

令和 5 年 5 月 20 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2022

課題番号：18K13509

研究課題名(和文) 励起子絶縁体の光誘起ダイナミクスに関する理論的研究

研究課題名(英文) Theoretical study on photoinduced dynamics of excitonic insulators

研究代表者

金子 竜也 (Kaneko, Tatsuya)

大阪大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：30784433

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：電子-ホール間のクーロン相互作用によって形成される励起子絶縁体及びその候補物質で現れる非平衡物性の理解を目標として、相関電子系の光誘起ダイナミクスを研究した。励起子絶縁体の動的な物性、特に、秩序状態の集団励起モードとその線形および非線形光学応答に関する研究で成果を得た。また、励起子絶縁体の研究に限らず、相関電子系で光誘起される超伝導的状態(ペア状態)の理論や、高次高調波発生における励起子効果の研究でも成果を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

これまでの物性物理はその多くが平衡および線形応答領域において研究が進められてきたため、未開拓な非平衡・非線形応答領域における物性の研究は相関電子系の物理に新たな知見をもたらすものである。本研究で対象とした励起子絶縁体は、その秩序状態が対凝縮の物理のエッセンスを含むなど、物性物理の本質的な側面を多く含んだ舞台となっている。その励起子絶縁体の光誘起による非平衡物性の研究は、量子物質における集団運動の普遍的な性質の理解にもつながる有意義なものである。また、非線形光学応答や物性の超高速な外場制御は基礎だけでなく応用の観点からも重要である。

研究成果の概要(英文)：In this project, we investigate photoinduced dynamics of correlated electron systems to understand the nonequilibrium properties of the excitonic insulators driven by the Coulomb interactions. We revealed the dynamical properties of the excitonic insulators including the collective mode of the excitonic order and its linear and nonlinear optical responses. Besides the studies of the excitonic insulators, we also investigate the photoinduced superconducting-like (-pairing) state and the excitonic effects on high-harmonic generation in strongly correlated electron systems.

研究分野：物性理論

キーワード：励起子絶縁体 光誘起ダイナミクス 非平衡物理 非線形光学応答 強相関電子系 遷移金属カルコゲナイト

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

励起子絶縁体は電子-ホール間に働くバンド間クーロン相互作用によって絶縁化した状態のことで、近年にいくつかの候補物質が報告されその物性が理論・実験の両面から注目されている。遷移金属カルコゲナイド系の候補物質においては、励起子絶縁体として検討されている低温秩序相の起源解明に向け、ポンプ-プローブ法などを用いた光誘起ダイナミクスの研究が実験的に進められていた。これらの実験に解釈を与えるためにも励起子絶縁体及びその候補物質の非平衡ダイナミクスの理論的な研究が求められていた。

2. 研究の目的

励起子絶縁体及びその候補物質における動的な物性の理解に向け、関連電子系の光誘起ダイナミクスを解明するのが本研究の目的である。研究対象は励起子絶縁体だけに限定せず、様々な関連電子系の非平衡現象の研究も進め、当該分野へ新たな知見を提供することも目標とした。

3. 研究の方法

本研究では多彩な数値計算法を駆使して関連電子系の非平衡ダイナミクスを調べた。励起子絶縁体における秩序状態の集団励起ダイナミクスを研究する場合は、時間依存平均場近似を用いた。Hubbard 模型などの関連電子模型の外場照射下における実時間ダイナミクスの研究には、非摂動的な手法である厳密対角化法(時間発展 Lanczos 法)を主に用いた。1次元系の研究では、共同研究者の協力によって、密度行列繰り込み群法や行列積状態を用いた手法によってサイズの大きい系の計算結果も得た。

4. 研究成果

励起子絶縁体に関する研究成果を以下の(1)-(3)でまとめ、それ以外の関連電子系の非平衡ダイナミクスに関する研究成果を(4)-(6)にまとめる。本研究課題は、海外特別研究員制度による海外派遣によって2019年度から2021年度にかけての中断期間がある。海外派遣中にも本研究課題と関連した研究を進めたため、中断期間中の研究成果も一部含めて報告する。

(1) 励起子絶縁体候補物質 TiSe_2 及び Ta_2NiSe_5 の理論的研究

遷移金属ダイカルコゲナイド TiSe_2 は低温で電荷密度波(CDW)状態を成すが、価電子帯と伝導帯がわずかに重なったバンド構造から励起子絶縁体の可能性が議論されてきた。論文[1]では第一原理的な電子構造計算から強束縛模型のパラメータを抽出し、CDW状態を誘起しうる電子-格子相互作用とバンド間クーロン相互作用の両方を加味した有効模型の解析を行った。3つの横波フォノンモードが同時にソフト化した triple- q CDW 状態が低温で実現し、秩序状態の形成に励起子相互作用が寄与しうることを明らかにした。遷移金属カルコゲナイド Ta_2NiSe_5 は擬一次元構造を持つ励起子絶縁体の候補物質であるが、その物性の理解に向けて近年に様々な光学特性の測定が行われている。論文[2]では電子構造計算と有効模型の密度行列繰り込み群法を用いた数値計算によって光学スペクトルの理論解析を行った。計算より、実験で測定されていた光学伝導度スペクトルのギャップ構造に励起子相関による寄与が効いている可能性を示唆した。これら関連物質における研究は、現実的な励起子絶縁体物質の理解だけでなく、物質の本質を掴み模型を単純化して解析する際にとっても有用なものである。

論文：[1] Phys. Rev. B **97**, 155131 (2018) [2] Phys. Rev. Lett. **120**, 247602 (2018)

(2) 励起子絶縁体の集団励起モードに対する電子-格子相互作用の効果

励起子絶縁体の光誘起ダイナミクスを研究する上で、秩序状態の集団励起モードの理解は重要である。特に、上述した候補物質においては低温秩序相の形成に励起子相関だけでなく電子-格子相互作用も重要であることが知られており、フォノンの効果も加味した集団励起モードの理解が求められていた。論文[3]では、動的相関関数の計算から秩序変数の振幅と位相の揺らぎからくる振幅モードと位相モードのクーロン相互作用の大きさに依存した性質の変化について明らかにし、それに加え電子-格子相互作用の寄与を調べた。ここでは、格子の効果による励起ギャップやフォノンモードと位相モードの混成によるスペクトルの変化を明らかにした。本研究で得た結果は励起子絶縁体の候補物質における光学的な集団励起ダイナミクスの理解に有用である。

論文：[3] Phys. Rev. B **101**, 195118 (2020)

(3) 励起子絶縁体の非線形光学応答

強い外場によって誘起される非線形光学応答も近年の重要な研究課題の一つとなっており、励起子絶縁体及びその秩序変数の集団励起が示す非線形光学効果について研究した。空間反転対称性がある場合、秩序変数は電場に対して二次で応答するため単純な励起子絶縁体の集団励起を線形応答領域で光学的に捉えるのは難しいが、三次光学応答においてはその効果が顕著に現れる可能性がある。論文[4]では励起子絶縁体の第三次高調波発生スペクトルを計算し、三次光学応答において励起子秩序の振幅モードの寄与が顕著に現れることを示唆した。また、論文[5]では励起子絶縁体における二次光学応答を研究するため、強誘電性を有する励起子絶縁体に着目した。特に、光照射によって直流電流が発生するバルク光起電力効果に対して励起子秩序の集団励起が与える影響を調べ、秩序変数を介した動的な電子構造の変化がバルク光起電力効果を増強し得ることを示した。

論文：[4] Phys. Rev. B **104**, 45103 (2021) [5] Phys. Rev. Lett. **127**, 127402 (2021)

(4) Mott-Hubbard 系における光誘起 η -pairing 状態

励起子絶縁体だけでなく、クーロン相互作用由来の絶縁体である Mott 絶縁体においても光誘起ダイナミクスを研究した。論文[6]では、Mott 絶縁体を記述する Hubbard 模型の光励起状態において、ペア密度波的な超伝導相関が発達した η -pairing 状態が実現することを示した。30 年以上前に提案された η -pairing は平衡状態で実現しなかったが、光照射で誘起された非平衡状態で η -pairing 相関が発達することを厳密対角化法による計算から示し、対称性に基づく光学的選択則から η -pairing 状態の光誘起メカニズムを明らかにした。この研究はこれまでにない光誘起超伝導の新しい道筋を示唆したものである。論文[7]においては η -pairing 状態の伝導特性と長距離相関の関係を示した。また、論文[8]では 1 次元 Mott 絶縁体の光ドーピングされた準安定状態に着目し、1 次元系でよく知られた電荷とスピンの分離に加え、キャリアを記述する η に対する自由度も分離していることを示した。

論文：[6] Phys. Rev. Lett. **122**, 077002 (2019) [7] Phys. Rev. Research **2**, 032027 (2020)

[8] Phys. Rev. Lett. **130**, 106501 (2023)

(5) 光駆動された相関電子模型のペア状態

(4)の研究と関連して様々な相関電子模型の光誘起状態の研究も行った。論文[9]では、Hubbard 模型と類似性があり、励起子絶縁体を記述する最も単純な模型である拡張 Falicov-Kimball 模型の光誘起ダイナミクスを調べ、Hubbard 模型の η -pairing に相当する電子-電子ペア相関が励起子絶縁体の光励起状態でも発達することを明らかにした。論文[10]では、Hubbard 模型の相互作用を引力とした引力 Hubbard 模型において外場駆動された状態の相関関数を計算した。引力 Hubbard 模型では平衡状態において従来型の超伝導状態と CDW 状態がエネルギー的に近い状況にあるが、引力相互作用に対する駆動周波数の大小によって、優先的に超伝導と CDW のそれぞれを誘起できる領域が存在することを明らかにした。ここで用いた外場駆動された少数サイト系の非平衡状態を数値厳密解法で調べるアプローチは様々な相関電子模型に応用可能であり、今後の研究で多くの成果をもたらす手法になると期待している。

論文：[9] Phys. Rev. B **100**, 045121 (2019) [10] Phys. Rev. B **101**, 235122 (2020)

(6) Mott 絶縁体の高次高調波発生に対する励起子効果

固体での非摂動領域における高次高調波発生が実現して以降、強相関電子系においても高次高調波発生の研究が進められている。Hubbard 模型における単純な Mott 絶縁体に関する研究がこれまで進められてきたが、論文[11]では励起キャリアが非局所クーロン相互作用によって励起子を組む場合の高次高調波発生について調べた。サイト間相関を入れた拡張 Hubbard 模型の高次高調波発生ダイナミクスを有限系の厳密対角化法及び無限系を扱える infinite time-evolving block decimation (iTEBD) 法を用いて解析し、励起子のエネルギー準位付近において高次高調波の強度が上昇することを示した。この結果は、励起子が高次高調波発生に有利に働き得ることを示唆しているが、サブサイクルのスペクトルの解析から従来の Mott 絶縁体とは異なるメカニズムで高次高調波発生が起こっていることも示した。今後、静電場下におけるシュタルク効果の解析なども組み合わせて、そのメカニズムの詳細が解明されることを期待している。

論文：[11] Phys. Rev. B **105**, L241108 (2022)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計16件（うち査読付論文 15件 / うち国際共著 9件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Tatsuya Kaneko, Yukinori Ohta, Seiji Yunoki	4. 巻 97
2. 論文標題 Exciton-phonon cooperative mechanism of the triple-q charge-density-wave and antiferroelectric electron polarization in TiSe ₂	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 155131/1-23
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.97.155131	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 Koudai Sugimoto, Satoshi Nishimoto, Tatsuya Kaneko, Yukinori Ohta	4. 巻 120
2. 論文標題 Strong Coupling Nature of the Excitonic Insulator State in Ta ₂ NiSe ₅	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 247602/1-5
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.120.247602	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 Hisao Nishida, Shohei Miyakoshi, Tatsuya Kaneko, Koudai Sugimoto, Yukinori Ohta	4. 巻 99
2. 論文標題 Spin texture and spin current in excitonic phases of the two-band Hubbard model	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 035119/1-12
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.99.035119	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 Shunsuke Kitou, Shintaro Kobayashi, Tatsuya Kaneko, Naoyuki Katayama, Seiji Yunoki, Toshikazu Nakamura, Hiroshi Sawa	4. 巻 99
2. 論文標題 Honeycomb lattice type charge density wave associated with interlayer Cu ions ordering in 1T-Cu _x TiSe ₂	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 081111/1-6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.99.081111	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 Tatsuya Kaneko, Tomonori Shirakawa, Sandro Sorella, Seiji Yunoki	4. 巻 122
2. 論文標題 Photoinduced Pairing in the Hubbard Model	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 077002/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.122.077002	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 Ryo Fujiuchi, Tatsuya Kaneko, Yukinori Ohta, Seiji Yunoki	4. 巻 100
2. 論文標題 Photoinduced electron-electron pairing in the extended Falicov-Kimball model	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 045121/1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.100.045121	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 Ryo Fujiuchi, Tatsuya Kaneko, Koudai Sugimoto, Seiji Yunoki, Yukinori Ohta	4. 巻 101
2. 論文標題 Superconductivity and charge density wave under a time-dependent periodic field in the one-dimensional attractive Hubbard model	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 235122/1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.101.235122	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 Yuta Murakami, Denis Golez, Tatsuya Kaneko, Akihisa Koga, Andrew J. Millis, Philipp Werner	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 195118/1-17
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 Tatsuya Kaneko, Seiji Yunoki, Andrew J. Millis	4. 巻 2
2. 論文標題 Charge stiffness and long-range correlation in the optically induced d -pairing state of the one-dimensional Hubbard model	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 032027(R)/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.2.032027	査読の有無 有
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 Tatsuya Kaneko, Zhiyuan Sun, Yuta Murakami, Denis Golez, Andrew J. Millis	4. 巻 127
2. 論文標題 Bulk Photovoltaic Effect Driven by Collective Excitations in a Correlated Insulator	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 127402/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.127.127402	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 Zhiyuan Sun, Tatsuya Kaneko, Denis Golez, Andrew J. Millis	4. 巻 127
2. 論文標題 Second-Order Josephson Effect in Excitonic Insulators	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 127702/1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.127.127702	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 Tetsuhiro Tanabe, Tatsuya Kaneko, Yukinori Ohta	4. 巻 104
2. 論文標題 Third-harmonic generation in excitonic insulators	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 245103/1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.245103	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 Tatsuya Kaneko, Yuta Murakami, Shintaro Takayoshi, Andrew J. Millis	4. 巻 105
2. 論文標題 Second-order magnetic responses in quantum magnets: Magnetization under ac magnetic fields	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 195126/1-8
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.195126	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 Mina Udono, Koudai Sugimoto, Tatsuya Kaneko, Yukinori Ohta	4. 巻 105
2. 論文標題 Excitonic effects on high-harmonic generation in Mott insulators	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L241108/1-5
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.L241108	査読の有無 無
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 Qi Sheng, Tatsuya Kaneko, Kohtarō Yamakawa, Zurab Guguchia, Zizhou Gong, Guoqiang Zhao, Guangyang Dai, Changqing Jin, Shengli Guo, Licheng Fu, Yilun Gu, Fanlong Ning, Yipeng Cai, Kenji M Kojima, James Beare, Graeme M. Luke, Shigeki Miyasaka, Masato Matsuura, Shin-ichi Shamoto, Yasutomo J. Uemura et al.	4. 巻 4
2. 論文標題 Two-step Mott transition in Ni(S,Se)2: μ SR studies and charge-spin percolation model	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Research	6. 最初と最後の頁 033172/1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevResearch.4.033172	査読の有無 有
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 Yuta Murakami, Shintaro Takayoshi, Tatsuya Kaneko, Andreas M. Lauchli, Philipp Werner	4. 巻 130
2. 論文標題 Spin, Charge, and π -Spin Separation in One-Dimensional Photodoped Mott Insulators	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 106501/1-7
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.130.106501	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9件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Kaneko Tatsuya, Shirakawa Tomonori, Sorella Sandro, Yunoki Seiji
2. 発表標題 Pulse-induced d -pairing correlation in a Mott-Hubbard system
3. 学会等名 International Conference on Magnetism (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金子竜也、白川知功、柚木清司
2. 発表標題 Hubbard模型における光誘起 d -pairing状態のスペクトル構造
3. 学会等名 日本物理学会 (2018年秋季大会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 金子竜也、白川知功、柚木清司
2. 発表標題 Hubbard模型における光誘起 d -pairing状態の理論的研究
3. 学会等名 日本物理学会 (2019年年次大会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 金子竜也, Zhiyuan Sun, 村上雄太, Denis Golez, Andrew J. Millis
2. 発表標題 空間反転対称性の破れた励起子絶縁体の集団励起モードと光学応答
3. 学会等名 日本物理学会 (2020年秋季大会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Tatsuya Kaneko, Zhiyuan Sun, Yuta Murakami, Denis Golez, Andrew J. Millis
2. 発表標題 DC photocurrent in a ferroelectric excitonic insulator
3. 学会等名 APS March Meeting (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 金子竜也, Zhiyuan Sun, 村上雄太, Denis Golez, Andrew J. Millis
2. 発表標題 強誘電性をもつ励起子絶縁体における非線形光学効果
3. 学会等名 日本物理学会 (2021年秋季大会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Tatsuya Kaneko, Yuta Murakami, Denis Golez, Zhiyuan Sun, Andrew J. Millis
2. 発表標題 Exciton-spin interaction in charge-transfer insulators
3. 学会等名 APS March Meeting (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 金子竜也, 村上雄太, Denis Golez, Zhiyuan Sun, Andrew J. Millis
2. 発表標題 電荷移動型絶縁体における励起子-スピン相互作用
3. 学会等名 日本物理学会 (2023年春季大会)
4. 発表年 2023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			
米国	Columbia University	Flatiron Institute		
ドイツ	IFW Dresden	TU Dresden		
スイス	University of Fribourg	Paul Scherrer Institute		
イタリア	SISSA			
スロベニア	Jozef Stefan Institute			
中国	Tsinghua University			