

「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

H29 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。本年度は、汎用のチタンサファイア再生増幅器の出力パルスを励起源として、空気中でのフィラメンテーションと二次非線形光学効果を用いることにより位相安定な中赤外パルスを発生させることに成功した。パルスの周期は約 35 fs (波長約 10  $\mu\text{m}$ 、光子エネルギー約 0.12 eV)、半値全幅は約 70 fs、電場の最大値は約 10 MV/cm である。この手法は、本グループが独自に開発した新しい手法であり、発生と検出法を含めた論文を *Applied Physics Express* 誌に発表した (代表的原著論文①)。

### ○ 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

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、テラヘルツ電場パルスを励起に用いた新奇電場応答の探索を行い、以下の現象を見出した。

- ・ テラヘルツ電場パルスによる二次元モット絶縁体の金属化

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、モット絶縁体-金属転移 (モット転移) を起こすことに成功した。電場による瞬時トンネル過程によりキャリアが生成し、それをきっかけとして金属化が生じること、このモット転移がダイマー間トランスファーエネルギーの逆数程度の時間で起こることを示した。電場によるモット転移の実現およびモット転移の実時間観測は、いずれも世界に先駆けた成果である。この結果は、*Nature Materials* 誌に発表した (代表的原著論文②)。この現象は、今後の電場誘起電子状態変化ダイナミクスの理論解析の主たる対象の一つとする予定である。

- ・ テラヘルツ電場パルスによる水素結合型分子性強誘電体の高速分極制御

水素結合型分子性有機強誘電体のプロトタイプであるクロコン酸のテラヘルツ電場応答を測定した。その結果、この系の強誘電分極を担うのは主に分子骨格の  $\pi$  電子系でありプロトンの変位の寄与は小さいこと、また、このことを反映して電場によって分極をサブピコ秒で変調できることがわかった。この結果は、クロコン酸が電子型強誘電体の一種であることを示すと同時に、クロコン酸以外の水素結合型分子性強誘電体も電場に対する高速応答性を有することを示唆しており、この種の系の光変調素子等への応用が期待される。

### ○ 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、次元拡張ハバードモデルを用いたモット絶縁体の光/電場応答の新規解析手法構築を進めた。具体的には、電荷の自由度のみを考慮した電荷モデルを用いたスペクトル計算、特異値分解とワニア関数を用いたスペクトル計算、時間依存密度行列繰り込み群法 t-DMRG を用いたスペクトル

計算を進めた。電荷モデルをベースにワニア関数を用いたスペクトル計算は 200 サイトまで拡張することが可能となった。また、t-DMRG では、20 サイトの系での過渡スペクトル計算を実現した。これらの計算と平行して、基底をグループ化することによって光励起状態の物理的性質を解明する新しい手法の開発も進めた。

代表的原著論文

①

T. Morimoto, N. Sono, T. Miyamoto, N. Kida, and H. Okamoto,  
“Generation of a carrier-envelope-phase-stable femtosecond pulse at 10 $\mu$ m by direct down-conversion from a Ti:sapphire laser pulse”,  
*Applied Physics Express* **10**, 122701:1-4 (2017)

②

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,  
“Mott transition by an impulsive dielectric breakdown”,  
*Nature Materials* **16**, 1100-1105 (2017)

③

K. Shinjo and T. Tohyama,  
“Photoinduced absorptions inside the Mott gap in the two-dimensional extended Hubbard model”,  
*Physical Review B* **96**, 195141:1-6 (2017).