



|              |                                                                               |
|--------------|-------------------------------------------------------------------------------|
| Title        | Theory of nonlinear optical responses in moiré materials                      |
| Author(s)    | 城谷, 宇映                                                                        |
| Citation     | 大阪大学, 2026, 博士論文                                                              |
| Version Type | VoR                                                                           |
| URL          | <a href="https://doi.org/10.18910/105640">https://doi.org/10.18910/105640</a> |
| rights       |                                                                               |
| Note         |                                                                               |

*The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA*

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

The University of Osaka

論 文 内 容 の 要 旨

|                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                   |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| 氏 名 ( 城 谷 宇 映 )                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                             |                                                                                   |
| 論文題名                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                                        | Theory of nonlinear optical responses in moiré materials<br>(モアレ物質における非線形光学応答の理論) |
| <p>In the present thesis, we have performed a systematic theoretical study of nonlinear optical responses in moiré materials. Moiré materials, formed by stacking two-dimensional crystals with a relative twist or lattice mismatch, generate long-wavelength superlattices that strongly reconstruct electronic band structures. This reconstruction can produce moiré flat bands, providing a highly tuneable platform for exploring quantum phenomena. In parallel, nonlinear optical responses have emerged as powerful probes of electronic properties, owing to their sensitivity to symmetry, band topology, and quantum geometry beyond linear-response measurements.</p> <p>In this work, we investigate the second-order optical responses in twisted double bilayer graphene (TDBG), a moiré system composed of two AB-stacked bilayer graphene sheets twisted relative to each other. Depending on the relative orientation of the bilayers, TDBG realises two stacking variants, AB-AB and AB-BA, which possess different symmetries while hosting very similar electronic band structures. We focus in particular on the shift current and second-harmonic generation (SHG), which are frequency-mixing responses allowed only in noncentrosymmetric crystals. The shift current is a rectified dc photocurrent generated under illumination and is closely connected to band topology through the Berry connection, while SHG is the complementary frequency-doubling process shaped by the coexistence of one-photon and two-photon excitation channels. Moiré flat bands enhance the joint density of states and can significantly amplify these nonlinear optical signals.</p> <p>Using TDBG as a concrete example, we perform a systematic theoretical analysis of the shift current and SHG as functions of the twist angle, Fermi level, vertical bias voltage, and stacking configuration. We find that both responses are strongly enhanced as the twist angle is reduced. This enhancement originates from the formation of moiré flat bands, which concentrate low-energy interband transitions within a narrow energy window, leading to a large joint density of states. In the case of SHG, we further identify an enhancement mechanism arising from an abundance of a double-resonant processes enabled by the dense spectrum of moiré flat bands. Unlike in non-moiré systems, TDBG supports simultaneous one-photon and two-photon excitation channels over wide regions of the moiré Brillouin zone, resulting in a qualitatively distinct resonant enhancement of SHG.</p> <p>We also find that second-order optical responses in TDBG exhibit a pronounced sensitivity to the Fermi energy. In the low-frequency regime, the response is dominated by transitions between neighbouring moiré flat bands. As the Fermi level is tuned across successive band edges, the dominant contributing transitions change abruptly, giving rise to sign reversals in the shift current and corresponding phase shifts in SHG. This behaviour contrasts with the smooth carrier-density dependence typical of conventional materials and reflects the reconstructed band structure characteristic of moiré systems.</p> <p>Finally, we uncover a systematic relation between the nonlinear optical responses of the two stacking variants of TDBG, AB-AB and AB-BA. At large vertical bias, the shift current below charge neutrality exhibits opposite signs in the two configurations, corresponding to a relative <math>\pi</math>-phase shift in SHG. By analysing an uncoupled TDBG model in which moiré coupling is switched off, we show that this behaviour can be qualitatively understood as a consequence of the 180-degree relative rotation of one bilayer, which reverses the in-plane polarisation. This stacking-dependent signature remains visible even after incorporating the full moiré-induced band reconstruction, highlighting the importance of stacking geometry in determining second-order optical responses in TDBG.</p> <p>Taken together, these findings clarify the role of moiré band reconstruction and stacking geometry in second-order optical signals, and offer a systematic perspective on engineering nonlinear optical responses in moiré materials.</p> |                                                                                   |

論文審査の結果の要旨及び担当者

| 氏 名 ( 城谷 宇映 ) |     |              |
|---------------|-----|--------------|
| 論文審査担当者       | (職) | 氏 名          |
|               | 主 査 | 教 授          |
|               | 副 査 | 教 授          |
|               | 副 査 | 准教授          |
|               | 副 査 | 准教授          |
|               | 副 査 | 助 教          |
|               |     | 越野 幹人        |
|               |     | 浅野 建一        |
|               |     | Keith Slevin |
|               |     | 竹森 那由多       |
|               |     | 川上 拓人        |

論文審査の結果の要旨

二次元物質を相対的に回転させ、あるいは格子定数の異なる結晶を重ね合わせることによって形成されるモアレ物質は、長周期の超格子構造を生み出し、電子バンド構造を劇的に再構成することから、近年、強相関物性やトポロジカル物性を探究するための重要な研究対象となっている。特にモアレ平坦バンドの形成は、電子状態を高度に制御可能な舞台を提供し、新奇な量子現象の発現をもたらす。一方で、非線形光学応答は、結晶対称性やバンドトポロジー、量子幾何といった線形応答では捉えられない電子状態の本質に鋭敏に反応することから、物質物性を調べるための強力なプローブとして近年注目を集めている。

城谷宇映氏の博士論文は、モアレ物質研究と非線形光学応答研究という二つの研究潮流を結びつけ、モアレ物質における非線形光学応答を体系的に研究したものである。特に、モアレ物質に特有なバンド再構成が二次の光学応答にどのような影響を及ぼすかを明らかにしている。本論文では、ツイスト二重二層グラフェン（twisted double bilayer graphene: TDBG）を対象として、シフト電流（光照射下で生じる直流光電流）および第二高調波発生（second-harmonic generation: SHG）に関する理論的解析が行われた。TDBG は、AB 積層された二つの二層グラフェンを相対的に回転させたモアレ系であり、AB-AB および AB-BA の二種類のスタッキング配置をとることができる。これら二つの系は、電子バンド構造が非常に類似している一方で、対称性およびバンドトポロジーが異なるという特徴を有している。城谷氏は、ツイスト角、フェルミ準位、垂直バイアス電圧、およびスタッキング構造を制御変数として、TDBG のシフト電流および SHG の体系的な理論計算を行った。

その結果、本論文における最も重要な成果として、ツイスト角の減少に伴い、シフト電流および第二高調波発生（SHG）の両応答が顕著に増強されることが示された。さらに、この増強が、モアレ平坦バンドの形成により結合状態密度が著しく増大することに起因することが明確に示された。特に SHG に関しては、モアレ平坦バンドによる高密度な準位構造により、同一の波数点で一光子過程と二光子過程が同時に共鳴する二重共鳴過程が多数実現されることを見だし、非モアレ系とは質的に異なる共鳴増強機構を提示している。さらに、二次光学応答がフェルミ準位に対して極めて鋭敏に依存することを明らかにした。このような挙動は、通常の結晶に見られる滑らかなキャリア密度依存性とは対照的であり、モアレ系特有のバンド再構成を反映した現象である。加えて、大きな垂直バイアス電圧下では、AB-AB と AB-BA の二つのスタッキング配置の間に、非線形光学応答に関する系統的な関係が存在することを明らかにした。すなわち、電荷中性点以下におけるシフト電流の符号が両者で反転し、これに対応して第二高調波発生（SHG）の位相が $\pi$ だけずれることを示した。この結果は、二次光学応答を用いてスタッキング構造を識別できることを示す点でも重要である。

以上のように、本論文は、モアレ物質におけるバンド再構成が二次非線形光学応答に与える影響を、具体的かつ体系的に解明したものである。得られた知見はモアレ物質における非線形光学応答の理解を大きく前進させるとともに、将来的な光機能物質の設計に向けた指針を与えるものであり、その学術的価値は高い。以上の理由から、本論文は博士（理学）の学位論文として十分な価値を有するものと認める。