

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 6 年 5 月 22 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2023

課題番号：20K14412

研究課題名（和文）強相関電子系における非平衡定常状態のための理論手法開発と秩序相の光誘起の研究

研究課題名（英文）Theoretical study of nonequilibrium steady states in strongly correlated systems and ordered phases

研究代表者

村上 雄太（Murakami, Yuta）

国立研究開発法人理化学研究所・創発物性科学研究センター・研究員

研究者番号：70845289

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 2,800,000円

研究成果の概要（和文）：Mott絶縁体を光で励起すると複数タイプの光キャリアが生成される。これらのキャリアの寿命はギャップが大きい場合には非常長くなることが知られている。そのため、緩和過程においてはまずキャリアの数は変わらず、キャリアの温度が低下し、準定常的な状態が実現されると考えられる。我々は、このようなMott絶縁体における光ドーピング由来する準定常的な状態の性質を明らかにすべく研究を行ってきた。このような非平衡状態を系統的に記述する方法を開発し、それを用いてペアリング相と呼ばれる特殊な超伝導相を含む様々な非自明な非平衡相の存在を予言した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の学術的意義は以下のようになる。Mott絶縁体は電子相関が支配する物質であり、その特性を理解することは量子物質科学や凝縮物理学の基礎的な理解を深める上で重要である。光ドーピングによって生成される準定常状態の性質を明らかにすることは、新しい物理現象や相の発見につながる可能性がある。また、非平衡状態の系統的な記述方法の開発は、今後の非平衡量子系の研究にも有益な知見を提供すると期待する。また、社会的には本研究は新しい量子材料の設計や応用に向けた基盤を提供する可能性がある。光で励起された超伝導相やその他の非平衡相の理解は、高効率エネルギー変換や情報処理などの分野に役立つ可能性がある。

研究成果の概要（英文）：When exciting a Mott insulator with light, multiple types of charge carriers are generated. It is known that the lifetimes of these carriers become extremely long when the bandgap is large. Therefore, in the relaxation process, it is thought that initially the number of carriers remains unchanged, while the carrier temperature decreases and a quasi-steady state is achieved. We have conducted research to elucidate the properties of such quasi-steady states originating from photo-doping in Mott insulators. We have developed a method to systematically describe such non-equilibrium states and have used it to predict the existence of various nontrivial non-equilibrium phases, including a special superconducting phase called the π -pairing phase.

研究分野：物性理論

キーワード：非平衡物性 光誘起相転移

1. 研究開始当初の背景

物質を光励起すると物質の新情報獲得や物性の高速操作が可能となる。このため、光誘起ダイナミクスへの理解は、応用的、基礎物理学的にも重要である。近年、超伝導(SC)相などの秩序相を巡り、多くの興味深い現象が報告され話題を呼んでいる。

中でも SC に関する Max Planck 研究所の Cavalleri グループによる高強度中赤外レーザーを用いた一連の実験が注目されている。例えば、ストライプ相と SC 相が競合する銅酸化物 LESCO を用いて、ストライプ相にレーザーを当て特定のフォノンを共鳴的に励起した。これにより光学応答が劇的に変化し、層状物質の SC 相に特有のジョセフソンプラズマが出現し、光学応答の虚部にはマイルスナー効果を彷彿させる $1/\omega$ の様な振る舞いの誘起され、この状態が数ピコ秒以上安定化するという報告がされている。また、最近では物性研の辛研究室にて FeSe の光励起後、電子の非平衡分布が長時間続き、スペクトルに SC ギャップを彷彿させる構造を示す非平衡状態の誘起が報告された。

一方、これらの劇的な変化の起源は未だ明らかではなく、SC 以外の可能性も含め様々な理論提案がなされている。しかし、これまでの理論研究では励起後の実時間発展を直接追う解析が主であり、従来の手法では膨大な計算コストのため物質の詳細を考慮した有効モデルの解析は難しく詳細を考慮しない基礎モデルの解析が中心であった。さらに、解析可能な時間スケールも数十 fs から百 fs 程度で、上記の実験で重要となるピコ秒スケールに比べ短かった。このため、提案された理論の実際の物質での有効性は明らかではなく、実験で報告された特異な非平衡現象の全貌が理解されていない。そのため、基礎モデルを超え物質の詳細を含んだ有効モデルに対し長時間安定な状態を記述出来る新手法の開発とそれを用いた光誘起現象の起源解明が必要である。

2. 研究の目的

本研究では、実時間発展の解析という視点から離れ、これらの長時間出現する状態にある種の非平衡定常状態と捉えることで、現象の理解を目指す。しかし、強相関係の非平衡定常状態の手法は、ほとんど整備されていない。本研究では、一軌道 Hubbard 軌道などの基礎モデルから出発し手法もしくは理論的枠組みの開発を進め、フォノンや軌道の自由度を含むより現実的な有効モデルの非平衡定常状態の解析を可能にする新手法を開発する。これらを用いたモデルの解析を通して秩序相の光誘起の起源解明と探索を目指す。申請当初予想していた研究の流れを右図に示した。

A) 非平衡定常状態(NESS)のための新手法開発

- 1) Floquet GF法の拡張:有効相互作用と超伝導の記述
- 2) コンパクト表現の活用による計算効率の向上

B) 有効モデルを用いた研究と新規非平衡現象探索

- 1) 銅酸化物: dpモデルと頂点酸素の振動
- 2) (近似的な)対称性に制限された非平衡定常状態
ex) 強相関電子系における励起子凝縮の可能性
- 3) 鉄系超伝導: 2バンド有効モデルの解析

C) 第一原理計算による有効モデル導出とその解析

図 1. 申請当初の予想

3. 研究の方法

光誘起状態、特に光によりキャリアが生成された光ドープ状態、に注目し、これを系統的に記述可能な理論的枠組みを構築する。この枠組みの中、厳密体格化やテンソルネットワーク法といった数値計算および解析計算を用いることで、光ドープ状態の性質を系統的に調べ、新しい非平衡の探索を行う。

また、別アプローチとして熱浴を系に結合させ、非平衡分布を実現し光ドープ状態を模

すという方法による光ドープ状態の解析も行った。この場合は、動的平均場理論などのグリーン関数法を用いた。

4. 研究成果

以下に主な研究成果を箇条書きで示す。

- ・強相関側からの摂動展開により、光キャリア数を保存する有効模型を構築し、光ドープされた Mott 絶縁体を有効模型のある種の平衡状態として記述するという方法を考案した。

- ・1次元の拡張 Hubbard 模型の解析により、光誘起系における ペアリング相と呼ばれる特殊な超伝導相やトポロジカルな電荷秩序相の存在を予言し、その起源と性質を明らかにした。特に、相互作用が大きな極限における光ドープ状態の厳密な波動関数の形を導くことに成功した。(図2参照)

- ・熱浴を用いた別アプローチによる多軌道系の解析では、軌道自由度に由来して ペアリング相を一般化した相が出現することも明らかにした。

- ・遷移金属ダイカルゴケナイト物質のヘテロ接合系に電極をつけた非平衡定常系の物理と光ドープ状態の共通点を見出した。我々が Mott 絶縁体解析に用いた手法を用いて、ヘテロ接合系の物理を議論できる可能性を見出した。

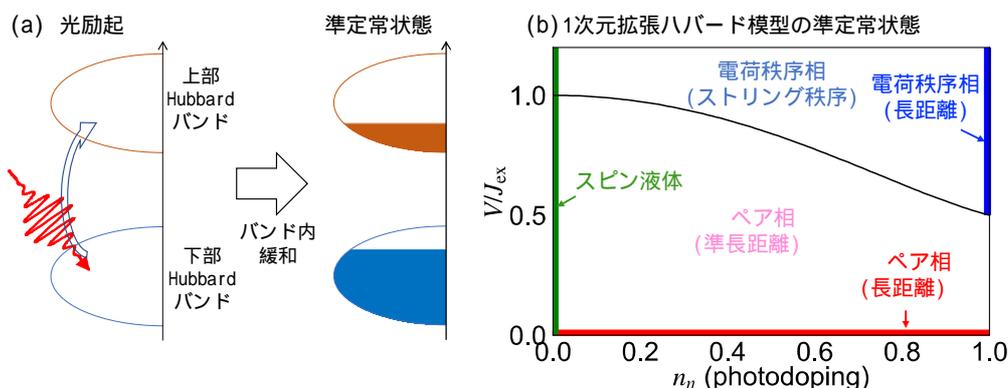


図 2(a)Mott 絶縁体の光励起状態の模式図。励起によりキャリアが生成され、バンド内緩和を経て準定常状態となる。(b) 光ドープされた準定常状態の非平衡相図。

Y. Murakami et al, PRL (2023)より。

成果全体のまとめ：Mott 絶縁体は電子相関が支配する物質であり、その特性を理解することは量子物質科学や凝縮物理学の基礎的な理解を深める上で重要である。光ドープによって生成される準定常状態の性質を明らかにすることは、新しい物理現象や相の発見につながる可能性がある。また、当初の予定に反して時間の制限から期間内に Hubbard 模型より複雑で現実的な模型の解析はできなかった。しかしながら、本研究で開発した非平衡状態の系統的な記述方法は、今後の非平衡量子系の研究にも有益な知見を提供すると期待する。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計23件（うち査読付論文 21件 / うち国際共著 10件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Murakami Yuta, Schuler Michael, Arita Ryotaro, Werner Philipp	4. 巻 108
2. 論文標題 Suppression of heating by multicolor driving protocols in Floquet-engineered strongly correlated systems	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 35151
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

1. 著者名 Hashimoto Akihiro, Murakami Yuta, Koga Akihisa	4. 巻 107
2. 論文標題 Majorana gap formation in the anisotropic Kitaev model with ordered flux configuration	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174428
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevLett.129.157401	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 Kaneko Tatsuya, Murakami Yuta, Golez Denis, Sun Zhiyuan, Millis Andrew J.	4. 巻 108
2. 論文標題 Exciton-spin interactions in antiferromagnetic charge-transfer insulators	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 205121
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.L121106	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 Ray Sujay, Murakami Yuta, Werner Philipp	4. 巻 108
2. 論文標題 Nonthermal superconductivity in photodoped multiorbital Hubbard systems	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 174515
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.106.035204	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, Nagai Kohei, Koga Akihisa	4. 巻 108
2. 論文標題 Efficient control of high harmonic terahertz generation in carbon nanotubes using the Aharonov-Bohm effect	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 241202
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.91.124702	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 Inayoshi Ken, Koga Akihisa, Murakami Yuta	4. 巻 92
2. 論文標題 Energy Flow during Relaxation in an Electron-Phonon System with Multiple Modes: A Nonequilibrium Green's Function Study	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.125137	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 Iguchi Junta, Watanabe Hikaru, Murakami Yuta, Nomoto Takuya, Arita Ryotaro	4. 巻 109
2. 論文標題 Bulk photovoltaic effect in antiferromagnet: Role of collective spin dynamics	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 64407
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.105.104307	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 Murakami Yuta, Takayoshi Shintaro, Kaneko Tatsuya, Lauchli Andreas M., Werner Philipp	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
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s42005-021-00799-7	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 Murakami Yuta, Uchida Kento, Koga Akihisa, Tanaka Koichiro, Werner Philipp	4. 巻 129
2. 論文標題 Anomalous Temperature Dependence of High-Harmonic Generation in Mott Insulators	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 157401
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.L201101	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 Golez Denis, Dufresne Sydney K. Y., Kim Min-Jae, Boschini Fabio, Chu Hao, Murakami Yuta, Levy Giorgio, Mills Arthur K., Zhdanovich Sergey, Isobe Masahiko, Takagi Hidenori, Kaiser Stefan, Werner Philipp, Jones David J., Georges Antoine, Damascelli Andrea, Millis Andrew J.	4. 巻 106
2. 論文標題 Unveiling the underlying interactions in Ta ₂ NiSe ₅ from photoinduced lifetime change	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L121106
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.125139	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 Murakami Yuta, Schuler Michael	4. 巻 106
2. 論文標題 Doping and gap size dependence of high-harmonic generation in graphene: Importance of consistent formulation of light-matter coupling	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 35204
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 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 Iijima Hiroki, Murakami Yuta, Koga Akihisa	4. 巻 91
2. 論文標題 Optical Response of the Tightbinding Model on the Fibonacci Chain	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 124702
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 -

1. 著者名 Taguchi Hirokazu, Murakami Yuta, Koga Akihisa	4. 巻 105
2. 論文標題 Thermally enhanced Majorana-mediated spin transport in the Kitaev model	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 125137
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 -

1. 著者名 Inayoshi Ken, Murakami Yuta, Koga Akihisa	4. 巻 105
2. 論文標題 Photoinduced dynamics of a quasicrystalline excitonic insulator	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 104307
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 -

1. 著者名 Murakami Yuta, Takayoshi Shintaro, Kaneko Tatsuya, Sun Zhiyuan, Golez Denis, Millis Andrew J., Werner Philipp	4. 巻 5
2. 論文標題 Exploring nonequilibrium phases of photo-doped Mott insulators with generalized Gibbs ensembles	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 23
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 Werner Philipp, Murakami Yuta	4. 巻 104
2. 論文標題 Light-induced hidden odd-frequency order in a model for $\langle \text{mml:math} \text{xmlns:mml="http://www.w3.org/1998/Math/MathML"} \langle \text{mml:mrow} \langle \text{mml:mrow} \langle \text{mml:msub} \langle \text{mml:mi} \rangle A \langle \text{mml:mi} \rangle \langle \text{mml:mn} \rangle 3 \langle \text{mml:mn} \rangle \langle \text{mml:msub} \langle \text{mml:msub} \langle \text{mml:mi} \rangle \text{mathvariant="normal"} \rangle C \langle \text{mml:mi} \rangle \langle \text{mml:mn} \rangle 60 \langle \text{mml:mn} \rangle \langle \text{mml:msub} \langle \text{mml:mrow} \langle \text{mml:math} \rangle$	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 L201101
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.081121	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 Taguchi Hirokazu, Murakami Yuta, Koga Akihisa, Nasu Joji	4. 巻 104
2. 論文標題 Role of Majorana fermions in spin transport of anisotropic Kitaev model	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 125139
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.125139	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 Kaneko Tatsuya, Sun Zhiyuan, Murakami Yuta, Golez Denis, Millis Andrew J.	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
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 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 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

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, Schuler Michael, Werner Philipp	4. 巻 102
2. 論文標題 High-harmonic generation in spin-orbit coupled systems	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 81121
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.102.081121	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6件 (うち招待講演 1件 / うち国際学会 1件)

1. 発表者名 村上雄太
2. 発表標題 光ドーピングされた一次元Mott絶縁体の準安定状態
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Yuta Murakami
2. 発表標題 Emerging nonequilibrium phases due to relaxation bottlenecks in strongly correlated systems
3. 学会等名 Harnessing light-matter interactions in quantum materials (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 村上雄太
2. 発表標題 A3C60系における光誘起奇周波軌道秩序相
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 村上雄太
2. 発表標題 Mott絶縁体における緩和ボトルネックが誘起する非平衡秩序相
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2021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

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

〔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			
	スイス	Fribourg大学	PSI	
米国	Columbia大学	CCQ		