

令和 3 年 6 月 20 日現在

機関番号：12608

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2019～2020

課題番号：19K23425

研究課題名（和文）多自由度模型を用いた励起子絶縁体の光操作と高次高調波発生の理論研究

研究課題名（英文）Theoretical study of photo control of excitonic insulators and high-harmonic generation using realistic models

研究代表者

村上 雄太（Murakami, Yuta）

東京工業大学・理学院・助教

研究者番号：70845289

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,000,000円

研究成果の概要（和文）：本研究計画の目的は、多軌道模型を解析することで、励起子絶縁体の非平衡操作に関する理論を構築すること、そして強相関電子系における高次高調波発生の起源を明らかにすることである。励起子絶縁体の非平衡操作に関しては、励起後散乱が本格的に始まる前のPrethermalと呼ばれる状態を使うことで、非平衡特有の励起子絶縁相が出現することを明らかにした。また高次高調波発生の研究においては、強相関特有の励起状態が高次高調波発生が重要な役割を果たすことを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、近年非平衡物性の分野で注目を集めている励起子絶縁体のダイナミクスと高次高調波発生に焦点を当てている。我々の研究成果は、光を用いた物性操作に関する新しい指針を提供しており、今後あたらしいタイプの光誘起相転移や高次高調波発生の観測につながると期待される。また、長期的にはこれらの成果をベースにして光高速スイッチングや通信デバイスへの応用も期待される。

研究成果の概要（英文）：In this project, we aim to theoretically study possible control of excitonic insulators out of equilibrium and to reveal the origin of the high-harmonic generation in strongly correlated systems using multi-orbital models.

In the study of excitonic insulators out of equilibrium, we revealed that there emerges, in the prethermal regime, a nonequilibrium ordered phase with no analogue in equilibrium. In the study of the high-harmonic generation, we showed that excitation structures peculiar in strongly correlated systems play an essential role.

研究分野：非平衡物性理論

キーワード：非平衡物性理論 励起子絶縁体 高次高調波発生

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

物質を光励起すると物性の操作や新機能創造が可能となる。近年、励起子絶縁体における光誘起ダイナミクスの実験や固体における高次高調波発生の実験が盛んに行われている。特に、励起子絶縁体候補 Ta₂NiSe₅ の秩序相の起源に関する議論は活発であり、光誘起実験を用いてその起源を探る試みもなされている。また、半導体 MoS₂ における相互作用増大に伴う高次高調波増大の可能性が実験的に示され話題を呼んでいる。一方、これらの問題は、理論的には相関電子系の非平衡物性ということもあり、理論手法が限られ、現象の理解が進んでいなかった。

2. 研究の目的

多軌道模型を非平衡グリーン関数法などの非平衡手法を用いることで解析し、励起子絶縁相の光誘起ダイナミクスと高次高調波発生における相関効果を明らかにすることである。具体的には、励起子絶縁相の光誘起ダイナミクスの特徴の解明し、秩序相の異なる起源を光誘起ダイナミクスを用いて区別する手法を見つけることを目的とした。さらには、励起子絶縁相を外場で操作する方法を探索し、新しい実験提案を行うことも目的とした。また、高次高調波発生に関しては、相関電子系における光放出過程を調べることで、その起源を明らかにし、実験で報告されるような相関効果の高次高調波発生への影響の有無を明らかにする。

3. 研究の方法

本研究では、多軌道模型で記述される相関電子系を非平衡グリーン関数法などの非平衡手法を用いて解析した。励起子絶縁体に関しては、弱相関と強相関模型の両方の模型を解析した。また、実験との共同研究も行い、実験結果を説明した。高次高調波の研究では、多軌道模型に加えて1軌道 Hubbard 模型の解析も行い、幅広い視点からの研究を行なった。

4. 研究成果

励起子絶縁体に関する研究

近年、候補物質として注目されている Ta₂NiSe₅ に焦点を当て、その集団励起モードに関する理論予言をした。また、実験との共同研究を行い、励起子絶縁体を示唆する集団励起モードの観測に成功した。これら結果は、Ta₂NiSe₅ の秩序相の起源に関する重要な知見を与えている。また、多軌道の強相関電子系の非平衡ダイナミクスも解析し、散乱過程が始まる前に (Prethermal 状態で) 平衡系では期待できないタイプの励起子秩序が発展することを見出した (図 1)。この研究は、Prethermal 状態を用いた非平衡秩序誘起の可能性を新たに示唆するものであり、非平衡物性の研究の新たな方向性を示している。

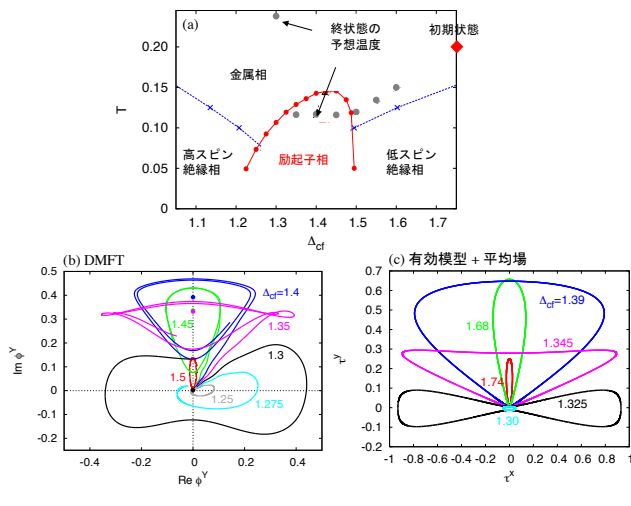


図 1:a) DMFT による 2 バンド Hubbard 模型の相図。ただし、 $U=6$, $U'=4$, $J=I=1$ 、バンド幅 $W=4\sqrt{2}$ を用いている。図中にはクエンチ前の初期状態とクエンチ後の緩和で最終的に行き着く温度(●)を表す。(b)DMFT によるクエンチ後の秩序パラメータ ϕ^Y の軌道。クエンチ後の Δ_{cf} の値は図中であり、●は最終的な秩序パラメータの値である。(c) 有効模型の平均場ダイナミクス。

高次高調波発生に関する研究

強相関電子系の高次高調波発生に関して、いくつかの代表的な模型を調べた。多軌道ハバード模型では、強相関系特有のストリング状態が高次高調波スペクトルに現れることを示した。また、一次元のハバード模型の解析では、多体系の素励起に対する 3 ステップ模型が有効であり(図 2)、この系の高次高調波は多体の励起構造を直接反映することを示した。また、スピン自由度と高次高調波特性の関係も明らかにした。これらの結果は、強相関電子系の高次高調波発生が、半導体とは異なり、多体の素励起と深く関わることを表しており、スピンや温度自由度を用いた高次高調波発生制御の可能性を示している。

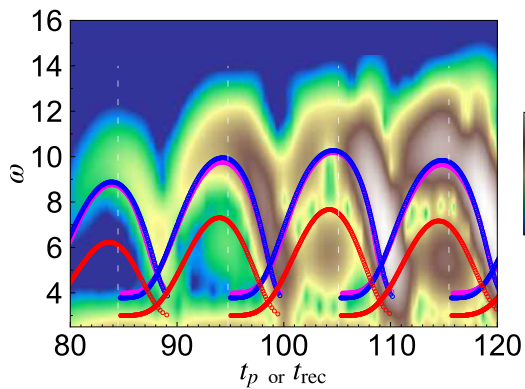


図 2: 一次元 Hubbard 模型におけるサブサイクルスペクトル。赤線は、Bethe 仮説によるダブロン・ホロン分散を用いた 3 ステップ模型の結果。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計11件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 8件 / うちオープンアクセス 1件）

| | |
|--|----------------------|
| 1. 著者名 Y. Murakami, M. Schueler, S. Takayoshi and P. Werner | 4. 巻 101 |
| 2. 論文標題 Ultrafast nonequilibrium evolution of excitonic modes in semiconductors | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Phys. Rev. B | 6. 最初と最後の頁 35203 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.035203 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 A. Koga, T. Minakawa, Y. Murakami, and J. Nasu | 4. 巻 89 |
| 2. 論文標題 Spin transport in the Quantum Spin Liquid State in the S=1 Kitaev model: role of the fractionalized quasiparticles | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 J. Phys. Soc. Jpn. | 6. 最初と最後の頁 33701 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.033701 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 P. Andrich, H. M. Betscher, Y. Murakami, D. Golez, B. Remez, P. Telang, A. Singh, L. Harnagea, N. R. Cooper, A. J. Millis, P. Werner, A. K. Sood, and A. Rao | 4. 巻 2003.10799 |
| 2. 論文標題 Imaging the coherent propagation of collective modes in the excitonic insulator candidate Ta ₂ NiSe ₅ at room temperature | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 arXiv | 6. 最初と最後の頁 - |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |
| 1. 著者名 Murakami Yuta, Golez Denis, Kaneko Tatsuya, Koga Akihisa, Millis Andrew J., Werner Philipp | 4. 巻 101 |
| 2. 論文標題 Collective modes in excitonic insulators: Effects of electron-phonon coupling and signatures in the optical response | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 195118 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.195118 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Inayoshi Ken, Murakami Yuta, Koga Akihisa | 4. 巻 89 |
| 2. 論文標題 Excitonic Condensation Reflecting Electronic States in Two-Band Penrose Hubbard Model | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan | 6. 最初と最後の頁 064002 ~ 064002 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.89.064002 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|---------------------|
| 1. 著者名 Minakawa Tetsuya, Murakami Yuta, Koga Akihisa, Nasu Joji | 4. 巻 125 |
| 2. 論文標題 Majorana-Mediated Spin Transport in Kitaev Quantum Spin Liquids | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review Letters | 6. 最初と最後の頁 47204 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.125.047204 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Schuler Michael, Golez Denis, Murakami Yuta, Bittner Nikolaj, Herrmann Andreas, Strand Hugo U.R., Werner Philipp, Eckstein Martin | 4. 巻 257 |
| 2. 論文標題 NESSi: The Non-Equilibrium Systems Simulation package | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Computer Physics Communications | 6. 最初と最後の頁 107484 ~ 107484 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.cpc.2020.107484 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|--|----------------------|
| 1. 著者名 Golez Denis, Sun Zhiyuan, Murakami Yuta, Georges Antoine, Millis Andrew J. | 4. 巻 125 |
| 2. 論文標題 Nonlinear Spectroscopy of Collective Modes in an Excitonic Insulator | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review Letters | 6. 最初と最後の頁 257601 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.125.257601 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|---|---------------------|
| 1. 著者名 Murakami Yuta, Takayoshi Shintaro, Koga Akihisa, Werner Philipp | 4. 巻 103 |
| 2. 論文標題 High-harmonic generation in one-dimensional Mott insulators | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 35110 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.103.035110 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|---|----------------------|
| 1. 著者名 Werner Philipp, Murakami Yuta | 4. 巻 102 |
| 2. 論文標題 Nonthermal excitonic condensation near a spin-state transition | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 241103 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.241103 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

| | |
|--|----------------------|
| 1. 著者名 Lysne Markus, Murakami Yuta, Werner Philipp | 4. 巻 101 |
| 2. 論文標題 Signatures of bosonic excitations in high-harmonic spectra of Mott insulators | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Physical Review B | 6. 最初と最後の頁 195139 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.195139 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 該当する |

〔学会発表〕 計5件 (うち招待講演 1件/うち国際学会 1件)

| |
|---|
| 1. 発表者名 Y. Murakami, S. Takayoshi, M. Schueler, M. Eckstein, P. Werner |
| 2. 発表標題 強相関電子系および量子スピン系からの高次高調波発生 |
| 3. 学会等名 第29回日本MRS年 (招待講演) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Y. Murakami, S. Takayoshi, M. Schueler, M. Eckstein, P. Werner |
| 2. 発表標題 High Harmonic Generation from Periodically Driven Mott Insulators |
| 3. 学会等名 APPC 2019 (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Y. Murakami, D. Golez, T. Kaneko, A. Koga, A. J. Millis, and P. Werner |
| 2. 発表標題 励起子絶縁相における集団励起モードへの電子格子相互作用の影響と観測可能性 |
| 3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--------------------------------------|
| 1. 発表者名 村上雄太, Philipp Werner |
| 2. 発表標題 Spin状態転移近傍における励起子凝縮の非平衡理論 |
| 3. 学会等名 日本物理学会2020秋 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 村上雄太, 高吉慎太郎, 古賀昌久, Philipp Werner |
| 2. 発表標題 一次元Mott絶縁体からの高次高調波発生: ダブロン・ホロンに対する3ステップ模型とスピンドYNAMIKSの効果 |
| 3. 学会等名 日本物理学会2021春 |
| 4. 発表年 2021年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

| | 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
|--|---------------------------|-----------------------|----|
|--|---------------------------|-----------------------|----|

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
|---------|---------|