Analysis of Photo-Induced Chirality and Magnetic Toroidal Moment Based on Floquet Formalism

著者：速水（北大）・楠瀬（阪大）

アブスト

私たちは、光誘起による原子スケールのキラリティーと磁気トロイダルモーメントの条件を解析しました。フロケ形式において高周波展開を行うことで、特定の偏光を持つ電磁波と相互作用するスピンを持つs–p混成モデルから、静的な効果的ハミルトニアンを導出しました。高周波展開の最低次および3次の寄与は、微視的なキラリティーに対応する電気的トロイダルモノポールを誘発する結合を引き起こし、2次の寄与は磁気トロイダルダイポールを誘発する結合を提供します。また、電磁波の偏光と誘導される多重極子の条件についても議論します。我々の結果は、電磁波によって従来とは異なる多重極子を制御する新しい方向性を刺激します。

問題意識

- トロイダル多重極モーメントと電磁波との有効相互作用を探求する。

手法とモデル

- フロケ形式により、周期的な時間依存ハミルトニアンを時間非依存なものに変換する。
- 用いるモデルはs-pモデルで、軌道自由度は4つある。

$$ H_0 = \sum_{\sigma, \tau} \epsilon_{\tau} c_{\tau \sigma}^{\dagger} c_{\tau\sigma} + \frac{\lambda}{2} \sum_{\sigma, \sigma', \tau, \tau'} (\mathbf{l} \cdot \mathbf{\sigma})_{\tau\tau'} c_{\tau \sigma}^{\dagger} c_{\tau' \sigma'} $$

第2項はSOCの効果である。スピンの自由度まで考慮すると8個ある。

- これらは64個の多重極自由度がある。 電気モノポール Q_0^s, Q_0^p、電気双極子 $Q = (Q_x, Q_y, Q_z)$、電気四重極 $Q_u, Q_v, Q_{yz}, Q_{zx}, Q_{xy}$、磁気双極子 $M = (M_x, M_y, M_z)$、および磁気トロイダル双極子 $T = (T_x, T_y, T_z)$ が含まれる。

- s-pモデルと電磁場の相互作用を $H_{\rm int}(t) = \boldsymbol{\mu}_e \cdot \boldsymbol{E}(t) + \boldsymbol{\mu}_m \cdot \boldsymbol{B}(t)$ で与える。また、$+z$方向に伝播する電磁波は $\mathbf{E}(t) = E_0(\cos\eta\cos\Omega t, \sin\eta\sin\Omega t, 0)$ 及び $\mathbf{B}(t) = B_0(-\sin\eta\sin\Omega t, \cos\eta\cos\Omega t, 0)$ で与えられる。

- さて、相互作用ハミルトニアンが$2\pi/\Omega$の周期を持つために、フロッケ形式を用いた高周波展開を適用することができる。

$$H_{\rm eff} = H_0 + H_1 + H_2 + H_3 + O(\Omega^{-3})$$

$$H_1 = \sum_{m\neq 0} \frac{[H^{(-m)}, H^{(m)}]}{2m\Omega} = \frac{[H^{(-1)}, H^{(1)}]}{\Omega}$$

$$H_2 = \sum_{m\neq 0} \frac{[[H^{(-m)}, H^{(0)}], H^{(m)}]}{2m^2\Omega^2} = \frac{1}{2\Omega^2}\left([[H^{(-1)}, H^{(0)}], H^{(1)}] + [[H^{(1)}, H^{(0)}], H^{(-1)}]\right)$$

$$H_3 = \sum_{m\neq 0} \frac{[[[H^{(-m)}, H^{(0)}], H^{(0)}], H^{(m)}]}{2m^3\Omega^3} = \frac{1}{2\Omega^3}\left([[[H^{(-1)}, H^{(0)}], H^{(0)}], H^{(1)}] - (1 \leftrightarrow -1)\right)$$

一次の項は

$$H_1 = -\frac{\sin 2\eta}{12\Omega}\left[(E^2 + 3B^2)M_z + 6B^2\left(M_{s,z}^{(s)} + M_{p,z}^{(s)}\right)\right]$$

で、電場が軌道磁化を、磁場が軌道磁化、スピン磁化を誘発することがわかる。

二次の項は

$$H_2 = \frac{1}{4\Omega^2}\left[(H_{2a}^{\perp} + H_{2a}^{\parallel}) + \cos 2\eta, (H_{2b}^{\perp} + H_{2b}^{\parallel})\right]$$

$$H_{2a}^{\perp} = EB\left(3T_z - 2T_z^{(s)}\right)$$

$$H_{2a}^{\parallel} = \frac{E^2}{9}\left(6Q_0^s - 2Q_0^p + 5Q_u\right) - \frac{\sqrt{6}}{6}\left(E^2 + 3B^2\right)\left(2\sqrt{2}Q_0^{(s)} + Q_u^{(s)}\right)$$

$$H_{2b}^{\perp} = -EB\sqrt{2}M_{xy}^{(s)}$$

$$H_{2b}^{\parallel} = -\frac{5E^2}{3\sqrt{3}}Q_v - \frac{\left(E^2 - 3B^2\right)}{6\sqrt{2}}Q_v^{(s)}$$

となる。スピン依存の多重極を誘発するためにはSOCが必要であることも明らかである。二つの磁気トロイダル双極子が出現するのも特徴で、磁気四重極子も出現する。

- 三次項は次のように与えられる。

$$H_3 = \frac{\sin 2\eta}{8\Omega^3}\left(H_3^{\perp} + H_3^{\parallel}\right)$$

$$H_3^{\perp} = -\sqrt{6}EB\left[2(2\Delta + \lambda)G_0^{(s)} + (\Delta - \lambda)G_u^{(s)}\right]$$

$$H_3^{\parallel} = -\frac{1}{3}\left[2E^2\Delta^2 + (E^2 - 3B^2)\Delta^2\right]M_z + \frac{E^2}{3}(4\Delta - \lambda)M_{s,z}^{(s)} - \frac{1}{9}\left[4E^2\Delta - (E^2 - 24B^2)\Delta\right]M_{p,z}^{(s)} + \frac{5\sqrt{10}}{36}\left[4E^2\Delta - (E^2 + 3B^2)\Delta\right]M_{a,z}^{(s)}$$

1次項も3次項も、線偏光を使用した場合には消滅する。また、キラリティーを表す電気トロイダル単極子は、楕円偏光や円偏光によって誘発されることも示されるが、偏光の種類によって誘発される多重極子の種類は異なる。

まとめ

電磁場を取り入れたSOC入りの有効ハミルトニアンを使って、フロケ形式で展開すると、いろいろな多重極子が出てくる。例えば電気トロイダル単極子が出るのは円偏光の場合である。磁気トロイダル双極子は偏光に関わらず誘発される。

感想

- 偏光を記述するパラメータでどの変更にどの多極子が対応しているか見れるのはうれしい。 ただ多極子の具体的表現が欲しいかもしれない……。専門家でないとなかなかわからないので。