

令和 3 年 5 月 31 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K14625

研究課題名（和文）中赤外光・テラヘルツ光を用いた鉄系超伝導体の光誘起超伝導の研究

研究課題名（英文）Light induced superconductivity in iron-based superconductors by using mid-infrared and terahertz light

研究代表者

吉川 尚孝 (Yoshikawa, Naotaka)

東京大学・大学院理学系研究科（理学部）・助教

研究者番号：20819669

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）：本研究では、光の照射によって鉄系超伝導体の超伝導を転移温度以上で発現する、光誘起超伝導の観測を目標として実験研究を行った。超伝導と電子ネマティック相を示すセレン化鉄、およびそのセレンを一部テルルに置換した試料を用いて光励起状態をテラヘルツ分光によって調べた。その結果、テルル置換のセレン化鉄薄膜の超伝導状態において、近赤外の光の照射によって超伝導が増強する振る舞いが、テラヘルツ光学伝導度測定と第3高調波発生の実験によって観測された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

学術的な意義として、本研究で観測された光誘起超伝導増強は、鉄系超伝導に特徴的な強いバンド間相互作用を光で変調することに由来すると考えており、これは光による鉄系超伝導体の超伝導の制御につながるだけでなく、鉄系超伝導体の超伝導発現機構についての重要な知見となる可能性がある。また、パルスの光による超伝導状態の変化は、1兆分の1秒の時間スケールで起こり、超高速なスイッチングデバイスなどへの応用を含めた展開が期待される。

研究成果の概要（英文）：In this project, we performed terahertz spectroscopy to find light-induced superconductivity in iron-based superconductors. Our experiment of terahertz optical conductivity and terahertz third harmonic generation revealed the light-induced enhancement of superconductivity in iron selenide thin film at its superconducting phase.

研究分野：光物性

キーワード：テラヘルツ分光 光誘起相転移 鉄系超伝導

1. 研究開始当初の背景

光照射によって電気伝導や磁性などの物性を変化させる現象を「光誘起相転移」と呼び、光科学の分野の中心的な課題の一つであり続けている。光照射による物性の制御、または熱平衡の相図には現れない新奇な非平衡状態の発見を目標に研究が行われ、実際に、金属-絶縁体転移、磁性や軌道秩序の制御といった現象が報告されて強いインパクトを残してきた。しかし、照射光として光子エネルギー 1 eV (温度に換算すると約 $10,000\text{ K}$) 以上の近赤外～可視光を用いると、より低いエネルギー ($1\text{ meV}\sim 0.1\text{ eV}$ 程度) に現れる超伝導ギャップなどの準粒子ギャップ、格子振動の素励起であるフォノン、スピンの素励起であるマグノン、電荷密度波などの集団励起モードなどは一様に励起される。このような状況では、電子系は高いエネルギー状態に励起され、格子系との散乱過程を介して物質はいわば無秩序に温められてしまう。近年、光子エネルギーに換算すると $1\text{ meV}\sim 0.1\text{ eV}$ 程度に対応するテラヘルツ～中赤外の周波数領域の光源や分光手法がめざましい発展を遂げたことで、電子や格子、準粒子や電荷秩序等の選択励起の可能性が広がってきた。テラヘルツ光～中赤外光の励起を用いて、例えば複数の秩序が競合して存在するような物質系において一方の秩序相を融解することで他方の秩序相を増強する、というような光励起による秩序状態の形成あるいは低温相への転移といった新奇な現象が期待される。実際に銅酸化物高温超伝導体などでは光によって転移温度以上で超伝導の兆候が現れる光誘起超伝導が報告されており、上記のような光による電子相制御が進められている。

2. 研究の目的

本研究では、鉄系超伝導体を対象に光照射による「光誘起超伝導」の実現を目指す。主な研究対象物質は、超伝導相に加えて電子の軌道秩序(電子ネマティック相)を有し、電子ポケットとホールポケットからなる特徴的なフェルミ面を持つ鉄系カルコゲナイド超伝導体 FeSe を用いる。中赤外光によって電子遷移やフォノンを選択的に励起することでフェルミ面の動的変調を誘起し、超伝導に敏感なテラヘルツ分光を用いて光励起非平衡状態の過渡応答を測定することで光誘起超伝導を観測する。中赤外光・テラヘルツ光領域の低エネルギーの光を用いた超高速分光を駆使して電子相制御の研究を進めることで、軌道秩序が超伝導と競合あるいは共存するという相関が明らかになり、鉄系超伝導の基底状態・発現機構の解明につながる上に、より一般的な光誘起超伝導の実現やメカニズムに関する重要な知見が得られると期待される。

3. 研究の方法

本研究は、超伝導と競合して電子ネマティック相を示す鉄カルコゲナイド超伝導体 FeSe、および Se の一部を Te に置換した $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ を対象として研究を進めた。FeSe はバルクで超伝導転移温度 $T_c=9\text{ K}$ を示す鉄系超伝導体であり、 T_c より高温(およそ 90 K) に格子系の構造相転移および電子の回転対称性の破れを伴うネマティック相転移を示す。バンド計算や角度分解光電子分光 (ARPES) による電子バンド構造の研究が明らかにしてきたことには、FeSe のフェルミ面はブリュアンゾーンの点中心のホールポケットと M 点付近の電子ポケットから構成されている。超伝導相ではそれぞれのフェルミ面にテラヘルツ周波数程度の超伝導ギャップが開き、マルチバンド超伝導を示す。一方、ネマティック相では回転対称性の破れに伴うバンド分裂の結果、M 点まわりのフェルミ面直下にディラック電子的な線形分散構造が生じ、散乱レートがテラヘルツ程度と予想されるコヒーレントなキャリアが現れる。この性質に着目して本研究ではテラヘルツ分光を FeSe の物性のプローブとして用いる。そのためまず平衡状態のテラヘルツ分光およびテラヘルツ磁気光学分光を行い、FeSe の超伝導相・ネマティック相のテラヘルツ光学応答を明らかにする。

平衡状態のテラヘルツ光学応答を理解した上で、赤外光励起による非平衡状態の過渡応答を調べる。赤外光の照射下でテラヘルツ光学伝導度を測定し、電子状態の変化を観測する。また、非線形テラヘルツ分光によって可能になった超伝導体のヒッグスモード分光も有効なプローブである。ヒッグスモードは、超伝導体の秩序パラメータの振幅方向のゆらぎに相当する集団励起であり、超伝導を担う電子対の密度の振動に相当し非平衡状態の超伝導秩序の直接的なプローブとして期待できる。

4. 研究成果

(1) テラヘルツ磁気光学分光による FeSe 薄膜における伝導電子の性質の解明

本研究の初期段階として、FeSe 薄膜のテラヘルツ磁気光学分光を行った。FeSe とその類似物質の伝導特性は、電子的な伝導キャリアと正孔的な伝導キャリアの両方からなり、それらの寄与を区別して性質を決定するには磁気光学分光が有効である。試料垂直方向に磁場を印加した FeSe 薄膜によるテラヘルツ波の偏光回転および楕円率の変化を測定することで、テラヘルツ周波数領域(光子エネルギーにして meV)の縦伝導度、ホール伝導度が求まる。得られた伝導度スペクトルは電子とホールの2種類のキャリアを仮定したドルーデモデルでよく再現し、それぞれの有効質量・キャリア密度・散乱時間を独立に決定することができた。温度依

存性を調べると、ネマティック転移に伴うバンド構造の変化を反映して、キャリア密度に特徴的な変化が現れることが明らかになった。

(2) 超伝導状態のテラヘルツ分光と光励起による超伝導増強

FeSe および $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$ の薄膜試料のテラヘルツ周波数領域の光学伝導度を、超伝導転移温度以下を含めて測定した。超伝導状態においては伝導度実部の減少が見られ、虚部には周波数に反比例して発散的な振る舞いが観測された。この光学伝導度は超伝導状態の特徴である。その上で近赤外光励起下でのテラヘルツ光学伝導度の変化を調べると、超伝導転移温度以下において発散的な伝導度虚部が増加するという、超伝導が増強する兆候が見られた。超伝導の増強は 1 ps 程度で立ち上がり、数 ps 後には熱化して高温の状態と同じスペクトルが得られた。一方、超伝導転移温度以上で同様の実験を行うと、今回の測定の範囲では超伝導が発現するといった兆候は観測されなかった。

(3) テラヘルツ第 3 高調波発生

観測された超伝導増強の振る舞いをより詳しく調べるため、高強度テラヘルツ波を用いた第 3 高調波発生の実験に取り組んだ。まず、超伝導ギャップエネルギーに近い光子エネルギーを持つ高強度のテラヘルツ波を用いて第 3 高調波発生を測定すると、超伝導転移温度以下で顕著に強度が増加する様子が観測された。これはテラヘルツ第 3 高調波の測定によって $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$ における超伝導秩序をプローブできることを示唆している。そこで、光学伝導度測定で超伝導増強の兆候が見られた近赤外光照射下においてもテラヘルツ第 3 高調波を測定すると、照射直後にその強度が増大し、その後ほぼ消失することを見出した。このことから近赤外光励起によって超伝導が瞬間的に増強し、その後金属的な高温状態へと移り変わったと考えられる。これらの実験で用いた近赤外励起光は、物質のバンド間遷移のエネルギーより十分大きく、電子的な励起が支配的であると考えられる。バンド間遷移によってフェルミ面の占有が変化することで、鉄系超伝導において重要な役割を担うバンド間相互作用が変調を受け、超伝導が増強したのではないかと考えている。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yoshikawa Naotaka, Takayama Masayuki, Shikama Naoki, Ishikawa Tomoya, Nabeshima Fuyuki, Maeda Atsutaka, Shimano Ryo	4. 巻 100
2. 論文標題 Charge carrier dynamics of FeSe thin film investigated by terahertz magneto-optical spectroscopy	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 35110
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevB.100.035110	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 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件/うち国際学会 3件）

1. 発表者名 Kazuki Isoyama, Naotaka Yoshikawa, Keisuke Tomita, Naoki Shikama, Tomoya Ishikawa, Fuyuki Nabeshima, Atsutaka Maeda, Ryo Shimano
2. 発表標題 Mid-infrared Pulse Induced Nonequilibrium Dynamics in FeSe Thin Film
3. 学会等名 2019 CIFAR Quantum Materials Summer School (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Yoshikawa
2. 発表標題 Higgs mode in iron-based superconductor FeSe _{0.5} Te _{0.5}
3. 学会等名 International Conference on Ultrafast and Nonlinear Dynamics of Quantum Materials (Paris Ultrafast 2019) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Yoshikawa, K. Isoyama, K. Tomita, N. Shikama, T. Ishikawa, F. Nabeshima, A. Maeda, and R. Shimano
2. 発表標題 Nonequilibrium dynamics of iron-based superconductor FeSe induced by mid-infrared light excitation
3. 学会等名 Spectroscopies in Novel Superconductors (SNS 2019) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 吉川尚孝, 高山正行, 色摩直樹, 石川智也, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮
2. 発表標題 FeSe薄膜のテラヘルツ磁気光学分光
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 磯山和基, 吉川尚孝, Wong Jeremy, 勝見恒太, 色摩直樹, 崎下雄稀, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮
2. 発表標題 テラヘルツ波で見る鉄系超伝導体 FeSe _{0.5} Te _{0.5} の光励起状態
3. 学会等名 第11回低温科学研究センター研究交流会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 磯山和基, 吉川尚孝, Wong Jeremy, 勝見恒太, 色摩直樹, 崎下雄稀, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮
2. 発表標題 光励起された鉄系超伝導体FeSe _{0.5} Te _{0.5} からのテラヘルツ第3高調波発生
3. 学会等名 日本物理学会第75回年次大会
4. 発表年 2019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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------