_{n_{\nu}} p_{\nu}^{n_{\nu}})]$ と表される場合に Wick の定理を適用することができる [186]。ここで ψ_{ν}^{\dagger} は量子数 ν のボゾンまたはフェルミオンの生成演算子であり、 $|n_{\nu}\rangle \equiv (\psi_{\nu}^{\dagger})^{n_{\nu}} |0\rangle / \sqrt{n_{\nu}!}$ である。

と書くことができる。裸の Green 関数 $\mathcal{G}_{\mu\nu}(t, t') = -i\langle \mathcal{T}_C \psi_{1\mu}(t) \psi_{1\nu}^\dagger(t') \rangle$ は以下のように表される。

$$\mathcal{G}_{\mu\nu}^R(t, t') = -i\delta_{\mu\nu}\theta(t_r)e^{-i\varepsilon_\nu t_r}, \quad (2.41)$$

$$\mathcal{G}_{\mu\nu}^K(t, t') = -i\delta_{\mu\nu}(1 + 2\zeta n_\nu(t_a))e^{-i\varepsilon_\nu t_r}. \quad (2.42)$$

ただし $t_a = (t + t')/2$, $t_r = t - t'$, $n_\nu(t) = \langle \psi_\nu^\dagger(t) \psi_\nu(t) \rangle$ と定義した。

2.2 Floquet Green 関数

時間周期的な外場（周期 $T \equiv 2\pi/\Omega$ ）が印加された系を考える。定常状態において、Green 関数は

$$G^X(t + T, t' + T) = G^X(t, t') \quad (X = R, A, K) \quad (2.43)$$

を満たすと考えられる。この周期性により、Green 関数の Floquet 表現（Floquet Green 関数）が次式で定義される。

$$G_{mn}^X(\omega) = \int_0^T \frac{dt_a}{T} \int_{-\infty}^{\infty} dt_r e^{i(\omega+m\Omega)t - i(\omega+n\Omega)t'} G^X(t, t'), \quad (2.44)$$

$$G^X(t, t') = \sum_n \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{-in\Omega t_a} e^{-i(\omega+(n/2)\Omega)t_r} G_{n0}^X(\omega). \quad (2.45)$$

ここで $t_a = (t + t')/2$, $t_r = t - t'$ であり、添字 m, n は整数値を取る。式 (2.44) および (2.45) は任意の two-time 関数に対しても同様に定義される。式 (2.44) より

$$G_{mn}(\omega) = G_{m+l, n+l}(\omega - l\Omega) \quad (2.46)$$

が成り立つ。一般に、two-time 関数に関する畳込みは Floquet 表現では次式のように行列積になる。

$$\int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} A(t, \bar{t}) B(\bar{t}, t') \Leftrightarrow \sum_l A_{ml}(\omega) B_{ln}(\omega) = (AB)_{mn}(\omega). \quad (2.47)$$

したがって、時間に関する積分微分方程式である Dyson 方程式 (2.40) は行列の方程式に帰着する。これは遅延 Green 関数については

$$G_{mn}^{R,-1}(\omega) = \mathcal{G}_{mn}^{R,-1}(\omega) - \Sigma_{mn}^R(\omega), \quad (2.48)$$

Keldysh Green 関数については^{*3}

$$G_{mn}^{K,-1}(\omega) \equiv -(G^{R,-1} G^K G^{A,-1})_{mn}(\omega) = \underbrace{-(\mathcal{G}^{R,-1} \mathcal{G}^K \mathcal{G}^{A,-1})_{mn}(\omega)}_{\mathcal{G}_{mn}^{K,-1}(\omega)} - \Sigma_{mn}^K(\omega), \quad (2.49)$$

すなわち

$$G_{mn}^K(\omega) = -[G^R(\mathcal{G}^{K,-1} - \Sigma^K)G^A]_{mn}(\omega) \quad (2.50)$$

となる。式 (2.18) は

$$(G_{\mu\nu}^R)_{mn}(\omega)^* = (G_{\nu\mu}^A)_{nm}(\omega), \quad (G_{\mu\nu}^X)_{mn}(\omega)^* = -(G_{\nu\mu}^X)_{nm}(\omega) \quad (X = <, >, K) \quad (2.51)$$

^{*3} 一般に、上三角ブロック行列の逆行列は $\begin{bmatrix} A & B \\ 0 & D \end{bmatrix}^{-1} = \begin{bmatrix} A^{-1} & -A^{-1}BD^{-1} \\ 0 & D^{-1} \end{bmatrix}$ で与えられる。

となり，先進 Green 関数は遅延 Green 関数のエルミート共役を取ることで得られる．また，two-time 表現と Floquet 表現の間の以下の関係は有用である．

$$A(t, t') = \delta(t - t')B(t, t') \Leftrightarrow A_{mn}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} B_{mn}(\bar{\omega} - n\Omega), \quad (2.52)$$

$$A(t, t') = B(t, t')C(t', t) \Leftrightarrow A_{mn}(\omega) = \sum_l \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} B_{m, n+l}(\omega + \bar{\omega})C_{l0}(\bar{\omega}). \quad (2.53)$$

Two-time 関数 $A(t, t')$ を相対時間 $t_r = t - t'$ に関して Fourier 変換して得られる関数

$$A(\omega, t_a) = \int_{-\infty}^{\infty} dt_r e^{i\omega t_r} A(t, t') = \sum_n e^{-in\Omega t_a} A_{n0}\left(\omega - \frac{n\Omega}{2}\right) \quad (2.54)$$

は A の Wigner 表現と呼ばれ，時刻 $t_a = (t + t')/2$ における動的な性質を記述する．特に外場の振動周期 $T = 2\pi/\Omega$ に渡る時間平均は，Floquet 表現を用いて

$$A(\omega) \equiv \int_0^T \frac{dt_a}{T} A(\omega, t_a) = A_{00}(\omega) = A_{nn}(\omega - n\Omega) \quad (2.55)$$

と表される．

2.3 熱浴による自己エネルギー

熱浴と結合した量子開放系を考え，熱浴による自己エネルギーを導出する．経路積分形式を用いて熱浴の自由度を積分消去する導出 [48, 107, 194, 197] が簡明であるが，ここでは S 行列 [式 (2.26)] の展開からこれを導く．

電子系と熱浴のハミルトニアンを

$$\mathcal{H}_0 = \sum_k \varepsilon_k c_k^\dagger c_k + \sum_p \varepsilon_p b_p^\dagger b_p, \quad \mathcal{V} = \sum_{kp} \left[V_{kp} c_k^\dagger b_p + V_{pk} b_p^\dagger c_k \right] \quad (2.56)$$

とする． c_k^\dagger, b_p^\dagger はそれぞれ電子（量子数 k ）とフェルミオン（量子数 p ）の生成演算子である．経路順序 Green 関数を

$$G_k(t, t') = -i\langle \mathcal{T}_C c_k(t) c_k^\dagger(t') \rangle, \quad \mathcal{G}_k(t, t') = -i\langle \mathcal{T}_C c_{1k}(t) c_{1k}^\dagger(t') \rangle \equiv -i\langle \mathcal{T}_C c_k(t) c_k^\dagger(t') \rangle_0, \quad (2.57)$$

$$D_p(t, t') = -i\langle \mathcal{T}_C b_p(t) b_p^\dagger(t') \rangle, \quad \mathcal{D}_p(t, t') = -i\langle \mathcal{T}_C b_{1p}(t) b_{1p}^\dagger(t') \rangle \equiv -i\langle \mathcal{T}_C b_p(t) b_p^\dagger(t') \rangle_0 \quad (2.58)$$

と定義する．熱浴の Green 関数 \mathcal{D} は式 (2.41) および (2.42) と同じ形で与えられ，

$$\mathcal{D}_p^R(t, t') = -i\theta(t - t')e^{-i\varepsilon_p(t-t')}, \quad \mathcal{D}_p^K(t, t') = -i(1 - 2f(\varepsilon_p))e^{-i\varepsilon_p(t-t')} \quad (2.59)$$

と表される．ここで $f(\omega) = 1/(e^{\beta\omega} + 1)$ は逆温度 β の Fermi–Dirac 分布関数である．これらの Floquet 表現は， η を正の無限小量として

$$(\mathcal{D}_p^R)_{mn}(\omega) = \frac{\delta_{mn}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_p + i\eta}, \quad (\mathcal{D}_p^K)_{mn}(\omega) = -2\pi i \delta_{mn} (1 - 2f(\omega + n\Omega)) \delta(\omega + n\Omega - \varepsilon_p) \quad (2.60)$$

となる．

S 行列の二次の項のうち、生成演算子と消滅演算子を同数含む項は

$$\begin{aligned}
& \frac{(-i)^2}{2!} \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \mathcal{T}_C V(\bar{t}_1) V(\bar{t}_2) \\
&= \frac{(-i)^2}{2!} \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \\
& \quad \times \mathcal{T}_C \sum_{\substack{k_1 k_2 \\ p_1 p_2}} \left[V_{k_1 p_1} c_{k_1}^\dagger(\bar{t}_1^+) b_{p_1}(\bar{t}_1) + V_{p_1 k_1} b_{p_1}^\dagger(\bar{t}_1^+) c_{k_1}(\bar{t}_1) \right] \left[V_{k_2 p_2} c_{k_2}^\dagger(\bar{t}_2^+) b_{p_2}(\bar{t}_2) + V_{p_2 k_2} b_{p_2}^\dagger(\bar{t}_2^+) c_{k_2}(\bar{t}_2) \right] \\
& \rightarrow (-i)^2 \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \mathcal{T}_C \sum_{\substack{k_1 k_2 \\ p_1 p_2}} V_{k_1 p_1} V_{p_2 k_2} c_{k_1}^\dagger(\bar{t}_1^+) b_{p_1}(\bar{t}_1) b_{p_2}^\dagger(\bar{t}_2^+) c_{k_2}(\bar{t}_2)
\end{aligned} \tag{2.61}$$

となるから、Green 関数への二次の寄与は

$$\begin{aligned}
G_k^{(2)}(t, t') &= (-i) \times (-i)^2 \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \sum_{\substack{k_1 k_2 \\ p_1 p_2}} V_{k_1 p_1} V_{p_2 k_2} \langle \mathcal{T}_C c_{k_1}^\dagger(\bar{t}_1^+) b_{p_1}(\bar{t}_1) b_{p_2}^\dagger(\bar{t}_2^+) c_{k_2}(\bar{t}_2) c_k(t) c_k^\dagger(t') \rangle_0 \\
&= (-i) \times (-i)^2 \times (-1)^4 \times i^3 \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \sum_{\substack{k_1 k_2 \\ p_1 p_2}} V_{k_1 p_1} V_{p_2 k_2} \delta_{k k_1} \delta_{p_1 p_2} \delta_{k_2 k} \mathcal{G}_k(t, \bar{t}_1^+) \mathcal{D}_{p_1}(\bar{t}_1, \bar{t}_2^+) \mathcal{G}_k(\bar{t}_2, t') \\
&= \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \sum_p V_{k p} V_{p k} \mathcal{G}_k(t, \bar{t}_1) \mathcal{D}_p(\bar{t}_1, \bar{t}_2) \mathcal{G}_k(\bar{t}_2, t')
\end{aligned} \tag{2.62}$$

と表せる。ここで縮約を取る際のフェルミオンの交換に伴う負号は 4 回現れるが、うち 2 回が b と c の交換であるためにボゾン系の場合と結果は同じである。

高次の項について考える。 \mathcal{V} について偶数次だけ考えればよい。Green 関数への $2n$ 次の寄与は

$$\begin{aligned}
G_k^{(2n)}(t, t') &= -i \frac{(-i)^{2n}}{(2n)!} \int_C d\bar{t}_1 \cdots d\bar{t}_{2n} \sum_{\{k\}\{p\}} \langle \mathcal{T}_C \prod_{j=1}^{2n} [V_{k_j p_j} c_{k_j}^\dagger(\bar{t}_j^+) b_{k_i}(\bar{t}_j) + V_{p_j k_j} b_{k_j}^\dagger(\bar{t}_j^+) c_{k_j}(\bar{t}_j)] c_k(t) c_k^\dagger(t') \rangle
\end{aligned} \tag{2.63}$$

と書けるが、縮約により現れる項の数は $2n$ 個のバーテックス $\{\bar{t}_j\}$ の通り方の数に等しく、これは $(2n)!$ 通りある。右から順番に、すなわち $t' \rightarrow \bar{t}_{2n} \rightarrow \cdots \rightarrow \bar{t}_1 \rightarrow t$ のように縮約を取る場合にはフェルミオンの入れ替えは偶数回現れる。ここからある一つのバーテックスの組 (\bar{t}_i, \bar{t}_j) ($i < j$) を入れ替えると $c(\bar{t}_i)$ と $c^\dagger(\bar{t}_j)$ の交換のため奇数回の置換、さらに $b(\bar{t}_i)$ と $b^\dagger(\bar{t}_j)$ についても奇数回の置換が必要なため、全体として負号は現れない。したがって、上式は

$$\begin{aligned}
G_k^{(2n)}(t, t') &= -i \times \frac{(-i)^{2n}}{(2n)!} \times (2n)! \times i^{2n+1} \int_C d\bar{t}_1 \cdots d\bar{t}_{2n} \sum_{\{k\}\{p\}} \mathcal{G}_{k k_1}(t, \bar{t}_1) V_{k_1 p_1} \mathcal{D}_{p_1 p_2}(\bar{t}_1, \bar{t}_2) V_{p_2 k_2} \mathcal{G}_{k_2 k_3}(\bar{t}_2, \bar{t}_3) \times \cdots \\
& \quad \times \mathcal{G}_{k_{2n-2} k_{2n-1}}(\bar{t}_{2n-2}, \bar{t}_{2n-1}) V_{k_{2n-1} p_{2n-1}} \mathcal{D}_{p_{2n-1} p_{2n}}(\bar{t}_{2n-1}, \bar{t}_{2n}) V_{p_{2n} k_{2n}} \mathcal{G}_{k_{2n} k}(t', \bar{t}_{2n}) \\
&= \int_C d\bar{t}_1 \cdots d\bar{t}_{2n} \mathcal{G}_k(t, \bar{t}_1) |V_{k p}|^2 \mathcal{D}_p(\bar{t}_1, \bar{t}_2) \mathcal{G}_k(\bar{t}_2, \bar{t}_3) \cdots \mathcal{G}_k(\bar{t}_{2n-2}, \bar{t}_{2n-1}) |V_{k p}|^2 \mathcal{D}_p(\bar{t}_{2n-1}, \bar{t}_{2n}) \mathcal{G}_k(\bar{t}_{2n}, t')
\end{aligned} \tag{2.64}$$

となる。畢竟、自己エネルギーとしては

$$\Sigma_k(t, t') = \sum_p |V_{k p}|^2 \mathcal{D}_p(t, t') \tag{2.65}$$

で表されるものだけを考えればよい. 式 (2.60) より, 自己エネルギーの Floquet 表現 (Floquet 自己エネルギー) は以下ようになる.

$$(\Sigma_k^R)_{mn}(\omega) = \delta_{mn} \sum_p \frac{|V_{kp}|^2}{\omega + n\Omega - \varepsilon_p + i\eta}, \quad (2.66)$$

$$(\Sigma_k^K)_{mn}(\omega) = -2i\delta_{mn}(1 - 2f(\omega + n\Omega))\Gamma_k(\omega + n\Omega). \quad (2.67)$$

ここで $\Gamma_k(\omega) \equiv \sum_p |V_{kp}|^2 \pi \delta(\omega - \varepsilon_p)$ は系と熱浴の間の結合の強さを表す. ここで, 混成の遷移行列要素 V_{kp} は k に依存しないものとし ($V_{kp} = V_p$)^{*4}, 熱浴のエネルギースペクトルが十分広く, 自己エネルギーの実部は電子系の化学ポテンシャルに吸収され, 虚部は ω に依存しないものとする ($\Gamma_k(\omega) = \Gamma$). これにより, 自己エネルギーは

$$\begin{aligned} (\Sigma_k^R)_{mn}(\omega) &= -i\delta_{mn}\Gamma, \\ (\Sigma_k^K)_{mn}(\omega) &= 2i\delta_{mn}(1 - 2f(\omega + n\Omega))\Gamma \end{aligned} \quad (2.68)$$

のように簡単化される.

2.4 非平衡応答関数

ここでは二体相関関数として表される応答関数 (感受率) の一般的表式を導く. これは文献 [198] による非平衡 Green 関数を用いた光学伝導度の定式化の自然な拡張となる.

一体の演算子

$$O^\alpha(t) = \sum_{\mu\nu} O_{\mu\nu}^\alpha(t) \psi_\mu^\dagger \psi_\nu \quad (2.69)$$

の期待値 $\langle O^\alpha(t) \rangle$ について, 外場 $f^\alpha(t)$ に対する応答を考える. ここで ψ_ν^\dagger は量子数 ν の電子の生成演算子であり, 添字 α は空間成分 (x, y, z) や運動量移行 (q) 等を表す. 外場との結合は次のハミルトニアンで与えられるものとする.

$$\mathcal{V}_{\text{ext}}(t) = - \sum_{\mu\nu} \mathcal{F}_{\mu\nu}(t) \psi_\mu^\dagger \psi_\nu. \quad (2.70)$$

$\mathcal{F}_{\mu\nu}(t)$ は外場 $f^\alpha(t)$ の汎関数である. 応答関数は汎関数微分

$$\chi_{\alpha\beta}(t, t') = \frac{\delta \langle O^\alpha(t) \rangle}{\delta f^\beta(t')}, \quad (2.71)$$

または

$$\langle O^\alpha(t) \rangle = \sum_\beta \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} \chi_{\alpha\beta}(t, \bar{t}) f^\beta(\bar{t}) \quad (2.72)$$

により定義される. 期待値 $\langle O^\alpha(t) \rangle$ は lesser Green 関数 $G_{\mu\nu}^<(t, t') = i \langle \psi_\nu^\dagger(t') \psi_\mu(t) \rangle$ を用いて

$$\langle O^\alpha(t) \rangle = -i \sum_{\mu\nu} O_{\mu\nu}^\alpha(t) G_{\nu\mu}^<(t, t) \quad (2.73)$$

^{*4} 量子数 k が波数を表す場合には系と熱浴の間の結合が局所的であること意味し, Büttiker 型の熱浴になる [48].

と表せることから、式 (2.71) は

$$\chi_{\alpha\beta}(t, t') = \chi_{\alpha\beta}^{\text{dia}}(t, t') + \chi_{\alpha\beta}^{\text{pm}}(t, t'), \quad (2.74)$$

$$\chi_{\alpha\beta}^{\text{dia}}(t, t') = -i \sum_{\mu\nu} \frac{\delta O_{\mu\nu}^{\alpha}(t)}{\delta f^{\beta}(t')} G_{\nu\mu}^{\leq}(t, t'), \quad (2.75)$$

$$\chi_{\alpha\beta}^{\text{pm}}(t, t') = -i \sum_{\mu\nu} O_{\mu\nu}^{\alpha}(t) \frac{\delta G_{\nu\mu}^{\leq}(t, t')}{\delta f^{\beta}(t')} \quad (2.76)$$

と書き直すことができる。ここで $\chi^{\text{dia}}, \chi^{\text{pm}}$ はそれぞれ電流の反磁性応答および常磁性応答に対応するものである。

χ^{pm} を計算する。ハミルトニアンが式 (2.19) で与えられるものとし、Green 関数を

$$G_{\mu\nu}^{-1}(t, t') = \mathcal{G}_{\mu\nu}^{-1}(t, t') + \delta_C(t, t') \mathcal{F}_{\mu\nu}(t) - \Sigma_{\mu\nu}(t, t'), \quad (2.77)$$

$$\mathcal{G}_{\mu\nu}^{-1}(t, t') = \delta_{\mu\nu} \delta_C(t, t') (i\partial_t - \varepsilon_{\nu}) \quad (2.78)$$

と定義する。運動方程式 (2.37) の両辺の外場 f に関する変分を取ると、 $\delta G^{-1} \circ G + G^{-1} \circ \delta G = 0$ より

$$\begin{aligned} \frac{\delta G_{\nu\mu}(t, t')}{\delta f^{\beta}(t')} &= - \sum_{\kappa\lambda} \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 G_{\nu\kappa}(t, \bar{t}_1) \left[\frac{\delta \mathcal{G}_{\kappa\lambda}^{-1}(\bar{t}_1, \bar{t}_2)}{\delta f^{\beta}(t')} + \frac{\delta(\delta_C(\bar{t}_1, \bar{t}_2) \mathcal{F}_{\kappa\lambda}(\bar{t}_1))}{\delta f^{\beta}(t')} - \frac{\delta \Sigma_{\kappa\lambda}(\bar{t}_1, \bar{t}_2)}{\delta f^{\beta}(t')} \right] G_{\lambda\mu}(\bar{t}_2, t) \\ &= - \sum_{\kappa\lambda} \int_C d\bar{t} G_{\nu\kappa}(t, \bar{t}) \frac{\delta \mathcal{F}_{\kappa\lambda}(\bar{t})}{\delta f^{\beta}(t')} G_{\lambda\mu}(\bar{t}, t) \end{aligned} \quad (2.79)$$

を得る。自己エネルギーを含む $\delta \Sigma / \delta f$ の項は応答関数のバーテックス補正を与えるが [48, 197–201], ここでは無視した。これにより、 $\delta G^{\leq} / \delta f$ は

$$\begin{aligned} \frac{\delta G_{\nu\mu}^{\leq}(t, t')}{\delta f^{\beta}(t')} &= - \sum_{\kappa\lambda} \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} \left[G_{\nu\kappa}^{11}(t, \bar{t}) \frac{\delta \mathcal{F}_{\kappa\lambda}(\bar{t})}{\delta f^{\beta}(t')} G_{\lambda\mu}^{12}(\bar{t}, t) - G_{\nu\kappa}^{12}(t, \bar{t}) \frac{\delta \mathcal{F}_{\kappa\lambda}(\bar{t})}{\delta f^{\beta}(t')} G_{\lambda\mu}^{22}(\bar{t}, t) \right] \\ &= - \sum_{\kappa\lambda} \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} \left[G_{\nu\kappa}^{\text{R}}(t, \bar{t}) \frac{\delta \mathcal{F}_{\kappa\lambda}(\bar{t})}{\delta f^{\beta}(t')} G_{\lambda\mu}^{\leq}(\bar{t}, t) + G_{\nu\kappa}^{\leq}(t, \bar{t}) \frac{\delta \mathcal{F}_{\kappa\lambda}(\bar{t})}{\delta f^{\beta}(t')} G_{\lambda\mu}^{\text{A}}(\bar{t}, t) \right] \end{aligned} \quad (2.80)$$

となる。二番目の等号では式 (2.18) を用いた。さらに計算を進めるためには $O_{\mu\nu}^{\alpha}$ および $\mathcal{F}_{\mu\nu}$ の具体的な形を与える必要があるが、多くの場合には $\mathcal{F}(\bar{t})$ は時刻 $t' = \bar{t}$ の外場 $f^{\beta}(t')$ へのみに依存する。すなわち、

$$\frac{\delta \mathcal{F}_{\kappa\lambda}(\bar{t})}{\delta f^{\beta}(t')} = \delta(t - t') V_{\kappa\lambda}^{\beta}, \quad V_{\kappa\lambda}^{\beta} \equiv \frac{\partial \mathcal{F}_{\kappa\lambda}(t')}{\partial f^{\beta}(t')} \quad (2.81)$$

と表せる。この場合、 χ^{pm} は

$$\chi_{\alpha\beta}^{\text{pm}}(t, t') = i \text{Tr} \left[O^{\alpha}(t) G^{\text{R}}(t, t') V^{\beta}(t') G^{\leq}(t', t) + O^{\alpha}(t) G^{\leq}(t, t') V^{\beta}(t') G^{\text{A}}(t', t) \right] \quad (2.82)$$

で与えられる。ここで Tr は量子数に関するトレースを表す。特に $O_{\mu\nu}^{\alpha}(t)^* = Q_{\nu\mu}^{\alpha}(t)$ かつ $V_{\mu\nu}^{\alpha}(t)^* = V_{\nu\mu}^{\alpha}(t)$ を満たす場合には、式 (2.18) より

$$\chi_{\alpha\beta}^{\text{pm}}(t, t') = -2 \text{Im Tr} \left[O^{\alpha}(t) G^{\text{R}}(t, t') V^{\beta}(t') G^{\leq}(t', t) \right] \quad (2.83)$$

となる。

本論文では第 3 章において光学伝導度 [式 (3.29)–(3.32)], 第 6 章においてスピン感受率および電荷感受率 [式 (6.41)] の解析を行った。

第 3 章

二重交換系における 光誘起強磁性—反強磁性転移

二重交換相互作用は伝導電子によって媒介される局在磁気モーメントの間の強磁性相互作用である。本章では高強度の光照射によって誘起される実時間ダイナミクスの数値シミュレーションを行い、強磁性金属状態から反強磁性状態への転移が起こることを示す。取扱う理論模型は反強磁性相互作用をあらわに含まないため、これは高強度の光照射下において二重交換相互作用が反強磁性的に振舞うことを示唆する。

3.1 理論模型

光照射下の非平衡状態における純粋な二重交換機構を議論するため、ここでは最も簡単な模型を考える。ハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_{\text{kin}} + \mathcal{H}_{\text{Hund}} = \sum_{\langle ij \rangle s} h_{ij} c_{is}^\dagger c_{js} - \frac{J}{S} \sum_{iss'} \mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_i \quad (3.1)$$

で与えられる。ここで c_{is}^\dagger はスピン s ($= \uparrow, \downarrow$) の電子をサイト i に生成する生成演算子であり、 $\boldsymbol{\sigma}_i = \sum_{ss'} \boldsymbol{\sigma}_{ss'} c_{is}^\dagger c_{is'}$ はサイト i における伝導電子スピンを表す。ベクトル $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma^x, \sigma^y, \sigma^z)$ は Pauli 行列であり、 \mathbf{S}_i は局在スピンの演算子である。第一項 (\mathcal{H}_{kin}) は伝導電子の運動エネルギーを表し、サイト i とサイト j の間の電子遷移積分が h_{ij} で与えられる。第二項 ($\mathcal{H}_{\text{Hund}}$) は伝導電子スピン $\boldsymbol{\sigma}_i$ と局在スピン \mathbf{S}_i の間の Hund 結合を表す。本章では局在スピンを大きさ $S = 1$ のベクトルとして古典的に取り扱う。サイト数を N 、電子数を N_e 、電子密度を $n_e = N_e/N$ と置く。 x - y 平面上の二次元正方格子を考え、 x 方向に周期境界条件、 y 方向に反周期境界条件を課す^{*1}。電子遷移積分は最近接サイト間のみ非零 ($h_{ij} = -h < 0$) であるものとする。このとき、 $n_e = 0.5$ かつ $J/S \gtrsim 4h$ のとき強磁性金属状態が基底状態になることが知られている。

本論文では電磁ポテンシャルに関して放射ゲージを採用する。光照射の効果は Peierls 位相として $h_{ij} \rightarrow h_{ij} e^{ie\mathbf{A}(t)(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)/\hbar}$ のように取り入れる。ここで $\mathbf{A}(t)$ は時刻 t におけるベクトルポテンシャルであり、 \mathbf{r}_i はサイト i の位置を表す。直線偏光を考え、ベクトルポテンシャルを

$$\mathbf{A}(t) = (\mathbf{F}_0/\Omega)\theta(t) \sin(\Omega t), \quad \mathbf{F}_0 = (F_0, F_0) \quad (3.2)$$

^{*1} 両方向ともに周期境界条件を課した場合にはしばしば強磁性状態が不安定化する。伝導電子系が閉殻となるように境界条件を決める必要がある [156, 165, 202].

と定義する．ここで F_0 は電場振幅， Ω は光振動数を表す．関数 θ は階段関数である．これ以降，最近接サイト間の電子遷移積分 h ，電子の電荷 $e (< 0)$ ，格子定数 a ，Dirac 定数 \hbar を 1 とする単位系を採用する．ペロフスカイト型マンガン酸化物における典型的な値として $h = 0.5 \text{ eV}$ を考えると，時間の単位は $\hbar/h = 1.32 \text{ fs}$ に対応する．他の物理量の SI との対応については表 1.1 にまとめた．

3.2 解析手法

3.2.1 実時間ダイナミクス

一般論

ここでは文献 [163, 164] に基づく実時間ダイナミクスの数値計算手法を説明する．ハミルトニアンが

$$\mathcal{H} = \sum_{ij} h_{ij}[\varphi] c_i^\dagger c_j \quad (3.3)$$

で与えられる系を考える．ここで c_i^\dagger (c_i) は電子の生成（消滅）演算子であり，添字 i, j は一般の量子数を表す．係数 $h_{ij}[\varphi]$ は古典的な場 φ に依存するものとする．時刻 t における電子系の状態は単一 Slater 行列式で表される純粋状態

$$|\Psi(t)\rangle = \prod_{\nu=1}^{N_e} \psi_\nu^\dagger(t) |0\rangle \quad (3.4)$$

であるものとする．ここで $\psi_\nu^\dagger(t)$ は量子数 ν の電子の生成演算子であり， N_e は系の電子数である．状態 $|0\rangle$ は真空を表す．古典場が時間 t に依存する場合 ($\varphi = \varphi(t)$)，ハミルトニアンの係数 $h_{ij}(t) = h_{ij}[\varphi(t)]$ も時間変化するために多彩な現象が現れる．

ハミルトニアン [式 (3.3)] における係数 h_{ij} を対角化し，

$$\mathcal{H}(t) = \sum_{ij} h_{ij}(t) c_i^\dagger c_j = \sum_{\nu} \varepsilon_\nu \phi_\nu^\dagger(t) \phi_\nu(t) \quad (3.5)$$

を得る．ここで $\phi_\nu^\dagger(t)$ は量子数 ν の電子の生成演算子であり，係数 $h_{ij}(t)$ が時間依存する場合には Schrödinger 描像においても陽に時間依存する．対角化する行列の次元 N_{dim} は系のクラスターサイズ N に比例するため，多体相互作用を含むハミルトニアンの数値厳密対角化法 ($N_{\text{dim}} \sim \exp(N)$) に比べて遥かに大きいクラスターの解析が可能である．単一 Slater 行列式 [式 (3.4)] における生成演算子 $\psi_\nu^\dagger(t)$ は，時刻 t のハミルトニアンを対角化する演算子 $\phi_\nu^\dagger(t)$ を用いて次のように展開できる．

$$\psi_\nu^\dagger(t) = \sum_{\mu=1}^{N_{\text{dim}}} \phi_\mu^\dagger(t) u_{\mu\nu}(t), \quad u_{\mu\nu}(t) = \langle 0 | \phi_\mu(t) \psi_\nu^\dagger(t) | 0 \rangle. \quad (3.6)$$

ユニタリ行列 $u_{\mu\nu}(t)$ は初期条件として $u_{\mu\nu}(0) = \delta_{\mu\nu}$ を満たすものとする．十分に短い時間間隔 $[t, t + \delta t]$ を考え，そこでは古典場 $\varphi = \varphi(t)$ を一定と見なす．このとき時刻 $t + \delta t$ におけるユニタリ行列 $u(t + \delta t)$ は， $u(t)$ を用いて

$$\begin{aligned} u_{\mu\nu}(t + \delta t) &= \langle 0 | \phi_\mu(t + \delta t) \psi_\nu^\dagger(t + \delta t) | 0 \rangle \\ &= \langle 0 | \phi_\mu(t + \delta t) e^{i\mathcal{H}(t)\delta t} \psi_\nu^\dagger(t) e^{-i\mathcal{H}(t)\delta t} | 0 \rangle \\ &= \sum_{\lambda} \langle 0 | \phi_\mu(t + \delta t) e^{i\mathcal{H}(t)\delta t} \phi_\lambda^\dagger(t) e^{-i\mathcal{H}(t)\delta t} | 0 \rangle u_{\lambda\nu}(t) \\ &= \sum_{\lambda} \langle 0 | \phi_\mu(t + \delta t) \phi_\lambda^\dagger(t) | 0 \rangle e^{i\varepsilon_{\lambda\mu}(t)\delta t} u_{\lambda\nu}(t) \end{aligned} \quad (3.7)$$

と表される．これにより状態 $|\Psi(t)\rangle$ の時間発展を計算することが可能となる．

状態 $|\Psi(t)\rangle$ に対して，一体の物理量

$$\hat{O}(t) = \sum_{\mu\nu} O_{\mu\nu}(t) \psi_{\mu}^{\dagger}(t) \psi_{\nu}(t) \quad (3.8)$$

の期待値 $\langle \hat{O}(t) \rangle \equiv \langle \Psi(t) | \hat{O}(t) | \Psi(t) \rangle$ は次式で与えられる．

$$\langle \hat{O}(t) \rangle = \sum_{\alpha\beta} O_{\alpha\beta}(t) \langle 0 | \left[\prod_{\mu=1}^{N_e} \psi_{\mu}(t) \right] \psi_{\alpha}^{\dagger}(t) \psi_{\beta}(t) \left[\prod_{\nu=1}^{N_e} \psi_{\nu}^{\dagger}(t) \right] | 0 \rangle = \sum_{\alpha=1}^{N_e} O_{\alpha\alpha}(t). \quad (3.9)$$

実際の計算では始めに $\psi_{\nu}^{\dagger}(t)|0\rangle = \sum_{\mu} \phi_{\mu}^{\dagger}|0\rangle u_{\mu\nu}(t)$ を求めておき，これを用いて $\langle \hat{O}(t) \rangle = \sum_{\nu} O_{\nu\nu}(t) = \sum_{\nu} \langle 0 | \psi_{\nu}(t) \hat{O}(t) \psi_{\nu}^{\dagger}(t) | 0 \rangle$ を評価する．前者は行列-行列積のため $O(N_{\text{dim}}^3)$ ，後者は疎行列-密行列積^{*2}と N_e 個のベクトル-ベクトル積に分解されるため物理量一つあたり $O(N_{\text{dim}}^2)$ の計算量となる．

二重交換模型 [式 (3.1)] への適用

電子系の初期状態として電子密度 $n_e < 1$ の強磁性金属状態を考える．これは単一 Slater 行列式として

$$|\Psi(t)\rangle = \prod_{\nu=1}^{N_e} \psi_{\nu}^{\dagger}(t) | 0 \rangle \quad (3.10)$$

と表される．ここで ψ_{ν}^{\dagger} は量子状態 ν の電子の生成演算子であり， $|0\rangle$ は真空である．局在スピンを古典的に取り扱うことで，時刻 t におけるハミルトニアンは

$$\mathcal{H}(t) = \sum_{ijs} h_{is,js'}(t) c_{is}^{\dagger} c_{js'} = \sum_{\nu} \varepsilon_{\nu} \phi_{\nu}^{\dagger}(t) \phi_{\nu}(t) \quad (3.11)$$

のように表され， $2N$ 次元の係数行列 $h_{is,js'}$ を対角化することで一粒子エネルギー準位 ε_{ν} と対応する生成（消滅）演算子 ϕ_{ν}^{\dagger} (ϕ_{ν}) が得られる．上で議論したように，演算子 ψ^{\dagger} は ϕ^{\dagger} のユニタリ変換 [式 (3.6)] により得られる．また，十分に短い時間間隔 $[t, t + \delta t]$ を考え，この間の局在スピン配置 $\{\mathbf{S}_i(t)\}$ の時間変化は無視できるものとする，電子系の時間発展は式 (3.7) により計算できる．物理量の期待値は式 (3.9) により与えられる．

局在スピン系の時間発展は LLG 方程式

$$\frac{\partial \mathbf{S}_i}{\partial t} = \mathbf{h}_i^{\text{eff}} \times \mathbf{S}_i + \alpha \mathbf{S}_i \times \frac{\partial \mathbf{S}_i}{\partial t} \quad (3.12)$$

により計算する．ここで $\mathbf{h}_i^{\text{eff}}$ はスピン \mathbf{S}_i が感じる有効的な磁場であり

$$\mathbf{h}_i^{\text{eff}} = - \left\langle \frac{\partial \mathcal{H}}{\partial \mathbf{S}_i} \right\rangle = \frac{J \langle \boldsymbol{\sigma}_i \rangle}{S} \quad (3.13)$$

により定義される．十分に短い時間幅 δt に対して $\mathbf{h}_i^{\text{eff}}$ が一定と見なせるとき，LLG 方程式は解析的に解くことができる．有効磁場 $\mathbf{h}_i^{\text{eff}}$ と平行な方向に z 軸を取ったときの古典スピンの方位角を $\tilde{\phi}_i(t)$ ，天頂角を $\tilde{\theta}_i(t) = \cos^{-1}[\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{h}_i^{\text{eff}} / (S \|\mathbf{h}_i^{\text{eff}}\|)]$ とすれば

$$\delta \tilde{\phi}_i \equiv \tilde{\phi}_i(t + \delta t) - \tilde{\phi}_i(t) = \frac{\|\mathbf{h}_i^{\text{eff}}\| \delta t}{1 + S^2 \alpha^2}, \quad \tilde{\theta}_i(t + \delta t) = 2 \tan^{-1} \left[\tan(\tilde{\theta}_i(t)/2) \exp(-S \alpha \delta \tilde{\phi}_i) \right] \quad (3.14)$$

^{*2} 議論の対象となる物理量の多くは空間的に局所的な演算子とその和で表されるため，量子数 i, j をサイトを表す添字とすれば行列 $\langle 0 | c_i \hat{O} c_j^{\dagger} | 0 \rangle$ は疎行列になる．一方，行列 $\langle 0 | c_j \psi_{\nu}^{\dagger} | 0 \rangle = \sum_{\mu} \langle 0 | c_j \phi_{\mu}^{\dagger} | 0 \rangle u_{\mu\nu}$ は一般に密行列である．

となる^{*3}。元の座標系における古典スピンの天頂角と方位角をそれぞれ θ_i, ϕ_i としたとき, $\tilde{\theta}_i, \tilde{\phi}_i$ との関係を知る必要がある。これは Rodrigues の回転公式を用いるのが簡便である。これによると, ベクトル \mathbf{v} を単位ベクトル \mathbf{n} の周りに角度 φ だけ回転させて得られるベクトル $\tilde{\mathbf{v}}$ は

$$\tilde{\mathbf{v}} = \mathbf{v} \cos \varphi + (\mathbf{n} \times \mathbf{v}) \sin \varphi + \mathbf{n}(\mathbf{n} \cdot \mathbf{v})(1 - \cos \varphi) \quad (3.15)$$

により与えられる。今の場合には

$$\mathbf{n} = \frac{\mathbf{h}_i^{\text{eff}}}{\|\mathbf{h}_i^{\text{eff}}\|} \equiv (\sin \Theta_i \cos \Phi_i, \sin \Theta_i \sin \Phi_i, \cos \Theta_i), \quad (3.16)$$

$$\mathbf{v} = (\sin \theta_i \cos \phi_i, \sin \theta_i \sin \phi_i, \cos \theta_i) \quad (3.17)$$

とする。はじめに \mathbf{S}_i を $\mathbf{h}_i^{\text{eff}}(t)$ を中心に角度 $\varphi = \tilde{\phi}_i(t + \delta t) - \tilde{\phi}_i(t)$ だけ回転させ, これにより得られたベクトル $\tilde{\mathbf{S}}_i$ から $\mathbf{n}_\perp = \mathbf{n} \times \tilde{\mathbf{S}}_i / \|\mathbf{n} \times \tilde{\mathbf{S}}_i\|$ を構成する。続いて $\tilde{\mathbf{S}}_i$ を \mathbf{n}_\perp のまわりに角度 $\varphi = \tilde{\theta}_i(t + \delta t) - \tilde{\theta}_i^0$ だけ回転させることで $\mathbf{S}_i(t + \delta t)$ が得られる。

3.2.2 光学伝導度

第2章第2.4節で導出した表式 (2.75) および (2.82) を用いて光学伝導度の定式化を行う。ここでは $t_a = t, t_r = t - t'$ と定義する。遅延 Green 関数および lesser Green 関数を

$$G_v^R(t_a, t_r) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \frac{e^{-i\omega t_r}}{\omega + i\eta - \varepsilon_v(t_a)} = -i\theta(t_r) e^{-i\varepsilon_v(t_a)t_r}, \quad (3.18)$$

$$G_v^<(t_a, t_r) = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{-i\omega t_r} \times 2\pi i \delta(\omega - \varepsilon_v(t_a)) n_v(t_a) = i n_v(t_a) e^{-i\varepsilon_v(t_a)t_r} \quad (3.19)$$

と定義する。ここで $n_v(t_a) = \langle \phi_v^\dagger(t_a) \phi_v(t_a) \rangle$ である。波数空間での Green 関数は

$$G_{\mathbf{k}s, \mathbf{k}'s'}^X(t_a, t_r) \approx \sum_v \langle \mathbf{k}s | v(t_a) \rangle G_v^X(t_a, t_r) \langle v(t_a) | \mathbf{k}'s' \rangle \quad (3.20)$$

により与えられる。光学伝導度 σ は電場 \mathbf{F} に対する電流密度 \mathbf{j} の応答であり,

$$\langle j^\alpha(t) \rangle = \sum_\beta \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} \sigma_{\alpha\beta}(t, \bar{t}) F^\beta(\bar{t}) \quad (3.21)$$

により定義される。一方, 電流密度に共役な量はベクトルポテンシャル \mathbf{A} であり, これに対する応答関数として

$$\langle j^\alpha(t) \rangle = \sum_\beta \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{t} \chi_{\alpha\beta}(t, \bar{t}) A^\beta(\bar{t}) \quad (3.22)$$

により電流感受率 χ が定義される。放射ゲージではベクトルポテンシャルの時間微分が電場を与えるため, 電気伝導度と電流感受率の間には

$$\sigma_{\alpha\beta}(t, t') = - \int_{t'}^{\infty} d\bar{t} \chi_{\alpha\beta}(t, \bar{t}) \quad (3.23)$$

^{*3} 天頂角 $\tilde{\theta}_i(t)$ が十分に小さい場合には $\tilde{\theta}_i(t + \delta t) \approx \tilde{\theta}_i(t) \exp(-\delta t/\tau)$ となり, $\tau \equiv (1 + S^2 \alpha^2)/(S\alpha \|\mathbf{h}_i^{\text{eff}}\|)$ を緩和の時定数と見なすことができる。

の関係が成り立つ。電流密度演算子とその結合ハミルトニアンはそれぞれ

$$j^\alpha(t) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}s} v_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t),s}^\alpha c_{\mathbf{k}s}^\dagger c_{\mathbf{k}s}, \quad (3.24)$$

$$\mathcal{V}_{\text{ext}}(t) = \sum_{\mathbf{k}s} (\varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t),s} - \varepsilon_{\mathbf{k}s}) c_{\mathbf{k}s}^\dagger c_{\mathbf{k}s} \quad (3.25)$$

と表されるから、式 (2.69) および (2.70) における係数 $O_{\mu\nu}^\alpha(t)$, $\mathcal{F}_{\mu\nu}(t)$ は

$$O_{\mathbf{k}s,\mathbf{k}'s'}^\alpha(t) = \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{ss'} v_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t),s}^\alpha / N, \quad (3.26)$$

$$\mathcal{F}_{\mathbf{k}s,\mathbf{k}'s'}(t) = -\delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \delta_{ss'} (\varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t),s} - \varepsilon_{\mathbf{k}s}) \quad (3.27)$$

と定められる。ここで $\varepsilon_{\mathbf{k}s}$ は強磁性金属相の初期状態におけるハミルトニアン [式 (3.1)] の Fourier 変換から

$$\varepsilon_{\mathbf{k}s} = -2(\cos k^x + \cos k^y) - J \operatorname{sgn}(s) \quad (3.28)$$

により与えられるスピン依存したエネルギーバンドであり、 $\mathbf{v}_{\mathbf{k}s} \equiv \partial_{\mathbf{k}} \varepsilon_{\mathbf{k}} s$ はその勾配である。式 (3.26) および (3.27) より、反磁性応答と常磁性応答はそれぞれ

$$\chi_{\alpha\beta}^{\text{dia}}(t_a, t_r) = -\delta(t_r) \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}s} \frac{\partial^2 \varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t_a),s}}{\partial k^\alpha \partial k^\beta} \operatorname{Im} G_{\mathbf{k}s,\mathbf{k}s}^<(t_a, t_r = 0), \quad (3.29)$$

$$\chi_{\alpha\beta}^{\text{pm}}(t_a, t_r) = -\frac{2}{N} \operatorname{Im} \operatorname{Tr} [v^\alpha(t_a) G^{\text{R}}(t_a, t_r) v^\beta(t_a - t_r) G^<(t_a, -t_r)] \quad (3.30)$$

と表される。トレースは \mathbf{k} および s について取る。光学伝導度は

$$\sigma_{\alpha\beta}(\omega, t_a) = \int_{-\infty}^{\infty} dt_r e^{i(\omega+i\eta)t_r} \sigma_{\alpha\beta}(t_a, t_r), \quad (3.31)$$

$$\begin{aligned} \sigma_{\alpha\beta}(t_a, t_r) &= - \int_{t'}^{\infty} d\bar{t} \chi_{\alpha\beta}(t_a = t, \bar{t}_r = t - \bar{t}) = - \int_{-\infty}^{t_r} d\bar{t}_r \chi_{\alpha\beta}(t_a, \bar{t}_r) \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}s} \theta(t_r) \frac{\partial^2 \varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t_a)}}{\partial k^\alpha \partial k^\beta} \operatorname{Im} G_{\mathbf{k}s,\mathbf{k}s}^<(t_a, t_r = 0) \\ &\quad + 2 \int_{-\infty}^{t_r} d\bar{t}_r \operatorname{Im} \operatorname{Tr} [v^\alpha(t_a) G^{\text{R}}(t_a, \bar{t}_r) v^\beta(t_a - \bar{t}_r) G^<(t_a, -\bar{t}_r)] \end{aligned} \quad (3.32)$$

により求められる。

3.3 結果

3.3.1 初期状態

初期状態として $J = 4$, $n_e = 0.5$ の強磁性金属相の基底状態を仮定する。伝導電子と局在スピンは完全偏極しており、エネルギーバンドは Hund 結合によって下部バンド（メジャースピンバンド）と上部バンド（マイナースピンバンド）の二つに分裂する。この分裂幅（各バンドの中心間のエネルギー差）は $2J = 8$ である。電子数密度 $n_e = 0.5$ の場合は下部バンドの半分が電子で占有されたハーフメタルになる。完全偏極した状態では光照射は伝導電子の反磁性電流を誘起し、バンド間遷移を生じない。伝導電子のスピン状態が不変であるため、局在スピンの感じる有効磁場 $\mathbf{h}_i^{\text{eff}}$ は時間変化せず、ゆえに局在スピン自体も時間変化しない。これを避けるために、 z 軸正の向きの完全強磁性状態を基準としてすべての局

在スピんに乱数に基づく揺らぎを導入した．この揺らぎは天頂角 $[0, \delta\theta]$ の範囲で一様分布になるように与え，本章では $\delta\theta = 0.1 \text{ rad}$ とした．これは温度に換算して $0.001h = 10 \text{ K}$ 程度の熱揺らぎに相当すると考えられる^{*4}．

3.3.2 実時間ダイナミクス

光照射によって誘起される実時間ダイナミクスを議論する．特に断りのない限り，Gilbert 減衰定数の大きさを $\alpha = 1$ ，数値計算上の時間幅を $\delta t = 0.001$ とする．

光の電場振幅を $F_0 = 2$ ，振動数を $\Omega = 1$ とした場合のエネルギー，一粒子エネルギー準位 ε_ν とその電子占有数 $n_\nu = \langle \phi_\nu^\dagger \phi_\nu \rangle$ ，およびスピン構造因子 $S(\mathbf{q})$ を図 3.1 に示す．スピン構造因子は

$$S(\mathbf{q}) = \frac{1}{S^2 N^2} \sum_{ij} e^{i\mathbf{q}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (3.33)$$

により定義される．これは $\sum_{\mathbf{q}} S(\mathbf{q}) = 1$ を満たす．

図 3.1(c) のスピン構造因子から明らかなように，光照射による強磁性金属状態から反強磁性状態 ($S(\pi, \pi) \approx 0.9$) への変化が見られる．この実時間ダイナミクスは大きく次の 5 段階に分けられる．(i) 光照射前の初期状態 ($t < 0$)，(ii) 光照射直後 ($0 < t \leq 30$)，(iii) 強磁性秩序の融解 ($30 \leq t \leq 60$)，(iv) 反強磁性秩序の発達 ($60 \leq t \leq 150$)，(v) 反強磁性定常状態 ($t \geq 150$)．

(i) 光照射前の初期状態 ($t < 0$) 初期状態は $n_c = 0.5$ の強磁性金属状態である．図 3.1(b) は一粒子エネルギー準位の時間変化を示しており，線の色は対応する準位の電子占有数を表す．時刻 $t = 0$ ではバンド幅 8 の下部バンドと上部バンドの中心がそれぞれ $\varepsilon_\nu = -4$ と $\varepsilon_\nu = 4$ に位置しており， $\varepsilon_\nu < -4$ の状態まで電子が占有していることが確かめられる．このときスピン構造因子は $S(0, 0) \approx 1$ であり，局在スピンはほぼ完全な強磁性状態である．

(ii) 光照射直後 ($0 < t \leq 30$) 運動エネルギー $\langle \mathcal{H}_{\text{kin}} \rangle$ は振動数 2Ω のコヒーレントな振動を示す．これは光のベクトルポテンシャルに比例した伝導電子の瞬時的反磁性応答である．これを反映して，図 3.1(b) には一粒子占有・非占有状態がそれぞれ断熱的に変化する様子が確認できる．後で議論するように，この時間領域の振舞いは動的局在現象として良く記述できる．

(iii) 強磁性秩序の融解 ($30 \leq t \leq 60$) ここではスピン構造因子の強磁性成分 $S(0, 0)$ が急激に減少しており，強磁性秩序の融解が起こる．これに伴って伝導電子の下部・上部バンドのバンド幅 W が $W = 8$ から $W = 5$ 程度まで大きく減少する．局在スピン配置の変化は下部バンドと上部バンドの間の電子遷移を引き起こし，下部バンドの一粒子状態の電子占有数は一様な値へ向かって変化する．このときの $S(\mathbf{q})$ を波数空間で示したものが図 3.1(d)(e) であり，波数 $\mathbf{q}/\pi = (\pm 0.75, \mp 0.75)$ にピークが現れる^{*5}．これは偏光方向に依存しており，実際に図 3.1(f) に示したように $\mathbf{F}_0 = (2\sqrt{2}, 0)$ の場合には $\mathbf{q} = (\pi, 0)$ にピークを持

^{*4} 局在スピンの揺らぎは天頂角について一様分布であること，ならびに伝導電子は一粒子準位をエネルギーの低い順に占有していることから厳密には熱平衡状態ではないが，次のように温度と $\delta\theta$ の対応が見積もられる．局在スピンは Hund 結合を介して伝導電子スピンによる有効的な磁場を感じる．これによる Zeeman エネルギーは，二つのスピンのなす角を θ として $-(J/S)\langle \sigma_i \rangle \cdot \mathbf{S}_i = -J\|\langle \sigma_i \rangle\| \cos \theta \equiv -B \cos \theta$ と表される．角度 θ が $[0, \delta\theta]$ の範囲で一様に分布している場合，局在スピン一つあたりのエネルギーの増分は平均 $E_1 = -B \cos(\delta\theta/2)$ である．一方，局在スピンの一粒子分配関数は $Z = \int_{-1}^1 d(\cos \theta) e^{\beta B \cos \theta} = 2 \sinh(\beta B)/(\beta B)$ となり，内部エネルギーは $E_2 = -\partial \ln Z / \partial \beta = -B \coth(\beta B) + \beta^{-1}$ と求められる．これらのエネルギーが等しいと仮定すると温度 β^{-1} に関する方程式が得られる．各変数が $S = 1$ ， $n_c = 0.5$ ， $J = 4h$ ， $\delta\theta = 0.1$ のとき $B = -J\|\langle \sigma_i \rangle\|S = -Jn_c = -2.0h$ であり，温度は $\beta^{-1}/h = 0.0025 \sim 10^{-3}$ となる．これは文献 [163, 164] の見積もりと同程度の値である．

^{*5} 後にクラスターサイズ依存性 [図 3.5] について議論するように， $(\pm 0.75\pi, \mp 0.75\pi) = (\pm\pi \mp 2\pi/8, \mp\pi \pm 2\pi/8)$ に現れるピークは熱力学極限 $N \rightarrow \infty$ では (π, π) に近付くと考えられる．

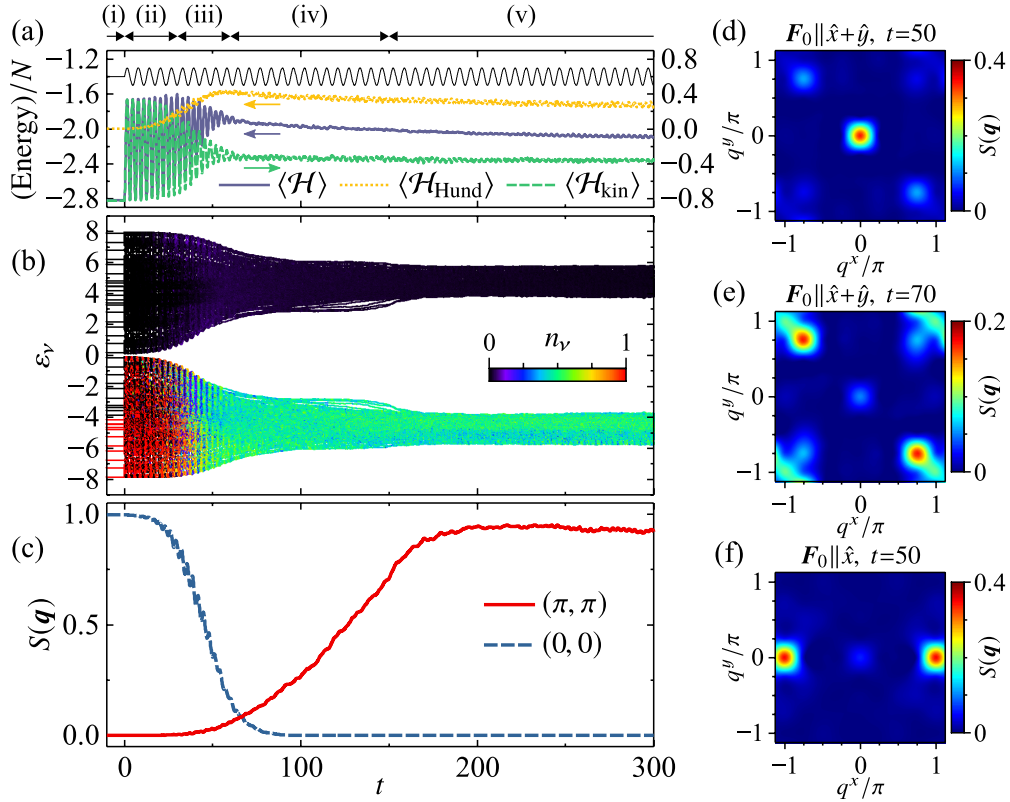


図 3.1 光照射下の物理量の時間プロファイル。Hund 結合の大きさは $J = 4$ ，電子数密度は $n_e = 0.5$ 。光の振幅と振動数は $F_0 = 2, \Omega = 1$ である。 \hat{x}, \hat{y} をそれぞれ x, y 方向の単位ベクトルとして，偏光方向は (a)–(e) $\mathbf{F}_0 \parallel \hat{x} + \hat{y}$ および (f) $\mathbf{F}_0 \parallel \hat{x}$ とした。(a) 全エネルギー，Hund 結合項のエネルギー，および運動項のエネルギー。黒色実線はベクトルポテンシャルの波形を表す。(b) 一粒子エネルギー準位とその電子占有数。(c) 波数 $\mathbf{q} = (0, 0)$ および (π, π) におけるスピン構造因子。(d)–(f) 過渡状態 ($t = 50, 70$) におけるスピン構造因子。

つ。強磁性秩序が融解するまでの時間を t_F と表し，ここでは $S(0, 0) = 0.5$ となる時刻 t として定義する。(iv) 反強磁性秩序の発達 ($60 \leq t \leq 150$) 強磁性秩序の融解後，波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ の構造因子 $S(\pi, \pi)$ で特徴付けられる反強磁性秩序が発達を始める。この典型的な時間を t_{AF} と表し， $S(\pi, \pi) = 0.5$ となる時刻 t として定義する。時刻 t_F から時刻 t_{AF} までの遅れについては後ほど議論する。バンド幅には時間的に平坦な構造が現れ，およそ $W \sim 3$ 程度の値を取る。

(v) 反強磁性定常状態 ($t \geq 150$) 反強磁性定常状態が実現する。このとき下部バンドと上部バンドのバンドギャップはおよそ $2J$ であり，ハーフフィリング ($n_e = 1$) の平衡状態と同様の Slater ギャップであると解釈できる。下部バンドの電子状態はほぼ一様な占有数 $\langle n_{\nu} \rangle = n_e$ を示す。バンド幅は $W \sim 2$ 程度の値を取り，これはハーフフィリングの反強磁性状態におけるバンド幅に近い。

様々な電場振幅に対するバンド幅 W ，上部バンドの電子密度 N_e^{upper}/N ，スピン構造因子 $S(\mathbf{q})$ を図 3.2 に示す。光振動数は $\Omega = 1$ である。バンド幅は下部バンドの最高エネルギー状態と最低エネルギー状態の差として計算しているが，電子正孔対称性により上部バンドのバンド幅と一致する。図 3.2(c) に示されるように，強磁性秩序が融解するまでの時間は F_0 の増大とともに短くなる。強磁性相関 $S(0, 0)$ の減少と同時にバンド幅 W は縮小するが，これは伝導電子のバンド構造が局在スピン配置によって決定されるためである。上部バンドの電子数密度は強磁性秩序の融解と同時に上昇するが，これは下部バンドの電子が秩序融解による余剰なエネルギーを受け取ることで上部バンドへ励起されることを意味しており，文献 [164] では Auger 過程に類似したものとして解釈されている。上部バンドへ励起された電子が緩和

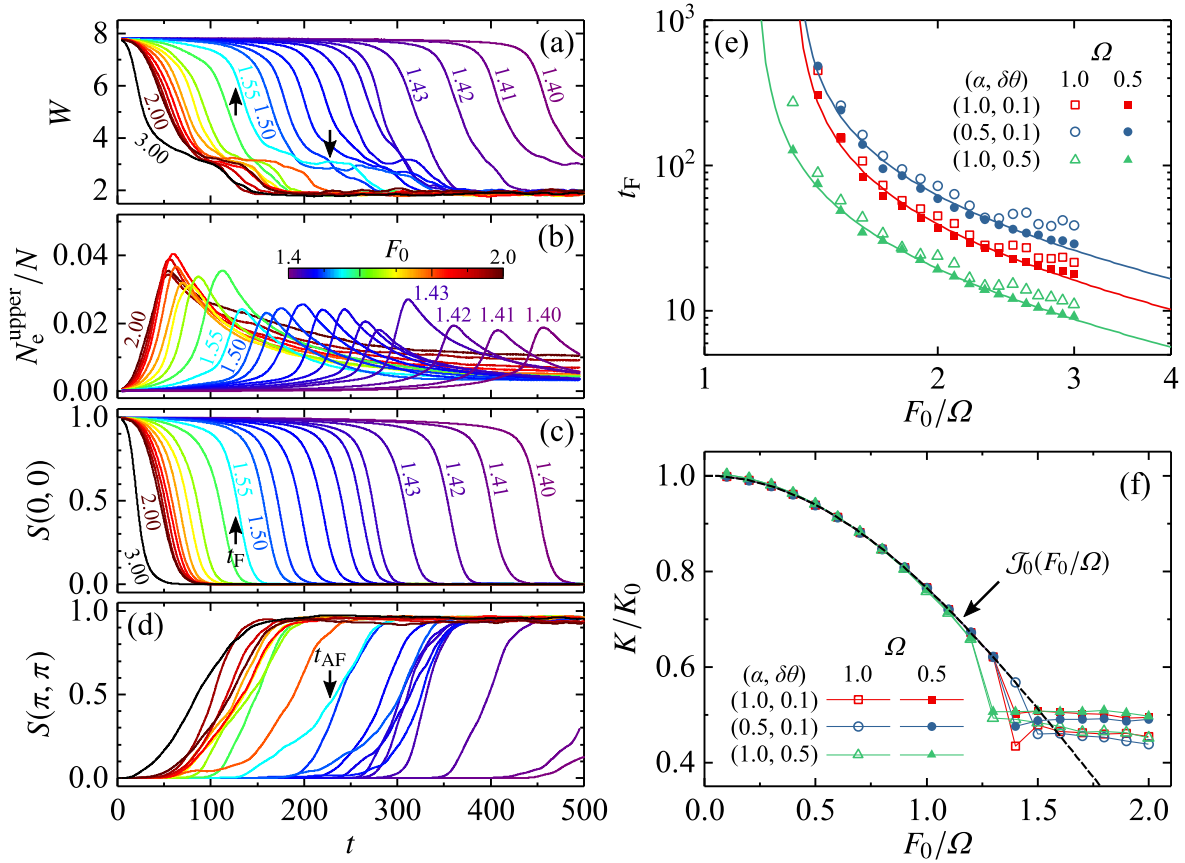


図 3.2 電場振幅 $F_0 = 1.4\text{--}2$ に対する (a) 電子のバンド幅, (b) 上部バンドの電子数密度, (c) 強磁性スピン構造因子, (d) 反強磁性スピン構造因子の時間プロファイル. 光振動数は $\Omega = 1$. (a)(c)(d) における黒色矢印は $F_0 = 1.55$ の場合の時刻 t_F および t_{AF} を示す. (e) 強磁性秩序が融解するまでの特徴的時間 t_F をベクトルポテンシャル振幅 F_0/Ω の関数としてプロットしたもの. 実線は幂関数 $(F_0/\Omega - c)^\gamma$ によるフィッティング曲線. (f) 時刻 $t = 400\text{--}500$ の間で時間平均された運動エネルギーと基底状態における運動エネルギーの比. 黒色破線は Bessel 関数 $\mathcal{J}_0(F_0/\Omega)$ を表す.

するとともに反強磁性相関 $S(\pi, \pi)$ が徐々に現れ, その立ち上がりの時刻は強磁性相関 $S(0, 0)$ がほぼ完全に消失した時刻と一致している. 一方で, 完全な反強磁性秩序が実現するまでの時間は電場振幅に大きく依存する. 第 4 章において詳しく議論するように, この過渡状態において見られる反強磁性相関の非単調な振舞いは電場振幅のみならず局在スピンの初期配置に大きく依存しており, 長周期的なスピン構造と密接な関係を持つ.

強磁性から反強磁性への光誘起転移の時間スケールを議論するため, 強磁性秩序が融解する時刻 t_F の電場振幅依存性を議論する. 図 3.2(e) は t_F を無次元化された電場振幅 (ベクトルポテンシャル振幅) F_0/Ω の関数として示しており, シンボルの種類は光振動数 Ω , 減衰定数 α および初期揺らぎの大きさ $\delta\theta$ を表す. ある $(\alpha, \delta\theta)$ に対して t_F は F_0/Ω によってスケールされており, これは実線で示された $(F_0/\Omega - c)^\gamma$ の形の関数でよくフィットすることができる. ここで $\gamma \approx 1$ であり, c は 1.1–1.3 程度の値を取っている. 有限の c は, この光誘起反強磁性転移に対して電場振幅に閾値強度が存在することを意味する.

強磁性秩序が融解する前の時間領域 (ii) における振舞いは動的局在として理解することができる.

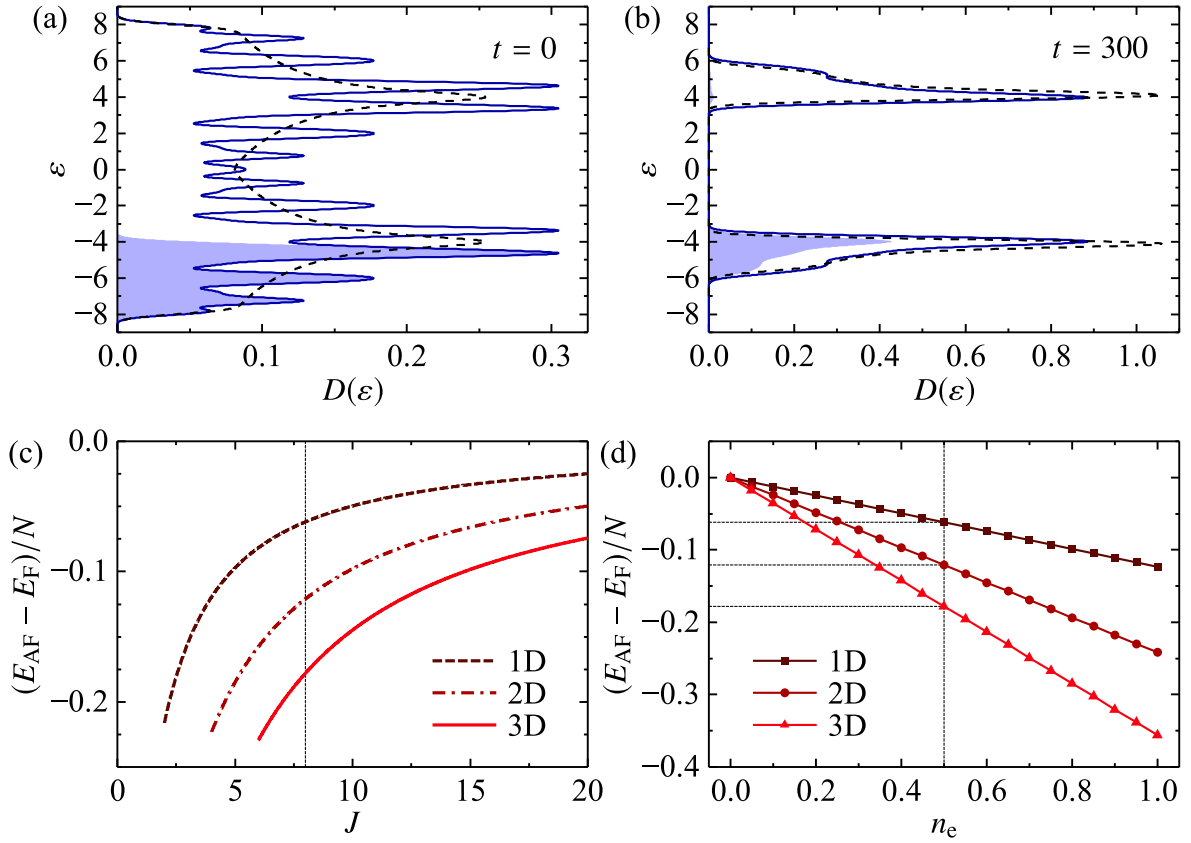


図 3.3 (a) 初期状態 ($t = 0$) における状態密度. 青色で色付けされた領域は電子占有状態を表す. (b) 反強磁性定常状態 ($t = 300$) における状態密度と電子占有状態. (c)(d) 下部バンド内一様分布を仮定した場合の反強磁性状態と強磁性状態のエネルギー差. (c) では $n_e = 0.5$, (d) では $J = 8$ とした. 破線, 一点鎖線, および実線はそれぞれ一次元格子, 二次元正方格子, および三次元正方格子における結果を表す.

図 3.2(f) は次式で定義される運動エネルギーの長時間平均を示す.

$$K = \int_{T_{\max} - \Delta T}^{T_{\max}} \frac{dt}{\Delta T} \langle \mathcal{H}_{\text{kin}} \rangle. \quad (3.34)$$

ここでは $T_{\max} = 500$, $\Delta T = 100$ とした. K_0 は初期状態における運動エネルギーである. 閾値強度より小さい電場振幅に対しては強磁性秩序は融解せず, F_0/Ω の増加に対して運動エネルギーの比 K/K_0 は単調に減少しており, 零次の Bessel 関数 $\mathcal{J}_0(F_0/\Omega)$ に従う. 動的局在の理論 [143–146] によれば, 連続波が印加された強束縛自由電子模型の電子遷移積分は元の値の $\mathcal{J}_0(F_0/\Omega)$ 倍になり, これは得られた結果と整合する. 一方, $F_0/\Omega \gtrsim 1.25$ の領域では Bessel 関数からの差異が確認できる. これは強磁性秩序の融解に伴ってバンド幅が減少することを反映している.

光照射によって現れた反強磁性定常状態について議論する. 図 3.3(a), 3.3(b) はそれぞれ光照射前の強磁性基底状態と光照射下の反強磁性定常状態 ($t = 300$) における状態密度を青色実線で示している. 青色で網掛けされた部分は状態密度に電子占有数を掛けたものであり, 黒色破線は (a) 強磁性基底状態 ($n_e = 0.5$) と (b) 反強磁性基底状態 ($n_e = 1$) における状態密度を表す. 特に反強磁性定常状態における状態密度は平衡状態の状態密度と良く一致している一方で, Fermi–Dirac 分布とは異なるような電子分布が下部バンド内で実現している. 反強磁性状態の安定性を議論するために, ここでは光照射下の定常状態においても全エネルギーの低い状態がより安定であると仮定し, 次のようにエネルギーの比較を行う.

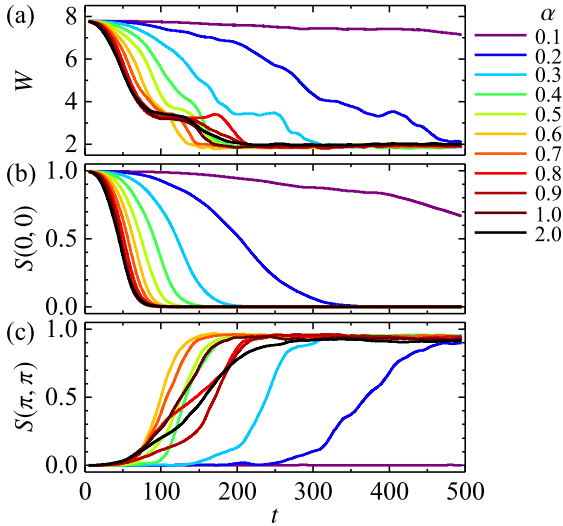


図 3.4 減衰定数 $\alpha = 0.1-2$ に対する (a) 電子のバンド幅, (b) 強磁性スピン構造因子, (c) 反強磁性スピン構造因子の時間プロファイル. ここでサイト数は $N = 8 \times 8$, Hund 結合は $J = 4$, 電子数密度は $n_e = 0.5$, 電場振幅は $F_0 = 2$, 振動数は $\Omega = 1$ である. 初期揺らぎの最大値は $\delta\theta = 0.1$ に固定した.

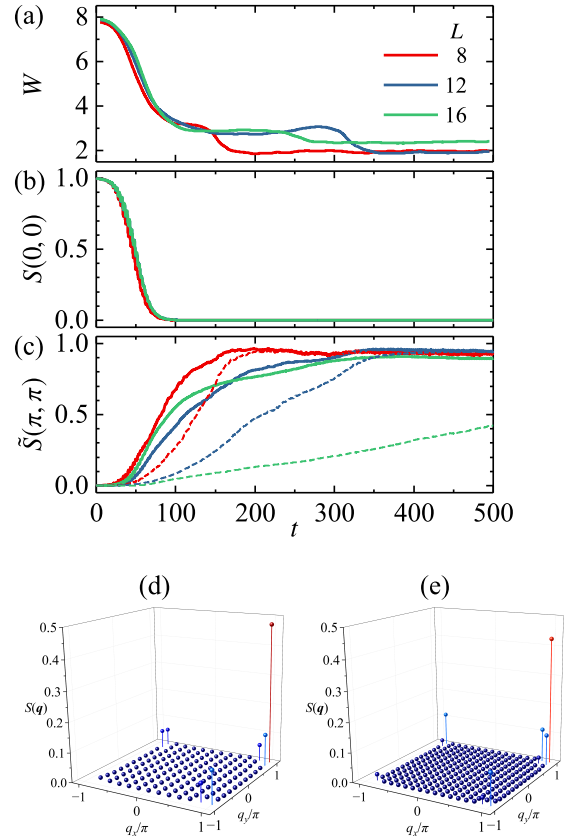


図 3.5 サイト数 $N = 8 \times 8, 12 \times 12, 16 \times 16$ のクラスターにおける (a) 電子のバンド幅, (b) 強磁性スピン構造因子, (c) 反強磁性スピン構造因子の時間発展. (c) における破線は $S(\pi, \pi)$ を表す. (d)(e) 波数空間におけるスピン構造因子 $S(\mathbf{q})$. (d) $N = 12 \times 12, t = 200$, (e) $N = 16 \times 16, t = 500$. 他のパラメータは図 3.4 と同一である.

局在スピン構造として完全強磁性状態のものと完全反強磁性状態のものを与え, それぞれにおいて下部バンド内で一様な電子分布を仮定したとき, 全エネルギーは次式により評価できる.

$$E_X = \int_{-\infty}^0 d\varepsilon \varepsilon D_X(\varepsilon) n_e \quad (X = F, AF). \quad (3.35)$$

ここで $D_X(\varepsilon)$ は強磁性または反強磁性状態における一粒子状態密度である. 一次元格子, 二次元正方格子, 三次元立方格子のそれぞれの場合について, 反強磁性状態と強磁性状態とのエネルギー差 ($E_{AF} - E_F$) を Hund 結合 J と電子数密度 n_e の関数として図 3.3(c), 3.3(d) にそれぞれ示す. いずれの場合にも ($E_{AF} - E_F$) < 0 であり, これは下部バンドにおいて電子分布が一様である場合には反強磁性状態が強磁性状態よりも常に低いエネルギーを持つことを意味する. このエネルギーの差異は, 強磁性状態において下部 (メジャースピン) バンドと上部 (マイナースピン) バンドの中心間のエネルギーが $2J$ であり, 反強磁性状態においては上部バンドの最低エネルギーと下部バンドの最高エネルギーの差が $2J$ であることに起因するものである. 以上の解析から, 反強磁性状態の実現には下部バンド内の一様な電子分布が重要な役割を果たすことが強く示唆される.

続いて, いくつかの Gilbert 緩和定数 α に対する時間発展の様子を図 3.4 に示す. 変数はこれまでと同様に $J = 4, n_e = 0.5, \delta\theta = 0.1, F_0 = 2, \Omega = 1$ としている. Gilbert 緩和項がエネルギーや角運動量の保

存則を破ることから自然に予想されるように、緩和定数の増大に伴って強磁性秩序が融解しバンド幅が減少するまでの時間 t_F は短くなることが分かる．一方で反強磁性相関 $S(\pi, \pi)$ に関しては α に対して系統的な振舞いは見られないものの、 $S(0, 0)$ の消失とほぼ同時に発達を始める点はこれまでの結果と同様である．

クラスターサイズ N 依存性を図 3.5 に示す．強磁性相関 $S(0, 0)$ が減少する時刻は N に依存せず、同時にバンド幅 W も $W \sim 3$ 程度まで減少する．その後、バンド幅には時間に対して平坦な領域が現れ、 $S(\pi, \pi)$ が飽和するまで持続する．図 3.5(c) に破線で示されたものが $S(\pi, \pi)$ であり、 N が増加するにつれて $S(\pi, \pi)$ の発達は緩やかになる傾向が見られる．この過渡状態における $S(\mathbf{q})$ を全波数空間で示したものが図 3.5(d), 3.5(e) であり、 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ のみならずその周りの波数においても $S(\mathbf{q})$ は有意な強度を持つことが分かる．そこで、これらの和として

$$\tilde{S}(\pi, \pi) = S(\pi, \pi) + 2S(\pi - \Delta q, \pi) + 2S(\pi, \pi - \Delta q) + 2S(\pi - \Delta q, \pi - \Delta q) \quad (\Delta q \equiv 2\pi/L) \quad (3.36)$$

を定義し、図 3.5(c) に実線として示した．この $\tilde{S}(\pi, \pi)$ はクラスターサイズ N に依存せず、強磁性相関 $S(0, 0)$ の消失と同時に立ち上がり、時刻 $t \sim 300$ 程度で飽和することが分かる．このことは強磁性秩序の融解後直ちに局所的な反強磁性的状態が実現すること、ならびにクラスターサイズの増加とともに（準）安定化する大域的（長周期的）スピン構造が実現することを示唆する．後者については第 4 章において詳しく議論する．

サイト数 $N = 16 \times 16$ のクラスターに対してより詳しい解析を行った．図 3.6 は $F_0 = 2$, $\Omega = 1$ の場合の一粒子エネルギー準位とその占有数、スピン構造因子、直流電気伝導度（Drude 重み）および光学伝導度の時間依存性、ならびに光照射下の反強磁性定常状態における光学伝導度スペクトルを示す．ここで図 3.1 に示した計算と同様に Hund 結合の大きさを $J = 4$ 、電子数密度を $n_e = 0.5$ 、Gilbert 減衰定数を $\alpha = 1$ とし、計算時間幅は $\delta t = 0.005$ とした．図 3.1 と同様に、光照射による強磁性状態から反強磁性状態への転移が見られる．時間領域 (ii) に相当する光照射直後 $0 < t \lesssim 30$ では、下部バンドの電子占有数と Drude 重みが外場に追従した振動数 2Ω のコヒーレント振動を示す．その後強磁性秩序の融解に伴って Drude 重みの振幅は減少し、 $S(0, 0)$ の消失とほぼ同時に 0 になる．これは下部バンド内で電子分布が一様になることで正味の電流が流れない状態であり、一種の絶縁体転移と解釈できる．この磁気構造の変化に伴って、光学伝導度スペクトルには $\omega = 2J$ を中心としたピーク構造が現れる．時刻 $t = 900$ から $t = 1000$ の間で時間平均を取った光学伝導度を図 3.6 に示す．下部バンドから上部バンドへの励起ギャップに相当する $\omega = 2J$ を中心として $\omega = 2J \pm n\Omega$ ($n = 1, 2, 3$) の位置にピークが現れていることが分かる．これらの光振動数 Ω に依存したピークは Floquet サイドピーク等と呼ばれるものであり、光照射下の定常状態に特有のものである．

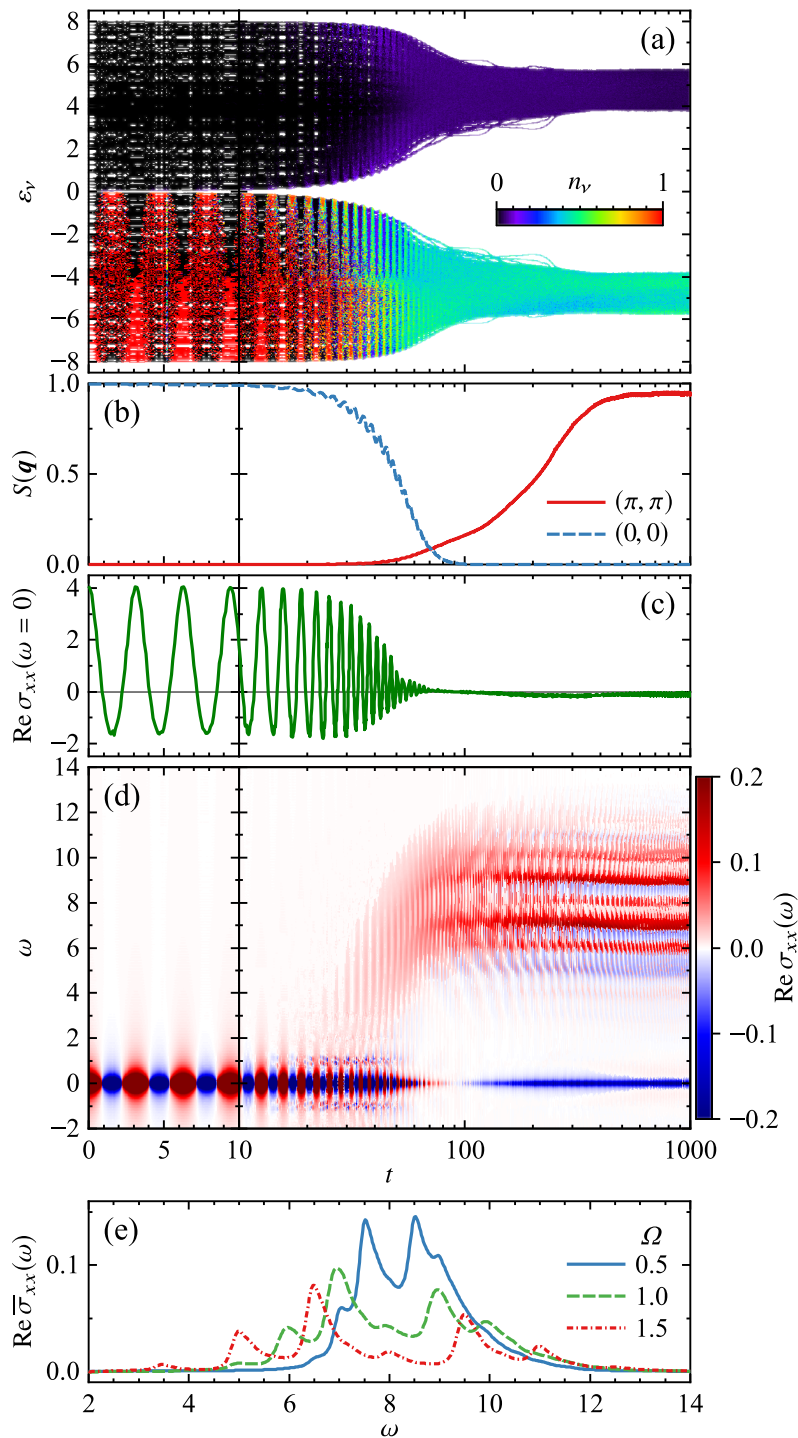


図 3.6 (a)–(d) サイト数 $N = 16 \times 16$ のクラスターにおける物理量の時間発展. (a) 一粒子準位と電子占有数, (b) スピン構造因子, (c) Drude 重み, (d) 光学伝導度. (e) 時刻 $t = 900$ – 1000 の反強磁性定常状態において時間平均された光学伝導度. ベクトルポテンシャル振幅は $F_0/\Omega = 2$ であり, 他のパラメータは図 3.1 と同一である.

以上の計算では外場として連続波を与えた。ここでは (1) デルタ関数的な電場パルスを与えた場合と (2) デルタ関数的パルスの印加後に弱い連続波を照射した場合について、電子状態とスピン構造の時間発展を図 3.7(a)(c), 3.7(b)(d) にそれぞれ示す。ここで (1) のベクトルポテンシャルと電場は

$$\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_1\theta(t), \quad \mathbf{E}(t) = -\mathbf{A}_1\delta(t) \quad (3.37)$$

で与えられ、(2) の場合は

$$\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_1\theta(t) + \mathbf{A}_0 \sin[\Omega(t - t_0)]\theta(t - t_0), \quad \mathbf{E}(t) = -\mathbf{A}_1\delta(t) - \mathbf{F}_0 \cos[\Omega(t - t_0)]\theta(t - t_0) \quad (3.38)$$

で定義される。 $\mathbf{A}_0 = \mathbf{F}_0/\Omega$ は連続波のベクトルポテンシャル振幅である。デルタ関数的電場パルスは運動量 $\delta\mathbf{k} = \int dt \mathbf{E}(t)$ のシフトを与える [150]。ここでは $\mathbf{A}_1 = (\pi, \pi)$ とした。これによりパルス照射直後の電子系は $\delta\mathbf{k} = (\pi, \pi)$ の運動量を獲得し、下部バンド内で反転分布が実現する。図 3.7(a)(c) より、時刻 $t \sim 50$ 程度で下部バンドの電子分布は一様分布に近づき、同時に反強磁性相関 $S(\pi, \pi)$ が大きく発達することが分かる。図 3.7(b)(d) は $\mathbf{A}_1 = (\pi, \pi)$, $\mathbf{F}_0 = (0.3, 0.3)$, $\Omega = 1$, $t_0 = 50$, $\alpha = 0.1$ の場合の時間発展を示しており、比較的弱い連続波の印加によって下部バンド内一様分布が維持され、同時に $S(\pi, \pi)$ が一定の値を保つ様子が見られる。図 3.7(d) における赤色点線は $\mathbf{A}_0 = 0$ とした場合の $S(\pi, \pi)$ であり、時刻 $t \sim 600$ でほぼ完全に消失する。

電子系に対して直流外場と見なせるような高強度のテラヘルツ帯パルス^{*6}を用いても同様に反強磁性転移が生じる^{*7}。ベクトルポテンシャルを $\mathbf{A}(t) = -\theta(t)\mathbf{F}_0t$ とすると、これは直流電場 $\mathbf{F}(t) = \theta(t)\mathbf{F}_0$ を表す。電場強度を $\mathbf{F}_0 = (F_0, F_0)$, $F_0 = 1$ とした場合の時間発展の様子を図 3.8 に示す。ここで j^\parallel は電流密度 $\mathbf{j} \equiv -N^{-1}\partial\mathcal{H}/\partial\mathbf{A}$ の電場に平行な成分 $j^\parallel = (j^x + j^y)/\sqrt{2}$ である。電場印加直後 $t = 0$ から $t \approx 10$ まではスピン構造は変化せず、電子分布 n_ν および電流密度 j^\parallel に周期 $2\pi/F_0 = 6.28$ の Bloch 振動 [206] が現れる^{*8}。時刻 $10 \leq t \leq 50$ において強磁性秩序は融解し、電流密度は 0 に向かう。その後、反強磁性秩序が発達を始め、 $t \approx 200$ においてほぼ完全な反強磁性定常状態が実現する。

ここまでに示した光誘起反強磁性転移の結果をより意味のあるものにするためには実験的な検証が不可欠である。対象物質としては代表的な二重交換系であるペロフスカイト型マンガン酸化物が有望であると考えられる。光源としては高強度のテラヘルツ帯パルスが効率的である。Bloch 振動周期はパルス光の半サイクル周期 (1 THz の場合 0.5 ps) やバンド内緩和 (散乱) の時間スケール (電子間相互作用 $U \sim 1\text{--}10$ eV による散乱の場合は $1/U \sim 0.4\text{--}4$ fs) よりも短くなければならない。したがって、パルスのピーク電場強度の閾値 F_{th} は Bloch 振動周期を $2\pi\hbar/(eF_{\text{th}}a) \sim 1$ fs とすると $F_{\text{th}} \sim 82.7$ MV/cm と見積もられる。ここで e は電気素量であり、格子定数は $a = 0.5$ nm とした。ピーク強度が数十 MV/cm に達するテラヘルツパルスの発生は既に報告されている [87, 207]。反強磁性状態の存在を観測するためには次のような方法が考えられる。光学的な測定としては図 3.6 に示したようなバンド間遷移による $\omega = 2J$ 付近のピークの発達ならびに低エネルギーの Drude ピークの減少のほか、磁気光学 Kerr 効果の信号の消滅や 2 マグノン Raman 散乱の出現等が期待される。他にも時間分解磁気 X 線回折による反強磁性 Bragg ピークの観測は直接的な証拠になると考えられる。また、時間・角度分解光電子分光を用いることでエネルギーバンドの折りたたみやバンド幅の狭幅化が確認できる可能性がある。

^{*6} 非線型輸送現象と非線型光学現象のクロスオーバーは Keldysh の断熱パラメータ $\gamma = \Omega/(\xi F_0)$ により特徴付けられ、 γ が十分小さい場合には交流電磁場を直流電磁場と見なすことができる [48, 203–205]。

^{*7} 第 5 章で明らかになるように、強磁性金属状態において時間平均された電子分布が下部バンド内で一様分布に近付くと反強磁性的なスピン揺らぎが増強され、これが反強磁性転移の駆動力になると考えられる。

^{*8} 格子定数を $a = 0.5$ nm, 最近接サイト間の電子遷移積分の大きさを $h = 0.5$ eV とすると、上記の直流電場の大きさ $\|\mathbf{F}_0\| = \sqrt{2}$ は 14.1 MV/cm に相当し、Bloch 振動周期 $2\pi/F_0 = 6.28$ は 8.3 fs に対応する [表 1.1]。

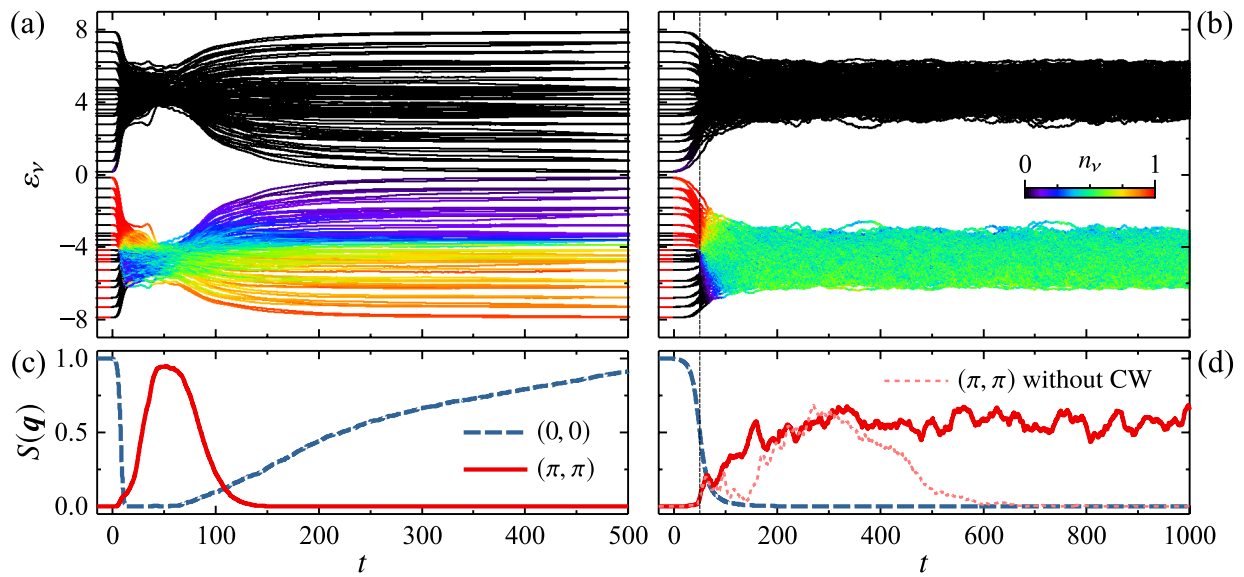


図 3.7 上段：一粒子エネルギー準位および電子占有数，下段：スピン構造因子．左列は $\mathbf{A}_1 = (\pi, \pi)$, $\mathbf{F}_0 = 0$, $\alpha = 1$, 右列は $\mathbf{A}_1 = (\pi, \pi)$, $\mathbf{F}_0 = (\pi, \pi)$, $t_0 = 50$, $\alpha = 0.1$. 光振動数はいずれも $\Omega = 1$ である．サイト数は $N = 8 \times 8$.

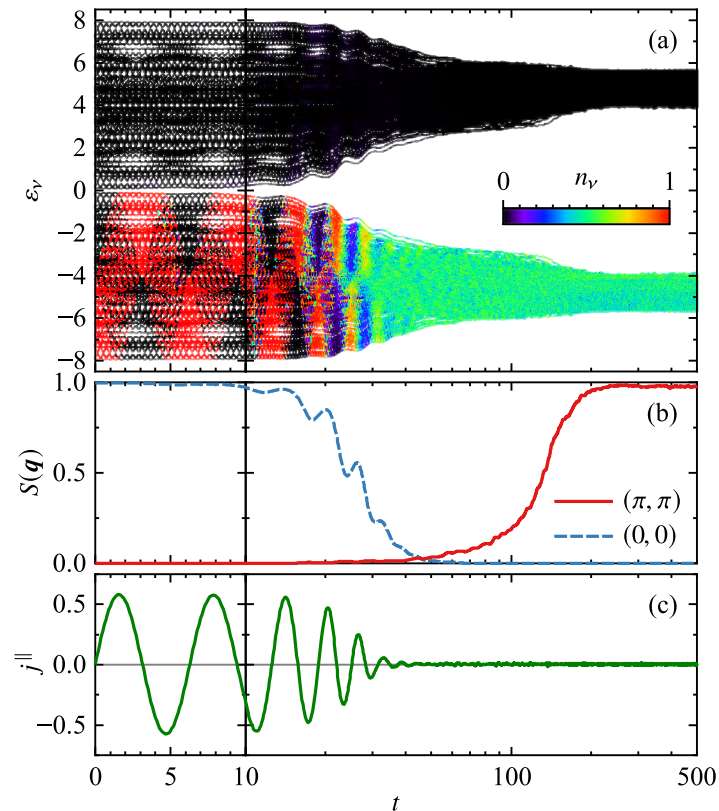


図 3.8 直流電場 $\mathbf{F}_0 = (F_0, F_0)$, $F_0 = 1$ を印加した際の実時間発展．(a) 一粒子エネルギー準位と電子占有数，(b) スピン構造因子，(c) 電流密度の電場に平行な成分．Hund 結合の大きさは $J = 4$ ，電子数密度は $n_e = 0.5$ ，減衰定数は $\alpha = 1$ ，サイト数は $N = 8 \times 8$ である．

3.4 まとめ

本章では二重交換模型における光誘起実時間ダイナミクスの数値計算を行った。伝導電子系と古典局在スピン系の時間発展はそれぞれ Schrödinger 方程式と LLG 方程式により記述される。解析の結果、次のことが明らかになった。

- 高強度の連続波またはパルス光による非共鳴励起によって、強磁性金属状態から反強磁性絶縁体状態への転移が起こることを数値的に示した。これは通常の強磁性的二重交換相互作用では説明できない現象である。
- 連続波励起の場合、強磁性秩序が融解するまでの時間はベクトルポテンシャルの振幅 F_0/Ω の関数として表されること、ならびに閾値強度が存在することを示した。
- 反強磁性定常状態においては、下部バンド内の電子占有数が一様な分布になることが見出された。これをもとに強磁性状態と反強磁性状態の双方に関して全エネルギーの比較を行い、下部バンド内が一様に占有された非平衡状態においては幅広いパラメータ領域で反強磁性状態のエネルギーが低いことを明らかにした。

本章ではサイト数 $N = 8 \times 8$ から $N = 16 \times 16$ まで計算を行い、いずれの場合にも反強磁性状態が現れることを確認した。完全な反強磁性状態が現れるまでの時間はサイト数の増加とともに増大する傾向が見られ、過渡状態におけるスピン構造因子の解析から長周期的なスピン構造の存在が示唆された。この過渡ダイナミクスに関する詳細な解析は第 4 章に示す。

動的局在の理論 [143] によると非共鳴連続波照射は電子のバンド幅を有効的に狭幅化することが知られており、式 (3.1) の二重交換模型においては Hund 結合 J が相対的に強められると考えられる。一方、平衡状態相図において強磁性金属状態は J が十分大きい領域においても安定的に存在している [156]。したがって、ここで見出された反強磁性定常状態は単純な動的局在効果だけでは理解することができない。

反強磁性状態の起源を考察するため、本章では光照射下の定常状態における全エネルギーの解析を行った。しかしながら、理論模型 [式 (3.1)] は反強磁性的相互作用を陽には含まず、光照射下において誘起される反強磁性転移の駆動力（微視的機構）については明らかにされていない。これに関して、第 5 章において非平衡 Green 関数法を用いた解析を行う。

第 4 章

光誘起過渡ダイナミクスにおける トポロジカルスピン構造

磁性体におけるトポロジカルまたはカイラルなスピン構造の物理は重要な研究課題の一つである [55, 208–210]. スピンボルトテックスやスカーミオン等の磁気構造はトポロジカルな量で特徴付けられ, 強磁性状態や反強磁性状態から熱的または磁氣的に励起された状態において現れる. また, 螺旋磁性や円錐磁性等のカイラルな磁気秩序はしばしば幾何学的位相を介して電気磁気効果や異常ホール効果等を生み出す. これらのトポロジカルな磁気構造やカイラルな磁気構造を実現する系に広く共通する特徴の一つが強いスピン軌道相互作用である. これにより反対称相互作用や磁気異方性が生じ, 非共線的 (non-collinear) または非共面的 (non-coplanar) な磁気秩序が安定化する. 近年, 光照射による磁性制御の研究はこのようなトポロジカル・カイラルな磁気構造へとその対象を広げつつあり, 電気マグノンの光励起によるスピンカイラリティの操作等 [211–214] のほか, 円偏光や光渦等を用いたスカーミオンの生成や制御が提案または報告されている [215–224].

第 3 章では, 二重交換模型で記述される強磁性金属状態に高強度の光照射を行うことで反強磁性状態への転移が起こることを見出した. スピン構造因子の解析等から反強磁性状態が実現する前の過渡状態における長周期的なスピン構造の存在が示唆された. 本章ではこの過渡ダイナミクスに注目してスピンカイラリティを中心とした解析を行い, 有限のトポロジカル数を持つ磁気構造が現れることを示す.

4.1 理論模型

理論模型としては第 3 章と同一のハミルトニアン

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle ij \rangle s} h_{ij} c_{is}^\dagger c_{js} - \frac{J}{S} \sum_{iss'} \mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_i \quad (4.1)$$

で定義される二重交換模型を採用する. ここで c_{is}^\dagger はスピン $s (= \uparrow, \downarrow)$ の電子をサイト i に生成する生成演算子であり, $\boldsymbol{\sigma}_i = \sum_{ss'} \boldsymbol{\sigma}_{ss'} c_{is}^\dagger c_{is'}$ はサイト i における伝導電子スピンを表す. $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma^x, \sigma^y, \sigma^z)$ は Pauli 行列を成分に持つベクトルであり, \mathbf{S}_i は局在スピンの演算子である. 第 3 章と同様に局在スピンを大きさ $S = 1$ のベクトルとして古典的に取り扱う. サイト数を N , 電子数を N_e , 電子密度を $n_e = N_e/N$ と置く. x - y 平面上の二次元正方格子を考え, x 方向に周期境界条件, y 方向に反周期境界条件を課す. 電子遷移積分は最近接サイト間のみ非零 ($h_{ij} = -h < 0$) であるものとする. 電子数密度を $n_e = 0.5$, Hund 結合の大きさを $J/S \geq 4h$ とする. このとき基底状態は完全強磁性状態であるが, 実時間発展の初期状態にはすべての局在スピンに対して乱数に基づく揺らぎ $\delta\theta = 0.1$ rad を与える.

解析する物理量は第3章で定義したスピン構造因子

$$S(\mathbf{q}) = \frac{1}{N^2} \sum_{ij} e^{i\mathbf{q}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j, \quad (4.2)$$

最近接サイト間の二つの局在スピンのなす角の平均値

$$\bar{\theta} = \frac{1}{2N} \sum_{\langle ij \rangle} \cos^{-1}(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j) \quad (4.3)$$

のほか、交替スカラーカイラリティ

$$\chi_{A(B)} = \frac{1}{4\pi} \sum_{i \in B(A)} [\chi_{i+\hat{x}, i+\hat{y}, i-\hat{x}} + \chi_{i-\hat{x}, i-\hat{y}, i+\hat{x}}] \quad (4.4)$$

および副格子毎に定義されるスピンの巻き付き数

$$Q_{A(B)} = \frac{1}{4\pi} \sum_{i \in B(A)} [\mathcal{A}_{i+\hat{x}, i+\hat{y}, i-\hat{x}} + \mathcal{A}_{i-\hat{x}, i-\hat{y}, i+\hat{x}}], \quad (4.5)$$

ならびに一様ベクトルカイラリティ

$$P = \frac{1}{N} \left\| \sum_{\langle ij \rangle} (\mathbf{r}_j - \mathbf{r}_i) \times (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j) \right\| \quad (4.6)$$

である。上式の一様ベクトルカイラリティ P は電気分極に対応する量である [225]。ここで A, B は副格子を表すラベルであり、添字 $i + m\hat{x} + n\hat{y}$ は位置 $\mathbf{r}_i + (m, n)$ のサイトを示す。局在スピンに対しては周期境界条件を課す。 \mathcal{A}_{ijk} はスピン $\mathbf{S}_i, \mathbf{S}_j, \mathbf{S}_k$ によって張られる立体角であり、球面三角法によると次式で与えられる。

$$\mathcal{A}_{ijk} = \text{sgn}[\mathbf{S}_i \cdot (\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_k)](C_{ijk} + C_{jki} + C_{kij} - \pi), \quad (4.7)$$

$$C_{ijk} = \cos^{-1} \left[\frac{\mathbf{S}_j \cdot \mathbf{S}_k - (\mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_i)(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j)}{\sqrt{1 - (\mathbf{S}_k \cdot \mathbf{S}_i)^2} \sqrt{1 - (\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j)^2}} \right]. \quad (4.8)$$

また、 χ_{ijk} は次式で定義されるスカラーカイラリティである。

$$\chi_{ijk} = \frac{1}{2} \mathbf{S}_i \cdot (\mathbf{S}_j \times \mathbf{S}_k). \quad (4.9)$$

立体角 \mathcal{A}_{ijk} が 4π より十分小さい場合、スカラーカイラリティ χ_{ijk} は次式のように \mathcal{A}_{ijk} と一致する。

$$\mathcal{A}_{ijk} \approx \chi_{ijk}. \quad (4.10)$$

数学的には、古典局在スピン \mathbf{S}_i は格子点 i から半径 $S = 1$ の二次元球面 S^2 への写像である。これが空間の各点に連続的に定義されているものとする、場 $\mathbf{m}(\mathbf{r}_i) = \mathbf{S}_i$ は二次元空間 \mathbb{R}^2 から S^2 への連続写像 $\mathbb{R}^2 \ni \mathbf{r} \mapsto \mathbf{m}(\mathbf{r}) \in S^2$ と見なすことができる。定義域が \mathbb{R}^2 やその閉集合の場合にはそれぞれ無限遠点または境界上の点を同一視し、そこで \mathbf{m} は等しいものとする*1。このとき \mathbf{m} と同値（ホモトープ）な写像全体（同値類）はホモトピー類と呼ばれ、これらに適切に積を定義すると二次元ホモト

*1 有限サイズの離散的な格子系を考える場合には周期境界条件を課す。

ピー群 $\pi_2(S^2)$ が得られる*2. これは整数の加法群と同型であることが知られており、以下の巻き付き数 (winding number) により特徴付けられる.

$$w_{S^2} = \frac{1}{4\pi} \int dx dy \mathbf{m}(\mathbf{r}) \cdot (\partial_x \mathbf{m}(\mathbf{r}) \times \partial_y \mathbf{m}(\mathbf{r})) \quad (\in \mathbb{Z}). \quad (4.11)$$

これは Pontryagin 数やスカーミオン数とも呼ばれ、直観的には二次元球面 S^2 がスピン \mathbf{m} により何回覆われるかを表す. 本章では離散的な格子系を考えるため、巻き付き数を式 (4.5) により定義した*3. なお、副格子毎のスピン巻き付き数としては他にも

$$Q'_{A(B)} = \frac{1}{4\pi} \sum_{i \in B(A)} [\mathcal{A}_{i-\hat{y}, i+\hat{x}, i+\hat{y}} + \mathcal{A}_{i+\hat{y}, i-\hat{x}, i-\hat{y}}], \quad (4.12)$$

または

$$Q''_{A(B)} = \frac{1}{8\pi} \sum_{i \in A(B)} [\mathcal{A}_{i, i+\hat{x}-\hat{y}, i+\hat{x}+\hat{y}} + \mathcal{A}_{i, i+\hat{x}+\hat{y}, i-\hat{x}+\hat{y}} + \mathcal{A}_{i, i-\hat{x}+\hat{y}, i-\hat{x}-\hat{y}} + \mathcal{A}_{i, i-\hat{x}-\hat{y}, i+\hat{x}-\hat{y}}] \quad (4.13)$$

等の定義が考えられる. Q_X および Q'_X は数値精度内で厳密に整数値を取り、両者は多くの場合に一致する. Q''_X は Q_X と Q'_X の平均値を与え、 $|Q_X - Q'_X|$ が奇数の場合には Q''_X は半整数値となる*4. ゆえに Q_X または Q'_X が副格子 X の巻き付き数として適当であると考えられ、本章では式 (4.5) の Q_X を採用した. 一方、スカラーカイラリティ [式 (4.4)] は連続的な値を取るため上記のような定義の仕方に依らずほぼ同じ値を与える.

4.2 解析手法

実時間ダイナミクスの解析には第3章と同様の手法を用いた. 第3.2.1節で導入した厳密対角化に基づく手法は、電子系の非断熱的な時間発展を $O(N_{\text{dim}}^3)$ の計算量で計算できる手法である. 一方、電子系が常に熱平衡状態にあるものとして古典場 φ の実時間ダイナミクスのみを考える場合には計算量が $O(N_{\text{dim}})$ まで削減され、より大きなクラスターを取扱うことができる. これはカーネル多項式法 [230] と自動微分法を組み合わせることで可能となる [65, 175, 231–234]. 本章では補助的な解析としてこの手法を用いてクエンチダイナミクスの計算を行った. 以下、これについて説明する.

古典場 φ と結合した電子系のハミルトニアン $\mathcal{H} = \sum_{ij} h_{ij}[\varphi] c_i^\dagger c_j$ を考える. この分配関数は

$$Z = \text{Tr}_\varphi \text{Tr}_c \exp \left[-\beta \left(\mathcal{H} - \mu \sum_i c_i^\dagger c_i \right) \right] \quad (4.14)$$

と定義される. ここで Tr_φ は古典場、 Tr_c は電子についてのトレースであり、 β は逆温度である. 後者のトレース

$$Z[\varphi] \equiv e^{-\beta F[\varphi]} = \text{Tr}_c e^{-\beta(\mathcal{H} - \mu \sum_i c_i^\dagger c_i)} \quad (4.15)$$

より、古典場 φ の自由エネルギーは

$$F[\varphi] = -\frac{1}{\beta} \sum_\nu \ln \left[1 + e^{-\beta(\varepsilon_\nu - \mu)} \right] = \int d\varepsilon \rho(\varepsilon) \mathcal{F}(\varepsilon) \quad (4.16)$$

*2 ホモトピー群の導入は文献 [208, 226–228] に譲る.

*3 格子系では文献 [229] において導入された定義が用いられることが多い.

*4 実時間ダイナミクスにおいて Q_X が不連続に変化する時刻の前後では $Q'_X \neq Q_X$ となりやすい. また、実際には $|Q_X - Q'_X|$ が1を超えることはない.

と表される. ここで $\rho(\varepsilon) = \sum_{\nu=1}^{N_{\text{dim}}} \delta(\varepsilon - \varepsilon_{\nu})$ は一粒子状態密度であり, 関数 \mathcal{F} は

$$\mathcal{F}(\varepsilon) = -\frac{1}{\beta} \ln \left[1 + e^{-\beta(\varepsilon - \mu)} \right] \quad (4.17)$$

により定義される.

カーネル多項式法による自由エネルギーの評価

ハミルトニアン行列 h_{ij} の全ての固有値が $[-1, 1]$ に含まれるように, その最大固有値と最小固有値を E_{max} と E_{min} として

$$\mathcal{H} \rightarrow \tilde{\mathcal{H}} = \frac{\mathcal{H} - b}{a}, \quad a = \frac{E_{\text{max}} - E_{\text{min}}}{2 - \eta}, \quad b = \frac{E_{\text{max}} + E_{\text{min}}}{2} \quad (4.18)$$

のようにスケールする. η は $|\eta| \ll 1$ の正の定数である. 以降チルダは省略する. これにより状態密度 $\rho(\varepsilon)$ を Chebyshev 多項式を用いて次のように展開できる.

$$\rho(\varepsilon) \approx \frac{1}{\pi\sqrt{1 - \varepsilon^2}} \sum_{n=0}^{M-1} (2 - \delta_{n0}) g_n \mu_n T_n(\varepsilon). \quad (4.19)$$

ここで $T_n(x) = \cos(n \cos^{-1}(x))$ は第一種 Chebyshev 多項式であり, 漸化式

$$T_n(x) = \begin{cases} 1 & (n = 0) \\ x & (n = 1) \\ 2xT_{n-1}(x) - T_{n-2}(x) & (n > 1). \end{cases} \quad (4.20)$$

を満たす. g_n は有限の M による振動を抑制する係数

$$g_n = \frac{(M - n + 1) \cos\left(\frac{\pi n}{M + 1}\right) + \sin\left(\frac{\pi n}{M + 1}\right) \cot\left(\frac{\pi}{M + 1}\right)}{M + 1} \quad (4.21)$$

である. 係数 μ_n は

$$\mu_n = \int_{-1}^1 d\varepsilon \rho(\varepsilon) T_n(\varepsilon) = \int_{-1}^1 d\varepsilon \sum_{\nu=0}^{D-1} \delta(\varepsilon - \varepsilon_{\nu}) T_n(\varepsilon) = \sum_{\nu=0}^{D-1} T_n(\varepsilon_{\nu}) = \sum_{\nu=0}^{D-1} \langle \nu | T_n(\tilde{H}) | \nu \rangle = \text{Tr} T_n(\tilde{H}) \quad (4.22)$$

で定義される. 以上より, 自由エネルギーは次のように表される.

$$F[\varphi] = \int_{-1}^1 d\varepsilon \rho(\varepsilon) \mathcal{F}(\varepsilon) = \sum_{n=0}^{M-1} C_n \mu_n, \quad C_n = \frac{(2 - \delta_{n0}) g_n}{\pi} \int_{-1}^1 d\varepsilon \frac{T_n(\varepsilon) \mathcal{F}(\varepsilon)}{\sqrt{1 - \varepsilon^2}}. \quad (4.23)$$

係数 C_n の積分は Chebyshev–Gauss quadrature により効率的に評価できる. すなわち, 関数 $f(x)$ に対して

$$\begin{aligned} \int_{-1}^1 dx \frac{T_n(x) f(x)}{\sqrt{1 - x^2}} &\approx \frac{\pi}{N_M} \sum_{j=1}^{N_M} \cos \left[n \cos^{-1} \left\{ \cos \left(\frac{\pi}{2N_M} - \frac{\pi j}{N_M} \right) \right\} \right] f(x_j) \\ &= \frac{\pi}{N_M} \sum_{j=0}^{N_M-1} \cos \left(\frac{n\pi}{2N_M} + \frac{n\pi j}{N_M} \right) f(x_j) \end{aligned} \quad (4.24)$$

が良い近似を与える. ここで

$$x_j = \cos \frac{(2j - 1)\pi}{2N_M} \quad (4.25)$$

であり, $N_M = 2M$ とするのが最適である. 関数 $f(x)$ が実関数であれば, $f_j = f(x_j)$ ($j = 0, 1, \dots, N_M - 1$) と置いて

$$C_n = \frac{(2 - \delta_{n0})g_n}{\pi} \int_{-1}^1 dx \frac{T_n(x)f(x)}{\sqrt{1-x^2}} \approx \frac{(2 - \delta_{n0})g_n}{N_M} \operatorname{Re} \sum_{j=0}^{N_M-1} e^{i\pi n j/N_M} e^{i\pi/(2N_M)} f_j \quad (4.26)$$

と書ける. ここで f_j ($j = N_M, N_M + 1, \dots, 2N_M - 1$) を $f_{j+N_M} = f_j$ ($j = 0, 1, \dots, N_M - 1$) として定義すれば

$$C_n = \frac{(2 - \delta_{n0})g_n}{2N_M} \operatorname{Re} \sum_{j=0}^{2N_M-1} e^{2i\pi n j/(2N_M)} e^{i\pi/(2N_M)} f_j \quad (4.27)$$

となり, 配列 $\{e^{i\pi/(2N_M)} f_j\}_{j=0}^{2N_M-1}$ に対する高速 Fourier 変換を実行できる. 残る問題は係数 μ_n の評価であるが, これは S ($\ll D$) 個のランダムな D 次元列ベクトル $\{|r_i\rangle\}$ からなる $D \times S$ 行列 R を用いて次のように近似できる.

$$\mu_n = \operatorname{Tr} T_n(\tilde{\mathcal{H}}) \approx \sum_{i=1}^S \langle r_i | T_n(h[\varphi]) | r_i \rangle = \operatorname{Tr} [R^\dagger T_n(h[\varphi]) R] = \operatorname{Tr} [R^\dagger \alpha_n] = \sum_{i=1}^S \sum_{j=1}^D R_{ji}^* (\alpha_n)_{ji}. \quad (4.28)$$

ベクトル $|r_i\rangle$ は $\langle r_i | r_i \rangle = 1/S$ となるように与える. ここで $D \times S$ 次元行列 α_n は再帰的に

$$\alpha_n = T_n(h[\varphi]) R = \begin{cases} R & (n=0) \\ hR & (n=1) \\ 2h\alpha_{n-1} - \alpha_{n-2} & (n>1) \end{cases} \quad (4.29)$$

で定義される.

自動微分 (automatic differentiation)

古典場 φ の時間発展は, 例えば overdamped Langevin 方程式

$$\varphi(t + \delta t) - \varphi(t) = -\frac{\partial F}{\partial \varphi} \delta t + \sqrt{2\beta^{-1} \delta t} \eta(t) \quad (4.30)$$

により記述される. ここで $\eta_i(t)$ は分散 1 の Gauss 分布に従うランダム変数である. 古典スピン系では Langevin 方程式の代わりに stochastic Landau–Lifshitz 方程式を用いる文献もあるが, いずれにせよ自由エネルギーの勾配 $\partial F / \partial \varphi$ を $O(N)$ の計算量で精度良く評価する必要があり, これは reverse accumulation 型の自動微分を利用することで可能となる. すなわち, 自由エネルギーのハミルトニアン行列 h に関する微分 $\partial F / \partial h_{ij}$ を求め, 連鎖律を利用して $\partial F / \partial \varphi$ を求める.

自由エネルギー $F[\varphi]$ の表式 (4.23) において, h に依存する部分は $\mu_n = \operatorname{Tr} T_n(h)$ である. ここで $h_{ij} = \langle i | h | j \rangle$ ($|i\rangle = c_i^\dagger |0\rangle$) として $\operatorname{Tr} h^n$ を h_{kl} で微分すると

$$\frac{\partial}{\partial h_{kl}} \operatorname{Tr} h^n = \frac{\partial}{\partial h_{kl}} \sum_{\{i\}} h_{i_1 i_2} h_{i_2 i_3} \cdots h_{i_{n-1} i_n} = \sum_{m=0}^{n-1} \operatorname{Tr} [h^m |k\rangle \langle l| h^{n-m-1}] = n(h^{n-1})_{lk} \quad (4.31)$$

となることから,

$$\frac{\partial F}{\partial \varphi} = \sum_{ij} \left(\frac{dF}{dh^\top} \right)_{ji} \frac{\partial h_{ij}}{\partial \varphi} = \sum_{ij} \langle c_i^\dagger c_j \rangle \frac{\partial h_{ij}}{\partial \varphi} \quad (4.32)$$

である。ここで T は転置を表す。自由エネルギー $F = \sum_{m=0}^{M-1} C_m \mu_m$ に対して、

$$\frac{\partial F}{\partial \mu_m} = C_m, \quad \frac{\partial \mu_m}{\partial \alpha_{m;l k}} = \frac{\partial}{\partial \alpha_{m;l k}} \sum_{i=1}^S \sum_{j=1}^D R_{ji}^* \alpha_{m;ji} = R_{lk}^* \quad (4.33)$$

であり、 α_m の従う漸化式 $\alpha_m = 2h\alpha_{m-1} - \alpha_{m-2}$ より

$$\frac{\partial \alpha_{m+1;l k}}{\partial \alpha_{m;ij}} = \frac{\partial}{\partial \alpha_{m;ij}} \sum_a 2h_{la} \alpha_{m;ak} = 2h_{li} \delta_{jk}, \quad (4.34)$$

$$\frac{\partial \alpha_{m+2;l k}}{\partial \alpha_{m;ij}} = \frac{\partial}{\partial \alpha_{m;ij}} (-1) \alpha_{m;l k} = -\delta_{il} \delta_{jk}, \quad (4.35)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \alpha_{m;l k}}{\partial h_{ij}} &= \frac{\partial}{\partial h_{ij}} \begin{cases} \sum_a h_{la} \alpha_{0;ak} & (m=1) \\ \sum_a 2h_{la} \alpha_{m-1;ak} - \alpha_{m-2;l k} & (m>1) \end{cases} \\ &= \begin{cases} \delta_{il} \alpha_{0;jk} & (m=1) \\ 2\delta_{il} \alpha_{m-1;jk} & (m>1) \end{cases} \end{aligned} \quad (4.36)$$

を得る。勾配の計算に必要な dF/dh^T を求めるには、まず $dF/d\mu_m$ を求め、次に $dF/d\alpha_m$ を求める。前者は

$$\frac{dF}{d\mu_m} = C_m \quad (4.37)$$

である。後者は連鎖律より

$$\frac{dF}{d\alpha_m} = \frac{dF}{d\mu_m} \frac{\partial \mu_m}{\partial \alpha_m} + \sum_{lk} \frac{dF}{d\alpha_{m+1;l k}} \frac{\partial \alpha_{m+1;l k}}{\partial \alpha_m} + \sum_{lk} \frac{dF}{d\alpha_{m+2;l k}} \frac{\partial \alpha_{m+2;l k}}{\partial \alpha_m} \quad (4.38)$$

となる。この (i, j) 成分は

$$\begin{aligned} \beta_{m-1;ij}^* &\equiv \frac{dF}{d\alpha_{m;ij}} = C_m R_{ij}^* + 2 \sum_{lk} \beta_{m;l k}^* h_{li} \delta_{jk} - \sum_{lk} \beta_{m+1;l k}^* \delta_{il} \delta_{jk} \\ &= C_m R_{ij}^* + 2 \sum_l h_{il}^* \beta_{m;l j}^* - \beta_{m+1;ij}^* \end{aligned} \quad (4.39)$$

である。ここで h のエルミート性を用いた。両辺の複素共役を取れば、 (D, S) 行列 β_m は再帰的に

$$\beta_m = C_{m+1} R + 2h\beta_{m+1} - \beta_{m+2;ij} \quad (4.40)$$

と表される。自由エネルギーは α_m ($m \geq M$) に依存しないため $\beta_{M-1} = \beta_M = 0$ である。以上より、 dF/dh^T は

$$\begin{aligned} \left(\frac{dF}{dh^T} \right)_{ji} &= \frac{dF}{dh_{ij}} = \sum_{m=1}^{M-1} \sum_{lk} \beta_{m-1;kl}^\dagger \frac{\partial \alpha_{m;l k}}{\partial h_{ij}} \\ &= \sum_{lk} \beta_{0;kl}^\dagger \delta_{il} \alpha_{0;jk} + \sum_{m=2}^{M-1} \sum_{lk} \beta_{m-1;kl} 2\delta_{il} \alpha_{m-1;jk} \\ &= \sum_{k=0}^S \alpha_{0;jk} \beta_{0;ki}^\dagger + 2 \sum_{m=1}^{M-2} \sum_{k=0}^S \alpha_{m;jk} \beta_{m;ki}^\dagger, \end{aligned} \quad (4.41)$$

すなわち

$$\frac{dF}{dh^T} = \alpha_0 \beta^\dagger + 2 \sum_{m=1}^{M-2} \alpha_m \beta_m^\dagger \quad (4.42)$$

と書ける．まとめると， $\partial F/\partial\varphi$ は

$$\frac{\partial F}{\partial\varphi} = \sum_{ij} \frac{dF}{dh_{ij}} \frac{\partial h_{ij}}{\partial\varphi}, \quad \frac{dF}{dh_{ij}} = \sum_{k=0}^S \alpha_{0;jk} \beta_{0;ik}^* + 2 \sum_{m=1}^{M-2} \sum_{k=0}^S \alpha_{m;jk} \beta_{m;ik}^* \quad (4.43)$$

により求められる．

4.3 結果

第3章と同様に外場として連続波を印加し，実時間ダイナミクスの計算を行う．電場振幅は $F_0 = 2$ ，振動数は $\Omega = 1$ ，Gilbert 減衰定数の大きさは $\alpha = 1$ である．数値計算上の時間幅はサイト数 $N = 12 \times 12$ の場合に $\delta t = 0.005$ とし， $N = 16 \times 16$ の場合に $\delta t = 0.01$ とした．図4.1は $N = 16 \times 16$ のクラスター

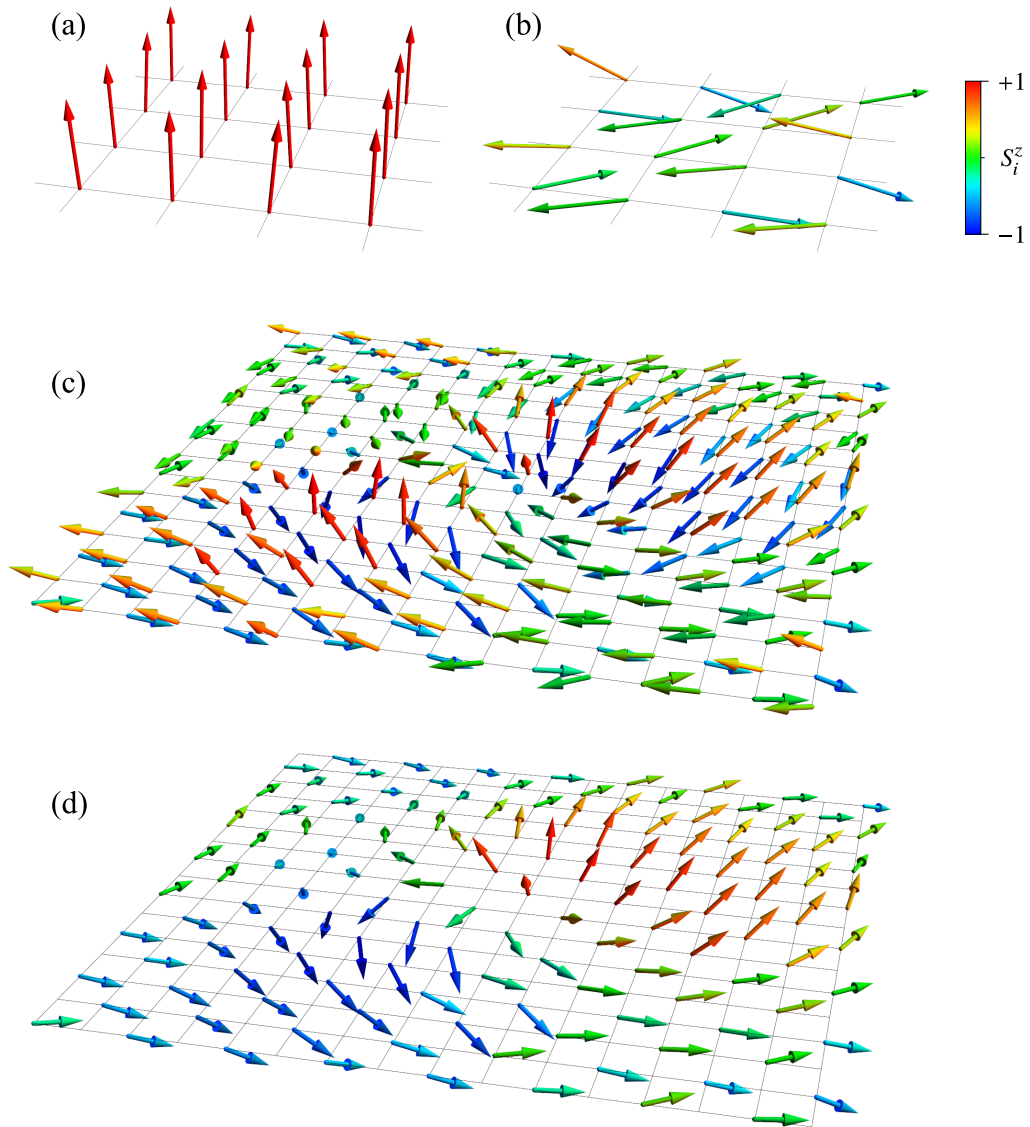


図4.1 実空間における局在スピンのスナップショット．(a) 初期状態 ($t = 0$)，(b) 反強磁性定常状態 ($t = 1000$)，(c)(d) 過渡状態 ($t = 500$)．(d) は副格子 A の局在スピンのみ図示したものである．矢印の色は局在スピンの z 成分を表す．サイト数は $N = 16 \times 16$ であり，局在スピンのには周期境界条件を課した．

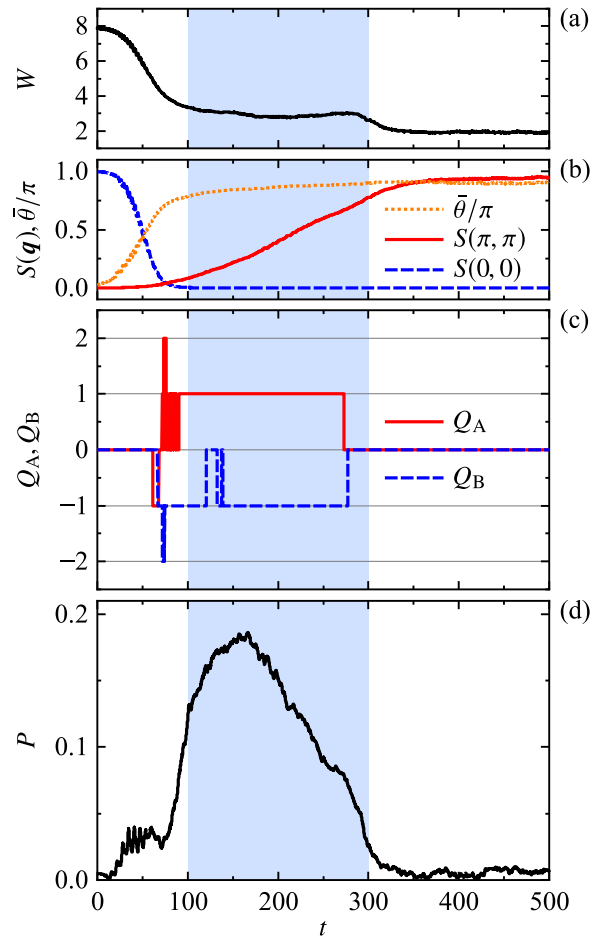


図 4.2 (a) 電子のバンド幅, (b) スピン構造因子, (c) 副格子スピン巻き付き数, (d) ベクトルカイラリティの時間プロファイル. 時刻 $t = 100$ – 300 の色付けされた領域は“中間時間領域”に対応する (本文参照). サイト数は $N = 12 \times 12$ である.

における局在スピンの実空間スナップショットである. 図 4.1(a)(b) は時刻 $t = 0$ および $t = 1000$ におけるスピン配置の一部を示しており, 第 3 章で議論したようにそれぞれ強磁性状態, 反強磁性状態であることが確かめられる. 図 4.1(c)(d) は時刻 $t = 500$ の過渡状態におけるスピン配置を示しており, 矢印の色はスピンの z 成分を表す. 局所的には反強磁性的にスピンが配列している一方で, 大域的には渦状の構造が現れている. これを定量的に評価するため, スピンカイラリティの計算を行う.

図 4.2 はサイト数 $N = 12 \times 12$ のクラスターにおけるバンド幅 W , スピン構造因子 $S(\mathbf{q})$ および最近接スピン間の平均角度 $\bar{\theta}$, 巻き付き数 Q_X , ベクトルカイラリティ P の時間発展を示している. 長距離の強磁性秩序を表す $S(0, 0)$ は時刻 $t = 80$ 前後までに急速に消失し, 同時に短距離の反強磁性相関を反映する最近接スピン角度 $\bar{\theta}$ が 0.75π 程度まで発達する. 強磁性秩序の融解後, 完全な反強磁性定常状態が実現するまでの時刻 $t \in [100, 300]$ の領域をここでは“中間時間領域”と呼び, 図 4.2 において色付けして示した. この過渡状態において, バンド幅は $W \sim 3$ 程度の一定の値を取り, 同時に有限の副格子巻き付き数と一様ベクトルカイラリティが現れていることが分かる. 巻き付き数はそれぞれの副格子で符号の異なる非零の整数値を取る. これは反強磁性スカーミオンに類似したトポロジカルな磁気欠陥の存在を示唆する. ベクトルカイラリティを反映する P は過渡状態でのみ現れ, これは強磁性状態から反強磁性状態への転移の過程で自発的に空間反転対称性が破れた状態が実現していることを意味する.

以上の計算では, 局在スピンのランダムな初期揺らぎを一定にして電場振幅や光振動数等に対する依存

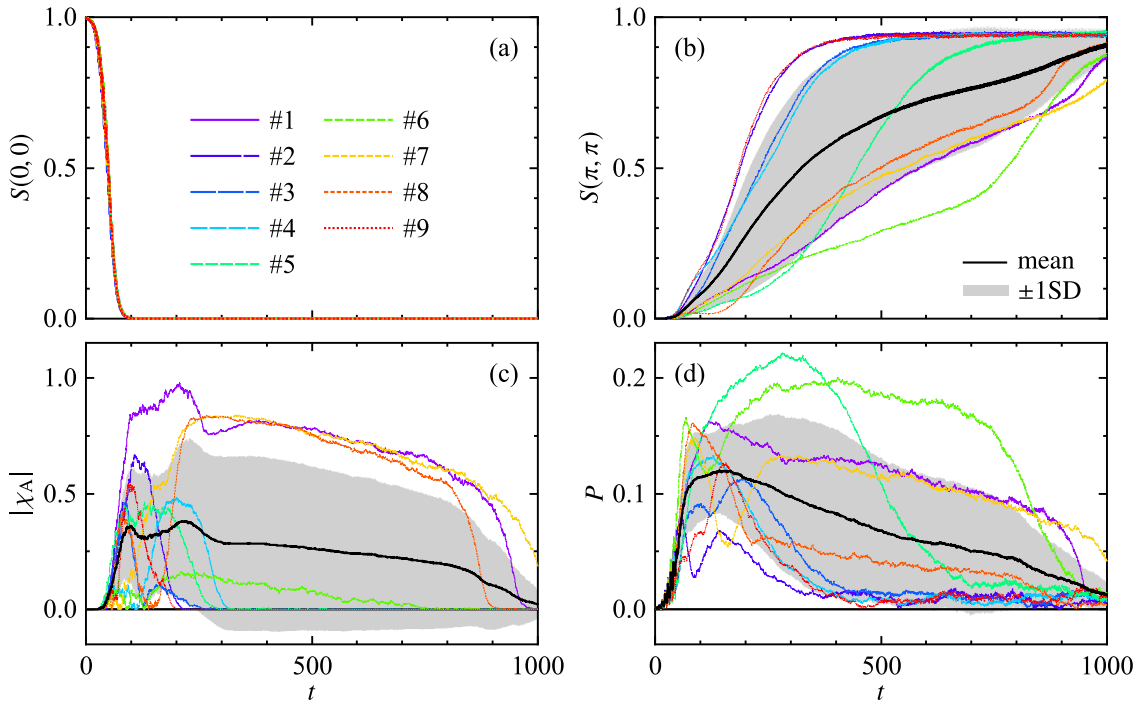


図 4.3 局在スピンの 9 通りの初期配置 (#1–#9) に対する (a) 強磁性スピン構造因子, (b) 反強磁性スピン構造因子, (c) 副格子スカラーカイラリティ, および (d) ベクトルカイラリティの時間プロファイル. 初期配置の揺らぎの大きさの最大値はいずれも $\delta\theta = 0.1$ である. (b)–(d) における黒色太線と灰色の領域はそれぞれ平均と標準偏差を表す. サイト数は $N = 16 \times 16$ である.

性を議論した. 初期揺らぎの最大角を $\delta\theta = 0.1$ とする 9 通りの初期スピン配置を生成して, その時間発展を計算した. 電場振幅を $F_0 = 2$, 光振動数を $\Omega = 1$ とした場合の結果を図 4.3 に示す. 図 4.3(b)–4.3(d) の黒色実線は 9 通りの時間プロファイルの平均値, 灰色で網掛けされた領域はそれらの標準偏差を表す. 強磁性相関 $S(0,0)$ は初期状態に依存せず, 同一の時間発展をする. これに対し, 反強磁性相関 $S(\pi,\pi)$, 副格子スカラーカイラリティ $|\chi_A|$, およびベクトルカイラリティ P の標準偏差は標本の最大値と最小値の差と同程度の大きさであり, これらの物理量は初期状態における局在スピンの揺らぎに大きく依存することが分かる. これらの時間発展は大きく次の二通りに分類される. (1) 反強磁性相関 $S(\pi,\pi)$ が速やかに 0.9 以上まで上昇し, $t \sim 400$ 程度で定常状態に達するもの. スカラーカイラリティ χ とベクトルカイラリティ P は $S(\pi,\pi)$ が現れはじめる時刻でピークを取り, その後 0 に向かう. (2) スカラーカイラリティ $|\chi_X|$ やベクトルカイラリティ P に時間的に一定な (プラトー) 領域が現れ, これが比較的長時間 ($t \leq 1000$) 持続した後, 反強磁性定常状態に向かうもの. プラトーの時間幅は初期配置に依存する. 以上の結果は, 一度生成された磁気欠陥が準安定的であること, ならびにこれが消滅すると同時にほぼ完全な反強磁性状態が実現することを示す.

カーネル多項式法を用いて局在スピンの実時間ダイナミクスを解析した. 第 4.2 節で述べたとおり, この手法では電子系は各時刻で逆温度 β の熱平衡状態にあるとして自由エネルギーを評価するものである. 電子系のダイナミクスを無視する代わりに, より大きいクラスターで局在スピンのダイナミクスを調べることが可能となる. ここでは初期状態としてハーフフィリング ($n_c = 1$) の強磁性状態を用意し, その後の時間発展を計算した. これはキャリアがドープされた強磁性状態 ($\mu = -J$) からハーフフィリング ($\mu = 0$) への化学ポテンシャルのクエンチ, または強磁場下の強制強磁性状態から無磁場への磁場クエンチを行った際のダイナミクスであると解釈できる. 第 3 章では光誘起反強磁性定常状態において

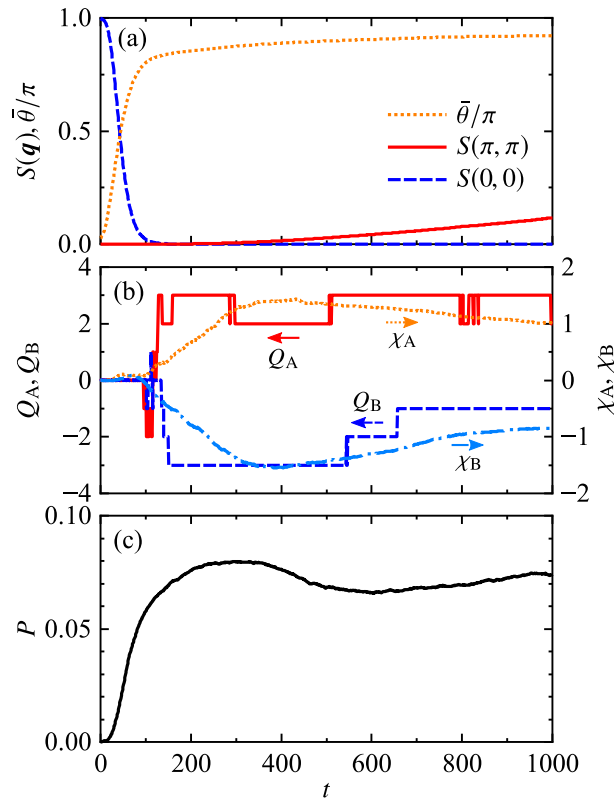


図 4.4 化学ポテンシャル $\mu_i = -J/S = -4$ から $\mu_f = 0$ へのクエンチ後の実時間ダイナミクスにおける (a) スピン構造因子と最近接スピン間角度, (b) 副格子スピン巻き付き数とスカラーカイラリティ, および (c) ベクトルカイラリティ. サイト数は $N = 32 \times 32$ である.

下部バンド内の電子占有数が一様な分布 ($\varepsilon_\nu < 0$ に対して $n_\nu = n_c$) になることを示したが, この点で光照射とクエンチに共通した実時間ダイナミクスが現れる可能性がある. トレースを確率的に評価するためのランダムベクトルの数は 100 とし, Chebyshev 多項式は 200 次まで展開した. また, サイト数は $N = 32 \times 32$, 時間発展の時間幅は $\delta t = 0.1$ とした. 初期状態におけるスピン配置の揺らぎの大きさ等のパラメータはこれまでと同じ値に設定した.

図 4.4 は典型的な時間発展の様子を示す. ここではスピン構造因子, 巻き付き数およびスカラーカイラリティ, ならびにベクトルカイラリティのほか, 式 (4.3) で定義される最近接サイト間の二つの局在スピンのなす角の平均値を示している. 図 4.5 には時刻 $t = 200$ および $t = 1000$ における局在スピンを円錐として表したスナップショットであり, 色はスピンの紙面垂直 (z) 成分の値を表す. 図 4.4(a) より, 強磁性相関 $S(0, 0)$ は時刻 $t = 100$ までにほぼ完全に消失し, これと同時に $\bar{\theta}$ が 0 から 0.7π 以上にまで急速に発達する. これは強磁性秩序の融解とほぼ同時に短距離的には反強磁性スピン配列が現れることを意味する. 一方で長距離秩序を反映する反強磁性相関 $S(\pi, \pi)$ は $t = 100$ ではほぼ零であり, これは長周期的なスピン構造の存在を示唆する. このときのスナップショットが図 4.5(a)–4.5(c) である. 隣接したサイトのスピンの向きは互いにほぼ反平行であるが, 大域的には渦のような構造が確認できる. ベクトルカイラリティ P は $\bar{\theta}$ とほぼ同時に発達し, それにやや遅れて $S(0, 0)$ の消失直後から巻き付き数 Q_X やスカラーカイラリティ χ_X が現れる. これらは $t = 100$ まで急速に増大した後, 計算を行った $t = 1000$ まで有限の値を保つ. 図 4.5(d)–4.5(f) に示されたスナップショットでは, ドメイン的な構造を確認することができる. この結果と図 3.5 に示したクラスターサイズ依存性を考慮すると, トポロジカルな磁気欠陥は熱力学極限においても準安定な状態として現れると考えられる.

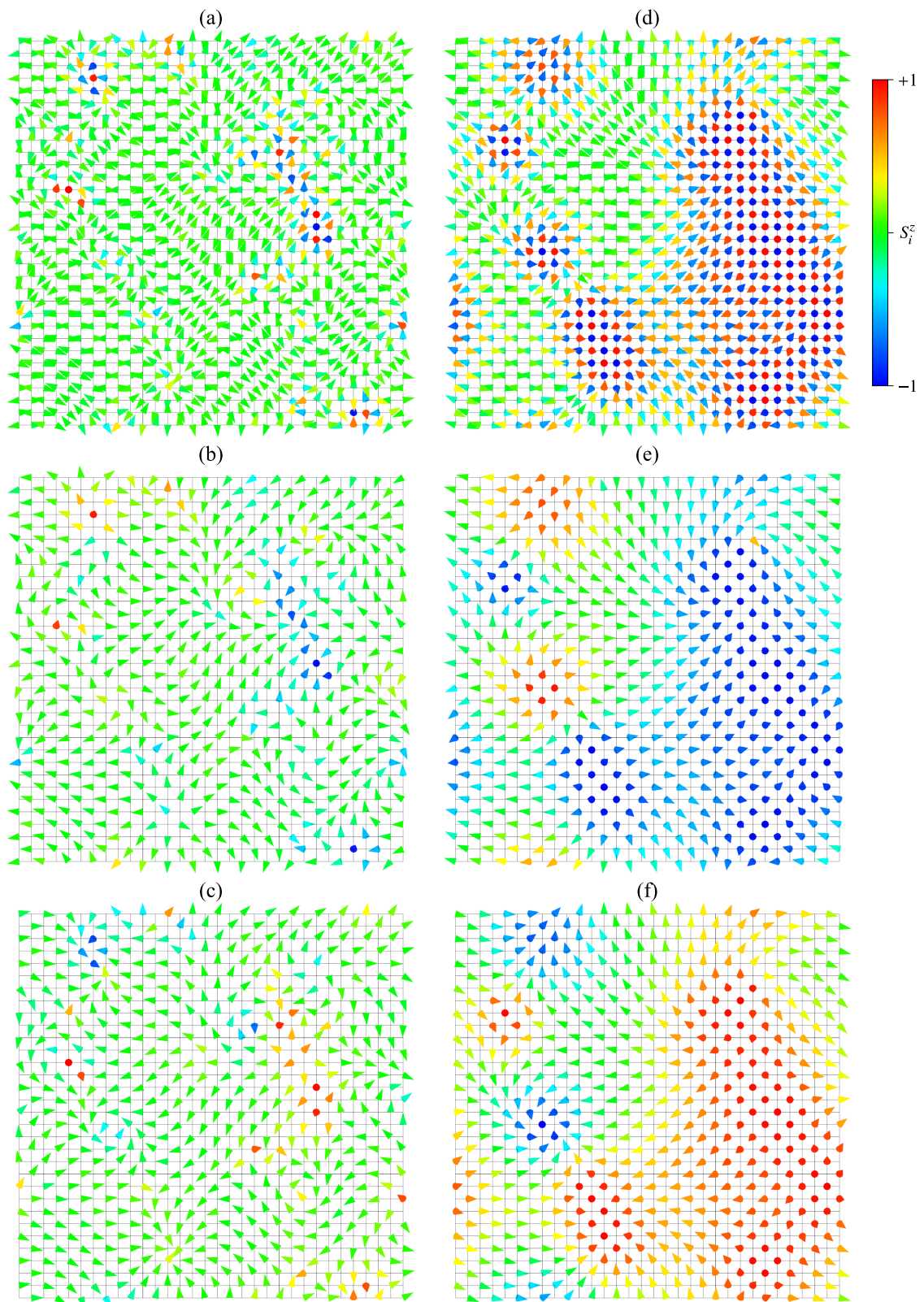


図 4.5 化学ポテンシャル $\mu_i = -J/S = -4$ から $\mu_f = 0$ へのクエンチ後、時刻 $t = 200$ (左列) および $t = 1000$ (右列) における局在スピンを円錐として示したスナップショット (上段). 中段は副格子 A, 下段は副格子 B の局在スピンのみ図示したものである. 円錐の色は局在スピンの z 成分 (紙面垂直方向) の成分を表す. パラメータは図 4.4 と同一である.

4.4 まとめ

本章では二つの数値手法を用いて局在スピンの実時間ダイナミクス、特に強磁性状態から反強磁性状態に向かう過渡状態に注目して数値解析を行い、次のことが明らかになった。

- 過渡状態において、交替スカラーカイラリティ（巻き付き数）ならびに一様ベクトルカイラリティが有限の値を示し、これが消失した後に完全な反強磁性が実現する。有限の巻き付き数はトポロジカルな磁気欠陥構造の存在を意味する。
- 反強磁性状態が実現するまでの時間 t_{AF} ，すなわち過渡的な磁気欠陥構造の“寿命”は、強磁性初期状態における局在スピんに導入された微小な揺らぎに大きく依存することが確かめられた。
- 第3章と同様の Schrödinger 方程式と LLG 方程式を数値的に解く手法のほか、カーネル多項式法と自動微分を組み合わせた手法による大きいクラスターにおける化学ポテンシャルのクエンチダイナミクスの解析も行った。そこでも強磁性状態から反強磁性状態へ向かう過渡ダイナミクスにおいて同様のトポロジカルな磁気欠陥が確認された。この手法では伝導電子系が各時刻で熱平衡状態にあることを仮定していることから、磁気欠陥の出現自体は電子系のダイナミクスの詳細には依存しないと考えられる。

このような相転移の過渡ダイナミクスにおける欠陥生成は広く普遍的に見られる現象であり、Kibble-Zurek 機構 [235–241] として知られている。本章の過渡的なスピントクスチャ生成の機構は、これに照らして以下のように解釈できる。強磁性秩序が融解した直後は、反強磁性短距離秩序は存在するものの大域的には常磁性的な無秩序状態であり、様々な交替磁化方向を持つドメインが無数に生成される。その後これらのドメインは成長していき、完全な反強磁性状態に向かう。各ドメインの境界では交替磁化方向の不整合が生じるため、これが有限の巻き付き数を与えるトポロジカルな磁気欠陥となる。

通常、平衡系における螺旋磁性相やスカーミオン結晶相等の非共面的な磁気構造は、Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用に代表される反対称相互作用によって安定化されるものである。一方、第3章および本章で解析した二重交換模型は、伝導電子の運動項ならびに伝導電子と局在磁気モーメントの間の Hund 結合項からなる最も簡単な理論模型であり、伝導電子系のスピン軌道相互作用や局在磁気モーメント間の DM 相互作用を含まない。本章で示された結果は、このような反対称相互作用を含まない系におけるトポロジカルなスピントクスチャ生成の一例を提示するものである。

第 5 章

遍歴磁性体の光誘起 Floquet 状態における 磁気励起構造

第 3 章では二重交換模型において実時間ダイナミクスの数値シミュレーションを行い，強磁性金属状態から反強磁性状態への転移が起こることを示した．反強磁性定常状態においては下部バンド内で電子の一様分布が実現しており，このとき強磁性状態よりも反強磁性状態の方がエネルギー的に“安定”であるために後者が実現すると結論付けた．一方で，光照射下の強磁性金属状態において誘起されるであろう反強磁性転移の駆動力（微視的機構）については明らかになっていない．この問題を解決するため，本章では Floquet Green 関数法を用いて光照射下の強磁性金属状態における磁気励起構造を解析する．

5.1 定式化

5.1.1 理論模型

理論模型として次式のハミルトニアンで定義される二重交換模型を考える．

$$\mathcal{H} = \sum_{ijs} h_{ij} c_{is}^\dagger c_{js} - \frac{J}{S} \sum_{iss'} \mathbf{S}_i \cdot \boldsymbol{\sigma}_{ss'} c_{is}^\dagger c_{is'} \quad (5.1)$$

ここで c_{is}^\dagger はスピン $s = (\uparrow, \downarrow)$ を持つ電子をサイト i に生成する演算子であり， \mathbf{S}_i はサイト i の局在スピン演算子である． $\boldsymbol{\sigma} = (\sigma^x, \sigma^y, \sigma^z)$ は Pauli 行列を成分に持つベクトルである．第一項 (\mathcal{H}_0) は伝導電子の運動項であり， h_{ij} はサイト i と j の間の電子遷移積分である．第二項 (\mathcal{V}) は伝導電子と局在スピンの間の Hund 結合を表す．サイト数，電子数，および電子数密度をそれぞれ N ， N_e ， $n_e = N_e/N$ で表す．光のベクトルポテンシャル $\mathbf{A}(t)$ は Peierls 位相として $h_{ij} \mapsto h_{ij} \exp[ie\mathbf{A}(t)(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)/\hbar]$ のように取り入れる．ここで $e (< 0)$ は電子の電荷， \mathbf{r}_i はサイト i の位置， t は時刻を表す．連続波を考え， $\mathbf{A}(t) = (\mathbf{F}_0/\Omega) \sin \Omega t$ と定義する． \mathbf{F}_0 は電場振幅， $\Omega \equiv 2\pi/T$ は角振動数を表す．本章では二次元正方格子を採用し，その格子定数を a とする．最近接サイト間の電子遷移積分 $h_{ij} = -h (< 0)$ のみ非零とし，他は $h_{ij} = 0$ とする．以降，最近接サイト間電子遷移積分 h ，Dirac 定数 \hbar ，電荷 e ，格子定数 a を 1 とする．

Hund 結合項に関する摂動展開を行うため，局在スピン演算子に対する Holstein–Primakoff 変換を行う．これは次式で定義される．

$$S_i^z = S - a_i^\dagger a_i, \quad S_i^+ = \sqrt{2S} \sqrt{1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{2S}} a_i, \quad S_i^- = \sqrt{2S} a_i^\dagger \sqrt{1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{2S}} \quad (5.2)$$

このとき、ボゾン a_i の真空状態で $\langle S_i^z \rangle = S$ となる．取扱いを簡単にするために、スピンの大きさ S が十分大きいとして

$$S_i^+ = \sqrt{2S}a_i, \quad S_i^- = \sqrt{2S}a_i^\dagger \quad (5.3)$$

のように $1/S$ の最低次まで考慮する．これにより、Hund 項は

$$\mathcal{V} = -\frac{J}{S} \sum_i \left[(c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\uparrow} - c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\downarrow})(S - a_i^\dagger a_i) + \sqrt{2S}(c_{i\uparrow}^\dagger c_{i\downarrow} a_i^\dagger + c_{i\downarrow}^\dagger c_{i\uparrow} a_i) \right] \quad (5.4)$$

と表され、全ハミルトニアンは次のように書き換えられる．

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{V}, \quad (5.5)$$

$$\mathcal{H}_0 = \sum_{ks} \varepsilon_{ks} c_{ks}^\dagger c_{ks} + \sum_q \omega_q^{(0)} a_q^\dagger a_q \quad (\varepsilon_{k,s} = \varepsilon_k - J \operatorname{sgn}(s) - \mu, \omega_q^{(0)} = 0), \quad (5.6)$$

$$\begin{aligned} \mathcal{V} &= \mathcal{V}_1 + \mathcal{V}_2 \\ &= \frac{J}{SN} \sum_{kk'qq's} \delta_{k+q, k'+q'} \operatorname{sgn}(s) c_{ks}^\dagger c_{k's} a_q^\dagger a_{q'} - J \sqrt{\frac{2}{SN}} \sum_{kq} \left(c_{k\uparrow}^\dagger c_{k+q\downarrow} a_q^\dagger + c_{k\downarrow}^\dagger c_{k-q\uparrow} a_q \right). \end{aligned} \quad (5.7)$$

ここで $\mathcal{V}_1, \mathcal{V}_2$ はそれぞれ Hund 結合の縦成分 ($S^z \sigma^z$), 横成分 ($S^x \sigma^x + S^y \sigma^y$) から現れる項に対応する．

光照射前の初期状態は完全偏極した強磁性状態であると仮定する．伝導電子と局在スピンはともに z 軸正の方向を向いているものとする．この状態は

$$|\Psi_0\rangle = \prod_{\mathbf{k}}^{\varepsilon_{k\uparrow} < 0} c_{\mathbf{k}\uparrow}^\dagger |0\rangle \quad (5.8)$$

と表される．ここで $|0\rangle$ は電子とマグノンの真空である．単一 Slater 行列式状態であるため、Wick の定理が適用できる．

5.1.2 摂動展開

Hund 結合項 \mathcal{V} を摂動とし、自己エネルギーを導出する．経路順序 Green 関数を

$$G_{ks, k's'}(t, t') = -i \langle \mathcal{T}_C c_{ks}(t) c_{k's'}^\dagger(t') \rangle, \quad D_{q, q'}(t, t') = -i \langle \mathcal{T}_C a_q(t) a_{q'}^\dagger(t') \rangle, \quad (5.9)$$

$$\mathcal{G}_{ks, k's'}(t, t') = -i \langle \mathcal{T}_C c_{1ks}(t) c_{1k's'}^\dagger(t') \rangle, \quad \mathcal{D}_{q, q'}(t, t') = -i \langle \mathcal{T}_C a_{1q}(t) a_{1q'}^\dagger(t') \rangle \quad (5.10)$$

と定義する．ここで $\langle \cdot \rangle = \langle \Psi_0 | \cdot | \Psi_0 \rangle$ は初期状態 $|\Psi_0\rangle$ における期待値である．下付き添字 I は相互作用描像の演算子であることを示す．表記を簡単にするため、これを $\langle \mathcal{T}_C c_{1ks}(t) c_{1k's'}^\dagger(t') \rangle = \langle \mathcal{T}_C c_{ks}(t) c_{k's'}^\dagger(t') \rangle_0$

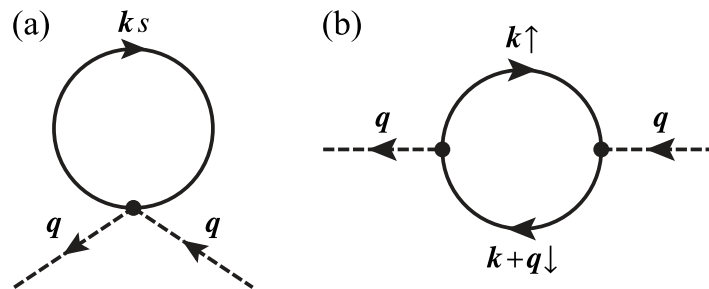


図 5.1 自己エネルギーを表すダイアグラム．Hund 結合の (a) 縦成分 $\Sigma_1(t, t')$ および (b) 横成分 $\Sigma_{2,q}(t, t')$ に対応する．実線と破線はそれぞれ電子とマグノンの裸の Green 関数を表す．

のように表すことにする．裸の Green 関数は対角的であり，

$$\mathcal{G}_{ks, k's'}(t, t') = \delta_{kk'} \delta_{ss'} \mathcal{G}_{ks}(t, t'), \quad \mathcal{D}_{q, q'}(t, t') = \delta_{qq'} \mathcal{F}_q(t, t'). \quad (5.11)$$

となる．これらの逆 Green 関数は Floquet 表現では以下のように与えられる．

$$(\mathcal{G}_{ks}^{\text{R}, -1})_{mn}(\omega) = \delta_{mn}(\omega + n\Omega + \mu + J \operatorname{sgn}(s) + i\Gamma) - \varepsilon_{mn, k}, \quad (5.12)$$

$$(\mathcal{G}_{ks}^{\text{K}, -1})_{mn}(\omega) = 2i\delta_{mn}(1 - 2f(\omega + n\Omega))\Gamma, \quad (5.13)$$

$$(\mathcal{D}_q^{\text{R}, -1})_{mn}(\omega) = \delta_{mn}(\omega + n\Omega + i\Gamma - \omega_q^{(0)}). \quad (5.14)$$

ここで Γ は系と熱浴（逆温度 β ）との間の結合定数であり， $f(\omega) = 1/(e^{\beta\omega} + 1)$ は Fermi–Dirac 分布関数である．式 (5.12) における $\varepsilon_{mn, k}$ は

$$\varepsilon_{mn, k} = \int_0^T \frac{dt}{T} e^{i(m-n)\Omega t} \varepsilon_{k-A(t)} \quad (5.15)$$

により定義される．繰り込まれた Green 関数 $G_{ks, k's'}$ および $D_{q, q'}$ も波数とスピンについて対角的であるものとする．

マグノンの自己エネルギーを導出する．式 (2.26) で定義される S 行列について， \mathcal{V}_1 の一次と \mathcal{V}_2 の二次まで展開する． \mathcal{V}_1 の一次摂動は

$$-i \int_C d\bar{t} \mathcal{T}_C \mathcal{V}_1(\bar{t}) = -i \frac{J}{SN} \sum_{kk'qq's} \delta_{k+q, k'+q'} \operatorname{sgn}(s) \int_C d\bar{t} \mathcal{T}_C c_{ks}^\dagger(\bar{t}^+) c_{k's'}(\bar{t}) a_q^\dagger(\bar{t}^+) a_{q'}(\bar{t}) \quad (5.16)$$

である．ここで \bar{t}^+ は経路上で \bar{t} よりも無限小だけ後の時刻を表す．一次のマグノンの Green 関数は，縮約

$$\begin{aligned} \langle \mathcal{T}_C c_{ks}^\dagger(\bar{t}^+) c_{k's'}(\bar{t}) a_q^\dagger(\bar{t}^+) a_{q'}(\bar{t}) a_p(t) a_{p'}^\dagger(t') \rangle_0 &= -i^3 \mathcal{D}_{p, q}(t, \bar{t}^+) \mathcal{G}_{k's', ks}(\bar{t}, \bar{t}^+) \mathcal{D}_{q', p'}(\bar{t}, t') \\ &= -i^3 \delta_{pq} \delta_{kk'} \delta_{ss'} \delta_{p'q'} \mathcal{D}_p(t, \bar{t}^+) \mathcal{G}_{ks}(\bar{t}, \bar{t}^+) \mathcal{D}_{p'} \quad (5.17) \end{aligned}$$

より

$$\begin{aligned} D_{p, p'}^{(1)}(t, t') &= [\mathcal{D} \circ \Sigma_1 \circ \mathcal{D}](t, t') \\ &= \underbrace{(-i) \times (-i) \times (-i^3)}_{-i} \frac{J}{SN} \sum_{kk'qq's} \delta_{k+q, k'+q'} \operatorname{sgn}(s) \int_C d\bar{t} \mathcal{D}_{p, q}(t, \bar{t}^+) \mathcal{G}_{k's', ks}(\bar{t}, \bar{t}^+) \mathcal{D}_{q', p'}(\bar{t}, t') \\ &= -i \frac{J}{SN} \sum_{kqs} \operatorname{sgn}(s) \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \mathcal{D}_{p, q}(t, \bar{t}_1) \mathcal{G}_{ks}(\bar{t}_2, \bar{t}_1) \delta_C(\bar{t}_1, \bar{t}_2^+) \mathcal{D}_{q, p'}(\bar{t}_2, t') \quad (5.18) \end{aligned}$$

と表せる．ここで δ_C は Schwinger–Keldysh 経路上のデルタ関数であり，式 (2.33) で定義される．上式より，対応する自己エネルギーは

$$\Sigma_1(qt, q't') = \delta_{qq'} \frac{-iJ}{SN} \sum_{ks} \operatorname{sgn}(s) \mathcal{G}_{ks}(t', t) \delta_C(t, t'^+) \quad (5.19)$$

となる [図 5.1(a)]．これは q に依存しないため，単に $\Sigma_1(t, t') = \Sigma_1(qt, q't')$ と表記する．デルタ関数のために $\Sigma_1^{12} = \Sigma_1^{21} = 0$ である．非零の成分は

$$\Sigma_1^{11}(t, t') = \frac{-iJ}{SN} \sum_{ks} \operatorname{sgn}(s) \mathcal{G}_{ks}^{11}(t', t) [\delta(t - (t' + 0))] = \delta(t - t') \frac{-iJ}{SN} \sum_{ks} \operatorname{sgn}(s) \mathcal{G}_{ks}^{12}(t, t), \quad (5.20)$$

$$\Sigma_1^{22}(t, t') = \frac{-iJ}{SN} \sum_{ks} \operatorname{sgn}(s) \mathcal{G}_{ks}^{22}(t', t) [-\delta(t - (t' - 0))] = -\Sigma_1^{11}(t, t') \quad (5.21)$$

である。したがって、遅延自己エネルギーは

$$\Sigma_1^R(t, t') = \frac{1}{2} [\Sigma_1^{11}(t, t') - \Sigma_1^{22}(t, t') + \Sigma_1^{21}(t, t') - \Sigma_1^{12}(t, t')] = \delta(t - t') \frac{-iJ}{SN} \sum_{ks} \text{sgn}(s) \mathcal{G}_{ks}^<(t, t) \quad (5.22)$$

となる*1。これは Floquet 表記では

$$\begin{aligned} (\Sigma_1^R)_{mn}(\omega) &= \int_0^T \frac{dt_a}{T} \int_{-\infty}^{\infty} dt_r e^{i(\omega+m\Omega)t - i(\omega+n\Omega)t'} \delta(t - t') \frac{-iJ}{SN} \sum_{ks} \text{sgn}(s) \sum_l \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} e^{-il\Omega t} (\mathcal{G}_{ks}^<)_{l0}(\bar{\omega}) \\ &= \frac{-iJ}{SN} \sum_{ksl} \text{sgn}(s) \int_0^T \frac{dt}{T} e^{i(m-n-l)\Omega t} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} (\mathcal{G}_{ks}^<)_{l0}(\bar{\omega}) \\ &= \frac{-iJ}{SN} \sum_{ks} \text{sgn}(s) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} (\mathcal{G}_{ks}^<)_{m-n,0}(\bar{\omega}) \end{aligned} \quad (5.23)$$

と表される。

続いて Hund 結合の横成分に対応する \mathcal{V}_2 の二次の摂動を考える。初期状態 $|\Psi_0\rangle$ はマグノンの真空であるため、その生成演算子と消滅演算子を同数含む $\mathcal{V}_2 \mathcal{V}_2$ の交差項のみ考えればよい。すなわち、S 行列の二次の項は

$$\begin{aligned} &\frac{(-i)^2}{2!} \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \mathcal{T}_C \mathcal{V}_2(\bar{t}_1) \mathcal{V}_2(\bar{t}_2) \\ &\rightarrow (-i)^2 \frac{2J^2}{SN} \sum_{\substack{k_1 q_1 \\ k_2 q_2}} \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \mathcal{T}_C c_{k_1 \uparrow}^\dagger(\bar{t}_1^+) c_{k_1+q_1 \downarrow}(\bar{t}_1) a_{q_1}^\dagger(\bar{t}_1) c_{k_2 \downarrow}^\dagger(\bar{t}_2^+) c_{k_2-q_2 \uparrow}(\bar{t}_2) a_{q_2}(\bar{t}_2) \\ &= (-i)^2 \frac{2J^2}{SN} \sum_{\substack{k_1 q_1 \\ k_2 q_2}} \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \mathcal{T}_C c_{k_1 \uparrow}^\dagger(\bar{t}_1^+) c_{k_2 \downarrow}^\dagger(\bar{t}_2^+) c_{k_2-q_2 \uparrow}(\bar{t}_2) c_{k_1+q_1 \downarrow}(\bar{t}_1) a_{q_1}^\dagger(\bar{t}_1) a_{q_2}(\bar{t}_2) \end{aligned} \quad (5.24)$$

となる*2。二次のマグノンの Green 関数は、縮約

$$\begin{aligned} &\langle \mathcal{T}_C c_{k_1 \uparrow}^\dagger(\bar{t}_1^+) c_{k_2 \downarrow}^\dagger(\bar{t}_2^+) c_{k_2-q_2 \uparrow}(\bar{t}_2) c_{k_1+q_1 \downarrow}(\bar{t}_1) a_{q_1}^\dagger(\bar{t}_1) a_{q_2}(\bar{t}_2) a_{\mathbf{p}}(t) a_{\mathbf{p}'}^\dagger(t') \rangle_0 \\ &= -i^4 \mathcal{D}_{\mathbf{p}, q_1}(t, \bar{t}_1) \mathcal{G}_{k_1+q_1 \downarrow, k_2 \downarrow}(\bar{t}_1, \bar{t}_2^+) \mathcal{G}_{k_2-q_2 \uparrow, k_1 \uparrow}(\bar{t}_2, \bar{t}_1^+) \mathcal{D}_{\mathbf{q}_2, \mathbf{p}'}(\bar{t}_2, t') \\ &= -i^4 \delta_{k_1+q_1, k_2} \delta_{k_2-q_2, k_1} \mathcal{D}_{\mathbf{p}, q_1}(t, \bar{t}_1) \mathcal{G}_{k_2 \downarrow}(\bar{t}_1, \bar{t}_2^+) \mathcal{G}_{k_1 \uparrow}(\bar{t}_2, \bar{t}_1^+) \mathcal{D}_{\mathbf{q}_2, \mathbf{p}'}(\bar{t}_2, t') \end{aligned} \quad (5.25)$$

より

$$\begin{aligned} D_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'}^{(2)}(t, t') &= [\mathcal{D} \circ \Sigma_2 \circ \mathcal{D}](t, t') \\ &= \underbrace{(-i) \times (-i)^2 \times (-i^4)}_{-i} \frac{2J^2}{SN} \sum_{kq} \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \mathcal{D}_{\mathbf{p}, q_1}(t, \bar{t}_1) \mathcal{G}_{k+q \downarrow}(\bar{t}_1, \bar{t}_2^+) \mathcal{G}_{k \uparrow}(\bar{t}_2, \bar{t}_1^+) \mathcal{D}_{\mathbf{q}, \mathbf{p}'}(\bar{t}_2, t') \\ &= -\frac{2iJ^2}{SN} \sum_{kq} \int_C d\bar{t}_1 d\bar{t}_2 \mathcal{D}_{\mathbf{p}, q}(t, \bar{t}_1) \mathcal{G}_{k+q \downarrow}(\bar{t}_1, \bar{t}_2) \mathcal{G}_{k \uparrow}(\bar{t}_2, \bar{t}_1) \mathcal{D}_{\mathbf{q}, \mathbf{p}'}(\bar{t}_2, t') \end{aligned} \quad (5.26)$$

となり*3、自己エネルギーとして

$$\Sigma_{2, q}(t, t') = -\frac{2iJ^2}{SN} \sum_k \mathcal{G}_{k+q \downarrow}(t, t') \mathcal{G}_{k \uparrow}(t', t) \quad (5.27)$$

*1 同様に、自己エネルギーの先進および Keldysh 成分はそれぞれ $\Sigma_1^A(t, t') = \Sigma_1^R(t, t')$, $\Sigma_1^K(t, t') = 0$ となることが分かる。

*2 交差項は二項現れるが、一方は $\mathbf{k}_1 \leftrightarrow \mathbf{k}_2$ 等の置き換えにより他方に吸収され、同時に S 行列の展開で現れる前因子 $1/2!$ は打ち消される。フェルミオンについては偶置換になるため余分な負号は現れない。

*3 前因子 $-i$ は $D^{(2)}$ の定義に含まれる $-i$, S 行列の二次の展開で現れる $(-i)^2$, および 4 個の一体 Green 関数への縮約によって現れる $-i^4$ の積 $(-i) \times (-i)^2 \times (-i^4) = -i$ である。

を得る。対応するダイアグラムは図 5.1(b) である。遅延自己エネルギーは

$$\begin{aligned}\Sigma_{2,q}^R(t,t') &= \frac{1}{2} \left[\Sigma_{2,q}^{11}(t,t') - \Sigma_{2,q}^{22}(t,t') + \Sigma_{2,q}^{21}(t,t') - \Sigma_{2,q}^{12}(t,t') \right] \\ &= -\frac{iJ^2}{SN} \sum_{\mathbf{k}} \left[\mathcal{G}_{\mathbf{k}+q\downarrow}^R(t,t') \mathcal{G}_{\mathbf{k}\uparrow}^K(t',t) + \mathcal{G}_{\mathbf{k}+q\downarrow}^K(t,t') \mathcal{G}_{\mathbf{k}\uparrow}^A(t',t) \right]\end{aligned}\quad (5.28)$$

となり，Floquet 表記では

$$(\Sigma_{2,q}^R)_{mn}(\omega) = -\frac{iJ^2}{SN} \sum_{kl} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} \left[(\mathcal{G}_{\mathbf{k}+q\downarrow}^R)_{m,n+l}(\omega + \bar{\omega}) (\mathcal{G}_{\mathbf{k}\uparrow}^K)_{l,0}(\bar{\omega}) + (\mathcal{G}_{\mathbf{k}+q\downarrow}^K)_{m,n+l}(\omega + \bar{\omega}) (\mathcal{G}_{\mathbf{k}\uparrow}^A)_{l,0}(\bar{\omega}) \right]\quad (5.29)$$

と表される。

最終的に，マグノンの遅延自己エネルギーは

$$(\Sigma_q^R)_{mn}(\omega) = (\Sigma_1^R)_{mn}(\omega) + (\Sigma_{2,q}^R)_{mn}(\omega)\quad (5.30)$$

で与えられ，遅延 Green 関数 $(D_q^R)_{mn}(\omega)$ は Dyson 方程式より

$$(D_q^{R-1})_{mn}(\omega) = (D_q^R)_{mn}(\omega) - (\Sigma_q^R)_{mn}(\omega)\quad (5.31)$$

の逆行列として得られる。実際の数値計算では Floquet 空間の添字 m, n は $\{0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm N_p\}$ に制限されるが，得られた結果が N_p に対して収束していることを確認する必要がある。

平衡状態では，Green 関数や自己エネルギーの Floquet 空間における非対角成分は値を持たない。このとき，電子の Floquet Green 関数は

$$(\mathcal{G}_{\mathbf{k}s}^R)_{mn}(\omega) = (\mathcal{G}_{\mathbf{k}s}^A)_{nm}(\omega)^* = \frac{\delta_{mn}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{\mathbf{k}s} + i\eta},\quad (5.32)$$

$$(\mathcal{G}_{\mathbf{k}s}^K)_{mn}(\omega) = -2\pi i \delta_{mn} (1 - 2f(\omega + n\Omega)) \delta_\eta(\omega + n\Omega - \varepsilon_{\mathbf{k}s}),\quad (5.33)$$

$$(\mathcal{G}_{\mathbf{k}s}^<)_{mn}(\omega) = 2\pi i \delta_{mn} f(\omega + n\Omega) \delta_\eta(\omega + n\Omega - \varepsilon_{\mathbf{k}s})\quad (5.34)$$

で与えられる。ここで $\Gamma \rightarrow \eta (> 0)$ と置き換え，

$$\delta_\eta(z) = \frac{1}{\pi} \frac{\eta}{z^2 + \eta^2} = \frac{1}{2\pi i} \left[\frac{1}{z - i\eta} - \frac{1}{z + i\eta} \right] \xrightarrow{\eta \rightarrow 0} \delta(z)\quad (5.35)$$

と定義した。縦成分の遅延自己エネルギー Σ_1 は

$$(\Sigma_1^R)_{00} = -\frac{iJ}{SN} \sum_{\mathbf{k}s} \text{sgn}(s) \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} 2\pi i f(\bar{\omega}) \delta_\eta(\bar{\omega} - \varepsilon_{\mathbf{k}s}) = \frac{J}{SN} \sum_{\mathbf{k}} [f(\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow}) - f(\varepsilon_{\mathbf{k}\downarrow})]\quad (5.36)$$

となり，横成分 Σ_2 は

$$\begin{aligned}(\Sigma_{2,q}^R)_{00}(\omega) &= \frac{-J^2}{SN} \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} d\bar{\omega} \left[\frac{(1 - 2f(\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow})) \delta_\eta(\bar{\omega} - \varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow})}{\omega + \bar{\omega} - \varepsilon_{\mathbf{k}+q\downarrow} + i\eta} + \frac{(1 - 2f(\varepsilon_{\mathbf{k}+q\downarrow})) \delta_\eta(\omega + \bar{\omega} - \varepsilon_{\mathbf{k}+q\downarrow})}{\bar{\omega} - \varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow} - i\eta} \right] \\ &= \frac{-J^2}{SN} \sum_{\mathbf{k}} \left[\frac{1 - 2f(\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow})}{\omega + \varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow} - \varepsilon_{\mathbf{k}+q\downarrow} + 2i\eta} + \frac{1 - 2f(\varepsilon_{\mathbf{k}+q\downarrow})}{\varepsilon_{\mathbf{k}+q\downarrow} - \omega - \varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow} - 2i\eta} \right] \\ &= \frac{2J^2}{SN} \sum_{\mathbf{k}} \frac{f(\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow}) - f(\varepsilon_{\mathbf{k}+q\downarrow})}{\omega - (\varepsilon_{\mathbf{k}+q\downarrow} - \varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow}) + 2i\eta}\end{aligned}\quad (5.37)$$

となる。したがって、平衡状態における全自己エネルギーは

$$(\Sigma_q^R)_{00}(\omega) = (\Sigma_1^R)_{00} + (\Sigma_{2,q}^R)_{00}(\omega) = \frac{J}{SN} \sum_{\mathbf{k}} [f(\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow}) - f(\varepsilon_{\mathbf{k}\downarrow})] \left[1 + \frac{2J}{\omega - (\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\downarrow} - \varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow}) + 2i\eta} \right] \quad (5.38)$$

で与えられる。これは平衡系におけるスピン波励起を議論した文献 [242] の式 (6) と一致する。特に $\mathbf{q} = 0$ かつ $\omega = 0$ において $\text{Re}(\Sigma_{\mathbf{q}=0}^R)_{00}(\omega = 0) = 0$ であり、これは波数 $\mathbf{q} = 0$ のギャップレス励起の存在を保証する。平衡状態におけるマグノンの分散関係は $\omega_{\mathbf{q}} = \text{Re}(\Sigma_{\mathbf{q}}^R)_{00}(\omega_{\mathbf{q}})$ を $\omega_{\mathbf{q}}$ について解くことで得られる。1/S の最低次の範囲では、 $J \rightarrow \infty$ の極限を取ると

$$\omega_{\mathbf{q}} \approx \text{Re}(\Sigma_{\mathbf{q}}^R)_{00}(0) = \frac{1}{SN} \sum_{\mathbf{k}} \frac{Jf(\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow})(\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{k}})}{2J + (\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{k}})} \xrightarrow{J \rightarrow \infty} \frac{1}{2SN} \sum_{\mathbf{k}} f(\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow})(\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{k}}) \quad (5.39)$$

となり、強結合極限 ($J = \infty$) から得られる結果 [243] と一致する。このため、 J が伝導電子のバンド幅より大きい場合であっても \mathcal{V} に関する摂動展開は可能であると考えられる。

5.2 結果

光照射下の強磁性金属状態における磁気励起構造を解析する。ここでは外場振動周期に渡って時間平均された量に注目する。これは Floquet 表現 $A_{mn}(\omega)$ を用いて $A(\omega) \equiv A_{mn}(\omega - n\Omega)$ で与えられる [式 (2.55)]。特に、マグノンのスペクトル関数 $-\text{Im} D_q^R(\omega)/\pi$ は横成分の動的スピン構造因子に対応するものである。サイト数 $N = 32 \times 32$ の二次元正方格子を考え、Floquet 空間次元のカットオフ N_p は最大 $N_p = 16$ とした。特に断りのない限り光は直線偏光であるものとし、電場振幅を $\mathbf{F}_0 = (F_0, F_0)$ 、光振動数を $\Omega = 1$ とする。このとき式 (5.12) における $\varepsilon_{mn,\mathbf{k}}$ は

$$\varepsilon_{mn,\mathbf{k}} = \begin{cases} -2\mathcal{J}_{m-n}(F_0/\Omega)(\cos k^x + \cos k^y) & (m - n = 0 \pmod{2}) \\ -2i\mathcal{J}_{m-n}(F_0/\Omega)(\sin k^x + \sin k^y) & (m - n = 1 \pmod{2}) \end{cases} \quad (5.40)$$

となる。系と熱浴の間の結合定数は $\Gamma = 0.05$ とし、熱浴の温度は絶対零度 ($\beta \rightarrow \infty$) であるものとする。化学ポテンシャルは $\mu = -J/S$ に固定した。これにより系の電子数密度が 1/4 フィリング ($n_e = 0.5$) に保たれる。以降、局在スピンの大きさは $S = 1$ とする。

典型的な光照射下のスペクトル関数を図 5.2 に示す。図 5.2(a) はメジャー(アップ)スピン電子のスペクトル関数 $-\text{Im} \mathcal{G}_{\mathbf{k}\uparrow}^R(\omega)/\pi$ である。平衡状態のバンド $\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow}$ は動的局在によってバンド幅が $\mathcal{J}_0(F_0/\Omega) \approx 0.85$ 倍に小さくなり、このバンドからエネルギー Ω の整数倍だけ離れた位置にレプリカのエネルギーバンド (Floquet サイドバンド) が現れる。これらのスペクトル強度はサイドバンド間の混成の大きさを反映する。電子状態の変化は自己エネルギーを介してマグノンのエネルギーを全体的にソフト化する [図 5.2(b)]。ここでマグノンのエネルギーは近似的に

$$0 = \text{Re}(D_q^{R-1})_{00}(\omega_{\mathbf{q}}) = \omega_{\mathbf{q}} - \omega_{\mathbf{q}}^{(0)} - \text{Re}(\Sigma_{\mathbf{q}}^R)_{00}(\omega_{\mathbf{q}}) \quad (5.41)$$

を $\omega_{\mathbf{q}}$ について解くことで得られる。図 5.2(b) には平衡状態の分散関係 $\omega_{\mathbf{q}}$ を実線、 $F_0 = 0.8$ の場合の分散関係を破線で示した。

低エネルギーのマグノン分散関係 $\omega_{\mathbf{q}}$ に関して、いくつかの電場振幅に対して数値的に得られた $\omega_{\mathbf{q}}$ を図 5.3 に示す。電場振幅が比較的小さい $F_0 < 1$ の領域では平衡状態の分散関係がほぼ一様にソフト化するが、 $F_0 \approx 1-1.1$ では $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ にディップ(窪み)が現れる。これは $F \approx 1.07$ を閾値電場振幅として反強磁性状態に対する不安定性が誘起されることを意味する。さらに F_0 が大きくなり $F_0 \geq 1.1$ となる

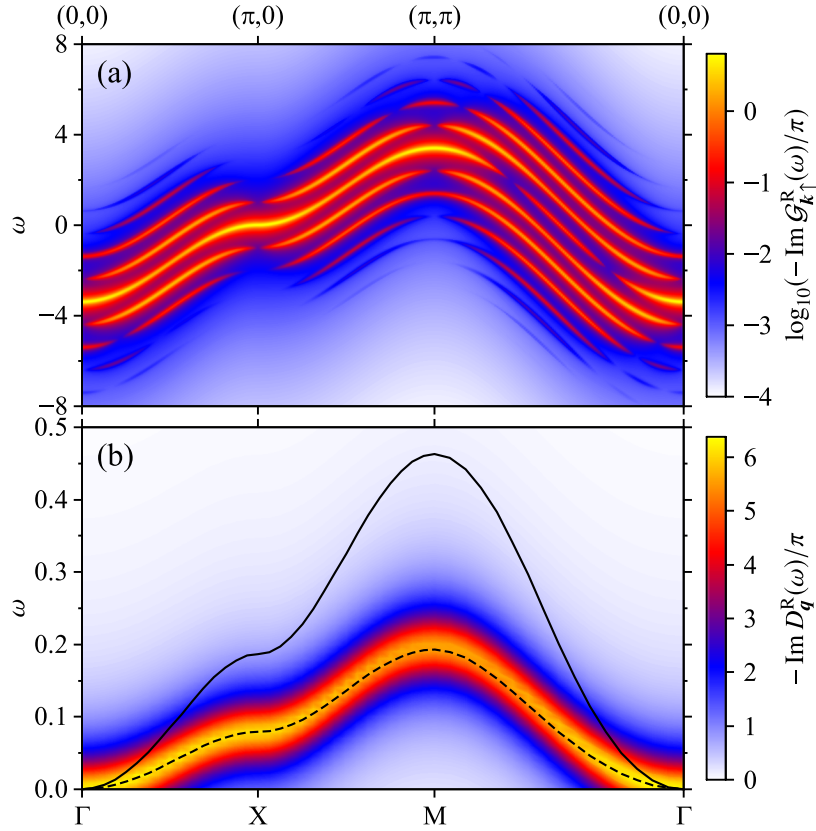


図 5.2 (a) 電子（アップスピン）および (b) マグノンの時間平均されたスペクトル関数．電場振幅は $F_0 = 0.8$ ，振動数は $\Omega = 1$ である．(b) における実線および破線はそれぞれ式 (5.41) より得られた平衡状態および定常状態におけるマグノンの分散を表す．サイト数は (a) $N = 256 \times 256$ ，(b) $N = 32 \times 32$ である．Hund 結合は $J = 5$ ，光振動数は $\Omega = 1$ ．

と $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ におけるディップは負エネルギーのピークとして成長する．このとき自己エネルギーの虚部の値も増大しており，マグノンは準粒子として適切に定義されなくなる．

波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ のマグノンエネルギー $\omega_{\mathbf{q}=(\pi,\pi)}$ について，ベクトルポテンシャル振幅 F_0/Ω に対する依存性を図 5.4 に示す．図 5.4(a) は光振動数 $\Omega = 1-4$ と $\Omega = 40$ の場合を表している．高振動数極限 ($\Omega \rightarrow \infty$) では Floquet 空間における非対角成分は無視でき，マグノンの自己エネルギーは

$$(\Sigma_{\mathbf{q}}^R)_{00}(\omega) = \frac{J}{SN} \sum_{\mathbf{k}} [f(\epsilon_{\mathbf{k}\uparrow}) - f(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\downarrow})] \left[1 + \frac{2J}{\omega - \mathcal{J}_0(F_0/\Omega)(\epsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \epsilon_{\mathbf{k}}) - 2J + 2i\eta} \right] \quad (5.42)$$

と表される．これは平衡系における自己エネルギーの表式 (5.38) において伝導電子のバンド幅を $\mathcal{J}_0(F_0/\Omega)$ 倍にしたものであり，動的局在効果を反映している．この自己エネルギーに対して式 (5.41) を解いた結果が図 5.4(a) の黒色実線であり， $\Omega = 40$ とした場合の計算結果と非常に良く一致する．特に $\mathcal{J}_0(F_0/\Omega) = 0$ となるような F_0 に対して，自己エネルギーは $\text{Re}(\Sigma_{\mathbf{q}}^R)_{00}(\omega = 0) \approx 0$ となり，完全に平坦な分散関係 ($\omega_{\mathbf{q}} = 0$) を与える．したがって， $\Omega = 1$ の場合の図 5.3(b) に見られるようなディップ構造は高振動数極限における動的局在の効果として理解することはできない．一方，光振動数がバンド幅 (= 8) と比べて同程度かそれ以下の場合には高振動数極限との差異が生じる．特に $\Omega \leq 2$ では $\omega_{\mathbf{q}}$ は F_0/Ω の関数として振舞い，およそ $F_0/\Omega \approx 1.1$ において $\omega_{\mathbf{q}} = 0$ となる．これは第 3 章図 3.2(e) に示したように強磁性秩序が融解するまでの特徴的時間 t_F が F_0/Ω の関数として振舞うことと整合する．図 5.3(b) は光振動数を $\Omega = 1$ に固定して Hund 結合を $J = 4-8$ の範囲で変えた場合の $\omega_{\mathbf{q}=(\pi,\pi)}$ を表す．Hund 結合が

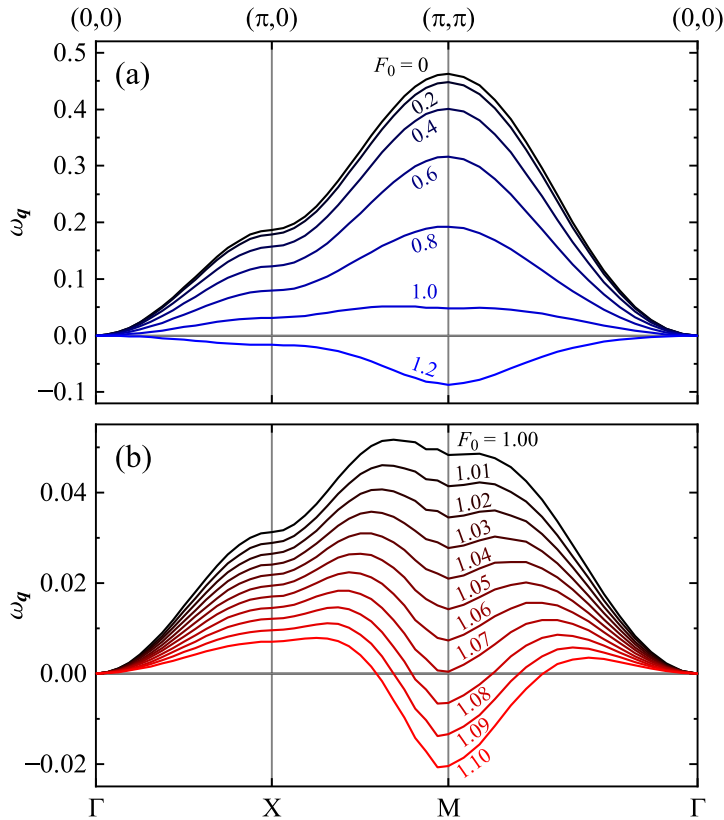


図 5.3 式 (5.41) により得られたマグノンの分散関係。電場振幅は (a) $F_0 = 0-1.2$, (b) $F_0 = 1-1.1$ である。Hund 結合は $J = 5$, 光振動数は $\Omega = 1$ 。

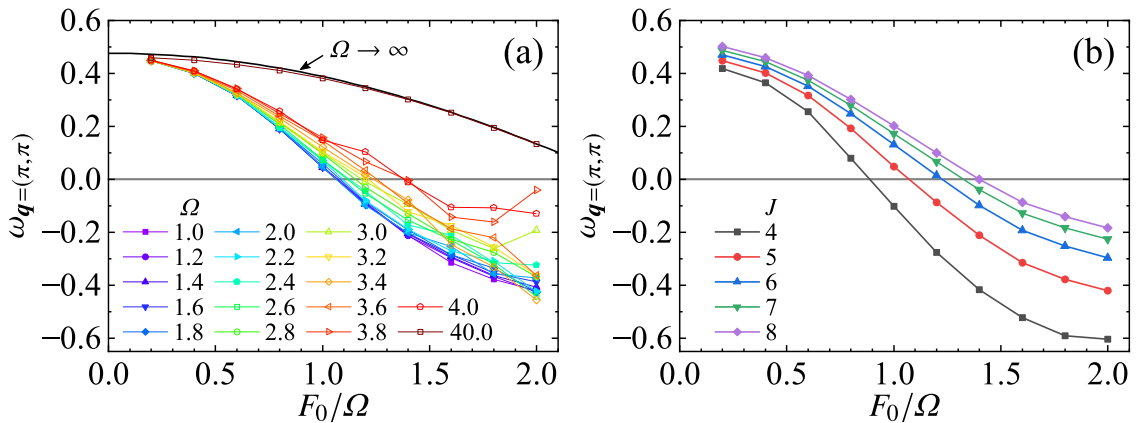


図 5.4 波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ におけるマグノンのエネルギー $\omega_{\mathbf{q}=(\pi, \pi)}$ 。(a) では $\Omega = 1-4$, $J = 5$, (b) では $J = 4-8$, $\Omega = 1$ とした。(a) における黒色実線は式 (5.42) より得られた高振動数極限 ($\Omega \rightarrow \infty$) におけるマグノンのエネルギーを示す。化学ポテンシャルを $\mu = -J$ とし、電子数密度を $n_e = 0.5$ に固定した。

大きくなるほど $\omega_{\mathbf{q}=(\pi, \pi)} = 0$ となる F_0/Ω は大きくなっており、これはマグノンのエネルギーが増大することで反強磁性不安定性を誘起するためにより強い光強度が必要になることを示唆する。

高エネルギー領域のマグノンの自己エネルギーおよびスペクトル関数を示したものが図 5.5 である。平衡状態では $\omega \lesssim 1$ の低エネルギースピンの励起に加えて $\omega = 2J = 10$ 付近に連続励起が確認できる。後者は上部バンド・下部バンドの電子正孔対励起による Stoner 励起である。図 5.5(d)–5.5(f) より、定常状態においては F_0 の増大とともに高エネルギーの連続励起が低エネルギー領域に向かって拡大し、特に

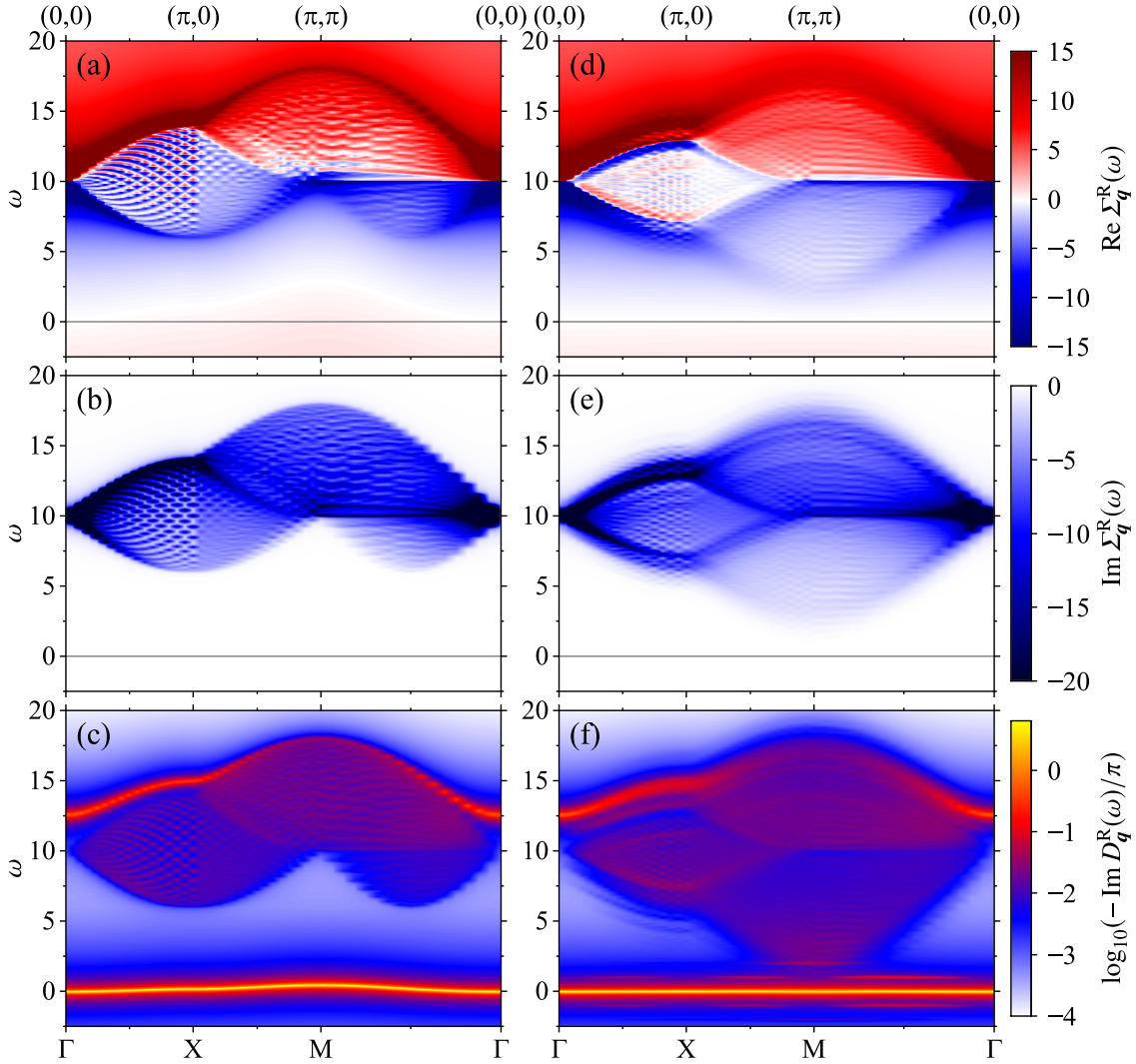


図 5.5 上段：自己エネルギーの実部．中段：自己エネルギーの虚部．下段：マグノンのスペクトル関数．左列は平衡状態 ($F_0 = 0$)，右列は定常状態 ($F_0 = 1.07$) の結果である．Hund 結合は $J = 5$ ，光振動数は $\Omega = 1$ ．

$\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ で最も顕著であることが分かる．これは平衡状態における自己エネルギーの表式 (5.38) に基づいてある程度理解できる．平衡状態の自己エネルギーの虚部は次のように表される．

$$\text{Im } \Sigma_{\mathbf{q}}^{\text{R}}(\omega) \approx -\frac{2J^2}{SN} \sum_{\mathbf{k}} f(\varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow}) \pi \delta(\omega - (\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\downarrow} - \varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow})). \quad (5.43)$$

ただし $f(\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\downarrow})$ は十分小さいとして無視した．連続励起が存在するエネルギー領域では $\text{Im } \Sigma_{\mathbf{q}}^{\text{R}}(\omega)$ が非零の値を取っており，伝導電子の分布 $f(\varepsilon_{\mathbf{k}})$ および結合状態密度 $\sum_{\mathbf{k}} \delta(\omega - (\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}\downarrow} - \varepsilon_{\mathbf{k}\uparrow}))$ が非平衡定常状態において変化することが重要であると示唆される．

光照射下の定常状態における伝導電子の運動量分布関数

$$n_{\mathbf{k}\uparrow} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} \text{Im } \mathcal{G}_{\mathbf{k}\uparrow}^<(\omega) \quad (5.44)$$

および波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ におけるマグノンの自己エネルギーを図 5.6 に示す．電場振幅 F_0 の増大とともに運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}\uparrow}$ は一様な分布 ($n_{\mathbf{k}\uparrow} = n_{\text{e}}$) に向かって変化することが分かる．先程と同様に，マグノンのソフト化を理解する上では平衡状態における自己エネルギーの表式 (5.38) が有用である．Hund 結合

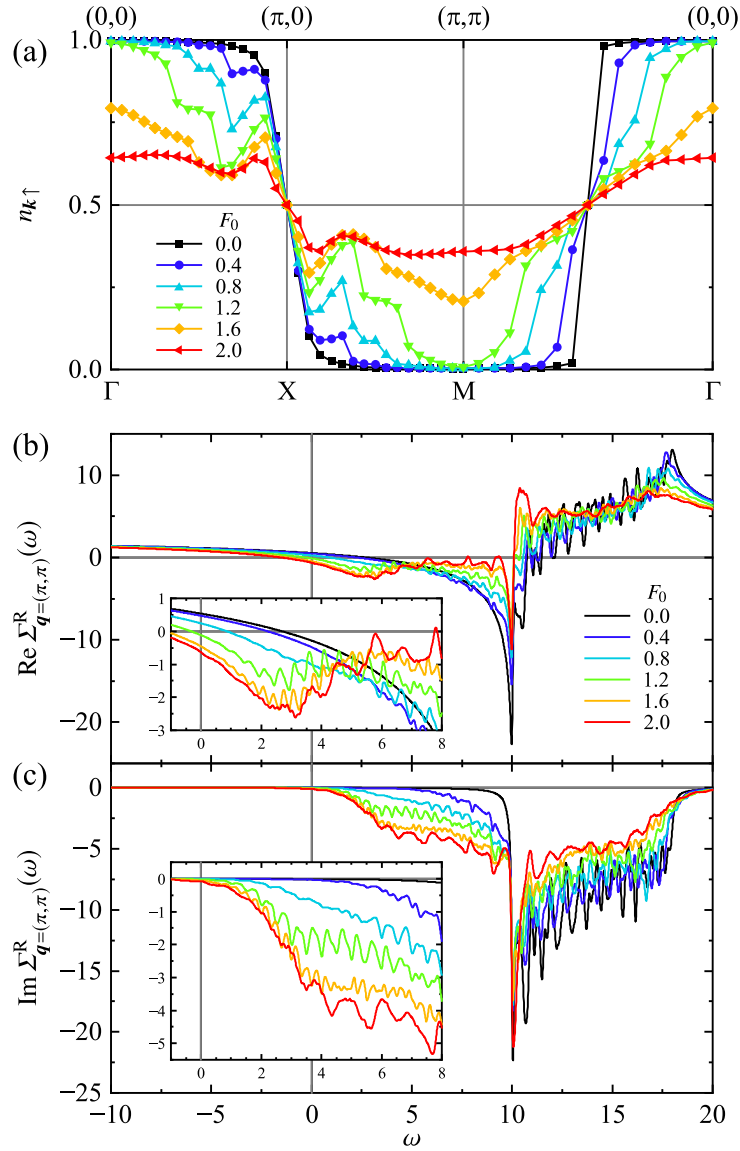


図 5.6 (a) アップスピンの電子の運動量分布関数. (b) および (c) はそれぞれ波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ における自己エネルギーの実部および虚部を示す. (b)(c) の内挿図は低エネルギー領域の拡大図である. Hund 結合は $J = 5$, 光振動数は $\Omega = 1$.

の横成分に対応する自己エネルギー Σ_2 は Stoner 励起の過程に対応しており, 低エネルギー領域 ($\omega \approx 0$) では次のように表される.

$$\text{Re } \Sigma_{2,\mathbf{q}}(\omega = 0) \approx -\frac{2J^2}{SN} \sum_{\mathbf{k}} \frac{n_{\mathbf{k}\uparrow}}{\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{k}} + 2J}. \quad (5.45)$$

ここで Fermi-Dirac 分布関数 $f(\varepsilon_{\mathbf{k}s})$ は非平衡運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}s}$ に置き換え, $n_{\mathbf{k}\downarrow}$ は十分小さいものとして無視した. もし $2J$ がバンド幅 (= 8) より大きければ分母は常に正であり, ゆえに $\text{Re } \Sigma_{2,\mathbf{q}}^R(\omega = 0) < 0$ となる^{*4}. すなわち Stoner 励起過程はマグソンのエネルギーを下げる働きを持つ. 非平衡定常状態において運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}\uparrow}$ が図 5.6(a) に示したように変調されると, 上式の波数 \mathbf{k} に関する和の制限が緩和され, Stoner 励起が可能な相空間上の体積が拡大する. これによって, より低い中間エネルギーを持

^{*4} 自己エネルギーの実部が $\text{Re } \Sigma_{2,\mathbf{q}}^R(\omega = 0) < 0$ となるためには必ずしも $2J$ がバンド幅 (= 8) より大きい必要はないが, 虚部が十分小さく低エネルギーマグソンが準粒子として良く定義されるためには $2J > 8$ でなければならない.

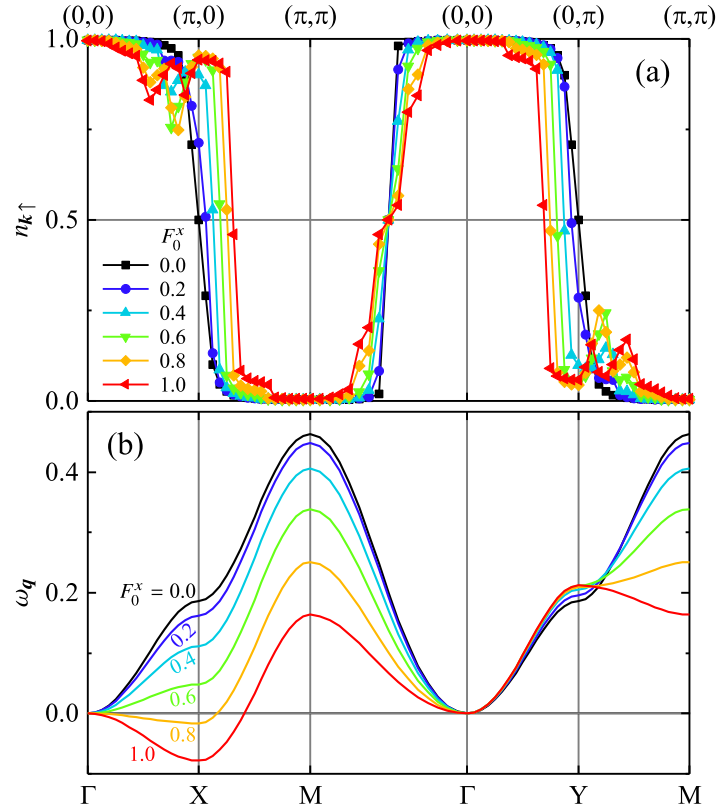


図 5.7 (a) アップスピンの電子の運動量分布関数. (b) マグノンの分散関係. 直線偏光の電場振幅を $\mathbf{F}_0 = (\sqrt{2}F_0^x, 0)$ とした. Hund 結合は $J = 5$, 光振動数は $\Omega = 1$.

つ Stoner 励起がマグノンのエネルギーを低下させる. この仮想遷移によるエネルギー利得は二次元正方格子の場合には $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ のとき $\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{k}} + 2J = 2J - 2\varepsilon_{\mathbf{k}} > 0$ が最小化されるため, 反強磁性に対応する $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ で最も顕著なソフト化が生じたと考えられる. 図 5.6(b) および 5.6(c) は波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ における自己エネルギーの実部と虚部をいくつかの電場振幅 F_0 に対してプロットしたものである. 低エネルギー領域 ($\omega \approx 0$) では F_0 の増加とともに自己エネルギーの実部は減少しており, マグノンのソフト化に対応する. 自己エネルギーの虚部は $F_0 \lesssim 1.2$ 程度まではほぼ零のままであり, $\omega_{\mathbf{q}=(\pi,\pi)} = 0$ となる閾値電場振幅以下ではマグノンが準粒子として良く定義されていることを意味する.

最後に光の偏光依存性について議論する. 電場振幅を $\mathbf{F}_0 = (\sqrt{2}F_0^x, 0)$ とし, x 軸方向の直線偏光を考える. このとき, 式 (5.12) における $\varepsilon_{mn,\mathbf{k}}$ は

$$\varepsilon_{mn,\mathbf{k}} = \begin{cases} -2\mathcal{J}_{m-n}(\sqrt{2}F_0^x/\Omega) \cos k^x - 2 \cos k^y & (m-n = 0 \pmod{2}) \\ -2i\mathcal{J}_{m-n}(\sqrt{2}F_0^x/\Omega) \sin k^x - 2i \sin k^y & (m-n = 1 \pmod{2}) \end{cases} \quad (5.46)$$

で与えられる. この場合の運動量分布関数 $n_{k\uparrow}$ ならびに式 (5.41) から得られたマグノンの分散関係 $\omega_{\mathbf{q}}$ を図 5.7 に示す. 電場振幅 F_0^x が増加するにつれて $n_{k\uparrow}$ は Γ -Y 上で減少し, X-M 上で増加する. ゆえに, 式 (5.45) において $n_{k\uparrow} > 0$ の条件下でエネルギー分母を最小化する波数は $\mathbf{q} \approx (\pi, 0)$ となり, 結果として $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ よりも $\mathbf{q} = (\pi, 0)$ 周辺のマグノンがより顕著にソフト化されるものと解釈できる. 第 3 章の実時間ダイナミクスの計算では図 3.1(d)-3.1(f) で示したように光照射後の過渡状態におけるスピン構造因子が偏光方向に依存することが明らかになったが, 上記の結果はこれと矛盾しない.

5.3 まとめ

本章では、二重交換模型の強磁性金属相における光照射下の定常状態に注目し、Floquet Green 関数法を用いて磁気励起構造の解析を行った。局在スピンを Holstein–Primakoff 変換によりボゾン（マグノン）演算子に変換し、伝導電子と局在スピンの間の Hund 結合を摂動として取扱うことで、非平衡状態におけるマグノンの自己エネルギーの表式を導出した。解析の結果、以下のことが明らかになった。

- 電場振幅の増大に伴ってマグノンのエネルギー $\omega_{\mathbf{q}}$ がソフト化し、特に $\mathbf{F}_0 = (F_0, F_0)$ の直線偏光の場合には波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ においてディップ構造が現れ、ある閾値電場振幅で $\omega_{\mathbf{q}=(\pi,\pi)} = 0$ となることを見出した。これは強磁性金属状態への光照射によって反強磁性状態への不安定性が誘起されることを意味する。
- 低振動数領域 ($\Omega \lesssim 2$) では、マグノンのエネルギー $\omega_{\mathbf{q}=(\pi,\pi)}$ はベクトルポテンシャル振幅 F_0/Ω の関数として振舞うことが明らかになった。一方、高振動数極限 ($\Omega \rightarrow \infty$) ではマグノンは波数空間で一様にソフト化し、これは伝導電子の動的局在により理解されることを示した。
- マグノンの自己エネルギーの表式と数値的に得られた電子の運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}\uparrow}$ を元に、マグノンのソフト化は非平衡状態の $n_{\mathbf{k}\uparrow}$ により増強された波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ の Stoner 励起、すなわち上部バンドと下部バンドへの電子正孔対励起に起因するものであることを明らかにした。
- 最も顕著にソフト化する波数 \mathbf{q} は偏光方向に依存することが見出された。これは定常状態における電子の運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}\uparrow}$ の偏光方向依存性を反映するものである。

以上の結果は第 3 章における実時間ダイナミクスの数値計算結果と整合するものである。これにより光照射による強磁性状態から反強磁性状態への転移の可能性が再度示され、その微視的機構や解釈が与えられた。

第 6 章

光誘起 Floquet 状態における スピン・電荷感受率

時間に関して周期的な外場が印加された系では Floquet 理論を適用することができる。そこでは古典的な電磁波は光子のように振舞い、電子系と混成して新たな状態 (Floquet 状態) が現れる。結晶の場合にはエネルギーバンドが動的局在により変形され、同時に光子のエネルギーの整数倍だけエネルギーの異なるサイドバンド (Floquet サイドバンド) が形成される。また、これらのバンド間に光学的な遷移行列要素が存在すれば準位反発が生じる。このような光照射下特有のバンド構造 (Floquet バンド構造)、すなわち一粒子励起スペクトルは Floquet 理論により記述され、時間・角度分解光電子分光により直接観測することができる [244, 245]。岡・青木による光誘起 Hall 効果の予言 [124] を一つの端緒として、Floquet バンド構造やそのトポロジカルな性質に関する理論研究が爆発的な進展を見せている。

電子のバンド構造を表す一粒子励起スペクトル (一体相関関数) のみならず、二体の相関関数も非常に多くの情報を内包しており、平衡状態はもとより非平衡状態を理解する上でも重要である。ポンプ・プローブ分光測定により得られる過渡光学スペクトルはその典型であると言える [159, 194, 197–199, 201, 246–254]。非平衡状態において必ずしも実験的に測定可能ではないものの、その重要性から理論研究ではスピン感受率 [142, 179–182, 254–264]、電荷感受率 [264–269]、ペア感受率 [194, 200, 201, 264, 268, 270–272]、軌道感受率 [273] が様々な文脈で議論されている。このような感受率は二次相転移的な光誘起相転移の“相境界”において発散すると期待される。また、磁気的な二体散乱は磁性金属における RKKY 相互作用や Mott 絶縁体における超交換相互作用等の交換相互作用を記述する。電子正孔対励起は電子格子系における格子の安定性と深く関係しており、低次元物質においては Peierls 転移をもたらす。以上のように非平衡状態における二体相関関数は様々な問題に関して議論されてきたが、最も基本となる相互作用のない多電子系において光照射下の感受率の一般的な性質はこれまで調べられておらず、その十分な理解は得られていない。

第 3–5 章においては二重交換モデルにおける実時間スピンダイナミクスと定常状態の磁気励起構造を議論した。そこでは初期状態として強磁性金属状態を仮定した。本章では Hund 結合の弱結合極限からのアプローチとして自由電子系を考え、その光照射下の定常状態 (Floquet 状態) におけるスピン・電荷感受率の解析を行う。Floquet 状態において伝導電子により媒介される局在スピン間の相互作用 (RKKY 相互作用) は、平衡状態と同様にスピン感受率に比例することが示される。始めに理論モデルを導入し、続いて感受率の定式化を行い一般的性質を議論する。その後、具体的に二次元正方格子ならびに一次元正方格子を考え、静的感受率を数値的に評価する。

6.1 理論模型

本章では熱浴と接した自由電子系を考える．ハミルトニアンは

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{V}, \quad (6.1)$$

$$\mathcal{H}_0 = \sum_{\mathbf{k}s} \varepsilon_{\mathbf{k}} c_{\mathbf{k}s}^\dagger c_{\mathbf{k}s} + \sum_{\nu} \varepsilon_{\nu} b_{\nu}^\dagger b_{\nu}, \quad (6.2)$$

$$\mathcal{V} = \sum_{\mathbf{k}, s, \nu} V_{\nu} \left(c_{\mathbf{k}s}^\dagger b_{\nu} + b_{\nu}^\dagger c_{\mathbf{k}s} \right) \quad (6.3)$$

で定義される．ここで $c_{\mathbf{k}s}^\dagger$ は運動量 \mathbf{k} ，スピン $s (= \uparrow, \downarrow)$ の電子の生成演算子， b_{ν}^\dagger は量子数 ν の熱浴中のフェルミオンの生成演算子である．第二式の \mathcal{H}_0 は自由電子系と熱浴を記述し，第三式の \mathcal{V} は両者の結合を表す．化学ポテンシャルから測った電子のエネルギーバンドを $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ ，熱浴のエネルギー準位を ε_{ν} とする．混成行列要素 V_{ν} は電子の波数 \mathbf{k} およびスピン s に依存せず，これは局所的な結合を意味する．外場として連続波を考え，そのベクトルポテンシャル $\mathbf{A}(t)$ は Peierls 位相として取り入れる．これは波数空間ではエネルギーバンドを $\varepsilon_{\mathbf{k}} \mapsto \varepsilon_{\mathbf{k} - e\mathbf{A}(t)/\hbar}$ のように平行移動させる．ここで $e (< 0)$ は電子の電荷， \hbar は Dirac 定数である．本章では直線偏光 $\mathbf{A}(t) = A_0 \sin \Omega t$ ならびに円偏光を考える．二次元系の場合には，直線偏光は

$$\mathbf{A}(t) = (A_0^x \sin \Omega t, A_0^y \sin \Omega t), \quad (6.4)$$

円偏光は

$$\mathbf{A}(t) = (A_0 \cos \Omega t, A_0 \sin \Omega t) \quad (6.5)$$

と表される．ここで $A_0 = \|\mathbf{A}_0\| = \sqrt{(A_0^x)^2 + (A_0^y)^2}$ と Ω はそれぞれベクトルポテンシャルの振幅および振動数である．一次元系の場合には $A(t) = A_0 \sin \Omega t$ と定義する．光照射前の電子系の初期状態として，常磁性金属状態

$$|\Psi_0\rangle = \prod_{\mathbf{k}s}^{\varepsilon_{\mathbf{k}} < 0} c_{\mathbf{k}s}^\dagger |0\rangle \quad (6.6)$$

を考える．ここで $|0\rangle$ は電子の真空である．これ以降は電子の電荷 e ，Dirac 定数 \hbar ，格子定数を全て 1 とする．

6.2 定式化と一般論

6.2.1 Floquet Green 関数

光照射下の定常状態（Floquet 状態）を議論するために Floquet Green 関数を用いる．はじめに電子系の遅延，先進，lesser Green 関数をそれぞれ

$$G_{\mathbf{k}}^R(t, t') = -i\theta(t - t') \langle \{c_{\mathbf{k}s}(t), c_{\mathbf{k}s}^\dagger(t')\} \rangle, \quad (6.7)$$

$$G_{\mathbf{k}}^A(t, t') = G_{\mathbf{k}}^R(t', t)^*, \quad (6.8)$$

$$G_{\mathbf{k}}^<(t, t') = i \langle c_{\mathbf{k}s}^\dagger(t') c_{\mathbf{k}s}(t) \rangle \quad (6.9)$$

と定義する．ここで $\theta(t)$ は階段関数， $\{\cdot, \cdot\}$ は反交換子， $\langle \cdot \rangle \equiv \langle \Psi_0 | \cdot | \Psi_0 \rangle$ は期待値を表す．演算子 $c_{\mathbf{k}s}(t)$ および $c_{\mathbf{k}s}^\dagger(t')$ は Heisenberg 描像の演算子である．常磁性状態を考えるため Green 関数はスピン s に依存しないものとし，上式左辺では添字 s を省略した．これらの two-time Green 関数は以下の時間周期性を持つ．

$$G^X(t+T, t'+t) = G^X(t, t') \quad (X = R, A, <). \quad (6.10)$$

ここで $T \equiv 2\pi\Omega^{-1}$ は光の振動周期である．第2章で述べたように，この周期性を利用して Green 関数の Floquet 表現，すなわち Floquet Green 関数が

$$(G^X)_{mn}(\omega) = \int_0^T \frac{dt_a}{T} \int_{-\infty}^{\infty} dt_r e^{i(\omega+m\Omega)t - i(\omega+n\Omega)t'} G^X(t, t'), \quad (6.11)$$

$$G^X(t, t') = \sum_n \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega}{2\pi} e^{-in\Omega t_a} e^{-i(\omega+(n/2)\Omega)t_r} (G^X)_{n,0}(\omega) \quad (6.12)$$

により定義される．ただし $t_a = (t+t')/2$ ， $t_r = t-t'$ である．添字 m, n は整数値を取るが，数値計算上は $\{0, \pm 1, \pm 2, \dots, \pm N_p\}$ に制限される．遅延 Floquet Green 関数は，Dyson 方程式

$$(G_{\mathbf{k}}^{R,-1})_{mn}(\omega) = (\mathcal{G}_{\mathbf{k}}^{R,-1})_{mn}(\omega) - (\Sigma_{\mathbf{k}}^R)_{mn}(\omega) \quad (6.13)$$

より逆行列を計算することで得られる．ここで $(\Sigma_{\mathbf{k}}^R)_{mn}(\omega)$ は熱浴との結合による自己エネルギーであり， $(\mathcal{G}_{\mathbf{k}}^{R,-1})_{mn}(\omega)$ は

$$(\mathcal{G}_{\mathbf{k}}^{R,-1})_{mn}(\omega) = \delta_{mn}(\omega + n\Omega + i\eta) - \varepsilon_{mn, \mathbf{k}} \quad (6.14)$$

により定義される裸の Green 関数である．ここで η は正の無限小量であり， $\varepsilon_{mn, \mathbf{k}}$ は

$$\varepsilon_{mn, \mathbf{k}} = \int_0^T \frac{dt}{T} e^{i(m-n)\Omega t} \varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t)} = \varepsilon_{m-n, \mathbf{k}} \quad (6.15)$$

で与えられる．特に $\varepsilon_{0, \mathbf{k}}$ は $\varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t)}$ の一周平均であり， $\mathbf{A}_0 = 0$ では平衡系のエネルギーバンド $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ に一致する．自己エネルギーは，熱浴の自由度を積分することで次のように得られる．

$$(\Sigma_{\mathbf{k}}^X)_{mn}(\omega) = \delta_{mn} \sum_{\nu} |V_{\nu}|^2 \mathcal{F}_{\nu}^X(\omega + n\Omega). \quad (6.16)$$

ここで $\mathcal{F}_{\nu}^X(\omega)$ は熱浴の Green 関数の Wigner 表現であり，

$$\mathcal{F}_{\nu}^R(\omega) = \mathcal{F}_{\nu}^A(\omega)^* = \frac{1}{\omega - \varepsilon_{\nu} + i\eta}, \quad (6.17)$$

$$\mathcal{F}_{\nu}^<(\omega) = 2\pi i f(\omega) \delta(\omega - \varepsilon_{\nu}) \quad (6.18)$$

で定義される．ここで $\delta(\omega)$ は Dirac のデルタ関数であり， $f(\omega) = 1/(e^{\beta\omega} + 1)$ は逆温度 β の Fermi–Dirac 分布関数である．本章では，簡単化のために熱浴のエネルギースペクトルが十分広いものと仮定する．すなわち，遅延自己エネルギーの実部は電子の化学ポテンシャルに繰り込まれ，虚部はエネルギー ω に依存しない．これにより Floquet 表現の自己エネルギー（Floquet 自己エネルギー）は

$$(\Sigma_{\mathbf{k}}^R)_{mn}(\omega) \approx -\delta_{mn} i\Gamma, \quad (6.19)$$

$$(\Sigma_{\mathbf{k}}^<)_{mn}(\omega) \approx 2\delta_{mn} i\Gamma f(\omega + n\Omega) \quad (6.20)$$

と表される。ここで

$$\Gamma = \pi \sum_{\nu} |V_{\nu}|^2 \delta(\omega - \varepsilon_{\nu}) \quad (6.21)$$

は系と熱浴の結合強度を表す正の定数である。熱浴の自己エネルギーを考慮すると、Dyson 方程式 (6.13) は

$$(G_{\mathbf{k}}^{\text{R},-1})_{mn}(\omega) = \delta_{mn}(\omega + n\Omega + i\Gamma) - \varepsilon_{m-n,\mathbf{k}} \quad (6.22)$$

と表される。ここで無限小の η を有限の結合定数 Γ に置き換えた。文献 [193] によると、上式の逆行列である遅延 Floquet Green 関数は

$$(G_{\mathbf{k}}^{\text{R}})_{mn}(\omega) = \sum_l \frac{(\Lambda_{\mathbf{k}})_{ml}(\Lambda_{\mathbf{k}})_{nl}^*}{\omega + l\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\Gamma} \quad (6.23)$$

で与えられる。ここで $\Lambda_{\mathbf{k}}$ は

$$(\Lambda_{\mathbf{k}})_{mn} = \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} \exp \left[\frac{1}{i\Omega} \int_0^x dz \{ \varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(z/\Omega)} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} \} \right] \quad (6.24)$$

で定義されるユニタリ行列である。式 (6.23) より、Floquet 状態においては l 個の“フォトン”を纏ったエネルギー $\varepsilon_{0,\mathbf{k}} - l\Omega$ のサイドバンド (“ l -フォトンバンド”) が “0-フォトンバンド” $\varepsilon_{0,\mathbf{k}}$ の周りに現れることが分かる。先進ならば lesser Green 関数 は、

$$(G_{\mathbf{k}}^{\text{A}})_{mn}(\omega) = (G_{\mathbf{k}}^{\text{R}})_{nm}(\omega)^*, \quad (6.25)$$

$$(G_{\mathbf{k}}^{\leq})_{mn}(\omega) = (G_{\mathbf{k}}^{\text{R}} \Sigma_{\mathbf{k}}^{\leq} G_{\mathbf{k}}^{\text{A}})_{mn}(\omega) \quad (6.26)$$

により得られる。特に、平衡状態 ($A_0 = 0$) または高振動数極限 ($\Omega \rightarrow \infty$) では $(\Lambda_{\mathbf{k}})_{mn} = \delta_{mn}$ となり、Green 関数は

$$(G_{\mathbf{k}}^{\text{R}})_{mn}(\omega) = \frac{\delta_{mn}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\Gamma}, \quad (6.27)$$

$$(G_{\mathbf{k}}^{\leq})_{mn}(\omega) = \frac{2\delta_{mn}i\Gamma f(\omega + n\Omega)}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}})^2 + \Gamma^2} \quad (6.28)$$

と表される。これらは平衡系の Green 関数においてエネルギーバンド $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ を $\varepsilon_{0,\mathbf{k}}$ に置き換えたものにならない。

一方、低振動数極限 ($\Omega \rightarrow 0$)^{*1}では式 (6.24) の $\Lambda_{\mathbf{k}}$ は特異的であるため、Dyson 方程式 (6.22) に立ち返る必要がある。低振動数極限では

$$(G_{\mathbf{k}}^{\text{R},-1})_{mn}(\omega) = \delta_{mn}(\omega + i\Gamma) - \varepsilon_{m-n,\mathbf{k}} \quad (6.29)$$

となる。これは Floquet 空間における $N_p \times N_p$ 行列であるが、“オンサイトポテンシャル”が $\omega + i\Gamma$ 、 m サイトと n サイトの間の“電子遷移積分”が $\varepsilon_{m-n,\mathbf{k}}$ で与えられる一次元強束縛模型のハミルトニアンと解釈できる。エネルギーバンド $\varepsilon_{mn,\mathbf{k}} = \varepsilon_{m-n,\mathbf{k}}$ の“並進対称性”のために、これはユニタリ行列 $U_{n\mathbf{k}} = e^{-in\mathbf{k}} / \sqrt{2N_p + 1}$ を用いて次のように対角化される。

$$\tilde{\varepsilon}_{\mathbf{k},\mathbf{k}} \equiv \sum_{mn} U_{m\mathbf{k}}^* \varepsilon_{mn,\mathbf{k}} U_{n\mathbf{k}} = \sum_n \varepsilon_{n,\mathbf{k}} e^{in\mathbf{k}} = \varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(-\kappa/\Omega)}. \quad (6.30)$$

^{*1} 本章では光振動数の $\Omega \rightarrow 0$ の極限を低振動数極限、感受率等の $\omega \rightarrow 0$ の極限を静的極限と呼ぶ。

ここで $\kappa = 2\pi j/(2N_p + 1)$ ($j = 0, \pm 1, \dots, \pm N_p$) である. これを用いると, Floquet Green 関数は

$$(G_{\mathbf{k}}^{\text{R}})_{mn}(\omega) = \frac{1}{2N_p + 1} \sum_{\kappa} \frac{e^{-i(m-n)\kappa}}{\omega + i\Gamma - \tilde{\varepsilon}_{\kappa, \mathbf{k}}} \xrightarrow{N_p \rightarrow \infty} \int_{-T/2}^{T/2} \frac{dt}{T} \frac{e^{i(m-n)\Omega t}}{\omega + i\Gamma - \varepsilon_{\mathbf{k}-A(t)}}, \quad (6.31)$$

$$(G_{\mathbf{k}}^{\text{<}})_{mn}(\omega) = \frac{1}{2N_p + 1} \sum_{\kappa} \frac{2i\Gamma f(\omega) e^{-i(m-n)\kappa}}{(\omega - \tilde{\varepsilon}_{\kappa, \mathbf{k}})^2 + \Gamma^2} \xrightarrow{N_p \rightarrow \infty} \int_{-T/2}^{T/2} \frac{dt}{T} \frac{2i\Gamma f(\omega) e^{i(m-n)\Omega t}}{(\omega - \varepsilon_{\mathbf{k}-A(t)})^2 + \Gamma^2} \quad (6.32)$$

となる. これらは平衡系の Green 関数において $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ を $\varepsilon_{\mathbf{k}-A(t)}$ に置き換えたものの $(m-n)$ 番目の Fourier 成分である. この具体例は図 6.7(j) に示される.

ここで, 時間平均されたスペクトル関数を

$$\rho_{\mathbf{k}}^{\text{R}}(\omega) = -\frac{1}{\pi} \text{Im}(G_{\mathbf{k}}^{\text{R}})_{00}(\omega), \quad (6.33)$$

$$\rho_{\mathbf{k}}^{\text{<}}(\omega) = \frac{1}{2\pi} \text{Im}(G_{\mathbf{k}}^{\text{<}})_{00}(\omega) \quad (6.34)$$

と定義する. これらを用いて, 一粒子状態密度と運動量分布関数がそれぞれ

$$n(\omega) = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \rho_{\mathbf{k}}^{\text{R}}(\omega), \quad (6.35)$$

$$n_{\mathbf{k}} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \rho_{\mathbf{k}}^{\text{<}}(\omega) \quad (6.36)$$

により与えられる. 状態密度の表式に現れた因子 2 は電子のスピン自由度を反映するものである.

6.2.2 スピン・電荷感受率

光照射下の Floquet 状態におけるスピン感受率および電荷感受率の表式を求める. 後で明らかになるように, 本章で扱う模型 [式 (6.1)–(6.3)] では両者の感受率は一致する.

はじめに, 波数 \mathbf{q} のスピン・電荷密度を

$$M_{\mathbf{q}}^{\alpha} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}ss'} \sigma_{ss'}^{\alpha} c_{\mathbf{k}s}^{\dagger} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}s'} \quad (\alpha = 0, 1, 2, 3) \quad (6.37)$$

により定義する. ここで σ^0 は 2 次元恒等行列, $\{\sigma^1, \sigma^2, \sigma^3\}$ は Pauli 行列であり, N は格子のサイト数を表す. スピン密度と電荷密度を統一して扱うために, 四元ベクトルによる表記

$$M_{\mathbf{q}}^{\alpha} = (M_{\mathbf{q}}^0, M_{\mathbf{q}}), \quad M_{\mathbf{q}} = (M_{\mathbf{q}}^1, M_{\mathbf{q}}^2, M_{\mathbf{q}}^3) \quad (6.38)$$

を用いる. スピン・電荷密度 $M_{\mathbf{q}}^{\alpha}$ と外場 $H_{\mathbf{q}}^{\alpha}$ の結合は次のハミルトニアンにより与えられるものとする.

$$\mathcal{V}_{\text{ext}} = - \sum_{\alpha \mathbf{q}} H_{\mathbf{q}}^{\alpha} M_{\mathbf{q}}^{\alpha} = - \sum_{\alpha \mathbf{k} \mathbf{q} s s'} H_{\mathbf{q}}^{\alpha} \sigma_{ss'}^{\alpha} c_{\mathbf{k}s}^{\dagger} c_{\mathbf{k}+\mathbf{q}s'}. \quad (6.39)$$

スピン・電荷感受率は, 汎関数微分

$$\chi_{\mathbf{q}\mathbf{q}'}^{\alpha\beta}(t, t') = \frac{\delta \langle M_{\mathbf{q}}^{\alpha}(t) \rangle}{\delta H_{\mathbf{q}'}^{\beta}(t')} \quad (6.40)$$

で定義される. 第 2.4 節の結果 [式 (2.82)] から, これは

$$\chi_{\mathbf{q}\mathbf{q}'}^{\alpha\beta}(t, t') = \frac{i\delta_{\mathbf{q}\mathbf{q}'}}{N} \sum_{\mathbf{k}} \sum_{ss'} \left[\sigma_{ss'}^{\alpha} G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\text{R}}(t, t') \sigma_{s's}^{\beta} G_{\mathbf{k}}^{\text{<}}(t', t) + \sigma_{ss'}^{\alpha} G_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^{\text{<}}(t, t') \sigma_{s's}^{\beta} G_{\mathbf{k}}^{\text{A}}(t', t) \right] \quad (6.41)$$

と表されることが分かる．ここで常磁性状態では Green 関数がスピンに依存しないことを用いた．この式に含まれる遅延 Green 関数 $G^R(t, t')$ および先進 Green 関数 $G^A(t', t)$ はいずれも階段関数 $\theta(t - t')$ を含むため，感受率 $\chi(t, t')$ は因果律を満たす．Floquet 表現では

$$(\chi_q)_{mn}(\omega) = \frac{2i}{N} \sum_{kl} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} \left[(G_k^R)_{m,n+l}(\omega + \bar{\omega})(G_k^<)_{l,0}(\bar{\omega}) + (G_{k+q}^<)_{m,n+l}(\omega + \bar{\omega})(G_k^A)_{l,0}(\bar{\omega}) \right] \quad (6.42)$$

となる．ここで $\text{Tr}(\sigma^\alpha \sigma^\beta) = 2\delta_{\alpha\beta}$ を用い， $\beta = \alpha$ かつ $\mathbf{q}' = \mathbf{q}$ として添字 $\alpha, \beta, \mathbf{q}'$ を省略した．この感受率は成分 α に依存しないため，スピン感受率は等方的であり，かつ電荷感受率と等しい．本章では主に感受率の時間平均

$$\chi_q(\omega) \equiv (\chi_q)_{mn}(\omega - n\Omega) \quad (6.43)$$

ならびにその静的極限 ($\omega \rightarrow 0$)

$$\chi_q \equiv \chi_q(\omega = 0) = (\chi_q)_{nn}(-n\Omega) \quad (6.44)$$

に注目して解析を行う．

先に述べたように，高振動数極限 ($\Omega \rightarrow \infty$) または平衡状態 ($A_0 = 0$) では $(A_k)_{mn} = \delta_{mn}$ となるため，感受率は

$$\chi_q(\omega) \rightarrow \chi_q^{(0)}(\omega) = \frac{2}{N} \sum_k \frac{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})}{\omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} \quad (6.45)$$

と簡単化される．ただし $\Gamma \rightarrow \eta$ として $f(\omega)$ を $f(\varepsilon_{0,k})$ や $f(\varepsilon_{0,k+q})$ に置き換えた．これはよく知られた平衡系の感受率の表式であるが，エネルギーバンド ε_k はその時間平均 $\varepsilon_{0,k}$ に置き換わっており，動的局在の効果を反映する．

一方，低振動数極限 ($\Omega \rightarrow 0$) では Green 関数は式 (6.31) および (6.32) で与えられることから，感受率は

$$\chi_q(\omega) \rightarrow \frac{2}{(2N_p + 1)N} \sum_{k\kappa} \frac{f(\tilde{\varepsilon}_{\kappa,k+q}) - f(\tilde{\varepsilon}_{\kappa,k})}{\omega - (\tilde{\varepsilon}_{\kappa,k+q} - \tilde{\varepsilon}_{\kappa,k}) + 2i\eta} = \frac{2}{N} \sum_k \frac{f(\varepsilon_{k+q}) - f(\varepsilon_k)}{\omega - (\varepsilon_{k+q} - \varepsilon_k) + 2i\eta} \quad (6.46)$$

となり，高振動数極限と同様に平衡系の感受率の表式に帰着する．これは次のように理解される．系が平衡状態に達するまでの典型的な時間スケールは熱浴との結合強度の逆数 Γ^{-1} で与えられる．感受率 $\chi_q(\omega)$ は時間幅 $T = 2\pi\Omega^{-1}$ に渡る時間平均であり，低振動数極限 ($\Omega \rightarrow 0$) では $T \rightarrow \infty$ となる．周期 $T (\gg \Gamma^{-1})$ の時間スケールでは系は常に熱平衡化した状態と見なされ，各時刻でエネルギーバンドは $\mathbf{A}(t)$ だけシフトし，電子の分布関数は Fermi–Dirac 分布関数で与えられる．したがって， $\Omega \ll \Gamma$ の場合には時間平均された感受率 $\chi_q(\omega)$ は平衡系の感受率と一致する．上記の描像は第 6.3 節において数値的に確かめられる [図 6.7]．

最後に，式 (6.42) における感受率と RKKY 相互作用の関係について議論する．位置 $\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2$ にある二つの磁性不純物と伝導電子との相互作用がハミルトニアン

$$-J \sum_i \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{M}_i \quad (6.47)$$

で与えられるものとする．ここで J は結合定数であり，

$$\mathbf{M}_i = \sum_{ss'} \boldsymbol{\sigma}_{ss'} c_{is}^\dagger c_{is'}, \quad c_{is}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_k e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r}_i} c_{ks}^\dagger \quad (6.48)$$

は位置 \mathbf{r}_i における伝導電子のスピン密度を表す．位置 \mathbf{r}_j において伝導電子は磁性不純物による磁場 $\mathbf{H}_j = J\mathbf{S}_j$ を感じ，これにより位置 \mathbf{r}_i に

$$\langle M_i^\alpha(t) \rangle \equiv \sum_\beta \int_{-\infty}^{\infty} dt' \chi_{ij}^{\alpha\beta}(t, t') H_j^\beta(t') \quad (\alpha, \beta = 1, 2, 3) \quad (6.49)$$

で表されるスピン密度が誘起される．したがって，伝導電子によって媒介される磁性不純物間の相互作用は

$$\mathcal{H}_{\text{RKKY}}(t) = -J\mathbf{S}_i(t) \cdot \langle \mathbf{M}_i(t) \rangle = -J^2 \sum_{\alpha\beta} \int_{-\infty}^{\infty} dt' S_i^\alpha(t) \chi_{ij}^{\alpha\beta}(t, t') S_j^\beta(t') \quad (6.50)$$

で与えられる．ここで実空間表示の感受率 $\chi_{ij}^{\alpha\beta}(t, t')$ は式 (6.41) の $\chi_{\mathbf{q}}^{\alpha\beta}(t, t')$ を用いて

$$\chi_{ij}^{\alpha\beta}(t, t') = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)} \chi_{\mathbf{q}}^{\alpha\beta}(t, t') \quad (6.51)$$

と表される．磁性不純物のダイナミクスの時間スケールが Ω^{-1} より十分遅い場合には $\mathbf{S}_i(t)$ の時間依存性は無視でき，Floquet 表現の感受率を用いて

$$\mathcal{H}_{\text{RKKY}}(t) = -J^2 \sum_{\alpha\beta} S_i^\alpha S_j^\beta \sum_n e^{-in\Omega t} (\chi_{ij}^{\alpha\beta})_{n,0}(0) \quad (6.52)$$

と書ける．特に時間間隔 $[0, T]$ に渡る時間平均は次の形で表される．

$$\int_0^T \frac{dt}{T} \mathcal{H}_{\text{RKKY}}(t) = -J^2 \sum_{\alpha\beta} S_i^\alpha (\chi_{ij}^{\alpha\beta})_{00}(0) S_i^\beta. \quad (6.53)$$

すなわち，光照射下の Floquet 状態における RKKY 相互作用は平衡系と同様に式 (6.44) の静的感受率によって与えられる．

6.2.3 感受率の級数展開

式 (6.42) における感受率をベクトルポテンシャル振幅 A_0 について展開した結果を示す．ここでは直線偏光を考え，ベクトルポテンシャルを $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0 \sin \Omega t$ とする．導出の詳細は補遺 A に記す．

式 (6.24) のユニタリ行列 $\Lambda_{\mathbf{k}}$ は， A_0 の二次までの範囲で

$$\begin{aligned} (\Lambda_{\mathbf{k}})_{mn} &= \delta_{mn} - \frac{\mathbf{v}_{\mathbf{k}} \mathbf{A}_0}{i\Omega} \left(\delta_{mn} - \frac{\delta_{m,n-1} + \delta_{m,n+1}}{2} \right) \\ &+ \left(\frac{\mathbf{v}_{\mathbf{k}} \mathbf{A}_0}{i\Omega} \right)^2 \left(\frac{3\delta_{mn}}{4} - \frac{\delta_{m,n-1} + \delta_{m,n+1}}{2} + \frac{\delta_{m+1,n-1} + \delta_{m-1,n+1}}{8} \right) \\ &+ \sum_{\alpha\beta} \frac{\tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega} (\delta_{m+1,n-1} - \delta_{m-1,n+1}) + \mathcal{O}(A_0^3) \end{aligned} \quad (6.54)$$

と展開される．ここで $\mathbf{v}_{\mathbf{k}} = \partial \varepsilon_{\mathbf{k}} / \partial \mathbf{k}$ は群速度であり， $\tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta} = \partial^2 \varepsilon_{\mathbf{k}} / \partial k^\alpha \partial k^\beta$ はストレステンソルである．添字 α, β は $\{1, 2, 3\}$ を走る．時間平均された遅延 Green 関数は

$$(G_{\mathbf{k}}^{\text{R}})_{00}(\omega) = \left(1 - \frac{\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2}{2} \right) \frac{1}{\omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} + \frac{\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2}{4} \frac{1}{\omega + \Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} + \frac{\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2}{4} \frac{1}{\omega - \Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} \quad (6.55)$$

となり, lesser Green 関数は

$$(G_{\mathbf{k}}^<)_{00}(\omega) = \frac{(1 - \mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2)f(\omega)}{(\omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}})^2 + \eta^2} + \frac{\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2}{4} \frac{f(\omega + \Omega) + f(\omega - \Omega)}{(\omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}})^2 + \eta^2} + \frac{\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2}{4} \left[\frac{f(\omega + \Omega)}{(\omega + \Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}})^2 + \eta^2} + \frac{f(\omega - \Omega)}{(\omega - \Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}})^2 + \eta^2} \right] \quad (6.56)$$

となる. ここで $\mathcal{A}_{\mathbf{k}} = \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \mathbf{A}_0 / \Omega$ と定義し, Γ を η に置き換えた. この結果から, A_0 の二次の範囲では $\mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2/4$ の重みを持つ 1-フォトン Floquet サイドバンド $\varepsilon_{\mathbf{k}} \pm \Omega$ が現れることが分かる. 時間平均された感受率は次のように展開される.

$$\chi_q(\omega) = \chi_q^{\text{base}}(\omega) + \chi_q^{\text{intra}}(\omega) + \chi_q^{\text{inter}}(\omega) + O(A_0^3). \quad (6.57)$$

ここで

$$\chi_q^{\text{base}}(\omega) = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left[\frac{f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}})}{\omega - (\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) + 2i\eta} - \frac{1}{2} \frac{\mathcal{A}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^2 f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}})}{\omega - (\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) + 2i\eta} - \frac{(\mathcal{A}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \mathcal{A}_{\mathbf{k}})^2}{2} \frac{f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}})}{\omega - (\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) + 2i\eta} \right], \quad (6.58)$$

$$\chi_q^{\text{intra}}(\omega) = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left[\frac{1}{4} \frac{\mathcal{A}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^2 f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} + \Omega) - \mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2 f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}} + \Omega)}{\omega - (\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) + 2i\eta} + \frac{1}{4} \frac{\mathcal{A}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}^2 f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \Omega) - \mathcal{A}_{\mathbf{k}}^2 f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}} - \Omega)}{\omega - (\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) + 2i\eta} \right], \quad (6.59)$$

$$\chi_q^{\text{inter}}(\omega) = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \left[\frac{(\mathcal{A}_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \mathcal{A}_{\mathbf{k}})^2}{4} \left\{ \frac{f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}})}{\omega + \Omega - (\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) + 2i\eta} + \frac{f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}}) - f(\varepsilon_{0,\mathbf{k}})}{\omega - \Omega - (\varepsilon_{0,\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) + 2i\eta} \right\} \right] \quad (6.60)$$

と定義した. 式 (6.59) と (6.60) で A_0^2 に比例する補正項は, 高振動数極限 ($\Omega \rightarrow \infty$) における感受率の表式 (6.45) において化学ポテンシャル μ やエネルギー ω を $\pm\Omega$ だけシフトしたものである. このことは平衡系の Fermi 面のネスティングの概念が Floquet 状態においても適用できることを示唆する. 第 6.3 節で明らかになるように, 式 (6.58)–(6.60) の $\chi^{\text{base}}, \chi^{\text{intra}}, \chi^{\text{inter}}$ はそれぞれ, 0-フォトン Floquet バンド内の電子正孔対励起, ひとつの 1-フォトン Floquet サイドバンド内の電子正孔対励起, 0-フォトン Floquet バンドと 1-フォトン Floquet サイドバンド間の電子正孔対励起に対応するものである. 以上の結果は直線偏光として $\mathbf{A}(t) = \mathbf{A}_0 \sin \Omega t$ を仮定したものであるが, 結晶構造やバンド構造の詳細には依存しない.

6.3 具体例

この節では式 (6.44) の静的感受率を数値的に評価し, 電子状態との関係を議論する. 特に断りのない限り, 熱浴の温度は絶対零度 ($\beta \rightarrow \infty$) とし, 系との結合強度は $\Gamma = 0.05$ とする. Floquet 空間次元のカットオフ N_p に関しては計算結果が収束するように十分大きい値 (典型的には $N_p \sim 10\text{--}40$) を採用した.

6.3.1 二次元正方格子

二次元正方格子を考え, エネルギーバンドを

$$\varepsilon_{\mathbf{k}} = -2(\cos k^x + \cos k^y) - \mu \quad (6.61)$$

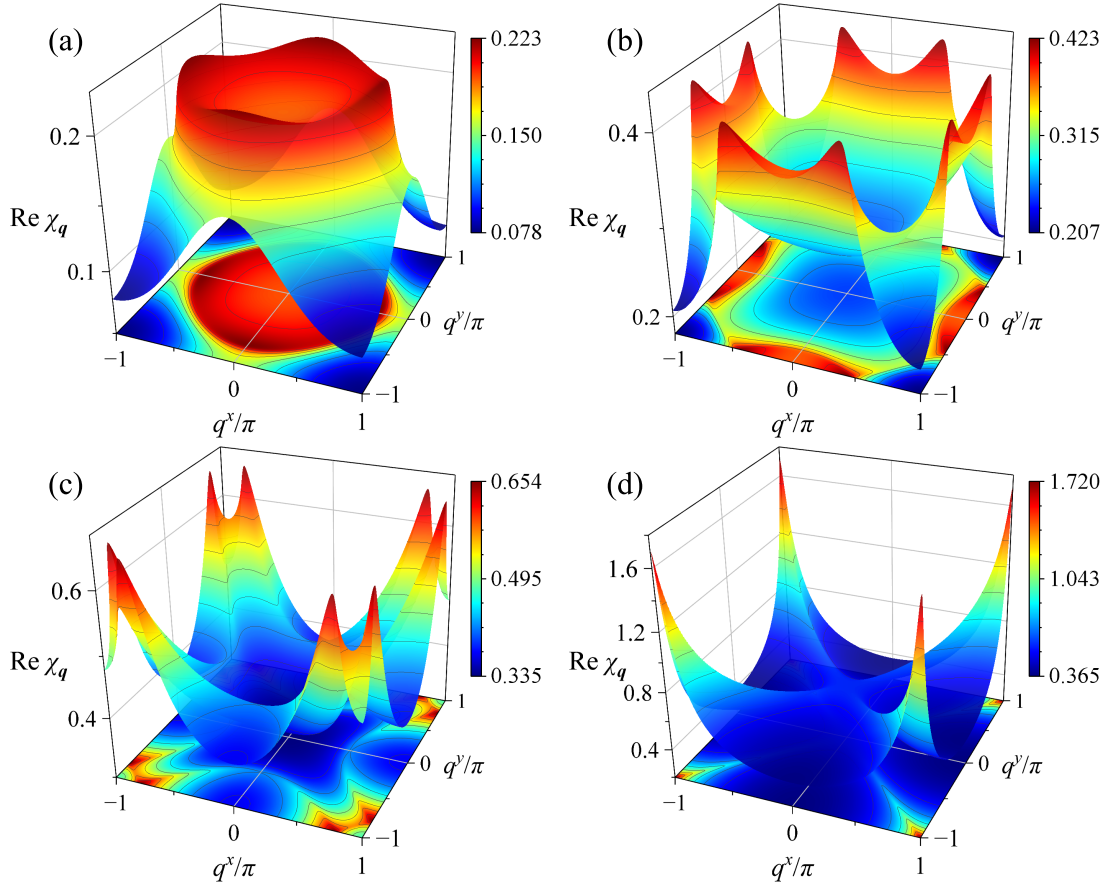


図 6.1 平衡状態における静的感受率. 電子数密度は (a) $n_e = 0.25$, (b) $n_e = 0.5$, (c) $n_e = 0.75$, (d) $n_e = 1$ である.

と定義する. ここで μ は系の化学ポテンシャルであり, 電子数密度が n_e になるように決定される. エネルギーは最近接サイト間の電子遷移積分の絶対値を単位として測る. サイト数を $N = 256 \times 256$ とする.

平衡状態における静的感受率 χ_q を図 6.1 に示す. よく知られているように, 波数空間における静的感受率は Fermi 面の形状を強く反映し, ネスティングベクトル $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ が存在すれば χ_q は $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ に鋭いピークを持つ. 電子数密度が $n_e = 0.25$ の場合, 系は等方的な自由電子気体に近く, 図 6.1(a) のように感受率にも概ね等方的なピークが現れる. 一方, ハーフフィリングの $n_e = 1$ の場合には Fermi 面は $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ で完全ネスティングとなっており, 感受率は $\mathbf{Q} = (\pi, \pi)$ にピークを持つことが確かめられる^{*2}.

光照射下の定常状態における静的感受率について議論する. はじめに, 光振動数 Ω が電子のバンド幅 (= 8) よりも十分大きい高振動数領域を考える. このとき感受率は式 (6.45) で表される. 式 (6.5) の円偏光が印加された場合, 時間平均されたエネルギーバンドは

$$\varepsilon_{0,\mathbf{k}} = -2\mathcal{J}_0(A_0)(\cos k^x + \cos k^y) - \mu \quad (6.62)$$

となる. ここで \mathcal{J}_n は n 次の第一種 Bessel 関数であり, 動的局在によるバンド幅の減少を表す. 今のモデルではスピン軌道相互作用や Zeeman 効果 (光の磁場成分) を取り入れていないため, 円偏光は単に等方

^{*2} 波数 $\mathbf{q} = 0$ の静的感受率は電子の状態密度に一致する. ハーフフィリングの場合には状態密度の Van Hove 特異性により $\text{Re } \chi_{\mathbf{q}=0} = n(0)$ が発散するが, 図 6.1(d) ではそのような振舞いは見られない. これは有限の Γ により発散が抑えられるためである.

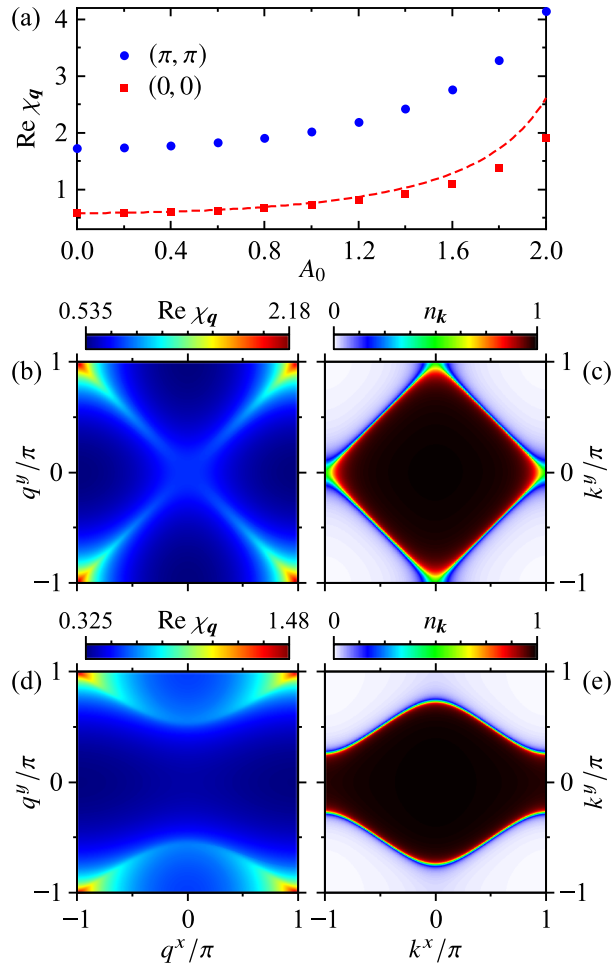


図 6.2 (a) 波数 $\mathbf{q} = (0, 0)$ および $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ における静的感受率. 赤色破線は Fermi 面の状態密度 $n(0)$ を Bessel 関数 $\mathcal{J}_0(A_0)$ で割った量を A_0 の関数としてプロットしたものである. (b)(d) および (c)(e) はそれぞれ $A_0 = 1.2, \Omega = 20$ の場合の静的感受率および運動量分布関数を示す. (a)–(c) は円偏光, (d)(e) は直線偏光の場合の結果である.

的な外場として作用する. 図 6.2(c) は光照射下の運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}}$ であり, 平衡系とほぼ同様に Fermi 面の内側 ($|k^x| + |k^y| < \pi$) にのみ電子が分布していることが分かる. 図 6.2(b) は静的感受率の実部を示しており, 図 6.1(d) の平衡状態の感受率と同様に $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ にピークを持つ. 図 6.2(a) は $\chi_{\mathbf{q}=(0,0)}$ および $\chi_{\mathbf{q}=(\pi,\pi)}$ をベクトルポテンシャル振幅 A_0 の関数としてプロットしたものである. これらの結果から, 振幅の増加に伴って感受率が波数空間で一様に増加することが分かる. 図 6.2(a) における破線は Fermi エネルギーにおける状態密度 $n(0)$ を Bessel 関数 $\mathcal{J}_0(A_0)$ で割ったものであり, $\chi_{\mathbf{q}=(0,0)}$ との良い一致が見られる^{*3}. このことは高振動数領域における感受率の増大が動的局在によるバンド幅の減少, すなわち状態密度の増加として理解できることを意味する.

上記の動的局在による感受率の上昇に加えて, 光の偏光方向によって Fermi 面を変形させ, ネスティングベクトルを制御することが可能である. 式 (6.4) の直線偏光を考えると, 時間平均されたエネルギーバンドは

$$\varepsilon_{0,\mathbf{k}} = -2[\mathcal{J}_0(A_0^x) \cos k^x + \mathcal{J}_0(A_0^y) \cos k^y] - \mu \quad (6.63)$$

と表される. 例として $(A_0^x, A_0^y) = (1.2, 0)$ とした場合の感受率と運動量分布関数を図 6.2(d)(e) に示す.

^{*3} 振幅が $A_0 \geq 1.6$ の領域で見られる差異は有限の Γ によって生じたものである.

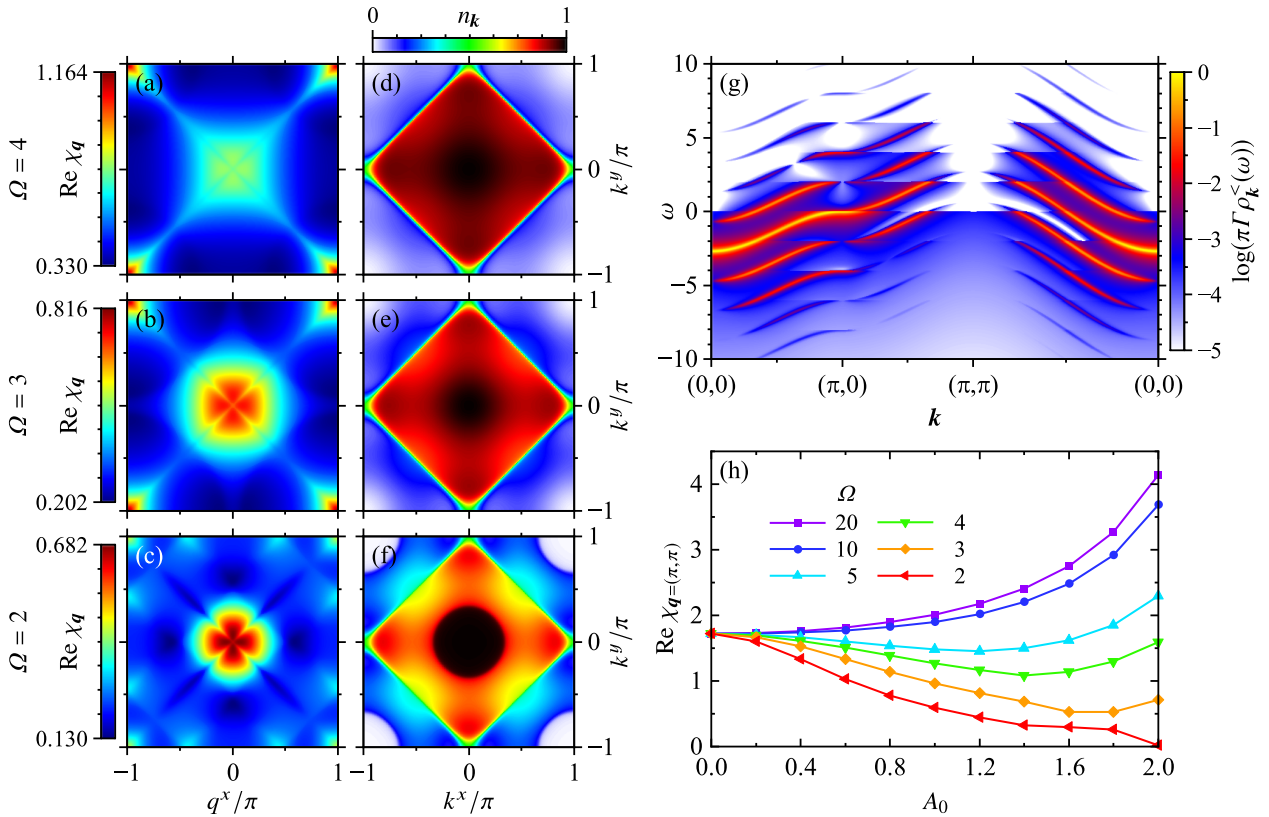


図 6.3 (a)–(c) 静的感受率および (d)–(f) 運動量分布関数. 円偏光の振幅は $A_0 = 1.2$ であり, 振動数は上から順に $\Omega = 4, 3, 2$. (g) $A_0 = 1.2$, $\Omega = 2$ の場合のスペクトル関数. (h) 波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ における静的感受率.

このとき x 方向の電子遷移積分が有効的に減少し, 運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}}$ は図 6.2(e) のように二回対称な形に変化する. これを反映して $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ と $\mathbf{q} = (-\pi, \pi)$ の間で感受率が増加する.

続いて, 光振動数に対する依存性を議論する. ここでは等方的な外場として円偏光を考える. 化学ポテンシャルを $\mu = 0$ とし, 電子数密度を $n_e = 1$ に保つ. 光振動数 $\Omega = 2, 3, 4$ の場合の感受率 $\chi_{\mathbf{q}}$ と運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}}$ を図 6.3(a)–6.3(f) に示す. 図 6.2(b)(c) に示した高振動数領域 ($\Omega = 20$) の場合と図 6.3(a)(b)(d)(e) の $\Omega = 3, 4$ の場合の $\chi_{\mathbf{q}}$ と $n_{\mathbf{k}}$ を併せて考えると, Ω が小さくなるほど Fermi 面の外側へ運動量分布が滲み出し, 同時に波数 $\mathbf{q} = (0, 0)$ 付近の感受率が上昇することが分かる. 一方で $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ における $\chi_{\mathbf{q}}$ のピークや Fermi 面上の $n_{\mathbf{k}}$ の不連続性は $\Omega = 3, 4$ の場合にも保たれており, この意味で $\Omega \geq 3$ は高振動数領域と言える. 対照的に, $\Omega = 2$ の場合には感受率は $\text{Re } \chi_{q=(\pi,\pi)} < \text{Re } \chi_{q=(0,0)}$ となり, $\mathbf{q}/\pi = (\pm 0.5, 1), (1, \pm 0.5)$ に新たなピークが生じる. 運動量分布関数には $\mathbf{k} = (0, 0)$ と $\mathbf{k} = (\pi, \pi)$ を中心とする半径 0.33π の円周上に不連続線が新たに現れる. このような高振動数領域との質的な差異は, 図 6.3(g) に示すように複数の Floquet バンドが熱浴の Fermi エネルギーを横切ることで発生したものである. 波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ における感受率 $\chi_{\mathbf{q}}$ を振幅 A_0 の関数としてプロットしたものが図 6.3(h) である. $\Omega = 10, 20$ の場合には振幅の増加に伴って $\chi_{q=(\pi,\pi)}$ は単調に増加する一方で, $\Omega = 2-5$ の場合には振幅に対して非単調な振舞いが見られる. 動的局在は感受率を空間的に一様に増加させる働きを持つことから, このような感受率の減少や新たなピークの出現は非平衡定常状態における電子分布 $n_{\mathbf{k}}$ の性質に起因すると考えられる.

次に, $\Omega = 2$ の低振動数領域を考える. ここでは複数の Floquet バンドが熱浴の Fermi エネルギーと交差する. 電子数密度を $n_e = 0.25$ とし, $A_0^x = A_0^y$ の直線偏光を印加する. 図 6.4 は $\chi_{\mathbf{q}}, n_{\mathbf{k}}, \rho_{\mathbf{k}}^R(0)$ を

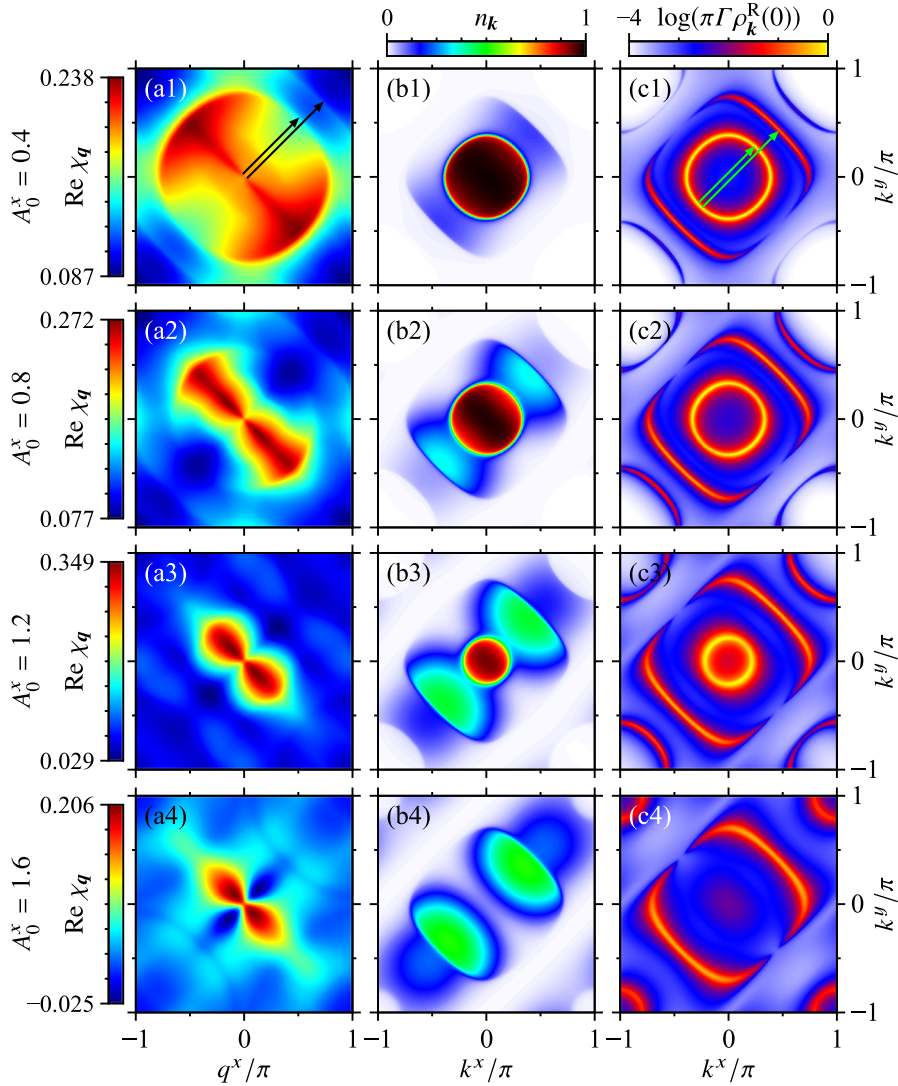


図 6.4 光照射下の定常状態における (a) 静的感受率, (b) 運動量分布関数, (c) $\omega = 0$ におけるスペクトル関数. 電子密度は $n_e = 0.25$ である. ベクトルポテンシャル振幅は上から順に $A_0^x = A_0^y = 0.4, 0.8, 1.2, 1.6$. (a) および (c) における矢印は $\mathbf{q}/\pi = (0.5, 0.5), (0.7, 0.7)$ を表す (本文参照).

$A_0^x = 0.4-1.6$ に対してプロットしたものである. $A_0 \leq 1.2$ では 0-フォトン Floquet バンドに加えて 1-フォトンおよび 2-フォトン Floquet バンドの Fermi 面がスペクトル関数 $\rho_k^R(0)$ に現れ, Fermi 面上の波数において n_k が不連続に変化する. 0-フォトンバンドの等方的な Fermi 面は動的局在効果と Floquet サイドバンドの出現のために A_0 の増加とともに縮小する. 運動量分布 n_k は, 偏光方向に平行な方向では Fermi 面の外側に滲み出し, 垂直な方向では変化しない. 第 6.2.3 節で議論したように, Floquet 状態における感受率は平衡系の表式 (6.46) に基づいてある程度理解することができる. ここでは式 (6.46) を

$$\chi_q(\omega) = \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{n_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - n_{\mathbf{k}}}{\omega - (\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}} - \varepsilon_{\mathbf{k}}) + 2i\eta} \quad (6.64)$$

と書き直す. ここで Fermi-Dirac 分布関数 $f(\varepsilon_{\mathbf{k}})$ を非平衡状態の運動量分布関数 $n_{\mathbf{k}}$ に置き換えた. これは Floquet バンドを結ぶ“ネスティングベクトル” $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ において感受率 χ_q にピーク等の特徴的構造が現れることを示唆する. 光照射下の Floquet 状態において上式の $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ は意味をなさないが, ここでは分母の $\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}} - \varepsilon_{\mathbf{k}}$ を零と見なし, 分子の $|n_{\mathbf{k}+\mathbf{Q}} - n_{\mathbf{k}}|$ は不連続性のために大きな値を持つと考える. 平衡状態では Fermi 波数はおおよそ $k_F = 0.4\pi$ であり, 感受率は $\|\mathbf{k}\| \leq 2k_F$ の領域内部で大きな値を持つ

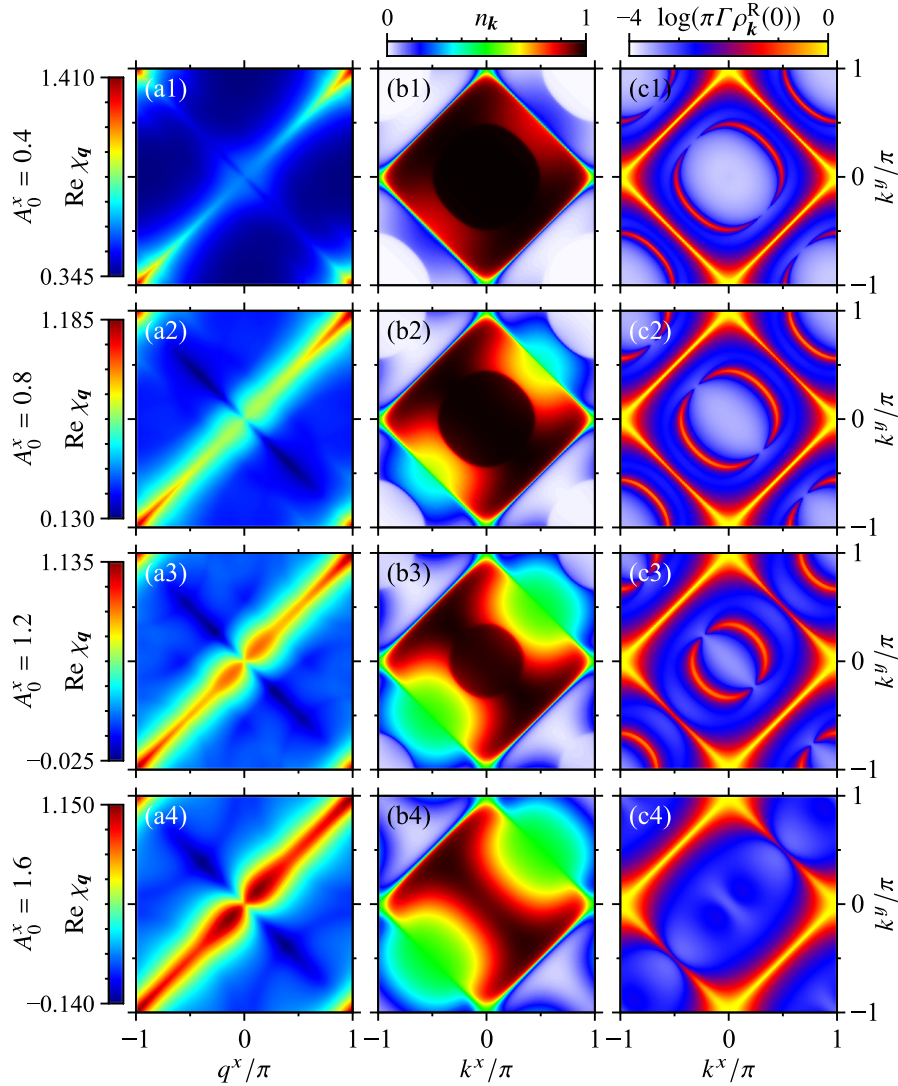


図 6.5 光照射下の定常状態における (a) 静的感受率, (b) 運動量分布関数, (c) $\omega = 0$ におけるスペクトル関数. 電子密度は $n_e = 1$ である. ベクトルポテンシャル振幅は上から順に $A_0^x = A_0^y = 0.4, 0.8, 1.2, 1.6$.

[図 6.1(a)]. $\mathbf{q} = (-\pi, \pi)$ と $(\pi, -\pi)$ を結ぶ線上に注目すると, この領域は振幅 A_0 の増加による 0-フォトンバンドの Fermi 波数の減少に伴って縮小していることが分かる. 図 6.4(c1) には 0-フォトンバンドの Fermi 面同士を結ぶ矢印 ($\mathbf{k}/\pi = (0.5, 0.5)$) および 0-フォトンバンドと 1-フォトンバンドの Fermi 面を結ぶ矢印 ($\mathbf{q}/\pi = (0.7, 0.7)$) を示しており, 図 6.4 には同じ大きさの矢印を原点 $\mathbf{q} = 0$ を始点にして示している. これらのネスティングベクトル $\mathbf{Q}/\pi = (0.5, 0.5)$ と $\mathbf{Q}/\pi = (0.7, 0.7)$ において $\chi_{\mathbf{q}}$ が大きく変化していることが分かる. 振幅が $A_0^x > 0.8$ になると, 式 (6.57) で記述される A_0 の二次の領域を大きく超えており, スペクトル関数や運動量分布関数に現れる Fermi 面に対応する構造を感受率に見出すことは難しい.

低振動数領域 ($\Omega = 2$) かつハーフフィリング ($n_e = 1$) の場合の感受率, 運動量分布関数およびスペクトル関数を図 6.5 に示す. $n_e = 0.25$ の場合との主要な違いは, 電子正孔対称性のために 0-フォトンバンドと $\mathbf{Q} = (-\pi, \pi)$ のネスティングベクトルが大きい A_0 に対しても保たれる点である. 運動量分布が偏光方向と平行な方向には広がり, 垂直な方向には変化しない点は $n_e = 0.25$ と同様である. 結果として, 振幅 A_0 の増加とともに Fermi 面と感受率は一次元的な構造を持つようになる.

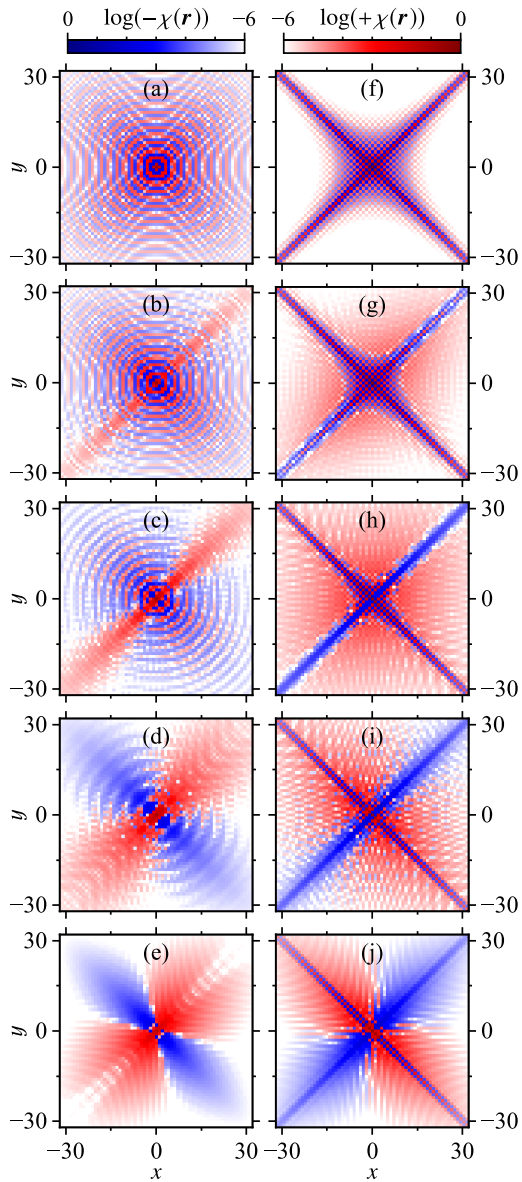


図 6.6 実空間における感受率 $\chi(\mathbf{r} = \mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$. 左列は $n_e = 0.25$, 右列は $n_e = 1$. ベクトルポテンシャル振幅は上から順に $A_0^x = A_0^y = 0, 0.4, 0.8, 1.2, 1.6$.

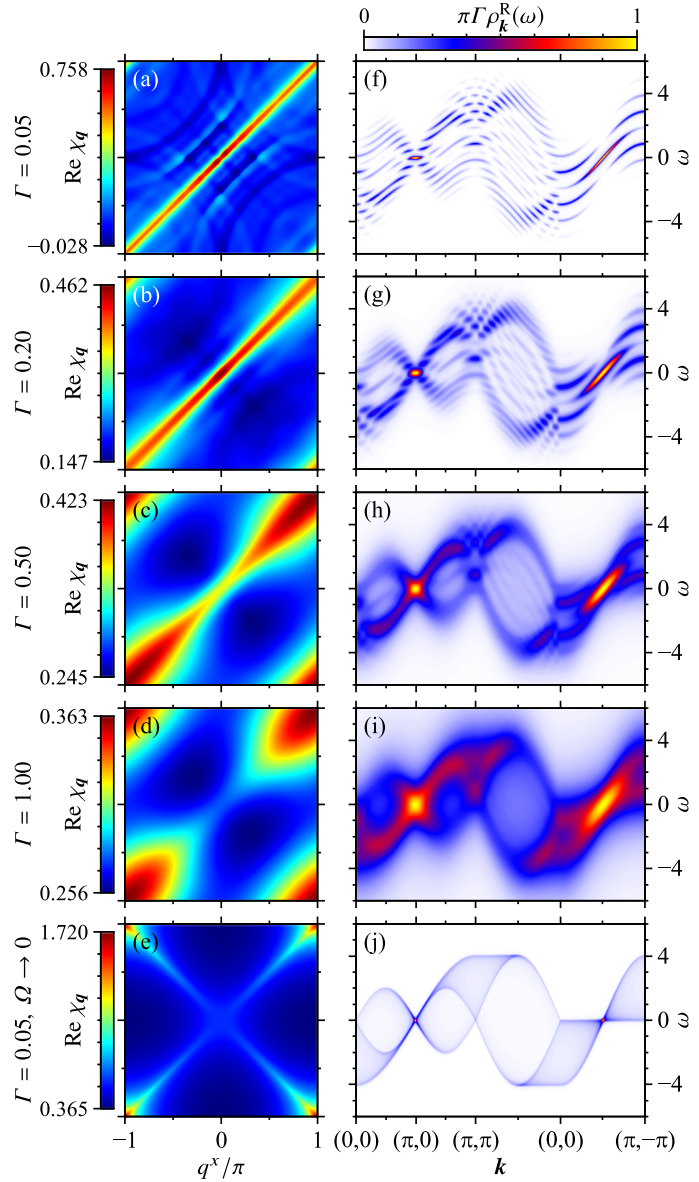


図 6.7 感受率 (左列) と規格化されたスペクトル関数 (右列). 光の振幅は $A_0^x = A_0^y = \pi/2$ であり, 振動数は (a)–(d) および (f)–(i) において $\Omega = 0.5$, (e)(j) において $\Omega \rightarrow 0$ である. 系と熱浴の結合強度は上から順に $\Gamma = 0.05, 0.2, 0.5, 1, 0.05$. (e) は平衡状態の感受率であり, 図 6.1(d) と同一である. (j) は式 (6.31) において $N_p = 4096$ として得られた. (f)–(i) は $N_p = 40$ の結果である.

第 6.2.2 節で述べたように, 静的感受率 χ_q の Fourier 変換

$$\chi(\mathbf{r}) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{r}} \chi_{\mathbf{q}} \quad (6.65)$$

は相対位置ベクトル \mathbf{r} だけ離れた二つの磁性不純物間に働く RKKY 相互作用の大きさに比例する. 図 6.6 は $\Omega = 2$, $A_0^x = A_0^y = 0-1.6$ の直線偏光を印加した場合の $\chi(\mathbf{r})$ を示す. 電子密度が $n_e = 0.25$ の場合 [図 6.6(a)–6.6(e)], 平衡状態 [図 6.6(a)] では感受率は四回対称であり, 周期 $2\pi/(2k_F) \approx 2$ の振動を示す. 光照射下では χ_q の変化に対応して $\chi(\mathbf{r})$ の振動周期もわずかに変調され, 偏光方向と平行な方向に

は強磁性的な相関が発達することが分かる。 $A_0 \gtrsim 1.2$ の非常に大きな振幅に対しては $\chi(\mathbf{r})$ の振動は見られず、長距離の相関は減衰する。電子密度が $n_e = 1$ の場合 [図 6.6(f)–6.6(j)]、平衡状態 [図 6.6(f)] では完全ネスティングが存在するため、 $\langle 11 \rangle$ 方向には長距離まで反強磁性的相関が見られる。振幅の増加とともに $\chi_{\mathbf{q}}$ は図 6.5(a4) のような一次元的構造を示すことを反映して、 $\chi(\mathbf{r})$ は $\langle 1\bar{1} \rangle$ 方向に反強磁性的相関が残る。

この節の最後に、低振動数極限 ($\Omega \rightarrow 0$) を考える。第 6.2.1 節および第 6.2.2 節において議論したように、 $\Omega \rightarrow 0$ では Green 関数は式 (6.31) および (6.32) で与えられ、感受率は式 (6.46) のように平衡系の表式と一致する。ここでは $\Omega > \Gamma$ から $\Omega \lesssim \Gamma$ まで Γ を変化させることで感受率のクロスオーバーを見る。振幅を $A_0^x = A_0^y = \pi/2$ 、振動数を $\Omega = 0.5$ 、電子数密度を $n_e = 1$ とする。図 6.7(a)–6.7(d) および図 6.7(f)–6.7(i) はそれぞれ $\Gamma = 0.05$ – 1 の場合の感受率およびスペクトル関数を示す。図 6.7(j) は式 (6.31) において $N_p = 4096$ 、 $\Gamma = 0.05$ として計算されたスペクトル関数であり、図 6.7(e) は平衡状態の感受率 [図 6.1(d)] である。 $\Gamma = 0.05$ ($\ll \Omega$) の場合には各 Floquet バンドは互いに区別でき、感受率は図 6.5(a4) と同様の一次元的な特徴を示す。結合強度 Γ が増大するにつれて Floquet バンドは互いに融合し、連続スペクトルを形成する。 $\Gamma = 1$ ($> \Omega = 0.5$) の場合 [図 6.7(i)] には、 $\Omega \rightarrow 0$ の場合 [図 6.7(j)] と定性的によく似たスペクトル強度を示すことが分かる。このとき感受率は $\mathbf{q} = (0, 0)$ 付近の強度が相対的に減少し、 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ にピークを持つ構造へ近づく。この結果から、光振動数 Ω が系と熱浴の結合強度 Γ より十分小さい場合には時間平均された感受率が平衡系の感受率に近付くことが確かめられた。

6.3.2 一次元格子

続いて、一次元格子系の Floquet 状態における感受率を議論する。エネルギーバンドを

$$\varepsilon_k = -2 \cos k - \mu \quad (6.66)$$

と定義する。ここで最近接サイト間の電子遷移積分の絶対値を 1 とした。電子数密度は $n_e = 1$ ($\mu = 0$) のハーフフィリングとし、 $\Omega = 1$ の低振動数領域を考える。サイト数は $N = 1024$ とする。

感受率、運動量分布関数、およびスペクトル関数を図 6.8 に示す。 $n_e = 1$ の平衡状態 ($A_0 = 0$) では Fermi 波数は $k_F = \pi/2$ であり、 $k = k_F$ において $\rho_k^R(0)$ のピークと n_k の飛びが見られる。これに対応して、ネスティングベクトル $\mathbf{Q} = 2k_F = \pi$ において $\chi_{\mathbf{q}=\mathbf{Q}}$ が発散する。光照射下では 1-フォトン Floquet バンドに起因するピークがスペクトル関数に現れる。これらは振幅 A_0 が小さい場合には $k = \cos^{-1}(\pm 1/2) = \pi/2 \mp \pi/6$ に現れ、振幅の増大に伴って動的局在のために $k = \pi/2$ から離れていく。 $A_0 \leq 0.4$ では $q = \pi$ の感受率は減少し、 $q = 5\pi/6$ と $q = 2\pi/3$ では上昇する。

光照射下において感受率にピークが現れる波数 $q = 5\pi/6$ および $q = 2\pi/3$ は、それぞれ“Floquet バンド間”ネスティングベクトルおよび“Floquet サイドバンド内”ネスティングベクトルに対応することが以下のようにして明らかになる。図 6.8(d) は、 $A_0 = 0.2$ として式 (6.42) から計算された数値的に厳密な感受率 (破線) と式 (6.57) の近似的表式から計算された感受率 (太線) を示しており、両者は良い一致を示す*4。式 (6.58)–(6.60) の χ^{base} , χ^{intra} , χ^{inter} はそれぞれ赤色実線、青色点線、緑色一点鎖線で示されており、 $q = 5\pi/6$ のピークは χ^{inter} 、 $q = 2\pi/3$ のピークは χ^{intra} によるものであることが分かる。波数 $q/\pi = 1, 0.83, 0.67$ における感受率 $\chi_{\mathbf{q}}$ を振幅 A_0 の関数としてプロットしたものが図 6.8(e) である。

*4 波数 $q = 0$ 付近の不一致は計算方法の違いに起因する。数値的に厳密な感受率 [式 (6.42)] は高速 Fourier 変換により計算していることに対して、近似的表式に基づく感受率 (太線) は式 (6.57) を直接評価して得たものである。式 (6.58)–(6.60) は $q = 0$ において厳密に 0 になる。

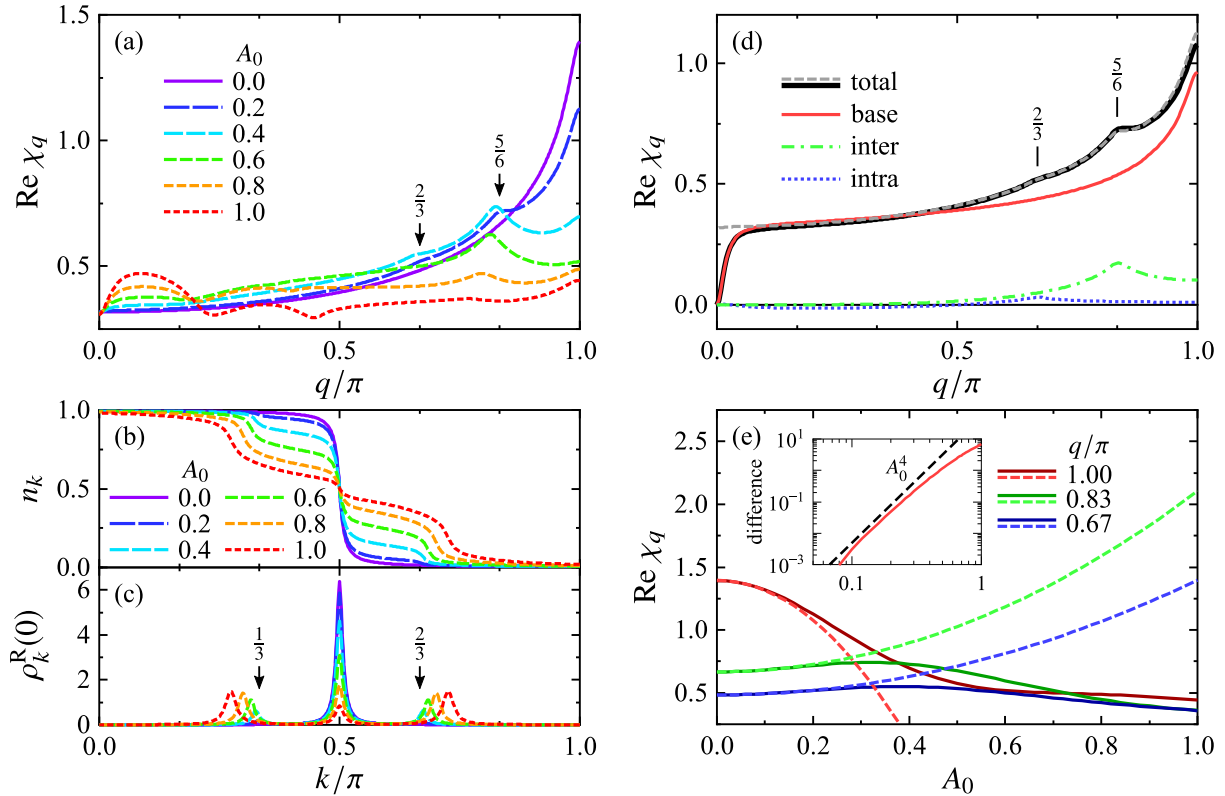


図 6.8 (a) 感受率, (b) 運動量分布関数, (c) $\omega = 0$ におけるスペクトル関数. 光振動数は $\Omega = 1$, 電子数密度は $n_e = 1$ である. (d) 式 (6.42) による数値的に厳密な感受率 (灰色破線) および近似的表式 (6.57) による感受率 (黒色太線). 式 (6.58)–(6.60) における $\chi^{\text{base}}, \chi^{\text{intra}}, \chi^{\text{inter}}$ の寄与をそれぞれ赤色実線, 青色点線, 緑色一点鎖線でプロットした. 光振幅は $A_0 = 0.2$ である. (e) 波数 $q/\pi = 1, 0.83, 0.67$ における感受率の振幅 A_0 依存性. 実線は数値的に厳密な値, 破線は近似的表式による値を示す. 内挿図は $q = \pi$ における両者の差を表し, 黒色破線は A_0^4 の傾きを示す.

式 (6.42) による数値的に厳密な感受率を実線, 近似的表式 (6.57) による感受率を破線で示す. $A_0 \leq 0.2$ の領域では良い一致が見られる. 内挿図は $q = \pi$ における両者の差を示しており, これが A_0^4 に比例することが分かる.

光照射下の感受率に現れるピークの起源を明らかにするために, より簡単化された感受率の表式を導く. 一次元系を考え, 十分大きい q に対して $\mathcal{A}_k = \pm v_F A_0 / \Omega = \mp \mathcal{A}_{k+q}$ が定数と見なせるものとする*5. このとき式 (6.58)–(6.60) は

$$\chi_q^{\text{base}}(\omega) = \left(1 - \frac{5}{2} \mathcal{A}_F^2\right) \chi_q^{(0)}(\omega), \quad (6.67)$$

$$\chi_q^{\text{intra}}(\omega) = \frac{\mathcal{A}_F^2}{4} \left[\chi_q^{(0)}(\omega) \Big|_{\mu \rightarrow \mu - \Omega} + \chi_q^{(0)}(\omega) \Big|_{\mu \rightarrow \mu + \Omega} \right], \quad (6.68)$$

$$\chi_q^{\text{inter}}(\omega) = \mathcal{A}_F^2 \left[\chi_q^{(0)}(\omega + \Omega) + \chi_q^{(0)}(\omega - \Omega) \right] \quad (6.69)$$

となる. ここで $\mathcal{A}_F = v_F A_0 / \Omega$ と定義した. $\chi_q^{(0)}(\omega)$ は高振動数極限 ($\Omega \rightarrow \infty$) における感受率 [式 (6.45)] である. χ^{inter} の重みは χ^{intra} よりも 4 倍大きい, これは図 6.8(d) の結果とも整合する. これらの式 (6.67)–(6.69) に基づいて, 感受率に寄与する電子正孔対励起の過程を模式的に示したものが図 6.9 で

*5 一方, 式 (6.60) は因子 $(\mathcal{A}_{k+q} - \mathcal{A}_k)^2$ を含むため, $\mathcal{A}_k \approx \mathcal{A}_{k+q}$ となるような小さい $\|q\|$ に対しては $\chi_q^{\text{inter}} \approx 0$ となる.

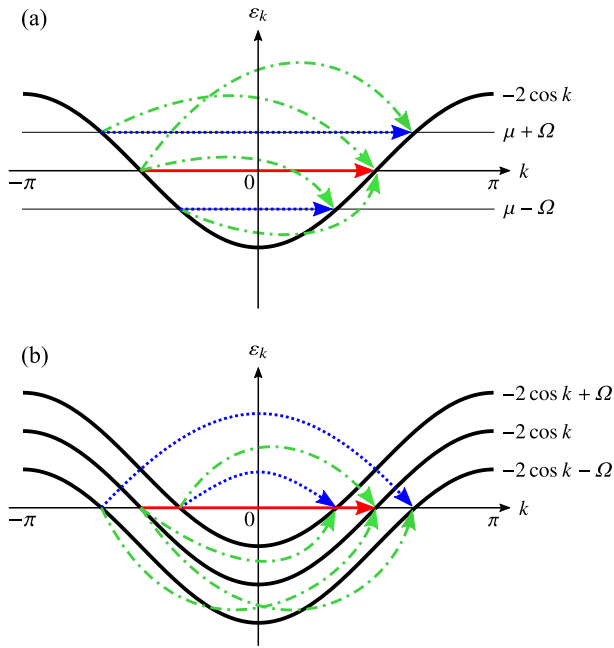


図 6.9 (a) エネルギーバンド図. $\chi^{\text{base}}, \chi^{\text{intra}}, \chi^{\text{inter}}$ に対応する電子正孔対励起の模式図をそれぞれ赤色実線矢印, 青色点線矢印, 緑色一点鎖線矢印で示す. (b) Floquet バンド描像に基づく解釈. χ^{intra} は 1-フォトン Floquet サイドバンド内の電子正孔対励起, χ^{inter} は 0-フォトン Floquet バンドと 1-フォトン Floquet サイドバンド間の電子正孔対励起に対応する.

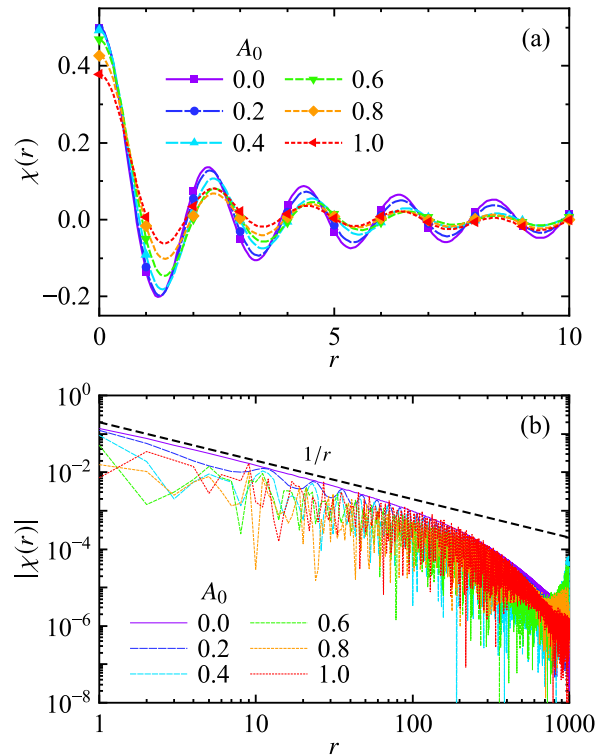


図 6.10 実空間における感受率 $\chi(r)$. (a) 線形スケール, (b) 対数スケール. (a) におけるシンボルは格子定数の整数倍の r における $\chi(r)$ を示し, 曲線は式 (6.65) を r の連続関数と見なしてプロットしたもの. (b) における黒色破線は $1/r$ の傾きを示す. 光振動数は $\Omega = 1$.

ある. 式 (6.68) の χ^{intra} は化学ポテンシャルが $\pm\Omega$ だけシフトされた二つの $\chi_q^{(0)}$ から成り, Floquet サイドバンド内の電子正孔対励起を表す. 一方, 式 (6.69) の χ^{inter} は $\chi_q^{(0)}(\omega + \Omega)$ と $\chi_q^{(0)}(\omega - \Omega)$ を含むことから, Floquet バンド間の電子正孔対励起に対応するものと解釈できる.

最後に, 実空間における感受率 [式 (6.65)] について議論する. ここでは熱浴との結合強度を $\Gamma = 0.005$ とする. このとき電子の平均自由行程は $\ell = v_F/\Gamma = 400$ と見積もられる. 長距離の振舞いを議論するためにサイト数を $N = 2048$ ($\gg \ell$) とする^{*6}. 振幅 $A_0 = 0-1$ に対して $\chi(r)$ をプロットしたものが図 6.10 である. 平衡状態 ($A_0 = 0$) では $\chi(r)$ は周期 $2\pi/(2k_F) = 2$ で振動し, 長距離では $1/r$ に比例して減衰する. 光照射下では, 感受率 χ_q に Floquet バンド間のネスティングに起因するピークが現れることを反映して $\chi(r)$ の振動はわずかに変調される. 一方で長距離の冪依存性は $\chi(r) \sim 1/r$ のまま不変であるが, これは一次元系かつ $n_c = 1$ であるために完全ネスティング条件が保たれるためであると考えられる.

^{*6} $r \geq \ell$ の領域では $\chi(r)$ は指数関数的に減衰する.

6.4 まとめ

本章では光照射下の定常状態（Floquet 状態）におけるスピン・電荷感受率を Floquet Green 関数法を用いて解析した。模型として熱浴と結合した単一バンドの自由電子系を採用した。以下のことが明らかになった。

- Floquet Green 関数法に基づいて、Floquet 状態におけるスピン感受率と電荷感受率の一般的表式 (6.42) を導出した。低振動数極限 ($\Omega \rightarrow 0$) では時間平均された感受率は平衡系の感受率に一致すること、ならびに高振動数極限 ($\Omega \rightarrow \infty$) では平衡系の表式におけるエネルギーバンド $\varepsilon_{\mathbf{k}}$ がその時間平均 $\varepsilon_{0,\mathbf{k}}$ に置き換わることを示した。
- Floquet 状態における感受率について、そのベクトルポテンシャル振幅 A_0 に関する級数展開を行い、 A_0 の二次までの近似的表式 (6.57)–(6.60) を得た。 A_0^2 に比例する補正項は $\chi^{\text{base}}, \chi^{\text{intra}}, \chi^{\text{inter}}$ の三種類に分類できることを示した。すなわち、0-フォトンバンド内の電子正孔対励起を表す χ^{base} 、1-フォトンバンド内の電子正孔対励起を表す χ^{intra} 、0-フォトンバンドと 1-フォトンバンド間の電子正孔対励起を表す χ^{inter} である。
- 第 6.3 節では二次元正方格子ならびに一次元正方格子を考え、静的感受率 $\chi_{\mathbf{q}}$ について数値的に解析した。高振動数領域 ($\Omega \rightarrow \infty$) では動的局在による感受率の上昇が確認された。低振動数領域では非熱的な電子分布 $n_{\mathbf{k}}$ による新たな構造が感受率に現れることを見出し、これが Floquet バンド間のネスティングを考えることで理解できることを示した。
- 電子数密度 $n_c = 0.25$ の二次元正方格子の場合、図 6.4(a4) や 6.6(e) に示されるように、高強度の光照射下では反強磁性よりもむしろ強磁性的な相関が発達することが見出された。これは第 5 章において議論した二重交換模型の強磁性金属状態と異なり、常磁性金属状態では Stoner 励起（電子正孔対励起）のエネルギーギャップが消失することに起因すると考えられる。

第 7 章

結論

本研究では強相関遍歴磁性体における光誘起スピンダイナミクスを明らかにすることを目的とした。二重交換模型および自由電子模型を対象として、厳密対角化法や Floquet Green 関数法等を用いて実時間ダイナミクスならびに光誘起定常状態の解析を行い、以下のことを明らかにした。

遍歴強磁性体における光誘起反強磁性転移（第 3 章）

遍歴強磁性を記述する模型の一つである二重交換模型を採用し、光誘起実時間ダイナミクスの数値計算を行った。模型のハミルトニアンは伝導電子の運動項ならびに伝導電子と局在スピン（磁気モーメント）間の Hund 結合項のみを含み、反強磁性的相互作用をあらわに含まない。強磁性金属状態に対して高強度の連続波やパルス光を照射することで反強磁性絶縁体状態が実現することが見出された。反強磁性定常状態においては下部バンド内の電子占有数がほぼ一様な分布を示し、これにより反強磁性状態が強磁性状態よりもエネルギー的に“安定”となる。強磁性秩序が消失するまでの時間はベクトルポテンシャル振幅 F_0/Ω の関数として表され、閾値振幅が存在する。一方で、反強磁性状態が実現するまでの過渡ダイナミクスは振幅 F_0/Ω や Gilbert 減衰定数 α に対して非単調な振舞いを示す。

光誘起過渡ダイナミクスにおけるトポロジカルな磁気構造の生成（第 4 章）

第 3 章で見出された光誘起反強磁性転移の過渡ダイナミクスについて、スカラーカイラリティやベクトルカイラリティを中心として解析を行った。強磁性秩序の消失後、一様なベクトルカイラリティならびに副格子毎に定義される巻き付き数（交替スカラーカイラリティ）が有限の値を示し、これが消失した後に完全な反強磁性状態が実現することを見出した。巻き付き数は副格子毎に互いに逆符号の整数値を取り、トポロジカルな磁気欠陥の存在が確認された。反強磁性定常状態が実現するまでの時間は強磁性初期状態における局在スピんに導入された微小な揺らぎに大きく依存する。カーネル多項式法等を用いたクエンチダイナミクスの解析を併せて行い、同様に過渡的な磁気欠陥の出現が確認された。

光誘起反強磁性転移の微視的機構（第 5 章）

上記の二重交換系における光誘起反強磁性転移の微視的機構を明らかにするため、光照射下の強磁性金属状態における磁気励起スペクトルを Floquet Green 関数法と多体摂動論を用いて調べた。二次元正方格子における解析の結果、光強度の増大とともに波数 $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ のマグノンのエネルギーがソフト化すること、すなわち反強磁性不安定性が誘起されることを見出した。光照射下では下部（メジャースピン）バンドの伝導電子の運動量分布関数が一様な分布に近づき、主に $\mathbf{q} = (\pi, \pi)$ において低エネルギーの Stoner 励起が増強されることで上記の不安定性が生じると解釈される。マグノンのソフト化による反強

磁性不安定性は、実時間ダイナミクスの数値計算により得られた閾値的振舞い [図 3.2(e)] と整合するものである。

光照射下の定常状態におけるスピン・電荷感受率 (第6章)

第3-5章で議論した強結合領域の二重交換系に対して、弱結合領域からのアプローチとして相互作用のない電子系の常磁性金属状態を考え、Floquet Green 関数法を用いて光照射下の Floquet 状態におけるスピン・電荷感受率について議論した。感受率の一般的表式ならびに光振幅に関する最低次の補正項を導出した。これに基づいて、二次元正方格子および一次元正方格子について感受率を数値的に評価した。光振動数が電子のバンド幅よりも遥かに大きい領域では、動的局在によるバンド幅の減少のために静的感受率が増大する。一方、光振動数がバンド幅と同程度以下に小さい場合には複数の Floquet バンドが“Fermi 面”を持ち、感受率にはこれらの“ネスティングベクトル”に対応する波数に新たなピーク構造が現れる。

以上により、強相関遍歴磁性体における高強度の光照射により誘起されるスピンドイナミクスや定常状態の性質が明らかになった。そこでは光の振幅や振動数、および偏光状態に依存した熱平衡状態とは異なる非熱的電子分布の存在が重要である。これは Floquet 有効ハミルトニアンから得られるエネルギーバンド構造だけでは理解することができない性質であり、今後は非熱的電子分布や多体効果の観点からの新たな研究の展開が考えられる。

補遺 A

感受率の近似的表式の導出

式 (6.24) で定義されるユニタリ行列 $\Lambda_{\mathbf{k}}$ を外場の振幅の大きさ $A_0 = \|\mathbf{A}_0\|$ について二次まで展開し^{*1}, 第 6.2.3 節に示した感受率の近似的表式 (6.57)–(6.60) を導く. ここでは直線偏光を考え, ベクトルポテンシャルを

$$\mathbf{A}(t) = A_0 \sin \Omega t, \quad A_0 = A_0 \mathbf{a} \quad (\text{A.1})$$

と表す. ただし \mathbf{a} は偏光方向を表す定ベクトルであり, A_0 に依存しない. 時刻 t におけるエネルギーバンドは $\varepsilon_{\mathbf{k}}(t) = \varepsilon_{\mathbf{k}-\mathbf{A}(t)}$ と表せる. 表記を簡単にするため, 誤解の恐れのない限り $\Lambda_{\mathbf{k}}$ の添字 \mathbf{k} を省略する. Λ の一次の微係数は,

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial \varepsilon_{0,\mathbf{k}}}{\partial A_0} \right|_{A_0=0} &= \left. \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dz}{2\pi} \frac{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}-A_0 \mathbf{a} \sin z}}{\partial A_0} \right|_{A_0=0} \\ &= \left. \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dz}{2\pi} \frac{\partial (\mathbf{k} - A_0 \mathbf{a} \sin z)}{\partial A_0} \frac{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}-A_0 \mathbf{a} \sin z}}{\partial (\mathbf{k} - A_0 \mathbf{a} \sin z)} \right|_{A_0=0} \\ &= (-\mathbf{a} \mathbf{v}_{\mathbf{k}}) \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dz}{2\pi} \sin z \\ &= 0 \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

であることから

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial \Lambda_{mn}}{\partial A_0} \right|_{A_0=0} &= \left. \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} \frac{\partial}{\partial A_0} \exp \left[\frac{1}{i\Omega} \int_0^x dz (\varepsilon_{\mathbf{k}-A_0 \mathbf{a} \sin z} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) \right] \right|_{A_0=0} \\ &= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} \frac{1}{i\Omega} \int_0^x dz' [\mathbf{v}_{\mathbf{k}} \cdot (-\mathbf{a} \sin z')] \\ &= -\frac{\mathbf{v}_{\mathbf{k}} \mathbf{a}}{i\Omega} \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} (1 - \cos x) \\ &= -\frac{\mathbf{v}_{\mathbf{k}} \mathbf{a}}{i\Omega} \left[\delta_{mn} - \frac{\delta_{m,n-1} + \delta_{m,n+1}}{2} \right] \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

と計算でき, これより

$$\begin{aligned} \Lambda_{mn} &= \Lambda_{mn}|_{A_0=0} + \left. \frac{\partial \Lambda_{mn}}{\partial A_0} \right|_{A_0=0} A_0 + O(A_0^2) \\ &= \delta_{mn} - \frac{\mathbf{v}_{\mathbf{k}} \mathbf{a}}{i\Omega} \left(\delta_{mn} - \frac{\delta_{m,n-1} + \delta_{m,n+1}}{2} \right) A_0 + O(A_0^2) \end{aligned} \quad (\text{A.4})$$

^{*1} 時間平均されたエネルギーバンド $\varepsilon_{0,\mathbf{k}}$ も振幅 A_0 に依存しており, その最低次の補正項は A_0^2 に比例する. 一方, 以下の導出から示唆されるように, Λ の級数展開を制御する無次元変数は A_0 ではなく $\mathcal{A}_{\mathbf{k}} = \mathbf{v}_{\mathbf{k}} \mathbf{A}_0 / \Omega$ と考えるべきである. そのため, ここでは $\varepsilon_{0,\mathbf{k}}$ の A_0 に関する展開については行わない.

となる。これは

$$\begin{aligned}
\sum_l \Lambda_{ml} \Lambda_{nl}^* &= \sum_l \left[\delta_{ml} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{a}}{i\Omega} \left(\delta_{ml} - \frac{\delta_{m,l-1} + \delta_{m,l+1}}{2} \right) A_0 \right] \left[\delta_{nl} + \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{a}}{i\Omega} \left(\delta_{nl} - \frac{\delta_{n,l-1} + \delta_{n,l+1}}{2} \right) A_0 \right] + O(A_0^2) \\
&= \sum_l \delta_{ml} \delta_{nl} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{a} A_0}{i\Omega} \sum_l \left[\left(\delta_{ml} - \frac{\delta_{m,l-1} + \delta_{m,l+1}}{2} \right) \delta_{nl} - \delta_{ml} \left(\delta_{nl} - \frac{\delta_{n,l-1} + \delta_{n,l+1}}{2} \right) \right] + O(A_0^2) \\
&= \delta_{mn} + O(A_0^2)
\end{aligned} \tag{A.5}$$

のように A_0 の一次までの範囲でユニタリである。上の展開の結果を用いると、遅延 Green 関数は

$$\begin{aligned}
(G_{\mathbf{k}}^R)_{mn}(\omega) &= \sum_l \frac{\Lambda_{ml}^* \Lambda_{nl}}{\omega + l\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} \\
&\approx \frac{\delta_{mn}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{a} A_0}{i\Omega} \sum_l \frac{\left(\delta_{ml} - \frac{\delta_{m,l-1} + \delta_{m,l+1}}{2} \right) \delta_{nl} - \delta_{ml} \left(\delta_{nl} - \frac{\delta_{n,l-1} + \delta_{n,l+1}}{2} \right)}{\omega + l\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} \\
&= \frac{\delta_{mn}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{a} A_0}{i\Omega} \left[\frac{\delta_{mn} - \frac{\delta_{m,n-1} + \delta_{m,n+1}}{2}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} - \frac{\delta_{nm} - \frac{\delta_{n,m-1} + \delta_{n,m+1}}{2}}{\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} \right] \\
&= \frac{\delta_{mn}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} - (\delta_{m,n+1} + \delta_{m,n-1}) \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{a} A_0}{2i\Omega} \left[\frac{1}{\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} - \frac{1}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta} \right]
\end{aligned} \tag{A.6}$$

と表せる。同様に

$$\begin{aligned}
\Lambda_{ml_1} \Lambda_{l_2 l_1}^* \Lambda_{l_2 l_3} \Lambda_{nl_3}^* &= \left[\delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2i\Omega} \left\{ \delta_{ml_1} (\delta_{l_2, l_1-1} + \delta_{l_2, l_1+1}) - (\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}) \delta_{l_2 l_1} \right\} \right] \\
&\quad \times \left[\delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2i\Omega} \left\{ \delta_{l_2 l_3} (\delta_{n, l_3-1} + \delta_{n, l_3+1}) - (\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}) \delta_{nl_3} \right\} \right] \\
&= \delta_{ml_1} \delta_{l_1 l_2} \delta_{l_2 l_3} \delta_{l_3 n} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2i\Omega} \left[\delta_{ml_1} \delta_{l_1 l_2} \left\{ \delta_{l_2 l_3} (\delta_{l_3-1, n} + \delta_{l_3+1, n}) - (\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}) \delta_{l_3 n} \right\} \right. \\
&\quad \left. + \left\{ \delta_{ml_1} (\delta_{l_1-1, l_2} + \delta_{l_1+1, l_2}) - (\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}) \delta_{l_1 l_2} \right\} \delta_{l_2 l_3} \delta_{l_3 n} \right] + O(A_0^2)
\end{aligned} \tag{A.7}$$

のように展開すると、lesser Green 関数は次のようになる。

$$\begin{aligned}
(G_{\mathbf{k}}^<)_{mn}(\omega) &= \sum_{l_1 l_2 l_3} \frac{2i\eta f(\omega + l_2\Omega) \Lambda_{ml_1} \Lambda_{l_2 l_1}^* \Lambda_{l_2 l_3} \Lambda_{nl_3}^*}{(\omega + l_1\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta)(\omega + l_3\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} - i\eta)} \\
&\approx \frac{2i\eta f(\omega + n\Omega) \delta_{mn}}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}})^2 + \eta^2} \\
&\quad - \frac{2i\eta \mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2i\Omega} \left[\frac{f(\omega + m\Omega) (\delta_{m-1, n} + \delta_{m+1, n})}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}})^2 + \eta^2} - \frac{f(\omega + n\Omega) (\delta_{m, n-1} + \delta_{m, n+1})}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}})^2 + \eta^2} \right. \\
&\quad \left. - \frac{f(\omega + m\Omega) (\delta_{m, n-1} + \delta_{m, n+1})}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} - i\eta)} + \frac{f(\omega + n\Omega) (\delta_{m-1, n} + \delta_{m+1, n})}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,\mathbf{k}} - i\eta)} \right].
\end{aligned} \tag{A.8}$$

以上のように、振幅 A_0 の一次までの範囲では時間平均、すなわち $m = n$ の対角成分は A_0 に依存しない。また、感受率の表式に含まれる $G^R G^<$ や $G^< G^A$ についても、対角成分は $O(A_0^1)$ の補正を受けない。したがって、これらの時間平均の補正をみるためには Λ について A_0 の二次まで考える必要がある。二

次の微係数は

$$\begin{aligned}
\frac{\partial^2 \varepsilon_{\mathbf{k}-0\mathbf{a} \sin z'}}{\partial A_0^2} &= \frac{\partial}{\partial A_0} \frac{\partial(\mathbf{k}-0\mathbf{a} \sin z')}{\partial A_0} \cdot \frac{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}-0\mathbf{a} \sin z'}}{\partial(\mathbf{k}-0\mathbf{a} \sin z')} \\
&= \frac{\partial}{\partial A_0} \sum_{\alpha} (-a^{\alpha} \sin z') v_{\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z'}^{\alpha} \\
&= \sum_{\alpha} (-a^{\alpha} \sin z') \frac{\partial(\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z')}{\partial A_0} \cdot \frac{\partial v_{\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z'}^{\alpha}}{\partial(\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z')} \\
&= \sum_{\alpha\beta} (-a^{\alpha} \sin z') (-a^{\beta} \sin z') \tau_{\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z'}^{\alpha\beta} \quad \left(\tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta} = \frac{\partial^2 \varepsilon_{\mathbf{k}}}{\partial k_{\beta} \partial k_{\alpha}} \right) \tag{A.9}
\end{aligned}$$

および

$$\left. \frac{\partial^2 \varepsilon_{0,\mathbf{k}}}{\partial A_0^2} \right|_{A_0=0} = \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dz}{2\pi} \left. \frac{\partial^2 \varepsilon_{\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z}}{\partial A_0^2} \right|_{A_0=0} = \sum_{\alpha\beta} (-a^{\alpha}) (-a^{\beta}) \tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta} \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dz}{2\pi} \sin^2 z = \frac{a^{\alpha} a^{\beta} \tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta}}{2} \tag{A.10}$$

を用いて

$$\begin{aligned}
\left. \frac{\partial^2 \Lambda_{mn}}{\partial A_0^2} \right|_{A_0=0} &= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} \left. \frac{\partial^2}{\partial A_0^2} \exp \left[\frac{1}{i\Omega} \int_0^x dz (\varepsilon_{\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z} - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) \right] \right|_{A_0=0} \\
&= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} \exp \left(\frac{1}{i\Omega} \int_0^x dz (\varepsilon_{\mathbf{k}}(z/\Omega) - \varepsilon_{0,\mathbf{k}}) \right) \\
&\quad \times \left[\frac{1}{(i\Omega)^2} \left\{ \int_0^x dz' \left(\frac{\partial \varepsilon_{\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z'}}{\partial A_0} - \frac{\partial \varepsilon_{0,\mathbf{k}}}{\partial A_0} \right) \right\}^2 + \frac{1}{i\Omega} \int_0^x dz' \left(\frac{\partial^2 \varepsilon_{\mathbf{k}-A_0\mathbf{a} \sin z'}}{\partial A_0^2} - \frac{\partial^2 \varepsilon_{0,\mathbf{k}}}{\partial A_0^2} \right) \right] \Big|_{A_0=0} \\
&= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} \left[\frac{1}{(i\Omega)^2} \left(\int_0^x dz' (-\mathbf{v}_{\mathbf{k}}\mathbf{a}) \sin z' \right)^2 + \sum_{\alpha\beta} \frac{a^{\alpha} a^{\beta} \tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta}}{i\Omega} \int_0^x dz' \left(\sin^2 z' - \frac{1}{2} \right) \right] \\
&= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} \left[\left(\frac{-\mathbf{v}_{\mathbf{k}}\mathbf{a}}{i\Omega} \right)^2 (1 - \cos x)^2 - \frac{a^{\alpha} a^{\beta} \tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta}}{i\Omega} \frac{\sin x \cos x}{2} \right] \\
&= \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dx}{2\pi} e^{i(m-n)x} \left[\left(\frac{-\mathbf{v}_{\mathbf{k}}\mathbf{a}}{i\Omega} \right)^2 \left\{ \frac{3}{2} - (e^{ix} + e^{-ix}) + \frac{e^{2ix} + e^{-2ix}}{4} \right\} - \frac{a^{\alpha} a^{\beta} \tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta}}{i\Omega} \frac{e^{2ix} - e^{-2ix}}{8i} \right] \\
&= \left(\frac{\mathbf{v}_{\mathbf{k}}\mathbf{a}}{i\Omega} \right)^2 \left[\frac{3}{2} \delta_{mn} - (\delta_{m-n,-1} + \delta_{m-n,1}) + \frac{\delta_{m-n,-2} + \delta_{m-n,2}}{4} \right] + \frac{a^{\alpha} a^{\beta} \tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta}}{8\Omega} (\delta_{m-n,-2} - \delta_{m-n,2}) \tag{A.11}
\end{aligned}$$

となる。一次の微係数と合わせて、 Λ_{mn} は

$$\begin{aligned}
\Lambda_{mn} &= \Lambda_{mn}|_{A_0=0} + \left. \frac{\partial \Lambda_{mn}}{\partial A_0} \right|_{A_0=0} A_0 + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \Lambda_{mn}}{\partial A_0^2} \right|_{A_0=0} A_0^2 + \mathcal{O}(A_0^3) \\
&= \delta_{mn} - \frac{\mathbf{v}_{\mathbf{k}}\mathbf{A}_0}{i\Omega} \left(\delta_{mn} - \frac{\delta_{m,n-1} + \delta_{m,n+1}}{2} \right) \\
&\quad + \left(\frac{\mathbf{v}_{\mathbf{k}}\mathbf{A}_0}{i\Omega} \right)^2 \left(\frac{3}{4} \delta_{mn} - \frac{\delta_{m,n-1} + \delta_{m,n+1}}{2} + \frac{\delta_{m,n-2} + \delta_{m,n+2}}{8} \right) + \frac{A_0^{\alpha} A_0^{\beta} \tau_{\mathbf{k}}^{\alpha\beta}}{16\Omega} (\delta_{m,n-2} - \delta_{m,n+2}) + \mathcal{O}(A_0^3) \tag{A.12}
\end{aligned}$$

と展開できる．ユニタリ性は A_0 について一次の範囲で既に確かめている．二次の項は

$$\begin{aligned}
& \sum_l \Lambda_{ml} \Lambda_{nl}^* \\
& \rightarrow - \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{i\Omega} \right)^2 \sum_l \left(\delta_{ml} - \frac{\delta_{m,l-1} + \delta_{m,l+1}}{2} \right) \left(\delta_{nl} - \frac{\delta_{n,l-1} + \delta_{n,l+1}}{2} \right) \\
& + \sum_l \left[\delta_{ml} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{-i\Omega} \right)^2 \left(\frac{3}{4} \delta_{nl} - \frac{\delta_{n,l-1} + \delta_{n,l+1}}{2} + \frac{\delta_{n,l-2} + \delta_{n,l+2}}{8} \right) + \delta_{ml} \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} (\delta_{n,l-2} - \delta_{n,l+2}) \right. \\
& \left. + \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{i\Omega} \right)^2 \left(\frac{3}{4} \delta_{ml} - \frac{\delta_{m,l-1} + \delta_{m,l+1}}{2} + \frac{\delta_{m,l-2} + \delta_{m,l+2}}{8} \right) \delta_{nl} + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} (\delta_{m,l-2} - \delta_{m,l+2}) \delta_{nl} \right] \\
& = \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left[\delta_{mn} - \frac{1}{2} (\delta_{m,l-1} + \delta_{m,n+1} + \delta_{n,m-1} + \delta_{n,m+1}) + \frac{1}{4} (\delta_{mn} + \delta_{m+1,n-1} + \delta_{m-1,n+1} + \delta_{mn}) \right] \\
& - \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left(\frac{3}{4} \delta_{mn} - \frac{\delta_{n,m-1} + \delta_{n,m+1}}{2} + \frac{\delta_{m-1,n+1} + \delta_{m+1,n-1}}{8} \right) + \frac{e^2 A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} (\delta_{n,m-2} - \delta_{n,m+2}) \\
& - \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left(\frac{3}{4} \delta_{mn} - \frac{\delta_{m,n-1} + \delta_{m,n+1}}{2} + \frac{\delta_{m+1,n-1} + \delta_{m-1,n+1}}{8} \right) + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} (\delta_{m,n-2} - \delta_{m,n+2}) \\
& = 0
\end{aligned} \tag{A.13}$$

となり，確かに Λ はユニタリ性を保つ．遅延 Green 関数の A_0 の二次の項は

$$\begin{aligned}
(G_k^R)_{mn}^{(2)}(\omega) & = \sum_l \frac{1}{\omega + l\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} \left[\frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \{ \delta_{ml} (\delta_{n,l-2} - \delta_{n,l+2}) + (\delta_{m,l-2} - \delta_{m,l+2}) \delta_{nl} \} \right. \\
& + \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left\{ \delta_{ml} \delta_{nl} - \frac{1}{2} (\delta_{ml} \delta_{n,l-1} + \delta_{ml} \delta_{n,l+1} + \delta_{m,l-1} \delta_{nl} + \delta_{m,l+1} \delta_{nl}) \right. \\
& + \frac{1}{4} (\delta_{m,l-1} \delta_{n,l-1} + \delta_{m,l-1} \delta_{n,l+1} + \delta_{m,l+1} \delta_{n,l-1} + \delta_{m,l+1} \delta_{n,l+1}) \\
& - \delta_{ml} \left(\frac{3}{4} \delta_{nl} - \frac{\delta_{n,l-1} + \delta_{n,l+1}}{2} + \frac{\delta_{n,l-2} + \delta_{n,l+2}}{8} \right) \\
& \left. \left. - \left(\frac{3}{4} \delta_{ml} - \frac{\delta_{m,l-1} + \delta_{m,l+1}}{2} + \frac{\delta_{m,l-2} + \delta_{m,l+2}}{8} \right) \delta_{nl} \right\} \right] \\
& = \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left[\frac{-\delta_{mn}/2}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} + \frac{\delta_{mn}/4}{\omega + (n+1)\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} + \frac{\delta_{mn}/4}{\omega + (n-1)\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} \right] \\
& + \delta_{m-1,n+1} \left[\frac{\frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2}{\omega + (n+1)\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} - \frac{\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 - \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega}}{\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} - \frac{\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} \right] \\
& + \delta_{m+1,n-1} \left[\frac{\frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2}{\omega + (n-1)\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} - \frac{\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega}}{\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} - \frac{\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 - \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} \right]
\end{aligned} \tag{A.14}$$

と表される．時間平均は

$$(G_k^R)_{00}(\omega) = \frac{1 - \frac{1}{2} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2}{\omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} + \frac{\frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2}{\omega + \Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} + \frac{\frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2}{\omega - \Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta} \tag{A.15}$$

となる．スペクトル強度が非負であるために $(\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0)^2 \leq 2\Omega^2$ である必要がある．

Lesser Green 関数についても同様に計算できる。ユニタリ行列の積については

$$\begin{aligned}
& \Lambda_{ml_1} \Lambda_{l_2 l_1}^* \Lambda_{l_2 l_3} \Lambda_{nl_3}^* \\
&= \left[\delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2i\Omega} \left\{ \delta_{ml_1} (\delta_{l_2, l_1-1} + \delta_{l_2, l_1+1}) - (\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}) \delta_{l_2 l_1} \right\} \right. \\
&+ \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left(\delta_{ml_1} - \frac{\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}}{2} \right) \left(\delta_{l_2 l_1} - \frac{\delta_{l_2, l_1-1} + \delta_{l_2, l_1+1}}{2} \right) \\
&- \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \delta_{ml_1} \left(\frac{3}{4} \delta_{l_2 l_1} - \frac{\delta_{l_2, l_1-1} + \delta_{l_2, l_1+1}}{2} + \frac{\delta_{l_2, l_1-2} + \delta_{l_2, l_1+2}}{8} \right) + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \delta_{ml_1} (\delta_{l_2, l_1-2} - \delta_{l_2, l_1+2}) \\
&- \left. \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left(\frac{3}{4} \delta_{ml_1} - \frac{\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}}{2} + \frac{\delta_{m, l_1-2} + \delta_{m, l_1+2}}{8} \right) \delta_{l_2 l_1} + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} (\delta_{m, l_1-2} - \delta_{m, l_1+2}) \delta_{l_2 l_1} \right] \\
&\times \left[\delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} - \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2i\Omega} \left\{ \delta_{l_2 l_3} (\delta_{n, l_3-1} + \delta_{n, l_3+1}) - (\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}) \delta_{nl_3} \right\} \right. \\
&+ \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left(\delta_{l_2 l_3} - \frac{\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}}{2} \right) \left(\delta_{nl_3} - \frac{\delta_{n, l_3-1} + \delta_{n, l_3+1}}{2} \right) \\
&- \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \delta_{l_2 l_3} \left(\frac{3}{4} \delta_{nl_3} - \frac{\delta_{n, l_3-1} + \delta_{n, l_3+1}}{2} + \frac{\delta_{n, l_3-2} + \delta_{n, l_3+2}}{8} \right) + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \delta_{l_2 l_3} (\delta_{n, l_3-2} - \delta_{n, l_3+2}) \\
&- \left. \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left(\frac{3}{4} \delta_{l_2 l_3} - \frac{\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}}{2} + \frac{\delta_{l_2, l_3-2} + \delta_{l_2, l_3+2}}{8} \right) \delta_{nl_3} + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} (\delta_{l_2, l_3-2} - \delta_{l_2, l_3+2}) \delta_{nl_3} \right] \\
&= \delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} \delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} \\
&- \frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2i\Omega} \left[\left\{ \delta_{ml_1} (\delta_{l_2, l_1-1} + \delta_{l_2, l_1+1}) - (\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}) \delta_{l_2 l_1} \right\} \delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} \right. \\
&+ \left. \delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} \left\{ \delta_{l_2 l_3} (\delta_{n, l_3-1} + \delta_{n, l_3+1}) - (\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}) \delta_{nl_3} \right\} \right] \\
&+ \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2i\Omega} \right)^2 \left[\delta_{ml_1} (\delta_{l_2, l_1-1} + \delta_{l_2, l_1+1}) - (\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}) \delta_{l_2 l_1} \right] \\
&\times \left[\delta_{l_2 l_3} (\delta_{n, l_3-1} + \delta_{n, l_3+1}) - (\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}) \delta_{nl_3} \right] \\
&+ \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left[\left(\delta_{ml_1} - \frac{\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}}{2} \right) \left(\delta_{l_2 l_1} - \frac{\delta_{l_2, l_1-1} + \delta_{l_2, l_1+1}}{2} \right) \delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} \right. \\
&- \delta_{ml_1} \left(\frac{3}{4} \delta_{l_2 l_1} - \frac{\delta_{l_2, l_1-1} + \delta_{l_2, l_1+1}}{2} + \frac{\delta_{l_2, l_1-2} + \delta_{l_2, l_1+2}}{8} \right) \delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} \\
&- \left(\frac{3}{4} \delta_{ml_1} - \frac{\delta_{m, l_1-1} + \delta_{m, l_1+1}}{2} + \frac{\delta_{m, l_1-2} + \delta_{m, l_1+2}}{8} \right) \delta_{l_2 l_1} \delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} \\
&+ \delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} \left(\delta_{l_2 l_3} - \frac{\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}}{2} \right) \left(\delta_{nl_3} - \frac{\delta_{n, l_3-1} + \delta_{n, l_3+1}}{2} \right) \\
&- \delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} \delta_{l_2 l_3} \left(\frac{3}{4} \delta_{nl_3} - \frac{\delta_{n, l_3-1} + \delta_{n, l_3+1}}{2} + \frac{\delta_{n, l_3-2} + \delta_{n, l_3+2}}{8} \right) \\
&- \left. \delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} \left(\frac{3}{4} \delta_{l_2 l_3} - \frac{\delta_{l_2, l_3-1} + \delta_{l_2, l_3+1}}{2} + \frac{\delta_{l_2, l_3-2} + \delta_{l_2, l_3+2}}{8} \right) \delta_{nl_3} \right] \\
&+ \frac{e^2 A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \left[\delta_{ml_1} (\delta_{l_2, l_1-2} - \delta_{l_2, l_1+2}) \delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} + (\delta_{m, l_1-2} - \delta_{m, l_1+2}) \delta_{l_2 l_1} \delta_{l_2 l_3} \delta_{nl_3} \right. \\
&+ \left. \delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} \delta_{l_2 l_3} (\delta_{n, l_3-2} - \delta_{n, l_3+2}) + \delta_{ml_1} \delta_{l_2 l_1} (\delta_{l_2, l_3-2} - \delta_{l_2, l_3+2}) \delta_{nl_3} \right] \tag{A.16}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& - \frac{1}{8} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(3c)} + \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(2c)} \right\} - \frac{3}{4} \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(1a)} \\
& + \frac{1}{2} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m,n-1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(4d)} + \underbrace{\frac{\delta_{m,n+1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(5d)} \right\} - \frac{1}{8} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(2b)} \right. \\
& + \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(3b)} \left. \right\} + \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(1a)} - \frac{1}{2} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+m\Omega)}}_{(5a)} \right. \\
& + \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+m\Omega)}}_{(4a)} + \underbrace{\frac{\delta_{m,n-1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(4b)} + \underbrace{\frac{\delta_{m,n+1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(5b)} \left. \right\} \\
& + \frac{1}{4} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-(n+1)\Omega)}}_{(1e)} + \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-(n-1)\Omega)}}_{(2e)} + \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-(n+1)\Omega)}}_{(3d)} \right. \\
& + \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-(n-1)\Omega)}}_{(1f)} \left. \right\} - \frac{3}{4} \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(1a)} + \frac{1}{2} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+m\Omega)}}_{(5a)} \right. \\
& + \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+m\Omega)}}_{(4a)} \left. \right\} - \frac{1}{8} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+m\Omega)}}_{(2a)} + \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+m\Omega)}}_{(3a)} \right\} \\
& - \frac{3}{4} \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(1a)} + \frac{1}{2} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m,n-1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(4b)} + \underbrace{\frac{\delta_{m,n+1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(5b)} \right\} \\
& - \frac{1}{8} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(2c)} + \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(3c)} \right\} - \frac{1}{4} \left\{ \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+(m-1)\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-(n+1)\Omega)}}_{(3d)} \right. \\
& + \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+(n-1)\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-(n-1)\Omega)}}_{(1f)} - \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+(m-1)\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(1b)} - \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+(m-1)\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(3c)} \left. \right\} \\
& + \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+(n+1)\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-(n+1)\Omega)}}_{(1e)} + \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+(m+1)\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-(n-1)\Omega)}}_{(2e)} - \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+(m+1)\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(2c)} \\
& - \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+(m+1)\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(1b)} - \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+(n+1)\Omega)}{(z_++(n+1)\Omega)(z_-(n+1)\Omega)}}_{(1g)} - \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+(m+1)\Omega)}{(z_++(m+1)\Omega)(z_-(n-1)\Omega)}}_{(2f)} \\
& + \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+(m+1)\Omega)}{(z_++(m+1)\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(2d)} + \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+(n+1)\Omega)}{(z_++(n+1)\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(1c)} - \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+(m-1)\Omega)}{(z_++(m-1)\Omega)(z_-(n+1)\Omega)}}_{(3f)} \\
& - \left. \left. \left. \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+(n-1)\Omega)}{(z_++(n-1)\Omega)(z_-(n-1)\Omega)}}_{(1h)} + \underbrace{\frac{\delta_{mn}f(\omega+(n-1)\Omega)}{(z_++(n-1)\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(1d)} + \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+(m-1)\Omega)}{(z_++(m-1)\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(3e)} \right\} \right\}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \left[\underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(3c)} - \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(2c)} + \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(2b)} - \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(3b)} \right. \\
& \left. + \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+m\Omega)}}_{(3a)} - \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+m\Omega)}}_{(2a)} + \underbrace{\frac{\delta_{m+1,n-1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(2c)} - \underbrace{\frac{\delta_{m-1,n+1}f(\omega+m\Omega)}{(z_++m\Omega)(z_-+n\Omega)}}_{(3c)} \right] \quad (\text{A.18})
\end{aligned}$$

の全 62 項が現れる．各項は同じ δ_{mn} を持つものをアラビア数字，その中で同じ分母（極）を持つものをラテン文字でラベルしてある．一つ異なるインデックス間の行列要素は (4) と (5) でラベルされた 16 項であるが，これらは互いに打ち消す．対角成分 (1) のグループは δ_{mn} を含む 18 項が属し，これらは以下のように整理される．

$$(1a) = \left(1 - \frac{3}{4} - \frac{3}{4} + 1 - \frac{3}{4} - \frac{3}{4}\right) \times \frac{\delta_{mn}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)} = -\frac{\delta_{mn}f(\omega+n\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}, \quad (\text{A.19})$$

$$(1b) = \frac{\delta_{mn}}{4} \frac{f(\omega+(n+1)\Omega) + f(\omega+(n-1)\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+n\Omega)}, \quad (\text{A.20})$$

$$(1c) + (1d) = \frac{\delta_{mn}}{4} \frac{f(\omega+n\Omega) - f(\omega+(n+1)\Omega)}{(z_++(n+1)\Omega)(z_-+n\Omega)} + \frac{\delta_{mn}}{4} \frac{f(\omega+n\Omega) - f(\omega+(n-1)\Omega)}{(z_++(n-1)\Omega)(z_-+n\Omega)}, \quad (\text{A.21})$$

$$(1e) + (1f) = \frac{\delta_{mn}}{4} \frac{f(\omega+n\Omega) - f(\omega+(n+1)\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+(n+1)\Omega)} + \frac{\delta_{mn}}{4} \frac{f(\omega+n\Omega) - f(\omega+(n-1)\Omega)}{(z_++n\Omega)(z_-+(n-1)\Omega)}, \quad (\text{A.22})$$

$$(1g) + (1h) = \frac{\delta_{mn}}{4} \frac{f(\omega+(n+1)\Omega)}{(z_++(n+1)\Omega)(z_-+(n+1)\Omega)} + \frac{\delta_{mn}}{4} \frac{f(\omega+(n-1)\Omega)}{(z_++(n-1)\Omega)(z_-+(n-1)\Omega)}. \quad (\text{A.23})$$

したがって，lesser Green 関数の時間平均は

$$\begin{aligned}
(G_k^<)_{00}(\omega) &= \frac{2i\eta}{(\omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} \times \left[\left\{ 1 - \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \right\} f(\omega) + \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \frac{f(\omega + \Omega) + f(\omega - \Omega)}{4} \right] \\
&+ \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left[\frac{2i\eta f(\omega + \Omega)}{(\omega + \Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} + \frac{2i\eta f(\omega - \Omega)}{(\omega - \Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} \right] \\
&+ \frac{2i\eta}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left[\frac{f(\omega) - f(\omega + \Omega)}{(\omega + \Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} + \frac{f(\omega) - f(\omega - \Omega)}{(\omega - \Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right. \\
&\left. + \frac{f(\omega) - f(\omega + \Omega)}{(\omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + \Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} + \frac{f(\omega) - f(\omega - \Omega)}{(\omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega - \Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right] \quad (\text{A.24})
\end{aligned}$$

となる．

残りは $\delta_{m+1,n-1}$ と $\delta_{m-1,n+1}$ を含む $62 - (16 + 18) = 28$ 項であり， $\delta_{m+1,n-1}$ を含む項は次のように整理

される。

$$(2a) = - \left[\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \right] \frac{f(\omega + m\Omega)}{(z_+ + m\Omega)(z_- + m\Omega)}, \quad (\text{A.25})$$

$$(2b) = - \left[\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 - \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \right] \frac{f(\omega + n\Omega)}{(z_+ + n\Omega)(z_- + n\Omega)}, \quad (\text{A.26})$$

$$(2c) = \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \frac{2f(\omega + (m+1)\Omega) - f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{8(z_+ + m\Omega)(z_- + n\Omega)} + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{(z_+ + m\Omega)(z_- + n\Omega)}, \quad (\text{A.27})$$

$$(2d) + (2e) = \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left[\frac{f(\omega + n\Omega) - f(\omega + (m+1)\Omega)}{(z_+ + (m+1)\Omega)(z_- + n\Omega)} + \frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + (n-1)\Omega)}{(z_+ + m\Omega)(z_- + (n-1)\Omega)} \right], \quad (\text{A.28})$$

$$(2f) = \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \frac{f(\omega + (m+1)\Omega)}{(z_+ + (m+1)\Omega)(z_- + (n-1)\Omega)}. \quad (\text{A.29})$$

同様に, $\delta_{m-1, n+1}$ を含む項は以下のようにまとめられる。

$$(3a) = - \left[\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 - \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \right] \frac{f(\omega + m\Omega)}{(z_+ + m\Omega)(z_- + m\Omega)}, \quad (\text{A.30})$$

$$(3b) = - \left[\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 + \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \right] \frac{f(\omega + n\Omega)}{(z_+ + n\Omega)(z_- + n\Omega)}, \quad (\text{A.31})$$

$$(3c) = \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \frac{2f(\omega + (n+1)\Omega) - f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{8(z_+ + m\Omega)(z_- + n\Omega)} - \frac{A_0^\alpha A_0^\beta \tau_k^{\alpha\beta}}{16\Omega} \frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{(z_+ + m\Omega)(z_- + n\Omega)}, \quad (\text{A.32})$$

$$(3d) + (3e) = \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left[\frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + (n+1)\Omega)}{(z_+ + m\Omega)(z_- + (n+1)\Omega)} + \frac{f(\omega + n\Omega) - f(\omega + (m-1)\Omega)}{(z_+ + (m-1)\Omega)(z_- + n\Omega)} \right], \quad (\text{A.33})$$

$$(3f) = \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \frac{f(\omega + (m-1)\Omega)}{(z_+ + (m-1)\Omega)(z_- + (n+1)\Omega)}. \quad (\text{A.34})$$

ここまでの結果をまとめると, 遅延 Green 関数は以下のように展開される。

$$\begin{aligned} & (G_k^R)_{mn}(\omega) \\ &= \left[1 - \frac{1}{2} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \right] \frac{\delta_{mn}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} \\ &+ \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left[\frac{\delta_{mn}}{\omega + (n+1)\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} + \frac{\delta_{mn}}{\omega + (n-1)\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} \right] \\ &+ (\delta_{m, n+1} + \delta_{m, n-1}) \frac{i\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2\Omega} \left(\frac{1}{\omega + m\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} - \frac{1}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} \right) \\ &+ \delta_{m+1, n-1} \left[\frac{\frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2}{\omega + (n-1)\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} - \frac{\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 + \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega}}{\omega + m\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} - \frac{\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 - \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} \right] \\ &+ \delta_{m-1, n+1} \left[\frac{\frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2}{\omega + (n+1)\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} - \frac{\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 - \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega}}{\omega + m\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} - \frac{\frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 + \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega}}{\omega + n\Omega - \varepsilon_{0, \mathbf{k}} + i\eta} \right] + O(A_0^3). \end{aligned} \quad (\text{A.35})$$

Lesser Green 関数については

$$\begin{aligned}
& \frac{(G_k^<)_{mn}(\omega)}{2i\eta} \\
&= \delta_{mn} \left[\left\{ 1 - \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \right\} \frac{f(\omega + n\Omega)}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} + \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \frac{f(\omega + (n+1)\Omega) + f(\omega + (n-1)\Omega)}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} \right. \\
&\quad + \frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left\{ \frac{f(\omega + (n+1)\Omega)}{(\omega + (n+1)\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} + \frac{f(\omega + (n-1)\Omega)}{(\omega + (n-1)\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} \right\} \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left\{ \frac{f(\omega + n\Omega) - f(\omega + (n+1)\Omega)}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k})(\omega + (n+1)\Omega - \varepsilon_{0,k})} + \frac{f(\omega + n\Omega) - f(\omega + (n-1)\Omega)}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k})(\omega + (n-1)\Omega - \varepsilon_{0,k})} \right\} \right] \\
&\quad + (\delta_{m,n+1} + \delta_{m,n-1}) \frac{i\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{2\Omega} \\
&\quad \times \left[\frac{f(\omega + m\Omega)}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} - \frac{f(\omega + n\Omega)}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} - \frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right] \\
&\quad + \delta_{m+1,n-1} \left[\frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left\{ \frac{f(\omega + (n-1)\Omega)}{(\omega + (n-1)\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} + \frac{2f(\omega + (n-1)\Omega) - f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{2(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right. \right. \\
&\quad + \frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + (n-1)\Omega)}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + (n-1)\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \\
&\quad \left. + \frac{f(\omega + n\Omega) - f(\omega + (m+1)\Omega)}{(\omega + (m+1)\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right\} \\
&\quad - \left\{ \frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 + \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega} \right\} \frac{f(\omega + m\Omega)}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} \\
&\quad - \left\{ \frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 - \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega} \right\} \frac{f(\omega + n\Omega)}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} \\
&\quad \left. + \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega} \frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right] \\
&\quad + \delta_{m-1,n+1} \left[\frac{1}{4} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 \left\{ \frac{f(\omega + (n+1)\Omega)}{(\omega + (n+1)\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} + \frac{2f(\omega + (n+1)\Omega) - f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{2(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right. \right. \\
&\quad + \frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + (n+1)\Omega)}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + (n+1)\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \\
&\quad \left. + \frac{f(\omega + n\Omega) - f(\omega + (m-1)\Omega)}{(\omega + (m-1)\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right\} \\
&\quad - \left\{ \frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 - \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega} \right\} \frac{f(\omega + m\Omega)}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} \\
&\quad - \left\{ \frac{1}{8} \left(\frac{\mathbf{v}_k \mathbf{A}_0}{\Omega} \right)^2 + \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega} \right\} \frac{f(\omega + n\Omega)}{(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k})^2 + \eta^2} \\
&\quad \left. - \frac{\tau_k^{\alpha\beta} A_0^\alpha A_0^\beta}{16\Omega} \frac{f(\omega + m\Omega) - f(\omega + n\Omega)}{(\omega + m\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega + n\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right] + O(A_0^3). \tag{A.36}
\end{aligned}$$

Lesser Green 関数の表式 (A.36) の第 4 行の 2 項は η に依存しないため、 $G^<$ には寄与しない。

以上の Green 関数の表式 (A.35) および (A.36) を用いて、感受率 [式 (6.42)] を A_0 の二次までの範囲で展開する。煩雑さを避けるため、感受率を $\chi_q(\omega) = (\chi_q)_{00}(\omega) = \sum_l \chi_q^{(l)}(\omega)$ のように分ける。ここで

$\chi_q^{(l)}(\omega)$ は

$$\chi_q^{(l)}(\omega) = \frac{2i}{N} \sum_k \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\bar{\omega}}{2\pi} \left[(G_{k+q}^R)_{0,l}(\omega + \bar{\omega})(G_k^<)_{l,0}(\bar{\omega}) + (G_{k+q}^<)_{0,l}(\omega + \bar{\omega})(G_k^A)_{l,0}(\bar{\omega}) \right] \quad (\text{A.37})$$

により定義される. 式 (A.35) および (A.36) において, $\delta_{m+1,n-1}$ または $\delta_{m-1,n+1}$ を含む項は A_0^2 に比例するため, δ_{mn} または $\delta_{m,n\pm 1}$ を含む項だけを考えれば良い. $l=0$ について,

$$\begin{aligned} & \chi_q^{(0)}(\omega) \\ &= \frac{2}{N} \sum_k \left[\frac{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})}{\omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} - \frac{\mathcal{A}_{k+q}^2 f(\varepsilon_{0,k+q}) - \mathcal{A}_k^2 f(\varepsilon_{0,k})}{\omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} - \frac{1}{2} \frac{\mathcal{A}_k^2 f(\varepsilon_{0,k+q}) - \mathcal{A}_{k+q}^2 f(\varepsilon_{0,k})}{\omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} \right. \\ &+ \frac{1}{4} \frac{\mathcal{A}_{k+q}^2 f(\varepsilon_{0,k+q} + \Omega) - \mathcal{A}_k^2 f(\varepsilon_{0,k} + \Omega)}{\omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} + \frac{1}{4} \frac{\mathcal{A}_{k+q}^2 f(\varepsilon_{0,k+q} - \Omega) - \mathcal{A}_k^2 f(\varepsilon_{0,k} - \Omega)}{\omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} \\ &+ \left. \frac{\mathcal{A}_{k+q}^2 + \mathcal{A}_k^2}{4} \left\{ \frac{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})}{\omega + \Omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} + \frac{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})}{\omega - \Omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} \right\} \right] + O(A_0^3), \quad (\text{A.38}) \end{aligned}$$

を得る. ここで $\lim_{\eta \rightarrow 0} \eta/(z^2 + \eta^2) = \pi\delta(z)$ を用い, $\mathcal{A}_k = v_k A_0/\Omega$ と定義した. これは $\Omega \rightarrow \infty$ または $A_0 \rightarrow 0$ の極限で式 (6.45) に一致する. $l = \pm 1$ に関しては

$$\begin{aligned} \chi_q^{(l)}(\omega) &= \frac{2}{N} \sum_k \frac{\mathcal{A}_{k+q}\mathcal{A}_k}{4} \left[\left\{ \frac{2\{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})\}}{\omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} \right. \right. \\ &- \left. \frac{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})}{\omega + l\Omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} - \frac{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})}{\omega - l\Omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} \right\} \\ &+ \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{i}{\omega + \omega' - \varepsilon_{0,k+q} + i\eta} \\ &\times \left\{ \frac{2i\eta\{f(\omega') - f(\omega' + l\Omega)\}}{(\omega' + l\Omega - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega' - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} + \frac{2i\eta\{f(\omega') - f(\omega' - l\Omega)\}}{(\omega' - \varepsilon_{0,k} + i\eta)(\omega' - l\Omega - \varepsilon_{0,k} - i\eta)} \right\} \\ &+ \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \left\{ \frac{2i\eta\{f(\omega + \omega') - f(\omega + \omega' - l\Omega)\}}{(\omega + \omega' - l\Omega - \varepsilon_{0,k+q} + i\eta)(\omega + \omega' - \varepsilon_{0,k+q} - i\eta)} \right. \\ &+ \left. \frac{2i\eta\{f(\omega + \omega') - f(\omega + \omega' + l\Omega)\}}{(\omega + \omega' - \varepsilon_{0,k+q} + i\eta)(\omega + \omega' + l\Omega - \varepsilon_{0,k+q} - i\eta)} \right\} \frac{i}{\omega' - \varepsilon_{0,k} - i\eta} \left. \right] + O(A_0^3), \quad (\text{A.39}) \end{aligned}$$

となり, これより

$$\begin{aligned} \sum_{l=\pm 1} \chi_q^{(l)}(\omega) &= \frac{2}{N} \sum_k \frac{\mathcal{A}_{k+q}\mathcal{A}_k}{2} \left[\left\{ \frac{2\{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})\}}{\omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} \right. \right. \\ &- \left. \frac{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})}{\omega + \Omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} - \frac{f(\varepsilon_{0,k+q}) - f(\varepsilon_{0,k})}{\omega - \Omega - (\varepsilon_{0,k+q} - \varepsilon_{0,k}) + 2i\eta} \right\} \\ &+ \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \left\{ \frac{i}{\omega + \omega' - \varepsilon_{0,k+q} + i\eta} \left(\frac{2i\eta\{f(\omega') - f(\omega' + \Omega)\}}{(\omega' - \varepsilon_{0,k})(\omega' + \Omega - \varepsilon_{0,k})} + \frac{2i\eta\{f(\omega') - f(\omega' - \Omega)\}}{(\omega' - \varepsilon_{0,k})(\omega' - \Omega - \varepsilon_{0,k})} \right) \right. \\ &+ \left. \left(\frac{2i\eta\{f(\omega + \omega') - f(\omega + \omega' + \Omega)\}}{(\omega + \omega' - \varepsilon_{0,k+q})(\omega + \omega' + \Omega - \varepsilon_{0,k+q})} + \frac{2i\eta\{f(\omega + \omega') - f(\omega + \omega' - \Omega)\}}{(\omega + \omega' - \varepsilon_{0,k+q})(\omega + \omega' - \Omega - \varepsilon_{0,k+q})} \right) \right. \\ &\times \left. \frac{i}{\omega' - \varepsilon_{0,k} - i\eta} \right\} \left. \right] + O(A_0^3), \quad (\text{A.40}) \end{aligned}$$

を得る. 式 (A.40) の第 3–5 行の項は分子の η のために感受率に寄与しない. 式 (A.38) および (A.40) を $\chi_q(\omega) = \sum_l \chi_q^{(l)}(\omega)$ に代入し, 最終的な表式 (6.57)–(6.60) を得る.

参考文献

- [1] F. C. Nix, *Rev. Mod. Phys.* **4**, 723 (1932).
- [2] A. L. Hughes, *Rev. Mod. Phys.* **8**, 294 (1936).
- [3] 佐藤勝昭, 『光と磁気』 (朝倉書店, 2001).
- [4] 佐藤琢哉, *日本物理学会誌* **70**, 840 (2015).
- [5] E. Beaurepaire, J.-C. Merle, A. Daunois, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 4250 (1996).
- [6] A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and T. Rasing, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 2731 (2010).
- [7] A. Kirilyuk, A. V. Kimel, and T. Rasing, *Rep. Prog. Phys.* **76**, 026501 (2013).
- [8] J. Hohlfeld, E. Matthias, R. Knorren, and K. H. Bennemann, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4861 (1997).
- [9] A. Scholl, L. Baumgarten, R. Jacquemin, and W. Eberhardt, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 5146 (1997).
- [10] B. Koopmans, M. van Kampen, J. T. Kohlhepp, and W. J. M. de Jonge, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 844 (2000).
- [11] L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 017401 (2002).
- [12] H.-S. Rhee, H. A. Dürr, and W. Eberhardt, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 247201 (2003).
- [13] C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, R. Mitzner, T. Quast, K. Hollmack, S. Khan, C. Lupulescu, E. F. Aziz, M. Wietstruk, H. A. Dürr, and W. Eberhardt, *Nat. Mater.* **6**, 740 (2007).
- [14] E. Kojima, R. Shimano, Y. Hashimoto, S. Katsumoto, Y. Iye, and M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. B* **68**, 193203 (2003).
- [15] J. Wang, C. Sun, Y. Hashimoto, J. Kono, G. A. Khodaparast, Ł. Cywiński, L. J. Sham, G. D. Sanders, C. J. Stanton, and H. Munekata, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, R501 (2006).
- [16] J. Wang, Ł. Cywiński, C. Sun, J. Kono, H. Munekata, and L. J. Sham, *Phys. Rev. B* **77**, 235308 (2008).
- [17] T. Kise, T. Ogasawara, M. Ashida, Y. Tomioka, Y. Tokura, and M. Kuwata-Gonokami, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 1986 (2000).
- [18] Q. Zhang, A. V. Nurmikko, G. X. Miao, G. Xiao, and A. Gupta, *Phys. Rev. B* **74**, 064414 (2006).
- [19] G. M. Müller, J. Walowski, M. Djordjevic, G.-X. Miao, A. Gupta, A. V. Ramos, K. Gehrke, V. Moshnyaga, K. Samwer, J. Schmalhorst, A. Thomas, A. Hütten, G. Reiss, J. S. Moodera, and M. Münzenberg, *Nat. Mater.* **8**, 56 (2009).
- [20] G. Ju, A. V. Nurmikko, R. F. C. Farrow, R. F. Marks, M. J. Carey, and B. A. Gurney, *Phys. Rev. B* **58**, R11857 (1998).
- [21] G. Ju, A. V. Nurmikko, R. F. C. Farrow, R. F. Marks, M. J. Carey, and B. A. Gurney, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3705 (1999).
- [22] M. van Kampen, C. Jozsa, J. T. Kohlhepp, P. LeClair, L. Lagae, W. J. M. de Jonge, and B. Koopmans, *Phys. Rev. Lett.* **88**, 227201 (2002).
- [23] M. Vomir, L. H. F. Andrade, L. Guidoni, E. Beaurepaire, and J.-Y. Bigot, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 237601 (2005).

- [24] A. V. Kimel, C. D. Stanciu, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, V. N. Gridnev, A. Kirilyuk, and T. Rasing, *Phys. Rev. B* **74**, 060403 (2006).
- [25] A. A. Rzhevsky, B. B. Krichevtsov, D. E. Bürgler, and C. M. Schneider, *Phys. Rev. B* **75**, 224434 (2007).
- [26] M. C. Langner, C. L. S. Kantner, Y. H. Chu, L. M. Martin, P. Yu, J. Seidel, R. Ramesh, and J. Orenstein, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 177601 (2009).
- [27] M. B. Agranat, S. I. Anhitkov, A. V. Kirillin, V. E. Fortov, S. I. Anisimov, A. B. Granovskij, and P. S. Kondratenko, *JETP Lett.* **67**, 953 (1998).
- [28] A. V. Kimel, A. Kirilyuk, A. Tsvetkov, R. V. Pisarev, and T. Rasing, *Nature* **429**, 850 (2004).
- [29] T. Eimüller, A. Scholl, B. Ludescher, G. Schütz, and J.-U. Thiele, *Appl. Phys. Lett.* **91**, 042508 (2007).
- [30] G. Ju, J. Hohlfield, B. Bergman, R. J. M. van de Veerdonk, O. N. Mryasov, J.-Y. Kim, X. Wu, D. Weller, and B. Koopmans, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 197403 (2004).
- [31] J.-U. Thiele, M. Buess, and C. H. Back, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 2857 (2004).
- [32] J. Hohlfield, T. Gerrits, M. Bilderbeek, T. Rasing, H. Awano, and N. Ohta, *Phys. Rev. B* **65**, 012413 (2001).
- [33] T. Ogasawara, N. Iwata, Y. Murakami, H. Okamoto, and Y. Tokura, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 162507 (2009).
- [34] C. D. Stanciu, A. Tsukamoto, A. V. Kimel, F. Hansteen, A. Kirilyuk, A. Itoh, and T. Rasing, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 217204 (2007).
- [35] *Photoinduced Phase Transitions*, edited by K. Nasu (World Scientific, Singapore, 2004).
- [36] 岩井伸一郎, 『超高速分光と光誘起相転移』(朝倉書店, 2014).
- [37] 腰原伸也, T. M. Luty, 『光誘起構造相転移』(共立出版, 2016).
- [38] 岩井伸一郎, 『多電子系の超高速光誘起相転移』(共立出版, 2016).
- [39] Y. Tokura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 011001 (2006).
- [40] E. Collet, M. Buron-Le Cointe, and H. Cailleau, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 011002 (2006).
- [41] A. S. Mishchenko and N. Nagaosa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 011003 (2006).
- [42] A. Cavalleri, M. Rini, and R. W. Schoenlein, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 011004 (2006).
- [43] S. Koshihara and S. Adachi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 011005 (2006).
- [44] D. J. Hilton, R. P. Prasankumar, S. A. Trugman, a. J. Taylor, and R. D. Averitt, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 011006 (2006).
- [45] S. Iwai and H. Okamoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 011007 (2006).
- [46] K. Yonemitsu and K. Nasu, *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 011008 (2006).
- [47] K. Yonemitsu and K. Nasu, *Phys. Rep.* **465**, 1 (2008).
- [48] H. Aoki, N. Tsuji, M. Eckstein, M. Kollar, T. Oka, and P. Werner, *Rev. Mod. Phys.* **86**, 779 (2014).
- [49] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura, *Rev. Mod. Phys.* **70**, 1039 (1998).
- [50] C. Zener, *Phys. Rev.* **82**, 403 (1951).
- [51] P. W. Anderson and H. Hasegawa, *Phys. Rev.* **100**, 675 (1955).
- [52] P. G. de Gennes, *Phys. Rev.* **118**, 141 (1960).
- [53] H. Ohno, *Science* **281**, 951 (1998).
- [54] H. Ohno, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 110 (1999).
- [55] F. Hellman, A. Hoffmann, Y. Tserkovnyak, G. S. D. Beach, E. E. Fullerton, C. Leighton,

- A. H. MacDonald, D. C. Ralph, D. A. Arena, H. A. Dürr, P. Fischer, J. Grollier, J. P. Heremans, T. Jungwirth, A. V. Kimel, B. Koopmans, I. N. Krivorotov, S. J. May, A. K. Petford-Long, J. M. Rondinelli, N. Samarth, I. K. Schuller, A. N. Slavin, M. D. Stiles, O. Tchernyshyov, A. Thiaville, and B. L. Zink, *Rev. Mod. Phys.* **89**, 025006 (2017).
- [56] A. Yanase and T. Kasuya, *J. Phys. Soc. Jpn.* **25**, 1025 (1968).
- [57] B. Bechlars, D. M. D'Alessandro, D. M. Jenkins, A. T. Iavarone, S. D. Glover, C. P. Kubiak, and J. R. Long, *Nat. Chem.* **2**, 362 (2010).
- [58] Y. Tokura, Y. Tomioka, H. Kuwahara, A. Asamitsu, Y. Moritomo, and M. Kasai, *J. Appl. Phys.* **79**, 5288 (1996).
- [59] E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, *Phys. Rep.* **344**, 1 (2001).
- [60] J. Ye, Y. B. Kim, A. J. Millis, B. I. Shraiman, P. Majumdar, and Z. Tešanović, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3737 (1999).
- [61] G. Tatara and H. Kawamura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 2613 (2002).
- [62] N. Nagaosa, J. Sinova, S. Onoda, A. H. MacDonald, and N. P. Ong, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1539 (2010).
- [63] H. Weng, R. Yu, X. Hu, X. Dai, and Z. Fang, *Adv. Phys.* **64**, 227 (2015).
- [64] N. Nagaosa and Y. Tokura, *Nat. Nanotechnol.* **8**, 899 (2013).
- [65] R. Ozawa, S. Hayami, and Y. Motome, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 147205 (2017).
- [66] V. Kiryukhin, D. Casa, J. P. Hill, B. Keimer, A. Vigliante, Y. Tomioka, and Y. Tokura, *Nature* **386**, 813 (1997).
- [67] K. Miyano, T. Tanaka, Y. Tomioka, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4257 (1997).
- [68] S. Koshihara, A. Oiwa, M. Hirasawa, S. Katsumoto, Y. Iye, C. Urano, H. Takagi, and H. Munekata, *Phys. Rev. Lett.* **78**, 4617 (1997).
- [69] M. Fiebig, K. Miyano, Y. Tomioka, and Y. Tokura, *Science* **280**, 1925 (1998).
- [70] R. D. Averitt, A. I. Lobad, C. Kwon, S. A. Trugman, V. K. Thorsmølle, and A. J. Taylor, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 017401 (2001).
- [71] T. Ogasawara, K. Tobe, T. Kimura, H. Okamoto, and Y. Tokura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **71**, 2380 (2002).
- [72] K. Miyasaka, M. Nakamura, Y. Ogimoto, H. Tamaru, and K. Miyano, *Phys. Rev. B* **74**, 012401 (2006).
- [73] Y. Okimoto, H. Matsuzaki, Y. Tomioka, I. Kezsmarki, T. Ogasawara, M. Matsubara, H. Okamoto, and Y. Tokura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 043702 (2007).
- [74] M. Rini, R. Tobey, N. Dean, J. Itatani, Y. Tomioka, Y. Tokura, R. W. Schoenlein, and A. Cavalleri, *Nature* **449**, 72 (2007).
- [75] M. Matsubara, Y. Okimoto, T. Ogasawara, Y. Tomioka, H. Okamoto, and Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **99**, 207401 (2007).
- [76] M. Matsubara, Y. Okimoto, T. Ogasawara, S. Iwai, Y. Tomioka, H. Okamoto, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **77**, 094410 (2008).
- [77] M. Matsubara, T. Ogasawara, Y. Tomioka, K. Tobe, H. Okamoto, and Y. Tokura, *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 023707 (2009).
- [78] H. Matsuzaki, H. Uemura, M. Matsubara, T. Kimura, Y. Tokura, and H. Okamoto, *Phys. Rev. B* **79**, 235131 (2009).
- [79] H. Ichikawa, S. Nozawa, T. Sato, A. Tomita, K. Ichiyanagi, M. Chollet, L. Guerin, N. Dean, A. Cavalleri, S. Adachi, T. Arima, H. Sawa, Y. Ogimoto, M. Nakamura, R. Tamaki, K. Miyano, and S. Koshihara,

- Nat. Mater. **10**, 101 (2011).
- [80] H. B. Zhao, D. Talbayev, X. Ma, Y. H. Ren, A. Venimadhav, Q. Li, and G. Lüpke, Phys. Rev. Lett. **107**, 207205 (2011).
- [81] H. Yada, Y. Ijiri, H. Uemura, Y. Tomioka, and H. Okamoto, Phys. Rev. Lett. **116**, 076402 (2016).
- [82] N. Takubo, Y. Ogimoto, M. Nakamura, H. Tamaru, M. Izumi, and K. Miyano, Phys. Rev. Lett. **95**, 017404 (2005).
- [83] N. Takubo, I. Onishi, K. Takubo, T. Mizokawa, and K. Miyano, Phys. Rev. Lett. **101**, 177403 (2008).
- [84] H. Lin, H. Liu, L. Lin, S. Dong, H. Chen, Y. Bai, T. Miao, Y. Yu, W. Yu, J. Tang, Y. Zhu, Y. Kou, J. Niu, Z. Cheng, J. Xiao, W. Wang, E. Dagotto, L. Yin, and J. Shen, Phys. Rev. Lett. **120**, 267202 (2018).
- [85] T. Kampfrath, K. Tanaka, and K. A. Nelson, Nat. Photonics **7**, 680 (2013).
- [86] J. H. Mentink, J. Phys. Condens. Matter **29**, 453001 (2017).
- [87] T. Miyamoto, H. Yamakawa, T. Morimoto, and H. Okamoto, J. Phys. B **51**, 162001 (2018).
- [88] M. Bukov, L. D'Alessio, and A. Polkovnikov, Adv. Phys. **64**, 139 (2015).
- [89] A. Eckardt, Rev. Mod. Phys. **89**, 011004 (2017).
- [90] 佐藤正寛, 高吉慎太郎, 岡隆史, 日本物理学会誌 **72**, 783 (2017).
- [91] T. Oka and S. Kitamura, arXiv:1804.03212.
- [92] Y. Kawakami, H. Itoh, K. Yonemitsu, and S. Iwai, J. Phys. B **51**, 174005 (2018).
- [93] C. Song, Y. You, X. Chen, X. Zhou, Y. Wang, and F. Pan, Nanotechnology **29**, 112001 (2018).
- [94] T. Ishikawa, Y. Sagae, Y. Naitoh, Y. Kawakami, H. Itoh, K. Yamamoto, K. Yakushi, H. Kishida, T. Sasaki, S. Ishihara, Y. Tanaka, K. Yonemitsu, and S. Iwai, Nat. Commun. **5**, 5528 (2014).
- [95] Y. Naitoh, Y. Kawakami, T. Ishikawa, Y. Sagae, H. Itoh, K. Yamamoto, T. Sasaki, M. Dressel, S. Ishihara, Y. Tanaka, K. Yonemitsu, and S. Iwai, Phys. Rev. B **93**, 165126 (2016).
- [96] T. Higuchi, C. Heide, K. Ullmann, H. B. Weber, and P. Hommelhoff, Nature **550**, 224 (2017).
- [97] C. Heide, T. Higuchi, H. B. Weber, and P. Hommelhoff, Phys. Rev. Lett. **121**, 207401 (2018).
- [98] F. Langer, C. P. Schmid, S. Schlauderer, M. Gmitra, J. Fabian, P. Nagler, C. Schüller, T. Korn, P. G. Hawkins, J. T. Steiner, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, Nature **557**, 76 (2018).
- [99] J. Reimann, S. Schlauderer, C. P. Schmid, F. Langer, S. Baierl, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, C. Lange, J. Güdde, U. Höfer, and R. Huber, Nature **562**, 396 (2018).
- [100] J. Shirley, Phys. Rev. **138**, B979 (1965).
- [101] H. Sambe, Phys. Rev. A **7**, 2203 (1973).
- [102] W. R. Salzman, Phys. Rev. A **10**, 461 (1974).
- [103] M. Grifoni and P. Hänggi, Phys. Rep. **304**, 229 (1998).
- [104] G. Floquet, Annales scientifiques de l'École normale supérieure **12**, 47 (1883).
- [105] F. Bloch, Z. Phys. **52**, 555 (1929).
- [106] N. Goldman and J. Dalibard, Phys. Rev. X **4**, 031027 (2014).
- [107] T. Mikami, S. Kitamura, K. Yasuda, N. Tsuji, T. Oka, and H. Aoki, Phys. Rev. B **93**, 144307 (2016).
- [108] M. Bukov, M. Kolodrubetz, and A. Polkovnikov, Phys. Rev. Lett. **116**, 125301 (2016).
- [109] E. Canovi, M. Kollar, and M. Eckstein, Phys. Rev. E **93**, 012130 (2016).
- [110] M. Eckstein, J. H. Mentink, and P. Werner, arXiv:1703.03269.
- [111] J. Li, H. U. R. Strand, P. Werner, and M. Eckstein, Nat. Commun. **9**, 4581 (2018).

- [112] M. M. S. Barbeau, M. Eckstein, M. I. Katsnelson, and J. H. Mentink, arXiv:1803.03796.
- [113] T. Qin and W. Hofstetter, *Phys. Rev. B* **97**, 125115 (2018).
- [114] W. Berdanier, M. Kolodrubetz, S. A. Parameswaran, and R. Vasseur, *Phys. Rev. B* **98**, 174203 (2018).
- [115] A. Ono, H. Hashimoto, and S. Ishihara, *Phys. Rev. B* **94**, 115152 (2016).
- [116] A. Ono, H. Hashimoto, and S. Ishihara, *Phys. Rev. B* **95**, 085123 (2017).
- [117] K. Yonemitsu, *J. Phys. Soc. Jpn.* **86**, 064702 (2017).
- [118] T. Shirai, T. Mori, and S. Miyashita, *Phys. Rev. E* **91**, 030101 (2015).
- [119] T. Kuwahara, T. Mori, and K. Saito, *Ann. Phys. (N. Y.)* **367**, 96 (2016).
- [120] D. A. Abanin, W. De Roeck, W. W. Ho, and F. Huveneers, *Phys. Rev. B* **95**, 014112 (2017).
- [121] M. Bukov, S. Gopalakrishnan, M. Knap, and E. Demler, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 205301 (2015).
- [122] T. Mori, T. Kuwahara, and K. Saito, *Phys. Rev. Lett.* **116**, 120401 (2016).
- [123] 森貴司, 桑原知剛, 齊藤圭司, *日本物理学会誌* **72**, 800 (2017).
- [124] T. Oka and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **79**, 081406 (2009).
- [125] D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale, and M. den Nijs, *Phys. Rev. Lett.* **49**, 405 (1982).
- [126] J. W. McIver, B. Schulte, F. U. Stein, T. Matsuyama, G. Jotzu, G. Meier, and A. Cavalleri, arXiv:1811.03522.
- [127] G. Jotzu, M. Messer, R. Desbuquois, M. Lebrat, T. Uehlinger, D. Greif, and T. Esslinger, *Nature* **515**, 237 (2014).
- [128] N. Flaschner, B. S. Rem, M. Tarnowski, D. Vogel, D.-S. Luhmann, K. Sengstock, and C. Weitenberg, *Science* **352**, 1091 (2016).
- [129] N. Goldman, J. C. Budich, and P. Zoller, *Nat. Phys.* **12**, 639 (2016).
- [130] J. H. Mentink, K. Balzer, and M. Eckstein, *Nat. Commun.* **6**, 6708 (2015).
- [131] S. Takayoshi, H. Aoki, and T. Oka, *Phys. Rev. B* **90**, 085150 (2014).
- [132] S. Takayoshi, M. Sato, and T. Oka, *Phys. Rev. B* **90**, 214413 (2014).
- [133] A. P. Itin and M. I. Katsnelson, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 075301 (2015).
- [134] R. Mikhaylovskiy, E. Hendry, A. Secchi, J. Mentink, M. Eckstein, A. Wu, R. Pisarev, V. Kruglyak, M. Katsnelson, T. Rasing, and A. Kimel, *Nat. Commun.* **6**, 8190 (2015).
- [135] M. Sato, S. Takayoshi, and T. Oka, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 147202 (2016).
- [136] M. Claassen, H.-C. Jiang, B. Moritz, and T. P. Devereaux, *Nat. Commun.* **8**, 1192 (2017).
- [137] S. Kitamura, T. Oka, and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **96**, 014406 (2017).
- [138] K. Takasan, M. Nakagawa, and N. Kawakami, *Phys. Rev. B* **96**, 115120 (2017).
- [139] K. Takasan and M. Sato, arXiv:1802.04311.
- [140] J. Liu, K. Hejazi, and L. Balents, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 107201 (2018).
- [141] F. Görg, M. Messer, K. Sandholzer, G. Jotzu, R. Desbuquois, and T. Esslinger, *Nature* **553**, 481 (2018).
- [142] H.-J. Duan, C. Wang, S.-H. Zheng, R.-Q. Wang, D.-R. Pan, and M. Yang, *Sci. Rep.* **8**, 6185 (2018).
- [143] D. H. Dunlap and V. M. Kenkre, *Phys. Rev. B* **34**, 3625 (1986).
- [144] M. Holthaus, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 351 (1992).
- [145] F. Grossmann, T. Dittrich, P. Jung, and P. Hänggi, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 516 (1991).
- [146] Y. Kayanuma and K. Saito, *Phys. Rev. A* **77**, 010101 (2008).
- [147] A. Eckardt, C. Weiss, and M. Holthaus, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 260404 (2005).
- [148] H. Lignier, C. Sias, D. Ciampini, Y. Singh, A. Zenesini, O. Morsch, and E. Arimondo, *Phys. Rev. Lett.*

- 99, 220403 (2007).
- [149] N. Tsuji, T. Oka, P. Werner, and H. Aoki, *Phys. Rev. Lett.* **106**, 236401 (2011).
- [150] N. Tsuji, T. Oka, H. Aoki, and P. Werner, *Phys. Rev. B* **85**, 155124 (2012).
- [151] K. Nishioka and K. Yonemitsu, *J. Phys. Soc. Jpn.* **83**, 024706 (2014).
- [152] K. Oya and A. Takahashi, *Phys. Rev. B* **97**, 115147 (2018).
- [153] 安達健五, 『化合物磁性 局在スピン系』 (裳華房, 1996).
- [154] 安達健五, 『化合物磁性 遍歴電子系』 (裳華房, 1996).
- [155] 久保健, 田中秀数, 『磁性 I』 (朝倉書店, 2008).
- [156] S. Yunoki, J. Hu, A. L. Malvezzi, A. Moreo, N. Furukawa, and E. Dagotto, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 845 (1998).
- [157] J. Chovan, E. G. Kavousanaki, and I. E. Perakis, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 057402 (2006).
- [158] K. Satoh and S. Ishihara, *J. Magn. Magn. Mater.* **310**, 798 (2007).
- [159] H. Matsueda and S. Ishihara, *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 083703 (2007).
- [160] Y. Kanamori, H. Matsueda, and S. Ishihara, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 267401 (2009).
- [161] Y. Kanamori, H. Matsueda, and S. Ishihara, *Phys. Rev. B* **82**, 115101 (2010).
- [162] J. Ohara, Y. Kanamori, and S. Ishihara, *Phys. Rev. B* **88**, 085107 (2013).
- [163] W. Koshibae, N. Furukawa, and N. Nagaosa, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 266402 (2009).
- [164] W. Koshibae, N. Furukawa, and N. Nagaosa, *Europhys. Lett.* **94**, 27003 (2011).
- [165] J. Riera, K. Hallberg, and E. Dagotto, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 713 (1997).
- [166] M. Yamanaka, W. Koshibae, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5604 (1998).
- [167] K. Nagai, T. Momoi, and K. Kubo, *J. Phys. Soc. Jpn.* **69**, 1837 (2000).
- [168] A. Chattopadhyay, A. J. Millis, and S. Das Sarma, *Phys. Rev. B* **64**, 012416 (2001).
- [169] L. Yin, *Phys. Rev. B* **68**, 104433 (2003).
- [170] D. J. Garcia, K. Hallberg, B. Alascio, and M. Avignon, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 177204 (2004).
- [171] J. Kienert and W. Nolting, *Phys. Rev. B* **73**, 224405 (2006).
- [172] S. Henning and W. Nolting, *Phys. Rev. B* **79**, 064411 (2009).
- [173] K. Pradhan and P. Majumdar, *Europhys. Lett.* **85**, 37007 (2009).
- [174] S. Hayami and Y. Motome, *Phys. Rev. B* **90**, 060402 (2014).
- [175] R. Ozawa, S. Hayami, K. Barros, G.-W. Chern, Y. Motome, and C. D. Batista, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 103703 (2016).
- [176] M. A. Ruderman and C. Kittel, *Phys. Rev.* **96**, 99 (1954).
- [177] T. Kasuya, *Prog. Theor. Phys.* **16**, 45 (1956).
- [178] K. Yosida, *Phys. Rev.* **106**, 893 (1957).
- [179] G. M. Genkin, *Phys. Rev. B* **55**, 5631 (1997).
- [180] S. R. Power, F. S. M. Guimarães, A. T. Costa, R. B. Muniz, and M. S. Ferreira, *Phys. Rev. B* **85**, 195411 (2012).
- [181] F. S. M. Guimarães, J. Duffy, A. T. Costa, R. B. Muniz, and M. S. Ferreira, *Phys. Rev. B* **94**, 235439 (2016).
- [182] V. A. Stephanovich, V. K. Dugaev, V. I. Litvinov, and J. Berakdar, *Phys. Rev. B* **95**, 045307 (2017).
- [183] L. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1018 (1964).
- [184] R. Kubo, *J. Phys. Soc. Jpn.* **12**, 570 (1957).

- [185] J. Rammer and H. Smith, *Rev. Mod. Phys.* **58**, 323 (1986).
- [186] T. Kita, *Prog. Theor. Phys.* **123**, 581 (2010).
- [187] 多々良源, 『スピントロニクス理論の基礎』(培風館, 2009).
- [188] A. M. Zagoskin, *Quantum Theory of Many-Body Systems* (Springer, New York, 1998).
- [189] J. Rammer, *Quantum Field Theory of Non-equilibrium States* (Cambridge University Press, Cambridge, 2007).
- [190] A. Altland and B. D. Simons, *Condensed Matter Field Theory* (Cambridge University Press, Cambridge, 2010).
- [191] G. Stefanucci and R. van Leeuwen, *Nonequilibrium Many-Body Theory of Quantum Systems* (Cambridge University Press, Cambridge, 2013).
- [192] *Out-of-Equilibrium Physics of Correlated Electron Systems*, edited by R. Citro and F. Mancini (Springer International Publishing, Switzerland, 2018).
- [193] N. Tsuji, T. Oka, and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **78**, 235124 (2008).
- [194] Y. Murakami, N. Tsuji, M. Eckstein, and P. Werner, *Phys. Rev. B* **96**, 045125 (2017).
- [195] T. Morimoto and N. Nagaosa, *Sci. Adv.* **2**, e1501524 (2016).
- [196] W.-R. Lee and W.-K. Tse, *Phys. Rev. B* **95**, 201411 (2017).
- [197] N. Tsuji, T. Oka, and H. Aoki, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 047403 (2009).
- [198] M. Eckstein and M. Kollar, *Phys. Rev. B* **78**, 205119 (2008).
- [199] N. Tsuji and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **92**, 064508 (2015).
- [200] Y. Murakami, P. Werner, N. Tsuji, and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **93**, 094509 (2016).
- [201] N. Tsuji, Y. Murakami, and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **94**, 224519 (2016).
- [202] M. Sigrist, K. Ueda, and H. Tsunetsugu, *Phys. Rev. B* **46**, 175 (1992).
- [203] L. V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* **20**, 1307 (1965).
- [204] A. S. Landsman and U. Keller, *Phys. Rep.* **547**, 1 (2015).
- [205] T. Oka, *Phys. Rev. B* **86**, 075148 (2012).
- [206] C. Kittel, *Introduction to Solid State Physics*, 8th ed. (Wiley, Hoboken, 2004).
- [207] M. Shalaby and C. P. Hauri, *Nat. Commun.* **6**, 5976 (2015).
- [208] *Topology in Magnetism*, edited by J. Zang, V. Cros, and A. Hoffmann (Springer International Publishing, Switzerland, 2018).
- [209] Y. Togawa, Y. Kousaka, K. Inoue, and J.-i. Kishine, *J. Phys. Soc. Jpn.* **85**, 112001 (2016).
- [210] C. D. Batista, S.-Z. Lin, S. Hayami, and Y. Kamiya, *Rep. Prog. Phys.* **79**, 084504 (2016).
- [211] M. Mochizuki and N. Nagaosa, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 147202 (2010).
- [212] T. Kubacka, J. A. Johnson, M. C. Hoffmann, C. Vicario, S. de Jong, P. Beaud, S. Grubel, S.-W. Huang, L. Huber, L. Patthey, Y.-D. Chuang, J. J. Turner, G. L. Dakovski, W.-S. Lee, M. P. Minitti, W. Schlotter, R. G. Moore, C. P. Hauri, S. M. Koohpayeh, V. Scagnoli, G. Ingold, S. L. Johnson, and U. Staub, *Science* **343**, 1333 (2014).
- [213] S. L. Johnson, R. A. de Souza, U. Staub, P. Beaud, E. Möhr-Vorobeva, G. Ingold, A. Caviezel, V. Scagnoli, W. F. Schlotter, J. J. Turner, O. Krupin, W.-S. Lee, Y.-D. Chuang, L. Patthey, R. G. Moore, D. Lu, M. Yi, P. S. Kirchmann, M. Trigo, P. Denes, D. Doering, Z. Hussain, Z.-X. Shen, D. Prabhakaran, and A. T. Boothroyd, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 037203 (2012).
- [214] Y. Yamasaki, H. Nakao, Y. Murakami, T. Nakajima, A. L. Sampietro, H. Ohsumi, M. Takata, T. Arima,

- and Y. Tokura, Phys. Rev. B **91**, 100403 (2015).
- [215] M. Finazzi, M. Savoini, A. R. Khorsand, A. Tsukamoto, A. Itoh, L. Duò, A. Kirilyuk, T. Rasing, and M. Ezawa, Phys. Rev. Lett. **110**, 177205 (2013).
- [216] N. Ogawa, S. Seki, and Y. Tokura, Sci. Rep. **5**, 9552 (2015).
- [217] E. A. Stepanov, C. Dutreix, and M. I. Katsnelson, Phys. Rev. Lett. **118**, 157201 (2017).
- [218] G. Berruto, I. Madan, Y. Murooka, G. M. Vanacore, E. Pomarico, J. Rajeswari, R. Lamb, P. Huang, A. J. Kruchkov, Y. Togawa, T. LaGrange, D. McGrouther, H. M. Rønnow, and F. Carbone, Phys. Rev. Lett. **120**, 117201 (2018).
- [219] C. Heo, N. S. Kiselev, A. K. Nandy, S. Blügel, and T. Rasing, Sci. Rep. **6**, 27146 (2016).
- [220] V. Flovik, A. Qaiumzadeh, A. K. Nandy, C. Heo, and T. Rasing, Phys. Rev. B **96**, 140411 (2017).
- [221] S.-G. Je, P. Vallobra, T. Srivastava, J.-C. Rojas-Sánchez, T. H. Pham, M. Hehn, G. Malinowski, C. Baraduc, S. Auffret, G. Gaudin, S. Mangin, H. Béa, and O. Boulle, Nano Lett. **18**, 7362 (2018).
- [222] H. Fujita and M. Sato, Phys. Rev. B **95**, 054421 (2017).
- [223] H. Fujita and M. Sato, Phys. Rev. B **96**, 060407 (2017).
- [224] W. Yang, H. Yang, Y. Cao, and P. Yan, Opt. Express **26**, 8778 (2018).
- [225] H. Katsura, N. Nagaosa, and A. V. Balatsky, Phys. Rev. Lett. **95**, 057205 (2005).
- [226] M. Nakahara, *Geometry, Topology and Physics*, 2nd ed. (CRC Press, Boca Raton, 2003).
- [227] 和達三樹, 『微分・位相幾何』 (岩波書店, 1996).
- [228] 野村健太郎, 『トポロジカル絶縁体・超伝導体』 (丸善出版, 2016).
- [229] B. Berg and M. Lüscher, Nucl. Phys. B **190**, 412 (1981).
- [230] A. Weiße, G. Wellein, A. Alvermann, and H. Fehske, Rev. Mod. Phys. **78**, 275 (2006).
- [231] K. Barros and Y. Kato, Phys. Rev. B **88**, 235101 (2013).
- [232] Z. Wang, G.-w. Chern, C. D. Batista, and K. Barros, J. Chem. Phys. **148**, 094107 (2018).
- [233] K. Barros, J. W. F. Venderbos, G.-W. Chern, and C. D. Batista, Phys. Rev. B **90**, 245119 (2014).
- [234] R. Ozawa, S. Hayami, K. Barros, and Y. Motome, Phys. Rev. B **96**, 094417 (2017).
- [235] T. W. B. Kibble, J. Phys. A **9**, 1387 (1976).
- [236] T. W. B. Kibble, Phys. Rep. **67**, 183 (1980).
- [237] W. H. Zurek, Nature **317**, 505 (1985).
- [238] W. H. Zurek, Phys. Rep. **276**, 177 (1996).
- [239] J. Dziarmaga, Adv. Phys. **59**, 1063 (2010).
- [240] A. Polkovnikov, K. Sengupta, A. Silva, and M. Vengalattore, Rev. Mod. Phys. **83**, 863 (2011).
- [241] A. del Campo and W. H. Zurek, Int. J. Mod. Phys. A **29**, 1430018 (2014).
- [242] N. Furukawa, J. Phys. Soc. Jpn. **65**, 1174 (1996).
- [243] K. Kubo and N. Ohata, J. Phys. Soc. Jpn. **33**, 21 (1972).
- [244] Y. H. Wang, H. Steinberg, P. Jarillo-Herrero, and N. Gedik, Science **342**, 453 (2013).
- [245] F. Mahmood, C.-K. Chan, Z. Alpichshev, D. Gardner, Y. Lee, P. A. Lee, and N. Gedik, Nat. Phys. **12**, 306 (2016).
- [246] E. Perfetto, D. Sangalli, A. Marini, and G. Stefanucci, Phys. Rev. B **92**, 205304 (2015).
- [247] E. Perfetto and G. Stefanucci, Phys. Rev. A **91**, 033416 (2015).
- [248] Y. Kanamori, H. Matsueda, and S. Ishihara, Phys. Rev. Lett. **107**, 167403 (2011).
- [249] E. Iyoda and S. Ishihara, Phys. Rev. B **89**, 125126 (2014).

- [250] Z. Lenarčič, D. Golež, J. Bonča, and P. Prelovšek, *Phys. Rev. B* **89**, 125123 (2014).
- [251] J. Kogoj, L. Vidmar, M. Mierzejewski, S. A. Trugman, and J. Bonča, *Phys. Rev. B* **94**, 014304 (2016).
- [252] C. Shao, T. Tohyama, H.-G. Luo, and H. Lu, *Phys. Rev. B* **93**, 195144 (2016).
- [253] K. Shinjo and T. Tohyama, *Phys. Rev. B* **96**, 195141 (2017).
- [254] N. Bittner, D. Golež, H. U. R. Strand, M. Eckstein, and P. Werner, *Phys. Rev. B* **97**, 235125 (2018).
- [255] J. Fransson, O. Eriksson, and A. V. Balatsky, *Phys. Rev. B* **81**, 115454 (2010).
- [256] J. Fransson, *Phys. Rev. B* **82**, 180411 (2010).
- [257] J. Bauer, M. Babadi, and E. Demler, *Phys. Rev. B* **92**, 024305 (2015).
- [258] P. Ribeiro, F. Zamani, and S. Kirchner, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 220602 (2015).
- [259] P. Ribeiro, A. E. Antipov, and A. N. Rubtsov, *Phys. Rev. B* **93**, 144305 (2016).
- [260] Y. Ohnuma, M. Matsuo, and S. Maekawa, *Phys. Rev. B* **96**, 134412 (2017).
- [261] M. Matsuo, Y. Ohnuma, T. Kato, and S. Maekawa, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 037201 (2018).
- [262] N. Walldorf, D. M. Kennes, J. Paaske, and A. J. Millis, arXiv:1809.08607.
- [263] S. Ydman, M. Hopjan, and C. Verdozzi, *Europhys. Lett.* **123**, 47001 (2018).
- [264] Y. Wang, C.-C. Chen, B. Moritz, and T. P. Devereaux, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 246402 (2018).
- [265] B. K. Agarwalla, M. Kulkarni, S. Mukamel, and D. Segal, *Phys. Rev. B* **94**, 035434 (2016).
- [266] D. Golež, L. Boehnke, H. U. R. Strand, M. Eckstein, and P. Werner, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 246402 (2017).
- [267] P. Ribeiro, *Phys. Rev. B* **96**, 054302 (2017).
- [268] J. Bünnemann and G. Seibold, *Phys. Rev. B* **96**, 245139 (2017).
- [269] D. M. Kennes, A. de la Torre, A. Ron, D. Hsieh, and A. J. Millis, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 127601 (2018).
- [270] Y. Murakami, P. Werner, N. Tsuji, and H. Aoki, *Phys. Rev. B* **94**, 115126 (2016).
- [271] S. Fischer, M. Hecker, M. Hoyer, and J. Schmalian, *Phys. Rev. B* **97**, 054510 (2018).
- [272] K. Ido, T. Ohgoe, and M. Imada, *Sci. Adv.* **3**, e1700718 (2017).
- [273] Y. Murakami, D. Golež, M. Eckstein, and P. Werner, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 247601 (2017).

研究業績

原著論文

- [1] Atsushi Ono, Hiroshi Hashimoto, and Sumio Ishihara,
“Pulse excitation to continuous-wave excitation in a low-dimensional interacting quantum system”,
Physical Review B **94**, 115152 (2016). [Kaleidoscope (Sep. 2016)]
- [2] Atsushi Ono, Hiroshi Hashimoto, and Sumio Ishihara,
“Optical suppression of electron motion in low-dimensional correlated electron system”,
Physical Review B **95**, 085123 (2017).
- [3] Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Double-Exchange Interaction in Optically Induced Nonequilibrium State:
A Conversion from Ferromagnetic to Antiferromagnetic Structure”,
Physical Review Letters **119**, 207202 (2017). [Editors’ Suggestion]
- [4] Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Photocontrol of magnetic structure in an itinerant magnet”,
Physical Review B **98**, 214408 (2018). [Kaleidoscope (Dec. 2018)]
- [5] Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Photoinduced Topological Spin Texture in a Metallic Ferromagnet”,
Journal of the Physical Society of Japan **88**, 023703 (2019).
- [6] Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Nonequilibrium susceptibility in photoinduced Floquet states”,
arXiv:1811.03386 (submitted to Physical Review B).

解説記事

- [1] 石原純夫, 小野淳, 「レーザ光でスピン秩序を操作する」, レーザ加工学会誌 (受理済).

国際会議等における発表

- [1] (Poster) Atsushi Ono, Hiroshi Hashimoto, and Sumio Ishihara,
“Photoinduced Dynamics in One-dimensional Correlated Electron Model”,
French Research Organizations—Tohoku University Joint Workshop on Frontier Materials, Sendai,
Japan, Dec. 2015.

- [2] (Poster) Atsushi Ono, Hiroshi Hashimoto, and Sumio Ishihara,
“Optical suppression of electron motion in low-dimensional Hubbard model”,
CEMS-QPEC Symposium on Emergent Quantum Materials, Tokyo, Japan, Jan. 2016.
- [3] (Poster) Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Optical control of magnetism in double exchange system”,
Photoinduced Phase Transitions (PIPT), Sendai, Japan, Jun. 2017.
- [4] (Invited, Oral) Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Ultrafast optical manipulation of magnetism
—double-exchange interaction in nonequilibrium state—”,
Electron Correlation in Superconductors and Nanostructures (ECSN), Odessa, Ukraine, Aug. 2017.
- [5] (Oral) Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Optical conversion of magnetic structure in strongly correlated itinerant magnets”,
New Generation in Strongly Correlated Electrons Systems (NGSCES), Barcelona, Spain, Sep. 2017.
- [6] (Poster) Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Photoinduced Ferromagnetic-to-Antiferromagnetic Transition in a Correlated Itinerant Magnet”,
Kick-off Symposium for World Leading Research Centers, Sendai, Japan, Feb. 2018.
- [7] (Poster) Atsushi Ono and Sumio Ishihara,
“Photoinduced ferromagnetic-to-antiferromagnetic transition in a correlated itinerant magnet”,
Ultrafast Control of Materials (UCM), Rennes, France, Jun. 2018.

国内学会・研究会等における発表

- [1] (ポスター発表) 小野淳, 橋本博志, 石原純夫,
「低次元強相関系における時間依存する外場による励起ダイナミクスの数値的研究」,
日本物理学会 2014 年秋季大会, 10aPS-27, 中部大学, 2014 年 9 月.
- [2] (口頭発表) 小野淳, 橋本博志, 石原純夫,
「低次元局在電子系における光誘起ダイナミクスの数値的解析」,
日本物理学会第 70 回年次大会, 22pCP-4, 早稲田大学, 2015 年 3 月.
- [3] (口頭発表) 小野淳, 橋本博志, 石原純夫,
「低次元相関電子系における光誘起ダイナミクスと特異な励起光強度依存性」,
日本物理学会 2015 年秋季大会, 19aCF-10, 関西大学, 2015 年 9 月.
- [4] (口頭発表) 小野淳, 橋本博志, 石原純夫,
「低次元ハバード模型における動的局在現象の数値的研究」,
日本物理学会第 71 回年次大会, 19aBH-9, 東北学院大学, 2016 年 3 月.
- [5] (口頭発表) 小野淳, 橋本博志, 石原純夫,
「低次元量子多体系におけるパルス光一連続光励起クロスオーバー現象」,
日本物理学会 2016 年秋季大会, 13aAL-2, 金沢大学, 2016 年 9 月.
- [6] (口頭発表) 小野淳, 石原純夫,
「二重交換系における光照射磁性制御の理論」,
日本物理学会第 72 回年次大会, 18aB14-1, 大阪大学, 2017 年 3 月.

- [7] (口頭発表) 小野淳, 石原純夫,
「強相関遍歴磁性体における光誘起磁性転移とスピнкаイラリティ」,
日本物理学会 2017 年秋季大会, 23aB21-12, 岩手大学, 2017 年 9 月.
- [8] (ポスター発表) 小野淳, 石原純夫,
「強相関遍歴磁性体における光誘起磁性転移のダイナミクス」,
金研ワークショップ「多自由度・多階層性が協奏する物質材料システムの科学」, 2017 年 12 月.
- [9] (口頭発表) 小野淳, 石原純夫,
「相関遍歴磁性体におけるフロケ状態と磁気励起」,
日本物理学会第 73 回年次大会, 24pK502-9, 東京理科大学, 2018 年 3 月.
- [10] (口頭発表) 小野淳, 石原純夫,
「多電子系におけるフロケ状態と感受率」,
日本物理学会 2018 年秋季大会, 9pB106-3, 同志社大学, 2018 年 9 月.

報道発表

- [1] 「光で磁石の性質を消す」, 東北大学プレスリリース, 2017 年 11 月 14 日.
<https://www.tohoku.ac.jp/japanese/2017/11/press20171109-02.html>

外部資金・助成金等

- [1] 一般財団法人丸文財団国際交流助成, 平成 29 年度.
- [2] 科学研究費助成事業 (特別研究員奨励費)
研究課題番号: 18J10246
研究課題名: 強相関遍歴磁性体における光による高速磁性制御の理論
研究期間: 2018 年 4 月 25 日–2020 年 3 月 31 日.

謝辞

本研究を遂行するにあたり多くの方々にお世話になりました。

石原純夫教授には大学院進学以来5年にわたりご指導を賜りました。物理学に関することのみならず、一連の研究活動について周密かつ的確なご助言やご指摘をいただき、研究者として、教育者としてのあべき姿を常に示していただきました。それら全てを会得することは未だ遠い目標ではありますが、それでも進学当初に比して大きく成長できたと言うことができるのは、これまで辛抱強く教え導いていただいた賜物であることは間違いありません。心より感謝申し上げます。

本論文の審査にあたり、主査の柴田尚和准教授をはじめ、岩井伸一郎教授、松原正和准教授、是常隆准教授には貴重なご助言やご批判をいただきました。深謝申し上げます。

仙台高等専門学校の松枝宏明教授には折に触れて気に掛けていただき、また物性物理学のみにとどまらない広範な研究分野を教えていただきました。所属研究室の大槻純也准教授（現・岡山大学）、中惇講師（現・早稲田大学）、横山寿敏助教にはグループセミナー等で貴重なご意見やご助言をいただきました。各先生方に深く感謝いたします。

博士課程の間、一般財団法人丸文財団より国際交流助成、日本学術振興会より特別研究員として多大なるご支援を賜りました。また、本研究の一部は科研費（特別研究員奨励費）JP18J10246の助成を受けたものです。本研究における数値計算の一部は東京大学物性研究所のスーパーコンピュータにより行われました。ここに篤く御礼申し上げます。

最後に、博士課程進学の機会を与えていただき、長きにわたって支援していただいた両親に、心より感謝申し上げます。

平成31年2月