

戦略的創造研究推進事業 CREST
研究領域「計測技術と高度情報処理の融合による
インテリジェント計測・解析手法の開発と応用」
研究課題「強相関係における光・電場応答の
時分割計測と非摂動型解析」

研究終了報告書

研究期間 2016年10月～2022年3月

研究代表者: 岡本 博
(東京大学大学院新領域創成科学研究科 教授)

§ 1 研究実施の概要

(1) 実施概要

強相関系にパルス光を照射すると、超高速かつ高効率の非線形光学応答や光誘起相転移を示すことが知られており、非平衡量子物理学という新しい学問分野の中心的現象として注目を集めている。また、これらの現象によって光学的性質を高速・高効率に制御できれば、光スイッチ等への応用展開も期待できる。また、最近のレーザー技術の進歩によって、可視や近赤外域のパルスだけでなく、テラヘルツや中赤外域のパルスの発生が可能になりつつあり、それらを励起に使った非線形光学応答や光誘起相転移の開拓が重要な課題となっている。しかし、その研究の発展には、テラヘルツパルスの高強度化や中赤外パルスの位相安定化など解決すべき問題は多い。一方、理論研究に目を移せば、強相関系は、相互作用する多数の電子からなる量子多体系であるため、線形光学スペクトルがどのような励起状態を反映しているかを解析することすら容易でない。そのため、非線形光学応答や光誘起相転移において実験で得られる非平衡状態の光学スペクトルを理論的に解釈することは、極めて難しい問題と考えられていた。これらの状況のもと、本研究では、

- 最先端のレーザー分光技術を駆使して、光/電場パルスで誘起される非平衡励起状態における他では得られないスペクトルデータを取得すること
- 情報科学的手法を取り入れて、弱励起(線形)スペクトル、および、光/電場パルス照射による過渡スペクトルを理論解析する手法を確立すること、および、実験のスペクトルを再現しその物理的解釈を行うこと

を目的とした。当初計画では、モット絶縁体と電子誘電体が対象であったが、2年目以降、理論解析については、モット絶縁体に重点をおいて進めることにした。

計測グループ(岡本グループ、以下岡本 G)は、1次元および2次元モット絶縁体の光学伝導度スペクトルを系統的に測定した。典型的な1次元モット絶縁体であるET-F₂TCNQにおいては、光励起によるテラヘルツ域を含む広帯域の過渡光学伝導度スペクトルを導出し、ドルーデ応答を精密に評価するとともに、スペクトルの励起光子エネルギー依存性を測定した。また、テラヘルツパルス励起による過渡スペクトルを可視から中赤外に至る広帯域で計測する測定システムを構築し、モット絶縁体の電場下光学伝導度スペクトルの測定に成功した。その結果から、1次元系モット絶縁体(ET-F₂TCNQ)では奇パリティの励起子のわずかに上に偶パリティの励起子が存在し、それらの間の大きな遷移双極子モーメントが大きな電場応答の起源であることを実証した。2次元モット絶縁体(銅酸化物)では、偶パリティの励起子が奇パリティの励起子の下に存在し、前者の束縛エネルギーが反強磁性交換相互作用にスケールされることを実験的に示し、それがスピン由来の励起子であることを指摘した。以上のデータを理論解析のためのデータとして蓄積した。さらに、時間分解能10フェムト秒の過渡反射分光測定系、電場振幅を増強したテラヘルツパルスおよび位相を固定した中赤外パルスを用いたサブサイクル分光測定系を新たに立ち上げ、新しい物理的機構に基づく光/電場応答を探索した。その結果、2次元モット絶縁体における光誘起スピンドYNAMIKSの実時間観測、高効率の電場誘起モット絶縁体-金属転移の実現、フォノンドレスト状態の観測といった、様々な新規光/電場応答の観測に成功した。

理論解析グループは、モット絶縁体の線形および過渡光学伝導度スペクトルを波動関数を把握した上で再現する新手法の開発を目指した。まず、1次元モット絶縁体において、高橋 G が電荷の自由度だけを正確に取り入れる電荷モデルを開発した。また、岩野 G が、高橋 G の協力のもとにスペクトルを再現するための情報科学的手法を取り入れた多体ワニア関数法を開発した。この手法で100サイト以上の大サイズでの線形光学スペクトルの計算が可能となり、遠山 G が開発したこれも情報科学的手法であるt-DMRG法(時間依存密度行列繰り込み群法)でその精度が確認された。実際に、多体ワニア関数法を用いて、岡本 G が測定したET-F₂TCNQのスペクトルを再現することに成功した。この手法では波動関数を完全に把握できるため、励起状態の性質を定量的に評価することが可能になった。さらに、岩野 G は、岡本 G が測定したET-F₂TCNQの電場下のスペクトルに対しても多体ワニア関数法を適用し、1光子許容な奇パリティだけでなく1光子禁制な偶パリティの励起状態を含んだ完全な波動関数の解析を実現した。電場下のスペクトルは広義の三次非線形光学スペクトルの一種である。本解析の結果を用いれば、二光子吸収や第三高調波発生な

ど、様々な過程の非線形光学スペクトルを定量的に予測できることになる。光照射後の過渡光学伝導度スペクトルに関しては、有限サイズの厳密計算によって、岡本 G の実験のスペクトルの励起光子エネルギー依存性などを定性的に再現した(遠山 G)。さらに摂動展開法を導入し(岩野 G)、多体ワニア法と t-DMRG 法で精度を確認した上で過渡スペクトルの計算を実現し、岡本 G が測定した ET-F₂TCNQ の光誘起モット絶縁体-金属転移に対応する実験結果をほぼ再現することに成功した。波動関数の解析から、時間依存する多体波動関数のエネルギー分布などの情報が初めて得られ、光誘起金属状態の解明に繋がった。以上から、当初計画にある最も重要な光/電場応答に関するスペクトルの再現のための方法論の確立、物理的機構の解明が達成された。

2次元モット絶縁体については、当初計画にはなかったものの、1次元モット絶縁体の研究を基盤として、中間評価以降に線形(弱励起)光学伝導度スペクトルの解析に焦点をしばって研究を進めた。具体的には、遠山 G が開発した t-DMRG で岡本 G が測定した銅酸化物のスペクトルをほぼ再現するとともに、スペクトルのパラメータ依存性から、バンド端の吸収ピークがスピン由来の励起子であることを示した。これは、上述した岡本 G の銅酸化物における電場下光学伝導度スペクトルの解析から得られた偶励起子に対するスピン由来の励起子効果の報告とも整合する。これと並行して、高橋 G と岩野 G が共同で有効モデルを構築し、励起状態の波動関数を解析することにより電荷相関やスピン相関の実空間マップを作成した。これによって、バンド端の吸収ピークがスピン由来の励起子によるものであることを明確に実証した。さらに、高橋 G は、情報科学的手法である RSVD (Randomized Singular Value Decomposition) 法を新たに導入して、2次元モット絶縁体の高エネルギー励起状態の性質について考察を進めた。

以上のように、本研究では、最先端のレーザー分光法と情報科学的手法を取り入れた光学スペクトルの新しい理論解析手法を構築し、両者を融合させることによって、強相関系の光/電場応答を解明するための方法論を確立した。本研究で開発した計測手法は、今後、強相関系に限らず、様々な固体の光/電場応答の計測に有効に活用できるものである。また、本研究で開発した理論解析手法は、強相関系の光/電場応答の解明、特に、実験で得られるスペクトルの解釈、量子多体系の非平衡量子物理の解明のための基盤になるものである。今後、それらの手法を活用することによって、本研究で岡本 G が見出した電場誘起金属化や中赤外周期電場によるドレスト状態生成と相転移等の新規量子現象の理論解析が各段に進展するものと期待される。そこでは、現在取り入れられていない励起状態の緩和過程を取り入れることにより、時間依存するスペクトルをより詳細に解析できるようモデルと計算手法の両者を発展・拡張することが課題になるが、本研究の成果を基盤にすれば、それは十分に実現可能であると考えている。将来的には、本研究で開発した理論解析手法が、さらに多様な系の光/電場応答の再現や解釈に活用されるものと期待される。

(2) 顕著な成果

<優れた基礎研究としての成果>

1. 情報科学的手法による量子多体系の光学スペクトル解析手法の構築

概要: 強相関系の典型的なモデルである拡張ハバードモデルにおいて、1次元モット絶縁体の光学伝導度スペクトルを精密に解析するための理論解析手法を構築した。具体的には、情報科学的手法を使って励起状態の性質を支配する重要モードを抽出し、それを基底として実空間上で局在した多体ワニア関数を導出した。その多体ワニア関数を外挿することによって、大サイズの1次元モット絶縁体の線形および電場下の光学スペクトルを計算することに成功した。この手法を用いて、実験で得られた1次元モット絶縁体の光学スペクトルを再現するとともに、波動関数を解析することにより励起状態の性質を解明できることを示した。さらに、この手法を基盤として、摂動展開を用いた過渡光学スペクトルの計算に結びつけた。

2. テラヘルツ電場パルスによる省エネルギー物質制御法の実証

概要: モット絶縁体である有機分子性結晶に高強度のテラヘルツパルスを照射したとき、その電場成分によってバンド間の量子トンネル過程を介してキャリアが生成し、絶縁体-金属転移が起こることを実験的に見出した。さらに、この金属化が、近赤外から可視域のフェムト秒パルスレーザーを照射する従来の方法よりも金属化のエネルギー効率が低いことを明らかにした。本研究は、テラヘ

ヘルツパルスの照射(電場パルスの印加)が固体の電子構造や物性を制御する手法として有効であることを実証したものであり、消費電力の小さい光デバイスの開発につながるものと期待される。

3. 中赤外周期外場による新しい機構による物性制御の実現

概要:位相を固定した周波数可変の中赤外パルスをポンプ光に、時間幅が10フェムト秒以下の可視極短パルスをプローブ光に用いたサブサイクル分光測定系を構築した。それを用いて、分子内振動励起によるイオン性-中性転移の観測、分子内振動励起によるフォノンドレスト状態の観測、三次非線形光学効果に基づく光ドレスト状態の観測に成功した。何れも、中赤外パルスによる新しい機構による物性制御を実証したものである。

< 科学技術イノベーションに大きく寄与する成果 >

1. 位相制御中赤外パルスと可視極短パルスを用いた超安定サブサイクル分光測定系の開発

概要:中赤外パルスの電場波形にそった物質の応答を検出するサブサイクル分光を行うには、次々に出射される中赤外パルスの位相の長時間安定化、及び、10フェムト秒以下の極短パルスの発生が必要である。本測定系では、二段階の光路長フィードバック機構を導入するとともに、最適なフィードバックアルゴリズムを開発し、中赤外パルスの電場波形を10時間以上に渡り1フェムト秒以下に安定化することに成功した。システムの詳細は論文に公表済みである。その内容は、他の研究者が同じ装置を構築して学術研究に用いること、他、様々な周波数のサブサイクル分光測定系の技術開発に貢献するものになると考えられる。

2. 時間依存密度行列繰り込み群法による光学スペクトル解析手法の確立

概要:情報科学的手法である時間依存密度行列繰り込み群法(t-DMRG)を用いて、量子多体系の光学スペクトルを計算する技術を確立した。1次元モット絶縁体については、80サイトの系で線形光学伝導度スペクトルの計算を実現した。さらに、実験との比較が可能な32サイトの系で、過渡光学伝導度スペクトルの計算に初めて成功した。2次元モット絶縁体については、やはり実験との比較が可能な64サイトの系で線形光学伝導度スペクトルの計算を初めて実現した。本手法は、信頼できる量子多体系の光学スペクトル解析技術として、今後様々な系の光学スペクトルの解析に適用できる汎用技術として科学技術に寄与するものと期待される。

3. 機械学習を援用した量子多体波導関数の判別法の確立

概要:量子多体波動関数が示す量子状態を判別することができれば、光励起によって生成した非平衡状態の特徴を明らかにすることが可能となる。量子多体波動関数を「画像」とみなすことで、その量子状態を判別するための機械学習を用いた新たな手法を確立した。量子多体波動関数から構成されるエンタングルメント・スペクトルと呼ばれる情報量を学習データとして用いる点がこの判別法の特徴である。本手法は、強相関系における量子多体波動関数の判定に適用できる汎用技術として科学技術に寄与するものと期待される。

< 代表的な論文 >

1. “Mott transition by an impulsive dielectric breakdown”,

H. Yamakawa, T. Miyamoto, T. Morimoto, T. Terashige, H. Yada, N. Kida, M. Suda, H. M.

Yamamoto, R. Kato, K. Miyagawa, K. Kanoda, and H. Okamoto,

Nature Materials **16**, 1100–1105 (2017).

概要:モット絶縁体である有機分子性結晶に高強度テラヘルツパルスを照射することにより、高速の電場誘起絶縁体-金属転移を引き起こすことに成功した。また、金属化に要する時間が約100フェムト秒であり、この時間が分子間のトランスファーエネルギーに支配されることを明らかにした。テラヘルツパルスを使った相転移の研究はこれまでにも行われているが、純粋に電子系の応答が支配する相転移を実現したのは本研究が初めてである。この結果は、テラヘルツパルスを用いたエネルギー損失の少ない固体の高速電子相制御への道を拓くものである。(2017年8月22日東

大、分子研、JST プレスリリース)

2. “Effective model of one-dimensional extended Hubbard systems: Application to linear optical spectrum calculations in large systems based on many-body Wannier functions”,

S. Ohmura, A. Takahashi, K. Iwano, T. Yamaguchi, K. Shinjo, T. Tohyama, S. Sota, and H. Okamoto, *Phys. Rev. B* **100**, 235134:1-15 (2019)

概要: 強相関係の光・電場応答を議論するための拡張ハバードモデルにおいて、1次元モット絶縁体のスピン-電荷分離の性質に加えて、電荷揺らぎを正確に取り扱う電荷モデルを開発した。拡張ハバードモデルと電荷モデルで計算した光学伝導度スペクトルを比較し、1次元モット絶縁体の光励起状態の記述には電荷揺らぎを考慮することが不可欠であり、電荷モデルが有効であることを実証した。さらに、電荷モデルに情報科学的手法を適用して、電子間相互作用の効果を取り込んだ多体ワニア関数を構築し、実験結果と直接比較できる 100 サイト以上の系の光学伝導度スペクトルを計算することに成功した。本研究で用いた情報科学的手法は、様々な強相関係の光誘起現象の理論解析に活用可能である。(2019年12月24日JSTプレスリリース)

3. “Probing ultrafast spin-relaxation and precession dynamics in a cuprate Mott insulator with seven-femtosecond optical pulses”,

T. Miyamoto, Y. Matsui, T. Terashige, T. Morimoto, N. Sono, H. Yada, S. Ishihara, Y. Watanabe, S. Adachi, T. Ito, K. Oka, A. Sawa, and H. Okamoto

Nature Communications **9**, 3948 : 1-7 (2018).

概要: 本プロジェクトの主たる対象である2次元モット絶縁体銅酸化物において、時間幅 7 フェムト秒のパルスを使った過渡反射分光測定を行い、磁気ポーラロンの形成過程およびスピン系のダイナミクスに関係した光励起状態間の量子干渉を実時間観測することに成功した。これは、2次元モット絶縁体において本質的な電荷とスピンの相互作用に基づく電子の超高速ダイナミクスを実時間観測した初めての結果である。(2018年9月27日プレスリリース)

§ 2 研究実施体制

(1) 研究チームの体制について

① 「計測」グループ

研究代表者: 岡本 博 (東京大学大学院新領域創成科学研究科 教授)

研究項目

- ・位相制御パルス・極短パルス光の発生とポンプ・プローブ分光測定系の高度化
- ・光/電場パルスで励起した強相関係の過渡光学スペクトルの計測
- ・強相関係における計測データの理論解析と光/電場応答機構解明

② 「理論解析」グループ

主たる共同研究者: 岩野 薫 (高エネルギー加速器研究機構物質構造科学研究所 研究機関講師)

研究項目

- ・非平衡光学スペクトルの理論解析手法の構築
- ・強相関係における計測データの理論解析と光/電場応答機構解明

主たる共同研究者: 遠山 貴巳 (東京理科大学理学部第一部応用物理学科 教授)

研究項目

- ・非平衡光学スペクトルの理論解析手法の構築
- ・強相関係における計測データの理論解析と光/電場応答機構解明

主たる共同研究者: 高橋 聡 (名古屋工業大学大学院工学研究科物理工学専攻 教授)

研究項目

- ・非平衡光学スペクトルの理論解析手法の構築
- ・強相関係における計測データの理論解析と光/電場応答機構解明

(2) 国内外の研究者や産業界等との連携によるネットワーク形成の状況について

・モット絶縁体や電子型誘電体の良質な試料作製、物質開発については、本研究チーム外の物質合成の専門家と共同研究で進めている (共同研究者: 分子研・山本浩史教授グループ、産総研・堀内佐智雄博士グループ、産総研・伊藤利充博士グループ、富岡泰秀博士グループ、澤彰仁博士グループ、東工大応セラ研・笹川崇雄准教授グループ、東北大理学系・山下眞廣教授、高石信也准教授グループ、愛知工大・森田靖教授グループ、東大物性研森初果教授グループ、東大工学系・鹿野田一司教授グループ、同長谷川達生教授グループ、名大工学系・澤博教授グループ、など)。本プロジェクトで目指すモット絶縁体や電子誘電体の光/電場応答の解明の目標は多くの研究者と共有されており、基盤となる物質開発に関する強力なネットワークが形成されている。

・計測グループが有する高度な分光測定技術 (フェムト秒レーザー過渡分光システム、テラヘルツ-紫外超広帯域顕微反射・吸収分光システム等) は、本研究チーム外の研究者の利用をサポートする形で幅広く共同研究に利用している。実際に、本プロジェクト開始時から現在までに、複数の共同研究を行ってきた (共同研究者: 東北大理学系山下眞廣教授、高石信也准教授グループ、東大工学系田中雅明教授・大矢忍准教授グループ、東大物性研森初果教授グループ、東大新領域木村剛教授グループ、大阪大学理学系久保孝史教授グループ、産総研松崎弘幸博士グループなど)。

・計測グループが測定した強相関係の過渡光学応答の理論解析の一部は、研究チーム外の研究者とも共同で行った (共同研究者: 東北大石原純夫教授グループ)。また、本チームメンバーは、強相関係の非平衡物性に関して、P. Werner 教授、P. Prelovsek 教授をはじめとして国外の一線

の理論研究者とも度々議論を重ねており、緊密なネットワークが形成されつつある。

- ・遠山グループが本プロジェクトで用いている t-DMRG は、理化学研究所 R-CCS 量子系物質科学研究チームが主体となり作成している Dynamical DMRG の一部であり、同チームとの共同研究で高度化を進めている。

- ・本チームが研究している強い電磁場パルスを与えたときの固体の応答は、レーザー技術の急速な発展と相まって、実験理論両面から物性物理のトピックの一つとなっている。その対象は、本研究の対象である強相関系に限らず、半導体、磁性体、金属、超伝導体と多岐に渡っている。この分野の研究の進展を紹介するとともに、分野の活性化と研究者間の密な連携を目指し、本チームメンバーが編集委員に加わり、固体物理学の主要国内雑誌である「固体物理」に、“高強度テラヘルツ・赤外パルスが拓く非平衡物性”と題した特集号を計画した。国内のこの分野の一線の実験、理論グループの記事が掲載され、2019 年 11 月に出版された。

- ・つくばイノベーションアリーナ (TIA) の枠組みの中で、本チームメンバー (岩野) が世話人の 1 人として、つくば、柏サイトでの研究者間の連携活動を行っている。毎年、KEK, 東京大学、産総研、NIMS、筑波大学の共催でポスター交流会を開催している。

- ・KEK における異分野協力のプロジェクトの一環として、2019 年 1 月に研究会「量子多体系の素核～物性クロスオーバー」を本チームメンバー (岩野) が世話人として開催し、非平衡系も含めて集中的な議論を行った。そこで、本チームの代表者 (岡本) が招待講演を行った。また、同じく岩野が世話人となって 2021 年 3 月に「KEK 素核宇・物性連携研究会」をオンライン開催し、主として非平衡をテーマに議論を行った。ここでは、遠山 G の新城がモット絶縁体の t-DMRG による解析に関して招待講演を行い、活発な議論が行われた。

- ・遠山 G が行っている量子多体波動関数の機械学習による判別法については、理化学研究所の R-CCS 量子系物質科学研究チーム (柚木主任研究員) やドイツ・グライフスヴァルト大 Fehske グループの江島研究員らとの共同研究を行っており、新しいネットワークが形成されつつある。