物性研究・電子版 Vol. 10, No. 1, 101215(2022年3月号)

# 相関電子系の非平衡物性研究の最前線

村上　雄太

東京工業大学 理学院物理学系

概要

平衡状態では、電子相関によりもたらされる物性や量子相により固体物理が彩られてきた。一方、相関電子系を外場で駆動することでより多彩な物性の発現が期待され、近年、実験・理論の両側面から急速に研究が進められている。非平衡物性の研究では、強い光を用いて物質を「見る」そして「操る」ということが大きな目的となっている。本稿では、この２点をキーワードにして、いくつかの研究を振り返りつつ非平衡物性研究の導入を行うとともに、我々の最近の研究について紹介する。「見る」という観点では、Mott 絶縁体からの高次高調波発生の研究を紹介し、HHG により多体系の励起構造が捉えられることを解説する。「操る」という観点からは、Prethermal 状態における励起子絶縁相の誘起、そして、誘起により生成される光キャリアから生じる非平衡秩序相に関する研究を紹介する。また、非平衡状態における電子相関の影響を調べる上で理論手法の開発は重要である。そこで、有力な理論手法である非平衡グリーン関数法、特に非平衡動的平均場理論、の基礎と最近の進展の解説も行う。

## 1　はじめに

電子相関の強い系では、電荷、スピン、軌道、フォノンなどが複雑に絡み合う。それにより系は様々な物性と秩序相を示し、平衡系における固体物理を豊かにしてきた。このような系は温度や圧力などの外部パラメータに対して大きな応答を示し、物性が大きく変化したり、相転移が起きる。では、時間に依存する強い外場で系を駆動すると何が起きるのか？　近年、相関電子系における非平衡現象が注目を集め、様々な現象が予言・観測されている。非平衡状態では、平衡状態では得難い系の情報の獲得が可能になったり、系の性質を大きく変える思いも寄らない現象が起きたりすることがわかってきた [1–5]。

これらの進展の背景として、レーザー技術の発展により、様々な条件で励起と観測が可能になったことが挙げられる。さらに、物質だけではなく、操作性の高い冷却原子気体でも多体系の非平衡現象がシミュレート可能であることも一翼を担っている。

また、理論的にはこの十数年の間に、非平衡現象を捉える上での様々な考え方や理論手法の開発が進展してきた。前者の一例は、Floquet エンジニアリングと呼ばれる考え方であり、周期外場を系に照射した時に、有効的に系のハミルトニアンを変更できるというものである。この考え方に基づいて様々な物質の操作法が理論的に予言されており、冷却原子気体の実験でその実現が報告されている。理論手法開発という点では、非平衡グリーン関数法、特に非平衡動的平均場理論 (DMFT)、の発展が注目に値する。非平衡 DMFT の発展により、強相関電子系の非平衡ダイナミクスを詳細に議論できるようになり、実験と理論との比較もなされつつある。

本稿の目的は、相関電子系の非平衡物性の研究の楽しさを伝えることである。そのため、本稿ではまず非平衡物性を探る上での動機や考え方の概観から始める。また、相関電子系の非平衡を扱う上で適切な理論手法を用いることは重要である。そこで、非平衡グリーン関数法を中心に理論手法を紹介し、最新の開発状況を紹介する。そして、最近の研究から、強相関電子系における高次高調波発生、そして、非熱的な秩序相の誘起に関する研究を紹介する。

## 2　物質 ＋ 強い光 ＝？

非平衡物性の研究の大きな動機には「見る」と「操る」という側面がある。「見る」とは、物質に強い光をあてることで、(弱い光では) それまで得られなかった系の情報、例えば固有の励起状態の特性、が観測できるようになることである。「操る」とは、強い光を用いて系を平衡状態から大きく駆動することで、平衡とは異なる物性を示す状態を実現するということである。ここでは、非平衡物性研究への導入として、「見る」と「操る」という観点から、いくつかの研究例を挙げつつ、有用な概念を紹介したい。非平衡研究は強相関電子系に限ったものではないが、様々な種類の相互作用が絡み合い、複数の秩序が競合する強相関電子系は両側面から格好の題材になっている。

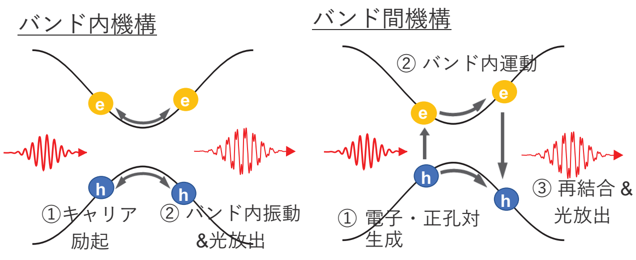


図 1　半導体における高次高調波発生のメカニズムの概念図。

### 2.1　強い光で物を見る

物質の性質を調べる上で光は重要なツールである。光学応答、ラマン散乱、角度分解光電子分光はすべて光と物質の相互作用を介して物質の励起状態の情報を得る手法である。これらの測定で用いる光はあまり強くない。しかし、より強い光を用いることで、それまで見えなかった、もしくは見えにくかった系の情報を得ることが可能になる。

その一つの例が、超伝導中の集団励起モードである Higgs モードの観測である [6]。Higgs モードは電荷を持たないため、通常の超伝導では光学応答やラマン散乱では捉えられなかった。(ただし、電荷秩序と超伝導の共存相ではラマン活性になり観測されていた。) しかし、強い THz 光を用いた超伝導体のポンプ・プローブ実験で Higgs モードに由来する振動を観測したり [7]、光誘起される Higgs モードの振動に由来する 3 次の高調波発生を観測すること [8] で、Higgs モードを実験的に捉えることができる。この方法により、従来型超伝導だけではなく、最近では銅酸化物高温超伝導の Higgs モード観測も進んでいる [9]。

また別の例として、高次高調波発生 (HHG) と呼ばれる現象が挙げられる。HHG とは、周波数 $\Omega$ の光を物質に入れた時、整数倍の周波数 $n\Omega$ を持つ光が物質から放射される現象である [10, 11]。この現象は、原子・分子ガスで研究されてきて、レーザーの周波数変換に実際に使われている。近年、固体においても観測され、固体中の HHG が大きな注目を集めている [12, 13]。物質から放射される光は分極の変化すなわち電流 ($j(t)$) に由来する。より正確には、電子の加速度と関係し、放射光の強度分布は $I(\omega) = |\omega j(\omega)|^2$ と表される。固体中では、電子は周期的な原子配列に由来するポテンシャルを感じながら動く。周期ポテンシャルの効果はバンド分散に反映されるので、外場により誘起される電流そして HHG はバンド分散を反映するものとなる。このことは、後で紹介する研究とも関わってくるので、実際の模型を見ながら少し考えてみる。

簡単のため、まず 1 次元、1 バンドの相互作用のない tight-binding 模型を考える。この時、ハミルトニアンは

$$\hat{H}(t) = -v \sum_{\langle ij \rangle} e^{iqA(t)r_{ij}} \hat{c}_i^\dagger \hat{c}_j \tag{1}$$

となる。ここで、$\hat{c}$ はフェルミ粒子の消滅演算子、$i, j$ はサイトを表し、$\langle ij \rangle$ は最近接サイトのペア、$q$ は電荷、$r_{ij}$ は $j$ サイトから $i$ サイトへの符号付距離である。($\hbar = 1$ としている) $A(t)$ はベクトルポテンシャルを表し、電場 $E(t)$ とは $E(t) = -\partial_t A(t)$ で結びつく。$e^{iqA(t)r_{ij}}$ は Peierls 位相と呼ばれ、tight-binding 模型における光と物質の結合を表す項の一つになる。簡単のため $q = 1$、格子間隔も 1 として、ハミルトニアンを運動量表示すると、$\epsilon(k) = -2v\cos(k)$ を用いて

$$\hat{H}(t) = \sum_k \epsilon(k - A(t)) \hat{c}_k^\dagger \hat{c}_k \tag{2}$$

と表される。時刻 $t = 0$ では外場がなく、初期状態として運動量 $k_0$ の粒子が一つある状況を考える。この状態は $\hat{c}_{k_0}^\dagger |\mathrm{vac}\rangle$ と表され、時間依存しないことがわかる。しかし、外場により対応する運動量は時間変化し $k(t) \equiv k_0 - A(t)$ となり、それに伴いエネルギー $\epsilon(k(t))$ や電子速度 $v(k(t)) = \partial_k \epsilon(k(t))$ も変化する。電流は $\hat{j}(t) = q\sum_k v(k - A(t))\hat{c}_k^\dagger \hat{c}_k (= -\partial_A \hat{H})$ であるので、上の状態では $j(t) = v(k(t))$ が観測される。

ここで、単色光の外場 $A(t) = A_0 \sin(\Omega t)$ がかかっているとすると、$\epsilon(k)$ の非調和性から、$v(k(t))$ には $n\Omega$ の成分が含まれることがわかる。$A_0$ の大きさによって、Brillouin ゾーンのどの位置まで電子が移動するかが決まる。小さければ $\epsilon(k)$ は $k^2$ で近似でき非調和性は効かないので HHG は発生しない。$A_0$ が十分大きく非調和性が効いてくる運動量まで電子を励起できればそれに応じて HHG が発生する。この HHG の発生メカニズムは、電子のバンド内の運動を起源とするバンド内機構と呼ばれるものである (図 1 左)。これ以外に電子とホールの再結合に由来する放射を表すバンド間機構がある (図 1 右) [12, 14, 15]。何れにせよ、電子がバンド分散を反映しながら動くことで HHG が発生する。そのため、固体中の HHG は周波数変換の素材だけではなく固体の物性を測定するツールとしても注目されている。

以上の例の他にも、光励起による秩序相の融解過程を見ることで秩序相を支配する相互作用を特定したり [16]、励起後の初期状態への回復過程を測定することで系の相互作用の大きさを見積もることも可能である [2]。このように様々な情報が獲得できることが、強い光で物性測定を行うことの強みとなっている。

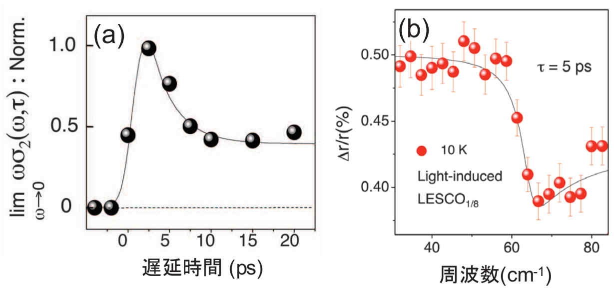


図 2 $La_{1.675}Eu_{0.2}Sr_{0.125}CuO_4$（温度 10K）における、(a) 光励起後の $\lim_{\omega\to 0}\omega\sigma_2(\omega)$、および (b) 反射率。ここで $\sigma_2(\omega)$ は光学伝導度の虚部であり、有限の $\lim_{\omega\to 0}\omega\sigma_2(\omega)$ は 光学伝導度の虚部が $1/\omega$ 的に発散することを表す。反射率においては 60 $cm^{-1}$ 付近でプラズモンエッジとされる肩が見られる。文献 [17] より。

### 2.2 強い光で物性を操作する

平衡状態では、温度、圧力、物質の組成を変えることで、様々な状態が実現される。このようなことが、強い光を用いて高速に行えないか、という観点から、実験、理論ともに研究が進められている。

#### 2.2.1 光誘起相転移

光誘起相転移とは、光を照射することで平衡状態のある相から別の相へ系を転移させることである。その中には、光誘起の絶縁体-金属転移 [18–20]、光誘起超伝導 (?) [17, 21–24] や光誘起電荷秩序 [25] などが挙げられる。例えば、絶縁体-金属転移では、光励起により電荷キャリアが生成されたり [18, 19]、系のパラメータ (Hubbard 模型のことでいうとホッピングや相互作用) が光により変化することで [20]、ギャップを示し絶縁体的であった光学応答が変化し、ギャップが埋まり金属的な振る舞いを示すようになる。

また、光により超伝導が誘起される可能性も指摘されている。例えば銅酸化物 $La_{1.675}$ $Eu_{0.2}Sr_{0.125}CuO_4$ の実験では、系のフォノンを共鳴的に励起することで、超伝導 $T_c$ 以上でも、光学伝導度 $\sigma(\omega)$ の虚部 $\sigma_2(\omega)$ が低周波に向かって $1/\omega$ のように増大する振る舞いが誘起されること、さらには反射率測定において超伝導状態特有の Josephson プラズモンエッジが発現することが報告されている [17]。この状態は比較的長寿命 (10ps 以上) と言われている。似たような振る舞いは、銅酸化物 $YBa_2$ $Cu_3O_{6+\delta}$ [21, 22] やフラレン超伝導 $K_3C_{60}$ [23] などでもが報告されている。ただし、これらの状態が本当に超伝導なのか否か、は今でも議論が続いている。例えば、超伝導ではなく長寿命のキャリアが生成されている可能性なども指摘されている。いずれにせよ何かしらの非自明な非平衡状態が実現していることは間違いなく、その起源の解明が求めらている。

上記の例は、電子のホッピングの時間スケール (数 fs) に比べて、十分長い時間 (数 ps) 出現するが、格子の構造変化を伴うと非平衡状態が非常に安定になることもある。例えば、$1T-TaS_2$ の例があり、そこでは、平衡状態では出現しないパターンを示す電荷秩序相が、光により非常に長時間安定して出現することが報告されている [25]。この状態は光をあてることで平衡状態の秩序相に戻すこともでき、それを用いた記憶デバイスなどへの応用も期待されている。

光誘起相転移は様々な物質で報告され、多岐にわたっており、異なるメカニズムによって発現しうる。理論的なアプローチとしては、Hubbard 模型などのミクロスコピックな模型に基づいた記述や Ginzburg-Landau 理論のような現象論を用いた記述があり、個々の現象の理論的な説明に使われてきた。一方、光誘起相転移の統一的な理解は、(筆者の知る限り) 得られていない。今後も個々の現象に関する知見を蓄積しながら、統一的な理解を目指す必要がある。

#### 2.2.2 Floquet エンジニアリングというパラダイム

上記のような光誘起相転移は、基本的には外場によって励起した後に出現する現象であった。一方で、外場を当て続けたとき、もしくは当てている間に面白い現象が出現しないか、という疑問が湧いてくる。この疑問に答えを与えるのが、Floquet 理論に立脚する Floquet エンジニアリングという考え方である [4]。

Floquet 理論とは、次のようなものである。もしハミルトニアン $\hat{H}(t)$ が $\mathscr{T}$ の周期性を持っていた時、

$$|\Phi_\alpha(t)\rangle = e^{-i\epsilon_\alpha t}|u_\alpha(t)\rangle \quad 但し \quad |u_\alpha(t)\rangle = |u_\alpha(t+\mathscr{T})\rangle \tag{3}$$

のように、位相部分 $e^{-i\epsilon_\alpha t}$ と周期部分 $|u_\alpha(t)\rangle$ に分けられる解が存在し、任意の波動関数はそれらの和で表される。$\epsilon_\alpha$ は quasi-energy と呼ばれる。この理論から、時刻 $\mathscr{T}$ おきに見れば、状態があたかも $\epsilon_\alpha$ をエネルギーに持つような時間変化しないハミルトニアンに従って動いているようにみなせる。別の言い方をすると、次のようになる。ある時刻 $t_0$ を基準にして、時間発展演算子を $\hat{U}(t, t_0) \equiv \mathcal{T}\exp(-i\int_{t_0}^{t} d\bar{t}\hat{H}(\bar{t}))$ とした時、

$$e^{-i\mathscr{T}\hat{H}_{\rm eff}(t_0)} \equiv \hat{U}(t_0+\mathscr{T}, t_0) \tag{4}$$

によって $\hat{H}_{\rm eff}(t_0)$ を導入する。このとき、$t_0 + n\mathscr{T}$ における状態を見る限り、系が $\hat{H}_{\rm eff}(t_0)$ に従って時間発展することと同等になる。この $\hat{H}_{\rm eff}(t_0)$ は外場に依存するため、外場によって系を支配するハミルトニアンを有効的に変更できるということになる。これが

Floquet エンジニアリグの考え方である。多くの場合、$\hat{H}_{\rm eff}(t_0)$ は、Magnus 展開などの高周波展開を用いて求める [26,27]。これらの方法は、外場の周波数 ($\Omega = \frac{2\pi}{\mathcal{T}}$) が系の典型的なエネルギースケールより大きい場合に有効である。

周期外場のもたらす現象の一番簡単な例は、動的局在である [28]。この効果は、高周波展開でいうと最低次の効果になり、有効ハミルトニアンを時間平均で近似、即ち $\hat{H}_{\rm eff} \sim \frac{1}{\mathcal{T}}\int_{t_0}^{t_0+\mathcal{T}} dt \hat{H}(t)$ とすることで記述される。実際に式 (2) を $A(t) = A_0 \sin(\Omega t)$ として時間平均してみると、$\hat{H}_{\rm eff} = \mathcal{J}_0(A_0)\sum_k \epsilon(k)\hat{c}_k^\dagger \hat{c}_k$ という結果になる。ここで、$\mathcal{J}_0$ は 0 次のベッセル関数である。この式は、外場を強くすると $\mathcal{J}_0(A_0)$ 分だけバンド幅が小さくなる、つまり、粒子が局在すると言うことを表している。この効果は、実際に冷却原子気体 [29] や有機導体 [30] などの実験で報告されており、DMFT と冷却原子気体で直接比較も行われている [29]。さらに外場の高次の効果によって、より興味深い現象が出現する。例えば、円偏向した光をグラフェンに照射するとトポロジカルな性質を示す Haldane 模型が有効的に実現できる (Floquet トポロジカル状態) ことが理論的に予言された [31,32]。さらに、強相関系をあらわす斥力 Hubbard 模型では、周期外場によりスピンの交換相互作用の操作が可能になり、スピン相関が反強磁性的から強磁性的になることが理論的に予言されている [33]。これらの予言は冷却原子気体を用いた実験で検証されている [34,35]。また、前者の方では実際にグラフェンを用いた実験も報告されて、光誘起のトポロジカル状態を示唆する結果が得られているが [36]、実際に Floquet トポロジカル状態が実現しているかは議論の余地を残している [37]。

### 2.2.3　時間スケールの問題

物質を外場で駆動すると時々刻々状態が変化していく [38]。これらの典型的な物理過程を図式的に見てみよう (図 3(a))。これにより、これまで見てきた概念のつながりが見えてくる。まず、通常の実験ではポンプ光によって系が駆動され電子状態が初期の平衡状態からずれる。この時、ポンプ光の条件 (周波数、強度) に依存して、異なるメカニズムによって電子が励起される。ポンプが終わると、光エネルギーが熱に還元されて系全体に共有された熱化状態へ向けて緩和が始まる。

この緩和にはいくつかの段階があることが知られている。まず、励起直後では、prethermal 状態と呼ばれる状態に系が一度近づく場合がある。この prethermal 状態は熱平衡状態とは異なる励起状態であるが、電子間

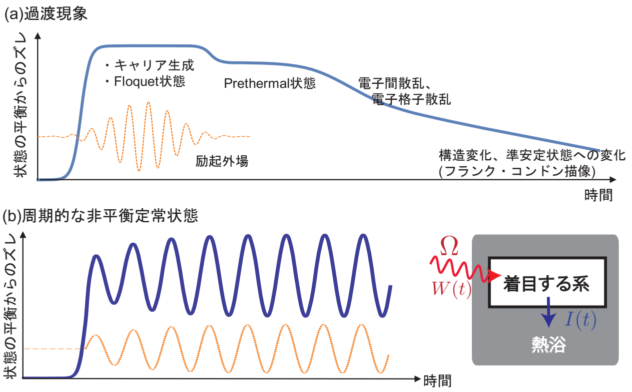


図 3　(a) 時間発展 (過渡過程) の概念図。(b)(左) 非平衡定常状態。(右) 着目する系と熱浴、$W(t)$ は外場からのエネルギー流入、$I(t)$ は熱浴への散逸を表す。青線は非平衡状態の平衡状態からのずれ、オレンジ線はレーザー（外場）を表す。

さらには電子格子間の散乱が本格的に始まる前に系が近づく、初期状態を強く反映した状態である。例えば、このような状態は、相互作用が比較的弱い場合 [39,40] そして反強磁性状態や超伝導状態のダイナミクスで報告されている [41]。また、第 4 章で紹介する非平衡秩序の誘起の議論もこの領域を対象としたものとなる。

その後、電子間や電子格子間の散乱による緩和が進む。散乱により、初期状態の情報は失われていく。典型的にはこの過程の時間スケールは数十 fs〜数百 fs である。そこでは、励起された電子が運動エネルギーを吐き出して運動エネルギーの低い状態にうつったり、絶縁体からの励起であれば電子とホールが対消滅などを起こす。通常の金属では、ボルツマン方程式によって記述される現象である。強相関電子系では、励起キャリアの分布によってエネルギースペクトルが大きく変化しうるため、その記述はより複雑になる。

電子物性は電子状態を反映して時々刻々変化しており、上のような prethermal な状態さらには、緩和過程の途中に、初期状態とは異なる非自明な物性を示す非平衡状態も生じうる。またこれとは別に、電子自由度が、格子歪みや電荷秩序などの平均場的な秩序といった電子に比べて時間スケールの非常に遅い自由度と結びつくことでも光誘起相転移が生じうる。遅い自由度に対していくつかの安定状態が存在すると、これらの間を光によってスイッチできるというわけである。これらは Franck-Condon 描像で捉えられ [1]、その時間スケールは上記の散乱過程に比べると遅くなる。

励起後の緩和過程の研究の他に、ポンプ光で励起中の物性、さらにはポンプ光を当て続けた時に生じる物性の研究も盛んである [4,27,38]。そこで活躍するのが先の Floquet エンジニアリングという考え方である。

系の性質は有効ハミルトニアンの形に加え、どのような状態が埋まっているかが重要である。特に、外場を当て続けると孤立系では系は最終的に無限温度に行くと考えられるが [27]、実際には注目系は熱浴と結びつくので、外場による非平衡定常状態を考える場合は開放系を考える (図 3(b)) [28, 38]。

## 3 相関電子系のための非平衡理論手法

多体問題は平衡ですら扱いは容易ではない。ましてや非平衡においては、さらに手法が限られており、新しい手法の開発が日々進められている。この章では、相関電子系の非平衡現象をミクロスコピックに記述する手法として、非平衡グリーン関数法を紹介する。特に、Mott 絶縁体を扱える動的平均場理論を重点的に説明し、その最近の手法開発の取り組みを紹介する。また、非平衡グリーン関数法以外の手法に関してもこの章の最後に簡単に紹介する。

### 3.1 非平衡グリーン関数法の導入

まず、イメージがつきやすいように、相関電子系の典型モデルである 1 バンド Hubbard 模型を導入する。ハミルトニアンは

$$\hat{H}(t) = -v \sum_{\langle ij \rangle} e^{iqA(t)r_{ij}} \hat{c}^\dagger_{i\sigma} \hat{c}_{j\sigma} + U \sum_i \hat{n}_{i\uparrow} \hat{n}_{i\downarrow} \quad (5)$$

であらわされる。ここで $\sigma$ はスピン自由度、$\hat{n}_{i\sigma} = \hat{c}^\dagger_{i\sigma}\hat{c}_{i\sigma}$、$U$ は局所的な Coulomb 相互作用である。第一項は電子の運動項であり、第二項は相互作用項である。我々の目標は、このように相互作用を含んだ系の非平衡ダイナミクスを記述することである。

グリーン関数法とは、系の波動関数を求めるのではなく、ある種の応答関数に焦点を当て、それを評価する方法を指す。具体的には、一粒子グリーン関数

$$G_{\alpha,\beta}(t,t') \equiv -i\langle \mathcal{T}_\mathcal{C} \hat{c}_\alpha(t) \hat{c}^\dagger_\beta(t') \rangle \quad (6)$$

を評価することを目的とする。ここで、$\mathcal{T}_\mathcal{C}$ は”時間経路”($\mathcal{C}$) 上での時間順序演算子を表し、$\hat{c}^\dagger(t')$ は時刻 $t'$ での”時間経路”($\mathcal{C}$) に応じた Heisenberg 表示の演算子を表す [38]。ただし、この時間経路は問題に応じて選ばれる。一粒子グリーン関数の意味は、簡単に言うと時刻 $t$ に状態 $\beta$ の電子を入れた時に、時刻 $t'$ で電子が状態 $\alpha$ にいる確率振幅である。含まれている情報量としては波動関数よりも落ちるが、電流、磁化、一粒子スペクトルなどの一体の物理量の評価にはこれで十分である。通常、有限温度の平衡状態を扱う場合は、時間経路 ($\mathcal{C}$) は虚時間上に取られる (図 4 (a))。これを松原形式と呼ぶ。非平衡問題を扱う場合は、図 4 (b,c) のような、実時間方向の経路を含む時間経路が取られる。図 4 (b) は、松原形式に実時間経路を加えたもので、松原形式で準備された平衡状態を初期状態とする時間発展を記述する。これはしばしば Kadanoff-Baym 形式と呼ばれる。一方、虚時間方向をあらわに含まないような時間経路も取られる (図 4 (c))。これは Keldysh 形式と呼ばれるものであるが、i) 平衡状態から出発する問題や ii) 非平衡定常状態を記述する場合に使われる。i) の場合は、相互作用なしの問題から出発し相互作用を断熱的に加えるなどの操作で平衡状態を用意する必要がある。ii) の場合は、注目している系が熱浴と結合していると考え、それにより生じる定常状態を記述する。このとき、熱浴との結合のため初期状態によらない定常状態に達する。

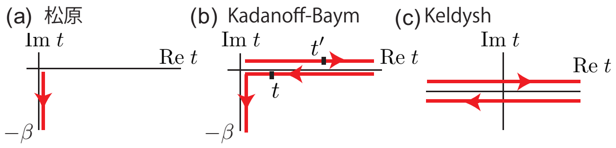


図 4 グリーン関数を定義する三種類の時間経路。

一粒子グリーン関数は、相互作用がない場合 (自由な場合) は厳密に求められる。これを $G_0$ と表すと、相互作用がある場合は、次の Dyson 方程式を解くことで求められる;

$$G(t,t') = G_0(t,t') + \int_\mathcal{C}\int_\mathcal{C} dt_1 dt_2 G_0(t,t_1)\Sigma(t_1,t_2)G(t_2,t'). \quad (7)$$

$\int_\mathcal{C}$ は各時間経路上の積分を表す。ここで $\Sigma$ は、自己エネルギーと呼ばれる量で、相互作用により生じる自由な場合からの補正を表す。自己エネルギーは、実は $G$ や $G_0$ の汎関数として表せ、Feynman ダイアグラムを用いて書き下すことができる。しかしながら、すべてのダイアグラムを厳密に取り込むことは一般には困難であり、何かしらの近似を施す必要がある。通常は、あるルールに従って特定のダイアグラムのみを取り込むことで自己エネルギーを近似するが、異なるダイアグラムは物理的に異なるプロセスを表す。そのため、どのように自己エネルギーを評価 (近似) するかが、グリーン関数法の肝になる。

### 3.2 非平衡動的平均場理論

動的平均場理論 (dynamical mean-field theory; DMFT) は、グリーン関数法の一つであり、強相関系、特に Mott 転移、を扱う強力な理論として発展してきた。その非平衡への拡張版である非平衡 DMFT も、Hubbard 模型などの強相関系に適用され、さまざまな非平衡現象を明らかにしてきた。例えば、Mott 絶縁

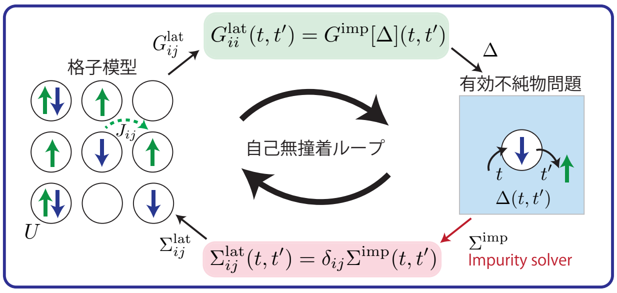


図 5 動的平均場理論 (DMFT) における、格子模型と不純物問題を巡る自己無撞着ループの概念図。混成関数 $\Delta$ については、ここでは一般に非平衡の場合に対応する引数 $(t,t')$ で表示している。

体の光キャリアダイナミクス、クエンチ問題 (系のパラメータを突然変えた時に何が起きるかという問題)、Floquet エンジニアリングなどが挙げられる。さらに、DMFT は電子フォノン相関や多バンド効果も取り込むことができ、最近では、DMFT を拡張し、非局所相互作用やスクリーニングの効果を取り込むなど様々な方向への進展をみせている。

### 3.2.1 基本的なアイディア

DMFT は、注目する格子模型を、或るサイト（不純物と呼ばれる）に対して、周囲の電子系を平均場的に均した模型 (相互作用を持つサイトとそれと結合する自由電子系；不純物問題) に置き換え、自己無撞着に電子グリーン関数を求める方法である。実空間での平均場近似に対応するが、時間軸上の量子揺らぎは取り込む、というのが動的平均場理論の基本的なアイディアである。この概念図を図 5 に示す。DMFT は、格子模型の空間次元が無限大の極限で厳密になることが知られている [42, 43]。不純物に対する作用は電子浴 (不純物サイトと結合する自由電子系) 中の電子を先に積分してしまうことにより、

$$S_{\rm imp} = \int_{\mathcal{C}}\int_{\mathcal{C}} dt dt' \sum_{\sigma} \hat{d}^\dagger_\sigma(t)\Delta(t,t')\hat{d}_\sigma(t') + \hat{H}_{\rm loc} \tag{8}$$

と表される。ここで、$\hat{d}^\dagger_\sigma$ は不純物サイトにスピン $\sigma$ の電子を生成する演算子、$\Delta(t,t')$ は混成関数 (hybridization function) と呼ばれ、電子が不純物サイトから電子浴に飛び出し、また戻ってくる振幅を表す。通常の（平衡に対する）DMFT では、混成関数は $\Delta(t)$ のように一つの時間のみの関数であるが、非平衡においては二つの時間の関数となる。$H_{\rm loc}$ は不純物サイトにおける相互作用を表し、扱う模型での 1 サイトに対するものとなる。例えば、Hubbard 模型では $\hat{H}_{\rm loc} = U\hat{n}_\uparrow\hat{n}_\downarrow$ となる。作用を求める際の時間積分の経路 $\mathcal{C}$ は、先に述べたように問題 (平衡かどのような非平衡か) に応じて決まる。

有効不純物問題は混成関数により規定されるが、DMFT では次の条件が満たされるように自己無撞着に決定する。すなわち、不純物に対するグリーン関数 ($G^{\rm imp} \equiv -i\langle \mathcal{T}_{\mathcal{C}} d(t) d^\dagger(t')\rangle$) が、格子模型の局所グリーン関数 ($G^{\rm lat}_{ii} \equiv -i\langle \mathcal{T}_{\mathcal{C}} c_i(t) c^\dagger_i(t')\rangle$、$i$ は格子模型のサイト) と

$$G^{\rm lat}_{ii}(t,t') = G^{\rm imp}(t,t') \tag{9}$$

のように一致し、また、自己エネルギー（相互作用を入れた場合のグリーン関数への補正）が格子模型と不純物問題において一致して

$$\Sigma^{\rm lat}_{ij}(t,t') = \delta_{ij}\Sigma^{\rm imp}(t,t') \tag{10}$$

となる、という条件を課す。実際に DMFT を実装する場合は、図 5 に示すように、適当な混成関数 $\Delta(t,t')$ から出発し、不純物問題を解き、格子模型に戻り、不純物問題に対する Dyson 方程式を介して更新された $\Delta(t,t')$ を用いて不純物問題を解き直し、再び格子模型に戻り、このループが収束するまで逐次代入する（つまり自己無撞着に解く）ことで、DMFT を解く事が出来る。条件 (10) を見て分かるように DMFT では自己エネルギーは同一サイト上のみでノンゼロであると仮定し (局所近似)、非局所相関を無視する。

不純物問題は、1 サイト問題とはいえ、多体問題であるから、何らかの方法 (impurity solver) で解く必要がある。平衡系と同じように数値的に厳密な量子モンテカルロ法を用いて解くこともできるが、負符号問題により長時間のシミュレーションが難しい。そこで、強結合展開 (Non-crossing approximation, one-crossing approximation, etc.) [44, 45] や弱結合展開 (iterative perturbation theory, Migdal theory, etc.) [38, 46, 47] を用いて不純物問題を評価することが多い。

### 3.2.2 実験との比較

DMFT は、強相関電子系を扱う強力な手法であるが、そこには様々な近似が含まれる。そのため、実際の実験で生じる現象をどれほど記述できるかという疑問が湧いてくる。このような背景から、近年、非平衡 DMFT と実験の比較も進んでいる。

例えば、冷却原子気体との比較においては、周期外場中の Hubbard 模型のダイナミクスの比較がなされた [29]。ここでは、実験から決めたパラメータのみを使用して非平衡 DMFT を実行している。図 6 は、先に話した動的局在の効果を調べ結果を示している。すなわち、強い周期外場を加えることで粒子が局在し、それに伴い、局所相互作用 $U$ の効果が相対的に強まり、ダ

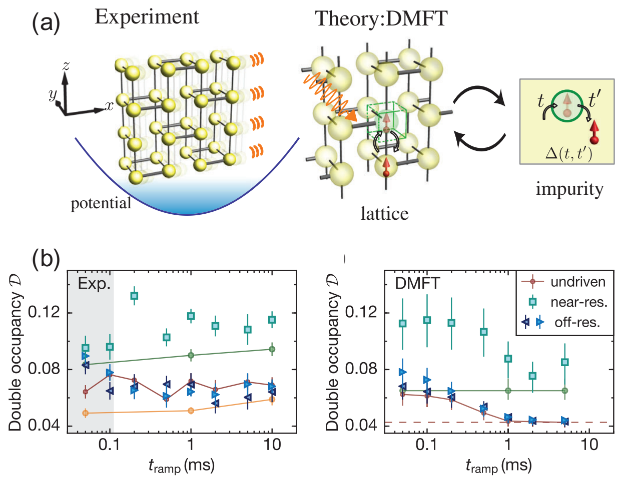


図 6　周期外場中の 3 次元 Hubbard 模型の冷却原子気体の実験と理論の比較。(a) 実験と理論の概念図。(b) 周期外場 (周波数 $\Omega$) 中のダブロン数の変化。$t_{\rm ramp}$ の間外場をかけ、ダブロンを測定している。off-resonant は $\Omega > U$ の場合、resonant は $\Omega = U$ の場合、そして、undriven は Floqeut ハミルトニアンを用いた時間発展を示している。また、●のデータは励起なしの場合を表す。文献 [29] より。

ブロン密度が小さくなる。ただし、ダブロンとは 2 つの粒子が同サイトにある状態を表すが、この状態は局所相互作用のためエネルギー的に不利である。動的局在が期待される非共鳴励起では、ダブロン密度の変化量や変化の時間スケール ($\sim 1$ ms) が、実験と DMFT の間で、フィッティングパラメータなしに、リーズナブルな一致を示すことがわかる。励起周波数 $\Omega$ が相互作用 $U$ と一致する共鳴励起では、ダブロンが直接励起されるので動的局在の効果は見えなくなるが、その様子も再現できている。この結果は、冷却原子気体の非平衡実験の精度と DMFT の信頼性を互いに担保している。

また、実際の物質の光誘起ダイナミクスとの比較もなされている。$1T$-$\mathrm{TaS_2}$ の例では、光励起キャリアのダイナミクスの振る舞いが、DMFT によりよく説明できることが報告されている [48]。特に、Mott 状態近傍では、平衡状態におけるドープ量が光キャリアのダイナミクスに大きく影響することが示された。

### 3.2.3　DMFT を超えて

DMFT は局所的な相互作用から生じる局所的な相関のみを取り込むことができるが、長距離相互作用から生じる効果や非局所的な相関は扱えない。しかし、現実的には局所相互作用からも磁気転移付近でのスピン揺らぎのような非局所的な相関も生じるし、長距離相互作用から生じるプラズモンなどの集団励起や、相互作用のスクリーニングの効果もある。光励起によって、平衡とは異なる電荷分布が生じるため、スクリーニングや揺らぎも変化し、非平衡ダイナミクスに影響を及ぼす。このような現象を記述するためには、DMFT を超えた枠組みが必要となる。

DMFT を拡張して非局所相関を取り込む方法は、大きく分けて 2 つある。一つの方向は、1 サイト DMFT をクラスターに拡張して短距離相関を徐々に取り込むもので、実空間でクラスターを考える場合の cellular DMFT [49, 50] と、運動量空間上のメッシュ点上の運動量を考える dynamical cluster approximation [51] がある。非平衡においても、すでに実装が行われ、スピン揺らぎと励起電荷の散乱などが調べられている [52, 53]。もう一つの方向は、Feynman ダイアグラムにおいて非局所的な相関を表す項を付け加えていく方法である。どのような項を加えるかで、議論できる物理が変わってくる。平衡系では、様々な拡張法が提案され実装されているが、非平衡の文脈では GW + 拡張 DMFT と呼ばれる手法が実装されている [54, 55]。簡単に言えば、この手法は、DMFT とスクリーニング効果をよく記述する GW 法を Feynman ダイアグラムレベルで組み合わせる方法である。これにより、Mott 絶縁体や電荷移動絶縁体における、光キャリアの特異な緩和現象 [54] やスクリーニングや散乱過程の変化のよるスペクトル形状の変化 [55] が明らかになっている。

### 3.3　非平衡グリーン関数法の最近の発展

非平衡グリーン関数法を実装する上での主な律速は、グリーン関数の保存と Dyson 方程式の評価にある。たとえば安直に考えるとグリーン関数の保存に必要なメモリは $\mathcal{O}(N_t^2)$ で、Dyson 方程式の評価は $\mathcal{O}(N_t^3)$ 時間必要になる。ここで $N_t$ は計算で使う時間の離散グリッドの数である。そのため、長時間のシミュレーションは困難である (実際には高々 100fs ぐらいまで)。この計算コストのスケーリングを改善しようという試みが続けられている。

例えば、グリーン関数の形にある種の仮定 (Generalized Kadanoff-Baym Ansatz: GKBA) を設けることで、必要メモリは $\mathcal{O}(N_t)$、Dyson 方程式の評価は $\mathcal{O}(N_t^2) \sim \mathcal{O}(N_t)$ になると報告されている [56, 57]。GKBA は古くより存在したが、近年でも新しい実装法 [57, 58] や電子格子系への拡張 [59] が行われ、開発が続いている。ただし、この手法は電子相関が比較的弱い場合にのみ有効であることが知られており、強相関系への適用は非自明な問題である。

一方、グリーン関数 $G(t,t')$ や自己エネルギー $\Sigma(t,t')$ をよく眺めると $|t-t'|$ が大きくなると値自体が小さくなる場合が多いことがわかる。この性質を用いて、

Dyson 方程式の積分範囲を対角付近 ($t \simeq t'$) に限定する方法も提案されており、$N_c$ をそのカットオフの大きさとすると計算コストはメモリが $\mathcal{O}(N_c N_t)$、計算時間が $\mathcal{O}(N_t^2 N_c)$ となる [60]。この方法は、DMFT にすでに適用され、計算可能時間が大幅に増えることが報告されている。また、応用数学の知識を用いて必要メモリが $\mathcal{O}(N_t \ln N_t)$ で、Dyson 方程式の評価は $\mathcal{O}(N_t^2 \ln N_t)$ まで下げられるということも最近報告された [61]。これらの開発により、単純な Hubbard 模型を超えたより現実的な模型の解析への機運が高まっている。

さらに、Dyson 方程式の数値解法など非平衡グリーン関数法の核部分を提供するオープンライブラリー Nessi (Non-Equilibrium Systems Simulation Library) も公開され [62]、非平衡グリーン関数法の開発環境が整いつつある。

### 3.4 その他の手法

非平衡グリーン関数法では、通常自己エネルギー Σ に何かしらの近似を行う。近似に依存して異なる散乱や揺らぎの効果が入るが、必ずしも全ての重要な効果を取り入れられているとは限らない。また、一次元の問題など、そもそも非平衡グリーン関数法では扱いにくい系もある。これらの問題を扱うには他の手法の力を借りる必要が出てくる。

しばしば使われる手法としては、厳密対角化 [63]、1 次元に特化した DMRG や iTEBD などの手法 [64,65]、時間依存変分法 [66,67]、第一原理的な時間依存密度汎関数法や開放系を扱う Lindblad 形式などが挙げられる。これらの手法にはどれも一長一短があり、平衡の場合と同様、他の手法と相補的である。

例えば、厳密対角化は文字通り、波動関数を Schrödinger 方程式から厳密に求める方法であり、厳密であり情報量は多く、複雑な相互作用も扱うことができる。しかし、系の大きさに対して波動関数の次元が指数的に大きくなりあまり大きな系 (Hubbard 模型で 20 サイト程度) は扱えない。また、iTEBD は一次元に特化し、無限系を精度よく扱えるが、励起後の時間発展を記述する際に必要な計算コストが時間に対して指数的に増加することが知られている。計算精度の高い計算手法は、一般にどこかに指数的な困難が入っている。時間依存変分法は、波動関数の形を仮定してその中で時間発展をするものであり、厳密対角化より大きな系を扱え、最近ではニューラルネットワークを用いた手法 [67] も開発されている。

## 4 最近の研究から

この章では、「見る」そして「操る」という観点から、それぞれ最近の研究を紹介する。「見る」という観点からは、強相関電子系における高次高調波発生の理論研究を紹介する。また、「操る」という観点からは、Prethermal な状態における秩序相の出現の可能性、さらには緩和過程におけるボトルネックに由来する秩序相出現の可能性に関する研究を紹介する。

### 4.1 強相関電子系における高次高調波発生

先にも述べたように近年、固体における高次高調波発生 (HHG) が観測され話題を呼んでいる。固体中の HHG は、まず半導体において観測され [12]、レーザーの周波数変換法としての応用の可能性もさることながら、ベリー曲率やエネルギー分散などのバンド構造観測への応用も期待されている [68, 69]。さらに最近では、グラフェンなどの半金属 [70]、周期性を持たないアモルファス系 [69] さらには液体 [71] でも HHG が観測され、急速な広がりを見せている。そのような中でも、強相関電子系は HHG を研究する舞台として興味深い。例えば、一次元の強相関電子系では、強い 3 次の非線形性が報告されている [72]。さらに、半導体での電荷の担い手は電子やホールといった通常の粒子であったが、強相関電子系では、Hubbard 模型ではダブロン (1 サイトに電子が二個ある状態) やホロン (1 サイトに電子がない状態)、ダイマー Mott 系ではキンクやアンチキンクといった [73]、通常の粒子ではない自由度が電荷移動を担う。このような事情から、強相関電子系ではどのような HHG が発生するのか、その起源は何か、そこにはどのような情報が詰まっていて HHG を観測法として使えるのか、半導体とはどう異なるのか、といった様々な興味深い問題が湧いてくる。

ここでは、強相関電子系を記述する最も基本的な模型である 1 バンド Hubbard 模型に注目し、無限次元と 1 次元系の HHG を探っていく [45, 74, 75]。まずは無限次元を考える。立方格子の高次元版である hypercubic 格子を考え、DMFT を適用する [45]。ただし、HHG は周期外場によって系が駆動され、周期的に振る舞うことで発生する。この部分を捉えるため、周期的な非平衡状態を扱う Floquet DMFT を用いる [38, 45]。実験と同様にギャップに比べ十分小さい周波数の外場を加える。図 7(a)(b) に HHG の強度分布を示す。ここでは、外場として電場 $E(t) = E_0 \sin(\Omega t)$ をかけている。外場がホッピングエネルギー $v$ に比べて小さい場合と大きい場合で定性的な振る舞いが異なることが

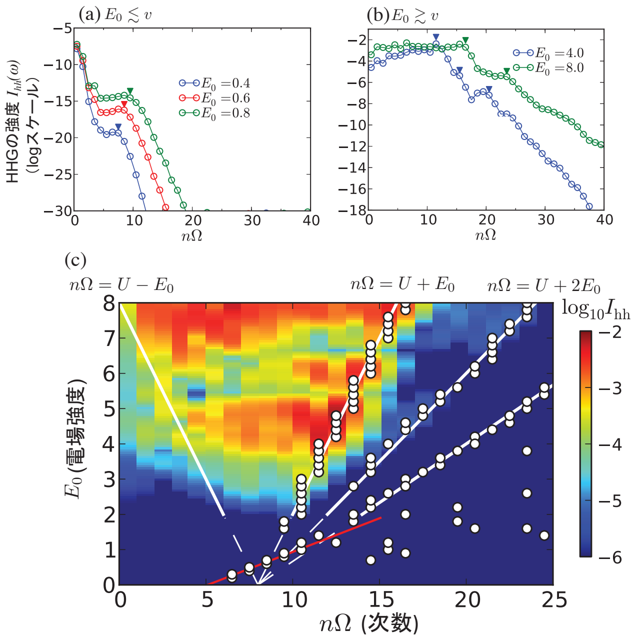


図 7　(a)(b)Floquet DMFT による HHG の強度分布。▽ はカットオフ周波数を示す。(c)Floquet DMFT による HHG の強度分布のまとめ。○はカットオフ周波数を示し、直線はカットオフ周波数の $E_0$ 依存性を示す。ただし、ここで $U = 8.0$、自由電子の状態密度は $D(\epsilon) = \frac{1}{\sqrt{\pi}v}\exp(-\epsilon^2/v^2)$、励起周波数 $\Omega = 0.5$ を用いている。文献 [45] より。

わかる。小さい時は、通常のガス系のように、1 つのプラトーのみが生じるのに対し、外場が強いと複数のプラトーが生じていることがわかる。このプラトーの終わり (カットオフ周波数) と強度を図 7(c) にまとめる。いずれの領域においてもカットオフ周波数は外場に対して線形に増えていることがわかる。ガス系では HHG はポンデロモーティブエネルギーを反映しており、カットオフ周波数は $E^2$ で振る舞うことが知られている。一方、半導体ではカットオフ周波数が $E$ で振る舞うことが報告されており [12, 14]、Mott 絶縁体の場合も半導体と同様の $E$ 依存性があることがこの計算からわかる。

では、HHG の起源はなんであろうか？ Hubbard 模型で表される Mott 絶縁体の場合、電流はダブロンやホロンが担っている。このとき、これらの”粒子”が単に移動するために流れる電流 ($j_{\mathrm{hop}}$) と衝突をして対消滅を起こすために流れる電流 ($j_{\mathrm{rc}}$) の二種類が考えられる。これはちょうど、半導体の場合のバンド内電流とバンド間電流に対応している。これらを分けて評価してみると $j_{\mathrm{rc}}$ からの寄与が支配的であるとわかる。つまり Mott 絶縁体の HHG はダブロンとホロンの対消滅に由来するということである。では、先に示された二つの異なる HHG の振る舞いは何に由来するのか？

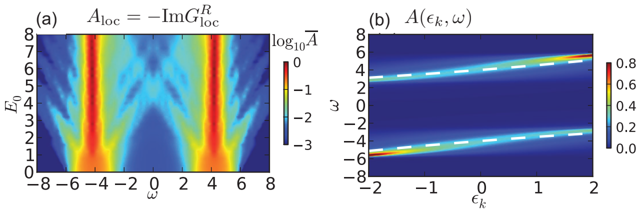


図 8　(a) 時間平均された local な一粒子スペクトルの励起強度依存性。$E_0 = 0$ では、Upper Hubbard バンドと Lower Hubbard バンドが見られるが、$E_0$ が強くなるとサイドバンド (WS ladder) が現れる。(b) 平衡状態における分散化関係。ただし、DMFT の事情から横軸は運動量ではなく自由電子のエネルギーとなっている。また、白い点線は半導体模型 (もしくは Hubbar I 近似) の分散関係。計算条件と引用は図 7 と同じ。

その答えは、外場に依存したダブロンとホロンの運動の違いにある。外場がホッピングエネルギー $v$ に比べ弱い場合は、ダブロンとホロンはサイト間を自由に移動でき外場による運動エネルギーを蓄えることができ、それを対消滅の時に吐き出すと考えられる。一方、外場が強いとダブロンとホロンのサイト間の移動は外場のポテンシャルエネルギーにより阻害される。そのため、ダブロンとホロンがある格子間隔 $na$ をあけて局在する ($a$ はサイト間距離)。このペアが対消滅を起こすと $U + nE_0a$ のエネルギーが放出される。実際に、外場が強い場合のカットオフ周波数は $U + nE_0a$ で変化していることがわかる。また、電荷の局在性は local な一粒子スペクトルをみることでもわかり、外場が強い領域では Wannier Stark(WS) ladder と言われる局在性を表す構造が現れることがわかる (図 8(a))。

以上の結果は、Mott 絶縁体においても半導体の似た起源で HHG が起きることを示唆している。しかし、電荷の担い手がダブロンやホロンという通常の粒子ではないことにより、HHG と一粒子スペクトルの関係に大きな違いが生まれる。半導体の場合は電荷の動きは一粒子スペクトルの情報で記述できたが、Mott 絶縁体ではそうでない。DMFT による Mott 絶縁体の一粒子スペクトルは図 8(b) のようになり、Upper Hubbard band と Lower Hubbard band が平行になる。そこで、ダブロンやホロンを通常の粒子とみなして、同様の分散関係を持つ半導体模型を作ることができる。HHG を計算すると図 9 のようになり、HHG の強度分布は大部分で弱まり、そのスペクトルは Mott 絶縁体とは異なるものになる。一方、同じ半導体模型で思い切って分散関係を直接ギャップ型に変えると、一粒子スペクトルは合わないが、Mott 絶縁体の HHG スペクトルを定性的に再現することがわかる (詳細は論文 [45] 参

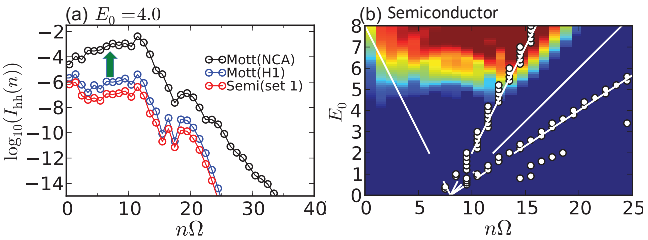


図 9 (a) 半導体模型と Hubbard 模型の HHG 強度分布の比較の一例。また、Hubbard I 近似の結果も乗せている。(b) 半導体模型の HHG の強度分布まとめ。ただし、半導体の分散関係は図 8 に示されるように間接ギャップ型になっている。計算条件と引用は図 7 と同じ。

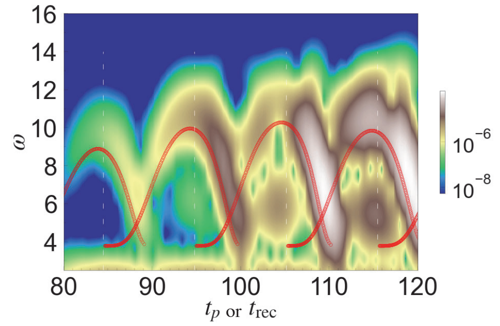


図 10 一次元 Hubbard 模型におけるサブサイクルスペクトル。赤線は、Bethe 仮設によるダブロン・ホロン分散を用いた 3 ステップ模型の結果。文献 [75] より。

照)。この現象に関する正確な理解はまだ得られていないが、Mott 絶縁体では HHG は一粒子スペクトルではなく直接多体の励起構造を反映していることの現れだと考えている。実際に同様の現象が次に紹介する 1 次元系においても見られる。

無限次元の問題は DMFT を用いて調べることができるが、多体の励起構造の詳細情報を得ることが難しい。そこで、次にこの情報がよくわかる 1 次元系に焦点を当て、HHG と励起構造の関係を考察していく [75]。この解析では iTEBD を用い、ガウスパルスを照射した時の実時間シミュレーションを行う。この結果、DMFT の場合と同様に、HHG はダブロンとホロンの対消滅に由来し、カットオフ周波数も外場に線形に依存することがわかる。HHG の振る舞いを詳しく調べるためにそのサブサイクルスペクトル ($I(\omega, t_p)$) を計算する。$I(\omega, t_p)$ は、$j(\omega, t_p) = \int dt e^{i\omega t} j(t) F_{\mathrm{window}}(t - t_p)$ を用いて $I(\omega, t_p) = |\omega j(\omega, t_p)|^2$ と定義され、ある時刻 $t_p$ 付近でどのような放射が発生するかを意味する。ここで、$F_{\mathrm{window}}(t)$ は $t = 0$ 中心の窓関数である。結果を図 10 に示す。各時刻で強い強度を示す周波数が周期的に変化する様子が見て取れる。

半導体では、このサブサイクルスペクトルの構造が、価電子バンドと伝導電子バンドの分散関係を用いた半古典的な 3 ステップ模型でよく記述されることが知られている [76]。ここで半古典的な 3 ステップ模型とは、次のようなものである。まず、外場によりある時刻 $t_0$ で電子・正孔ペアが励起される (ステップ 1)。そのペアの距離 ($x_{\mathrm{rel}}(t)$) が次の方程式で記述されるように変化する (ステップ 2)。

$$\frac{dx_{\mathrm{rel}}(t)}{dt} = \frac{d\epsilon_g(p)}{dp}\bigg|_{p=p(t)}, \tag{11a}$$

$$p(t) = p_0 - A(t) + A(t_0). \tag{11b}$$

ただし、$p(t)$ は電子の持つ運動量 (電子の持つ運動量 + ホールの持つ運動量=0 が成り立っている)、$\epsilon_g(p) \equiv \epsilon_c(p) - \epsilon_v(p)$ であり、$\epsilon_c(p)(\epsilon_v(p))$ は価電子 (伝導電子) バンドの分散を表している。初期条件は $x_{\mathrm{rel}}(t_0) = 0$ となる。電子・正孔ペアは外場中を運動し、ある時刻 $t$ で同じ位置に戻ってくる $x_{\mathrm{rel}}(t) = 0$。この時、再結合が起きエネルギー $\epsilon_g(p(t))$ が放出される (ステップ 3)。この模型のポイントは電子・正孔ペアのエネルギーと相対運動が一粒子スペクトルの情報 $\epsilon_g(p)$ で記述されるという点にある。一方、1 次元 Hubbard 模型では電荷自由度の多体素励起であるダブロン、ホロンの分散関係 ($\epsilon_d(p)$、$\epsilon_h(p)$) が解析的にわかっている。実は、半古典的な 3 ステップ模型で、半導体における $\epsilon_c$、$\epsilon_v$ の代わりに、この多体励起の分散関係を用いると Mott 絶縁体における HHG のサブサイクルスペクトルがよく再現できることがわかる (図 10)。つまり、半古典的な 3 ステップ模型は、Mott 絶縁体でも多体素励起の分散関係を用いれば有効で、HHG の過程をうまく説明できるということである。

多体素励起の分散は、一粒子スペクトルに現れる場合もあるが、必ずしもそうとは限らない。1 次元 Hubbard 模型の場合、一粒子はダブロン (もしくはホロン) とスピノンと呼ばれる素励起に分解される。そのため、一粒子スペクトルは二つの素励起を組み合わせたものになる。図 11(a)(b) に、Hubbard 模型を Schrieffer-Wolff(SW) 変換して得られる有効模型に対する一粒子スペクトルを示した。(a) と (b) の違いはスピン配列の違いで、(a) は Heisenberg 模型の基底状態、(b) は反強磁性スピン状態を取っている。この模型においても、一粒子スペクトルは二つの素励起の組み合わせになるが、スピン状態の違いで一粒子スペクトルが大きく変わり、特に (b) の場合は何も構造を表さない。しかし、対応する HHG スペクトルを見ると両者の場合で形状は一致することがわかる (図 11(c))。これは、HHG が、一粒子スペクトルでは隠されてしまうダブロン・ホロンの分散を直接反映することを意味し

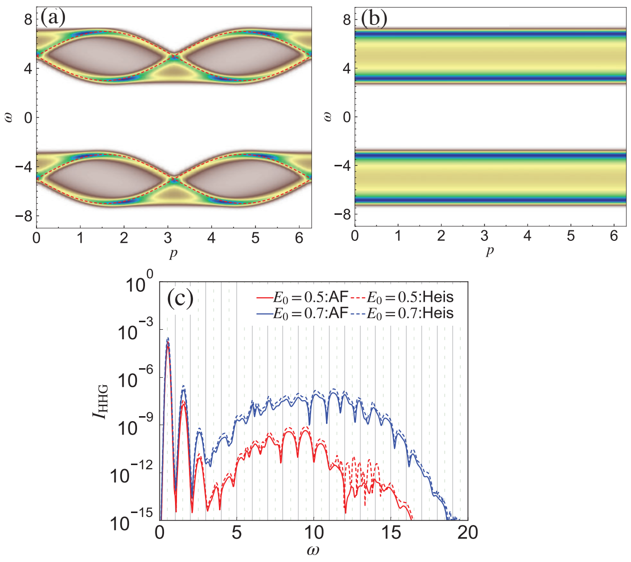


図 11　(a)(b) SW 変換を用いた一次元 Hubbard 模型の有効模型から計算した一粒子スペクトル。(a) は Heisenberg 模型によって記述されるスピン状態を、(b) は反強磁性スピン状態を用いている。(a) の結果が、元の一次元 Hubbard 模型の分散関係と類似した結果となっている。(c) 有効模型から計算した HHG の結果。スピン状態が Heisenberg 模型で記述される場合と反強磁性スピン状態の二つの場合で計算している。文献 [75] より。

ている。

これら無限次元と 1 次元の解析の結果は、Mott 絶縁体における HHG は多体の励起構造を直接捉えていることを示唆している。そのため、HHG が半導体において電子の分散関係の観測へ応用されているように、強相関電子系における多体の励起構造の観測に HHG が使える可能性が十分にある。また、紙面の都合上詳細は省くが、Mott 絶縁体の特徴的な自由度としてスピンがあり、スピンのダイナミクスが HHG 強度に大きな影響を及ぼすことも理論計算から示唆されている。そのため、スピン自由度を使った HHG の操作など強相関系特有の HHG の物理の展開が期待される。さらに、ダイマー Mott 系ではダブロン・ホロンとはまた異なった素励起 (キンクやアンチキンク) のダイナミクスにより HHG が生じることが指摘されており [73]、様々な種類の多体の素励起と HHG の関係の理解、さらにはそれらを用いた励起構造観測法の確立など興味深い問題が多く残っている。

## 4.2　非平衡における秩序相誘起

非平衡状態において平衡状態では得難い新しい相を誘起することは、非平衡物性研究の一つの目標となっている。Franck-Condon 描像で説明されるような比較的ゆっくりな過程によって実現される光誘起相転移以外にも、様々な非平衡相転移のメカニズムが提案され

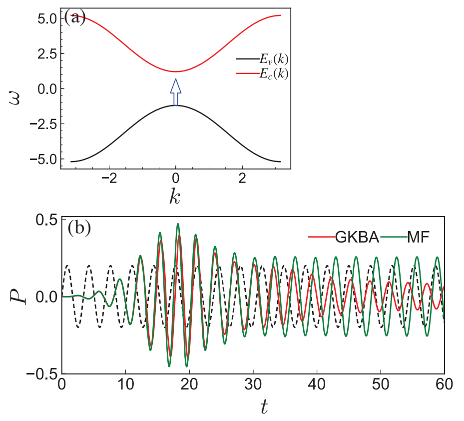


図 12　(a) 半導体模型の分散関係と励起周波数の関係図。励起子への共鳴励起を考えるため励起周波数はバンドギャップより小さい。(b) 共鳴励起に誘起される分極 $P$ のダイナミクス。平均場 (MF) と GKBA(散乱有り) の結果を示している。点線は、バンドギャップを $E_{\mathrm{gap}}$ とし、$\sin(E_{\mathrm{gap}}t)$ を示しており、GKBA や MF の振動が $E_{\mathrm{gap}}$ より速いことを表す。

ている。

### 4.2.1　Prethermal 状態における秩序誘起

Prethermal 状態とは、電子間散乱や電子フォノン散乱が本格的に始まる前に、駆動された系が達する状態である。このような状態において、秩序相とみなせる状態が誘起できる可能性がある。

このような現象が現れる例として、まず励起子モードを共鳴的に励起した半導体が挙げられる [80–82]。光励起された半導体では、電子とホールが生成される。これらはまずバンド内緩和を起こすが、電子とホールの温度が十分低くなれば励起子凝縮相 (EI 相) が実現される可能性が古くから指摘されてきた [77–79]。実は、同様の状態が、励起子モードを共鳴的に励起した場合に (過渡的ではあるが) 実現されることが、最近の実験と理論の研究で報告されている [80–82]。

このことを説明するために、簡単なスピンレス 2 バンド模型を導入する [82]。ハミルトニアンは $\hat{H}(t) = \hat{H}_{\mathrm{kin}}(t) + \hat{H}_{\mathrm{int}} + \hat{H}_{\mathrm{dip}}(t)$ のように記述され、各項は

$$\begin{aligned}\hat{H}_{\mathrm{kin}}(t) &= -\sum_{\langle i,j\rangle, a=c,v} v_a e^{iqA(t)r_{ij}} \hat{c}^{\dagger}_{i,a}\hat{c}_{j,a} + \sum_{i,a}\Delta_a \hat{c}^{\dagger}_{i,a}\hat{c}_{i,a}, \\ \hat{H}_{\mathrm{int}} &= U\sum_i \hat{n}_{i,c}\hat{n}_{i,v}, \qquad (12) \\ \hat{H}_{\mathrm{dip}}(t) &= -\mathbf{E}(t)\cdot\sum_{i,a}\mathbf{d}_a \hat{c}^{\dagger}_{i,a}\hat{c}_{i,\bar{a}}.\end{aligned}$$

のようになっているとする。ここで、$a = c, v$ はバンドの種類を表し、$\Delta_a$ はバンドごとのエネルギーシフトを表す。また、$\hat{H}_{\mathrm{int}}$ は異なるバンド間に働く斥力相互作用を表す。電子とホールの言葉に直すと引力相互作用となり、半導体における励起子準位が生成される。

$\hat{H}_{\rm dip}(t)$ は、バンド間のダイポール励起を表す項になっている。外場がない場合は、$c$-バンドと $v$-バンドの電子数が各々保存し、$\langle \hat{c}_c^\dagger \hat{c}_v \rangle$ が秩序パラメータとして働く。つまり、対称性が破れていない状態では $\langle \hat{c}_c^\dagger \hat{c}_v \rangle = 0$ となる一方で、対称性の破れた EI 相は $\langle \hat{c}_c^\dagger \hat{c}_v \rangle \neq 0$ となり、$c$-バンドと $v$-バンドの自発的な混成が生じる。ダイポール励起の項は、$c$-バンドと $v$-バンドの混成をもたらすため、秩序パラメータを外部から強制的に駆動する項とみなせる。

このような系を励起子準位に共鳴する周波数で励起する場合を考える (図 12)。ここでは、系のダイナミクスを、散乱効果の入らない平均場理論（Hartree-Fock 近似) と散乱過程が取り込める GKBA の結果を比較しながら、考察していく。計算の結果を見ると、励起後も大きな秩序パラメータの振動が残る。しかも、単なる励起子の振動であればバンドギャップより小さな周波数で振動するはずであるが、実際の振動数はバンドギャップ ($E_{\rm gap}$) より大きいことがわかる。このことは、BCS 的な EI 相が生じていることを意味する。平均場描像では秩序パラメータその振動はほとんど緩和せず残るが、GKBA により散乱過程を導入するとその振動が徐々に弱まっていくことがわかる。つまり、大きな秩序パラメータの振動の本質は平均場描像で説明でき、散乱はそれを阻害する方向に働くというわけである。では、平均場的な描像のうち重要な要素は何か？それは波動関数の形が単純な形にかけ、ある意味”温度が低い状態”が保たれているというところにある。すなわち、平均場波動関数は、$k$ を運動量として

$$|\psi(t)\rangle = \prod_k (\alpha_k(t)\hat{c}_{k,c}^\dagger + \beta_k(t)\hat{c}_{k,v}^\dagger)|{\rm vac}\rangle \tag{13}$$

とかけ、$|\alpha_k(t)|^2 + |\beta_k(t)|^2 = 1$ が各 $k$ で保たれるということである。もちろん、散乱が始まるとこの状態は徐々に良い近似ではなくなるが、ある時間の間は十分良い近似として成り立つ。一方、この形の平均場波動関数は絶対零度の超伝導 BCS 理論で出てくるものに類似する。有限温度状態はこのような形の波動関数の Mixed 状態として記述される。この意味で今の状態は”温度が低い状態”であり続ける。このため、光励起された秩序は平均場の範囲では崩れにくく、その表れとして大きな振動が残ると理解できる。

ここで見た現象は、散乱効果が入る前であれば平均場的な描像がよく、それによって系はある意味”温度が低い状態”になり、秩序相のような状態が出現するというものであった。散乱効果は、そもそも相互作用が弱ければ抑えることができるし、励起条件で (位相空間的な理由から) も抑えられる。上の例はこの二つの要素を含んでいる。一方、相互作用が逆に強い場合では、強結合の平均場的な描像がよくなり、上の弱相関の場合と同じように、prethermal な状況で秩序相が誘起される可能性もあることを次に見ていく [83]。そのためにここでは 2 バンド Hubbard 模型を考える。ハミルトニアンは $\hat{H} = \hat{H}_{\rm kin} + \hat{H}_{\rm cf} + \hat{H}_{\rm int}$ のように表され、各項は $\hat{H}_{\rm kin} = \sum_{\langle i,j\rangle,\sigma}[v_0\hat{c}_{i1\sigma}^\dagger \hat{c}_{j1\sigma} - v_0\hat{c}_{i2\sigma}^\dagger \hat{c}_{j2\sigma} + {\rm h.c.}] + \sum_{\langle i,j\rangle,\sigma}[v_0'\hat{c}_{i1\sigma}^\dagger \hat{c}_{j2\sigma} + v_0'\hat{c}_{i2\sigma}^\dagger \hat{c}_{j1\sigma} + {\rm h.c.}]$ 、そして、

$$\hat{H}_{\rm cf} = \Delta_{\rm cf}\sum_{i\sigma}(\hat{n}_{i1\sigma} - \hat{n}_{i2\sigma}), \tag{14}$$

$$\begin{aligned}\hat{H}_{\rm int} &= U\sum_{i,c=1,2}\hat{n}_{ic\uparrow}\hat{n}_{ic\downarrow} + U'\sum_{i,\sigma}\hat{n}_{i1\sigma}\hat{n}_{i2\bar{\sigma}} \\ &+ (U'-J)\sum_{i,\sigma}\hat{n}_{i1\sigma}\hat{n}_{i2\sigma}, \\ &+ J\sum_{i,\sigma}\hat{c}_{i1\sigma}^\dagger \hat{c}_{i2\bar{\sigma}}^\dagger \hat{c}_{i1\bar{\sigma}}\hat{c}_{i2\sigma} + I\sum_i[\hat{c}_{i1\uparrow}^\dagger \hat{c}_{i1\downarrow}^\dagger \hat{c}_{i2\downarrow}\hat{c}_{i2\uparrow} + {\rm h.c.}],\end{aligned}$$

と表される。ここで $\hat{c}_{i\alpha\sigma}$ はサイト $i$、軌道 $\alpha$、スピン $\sigma$ の電子の消滅演算子である。$\hat{H}_{\rm cf}$ は結晶場 ($\Delta_{\rm cf}$) による軌道の分裂、$\hat{H}_{\rm int}$ は局所的な相互作用を表し、クーロン相互作用 $U$、$U'$、フント結合 $J$ そしてペアホッピング相互作用 $I$ で特徴付けられる。DMFT による平衡状態の相図を図 13(a) に示す。フント結合が結晶場より強い時は高スピン状態が、逆であれば低スピン状態がより安定になる。その中間には、これらの状態が自発的に混成することで生じる秩序相が出現する。この状態は強相関系における EI 相とみなせ、その秩序パラメータは $\phi^\lambda = \sum_{\sigma\sigma'}\langle c_{1\sigma}^\dagger c_{2\sigma'}\rangle \sigma_{\sigma\sigma'}^\lambda$ と表される [84]。ただし、ここで $\sigma$ はパウリ行列を表し、$X$,$Y$,$Z$ 成分は基本的に等価である。以下では、$Y$ 成分 ($\phi^Y$) に注目してそのダイナミクスを追っていくことにする。

次にこの系のクエンチ問題を考える。クエンチ問題とは系のパラメータを急に変え、系を平衡系からずらした時に生じる非平衡ダイナミクスに注目する問題のことを指す。$Y$ 成分の秩序の揺らぎ (”種”) があるとして、その発展を追っていくことにする。今の場合は、平衡状態で実現する転移温度 $T_c$ の最大値より高温の低スピン状態から出発し、結晶場を変化させる (図 13(a))。まず、励起された状態が最終的に行き着く先を考えてみよう。今、系は閉じているのでエネルギー $E$ が保存する。クエンチ後のそれを $E_f$ とし、ある熱平衡状態に行き着くと仮定すると $E_f = {\rm Tr}[e^{-\beta_f H_f}H_f]/Z_f$ となる $\beta_f$ に行き着くと考えられる。この予想される最終温度 ($T_f = \frac{1}{\beta_f}$) を図に示すと、ある領域では温度が初期状態よりも下がり EI 相が実現されることがわかる。では、短時間の振る舞いはどうなるのか？ 図 13(b)

に秩序パラメータの短時間の振る舞いを示している。最終的に EI 相に行くと期待できる場合は、期待される秩序パラメータ値の周りを回る。一方、最終的に EI 相に行かない場合でも、過渡的に励起子秩序が発展し、大きな値を取ると同時に、先の場合と異なる軌道を示すことがわかる ($\Delta_{\rm cf}=1.3$)。特に、平衡状態では秩序パラメータは虚数値をとるのに対し、後者の過渡的な励起子秩序では大きな実成分を持ち、平衡とは異なる振る舞いを示すことが興味深い。

実はこの現象は、強結合領域での有効模型の平均場ダイナミクスに含まれていることがわかる。強結合領域での有効模型は Hubbard 模型から Heisenberg 模型を導出するように摂動論を使うことで導出できる。具体的には、1 つの低スピン状態と 3 つの高スピン状態から出発する摂動論を展開する。さらに、低スピン状態からのクエンチを考えている今の状況では、系のダイナミクスは 1 つの低スピン状態と 1 つの高スピン状態の 2 自由度がサイトごとにある問題に置き換えることができる。この 2 自由度を用いた擬スピンを定義して模型を書き下すと

$$H_{\rm eff}=h'_z\sum_i\hat{\tau}^z_{Y,i}+J_x\sum_{\langle i,j\rangle}\hat{\tau}^x_{Y,i}\tau^x_{Y,j}+J_y\sum_{\langle i,j\rangle}\hat{\tau}^y_{Y,i}\hat{\tau}^y_{Y,j}+J_z\sum_{\langle i,j\rangle}\hat{\tau}^z_{Y,i}\hat{\tau}^z_{Y,j} \tag{15}$$

のようにスピン $\frac{1}{2}$ の XYZ 模型となる。ただし、$\hat{\tau}_Y$ はスピン $\frac{1}{2}$ の擬スピンを表し、係数は元のハミルトニアンのパラメータで決まる。低スピン状態は $Z$ 方向に下向きの状態に対応する。クエンチにより XYZ 模型のパラメータが変化し、スピン運動が始まる。平均場理論によるダイナミクスを図 13(c) に示す。定性的によく DMFT の結果を再現していることがわかる。特に、秩序パラメータの軌道の変化と虚軸に伸びた秩序パラメータの発展が再現できている。実はこの現象は、平均場の描像では、擬スピンノルムの保存 (局所エントロピーの保存) とエネルギー保存からうまく説明できることがわかる。特に、前者の擬スピンノルムの保存は平均場特有のものである。平衡の平均場の範囲では、低温ではスピンノルムは 1/2 に近づくが、温度を上げるとノルムは小さくなる。しかし、平均場ダイナミクスではスピンノルムは保存するため、ある意味低温の状態が保たれている。これはまさに弱結合場合の Eq. (13) の波動関数形の保存に対応している。この"低温"の状態のために、過渡的に大きな秩序パラメータが実現しうることもわかる。より詳しい議論は、ゼミ中に行う予定である。

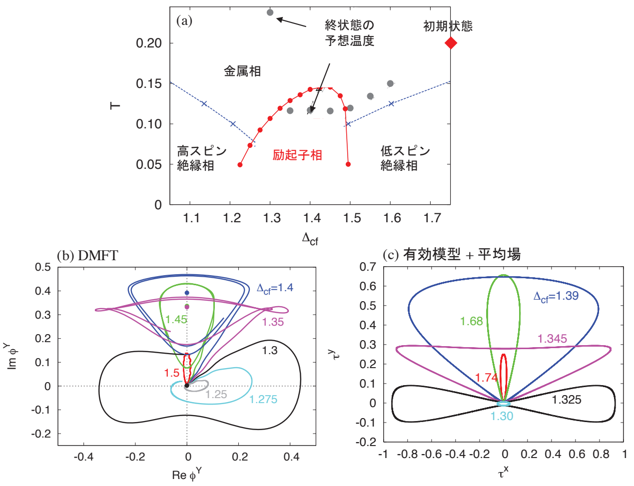


図 13　(a) DMFT による 2 バンド Hubbard 模型の相図。ただし、$U=6, U'=4, J=I=1$、バンド幅 $W=4\sqrt{2}$ を用いている。図中にはクエンチ前の初期状態とクエンチ後の緩和で最終的に行き着く温度 (●) を表す。(b)DMFT によるクエンチ後の秩序パラメータ $\phi^Y$ の軌道。クエンチ後の $\Delta_{\rm cf}$ の値は図中にあり、●は最終的な秩序パラメータの値である。(c) 有効模型の平均場ダイナミクス。ただし、$\tau^x\simeq\sqrt{2}{\rm Re}\phi^Y$、$\tau^y\simeq\sqrt{2}{\rm Im}\phi^Y$ となっている。文献 [83] より。

DMFT を用いたことで、局所的な相互作用からくる散乱効果は取り込めている。それにもかかわらず、バンドギャップが大きくない中間結合領域近傍でも、上記のような平均場的なダイナミクスが生き残っていることは注目に値する。また、DMFT を用いることで、過渡状態の一粒子スペクトルや電子温度なども評価でき、過渡的な秩序相の特徴的なスペクトル構造もわかる (詳しくは論文 [83] を参照)。さらに、ここで扱った EI 相は、理論的には超伝導と類似しており、実際にあるユニタリ変換をすることで、上で議論した 2 バンド Hubbard 模型における EI 相はスピン triplet の超伝導にマップされ、結晶場のクエンチは粒子数の変化にマップされる。粒子数の変化は、他のバンドからの励起によっても実現できるので、上で議論したようなことが超伝導でも実現する可能性は十分にある。

以上の研究は、弱相関と強相関の両側において、散乱効果が本格的に始まる前の Prethermal な状態で、非自明な秩序が過渡的に発展しうることを示している。このような現象はすでに報告されている非平衡現象、例えば光誘起超伝導、と関わっているかもしれず、今後の議論の発展が期待される。

### 4.2.2　ボトルネックに由来する秩序相出現の可能性

通常、電子間散乱や電子フォノン散乱が始まると、Prethermal な状態は崩れ、系は外場によって加えられたエネルギーに従った熱平衡状態に近づいていく。し

物性研究・電子版 Vol. 10, No. 1, 101215(2022年3月号)

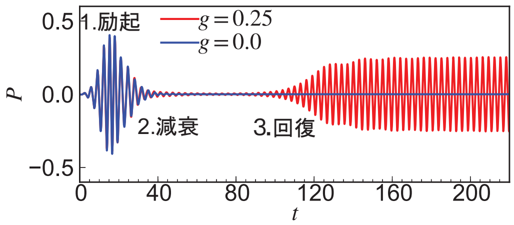


図 14　半導体における分極 P(秩序パラメータ) の励起後の時間発展。$g$ は電子格子相互作用を示し、ゼロでない値の場合フォノンによる電子と正孔のバンド内冷却が生じる。計算には GKBA が使われている。文献 [82] より。

かし、散乱や緩和のプロセスのうち、何らかの理由でとてもゆっくりなものがあったらどうなるだろうか？　残りのプロセスのみが働き、まずは熱平衡状態とは異なる状態に近づくはずである。

このような問題は、光励起された半導体でよく調べられてきた [56, 79, 85]。半導体では光励起後、電子と正孔が生成されるが、それらの再結合の時間スケールは、電子と正孔が各々伝導バンドと価電子バンド内で緩和する時間スケールより十分長い。そのため、まずは電子と正孔の数が保たれたまま、ある種の熱平衡状態に近づくと期待される (これは真の熱平衡状態ではない)。このような光励起された半導体において、どのような状態が出現するかは、古くから興味を持たれており、電子正孔プラズマ、励起子ガスそして励起子凝縮など様々な状態が出現することが期待されている [79]。実際に、先の半導体の理論計算においても、電子・フォノン散乱を考慮した計算を行うと、散乱に伴う緩和で一度消えた励起子秩序がある時間経つと復活する様子も見て取れる (図 14) [82]。

強相関電子系においては、このような現象は生じるのだろうか？　生じるとしたらどのような状態が出現するのだろうか？　このような動機に基づいた研究も最近進められている [86, 87]。Mott 絶縁体では、励起によりダブロンとホロンが生成される。実はこれらの再結合プロセスは、バンドギャップが大きい場合は指数的に抑制されることが知られている [88–90]。つまり、ダブロンとホロンの数が近似的に保存される。この状況はちょうど半導体において電子とホールが保存される状況に似ている。ただし、ダブロンとホロンは単なる電子やホールとは異なり、単純なフェルミオンやボゾンではない。さらに、virtual な再結合プロセスを通してこれらの間に相互作用が生まれる。そのため、半導体の場合とは異なる相が出現する可能性がある。

実際、Hubbard 模型に熱浴を加えた非平衡定常状態の DMFT の解析では、平衡状態では実現できないよ

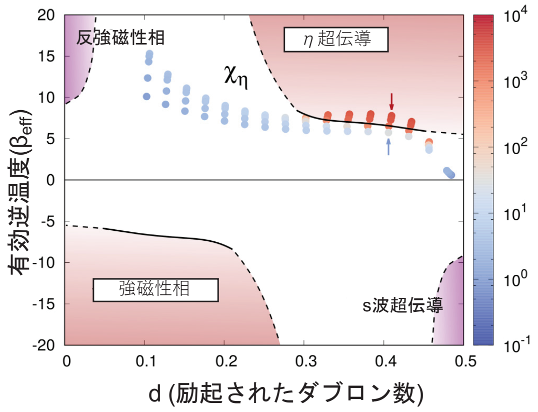


図 15　光ドープされた大きなギャップを持つ Mott 絶縁体における非平衡相図。 横軸は光ドープ量を示すダブロンのサイトあたりの数。縦軸は有効逆温度を示す。非平衡定常状態に対する DMFT が使われている。文献 [87] より。

うな超伝導状態 ($\eta$ ペアリング超伝導 [86, 91, 92]) の実現が予言されている [87]。我々も、最近、有効的な平衡状態の問題に非平衡問題を置き換えることで、緩和のボトルネックがある場合に誘起される状態の記述を行う研究を行っており、通常の半導体とは異なる強相関系特有の状態の出現が見えている。現段階では未発表なので詳しくは述べないが、夏の学校当日までには発表するので詳しくはその時に紹介したい。

## 5　おわりに

本稿では、相関電子系の非平衡物性の最近の研究に関して、「見る」そして「操る」という観点から紹介してきた。特に、「見る」に関しては強相関電子系における高次高調波発生、そして「操る」に関しては prethremal 状態や緩和の Bottleneck 効果に由来する非平衡秩序相、に関する最近の研究を紹介した。また、非平衡物性の理論研究では、電子相関を正しく扱える理論手法の存在が重要になる。本稿では、有力な理論手法の一つとして、非平衡グリーン関数法、特に動的平均場理論を紹介し、これらの手法の最近の進展を紹介した。近年、効率の良い実装方法が見つかっており、より複雑そして現実的な模型の解析への期待が高まっている。平衡状態に対して行われているような第一原理的な手法との組み合わせが可能になる日もそう遠くないかもしれない。観測技術や理論手法は日々発展し、それを通して新しい非平衡現象の報告や理論提案がなされている。これらの研究を通して、今後、物性の地平がさらに広がることが期待される。

最後に、非平衡現象の研究は多岐にわたっており、ここで紹介できたものは、膨大な研究の一部である。内容も、偏りがないものになっていないことはご容赦い

ただきたい。また、本稿を通して非平衡物性の分野に興味を持っていただけたなら誠に幸いである。

## 参考文献


[1] K. Yonemitsu and K. Nasu, Physics Reports **465**, 1 (2008).

[2] C. Giannetti *et al.*, Advances in Physics **65**, 58 (2016).

[3] D. N. Basov, R. D. Averitt, and D. Hsieh, Nature Materials **16**, 1077 (2017).

[4] T. Oka and S. Kitamura, Annual Review of Condensed Matter Physics **10**, 387 (2019).

[5] A. de la Torre *et al.*, 2021, 2103.14888.

[6] R. Shimano and N. Tsuji, Annual Review of Condensed Matter Physics **11**, 103 (2020).

[7] R. Matsunaga *et al.*, Phys. Rev. Lett. **111**, 057002 (2013).

[8] R. Matsunaga *et al.*, Science **345**, 1145 (2014).

[9] K. Katsumi *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 117001 (2018).

[10] P. B. Corkum, Phys. Rev. Lett. **71**, 1994 (1993).

[11] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, and P. B. Corkum, Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994).

[12] S. Ghimire *et al.*, Nat. Phys. **7**, 138 (2011).

[13] S. Ghimire and D. A. Reis, Nat. Phys. **15**, 10 (2019).

[14] G. Vampa *et al.*, Phys. Rev. Lett. **113**, 073901 (2014).

[15] U. Huttner, M. Kira, and S. W. Koch, Las. Photon. Rev. **11**, 1700049 (2017).

[16] S. Hellmann *et al.*, Nature Communications **3**, 1069 EP (2012), Article.

[17] D. Fausti *et al.*, Science **331**, 189 (2011).

[18] S. Iwai *et al.*, Phys. Rev. Lett. **91**, 057401 (2003).

[19] H. Okamoto *et al.*, Phys. Rev. B **82**, 060513 (2010).

[20] M. Rini *et al.*, Nature **449**, 72 (2007).

[21] S. Kaiser *et al.*, Phys. Rev. B **89**, 184516 (2014).

[22] W. Hu, S. Kaiser, D. Nicoletti, and C. Hunt, Nature materials **13**, 705 (2014).

[23] M. Mitrano *et al.*, Nature **530**, 461 (2016), Letter.

[24] A. Cavalleri, Contemporary Physics **59**, 31 (2018).

[25] L. Stojchevska *et al.*, Science **344**, 177 (2014).

[26] T. Mikami *et al.*, Phys. Rev. B **93**, 144307 (2016).

[27] T. Mori, T. Kuwahara, and K. Saito, Phys. Rev. Lett. **116**, 120401 (2016).

[28] N. Tsuji, T. Oka, and H. Aoki, Phys. Rev. B **78**, 235124 (2008).

[29] K. Sandholzer *et al.*, Phys. Rev. Lett. **123**, 193602 (2019).

[30] T. Ishikawa *et al.*, Nature Communications **5**, 5528 (2014).

[31] T. Oka and H. Aoki, Phys. Rev. B **79**, 081406 (2009).

[32] T. Kitagawa, T. Oka, A. Brataas, L. Fu, and E. Demler, Phys. Rev. B **84**, 235108 (2011).

[33] J. H. Mentink, K. Balzer, and M. Eckstein, Nature Communications **6**, 6708 (2015).

[34] G. Jotzu *et al.*, Nature **515**, 237 (2014).

[35] F. Görg *et al.*, Nature **553**, 481 (2018).

[36] J. W. McIver *et al.*, Nature Physics **16**, 38 (2020).

[37] S. A. Sato *et al.*, Phys. Rev. B **99**, 214302 (2019).

[38] H. Aoki *et al.*, Rev. Mod. Phys. **86**, 779 (2014).

[39] M. Eckstein, M. Kollar, and P. Werner, Phys. Rev. Lett. **103**, 056403 (2009).

[40] M. Kollar, F. A. Wolf, and M. Eckstein, Phys. Rev. B **84**, 054304 (2011).

[41] N. Tsuji, M. Eckstein, and P. Werner, Phys. Rev. Lett. **110**, 136404 (2013).

[42] A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. J. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. **68**, 13 (1996).

[43] W. Metzner and D. Vollhardt, Phys. Rev. Lett. **62**, 324 (1989).

[44] M. Eckstein and P. Werner, Phys. Rev. B **82**, 115115 (2010).

[45] Y. Murakami, M. Eckstein, and P. Werner, Phys. Rev. Lett. **121**, 057405 (2018).

[46] N. Tsuji and P. Werner, Phys. Rev. B **88**, 165115 (2013).

[47] Y. Murakami, P. Werner, N. Tsuji, and H. Aoki, Phys. Rev. B **91**, 045128 (2015).

[48] M. Ligges *et al.*, Phys. Rev. Lett. **120**, 166401 (2018).

[49] A. I. Lichtenstein and M. I. Katsnelson, Phys. Rev. B **62**, R9283 (2000).
[50] G. Kotliar, S. Y. Savrasov, G. Pálsson, and G. Biroli, Phys. Rev. Lett. **87**, 186401 (2001).
[51] M. H. Hettler, A. N. Tahvildar-Zadeh, M. Jarrell, T. Pruschke, and H. R. Krishnamurthy, Phys. Rev. B **58**, R7475 (1998).
[52] N. Tsuji, P. Barmettler, H. Aoki, and P. Werner, Phys. Rev. B **90**, 075117 (2014).
[53] M. Eckstein and P. Werner, **6**, 21235 EP (2016), Article.
[54] D. Golež, L. Boehnke, H. U. R. Strand, M. Eckstein, and P. Werner, Phys. Rev. Lett. **118**, 246402 (2017).
[55] D. Golez, L. Boehnke, M. Eckstein, and P. Werner, Phys. Rev. B **100**, 041111 (2019).
[56] H. Haug and S. W. Koch, *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors* (World Scientific, 1990).
[57] N. Schlünzen, J.-P. Joost, and M. Bonitz, Phys. Rev. Lett. **124**, 076601 (2020).
[58] D. Karlsson, R. van Leeuwen, E. Perfetto, and G. Stefanucci, Phys. Rev. B **98**, 115148 (2018).
[59] D. Karlsson, R. van Leeuwen, Y. Pavlyukh, E. Perfetto, and G. Stefanucci, **arxiv:2006.14965**.
[60] M. Schüler, M. Eckstein, and P. Werner, Phys. Rev. B **97**, 245129 (2018).
[61] J. Kaye and D. Golez, SciPost Phys. **10**, 91 (2021).
[62] M. Schüler *et al.*, Computer Physics Communications **257**, 107484 (2020).
[63] E. Dagotto, Rev. Mod. Phys. **66**, 763 (1994).
[64] G. Vidal, Phys. Rev. Lett. **91**, 147902 (2003).
[65] J. A. Kjäll, M. P. Zaletel, R. S. K. Mong, J. H. Bardarson, and F. Pollmann, Phys. Rev. B **87**, 235106 (2013).
[66] K. Ido, T. Ohgoe, and M. Imada, Phys. Rev. B **92**, 245106 (2015).
[67] M. Schmitt and M. Heyl, Phys. Rev. Lett. **125**, 100503 (2020).
[68] T. T. Luu *et al.*, Nature (London) **521**, 498 (2015).
[69] T. T. Luu and H. J. Wörner, Nat. Comm. **9**, 916 (2018).
[70] N. Yoshikawa, T. Tamaya, and K. Tanaka, Science **356**, 736 (2017).
[71] T. T. Luu *et al.*, Nat. Comm. **9**, 3723 (2018).
[72] H. Kishida *et al.*, Nature (London) **405**, 929 (2000).
[73] S. Imai, A. Ono, and S. Ishihara, Phys. Rev. Lett. **124**, 157404 (2020).
[74] Y. Murakami and P. Werner, Phys. Rev. B **98**, 075102 (2018).
[75] Y. Murakami, S. Takayoshi, A. Koga, and P. Werner, Phys. Rev. B **103**, 035110 (2021).
[76] G. Vampa, C. R. McDonald, G. Orlando, P. B. Corkum, and T. Brabec, Phys. Rev. B **91**, 064302 (2015).
[77] L. V. Keldish and Y. V. Kopaev, Sov. Phys. Solid State **6**, 2219 (1965).
[78] D. Jérome, T. M. Rice, and W. Kohn, Phys. Rev. **158**, 462 (1967).
[79] 浅野建一, **電子正孔系の物理** (物性研究・電子版 Vol.3、No.1, 031207).
[80] Y. Murotani *et al.*, Phys. Rev. Lett. **123**, 197401 (2019).
[81] E. Perfetto, D. Sangalli, A. Marini, and G. Stefanucci, Phys. Rev. Materials **3**, 124601 (2019).
[82] Y. Murakami, M. Schüler, S. Takayoshi, and P. Werner, Phys. Rev. B **101**, 035203 (2020).
[83] P. Werner and Y. Murakami, Phys. Rev. B **102**, 241103 (2020).
[84] J. Kuneš, Journal of Physics: Condensed Matter **27**, 333201 (2015).
[85] L. V. Keldysh, Contemporary Physics **27**, 395 (1986).
[86] A. Rosch, D. Rasch, B. Binz, and M. Vojta, Phys. Rev. Lett. **101**, 265301 (2008).
[87] J. Li, D. Golez, P. Werner, and M. Eckstein, Phys. Rev. B **102**, 165136 (2020).
[88] N. Strohmaier *et al.*, Phys. Rev. Lett. **104**, 080401 (2010).
[89] R. Sensarma *et al.*, Phys. Rev. B **82**, 224302 (2010).
[90] M. Eckstein and P. Werner, Phys. Rev. B **84**, 035122 (2011).
[91] C. N. Yang, Phys. Rev. Lett. **63**, 2144 (1989).
[92] T. Kaneko, T. Shirakawa, S. Sorella, and S. Yunoki, Phys. Rev. Lett. **122**, 077002 (2019).