

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. 研究成果の概要

#### ○ 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、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、2 MV/cm まで高強度化したテラヘルツパルスを励起に用いたテラヘルツポンプ-近赤外・可視プローブ分光測定系の構築に成功した。

#### ○ 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

本年度は、位相制御パルスおよび極短パルス光を用いた強相関係物質のポンプ-プローブ分光測定を進め、以下の現象を見出した。

##### ・高時間分解能ポンプ-プローブ分光によるモット絶縁体のスピンドイナミクス検出

本プロジェクトの主たる対象である二次元モット絶縁体の銅酸化物において、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、磁気ポーラロン形成過程およびスピン系のダイナミクスに関係すると考えられる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。本成果を Nature Communications 誌(代表的な原著論文①)に発表した(2018.9.27 プレスリリース)。

##### ・強相関係の強電場応答検出

本年度整備を進めたテラヘルツポンプ-近赤外プローブ分光測定系を用いて、一次元モット絶縁体 ET-F<sub>2</sub>TCNQ のモットギャップ遷移領域の反射率変化の電場依存性を調べた。反射率変化には明瞭な閾値的挙動が観測されることから、強電場によりバンドが傾くことによって、量子トンネル過程を介したキャリア生成が起こり、金属化が生じることが示唆された。今後、赤外域でスペクトロスコピーを行うことにより、電場誘起金属化を実証する。水素結合型有機強誘電体クロコン酸については、これまでに得られたテラヘルツ電場応答の結果を解析し、プロトンの変位に比べ  $\pi$  電子系の強誘電分極への寄与が大きいことを実証

した。その結果を *Scientific Reports* 誌（代表的な原著論文②）に発表した。

### ○ 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光学伝導度スペクトルの変化を導出し、実験結果の解釈に結びつける。2017年度に引き続き、この方針に基づいて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におけるスペクトル計算、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行った。V を考慮した電荷モデルにおける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。その結果は、拡張ハバードモデルにおける t-DMRG を用いた 80 サイトの系でのスペクトル計算の結果と良く一致した。また、ハバードモデルにおいても、このアプローチで 200 サイトの系のスペクトルを精度良く求めることに成功した。これらの計算と平行して、ポンププローブ分光における超高速過渡的干渉現象の理論研究を行い、その結果を *Physical Review B* 誌（代表的な原著論文③）に発表した。

#### 【代表的な原著論文】

①

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  
“Probing ultrafast spin-relaxation and precession dynamics in a cuprate Mott insulator with seven-femtosecond optical pulses”  
*Nature Communications* **9**, 3948 : 1-7 (2018).

②

T. Miyamoto, D. Hata, T. Morimoto, H. Yamakawa, N. Kida, T. Terashige, K. Iwano, H. Kishida, S. Horiuchi, and H. Okamoto  
“Ultrafast polarization control by terahertz fields via  $\pi$ -electron wavefunction changes in hydrogen-bonded molecular ferroelectrics”  
*Scientific Reports* **8**, 15014 : 1-8 (2018).

③

K. Shinjo and T. Tohyama  
“Ultrafast transient interference in pump-probe spectroscopy of band and Mott insulators”  
*Physical Review B* **98**, 165103 : 1-9 (2018).

## § 2. 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