

「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」

平成 28 年度採択研究代表者

H28 年度 実績報告書
-----------------

岡本 博

東京大学大学院新領域創成科学研究科

教授

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

## § 1. 研究実施体制

### (1) 岡本グループ

- ① 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)
- ② 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計測

### (2) 岩野グループ

- ① 主たる共同研究者: 岩野 薫 (高エネルギー加速器研究機構、研究機関講師)
- ② 研究項目
  - ・非平衡光学スペクトルの理論解析手法の構築

### (3) 高橋グループ

- ① 主たる共同研究者: 高橋 聡 (名古屋工業大学 物理工学科、教授)
- ② 研究項目
  - ・非平衡光学スペクトルの理論解析手法の構築

### (4) 遠山グループ

- ① 主たる共同研究者: 遠山 貴巳 (東京理科大学 理学部第一部、教授)
- ② 研究項目
  - ・非平衡光学スペクトルの理論解析手法の構築

## § 2. 研究実施の概要

### ○ 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

本研究では、物質の電子状態制御のために、近赤外から可視域の光パルスに加え、テラヘルツから中赤外域の位相制御された電場パルスを用いることを目指している。テラヘルツ領域については、単一サイクルの電場パルスの発生が可能となっている。本年度は、中赤外域の位相制御パルスの発生と検出のための光学系の構築を行った。その結果、周期約 40 fs (光子エネルギー約 0.1 eV)、半値全幅約 150 fs の中赤外パルスの発生とその電場波形の観測に成功した。次年度以降に、パルスの位相安定性を向上させ、物質制御の光源として利用することを計画している。

### ○ 光 / 電場パルスで励起した強相関系の過渡光学スペクトル計測と理論解析

本研究で主たる対象とする系は、モット絶縁体と電子型誘電体である。本年度は、上記の光源開発と平行して、可視光パルスおよびテラヘルツ電場パルスを励起に用いた新奇光学応答や光誘起相転移の探索を行い、以下の現象を見出した。さらに、理論解析も進めた。

#### ・ モット絶縁体の励起子共鳴光パルス励起による過渡反射スペクトルの精密計測

一次元モット絶縁体である分子性結晶 **ET-F<sub>2</sub>TCNQ** において、励起子存在下での過渡光学スペクトルを測定した。最低の励起子吸収の低エネルギー側にピーク構造を観測したが、有限サイズの厳密な過渡光学スペクトルの計算結果と比較することによって、この構造が励起子分子(バイエキシトン)によるものであることを明らかにした。本系で得られた特徴的な応答は、今後構築する過渡光学スペクトルの新しい理論解析手法の妥当性を検討するために有効に利用することを計画している。

#### ・ 光パルス励起による電子型強誘電体の高速分極制御

電子型誘電体において、光励起による強誘電分極制御を実現するプロトタイプとして水素結合型分子性結晶クロコン酸を選び、光ポンプ-第二高調波発生(SHG)プローブ分光測定を行った。その結果、1 光子の励起に対して約 30 分子に渡り分極の消失が生じることが明らかとなった。第一原理計算に基づく理論解析によって、10 分子以上に渡りプロトンのスイッチングを介して分極反転が生じることが示された(代表的原著論文 1)。このような光照射による分極反転現象は、強誘電体の高速分極制御の可能性を強く示唆するものであり、将来の高速の光スイッチ、光変調素子等への応用が期待される。この成果については、プレスリリースを行った。

#### ・ 電場パルス励起による電子型誘電体の高速分極生成

電場パルスによる高速分極生成を実現するプロトタイプとして常誘電相にある分子性結晶 **TTF-CA** を選び、光ポンプ-SHG プローブ分光、反射率プローブ分光を行った。SHG の観測と過渡反射スペクトルの計測から、テラヘルツ電場パルスによって、低温強誘電相の 17%に至る大きな分極生成が生じることが明らかとなった。これは、電場パルスによって常誘電体に高速に巨視的分極を生成できることを示した初めての例である(代表的原著論文 2)。この成果は、アメリカ物理学会の **Focus** 欄でも取り上げられた。同じ **TTF-CA** の低温強誘電相においては、テラヘルツ電場パルスによる高速の分極変調が可能であることが本チームの研究者によって明らかにされている。本研究では、有限サイズの厳密計算によって、この分極変調が分子間電荷移動によるものであり、断熱的に生じることを明らかにした(代表的原著論文 3)。

## ○ 非平衡光学スペクトルの新しい理論解析手法の構築

本研究で開発する理論解析手法は、以下のように要約される。まず、小さいサイズの系において光励起後の多体電子波動関数の時間発展を厳密に計算する。その時間依存波動関数を、情報科学的あるいは統計数理的手法を用いて解析することにより、重要基底を抽出するとともに、現象の物理的描像を理解する。その情報をもとに、より大きなサイズの系のスペクトル変化を導出し、実験結果の解釈に結びつける。この方針に基づき、一次元拡張ハバードモデルを用いたモット絶縁体の光応答の新規解析手法構築を開始した。具体的には、光励起後の基底の係数の時間依存性を調べ、その絶対値や時間微分に注目して基底間の相関を2次元マップを用いて可視化した。さらに、基底をグループ化することを試みた。同じグループ内の基底の性質を吟味することにより光励起状態空間の大まかな構造について理解を得ることが可能であることを示した。

代表的原著論文

1. Kaoru Iwano, Yukihiro Shimoi, Tatsuya Miyamoto, Daiki Hata, Masato Sotome, Noriaki Kida, Sachio Horiuchi, and Hiroshi Okamoto,

“Ultrafast Photoinduced Electric-Polarization Switching in a Hydrogen-Bonded Ferroelectric Crystal”,

Phys. Rev. Lett. **118**, 107404 (2017).

2. Takeshi Morimoto, Tatsuya Miyamoto, Hiromichi Yamakawa, Tsubasa Terashige, Takaaki Ono, Noriaki Kida, and Hiroshi Okamoto,

“Terahertz-Field-Induced Large Macroscopic Polarization and Domain-Wall Dynamics in an Organic Molecular Dielectric”,

Phys. Rev. Lett. **118**, 107602 (2017), (Featured in APS Focus).

3. Hiroki Gomi, Naoto Yamagishi, Tomohito Mase, Takeshi J. Inagaki, and Akira

Takahashi, “Instantaneous charge and dielectric response to terahertz pulse excitation in TTF-CA”,

Phys. Rev. B **95**, 094116 (2017).