

## 新学術領域研究 領域代表者からの報告

### 2. 研究の進展状況及び成果の概要

【領域番号】 2003

【領域略称名】 動的相関光科学

【領域代表者（所属）】 五神真（東京大学・大学院理学系研究科・教授）

本研究領域では、近年の先端レーザー分光技術、量子多体物理学の進歩を背景として、物質の未利用な光効果・現象を探求し、その活用に向けた道筋をつけることを目的とした。光と物質の関わりについて新たな視点で見直す上で、物質の励起状態に生じる多数の電子間の相互作用や量子力学的位相相関—動的相関電子系—に着目し、DYCE (Dynamically correlated electrons) という中心的コンセプトを謳い、組織的研究を開始した。A01-04 の4研究項目（A01 分光学・量子光学、A02 半導体デバイス工学、A03 ナノ材料化学、A04 量子多体系理論）の密接な連携により、動的電子相関によって生じる新規な光効果を探求し、その基礎学理を創り、応用への道筋を探ることに挑戦した。これにより光科学と物質科学が融合した新しい学術領域の創成を目指した。動的相関電子系の学理を異分野間で共有化して新しい学術領域を形成し、また各分野で特に発展している研究手法、研究手段の交流も目指した。

研究期間が終了した現在、動的相関電子系の物理学は、新学術領域として定着し、本課題に関心を持つ若手研究者の人工は明らかに増し、コミュニティも形成された。国内学会や国際会議を通じて、DYCE＝動的相関電子系という標語の知名度も向上し、理論的な研究は難しいとされていた本分野にも、多くの分野からの研究者が参入するようになった。領域全体として高い達成度が得られたと自負している。

各研究項目・研究課題ごとの達成度を、以下で述べる。

研究項目 A01（分光学・量子光学） では、冷却原子系の量子凝縮や光周波数標準研究の分野で近年急速に発展した精緻なレーザー分光技術とその概念を、半導体の励起子系で展開し、これにより、励起子系の自発的量子凝縮を実現し、動的電子相関効果の本質を引き出すことが主たる目的であった。さらに、量子光学研究との密接な連携をはかり、物質系のコヒーレンスと輻射場の相関の量子光学効果を探求し、ナンバー状態の発生など新たな光量子機能発現の道筋を探ることを目指した。これらの目的は、十分に達成することができた。

実際、五神らは、亜酸化銅の励起子系において自発的量子凝縮の実証に世界にさきがけて成功した。また、その研究過程で、精緻なレーザー分光を固体系に適用し、励起子の内部遷移を利用して従来の発光観測に依存した実験では困難だった励起子の基礎パラメータを評価した。特に、励起子ボーズ・アインシュタイン凝縮条件の達成には不可欠な、励起子間の非弾性散乱断面積を定量的に評価し、これにより実験上要求される励起子の温度領域や密度領域、三次元閉じ込めの必要性を明らかにした。このアプローチは、ワイドギャップ半導体における電子正孔液滴の精密分光や多励起子束縛状態の発見、偏光選択則を巧みに利用した反強磁性共鳴の制御等にも活用された。

井元らは、量子情報処理を視野に入れた量子光学の研究を深め、光子数量子状態発生の定量的な判定基準の重要性に注目し、単一光子光源の新しい評価手法を提案した。この方法では光子数分布を測定により推定し、2光子以上の分布の裾がポアソン分布よりも急に落ちる傾向（“サブポアソン傾向性”）を高次の光子数まで定量化することで、量子暗号通信の到達距離を伸ばすことを可能にする。この方法は、五神らにより開発されている光子計数ストリークカメラを用いた光子源の高次光子統計分布の測定法開発により、実現可能となった。デバイス・材料分野の研究者へ明確な目標を示すことができた意義は大きい。

以上の成果に加え、量子ドットと微小共振器が結合した系の量子光学を利用した長距離量子情報通信の新技术や、強磁性的相転移を有する新たな量子スピン模型による量子計算の新技术および量子ドット等で構成された量子光源の波長変換の実現など、多くの有用な知見が得られた。また、高次光子統計分布測定を典型的な微小共振器半導体レーザーに適用し、従来のレーザー理論では厳密に取り扱われない物質系のダイナミクスが光子相関に直接的に現れることを実測した。

研究項目 A02（半導体デバイス工学） では、豊富な技術蓄積を背景として、クリーンな低次元ナノ構造成長と精緻なデバイスプロセスにより高度かつ高品質な半導体光デバイスを作製し、ゼロから金属的な高密度域に至るキャリア密度制御、量子閉じ込め、外場、温度依存性などに応じて、動的電子相関効果が光学応答や光機能にどう反映し活用可能かを系統的・定量的に調べ上げることを目的とした。具体的には、光励起や電流注入励起が可能な低次元レーザーや、ゲート電圧制御可能な電界効果

トランジスタ(FET)型のクリーン光デバイス構造を工学的手法を駆使して形成し、構造の次元、電子や正孔のキャリア密度、電荷バランス、電場などを精密制御し、さらに温度や外部磁場を変えつつ、光学応答に現れる動的電子相関効果を系統的に調べることを計画した。その際、界面構造ラフネスや残留不純物散乱などが、注目する動的電子相関効果を擾乱してしまわないようにこれまで実績を積んできた MBE 成長技術を用い、世界最高品質クリーンデバイスの作製を目指した。量子細線・井戸レーザーにおける動的電子相関効果による低しきい値利得発生や利得スイッチ・光非線形性に注目し、FET 型デバイスでは分数量子ホール状態やトリオン・量子ホール状態発光クロスオーバーの観測を狙った。極低温実験では A01 班と、局所分光や時空間ダイナミクス、THz 実験では A03 班、理論に関して A04 班と連携して研究を進めることを目指した。

これらの目的は、この研究期間内のうちに十分に達成され、幾つかの想定以上の成果も生んだ。

秋山らは、1 周期から 100 周期までの世界最高品質の量子細線レーザー試料を作製することに成功した。さらにその高品質・高制御性を保証する構造評価・光学評価・スクリーニングにより、バンド端での非線型光学利得特性を測定・解明する道が拓けた。物理計測の結果、フェルミ端近傍と共にバンド端においても著しい多体効果が現れ、光学利得の 1 次元状態密度による発散的増大が抑制されることを観測した。A04 理論グループと連携してその機構解明を目指し、このバンド端利得抑制効果が、キャリア間相互作用のコヒーレント部分とインコヒーレント部分による振動子強度の再構成とブロードニングによって生じていることを解明した。

秋山は、分担者・横山と共同で、半導体レーザーの利得スイッチングによる短パルス発生と、そこに内在する高速光非線型性を明らかにする研究を本期間内に新規発足し、かつ一連の優れた成果を得た。特に、 $1.55\ \mu\text{m}$  通信波長帯用 InGaAsP 系 DFB レーザーダイオードの電気パルス強励起とスペクトル切り出しにより 5ps 以下の短パルス発生に成功し、さらに短パルス限界を決めるチャープ特性の測定を行い、レート方程式理論を用いた解釈を得た。

野村らは、不規則性による局在と分離して、遮蔽長が荷電励起子半径とほぼ一致する電子密度を境にして荷電励起子状態と二次元電子ガス正孔状態がクロスオーバーすることを示す定量的な手法を編み出し、当初計画で期待したとおりの成果を得た。

低電子密度において高い移動度をもつ試料を用いて、 $\nu=1/3$  近傍の発光スペクトルを  $T=25\ \text{mK}$  の極低温、高い波長分解能測定により系統的に調べ、明確に分離された 4-5 つの発光ピークを初めて観測し、それらが準電子励起の存在と関わることを示したことは、当初計画を上回る成果であった。

極低温、強磁場中近接場顕微鏡を用いた量子ホール端状態の空間マッピングに成功し、空間マップ像が光励起エネルギーに強く依存して質的に変化することを見いだした。光励起状態に生じる動的相関効果と関わるのがわかった。

研究項目 A03 (ナノ材料化学) では、様々な化学的手法によって得られる多彩多様な半導体ナノ材料および微粒子系に対して、時空間ダイナミクスを計測する分光手法を新たに開発適用することで、特異的あるいは普遍的な動的電子相関効果の発現と機能性を発見し解明することを目標に研究を進めてきた。限定された材料のみを調べるのでは、普遍的な学理を確立し、実用に活かせる光機能を得るためには、不十分である。そこで A03 班では、参加するメンバーが実績をもつ化学的手法を用いて特色ある様々なナノ材料の試料を作製し、キャリア間の相互作用が本質的な役割をする光学現象の発見・解明を目指した。また、新しいテラヘルツ光源・分光法の開発により、様々な材料の電子相関効果の解明を目指した。低純度あるいは欠陥などを含むような材料の光学物性は、低密度領域では光学応答は外因的要素に影響されることが多いが、高密度領域では材料や構造に固有の性能が現れるので、多種多様な物質を研究対象にすることにより、動的物性や動的電子相関効果の本質を明らかにできる可能性がある。

金光らは、顕微発光分光と時間分解ポンプ・プローブ分光を用いる時空間分解分光により、ナノ構造物質において少数の励起子・キャリアが関与した重要な基礎過程であるオージェ再結合過程およびマルチエキシトン生成・キャリア増幅過程の解明に取り組んだ。カーボンナノチューブのブライト準位とダーク準位間の励起子分布を決定し、正孔ドーピングによる荷電励起子を世界に先駆けて発見した。また、励起子-正孔間の量子化オージェ再結合寿命の決定やキャリアドーピングによるバンドギャップ収縮など電子相関が本質的な現象の解明に取り組んだ。さらに、ナノ粒子におけるキャリア 3 体衝突オージェ再結合過程速度の評価やナノロッドのオージェ再結合過程における表面効果の解明を行った。オージェ再結合過程およびマルチエキシトン生成過程における波数保存則の緩和を実験的に示した。以上のように、半導体ナノ構造とバルク結晶において、高密度領域にある電子正孔系のキャリア・励起子ダイナミクスの解明と新しい光学過程の発見を行った。当初の期待通りの成果を得ること

に成功した。

芦田らは、動的電子相関効果の発現と機能性を発見・解明するため、テラヘルツ域を含む赤外全域をカバーする時間領域分光を開発した。媒質の吸収による欠落帯がなく広帯域化が容易な上、損傷閾値が高いため高強度化にも有利な空気プラズマによる赤外パルス発生法を用いて、サブテラヘルツから近赤外域の 200THz に及ぶ周波数領域を完全に切れ目なくカバーすることに成功した。これはコヒーレント赤外光源としては世界最高帯域となっている。これを利用して、マルフェロイックス酸化物のエレクトロマグノンや高温超伝導体の超伝導ギャップの観測も行った。こうして、当初目論んだ通り、電子相関の動的応答を観測することができた。一方、テラヘルツ波の高強度化にも成功し、LiNbO<sub>3</sub> を発生源とした手法の最適化を行って、世界最高となる電場強度 1MV/cm を超えるパルス発生に成功した。さらに、この光源を利用して多くの非線形現象を見いだした。バンドギャップよりも何桁もエネルギーが低いテラヘルツ波の高強度励起によって、バンド端からの発光を初めて観測した。こうした摂動的な理解ができない新奇現象を次々に発見した。新たに開発した広帯域測定と高強度励起の組み合わせで、動的電子相関の制御を行う端緒を得た。期待以上の成果が得られた。

公募研究では、レーザーを基本にした新しい分光法の開発とそれを利用した光学現象の制御や機構解明に多くの成果を得た。シングルショット高速分光法の開発と光誘起相転移、光で励起したスピン波の実空間・実時間観測、フェルミオンとボゾンの原子混合系およびフェルミ縮退混合系における相転移の観測、ナノ粒子のマルチエキシトン生成など、多くの成果を得ることができた。

研究項目 A04 (量子多体系理論) では、動的相関電子系をミクロに記述する新しい理論体系や計算手法の構築を行い、上記の様々な材料や手法の実験において得られる実験結果と比較検討し、系統的な理解・解釈を得て、全体として学理に纏め上げ、新現象・新機能の予測を行うことを目的とした。領域としての学理の確立に向けて、体系的な基礎理論を建設し、実験データの統一的普遍的理解を得よう目指した。

その結果、特に研究期間の後半に、当初予想以上の進展や成果が得られ、高い目的達成度が実現できた。

A04 班では、領域全体としての学理を確立するために体系的な基礎理論を建設し、実験データの統一的普遍的理解を得られるようにすることが肝要であると、計画研究と公募研究のすべての研究者に周知徹底を図り、A04 班全体での意思統一と協力体制の構築を行った。動的相関電子系の基礎理論の構築は、量子多体問題、非平衡量子統計力学、量子光学など、高度な凝縮系物理学だけでなく、未開拓の非平衡物理学や、さらには光学・電磁気学の詳細な知識を同時に必要とする作業である。これは極めて難しい課題であるがために、研究者人口も増えず、手つかずのままに残されていた。そこで、本研究プログラムでは、この難作業に果敢にアタックすることを、A04 班研究者全体に周知徹底して志気を高めた。個々の研究者の意欲と能力が高い必要は言うまでもないが、A04 班を一つの「チーム」として研究を推進する必要もあり、理論研究者同士の協力体制を作ることにも腐心した。

動的相関電子系の理論は、大きく分けると、「グローバル理論」と「詳細理論」がある。グローバル理論とは、系の示す状態や現象の全体像をつかむための理論で、詳細理論とは、ある条件下での系の示す状態や応答の詳細を理解するための理論で、車の両輪を成している。A04 班の研究の強みは、この両方がバランス良く配置されていたことであり、その結果、予想以上の高い達成度を得ることができた。

グローバル理論の第一は、小川らの計画研究による動的電子相関効果を取り入れた新しい半導体レーザー理論の構築である。この新学術領域研究が進行していた同時期に、半導体レーザーが共振器ポラリトンの協力現象と密接な関係があることが実験的に示唆され、共振器ポラリトン系との関連も考慮した理論構築を進めた。得られた理論的枠組みは、半導体レーザーの発振状態と共振器ポラリトンの凝縮状態とを同じ枠組みの中でシームレスにつなぐことのできるもので、将来の拡張は残っているものの、現段階では世界初の極めて重要なものと言える。この理論の完成により、物理学の長い間の基礎的問題であった、平衡状態と非平衡定常状態との移り変わりに関して、具体的で明確な結果を出すことができるようになった。

グローバル理論の第二は、浅野らの計画研究による電子正孔系のグローバル相図の決定である。動的相関電子系の基本となる高密度電子正孔系および電子系（正孔系）の準熱平衡状態の相図を決定した。励起子ガスの遮蔽効果と電子正孔ガスの遮蔽効果の両方を、自己無撞着に取り入れた点が斬新で、小川らの先行研究をさらに精密化・定量化することに成功した。量子ホール系・ディラック電子系など、動的相関電子系の新奇な舞台の励起状態の特徴も明らかにし、系の多様性と普遍性を明示した理論研究を進めた。

このようなグローバル理論を構築する際に、理論手法（近似手法）の開発にも大きな進展があった。グローバル相図がカバーすべき、何桁も大きく変わるキャリア濃度・温度・相互作用強度・有効質量（バンド幅）などのすべての領域に適用可能な近似理論は無かったため、従来は個別のパラメータ領域での近似理論をパッチワークのように接続するのみであった。しかし、これでは、未知の物理現象が潜んでいると期待されている中間領域や、状態間の移り変わりの様相を記述できない。この移り変わり（クロスオーバー）を正しく記述しうるメタ理論を、小川らは非平衡グリーン関数法と非平衡統計力学の併用によって、浅野らは非平衡遮蔽過程を自己無撞着に取り扱うことで、構築に成功した。鈴浦らは、カーボンナノチューブ・グラフェンを中心とした有効質量ゼロのディラック電子を持つカーボンナノ構造における特異な光学応答の解明を目指し、実験研究での決着が付いていなかった明暗励起子分裂構造を理論的に曖昧さ無く決定したことが大きな成果である。多層カーボンナノチューブやカーボンナノチューブ内の不純物や格子欠陥による準位混成も定量的に明らかにし、実験結果の解釈に寄与した。