

令和元年6月4日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2015～2018

課題番号：15H05452

研究課題名（和文）高強度テラヘルツパルス技術による超伝導体のヒッグスモードの研究

研究課題名（英文）Higgs mode in superconductors studied by intense terahertz pulse technique

研究代表者

松永 隆佑（MATSUNAGA, RYUSUKE）

東京大学・物性研究所・准教授

研究者番号：50615309

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 18,400,000円

研究成果の概要（和文）：超伝導における秩序パラメータの揺らぎに相当する集団励起モード、いわゆるヒッグスモードの性質を、高強度テラヘルツパルスを用いた非線形光学応答を駆使して詳細に調べた。従来型s波超伝導体の非線形テラヘルツ応答にはヒッグスモードが支配的に寄与していることを証明し、BCS平均場近似を用いるとヒッグスモードの寄与を一縷しく過小評価してしまうことを示した。また強い定常電流下においてヒッグスモードが光学活性化し線形応答においても観測されることを示した。さらに銅酸化物高温超伝導体に注目し、d波超伝導のヒッグスモードの観測に成功したほか、非平衡ジョセフソンプラズマ共鳴の解釈について新たな知見を得た。

研究成果の学術的意義や社会的意義

超伝導は素粒子物理と極めて高い類似性を持つことが古くから知られ、その研究の発展は物理学全体に大きな影響を及ぼしてきたが、ヒッグス粒子に相当する集団的振る舞い（ヒッグスモード）は、普遍的現象であるにも関わらずこれまでほとんど調べられていなかった。高強度テラヘルツパルスによる最先端光学測定を用いた我々の研究によって、超伝導ヒッグスモードを観測する実験が実現し、様々な超伝導体においてその性質が明らかになった。

研究成果の概要（英文）：We have investigated the collective excitation mode of order parameter amplitude associated with spontaneous symmetry breaking in superconductor, namely the Higgs mode, by using the state-of-the-art technology of intense terahertz pulse generation. We clarified the dominant contribution of the Higgs mode on nonlinear terahertz response in s-wave superconductor, indicating that the contribution of the Higgs mode is significantly underestimated in the BCS mean-field approximation. Infrared activation of the Higgs mode under strong supercurrent was also observed experimentally. We also succeeded the observation of the Higgs mode in a d-wave superconductor cuprate for the first time and investigated nonequilibrium dynamics of c-axis Josephson plasma resonance in cuprates.

研究分野：光物性

キーワード：光物性 テラヘルツ 超伝導 ヒッグス機構

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

複雑に相互作用し合っている多体系は、温度、圧力、密度などをパラメーターとして様々な秩序だった相を形成し、協同的な振る舞いを示す。この相転移は多くの場合対称性の自発的な破れを伴い、そのとき秩序パラメーターの振幅と位相の揺らぎに相当する 2 種類の集団励起モードが普遍的に現れる。特に超伝導における振幅モードは、素粒子物理におけるヒッグス粒子と高い類似性を持つことが知られているが、これまでほとんど研究が行われていなかった。我々は、高強度テラヘルツパルス技術を駆使して、従来型の s 波超伝導体におけるこの「ヒッグスモード」を観測することに成功し(2013 年、2014 年)、テラヘルツ帯の非線形光学応答を利用した非平衡量子凝縮状態の研究を新たな方向へ展開する筋道を拓くことに成功した。

2. 研究の目的

最先端高強度テラヘルツパルス技術を駆使して、超伝導秩序パラメーターの振動モード、いわゆるヒッグスモードの振る舞いを調べる。低エネルギー領域における強い外場という、従来の分光技術では決してなしえなかった実験手法を駆使することで、非平衡超伝導においていまだ明らかにされていない集団励起の性質を実験的に調べていくことを大きな目的とする。

s 波超伝導を舞台にしてヒッグスモードの性質をより詳細に調べ、対称性の破れた系における非平衡ダイナミクスを明らかにする。非平衡量子凝縮相が示す非自明な振る舞いについて近年盛んに理論研究が行われており、この検証のためには基底状態の性質が BCS 理論によりほぼ解明されている s 波超伝導を舞台にした詳細な実験の継続が必要不可欠である。

さらに、従来型 s 波超伝導体のヒッグスモード観測で培った技術と知見を駆使して、d 波の対称性を持つ銅酸化物高温超伝導体におけるヒッグスモードの振る舞いを調べる。この系の基底状態の性質の解明は依然物性物理学の懸案問題であるが、近年の研究により電荷密度波状態などの他の秩序との共存・競合関係や、 T_c 以上において現れる超伝導前駆現象としての揺らぎの振る舞い、さらに光強励起によって出現する「光誘起超伝導」が大きな注目を集めている。強い THz 波を用いてヒッグスモードのダイナミクスや外場との共鳴現象を調べること、光誘起超伝導の根拠とされるジョセフソンプラズマ共鳴の非平衡ダイナミクスを調べることで、超伝導状態のコヒーレンスの形成と擬ギャップ相の性質について新たな知見を得られることが期待される。

3. 研究の方法

パルス面傾斜法と LiNbO₃ の光整流効果を利用した高強度 THz 波発生技術を用いて高強度 THz パルスを発生させた。この高強度電場あるいは可視光の強励起によって引き起こされる非線形応答を調べるため、各実験目的と各試料に適した実験系を構築した。具体的には、(1) 超伝導体の非線形応答における電場偏光方向に依存した対称性に注目する必要があるため、直線偏光子 3 枚を用いた偏光分解テラヘルツ非線形透過スペクトル測定系を開発した。(2) 銅酸化物超伝導体における超伝導の発達は c 軸方向のジョセフソンプラズマ共鳴によって特徴づけられる。この応答を観測するためには固体単結晶を用いてテラヘルツ反射スペクトルを調べる必要があるため、非平衡下の応答を調べるために光ポンプ-テラヘルツ反射プローブ分光系を開発した。(3) 銅酸化物超伝導体のヒッグスモードを調べるためには従来型 s 波超伝導よりも遥かに強いテラヘルツ電場強度が必要であるため、高強度テラヘルツ電場を解説限界ぎりぎりまで絞り込む必要がある。この狭い領域における非線形応答を調べるためには可視光をプローブとして用いる必要があるため、高強度テラヘルツポンプ-可視光反射プローブ測定系を構築した。

4. 研究成果

(1) 従来型超伝導体の非線形テラヘルツ応答における集団励起の寄与と BCS 近似の破綻

我々は 2014 年に従来型超伝導体 NbN に対してギャップ以下の周波数の強いテラヘルツ電場を入射すると第三高調波が発生すること、これが超伝導特有の集団励起(ヒッグスモード)と光の共鳴効果によるものであることを示した。ただし集団励起と同時に個別励起(電荷揺らぎ)の共鳴も存在しており、BCS 平均場近似の下では集団励起よりもむしろ個別励起の寄与の方が遥かに大きいこともわかってきた。現実には、BCS 近似が良く成り立つとされる従来型超伝導であってもフォノンを介した対形成の遅延相互作用や不純物散乱のように、BCS 平均場近似では無視されてしまう効果が存在する。これらを取り入れた計算では集団励起の方が支配的になることも示されており、超伝導の非線形感受率の計算は多体効果の近似方法に強く依存することが分かってきた。

我々は結晶軸に対する入射電場の偏光依存性を調べることで、対称性から集団励起と個別励起を明確に区別できると考え、理論と実験の両面から研究を進めた。単結晶 NbN に対して偏光分解非線形テラヘルツ透過測定を行うことで、

第三高調波の強度は入射電場偏光と結晶軸の関係に依らずにほぼ一定であること

任意の入射電場偏光において入射電場と第三高調波の偏光は一致していること

を確かめた。この 2 つの実験結果はいずれもテラヘルツ非線形応答において集団励起の寄与の方が個別励起よりも圧倒的に大きいことを意味している。これは超伝導の非線形感受率において BCS 近似が大きく破綻していることを示しており、遅延相互作用や不純物効果まで取り入れた計算を行わなければヒッグスモードの寄与を著しく過小評価してしまうことがわかった。これはさらに従来行われてきた超伝導体のラマン散乱スペクトルで観測される個別励起のピークについても、集団励起の寄与が無視できない可能性を示唆している。

(2) d 波の対称性を持つ銅酸化物超伝導におけるヒッグスモードの観測
s 波の対称性を持つ従来型超伝導に比べると、d 波の対称性を持つ銅酸化物高温超伝導において現れるヒッグスモードは

対称性が低いため複数のヒッグスモード(A_{1g} , A_{2g} , B_{1g} , B_{2g})が出現する

ノードが存在して低エネルギーで個別励起が生じるため、ヒッグスモードが不安定化するなどの違いが予測されている。特にヒッグスモードの不安定化により、秩序パラメーターの振動を観測するのが非常に難しい。そこで我々は単結晶 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ に対して高強度テラヘルツ波が誘起する可視域の非線形応答を調べた。偏光を回転させることで可視域の反射率変化の対称性を調べ、対称性ごとに分類した。個別励起では B_{1g} 対称性の応答が最も強くなるはずであるが、実験では A_{1g} 対称性の応答が最も大きく、これはヒッグスモードの全対称モードによる非線形信号であることを明らかにした。これは d 波超伝導におけるヒッグスモードを初めて観測した実験となり、Physical Review Letters 誌において Editors' suggestion として掲載された。

(3) 銅酸化物超伝導体の非平衡ジョセフソンプラズマ共鳴

銅酸化物高温超伝導体は ab 面内の 2 次元な金属層が c 軸方向に絶縁層を挟んで積層した構造を持ち、転移温度以下では c 軸方向に天然のジョセフソン接合が生じてそのトンネリングによって 3 次元的な超伝導状態が出現する。この c 軸方向へのキャリア伝導によって生じるジョセフソンプラズマ共鳴は、典型的にはテラヘルツ周波数帯に現れ、3 次元的な超伝導の発達を示す重要な応答として知られている。近年では中赤外光や可視光で強く励起した銅酸化物において、転移温度以上でもこのジョセフソンプラズマ共鳴が現れる例が相次いで報告され、非平衡下における光誘起超伝導の可能性を示すものとして大きく興味を持たれている。我々は銅酸化物 La_2CuO_4 に対して近赤外ポンプ-テラヘルツ反射プローブ測定を行い、光で強励起された非平衡状態におけるジョセフソンプラズマ共鳴の変化を詳細に調べた。我々の解析によって、光励起による熱の効果を詳細に取り込んだ解析の重要性が明らかになり、従来の光誘起超伝導の実験の解析で用いられた屈折率の空間変化のモデルは、強い励起の下では正当化できないこと等が明らかになった。

(4) 定常電流下において光学活性化した超伝導ヒッグスモードの観測

これまでの我々の研究によって、超伝導状態の集団励起であるヒッグスモードは線形応答では光と相互作用しないが、高強度テラヘルツ波を用いた非線形応答によって光と相互作用することが明らかになった。一方で、強いテラヘルツ電場を用いなくても、静的な DC の超伝導電流を流した状況下ではヒッグスモードの光吸収が線形応答スペクトルに現れることが近年の理論によって示唆されている。これは DC の電流を与えるベクトルポテンシャルと、テラヘルツ電場のベクトルポテンシャルとの積からなる非線形応答によってヒッグスモードが光と相互作用するというものであり、ヒッグスモードが光と相互作用する非平衡定常状態を実現できる可能性がある。我々は s 波超伝導体 NbN 薄膜を用いて、臨界電流密度に近い強い電流を印加したときその電流方向と平行な偏光のテラヘルツ電場に対してヒッグスモードの周波数で吸収ピークが生じることを実験的に明らかにした。ヒッグスモードを定常状態において赤外活性化することに成功した本研究は、今後様々な超伝導体において集団励起モードを調べることのできる新たな手法として期待される。

5. 主な発表論文等

(雑誌論文) (計 5 件)

Sachiko Nakamura, Yudai Iida, Yuta Murotani, [Ryusuke Matsunaga](#), Hiroataka Terai, and Ryo Shimano, "Infrared activation of Higgs mode by supercurrent injection in a superconductor NbN", Physical Review Letters, in press (2019). (査読有)

<https://arxiv.org/abs/1809.10335>

Kota Katsumi, Naoto Tsuji, Yuki I. Hamada, [Ryusuke Matsunaga](#), John Schneeloch, Ruidan D. Zhong, Genda D. Gu, Hideo Aoki, Yann Gallais, and Ryo Shimano, "Higgs Mode in the d-Wave Superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ Driven by an Intense Terahertz Pulse", Physical Review Letters 120, 117001 (2018). Editors' Suggestion. (査読有)

DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.120.117001>

[Ryusuke Matsunaga](#), Naoto Tsuji, Kazumasa Makise, Hiroataka Terai, Hideo Aoki, and Ryo Shimano, "Polarization-resolved terahertz third-harmonic generation in a superconductor NbN: dominance of Higgs mode beyond the BCS approximation", Physical Review B 96, 020505(R) (2017). (査読有)

DOI: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.96.020505>

[Ryusuke Matsunaga](#) and Ryo Shimano, "Nonlinear terahertz spectroscopy of Higgs mode in s-wave superconductors", Physica Scripta 92, 024003 (2017). (査読有)

<https://iopscience.iop.org/article/10.1088/1402-4896/aa5327/meta>

[Ryusuke Matsunaga](#) and Ryo Shimano, "Higgs mode excitation in superconductors by intense terahertz pulse", Proceedings of SPIE 9835, Ultrafast Bandgap Photonics, 98351G (2016). (査読有)

DOI: <https://doi.org/10.1117/12.2223010>

[学会発表] (計 24 件)

松永隆佑, “高強度テラヘルツ光による超伝導体の非線形応答と集団励起”, レーザー学会学術講演会第 39 回年次大会, 東海大学, 2019 年 1 月 14 日

Ryusuke Matsunaga, “Higgs Amplitude Mode in Superconductors Studied by Nonlinear Terahertz Spectroscopy”, The 31st International Symposium on Superconductivity (ISS2018), Ibaraki, Japan, December 14, 2018

中村祥子, 飯田雄大, 室谷悠太, 松永隆佑, 寺井弘高, 島野亮, “直流電流注入下での s 波超伝導体 NbN の赤外活性ヒッグスモード”, 日本物理学会 2018 年秋季大会, 講演番号 10aA116-8, 同志社大学, 2018 年 9 月 10 日

K. Katsumi, Y. I. Hamada, R. Matsunaga, J. Schneeloch, R. D. Zhong and G. D. Gu, Y. Gallais, and R. Shimano, "Observation of Higgs mode in d-wave superconductor $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ by THz pump-optical probe spectroscopy", International Conference on Low-Energy Electrodynamics in Solids, Marche (Italy), June 24-29th, 2018

丹羽宏彰, 吉川尚孝, 泊開人, 松永隆佑, Dongjoon Song, 永崎洋, 島野亮, “銅酸化物超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ のテラヘルツ帯光励起非平衡ダイナミクス”, 日本物理学会第 73 回年次大会, 講演番号 24pK502-6, 東京理科大学, 2018 年 3 月 24 日

松永隆佑, 辻直人, 牧瀬圭正, 寺井弘高, 青木秀夫, 島野亮, “超伝導体 NbN の偏光分解テラヘルツ第三高調波発生: ヒッグスモードの支配的寄与と BCS 近似の破綻”, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 講演番号 23aB21-7, 岩手大学, 2017 年 9 月 23 日

丹羽宏彰, 泊開人, 松永隆佑, Dongjoon Song, 永崎洋, 島野亮, “テラヘルツ分光による銅酸化物超伝導体 $\text{La}_{1.6-x}\text{Nd}_{0.4}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の光励起ダイナミクスの観測”, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 講演番号 23aB21-8, 岩手大学, 2017 年 9 月 23 日

富田圭祐, 松永隆佑, 川合将敬, 浅見大亮, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮, “テラヘルツポンブプローブ分光で探る Fe(Se,Te) 薄膜の超伝導およびネマティック秩序”, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 講演番号 23pPSA-71, 岩手大学, 2017 年 9 月 23 日

飯田雄大, 松永隆佑, 中村祥子, 寺井弘高, 島野亮, “テラヘルツポンブプローブ分光で探る Fe(Se,Te) 薄膜の超伝導およびネマティック秩序”, 日本物理学会 2017 年秋季大会, 講演番号 23pPSA-73, 岩手大学, 2017 年 9 月 23 日

K. Tomita, R. Matsunaga, M. Kawai, D. Asami, F. Nabeshima, A. Maeda, and R. Shimano, "Terahertz pump-probe spectroscopy of thin film $\text{FeSe}_{1-x}\text{Te}_x$ ", 6th International Conference on Photoinduced Phase Transitions, PS6, Sendai (Japan), June 5th, 2017

K. Katsumi, Y. I. Hamada, R. Matsunaga, J. Schneeloch, R. D. Zhong and G. D. Gu, Y. Gallais, and R. Shimano, "Exploring THz-induced dynamics of a d-wave superconducting condensate in the cuprate $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ ", 6th International Conference on Photoinduced Phase Transitions, PS5, Sendai (Japan), June 5th, 2017

泊開人, 瀧田裕紀, 松永隆佑, Dongjoon Song, 永崎洋, 島野亮, “高温超伝導体 $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の光励起非平衡状態におけるジョセフソンプラズマの観測”, 日本物理学会第 72 回年次大会, 講演番号 18aB14-11, 大阪大学, 2017 年 3 月 18 日

勝見恒太, 瀧田裕紀, 松永隆佑, R.D. Zhong, J. Schneeloch, G. D. Gu, Y. Gallais, 島野亮, “ $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+x}$ 単結晶におけるテラヘルツ波励起非平衡ダイナミクス”, 日本物理学会第 72 回年次大会, 講演番号 18aB14-12, 大阪大学, 2017 年 3 月 18 日

富田圭祐, 松永隆佑, 川合将敬, 浅見大亮, 鍋島冬樹, 前田京剛, 島野亮, “THz ポンププローブ分光による Fe(Se,Te) 薄膜における超伝導ゆらぎの観測”, 日本物理学会第 72 回年次大会, 講演番号 17aK31-6, 大阪大学, 2017 年 3 月 17 日

Ryusuke Matsunaga, "Collective Higgs amplitude mode in superconductors studied by strong terahertz pulse", International Conference on Dynamical Processes in Excited States of Solids, Paris (France), July 21th, 2016

Ryusuke Matsunaga and Ryo Shimano, "Higgs amplitude mode in superconductors studied by nonlinear terahertz spectroscopy", Spectroscopies in Novel Superconductors, Stuttgart (Germany), June 21th, 2016

Yuki I. Hamada, Keisuke Tomita, Kaito Tomari, Ryusuke Matsunaga, Lee Jiang Hao Kegan, Setsuko Tajima, and Ryo Shimano, "Terahertz nonlinear response in an optimally-doped $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ single crystal", Low Energy Electrodynamics in Solids (LEES) 2016, P-8, Shiga, (Japan), May 30th, 2016

Kaito Tomari, Yuki I. Hamada, Ryusuke Matsunaga, Hiroshi Eisaki, and Ryo Shimano, "Photoexcited nonequilibrium dynamics of c-axis Josephson plasma in $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ ", Low Energy Electrodynamics in Solids (LEES) 2016, P-7, Shiga, (Japan), May 30th, 2016

Ryusuke Matsunaga and Ryo Shimano, "Higgs mode excitation in superconductors by intense terahertz pulse", SPIE DCS Defense+Security: Ultrafast Bandgap Photonics, Baltimore (USA), April 20th, 2016

室谷悠太, 高山正行, 松永隆佑, 関口文哉, 金昌秀, 秋山英文, Loren N. Pfeiffer, Ken W. West, 島野亮, “光ポンプ テラヘルツポンプ 光プローブ分光による励起子モット転移ダイナミクスの観

- 測”、日本物理学会 2016 年秋季大会、講演番号 16aAC-5、金沢大学、2016 年 9 月 16 日
- 21 瀧田裕紀、富田圭祐、泊開人、松永隆佑、李祈願、宮坂茂樹、田島節子、島野亮、“ $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ 単結晶におけるテラヘルツ波パルス誘起超高速コヒーレント非線形光学応答”、日本物理学会 2016 年秋季大会、講演番号 14aAL-5、金沢大学、2016 年 9 月 14 日
 - 22 泊開人、瀧田裕紀、松永隆佑、永崎洋、島野亮、“光励起非平衡状態における $\text{La}_{2-x}\text{Sr}_x\text{CuO}_4$ の c 軸ジョセフソンプラズマの観測”、日本物理学会第 71 回年次大会、講演番号 21pPSA-35、東北学院大学、2016 年 3 月 21 日
 - 23 富田圭祐、瀧田裕紀、泊開人、松永隆佑、柴田浩行、島野亮、“マルチギャップ超伝導体 MgB_2 におけるヒッグスモード”、日本物理学会 2015 年秋季大会、講演番号 18aCF-6、関西大学、2015 年 9 月 18 日
 - 24 K. Tomita, Y. I. Hamada, K. Tomari, R. Matsunaga, H. Shibata, and R. Shimano, "Higgs mode in a multiband superconductor MgB_2 ", Materials and Mechanisms of Superconductivity 2015, Geneva (Switzerland), August 23th, 2015.

〔図書〕(計 1 件)

松永隆佑、辻直人、青木秀夫、島野亮、“超伝導体中のヒッグスモード 高強度テラヘルツ波による検出とヒッグス共鳴第三高調波発生”、固体物理 50, 411 (2015).

〔その他〕

ホームページ等

<https://matsunaga.issp.u-tokyo.ac.jp/>

6. 研究組織

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。