

令和 6 年 6 月 21 日現在

機関番号：13401

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K05303

研究課題名（和文）データ駆動科学と量子計測の高度化による強相関非線形フォトニクス材料探索の最適化

研究課題名（英文）Material Design for Strongly-Correlated Nonlinear Photonics with Advanced Data-Driven Science and Quantum Measurements

研究代表者

牧野 哲征（Makino, Takayuki）

福井大学・遠赤外領域開発研究センター・准教授

研究者番号：70311363

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：電子工学および応用物理学分野などさまざまな学術分野で注目を浴びることとなっている電子強相関系材料群について、この研究では、準安定相希土類系強相関薄膜を対象に、局所クーロンエネルギー、電子格子結合度、移動積分が非線形光学特性に与える影響を明らかにした。さらに、光非線形性データの背後にある相関関係を機械学習を用いて抽出し、非線形材料の開発やマテリアルズ・インフォマティクスの高度化に貢献した。第一原理電子状態計算を行い、局所クーロンエネルギーを最適化し、誘電関数を再現する結果を得た。さらに、非線形分光法の高感度測定系を実現し、これらのさまざまな成果を原著論文として発表できた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

機械学習・深層学習と電子状態計算を統合することで、大量のデータに依存する従来のアプローチを超え、少量の実験データから外挿的な物性予測が可能になった。これにより、新材料の探索と設計が効率的に行えるようになった。

学習データから外れた領域でも適切に予測ができる新たな深層学習の基礎技術を適用でき、これにより、未知の新物質に対しても物性を高精度予測することが可能となり、高機能な物質や学問的に興味深い性質を持った物質の探索・設計に応用することができた。

従来の深層学習技術の弱点を深層学習と理論の融合で克服することで、材料開発関連する分野で新たな成果を生

研究成果の概要（英文）：In this study, we investigated the impact of local Coulomb energy, electron-phonon coupling, and hopping integrals on the nonlinear optical properties of quasi-stable rare-earth-based strongly correlated thin films. These materials are attracting attention in various academic fields, including electronic engineering and applied physics. Additionally, we used machine learning to extract underlying correlations behind the nonlinear optical data, contributing to the development of nonlinear materials and advancements in materials informatics. By performing first-principles electronic structure calculations and optimizing local Coulomb energy, we obtained results that reproduce the dielectric function. Furthermore, we achieved a highly sensitive measurement system for nonlinear spectroscopy, and these diverse achievements were published in original research papers.

研究分野：光物性物理学

キーワード：励起子

様式 C - 19、F - 19 - 1 (共通)

1. 研究開始当初の背景

望みの機能を持つ材料の開発は、材料研究における目標の一つである。そうした開発を可能とする方法は確立されておらず、膨大な試行・経験・ひらめき・勘・偶然の産物として新材料が開発されてきた。しかし、科学の高度化に伴い、従来法で新材料の開発を続けていけず、より系統的・効率的・網羅的な方法が必要になってきている。

このような要望に応える可能性があるものとしてマテリアルズ・インフォマティクス(材料情報学)が挙げられる。ここでは光非線形性に着目した。従来、非線形光学材料探索が行われてきた材料群は、s 電子もしくは p 電子を含む化合物半導体・強誘電体・有機系材料が中心であった。非線形感受率の大きな材料が既に発見・報告されているが、高速応答性(数十 fs)や広帯域な波長特性(約 100 nm)まで兼備するものは、今まで発見されてはなかった。それが汎用性のある(例:量子計算機に使われる全光演算処理装置など)非線形光学材料としての応用への道を妨げてきた。

一方、d 電子系や f 電子系は強い電子相関のため電子が局在し絶縁体となるものが多い。このような物質である YO など希土類単酸化物薄膜の合成に成功した。これらは準安定相であるため、バルクでも合成例がほとんどない。また 2 元化合物で、結晶対称性も高いため、理論的研究の際の計算コストが比較的安く済むというメリットを有した。

YO 薄膜を対象に時間分解非線形分光の予備実験を行ったところ、非線形材料としての目標値に達しえるという知見を得ていたことを踏まえ他の材料についても系統的な収集を進める機運が醸成されていた。一般に巨大光非線形性材料は希少なため、十分なサイズの訓練セットを準備することは難しいとされてきたが、上述のような合成の成功により、その蓋然性は今や高く、電子強相関系に関しては、電子構造の複雑性に起因して禁制準位と許容準位の縮重性が高くなる確率が高いため、巨大な光非線形性に有利であるという理論的予測がなされている。電子強相関系を対象とした過去の非線形光学材料探索は指針としては有機物のそれと同様で「なるべく異方性の大きい低次元構造を選ぶべし」と結論づけられた。有機物の場合ポリマーなど該当する候補が多数あるが、無機化合物が中心である電子強相関系は等方的な材料が多いため、上記はあまり有用な指針とは言えなかったが、電子強相関系の持つおおきな潜在能力に気づかされることとなった。約 15 年前にも非線形光学材料の探索が行われたが、当時は非線形感受率の決定手段は主として電界変調分光法であり、ダイナミクス(時定数)の評価はできなかった。また光非線形性に関連がある物理量である電子分極の計算における非自明性問題が未解決であり、計算科学の知見の援用についても限界があった。しかし現在では電子分極のための計算パッケージなどもオープンソース化し、実験家でも計算できるようになってきた。また、10 fsec 程度の高い時間分解能を有し、安定な光源が普及するという評価上の進展もあり、系統的な非線形光学材料の探索にさいして適切な機運が醸成させる背景環境が整ったと言える状況であった。

2. 研究の目的

本研究では、光非線形性のデータから帰納的な機械学習を行ったり、すべての探索対象に通用する有効モデルを構築したりすることで、目標とする性能指数に対し主効果を有する記述子を明らかにする。具体的に換言すれば、非線形感受率やその時間応答を特性値とし、局所クーロンエネルギー・電子格子結合度などを記述子とした次元削減学習により強相関フォトリクスの探索空間に普遍的に成立つ経験則を導出することとともに、従来の材料探索法は、ただ単にいくつかの測定対象において収集された非線形感受率データを比較するだけにとどまるという従来法が包含する欠点を克服すべく、機械学習の手法を強相関電子系における材料探索に取り込もうとすることを研究の目的とする。

3. 研究の方法

対象試料群を希土類単酸化物(YO, YbO, LuO など 15 種)およびその混晶とし、分光光度計を用いて光透過・反射スペクトルを測定し、移動積分を決定するためや「ワニ関数を用いたダウンフォールディング」計算でのチェック手段としての方法論を援用した。

電子格子結合度を評価するための実験的および理論的手法としてのラマン散乱分光法と強制振動子法によるフォノン・シミュレーション法を援用した。

局所クーロンエネルギーを計算の際のパラメータとし、実験で得られた誘電関数を計算結果が再現するように最適化された東京大学物性研究所のスパコンを使用した第一原理電子状態計算を方法論として援用した。

超高速 Ti:sapphire レーザーを光源とし、光パラメトリック発振器を導入して波長領域を拡張し、感度向上のために検出感度や誤差抑制を最適化させたヘテロダイン検出法のみならず取得されたデータに対する LASSO 解析法をその方法論として援用した。

4. 研究成果

本研究では局所クーロンエネルギー・電子格子結合度・移動積分が強相関電子系材料における非線形光学特性に与える影響を明らかにするとともに巨大な光非線形性・超高速な光応答をもつ新たな非線形材料開発の基盤的知見を得ることを目的に、新規な準安定相希土類系強相関薄膜を対象とした光非線形特性の解明を行った。さまざまな酸化物材料の線形光学特性などを基礎的な物性を明らかにするとともに局所クーロンエネルギーなどの物理量を実験的に決定した。さらには光非線形性データの背後にある相関関係を抽出するための機械学習援用の有用性について実証した。電気・分光測定により電子格子結合度などを決定したり、電子構造を計算したりする。主効果を同定することにより、非線形材料の開発やマテリアルズ・インフォマティクスの高度化につなげた。第一原理電子状態計算も行い、局所クーロンエネルギーを計算の際のパラメータとし、研究初年度に行った実験で得られた誘電関数を計算結果が再現するように最適化できた。非線形分光法に基づく測定系を高感度化することをもくろみ超高速レーザとヘテロダイン測定法を組み合わせることによって更なる高感度な測定系を実現し、これにより検出感度や誤差抑制の最適化を行った。上述したようなさまざまな成果を原著論文として世に問うこともできた。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計8件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 4件）

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Kurachi T., Yamaguchi T., Kobayashi E., Soma T., Ohtomo A., Makino T. | 4. 巻 621 |
| 2. 論文標題 Optical properties of LiNbO ₂ thin films | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Physica B: Condensed Matter | 6. 最初と最後の頁 413259 ~ 413259 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.physb.2021.413259 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Asai Takaho, Ito Seigo, Makino Takayuki | 4. 巻 8 |
| 2. 論文標題 Contactless Determination of Optimal Chloride Concentration for Power Conversion Efficiency in CH ₃ NH ₃ Pb(Cl, I) ₃ Using Photoluminescence Spectroscopy | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Photonics | 6. 最初と最後の頁 412 ~ 412 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/photonics8100412 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Makino Takayuki, Yusa Subaru, Oka Daichi, Fukumura Tomoteru | 4. 巻 61 |
| 2. 論文標題 Temperature-dependent optical properties of $\text{-(Ga}_{2/3}\text{O}_{3/2})$ thin films | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 SB1031 ~ SB1031 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1347-4065/ac2215 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |
| 1. 著者名 Islam Md. Sherajul, Dey Biswajit, Rana Md. Masud, Islam A. S. M. Jannatul, Park Jeongwon, Makino Takayuki | 4. 巻 10 |
| 2. 論文標題 Temperature-induced localized exciton dynamics in mixed lead/tin based CH ₃ NH ₃ Pb _{1-x} SnxI ₃ perovskite materials | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 AIP Advances | 6. 最初と最後の頁 065331 ~ 065331 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0007087 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 該当する |

| | |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名 Kobayashi Eiichi, Satta Koya, Inoue Ryoga, Suzuki Ken, Makino Takayuki | 4. 巻 2 |
| 2. 論文標題 Contactless Determination of Electric Field in Metal-Insulator-Semiconductor Interfaces by Using Constant DC-Reflectivity Photoreflectance | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Solids | 6. 最初と最後の頁 129 ~ 138 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/solids2020008 | 査読の有無 有 |
| オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である) | 国際共著 - |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Makino Takayuki, Asai Takaho, Takeuchi Tomoya, Kaminaga Kenichi, Oka Daichi, Fukumura Tomoteru | 4. 巻 59 |
| 2. 論文標題 Temperature dependence of dielectric functions in Yb2O3 and Lu2O3 epitaxial thin films on sapphire (0001) | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 SCCB13 ~ SCCB13 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab4a88 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Kobayashi Eiichi, Shimmura Shuhei, Ito Seigo, Makino Takayuki | 4. 巻 59 |
| 2. 論文標題 A new photoreflectance signal possibly due to midgap interface states in buried F-doped SnO2/TiO2 junctions | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 SCCB23 ~ SCCB23 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab54f8 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

| | |
|--|-------------------------------|
| 1. 著者名 Sarker Joy D., Islam Md. Sherajul, Ferdous Naim, Sarker Pantha P., Bhuiyan Ashraful G., Makino Takayuki, Hashimoto Akihiro | 4. 巻 59 |
| 2. 論文標題 Tunable electronic properties in bismuthene/2D silicon carbide van der Waals heterobilayer | 5. 発行年 2019年 |
| 3. 雑誌名 Japanese Journal of Applied Physics | 6. 最初と最後の頁 SCCC03 ~ SCCC03 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7567/1347-4065/ab48b5 | 査読の有無 無 |
| オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難 | 国際共著 - |

[学会発表] 計17件(うち招待講演 1件/うち国際学会 7件)

| |
|---|
| 1. 発表者名 R. Inoue and R. Takahashi and T. Mauda and H. Koinuma and T. Makino |
| 2. 発表標題 Photoreflectance spectroscopy of ZnO single crystal and superlattices |
| 3. 学会等名 Annual meeting by Hokuriku Chapter of the Japan Society of Applied Physics |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Kurachi and K. Kaminaga and D. Oka and T. Fukumura and T. Makino |
| 2. 発表標題 Electronic structure and phonon states calculation in LuO |
| 3. 学会等名 Annual meeting by Hokuriku Chapter of the Japan Society of Applied Physics |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 山口 拓真、西脇 知宏、牧野 哲征 |
| 2. 発表標題 Y0の電子状態およびフォノン状態に関する第一原理計算 |
| 3. 学会等名 令和3年度(2021年) 応用物理学会 北陸・信越支部 学術講演会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 鈴木 健、相馬 拓人、大友 明、牧野哲征 |
| 2. 発表標題 フォトリフレクタンス分光法を用いたLiNbO ₂ の光学評価 |
| 3. 学会等名 令和3年度(2021年) 応用物理学会 北陸・信越支部 学術講演会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 西脇知広、鈴木健、岡大地、福村知昭、牧野哲征 |
| 2. 発表標題 フォトリフレクタンス分光法によるBiOCl/SrTiO ₃ の光学評価 |
| 3. 学会等名 令和3年度(2021年) 応用物理学会 北陸・信越支部 学術講演会 |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Makino, D. Oka, T. Fukumura |
| 2. 発表標題 Temperature-Dependent Optical Properties and Electron-Phonon Interaction in α -Ga ₂ O ₃ Epilayers |
| 3. 学会等名 EM-Nano 2021 (国際学会) |
| 4. 発表年 2021年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 牧野哲征 |
| 2. 発表標題 超短パルスを用いた酸化物材料の光デバイス応用 |
| 3. 学会等名 第5回有機・無機エレクトロニクスシンポジウム(招待講演)(国際学会) |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|--------------------------------|
| 1. 発表者名 村瀬航太、牧野哲征 |
| 2. 発表標題 YbOの格子振動状態の研究 |
| 3. 学会等名 応用物理学会北陸信越支部主催学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名 颯田皓弥、牧野哲征 |
| 2. 発表標題 急峻な感度曲線への適応制御した変調分光システムの構築 |
| 3. 学会等名 応用物理学会北陸信越支部主催学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|-----------------------------------|
| 1. 発表者名 井上涼雅、牧野哲征 |
| 2. 発表標題 ショットキー電極を含む酸化物半導体の変調分光 |
| 3. 学会等名 応用物理学会北陸信越支部主催学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 倉地司、牧野哲征 |
| 2. 発表標題 LiNbO ₂ のモデル誘電関数の研究 |
| 3. 学会等名 応用物理学会北陸信越支部主催学術講演会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Asai & T. Takeuchi & T. Yamade & T. Makino & S. Ito |
| 2. 発表標題 Combined Excitation Emission Spectroscopy on CH ₃ NH ₃ Pb(Cl-I) ₃ |
| 3. 学会等名 EM-Nano 2019 (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Makino & T. Asai & T. Takeuchi & K. Kaminaga & D. Oka & T. Fukumura |
| 2. 発表標題 Temperature Dependence of Dielectric Functions in Yb2O3 and Lu2O3 Thin Films |
| 3. 学会等名 EM-Nano 2019 (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 Md. Sherajul Islam & J. D. Sarker & ASM Jannatul Islam & A. G. Bhuiyan & T. Makino & A. Hashimoto |
| 2. 発表標題 Tunable electronic properties in bismuthene and two dimensional SiC van der Waals heterobilayer |
| 3. 学会等名 EM-Nano 2019 (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 T. Makino & A. Maeda & T. Asai & S. Ito |
| 2. 発表標題 Effects of Chlorine Concentration on Photoelectric Conversion Efficiency of Perovskite Solar Cells |
| 3. 学会等名 EM-Nano 2019 (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 E. Kobayashi & S. Shimmura & S. Ito & T. Makino |
| 2. 発表標題 Modulation Spectroscopy on TiO2 Thin Films Grown by Spray-Pyrolysis |
| 3. 学会等名 EM-Nano 2019 (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|--|
| 1. 発表者名 山出 拓史、山本 卓、岡 大地、神永 健一、福村 知昭、金井 輝人、石井 順久、板谷 治郎、牧野 哲征 |
| 2. 発表標題 希土類酸化物薄膜のフェムト秒時間分解分光 |
| 3. 学会等名 2019年第80回応用物理学会秋季学術講演会 |
| 4. 発表年 2019年 |

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

福井大学工学部電気電子情報工学科牧野研究室のページ
<https://electricenergylaboratory.github.io/>

| 6. 研究組織 | | |
|---------------------------|-----------------------|----|
| 氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号) | 所属研究機関・部局・職 (機関番号) | 備考 |
| | | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 |
|---------|---------|
| | |