

令和 5 年 5 月 29 日現在

機関番号：17102

研究種目：若手研究

研究期間：2020～2022

課題番号：20K14408

研究課題名（和文）電流注入法により導入した時間・空間反転対称性の破れによる非相反電荷輸送現象の観測

研究課題名（英文）Observation of nonreciprocal charge transport phenomena caused by current-induced breaking of the time-reversal and space-inversion symmetries

研究代表者

中村 祥子（Nakamura, Sachiko）

九州大学・理学研究院・准教授

研究者番号：00726317

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000 円

研究成果の概要（和文）：超伝導電流は、電子の非散逸的な流れであり、時間・空間反転対称性を破る。そのため、超伝導電流注入下の超伝導体は、反転対称性の破れに由来する特殊な電磁応答である非相反電荷輸送現象を示す。

本研究では、超伝導体に対して、(1)直流電流を直接注入する、(2)テラヘルツ光パルスで過渡的に電流を誘起する、(3)転移温度以下で磁場を印加して渦状の遮蔽電流を流す、の3つの方法で超流動電流を流しながら狭帯域の高強度テラヘルツ波パルスを照射し、その透過波を観測することで、電流注入下の超伝導体による非線形光学応答を研究した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

電流は一般に時間反転対称性を破る。通常の散逸的な電流においては、不可逆性（irreversibility）という意味で対称性が破れるが、超伝導電流の場合は、磁場と同様な平衡場の1種として、文字どおりの時間反転対称性（time-reversal symmetry）を破ると期待される。

本研究では、空間反転対称性が破れた物質が磁場下で発生する第2高調波発生が、超伝導電流存在下の超伝導体によっても発生することを実験的に示し、上記の解釈を提案した。加えて、光学測定時に超伝導電流を注入する手法を複数実証し、現在理論研究が進められている超伝導電流が誘起する相転移や特異な光学応答の測定に向けて道を拓いた。

研究成果の概要（英文）：Supercurrents are dissipationless flows of superconducting electrons that break both time-reversal and space-inversion symmetries. Therefore, superconductors under supercurrent injection exhibit specific electromagnetic responses known as nonreciprocal transport phenomena, resulting from the symmetry breaking.

In this project, we investigated nonlinear optical responses of superconductors by observing the transmitted terahertz (THz) pulses for high-intensity and narrowband THz irradiations under three methods of supercurrent injection: (1) direct injection of a DC supercurrent, (2) dynamical induction of a transient current using THz pulses, and (3) static induction of a shielding current using weak magnetic fields.

研究分野：物性実験

キーワード：超伝導電流 テラヘルツ 非相反応答 反転対称性の破れ 磁束量子

## 1. 研究開始当初の背景

反転対称性の破れは、スピン軌道相互作用や磁気秩序、偶奇性の異なる外場と応答の結合などを引き起こすので、エキゾチックな量子相の起源の候補である。本研究で対象とした非相反電荷輸送現象は、電流の流れる「向き」により伝導度に変化する現象で、空間・時間反転対称性が同時に破れているとき特異的に生じるので、反転対称性の破れのプローブとして期待されている。この現象は、整流効果や第2高調波発生(SHG)として検出できる。研究開始前の2017年には、空間反転対称性が破れた超伝導体において、転移温度付近で、極めて巨大なSHGが観測され、超伝導体における非相反電荷輸送現象が注目を集めていた。

超伝導体の電気伝導測定では、転移温度以下で電気抵抗が消失し、SHGも消失してしまう。しかし、テラヘルツ帯なら、転移温度以下でも有限の抵抗を示すので、転移温度以下のバルクの超伝導体に対してもSHGが観測できると期待される。また、当時は、超伝導体に直流の大電流を注入しながらテラヘルツ光学測定を行うための技術が完成したところで、その電流を用いて空間・時間反転対称性を破れば、対称性の破れていない超伝導体からもテラヘルツ帯のSHG(THz-SHG)を引き出せると考え、本研究を開始した。

## 2. 研究の目的

本研究では、超伝導体において、超伝導電流の「流れの場」が空間・時間反転対称性を破ることで引き起こされる非相反電荷輸送現象THz-SHGを観測することを目的とした。

## 3. 研究の方法

本研究では、超伝導電流が流れる超伝導薄膜に、高強度・狭帯域のマルチサイクルテラヘルツ波パルス照射し、透過波の電場波形を観測した。超伝導電流は、(1)電極を介して直流電流を直接注入する、(2)テラヘルツ波パルス電場によって自然に誘起される、(3)転移温度以下で薄膜に面直磁場を印加することで円環状の遮蔽電流を誘起する、の3つの方法で導入した。

## 4. 研究成果

本研究では、超伝導電流が流れている超伝導体に対するTHz-SHG測定の手法を確立し、また、観測されたTHz-SHGについて起源を検証した。

### (1) 直流電流注入下のNbN薄膜による非相反第2高調波発生

電流は一般に時間・空間反転対称性を破るが、中でも、超伝導電流は、散逸を伴わないので、時間を反転しても元に戻らない不可逆性(irreversibility)としてではなく、磁場や磁化と同様、時間を反転すると向きが完全に反転するという意味での時間反転対称性の破れを伴う。これは、超伝導電流の流れている状態は、非平衡状態ではなく、平衡状態とみなせるということである。本研究では、4ミリ角、25nm厚の超伝導NbN薄膜に、ゼロ抵抗下で数アンペアの大電流を流し、高強度・狭帯域のテラヘルツ波パルス照射して、透過波の電場波形を観測したところ、巨大な第2高調波(THz-SHG)を観測した。直流電流の極性を反転するとTHz-SHGの偏光が反転するので、超伝導電流が時間反転対称性を破ることによる非相反応答であることがわかった。

このTHz-SHGは、超伝導薄膜に永久磁石を用いて1Oe程度の面直磁場をかけながら冷却すると増大することから、ミクロスコピックには磁束量子に起因することが判明した。SHG強度の温度依存性には共鳴が観測された。ピン止めされた磁束量子が、直流電流によって傾いたピン止めポテンシャルの中を、テラヘルツ電場に誘起された交流電流からローレンツ力を受けて運動し、電場を放射するモデルを立てると、共鳴特性から磁束量子の質量・動粘性係数を決定することができる。求められた質量は、磁束コアの理論的な質量(Suhl's mass)とオーダーで一致した。その質量・粘性に加え、実測したテラヘルツ伝導度やピン止めポテンシャル深さ、試料の厚さ、入射テラヘルツ強度を用いて計算すると、観測されたTHz-SHGの強度を定量的に説明できた。磁束量子の質量は一般に測定が困難な物理量であり、特に、磁束間相互作用に影響されない磁束コアの裸の質量の観測に成功したのは、本研究が初めてである。これは、磁束コアの運動方程式で質量を含む加速度項の寄与が無視できなくなる高周波数帯(テラヘルツ帯)で、かつ磁束量子以外の応答がほとんど存在しない周波数(第2高調波)の測定を行ったおかげだと考えられる。

### (2) 超伝導体薄膜による相反的な第2高調波発生

非相反電荷輸送現象は、流れの「向き」によって伝導度に変化する現象である。印加する電圧と電流応答として考えると、これは、印加する電圧を反転させたときに電流応答が完全には反転しない(反転しない成分が存在する)という意味である。THz-SHGの測定において、そのような非相反成分を抽出するには、透過テラヘルツ波の電場波形に、入射波の偏光を反転させたときの電場波形を足し合わせれば良い。(1)では直流電流の向き、(3)では磁場すなわち遮蔽電流の向きを反転させることで非相反成分を抽出できるが、入射波の偏光反転でも同様にTHz-SHGを抽出できることを確認した。これらは、外部から電流を注入もしくは誘起して、明示的に時間・空間反転対称性を破った系である。

そのように明示的に電流を流さなくても、超伝導薄膜に高強度・狭帯域のテラヘルツ波パルス

を照射するだけで、透過波のパワースペクトラムに、入射波の2倍の周波数の応答が観測されることがあった。この応答は、偏光反転の方法では抽出できない、すなわち非相反性を示さないもので、以下、相反 SHG と呼ぶ。相反 SHG は、ゼロ抵抗になる超伝導転移温度以下で現れ、入射波に平行な偏光を持ち、入射波のパルス幅が短いほど顕著に表れる。これらは、入射波が対称性の破れを引き起こすと考えると自然なふるまいである。先行研究を調べると、入射波の電場周期相当の緩和時間を持つ超伝導体（クリーンな超伝導体）においては、入射波によって非対称な超伝導電流が誘起され、SHG を誘発するという実験結果が複数報告されており、我々が観測したのも、それに準ずる応答と判断している。一方、転移温度直下のダーティな超伝導体にも観測されたり、先行研究とは異なる入射強度依存性や、温度依存性のピークが観測されたりもした。そのため、相反 SHG を引き起こしている微視的な機構は、物質によって異なる可能性が高いと考えられる。

### (3) 遮蔽電流存在下の $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$ 薄膜による非相反第2高調波発生

転移温度以下の第II種超伝導体に対して磁場を印加すると、超伝導体の外側から一定の密度勾配で磁束量子が侵入し、それに伴い円環状の遮蔽電流が発生する。磁場を減らすと、外側から磁束量子が抜けていくため、外側から順に、逆向きの遮蔽電流が流れる。そこに高強度・狭帯域のテラヘルツ波を照射すると、この遮蔽電流と磁束量子による非相反 THz-SHG が期待される。

そこで、超伝導  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  薄膜に、低温で 10 Oe 程度の面直磁場を印加し、高強度・狭帯域のテラヘルツ波パルス照射したところ、透過波に非相反 THz-SHG が観測された。薄膜の中で、テラヘルツ波を集光する場所を変えながら THz-SHG の偏光依存性を測定したところ、円環状の遮蔽電流に矛盾しない場所依存性が観測された。直流電流存在下の THz-SHG 測定(1)では、電流と入射 THz 波の偏光、SHG の偏光の全てが平行な場合について測定していたが、各場所で詳細に入射偏光・SHG 偏光を調べたところ、電流と入射 THz 波の偏光が直交する条件下でも、電流と平行な偏光の SHG が、全て平行な場合の約 1/10 の強度で観測された。そこで、その条件下での磁束量子の運動を、磁束量子が放射するテラヘルツ電場から可視化したところ、磁束量子は放物線状の運動を行っていることが判明した。これは、非調和的な2次元のピン止めポテンシャルに対して、遮蔽電流に傾けられた方向と直交する方向に磁束量子を大きく振動させると考えると、ポテンシャルの極小点に沿うように磁束量子が運動するので、振動と直交する方向に2倍の周波数で運動することになり、THz-SHG を発生させているというように説明できる。

磁束量子の粘性や質量は、磁束コア内の準粒子散乱による散逸に大きく依存すると考えられ、dirty な NbN と clean な  $\text{FeSe}_{0.5}\text{Te}_{0.5}$  では、後者の方が数桁大きいことが期待される。しかし、THz-SHG の振幅から磁束量子の粘性を求めると、NbN と同じオーダーの値が得られた。この結果は、磁束コアが極めて高速・高周波数で運動する THz-SHG の測定条件下においては、磁束コア内の準粒子準位が、磁束コアのエネルギー散逸にほとんど寄与しないことを示唆している。超高速で運動する磁束コアは、近年 DC 駆動で実現されたが、運動している最中の磁束コアの状態を知るには極めて高速の測定が必要になるため、そのダイナミクスの詳細は未解明である。非接触かつ超高速に磁束コアを駆動しダイナミクスを観測できる THz-SHG は、超高速で運動する磁束コアという極めて非平衡な状態についての新たなプローブとなると期待される。

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 Nakamura Sachiko, Katsumi Kota, Terai Hiroataka, Shimano Ryo	4. 巻 125
2. 論文標題 Nonreciprocal Terahertz Second-Harmonic Generation in Superconducting NbN under Supercurrent Injection	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Physical Review Letters	6. 最初と最後の頁 097004-1~6
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1103/PhysRevLett.125.097004	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11件（うち招待講演 3件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 松本陽行, 中村祥子, 小川浩生, 小林友輝, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮
2. 発表標題 鉄系超伝導体FeSeのネマティック超伝導状態におけるテラヘルツ第三高調波発生
3. 学会等名 第14回低温科学研究センター研究交流会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 中村 祥子
2. 発表標題 テラヘルツ非線形振動子としての磁束量子
3. 学会等名 第28回 渦糸物理ワークショップ（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 H. Matsumoto, S. Nakamura, H. Ogawa, T. Kobayashi, N. Shikama, F. Nabeshima, A. Maeda, R. Shimano
2. 発表標題 Collective modes in iron chalcogenide superconductors FeSe <sub>1-x</sub> Te <sub>x</sub> studied by terahertz third-harmonic generation
3. 学会等名 Spectroscopies of Novel Superconductors 2022（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 中村祥子, 松本陽行, 小川浩生, 小林友輝, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮
2. 発表標題 超伝導遮蔽電流存在下のFeSe <sub>0.5</sub> Te <sub>0.5</sub> 薄膜によるテラヘルツ第2高調波発生
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松本陽行, 中村祥子, 小川浩生, 小林友輝, 色摩直樹, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮
2. 発表標題 FeSe <sub>0.5</sub> Te <sub>0.5</sub> 薄膜におけるテラヘルツ第3高調波発生
3. 学会等名 日本物理学会2022年秋季大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西澤邦雄, 中村祥子, 松岡秀樹, 武藏摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮
2. 発表標題 3R-TaSe <sub>2</sub> 薄膜超伝導相からのテラヘルツ第二高調波発生
3. 学会等名 日本物理学会第77回年次大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 西澤邦雄, 中村祥子, 松岡秀樹, 武藏摩紀, 中野匡規, 岩佐義宏, 島野亮
2. 発表標題 超伝導体3R-TaSe <sub>2</sub> のテラヘルツ第二高調波発生
3. 学会等名 第13回低温科学研究センター研究交流会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Sachiko Nakamura
2. 発表標題 Vortex dynamics studied by nonreciprocal terahertz responses
3. 学会等名 The 34th International Symposium on Superconductivity (ISS2021) (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村 祥子
2. 発表標題 非相反テラヘルツ応答から見る磁束量子ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会2021年秋季大会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村祥子, 勝見恒太, 寺井弘高, 島野亮
2. 発表標題 非相反テラヘルツ第2高調波発生から見る超伝導NbNにおける磁束量子ダイナミクス
3. 学会等名 第12回低温科学研究センター研究交流会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 中村祥子, 勝見恒太, 寺井弘高, 島野亮
2. 発表標題 テラヘルツ第2高調波発生から見る超伝導NbNにおける磁束量子ダイナミクス
3. 学会等名 日本物理学会2020年秋季大会
4. 発表年 2020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
---------	---------