

令和 4 年 5 月 31 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H02621

研究課題名（和文）光渦パルスで実現する時空間超伝導相制御

研究課題名（英文）Spatio-temporal control of superconducting phase by optical vortex pulses

研究代表者

戸田 泰則（TODA, YASUNORI）

北海道大学・工学研究院・教授

研究者番号：00313106

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,400,000円

研究成果の概要（和文）：超短パルス光を用いて超伝導を構成する電子対をすべて励起すると、常伝導への瞬時的かつ非熱的なクエンチ（コヒーレントクエンチ）を誘起できる。本研究ではビーム断面内に特徴的な空間特性を有する光渦パルスを使ってコヒーレントクエンチを誘起することにより、時空間で変調された新しい超伝導状態の創出とその観測および制御を実現した。本成果は光波の空間制御性を活用した新しいタイプの物質制御を確立したことに対応し、ナノスケール物性探索や超伝導デバイス開発への応用につながる。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超短パルス光を用いた光誘起相転移は、電子制御に対する高速性や非線形性などの機能拡張に加え、平衡条件下では実現し得ない新しい準安定電子状態を創出できる。本研究ではビーム断面内に特徴的な空間特性を有する光渦パルスを超伝導体の光誘起相制御として活用し、時空間で変調された新しい超伝導状態の創出と観測および制御を実現した。本成果は光波の空間制御性を活用した新しいタイプの光誘起相転移を実証しており、例えば従来技術では作製困難な回路構造をプロセスフリーで実現する手法として応用上の高い意義を持つ。

研究成果の概要（英文）：Excitation of all superconducting (SC) Cooper pairs with ultrashort laser pulses induces a coherent quench to the normal state in the photoexcited region. In this study, we have performed coherent quenching of high-T<sub>c</sub> SCs using optical vortex pulses with unique spatial characteristics in the beam cross-section. Our newly developed time-resolved spectroscopy demonstrated the generation as well as the observation and control of a novel SC state modulated in space and time. This achievement demonstrates a new type of photo-induced phase transition utilizing the spatial controllability of light waves, showing promise for applications in nano-scale imaging and the development of SC devices.

研究分野：光物性

キーワード：光渦 トポロジカル光波 高温超伝導 光誘起相転移

### 1. 研究開始当初の背景

超短パルス光を用いた光誘起相転移は、電子制御に対する高速性や非線形性などの機能拡張に加え、平衡条件下では実現し得ない新しい準安定電子状態を創出可能である。例えば超伝導体に対する超短パルス光励起により、短時間ではあるが平衡条件下の転移温度  $T_c$  以上における超伝導応答が観測され[1]、 $T_c$  高温化に対する新しいアプローチとして注目を集めるようになった。他方、光渦に代表されるトポロジカル光波は幅広い分野にイノベーションをもたらし、その空間特性を活用した光物性応用への展開も提案されるようになった[2]。申請者らは光渦を利用した物性研究に取り組み、空間特異性を反映する電子応答を高感度かつ定量的に評価する手法および分光技術を開発した[3]。その過程において、光渦パルス光を光誘起相転移に用いれば、空間軸という新たな視点を導入できることを着想した。

### 2. 研究の目的

本研究では光渦の空間特異性を超伝導に対する光誘起相制御として活用し、従来未開拓であった時空間で変調された準安定電子状態を創出するとともに、時空間相制御のもたらす新規物性および新機能の開拓を目的とする。具体的には、光渦パルス励起を用いて高温超伝導体の相抑圧(コヒーレントクエンチ)を誘起することによる、時空間変調された局在超伝導の生成と観測・制御に取り組んだ。合わせて空間不均一化との関係性が示唆される銅酸化物超伝導体に特徴的に現れる擬ギャップの空間特異性、および空間特異性が超伝導形成におよぼす影響についても調査した。

### 3. 研究の方法

高温超伝導体試料に対する光渦誘起相転移の創出と観測・制御を実現するため、超短パルス光を用いた超伝導のコヒーレントクエンチにもとづく時空間分解分光を構築した。コヒーレントクエンチ分光は、光誘起超伝導相抑圧により生成される準安定電子状態を検出する分光法であり、図1に示すような3パルス型時間分解ポンププローブ分光により実現される。時間分解ポンププローブ分光では、ポンプ(P)パルス光で励起された非平衡キャリアの緩和特性を  $t_{ppr}$  の遅延時間を付けたプローブ(pr)パルス光の光学応答変化(本研究では反射率変化)として検出する。高温超伝導体試料の場合は、超伝導ギャップや擬ギャップを反映した緩和特性が過渡反射率応答として観測される。試料を  $T_c$  以下の温度に冷却し、励起光強度を照射領域のクーパ対がすべて励起される条件に設定すると、過渡応答に現れる超伝導応答はクエンチを反映した飽和特性を示すようになる。コヒーレントクエンチ分光では、この飽和条件を満たす相抑圧(D)パルスを試料に照射し、瞬時的な超伝導相抑圧(クエンチ)によって過渡常伝導状態を生成する(図1(a))。このときポンププローブ分光により検出される過渡応答は相抑圧パルス照射後の経過時間  $t_{DP}$  に応じた常伝導から超伝導秩序再形成に到る特徴的なキャリア緩和を示し、その緩和特性にもとづいて準安定電子状態を同定する。光誘起クエンチで形成される過渡常伝導の空間分布はDパルスの強度分布を反映するので、強度暗点を持つような光渦パルスを使って超伝導をクエンチすることにより、暗点領域に局在する超伝導生成を期待できる(図1(b))。3パルスの励起光学系は図1(c)に示すような同軸配置で構成され、クライオスタット中に保持された試料に対してレンズを使って照射される。また本研究では光渦生成にスパイラル位相板を適用し、強度暗点の位置制御による超伝導応答の変化から時空間で変調された超伝導生成を実証する。

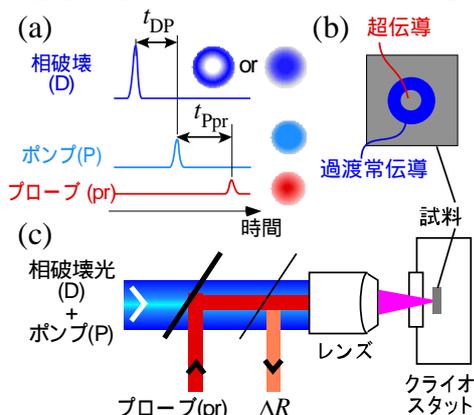


図1 コヒーレントクエンチ分光の概要:(a) 3本の光パルスの時系列、(b)光渦Dパルスで誘起される時空間変調超伝導、(c)励起光学系。

研究目的を達成するため、コヒーレントクエンチ分光を用いた(1)空間不均一化に起因する超伝導・擬ギャップ応答観測、(2)光渦を用いた時空間変調超伝導生成、(3)超伝導・擬ギャップ秩序形成の相関観測、の3つの研究項目に取り組んだ。以下、主要項目である(2)の成果を中心に、項目(1)と(3)の成果を適宜引用しながら実施内容をまとめる。

### 4. 研究成果

本研究では代表的な銅酸化物高温超伝導体である  $\text{Bi2212}$  ( $T_c=82\text{ K}$ ) を試料とする時間分解分光を実施した。図2(a)は代表的な温度で測定された過渡反射率変化  $\Delta R/R$  のポンププローブ時間差  $t_{ppr}$  に対する応答特性であり、各温度の熱平衡状態における電子状態を反映する。 $T_c$  以下では超伝導ギャップ間緩和にもとづく超伝導応答(SC応答)、 $T_c$  以上で超伝導ギャップが消失した後は部分的ギャップを特徴とする擬ギャップ応答(PG応答)、さらに室温に近い高温領域では金属応答(EPR応答)がそれぞれ支配的となる。特に  $\text{Bi2212}$  試料では、その近赤外領域のスペクト

ル特性を反映した異なる符号をもつ SC 応答と PG 応答が現れ、両者が明確に分離できる。この特性を活用した選択解析にもとづく空間不均一化の影響を項目(1)の成果として論文[4]にまとめた。また3種類の応答は緩和時間も大きく異なるため、コヒーレントクエンチ分光に現れる過渡応答にもとづいて、準安定電子状態を同定した。

具体例として、最低次ガウス光波を D パルスとして用いたコヒーレントクエンチ分光の結果を図 2(b)および(c)に示す。図 2(b)は代表的な  $t_{DP}$  時間で観測された過渡応答であり、クエンチ後の経過時間  $t_{DP}$  に応じた特徴的な緩和特性が現れる。図 2(a)との比較から、D パルス無しの過渡応答が SC 応答に対応し、D パルス照射後は過渡常伝導状態が現れることが分かる。図 2(c)は、縦軸を  $t_{DP}$ 、横軸を  $t_{Ppt}$  とする過渡応答振幅のカラープロットであり、準安定電子状態の時間発展が示される。すなわち D パルス照射後、SC 応答は  $t_{DP} < 0.5$  ps で完全に消失し、相抑圧(クエンチ)が完了する。 $t_{DP} = 1$  ps の過渡応答は PG 応答と金属応答から構成される常伝導応答、その後  $t_{DP} = 10$  ps の過渡応答は超伝導再生(ギャップ再形成)を反映する。さらに  $t_{DP} = 100$  ps の過渡応答は D パルス無しの SC 応答とほぼ一致しており、超伝導再形成が完了している。以上の結果から、過渡常伝導の発現時間に相当する  $t_{DP} = 0.5 \sim 5$  ps が時空間変調超伝導の生成可能時間に相当することが示された。ただし過渡常伝導の持続時間は励起条件、超伝導ギャップ再形成開始時間に応じて変化し、後者は擬ギャップ形成完了と強く相関することが示された(項目(3))。この相関関係は擬ギャップ形成に伴う電荷(スピン)秩序のクーペ対形成に対する寄与を示唆している。

光渦パルス誘起の空間変調超伝導生成を示すため、D パルス照射後の経過時間を  $t_{DP} = 2$  ps に固定し、光渦を D パルスに適用したときの過渡応答を図 2(d)に示す。比較のため、最低次ガウス光を D パルスに用いた場合の過渡応答を合わせて示す。過渡常伝導を反映した PG 応答に代わり、光渦を用いた過渡応答は SC 応答が支配的になることが確認できる。今回構築した測定系では、D パルス光を光渦へと変換するスパイラル位相板の特異点位置を連続的に走査可能であり、強度暗点がパルスビーム外側に外れると SC 応答が消失し、PG 応答が現れることを確認した。つまり光渦 D パルス誘起により発現する SC 応答は光渦の強度暗点に残される局在超伝導に起因することを直接検証できた。

本研究成果の意義について最後にまとめる。光渦誘起超伝導のサイズは相抑圧光渦パルスの強度分布に従うため、超伝導の飽和特性にもとづけば無限小化できる。この関係は誘導放出抑制顕微鏡における超解像イメージングの原理[5]と等価であり、光渦誘起超伝導をイメージング利用することにより、ビームサイズに制限されない高空間分解能を期待できる。この超解像化によってもたらされるバルク超伝導の物性情報は、空間不均一性と相関を示唆される擬ギャップとの関係性に対して新しい知見を期待できる。さらに時空間で制御された光誘起相転移の実証は、より複雑な回路構造をプロセスフリーで作製可能であることを示している。したがって現在開発の進む単一光子検出器[6]や量子ビット演算素子[7]など様々な超伝導デバイスの最適化や超高速化応用につながる。合わせてトポロジカル光波のもつ軌道角運動量や偏光分布を併用することにより、新たな自由度を光誘起相制御に適用する道筋を確立できた。

#### < 引用文献 >

- [1] D. Fausti, *et al.*, "Light-induced superconductivity in a stripe-ordered cuprate", *Science* 331, 189 (2011).
- [2] H. Fujita & M. Sato, "Ultrafast generation of skyrmionic defects with vortex beams", *PRB* 95 054421 (2017).
- [3] K. Shigematsu, *et al.*, "Coherent dynamics of exciton OAM transferred by optical vortex pulses", *PRB* 93, 045205 (2016).
- [4] Y. Toda, *et al.*, "Ultrafast transient reflectivity measurements of OP-doped Bi2212 with disorder", *PRB* 104, 094507 (2021).
- [5] S.W. Hell, "Microscopy and its focal switch" *Nat. Methods* 6, 24 (2009).
- [6] E. Zadeh *et al.*, "Superconducting nanowire single-photon detectors", *Appl. Phys. Lett.* 118, 190502 (2021).
- [7] A.K. Feofanov *et al.*, "Implementation of SC/FM/SC  $\pi$ -shifters in SC digital and quantum circuits", *Nat. Phys.* 6, 593 (2010).

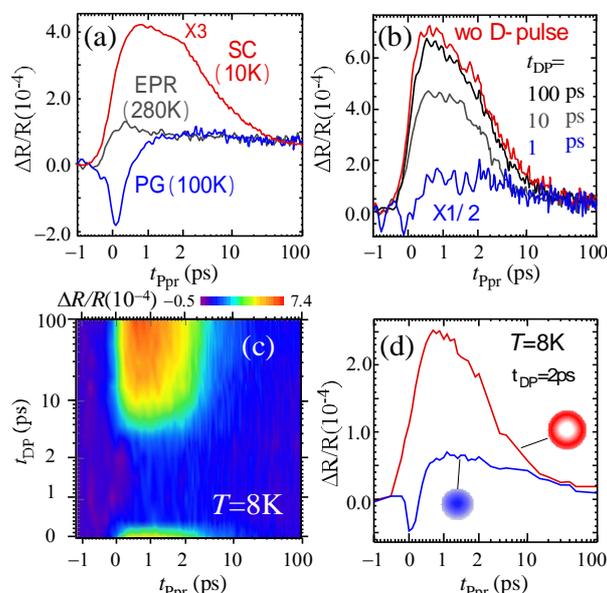


図 2 (a) 代表的な温度で観測される 3 種類の過渡応答: 超伝導 (SC)、擬ギャップ (PG)、金属 (EPR) 応答. (b) クエンチ後の代表的な経過時間 ( $t_{DP}$ ) における過渡応答、および (c) 過渡応答のカラープロット. 光渦および最低次ガウス光を D パルスに用いた場合に観測される過渡応答.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 3件/うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Tsuchiya Satoshi, Kuwae Ryota, Kodama Takumi, Nakamura Yusuke, Kurihara Megumi, Yamamoto Takashi, Naito Toshio, Toda Yasunori	4. 巻 89
2. 論文標題 Electronic Inhomogeneity in Organic Charge Transfer Salt $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{I}$ Probed by Polarized Femtosecond Spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 064712 ~ 064712
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/jpsj.89.064712	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 Nakagawa Koichi, Tsuchiya Satoshi, Taniguchi Hiromi, Toda Yasunori	4. 巻 33
2. 論文標題 Polarized Time-Resolved Spectroscopy of Electronic Phase Separation in a Dimer-Mott Organic Insulator	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Superconductivity and Novel Magnetism	6. 最初と最後の頁 2427 ~ 2433
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10948-019-05385-1	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 Tsuchiya Satoshi, Mertelj Tomaz, Mihailovic Dragan, Yamada Jun-ichi, Toda Yasunori	4. 巻 33
2. 論文標題 Ultrafast Carrier Dynamics in an Organic Superconductor $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{Br}$ by Spectrally Resolved Pump-Probe Spectroscopy	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Superconductivity and Novel Magnetism	6. 最初と最後の頁 2299 ~ 2303
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s10948-019-05382-4	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 該当する
1. 著者名 K. Nakagawa, K. Yamane, R. Morita, Y. Toda	4. 巻 13
2. 論文標題 Laguerre-Gaussian vortex mode generation from astigmatic semiconductor microcavity	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Applied Physics Express	6. 最初と最後の頁 042001 ~ 042001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.35848/1882-0786/ab7bf7	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 S. Tsuchiya, K. Nakagawa, H. Taniguchi, and Y. Toda	4. 巻 88
2. 論文標題 Polarization-resolved Ultrafast Spectroscopy in an Organic Mott Insulator -(BEDT-TTF) <sub>2</sub> Cu[N(CN) <sub>2</sub> ]Cl	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of the Physical Society of Japan	6. 最初と最後の頁 074706 ~ 074706
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSJ.88.074706	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 M. Suzuki, K. Yamane, K. Oka, Y. Toda, R. Morita	4. 巻 9
2. 論文標題 Comprehensive quantitative analysis of vector beam states based on vector field reconstruction	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 1-14
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-019-46390-7	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 Toda Y., Tsuchiya S., Oda M., Kurosawa T., Katsumata S., Naseska M., Mertelj T., Mihailovic D.	4. 巻 104
2. 論文標題 Ultrafast transient reflectivity measurements of optimally doped Bi <sub>2</sub> +xSr <sub>2</sub> -xCu <sub>2</sub> O <sub>8+d</sub> with disorder	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 94507
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.094507	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 Tsuchiya S., Taniguchi H., Yamada J., Toda Y., Mihailovic D., Mertelj T.	4. 巻 104
2. 論文標題 Ultrafast dynamics of Mott-state quench and formation in strongly correlated BEDT-TTF molecular conductors observed by three-pulse pump probe spectroscopy	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 115152
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevB.104.115152	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 Nakagawa K., Sato T., Tsuchiya S., Yamada J., Toda Y.	4. 巻 136
2. 論文標題 Enhancement of polarization anisotropy in ultrafast carrier dynamics by intramolecular excitation in the organic conductor $-(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Europhysics Letters	6. 最初と最後の頁 57001
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1209/0295-5075/ac4c02	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 -

[学会発表] 計14件(うち招待講演 3件/うち国際学会 5件)

1. 発表者名 土屋 聡, Tomaz Mertelj, Dragan Mihailovic, 谷口弘三、山田順一、戸田泰則
2. 発表標題 3パルスポンブプロープ分光で探る有機分子結晶における非平衡下でのモット絶縁相形成
3. 学会等名 第75回日本物理学会年次大会 17aA33-6
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 仲川 幸輝、山根 啓作、森田 隆二、戸田 泰則
2. 発表標題 高次横モード光励起を用いた面発光レーザーの光渦発振特性
3. 学会等名 第55回応用物理学会北海道支部 / 第16回日本光学会北海道地区合同学術講演会 A-21
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Y. Toda, S. Tsuchiya, S. Katsumata, M. Oda, I. Madan, T. Mertelj, D. Mihailovic
2. 発表標題 Optical time-resolved studies of Bi-based cuprates with out-of-plane disorder
3. 学会等名 Superstripes 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Toda, S. Tsuchiya, S. Katsumata, M. Oda, I. Madan, T. Mertelj, D. Mihailovic
2. 発表標題 Ultrafast transient reflectivity measurements of optimally-doped Bi2212 with disorder
3. 学会等名 Electron Correlation in Superconductors and Nanostructures (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Y. Toda
2. 発表標題 Vortex mode generation from astigmatic semiconductor microcavity
3. 学会等名 Seminar of the Department of complex matter (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 土屋聡、桑江良太、児玉匠、戸田泰則、中村祐介、栗原芽来美、山本貴、内藤俊雄
2. 発表標題 時間分解分光による $k$ -(BEDT-TTF) $2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]$ Iにおける不均一な電子状態の観測
3. 学会等名 日本物理学会2019年秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yasunori Toda
2. 発表標題 Systematic study of photoinduced quasiparticle dynamics in Bi-based cuprates with out-of-plane disorder
3. 学会等名 International Conference on Low-Energy Electrodynamics in Solids(Online, June 28th--July 8th, 2021). (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yasunori Toda
2. 発表標題 Optical vortex generation and control in rotationally symmetry-breaking microcavities
3. 学会等名 International Conference on Quantum Liquid Crystals 2021(Online, May 11-13, 2021). (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 秋葉俊宏, 土屋聡, 戸田泰則, 黒沢徹, 小田研, トマーシュ マテリ, ドラガン ミハイロピッチ
2. 発表標題 ディスオーダーを持つBi系高温超伝導体の光誘起準粒子ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会 (オンライン)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 戸田泰則
2. 発表標題 光波の空間構造を利用した物性探索
3. 学会等名 第38回プラズマ・核融合学会 年会シンポジウム (オンライン)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 永田憲正、土屋聡、谷口弘三、戸田 泰則
2. 発表標題 有機伝導体b-(BEDT-TTF)2I3における光誘起金属-絶縁体相分離の探査
3. 学会等名 第57回応用物理学会北海道支部 / 第18回日本光学会北海道地区合同学術講演会(オンライン)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 秋葉 俊宏、土屋 聡、戸田 泰則、黒沢 徹、小田 研、 トマーシュ マテリ、ドラガン ミハイロビッチ
2. 発表標題 ナローギャップ銅酸化物高温超伝導体Bi2201の光誘起準粒子ダイナミクス
3. 学会等名 第57回応用物理学会北海道支部 / 第18回日本光学会北海道地区合同学術講演会(オンライン)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 秋葉 俊宏、土屋 聡、戸田 泰則、黒澤 徹、小田 研
2. 発表標題 銅酸化物高温超伝導体Bi2201のコヒーレントクエンチ分光
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会 (ハイブリッド, 青山大学)
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 戸田 泰則、山岡 利盛、土屋 聡、山根 啓作、森田 隆二、小田 研
2. 発表標題 光渦バルスを用いた超伝導コヒーレントクエンチの実現
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会 (ハイブリッド, 青山大学)
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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
研究 分担 者	小田 研	北海道大学・理学研究院・教授	
	(Oda Migaku)		
	(70204211)	(10101)	

6. 研究組織（つづき）

	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
研究 分 担 者	土屋 聡  (Tsuchiya Satoshi)  (80597633)	北海道大学・工学研究院・助教    (10101)	

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			
スロベニア	Jozef Stefan Institute			