

令和 3 年 10 月 31 日

## 海外特別研究員最終報告書

独立行政法人日本学術振興会 理事長 殿

採用年度 平成 31 年度

受付番号 201960247

氏名 金子 竜也

海外特別研究員としての派遣期間を終了しましたので、下記のとおり報告いたします。  
なお、下記及び別紙記載の内容については相違ありません。

## 記

1. 用務地（派遣先国名）用務地：ニューヨーク（国名：アメリカ合衆国）

2. 研究課題名（和文）

強相関電子系における非平衡ダイナミクスの理論的研究3. 派遣期間：平成 31 年 4 月 1 日 ~ 令和 3 年 9 月 30 日（914 日間）

4. 受入機関名及び部局名

受入機関名：コロンビア大学（Columbia University）部局名：物理学科（Department of Physics）

5. 所期の目的の遂行状況及び成果

本研究では、外場によって誘起される強相関電子系の非平衡ダイナミクスに関する理論研究を行った。特に、強い電子相関に起因する Mott 絶縁体で光誘起非平衡過程を経て実現する電子状態、および電子-ホール相関に起因する励起子絶縁体の集団励起とその非線形光学応答に関する研究を主に進めた。以下では研究内容を 2 項目に大別し、得られた成果をそれぞれ説明する。

## (1) 外場駆動の非平衡過程を経て発現する強相関係の電子状態

ポンプ-プローブ分光法などの発展によって物質の非平衡状態を実験的に捉えることが可能となってきており、近年は相関電子系における光誘起絶縁体-金属転移や光誘起超伝導などに興味が集まっている。これらの背景もあり、本研究では非平衡過程を経て実現する強相関電子系の光誘起状態に関する研究を行なった。特に、本派遣前に Mott 絶縁体の光励起状態において  $\eta$ -pairing と呼ばれる電子-電子ペアリングのメカニズムを発見し、派遣後は光誘起  $\eta$ -pairing の理論を発展させた。また、励起子系や引力相互作用系における外場誘起状態の研究も行った。

(1.1) 光誘起  $\eta$ -pairing の理論的研究

$\eta$ -pairing は Mott 絶縁体を記述する Hubbard 模型において、波数  $q=\pi$  のペア密度波的な超伝導相関が発達した状態である。隠れた励起状態であるために平衡状態において実現するのが難しかったが、本派遣前に発表した論文 [T. Kaneko *et al.*, Phys. Rev. Lett. **122**, 077002 (2019)] では、パルス光照射で誘起される非平衡状態で  $\eta$ -pairing が実現し得ることを提案した。光照射による超伝導相関の上昇が示された一方、実際の超伝導的な特性やシステムサイズに依存した超伝導相関の発達などは研究されておらず、それらは未解決な問題となっていた。

そのため、派遣後は  $\eta$ -pairing 状態の伝導特性と長距離ペア相関に関する研究を行なった。ここではまず、厳密対角化法を用いて 1 次元 Hubbard 模型の charge stiffness（線形伝導度のゼロ周波数成分）を計算し、 $\eta$ -pairing 状態の伝導特性を調べた。 $\eta$ -pairing 固有状態の charge stiffness が正の有限値で特徴付けられることを数値計算で示し、特に、最大限にペアを組んだ Yang の  $\eta$ -pairing 状態においては charge stiffness が超伝導の長距離相関と直接的に結びついていることを解析的に明らかにした。熱平衡状態において charge stiffness が 0 になることは対照的に、光学駆動系においてはポンプ光が  $\eta$ -pairing 固有状態を選択的に励起し、非平衡過程を経て実現した光誘起  $\eta$ -pairing 状態も正の charge stiffness で特徴付けられることを示した。また、システムサイズを変えて実空間でのペア相関を比較し、システムサイズの増加に対して光誘起  $\eta$ -pairing 状態のペア相関の減衰が小さく、相関が長距離に発達し得ることを数値的に提示した。これらの研究結果は既に論文 [1. 1] として出版済みで、固体物理誌からは光誘起  $\eta$ -pairing に関する解説記事 [1. 2] も出版している。新型コロナウイルスの影響で 2020 年 3 月のアメリカ物理学会

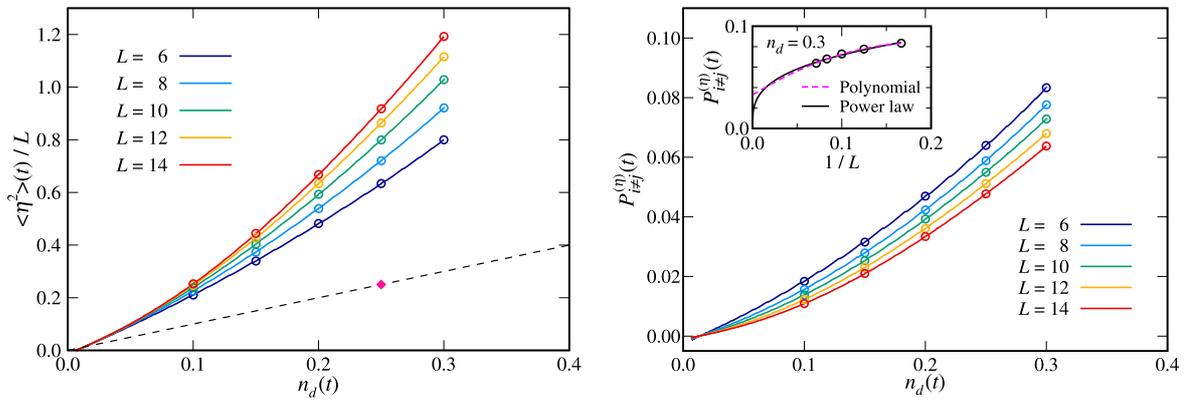


図 1. Mott 絶縁体の光誘起状態における  $\eta$ -pairing 相関のサイズ依存性 (論文[1.1]より)

と日本物理学会での口頭発表はキャンセルとなってしまったが、国内外から 4 件の招待講演の依頼がありオンラインで発表を行なった。

上記の  $\eta$ -pairing の研究と関連して、より大きいサイズ系での計算を行うために、Greifswald 大学の江島聡博士と協力し、infinite time-evolving block decimation (iTEBD) 法を用いた光誘起  $\eta$ -pairing の研究も行った。これまでは絶対零度からの光誘起を考えていたが、ここでは有限温度の初期状態からの光誘起ダイナミクスも計算し、初期状態の温度と  $\eta$ -pairing 相関の上昇を関連づけた。この研究成果は論文[1.3]として発表している。また、東京工業大学の村上雄太博士と協力し、非平衡定常状態を仮定した光ドープ系で発現する量子相に関する研究も行なった。ここでは、iTEBD 法を駆使して二重占有率とサイト間クーロン相互作用に対する相関を評価した。この研究成果はプレプリント[1.4]として発表しており、2021 年 10 月時点では査読中である。

## (1.2) 外場駆動系における電子相関の誘起と制御

上記の研究では Hubbard 模型の Mott 絶縁体からの光誘起ペアリングを考えたが、このアイデアは励起子絶縁体 (バンド間クーロン相互作用による絶縁体) を記述する拡張 Falicov-Kimball 模型 (スピンレス 2 バンド模型) にも応用可能である。ここでは、Hubbard 模型における  $\eta$ -pairing との類推から、厳密対角化法を用いて拡張 Falicov-Kimball 模型の光誘起状態を調べ、励起子絶縁体においても光誘起の電子-電子ペアリング状態が生じることを明らかにした。特に、ダイレクトギャップ系の励起子絶縁体では波数  $q = 0$  のペア相関が誘起でき、これは bipartite の格子構造を必要としないために三角格子などの幅広い格子系に適用可能であることを示した。また、上記の研究では斥力 Hubbard 模型を用いて Mott 絶縁体の外場誘起状態を扱ったが、相互作用を負にした引力型 Hubbard 模型においてもその外場誘起ダイナミクスを調べた。特に、引力 Hubbard 模型の基底状態で縮退している超伝導 (SC) と電荷密度波 (CDW) の周期駆動状態における競合について調べ、外場の周波数が引力相互作用よりも大きい場合は SC が誘起され、逆の場合は CDW が誘起されることを示した。周期駆動系であるため、外場効果を纏った有効異方的 Heisenberg 模型を Floquet 理論から導出することができ、有効模型の相互作用異方性からも SC と CDW 相関の増減を説明することができた。本研究は千葉大学の藤内亮氏との協力で実施され、研究成果は論文[1.5]と[1.6]として出版している。

発表論文

- [1.1] **T. Kaneko**, S. Yunoki, A. J. Millis, Phys. Rev. Research **2**, 032027 (2020)
- [1.2] **金子竜也**, 白川知功, 柚木清司, 固体物理 **55**, 21-30 (2020)
- [1.3] S. Ejima, **T. Kaneko**, F. Lange, S. Yunoki, H. Fehske, Phys. Rev. Research **2**, 032008 (2020)
- [1.4] Y. Murakami, S. Takayoshi, **T. Kaneko**, Z. Sun, D. Golež, A. J. Millis, P. Werner, arXiv:2105.13560
- [1.5] R. Fujiuchi, **T. Kaneko**, Y. Ohta, S. Yunoki, Phys. Rev. B **100**, 045121 (2019)
- [1.6] R. Fujiuchi, **T. Kaneko**, K. Sugimoto, S. Yunoki, Y. Ohta, Phys. Rev. B **101**, 235122 (2020)

## (2) 励起子絶縁体の集団励起と非線形光学応答

電子-ホール対の秩序状態として実現する絶縁体は励起子絶縁体と呼ばれる。理論的には古くから存在した一方、良い対象物質が存在しないことが課題となっていた。しかし、近年にいくつかの候補物質が注目され、研究が盛んになっている。候補物質である  $\text{TiSe}_2$  や  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  においては、相転移とともに生じる格子変位が励起子秩序と似た寄与を生み、相転移起源の解明が課題となっている。本研究では相転移起源の解明に向け、励起子絶縁体を持つ集団励起とその光学応答に関する研究を行なった。また、空間反転対称性が破れた系において集団励起が創出する非線形光学応答の研究も進めた。

### (2.1) 励起子絶縁体の集団励起と光学応答

平衡状態では励起子的な寄与と電子-格子的な寄与を区別するのが難しいため、候補物質における相転移起源の解明には秩序状態の動的構造を調べるのが重要である。特に、励起子絶縁体のような秩序状態においては、秩序変数の振幅と位相の揺らぎによる集団励起が存在する。秩序変数以外に軌道混成

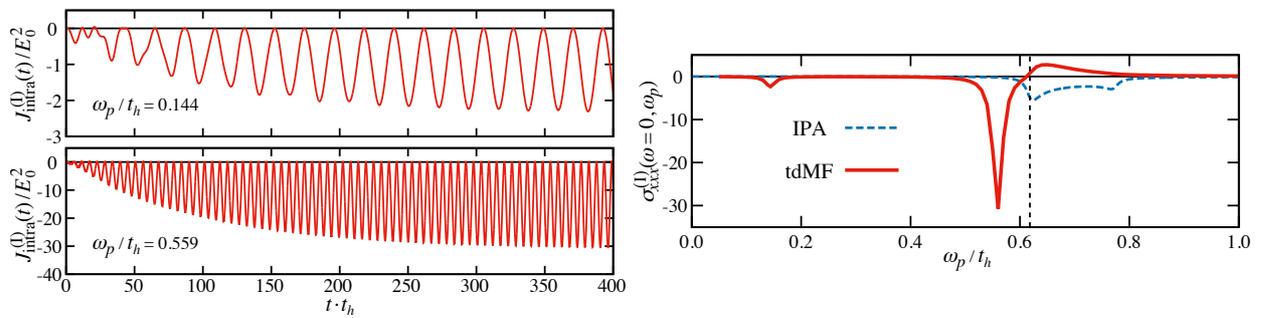


図 2. 強誘電励起子絶縁体における光電流発生とその非線形伝導度 (論文[2.3]より)

がない、純粋な励起子秩序においてはギャップレスの位相モードとバンドギャップと同エネルギーに位置する振幅モードを有する。しかし、電子-格子相互作用が入り秩序変数以外に軌道混成の寄与が生じると、秩序変数の位相固定が起こり位相モードにも励起ギャップが生じる。よって、本研究では秩序変数の動的相関関数と線形光学応答関数を計算することで、電子-格子相互作用によって生じる集団励起構造の差異を包括的に調べた。電子-格子結合とクーロン相互作用の大きさを相対的に変化させて相関関数の動的特性のクロスオーバーを示し、軌道間励起を導く双極子項があれば線形光学応答関数でも集団励起構造が現れることを明らかにした。ただし、軌道間励起を導く双極子項の有無は物質に依存し、双極子項がゼロで空間反転対称性がある場合は線形光学応答関数において集団励起の寄与を見ることはできない。空間反転対称性がある場合は秩序変数が外場に対する二次で応答するため、集団励起を実験観測量から見出すには三次の非線形光学応答関数を調べるのが重要となる。(注：二次の光学(分極)応答関数は空間反転対称性によりゼロである。)よって、ここでは集団励起ダイナミクスの寄与を取り込んだ第三次高調波発生 (THG) の理論を構築し、THG の応答関数において集団励起の寄与がどのように生じるかを調べた。励起子秩序の集団励起に起因する共鳴ピークは電子バンドのギャップと同程度のエネルギースケールで生じ、それらは候補物質における格子振動のエネルギースケールよりも十分に大きいので、THG は励起子的な寄与と格子的な寄与の区別に有効に使えることを提案した。これらの研究成果は論文[2.1]とプレプリント[2.2]として発表している。

## (2.2) 空間反転対称性が破れた励起子絶縁体における非線形光学応答

空間反転対称性が破れた系では二次の非線形光学応答が許される。二次の非線形光学応答として、駆動外場の周波数  $\Omega$  に対し応答が  $\Omega - \Omega = 0$  となり直流電流を生成する整流効果も存在し、これはバルク光起電力効果として近年注目を集めている。非線形光学応答は相互作用のない系での研究は進んでいるが、電子相関の効果や集団励起の効果は十分に調べられていない。そのため、本研究では空間反転対称性が破れ強誘電性を有する励起子絶縁体を用いて、集団励起がバルク光起電力効果に及ぼす影響について調べた。秩序変数の集団励起ダイナミクスを取り込んだ光電流を計算することで、従来のシフト電流の応答関数が相互作用効果によって補正され、ギャップ内のエネルギー領域で集団励起モードに対応した共鳴ピークが生じることを示した。また、従来の独立粒子近似では直線偏光下で生じないことが知られているインжекション電流が、秩序変数を介したプロセスによって生じ得ることも明らかにした。これらは集団励起の効果によってバルク光起電力効果の非線形光学伝導度が上昇することを示唆しており、応用の面からも重要であると考えている。本研究成果は論文[2.3]として既に出版しており、アメリカ物理学会と日本物理学会でも成果発表を行なった。本研究と関連し、奇パリティの軌道混成を有する励起子絶縁体が示す特殊なジョセフソン効果に関する論文[2.4]も出版している。

発表論文

[2.1] Y. Murakami, D. Golež, **T. Kaneko**, A. Koga, A. J. Millis, P. Werner, Phys. Rev. B **101**, 195118 (2020)

[2.2] T. Tanabe, **T. Kaneko**, Y. Ohta, arXiv:2108.02469

[2.3] **T. Kaneko**, Z. Sun, Y. Murakami, D. Golež, A. J. Millis, Phys. Rev. Lett. **127**, 127402 (2021)

[2.4] Z. Sun, **T. Kaneko**, D. Golež, and A. J. Millis, Phys. Rev. Lett. **127**, 127702 (2021)

## ※ 新型コロナウイルス感染症の影響による採用期間延長について

受入研究機関 (コロンビア大学) が所在するニューヨーク市 (米国) は新型コロナウイルスによる影響が大きく、2020年3月頃から市内でのウイルス感染が拡大し、ニューヨーク州の行政命令により2020年6月まで自宅待機を強いられた。海外特別研究員としての研究活動に与える影響も大きく、受入研究機関も2020年3月末から原則立ち入り禁止となり、博士研究員が自身のオフィスでの活動が許可されたのは2020年7月になってからであった。その後も研究室を利用できる人数が従来の50%以下に制限されており、リモートで受入研究者及び共同研究者と連携して実施可能な研究課題を進めたが、本研究課題の遂行には遅れが生じた。よって、新型コロナウイルス感染症の影響によって研究遂行に遅れが生じたため、本事業の特別措置による6ヶ月間 (2021年4月から9月まで) の採用期間延長を行なった。延長期間には市内のワクチン接種が広がり規制緩和も進んだため、受入研究機関での研究を活性化でき、本研究課題も有意義に進めることができた。