

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 5 月 24 日現在

機関番号：82401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2015

課題番号：25800192

研究課題名(和文)複合量子相関係における光誘起超伝導と非平衡相転移の理論

研究課題名(英文) Theory of photoinduced superconductivity and nonequilibrium phase transition in complex correlated quantum systems

研究代表者

辻 直人(Tsuji, Naoto)

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：90647752

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：電子格子相互作用が強く働いた系において、超伝導と電荷秩序が共存する超固体相、および量子臨界点が存在することを明らかにした。非平衡動的な平均場理論を用いて電子格子系の非平衡ダイナミクスを解析し、超伝導状態においてヒッグスモードと呼ばれる集団振幅モード以外にフォノンの振動と混成した新たな集団振幅モードが存在することを示した。超伝導体に振動電場がかかったときに、超伝導秩序パラメータの振幅が振動電場の周波数の2倍で強制的に振動されること、さらに周波数の2倍がヒッグスモードの周波数と一致するときに強制振動を共鳴的に増幅できることを示した。この現象はテラヘルツ光を用いた実験によって実際に観測された。

研究成果の概要(英文)：We reveal that there exists a supersolid phase (coexistence of superconductivity and charge order) accompanied by a quantum critical point in strongly coupled electron-phonon systems. Using the nonequilibrium dynamical mean-field theory, we show that the superconducting phase has a new collective amplitude mode hybridizing with a phonon oscillation, in addition to the Higgs amplitude mode. We also show that when the superconducting phase is driven by an oscillating electric field, the superconducting order parameter is forced to oscillate with a doubled frequency. The forced oscillation can be resonantly enhanced when the doubled frequency coincides with the Higgs mode frequency. This phenomenon has been observed in a THz laser experiment.

研究分野：物性理論

キーワード：超伝導 動的な平均場理論 非平衡 光誘起超伝導

1. 研究開始当初の背景

レーザー光を使って固体の様々な物性を超高速に制御しようということが光物性科学の長年の目標である。一般にレーザー光を物質に照射して電子を励起すると、電子同士の散乱等により励起エネルギーが熱に変わり電子系の温度が急激に上昇することが考えられる。そうするとレーザー光の効果は単に温度を上げる効果と等しくなり、電子系の物性を生み出す根源となる量子効果を壊す方向に働き、レーザー光特有の新奇な非平衡現象を発現させることはできない。

ところが近年になって、レーザー光を常伝導状態の強相関物質に照射することで瞬間的に超伝導状態になる光誘起超伝導と呼ばれる現象が実験的に報告されはじめた。これは、電子系を直接レーザー光によって励起するのではなく、特定のフォノンモードを選択的に光励起することで温度上昇を抑制しながら電子状態を制御することを目指したものである。実際、超伝導特有の光学伝導度スペクトルやジョセフソンプラズマ共鳴の過渡的な信号が観測されており、超伝導状態が瞬間的に生成されている証拠となっている。また、テラヘルツ光を用いた時間分解分光実験によって励起後の超伝導体の時間発展、特に集団励起モードであるヒッグスモードが観測されるなど、実験技術の進歩によって超伝導ダイナミクスの実験的な研究が飛躍的に進展しつつある。

それに対して、超伝導状態を非平衡で制御する機構について理論的な理解は全く進んでいなかった。特に電子間や電子と格子の間の相互作用が強く働く強相関物質については理論的な解析手法が未発達であり、そもそも理論的なアプローチが困難であった。強相関系では様々なゆらぎ・相が競合しているため、それらをいかにして光によって制御するかが課題となっていた。

2. 研究の目的

(1) 超伝導の起源となっている電子格子相互作用が強く働いた系を励起して非平衡状態にしたときの量子ダイナミクスを理論的に解析する。そのために、まずは平衡状態で相互作用が強いときに超伝導、電荷秩序、反強磁性の各秩序相がどのように競合・共存しているのかを明らかにする。共存しているとすれば相分離なのか連続的な二次転移なのか、さらに量子臨界点は存在するのかを調べる。さらに、系を外場によって瞬間的に励起(クエンチ)したときに各秩序相を特徴づける秩序パラメーターがどのように動的に反応するかを解析し、系が熱平衡状態に緩和していくプロセスを調べる。

(2) 超伝導体には、超流動密度の振幅が集団的に振動するヒッグスモードと呼ばれる集団励起モードが存在することが知られている。これはテラヘルツ光などを照射することによって系を非平衡に励起することで観測

することができる非平衡特有の現象である。この超流動密度の振動を、単色性の強いコヒーレントなテラヘルツ光によって制御する可能性を追究する。特に単一の周波数をもつ振動電場によって駆動された超伝導体の量子ダイナミクスを理論的に解析することで、ヒッグスモードを共鳴的に励起できないかが研究する。

3. 研究の方法

理論的な解析方法として、平均場近似に基づく時間依存ボゴリューボフ・ドジャン方程式(BdG方程式)と、非平衡動的な平均場理論を用いる。BdG方程式は相互作用が弱い系でしか使えないという欠点はあるものの、超伝導体の時間発展をアンダーソン擬スピンモデルという古典スピン系の時間発展の問題に置き換えられるという利点があり、長時間のダイナミクスを詳細にシミュレートできる。一方、非平衡動的な平均場理論は電子系の格子モデルを有効媒質に囲まれた不純物モデルにうつして自己無撞着に解く手法で、相互作用が強い系にも用いることができる。超伝導状態にある秩序相を扱ったりフォノンのダイナミクスを含む電子格子相互作用系に適用したりするために、非平衡動的な平均場理論の拡張および非平衡不純物ソルバーの開発を行った。

4. 研究成果

(1) 電子格子相互作用を含んだ典型的な強相関系のモデルであるホルシュタイン模型に対して、動的な平均場理論と量子モンテカルロ法を用いて低温での相図の決定を行った(図1、文献)。その結果、電子格子相互作用が強いときに、超伝導(SC)と電荷秩序(CO)が共存した超固体相(SS)が現れることがわかった。超伝導相と超固体相の間は連続的な二次転移になっており、絶対零度において量子臨界点(QCP)が存在することが示唆された。量子臨界点では電荷ゆらぎが発散し、超流動密度が特異性をもつ。超固体相が安定して存在することが示されたのは、フラストレーションのない電子格子系では初めてのことである。

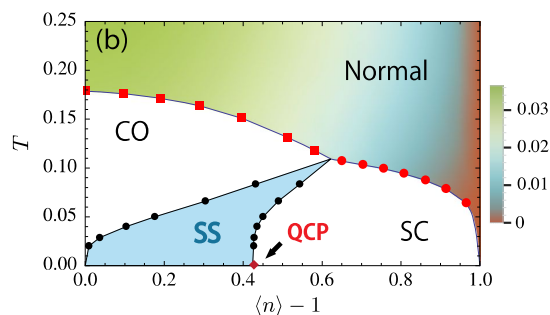


図1. ホルシュタイン模型の平衡相図 (温度 T , 粒子密度 $\langle n \rangle$, 文献)。

(2) ホルシュタイン模型の常伝導相において、相互作用パラメータを瞬間的に変化(クエンチ)させて励起したときの非平衡ダイナミクスを、非平衡動的平均場理論を用いて解析した(文献)。非平衡不純物ソルバーとして、電子とフォノンの両者の自己エネルギー効果を取り込んだ、自己無撞着ミグダル近似を用いた。この近似の妥当性は、平衡状態において数値的に厳密な量子モンテカルロ法と比較することで確認した。その結果、電子格子相互作用の大きさに依存して熱平衡状態への緩和過程が定性的に変化することがわかった。相互作用が小さいときはフォノンのコヒーレントな振動が速く減衰し、その後の熱化過程は電子の運動に支配されるが、相互作用が大きいとフォノンの振動が長時間生き残り電子は各時刻での格子変位に対して熱緩和にする(図 2)。このような緩和過程のクロスオーバーは、自己エネルギーの振る舞いによって理解される。

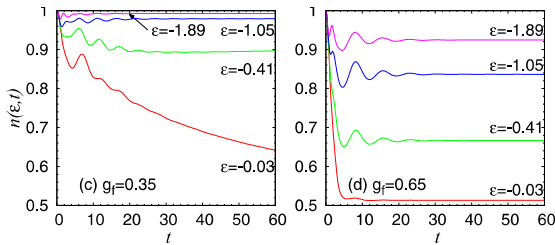


図 2. ホルシュタイン模型の運動量分布関数 $n(\epsilon, t)$ の時間発展 (文献)。

(3) ホルシュタイン模型の超伝導相において電子のペアポテンシャルをある時刻で印加したときのダイナミクスを、非平衡動的平均場理論を用いて解析した(文献)。不純物ソルバーとしては自己無撞着ミグダル近似を用いた。超伝導秩序パラメータの時間発展を見ることで、動的超伝導感受率を求めることができる。これまでは、動的超伝導感受率を求めるには実周波数でペーテ・サルベーター方程式を解かなくてはならず、技術的に困難であったが、非平衡動的平均場理論を援用することで効率よく計算できるようになった。結果として、超伝導ギャップ 2Δ と一致する周波数のところに鋭い共鳴ピークが現れ、超伝導体のヒッグスモードと同定された。一方、周波数が 2Δ より大きいところにも別の共鳴ピークが存在することが見つかった(図 3)。ピーク周波数はフォノンの周波数とも異なり、「第二のヒッグスモード」とでも呼ぶべき新たな集団励起モードである。このモードの物理的起源を探るために、感受率ダイアグラムを分類し、各ダイアグラムの寄与を計算した。その結果、電子のペアが対消滅してフォノンのペアに散乱され、それがまた電子のペアを対生成して繰り返し散乱されていくダイアグラムを主に起源としている

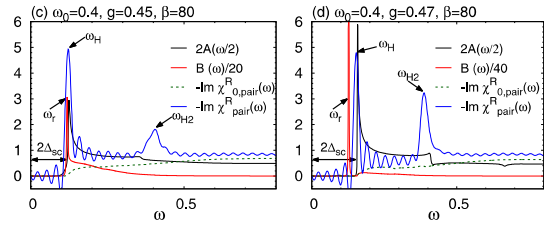


図 3. ホルシュタイン模型の動的超伝導感受率 (文献)。

ことがわかった。直観的には、集団的な超流動密度の振動がフォノンのコヒーレントな振動に変わり、それがまた超流動密度の振動に変わりながら伝わっていく集団励起モードに対応する。このような新奇な励起状態が、時間分解光電子分光によって実験的に観測可能であることを議論した。

(4) 超伝導体に単一の周波数をもつ振動電場がかかったときの量子ダイナミクスを時間依存ボゴリューボフ・ドジャン(BdG)方程式に基づいて解析した(文献)。その結果、振動電場の周波数の 2 倍が超伝導ギャップ 2Δ に一致するとき、超伝導秩序パラメータの振幅の振動が共鳴的に増幅されることがわかった(図 4)。それに伴って、振動の位相も共鳴点で $\pi/2$ だけ不連続にジャンプする特異性を示す。これは、超伝導秩序パラメータ(あるいは超流動密度)が電場と 2 次の非線形な結合をしており、その効果を通して強

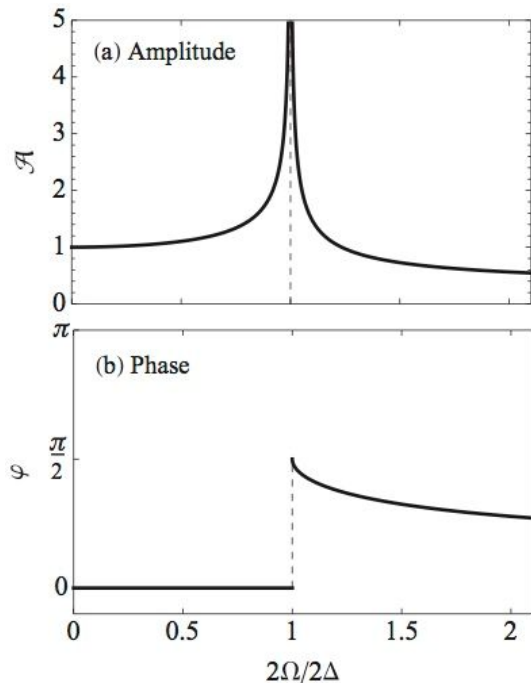


図 4. 周波数 Ω の振動電場によって誘起された超伝導秩序パラメータの振幅の振動と位相(文献)。

制的に振動された秩序パラメーターが固有周波数 2 のヒッグスモードと共鳴して起こる現象と解釈される。BdG 方程式を紹介すると超伝導体のダイナミクスはアンダーソン擬スピンと呼ばれる古典スピン系のダイナミクスに翻訳されるが、その文脈では振動電場の 2 次が擬スピんに働く有効磁場の役割を果たし、それによって擬スピンの集団的な歳差運動を共鳴的に引き起こすスピン共鳴の現象として捉えることもできる。相互作用が強い系では BdG 方程式を超えて強相関効果を取り込んだ解析をする必要があるが、非平衡動的平均場理論を用いた計算により、相互作用が強いときでもこのような非線形な光とヒッグスモードの共鳴現象が起こりうることを明らかにした。

この現象は、実際にテラヘルツ光を用いた実験によって観測された(文献)。NbN 薄膜の超伝導体($T_c=15\text{K}$)に単色性の強いテラヘルツ光を照射し、ある時刻を置いてプローブ光を照射して超伝導状態の変化を見た。ポンプ・プローブ遅延時間を系統的に変えることで、超伝導状態の時間発展をモニターすることができる。特に、プローブ光の波形の特定部分を見たときに、超伝導秩序パラメーターの大きさを敏感に反映していることが知られている。結果として、常伝導状態のときは何もプローブ光の波形変化に振動は見られなかったが、低温にして超伝導状態になるとコヒーレントな振動が現れた(図 5)。この振動の周波数はポンプ光の周波数の 2 倍に一致しており、超伝導秩序パラメーターが電場と 2 次の非線形結合をもつことと整合する。また、振動の振幅はポンプ光の周波数の 2 倍が超伝導ギャップ 2 に一致するとき最も増

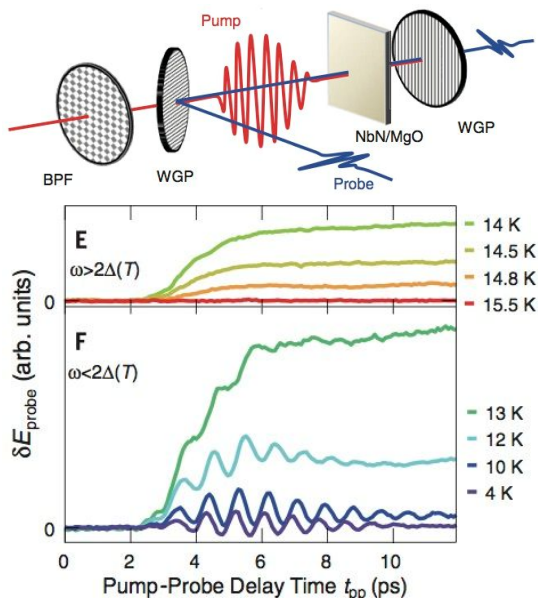


図 5. 単色性の強いテラヘルツ光を用いたポンプ・プローブ実験の概念図(上)と、得られたプローブ光の波形変化の時間発展(下)。文献より。

幅される。これは BdG 方程式を用いた理論予測と一致する結果であり、ヒッグスモードの光共鳴が観測されたことを意味する。

このように、光によって超伝導状態を高速にかつ量子コヒーレンスを保ったまま制御することができるようになってきた。それによって平衡状態では見られなかったような非平衡特有の現象の解明がなされた。この方向をさらに推し進めて、光によって超伝導ゆらぎを増幅したり、常伝導状態から超伝導状態への光誘起相転移の機構の解明につながっていくことが期待される。

<引用文献>

Yuta Murakami, Philipp Werner, Naoto Tsuji, Hideo Aoki, “Supersolid phase accompanied by a quantum critical point in the intermediate coupling regime of the Holstein model”, *Phys. Rev. Lett.* 113, 266404(1-5) (2014).

Yuta Murakami, Philipp Werner, Naoto Tsuji, and Hideo Aoki, “Interaction quench in the Holstein model: Thermalization crossover from electron- to phonon-dominated relaxation”, *Phys. Rev. B* 91, 045128(1-13) (2015).

Yuta Murakami, Philipp Werner, Naoto Tsuji, and Hideo Aoki, “Multiple amplitude modes in strongly-coupled phonon-mediated superconductors”, *Phys. Rev. B* 93, 094509(1-10) (2016).

Naoto Tsuji and Hideo Aoki, “Theory of Anderson pseudospin resonance with Higgs mode in a superconductor”, *Phys. Rev. B* 92, 064508(1-11) (2015).

Ryusuke Matsunaga, Naoto Tsuji, Hiroyuki Fujita, Arata Sugioka, Kazumasa Makise, Yoshinori Uzawa, Hiroataka Terai, Zhen Wang, Hideo Aoki, and Ryo Shimano, “Light-induced collective pseudospin precession resonating with Higgs mode in a superconductor”, *Science* 345, 1145-1149 (2014).

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 17 件)

Takahiro Mikami, Sota Kitamura, Kenji Yasuda, Naoto Tsuji, Takashi Oka, and Hideo Aoki, “Brillouin-Wigner theory for high-frequency expansion in periodically driven systems: Application to Floquet topological insulators”, *Phys. Rev. B* 93, 144307(1-25) (2016). 査読有り. DOI: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.93>.

144307

Yuta Murakami, Philipp Werner, Naoto Tsuji, and Hideo Aoki, "Multiple amplitude modes in strongly-coupled phonon-mediated superconductors", *Phys. Rev. B* 93, 094509(1-10) (2016). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.93.094509>

Naoto Tsuji and Hideo Aoki, "Theory of Anderson pseudospin resonance with Higgs mode in a superconductor", *Phys. Rev. B* 92, 064508(1-11) (2015). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.92.064508>

Motoharu Kitatani, Naoto Tsuji, and Hideo Aoki, "FLEX+DMFT approach to the d-wave superconducting phase diagram of the two-dimensional Hubbard model", *Phys. Rev. B* 92, 085104(1-8) (2015). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.92.085104>

Yuta Murakami, Philipp Werner, Naoto Tsuji, and Hideo Aoki, "Interaction quench in the Holstein model: Thermalization crossover from electron- to phonon-dominated relaxation", *Phys. Rev. B* 91, 045128(1-13) (2015). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.91.045128>

松永隆佑, 辻直人, 青木秀夫, 島野亮, 「超伝導体中のヒッグスモード - 高強度テラヘルツ波による検出とヒッグス共鳴第三高調波発生」, *固体物理* 50, 411-436 (2015). 査読有り.

Ryusuke Matsunaga, Naoto Tsuji, Hiroyuki Fujita, Arata Sugioka, Kazumasa Makise, Yoshinori Uzawa, Hirotaka Terai, Zhen Wang, Hideo Aoki, and Ryo Shimano, "Light-induced collective pseudospin precession resonating with Higgs mode in a superconductor", *Science* 345, 1145-1149 (2014). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1126/science.1254697>

Yuta Murakami, Philipp Werner, Naoto Tsuji, Hideo and Aoki, "Supersolid phase accompanied by a quantum critical point in the intermediate coupling regime of the Holstein model", *Phys. Rev. Lett.* 113, 266404(1-5) (2014). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.266404>

Naoto Tsuji, Peter Barmettler, Hideo Aoki, and Philipp Werner, "Nonequi-

librium dynamical cluster theory", *Phys. Rev. B* 90, 075117(1-7) (2014). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.90.075117>

Hideo Aoki, Naoto Tsuji, Martin Eckstein, Marcus Kollar, Takashi Oka, and Philipp Werner, "Nonequilibrium dynamical mean-field theory and its applications", *Rev. Mod. Phys.* 86, 779-837 (2014). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.86.779>

Naoto Tsuji and Philipp Werner, "Nonequilibrium dynamical mean-field theory based on weak-coupling perturbation expansions: Application to dynamical symmetry breaking in the Hubbard model", *Phys. Rev. B* 88, 165115(1-28) (2013). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.88.165115>

Yuta Murakami, Philipp Werner, Naoto Tsuji, and Hideo Aoki, "Ordered phases in the Holstein-Hubbard model: Interplay of strong Coulomb interaction and electron-phonon coupling", *Phys. Rev. B* 88, 125126(1-14) (2013). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.88.125126>

Naoto Tsuji, Martin Eckstein, and Philipp Werner, "Nonthermal antiferromagnetic order and nonequilibrium criticality in the Hubbard model", *Phys. Rev. Lett.* 110, 136404(1-5) (2013). 査読有り. DOI:

<http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.136404>

辻直人, 岡隆史, 青木秀夫, 「非平衡強相関係における斥力・引力転換」, *固体物理* 48, 425-438 (2013). 査読有り.

[学会発表](計 51 件)

Naoto Tsuji, "Higgs and new amplitude modes in superconductors with strong electron-phonon interactions", Asia-Pacific Workshop (APW)-CEMS Joint Workshop, 2016年1月25日, 理化学研究所(埼玉県和光市).

辻直人, 「電子格子相互作用が強く働いた超伝導体におけるヒッグスモード」, 第5回強相関電子系理論の最前線-若手によるオープン・イノベーション-, 2015年12月21日, 勝浦観光ホテル(和歌山県東牟婁郡).

辻直人, 「電子格子強結合超伝導体における集団振幅モード」, 物性研短期研究会「量子物質研究の最前線」, 2015年12月8日, 東京大学物性研究所(千葉県柏

市).
辻直人, 「超伝導のコヒーレント量子ダイナミクス: 理論からみた最近の進展」, 日本物理学会領域5シンポジウム「金属状態の超高速コヒーレンス制御と励起ダイナミクスの新展開」, 2015年9月15日, 関西大学(大阪府吹田市).

Naoto Tsuji, “Theoretical study of THz laser-induced Higgs-mode resonance in superconductors”, Materials and Mechanisms of Superconductivity 2015 (M2S 2015), 2015年8月26日, Geneva (Switzerland).

Naoto Tsuji, “Light-induced Higgs-mode resonance in s-wave and d-wave superconductors”, Dynamics of Strongly Correlated Systems, ISSP-MPIPES Joint Workshop, 2015年3月31日, 東京大学物性研究所(千葉県柏市).

辻直人, 「強相関電子系の非平衡相転移の理論的研究」, 日本物理学会領域5若手奨励賞受賞講演, 2015年3月22日, 早稲田大学(東京都新宿区).

辻直人, 「超伝導体における「ヒッグス粒子」」, 第3回統計物理学懇談会, 2015年3月10日, 慶應大学(神奈川県横浜市).

Naoto Tsuji, “Higgs mode in conventional and unconventional superconductors”, A workshop on “Nonequilibrium phase transitions in diverse physical systems”, 2014年12月9日, 東京大学(東京都文京区).

Naoto Tsuji, “Light-induced Anderson pseudospin resonance with Higgs mode in superconductors”, Nonequilibrium phenomena in novel quantum states (YKIS 2014), 2014年12月5日, 京都大学基礎物理学研究所(京都府京都市).

辻直人, 「超伝導体における「ヒッグス粒子」の理論」, CMRC研究会「超伝導研究の新展開(鉄系・銅氧化物系+非平衡系)」, 2014年11月18日, 高エネルギー加速器研究機構(茨城県つくば市).

Naoto Tsuji, “Anderson pseudospin resonance with Higgs mode in superconductors”, New Horizon of Strongly Correlated Physics (NHSCP2014), 2014年7月3日, 東京大学物性研究所(千葉県柏市).

Naoto Tsuji, “Higgs mode and Anderson pseudospin resonance in superconductors”, Higgs modes in condensed matter and quantum gases, 2014年6月24日, 京都大学基礎物理学研究所(京都府京都市).

辻直人, 「強相関電子系・超伝導体の非平衡理論」, 日本物理学会シンポジウム「限界駆動の物質光科学」, 2014年3月28日, 東海大学(神奈川県平塚市).

Naoto Tsuji, Martin Eckstein, and Philipp Werner, “Nonequilibrium dynamical mean-field study of the nonthermal fixed point in the Hubbard model”, American Physical Society March Meeting (APS 2014), 2014年3月7日, Denver (USA).

Naoto Tsuji, “Nonthermal fixed point in the antiferromagnetic Hubbard model”, Non-equilibrium dynamics of correlated electron-systems, 2013年12月19日, Krvavec (Slovenia).

Naoto Tsuji, “Prethermalization and nonthermal fixed point in the Hubbard model”, Interdisciplinary mini-workshop on nonequilibrium physics, 2013年12月8日, 京都大学(京都府京都市).

Naoto Tsuji, “Quantum interaction quench in the presence of a long-range order”, Quantum Many Body Systems out of Equilibrium (QSOE13), 2013年8月20日, Dresden (Germany).

Naoto Tsuji, Martin Eckstein, and Philipp Werner, “Dynamical phase transition and nonequilibrium criticality in correlated fermion systems”, The International Conference on Strongly Correlated Electron Systems (SCES2013), 2013年8月9日, 東京大学(東京都文京区).

Naoto Tsuji, Martin Eckstein, and Philipp Werner, “Quantum interaction quench in the presence of a long-range order”, Emergent Quantum Phases in Condensed Matter (EQPCM2013) Workshop, 2013年6月17日, 東京大学物性研究所(千葉県柏市).

6. 研究組織

(1) 研究代表者

辻直人 (TSUJI, Naoto)

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: 90647752