

令和元年5月13日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03876

研究課題名(和文) 光の軌道角運動量を用いた巨視的量子相関ダイナミクス探索

研究課題名(英文) Global quantum correlation dynamics investigations using optical orbital angular momentum

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) 12,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、高温超伝導体(Bi2212)に対して光渦パルス励起によって発生するキャリアの軌道角運動量(OAM)ダイナミクス観測を実現し、超伝導物性に関して次のことを明らかにした：(a) 超伝導の電子対もしくは準粒子は光渦のOAMを受け取り、そのカイラリティに依存した過渡反射率応答変化が現れる；(b) 超伝導相回復応答で観測されるクーバー対の初期形成時には特徴的な量子ゆらぎ応答が存在する；(c) OAM応答の温度依存性はゆらぎ応答を反映しないことから、光渦パルス励起は巨視的量子相関に起因するコヒーレントな空間変化を超伝導に誘起している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

らせん状の波面で特徴づけられる光渦は(偏光とは独立に)ビーム断面内にエネルギー流の方位回転成分を持ち、物質に照射すると大域的な電子の軌道角運動量を励起できる。本研究ではこの光渦を超伝導の時間分解分光に対して活用することにより、従来の分光では測定が困難だった電子同士の大域的な相関ダイナミクスの観測を実現した。高温超伝導体では電子相関がクーバー対形成に対して重要な役割を果たすと考えられるため、確立された測定手法は超伝導の発現機構解明に新しい知見をもたらすと共に、巨視的相関にもとづくユニークな超伝導相制御の創出につながる。

研究成果の概要(英文)：Using ultrafast optical vortex pulses, we have demonstrated the observation of the orbital angular momentum (OAM) dynamics of carriers for high-Tc superconductors (Bi2212) and obtained the following results: (a) OAM-dependent transient reflectivity changes are observed below Tc, indicating that the optical vortex can transfer its OAM to the superconducting state (quasi-particles and/or cooper-pairs); (b) recovery dynamics of the superconducting state shows an efficient contribution of the pairing fluctuation in its early stage; (c) temperature dependence of the OAM dynamics shows virtually no pairing fluctuation, suggesting that the optical vortex induced OAM dynamics reflects a spatially coherent dynamics associated with a global quantum correlation.

研究分野：光物性

キーワード：光物性 高温超伝導 時間分解分光 応用光学・量子光工学 特異点光学 軌道角運動量

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

1. 研究開始当初の背景

物質中の電子に対する偏光応答は、対称性の関与する物性探索の高感度プローブとして幅広く利用されている。電子スピンと円偏光(光子スピン)は角運動量変換にもとづいた直接的な対応関係を持ち、スピン軌道相互作用を介して系の対称性にもとづく固有の偏光選択則をもたらす。またバルクの電子状態の対称性変化に高い感度を有するため、超伝導に代表される巨視的量子状態の物性に対しても重要な知見をもたらしてきた。特に高温超伝導体で観測される超伝導転移温度(T_c)以上に発現する対称性破れは、超伝導発現機構解明の鍵と目されており、ラマン分光[1-3]、ファラデー(カー回転)分光[4-6]、時間分解分光[7,8]による調査が実施されている。しかしながら偏光応答のみから電子相関の大域性を評価することは困難であり、そのため対称性変化の直接的な起源や発現機構の解明には至っていない。

研究開始以前、研究代表者は光渦(ラゲールガウス(LG)光)を用いたコヒーレント分光を半導体試料に対して適用し、励起子軌道角運動から大域コヒーレンスを定量的に扱える物性探索ルートを拓くことに成功した[9]。らせん状の波面で特徴づけられる光渦は(偏光とは独立に)ビーム断面内にエネルギー流の方位回転成分を持ち、物質に照射すると図1に示すような大域的なキャリアの軌道角運動を励起できる。また時間分解ポンププローブ分光の偏光応答にもとづく超伝導物性探索として、代表者らは高温超伝導体において瞬時励起されたキャリアが超伝導ギャップの不均一性に依存しないコヒーレントな対称性変化を誘起することを見出した[8]。以上の成果をもとに、光渦パルスで超伝導体のキャリアを励起すれば、その軌道角運動が系の大域性を反映することを着想し、キャリアダイナミクス観測を通して電子相関の大域性を評価できると考えた。

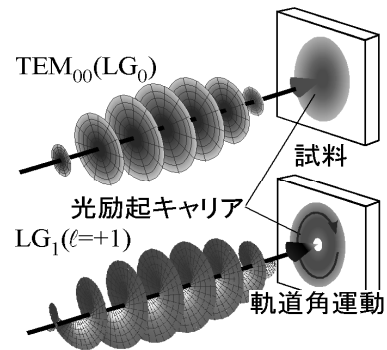


図1: レーザパルスの基本モードを用いたキャリア励起(上)と光渦パルスを用いたキャリアの軌道角運動励起(下)。

2. 研究の目的

以上の背景にもとづき、本研究ではビスマス系高温超伝導体(Bi2212)を主な測定対象とし、軌道角運動量を持つ光波である光渦パルス励起によって発生するキャリアの軌道角運動(OAM)ダイナミクス観測の実現を目的とした。光渦を用いて瞬時励起されたキャリアの軌道角運動が系の大域性を反映することに着目し、そのダイナミクス観測を通して高温超伝導物性の主要課題である秩序形成機構および自発的対称性破れの起源と発現機構の解明を試みた。加えてOAMダイナミクス観測にもとづく新機能開拓と制御応用にも取り組み、光の軌道角運動量を活用した新しい量子相関ダイナミクス探索を実現した。

3. 研究の方法

量子相関ダイナミクス探索を実現するため、代表者が実績を有する超短パルス光を用いた時間分解ポンププローブ分光を基盤とした。時間分解ポンププローブ分光は、ポンプパルス光で励起された非平衡キャリアの緩和特性をプローブパルス光の光学応答変化(本研究では反射率変化)として捉える手法であり、高温超伝導体では超伝導ギャップや擬ギャップの特性を反映した緩和特性が観測される。本研究では電子相関の大域性を評価するため、新たに励起光に光渦パルスを用いる。一般的なレーザー光は、光の進行方向に垂直な断面内でほぼ一定の位相を持つ。他方、光渦は断面内で位相の回転分布を持つため、超伝導相のように大域的な電子相関が存在すれば、物質に照射することによってエネルギー流の方位回転成分、すなわちOAMを励起できる(図1参照)。ただし過渡反射率変化から光渦パルスのもたらすキャリアのOAM応答を選択的に抽出する必要がある。このため光のOAMに対応する位相回転の回転方向(カイラリティ)に変調を加え、変調周波数に一致する反射率変化を同期検波する手法を確立した[論文]。

研究目的を達成するため、上記手法の確立を基盤として(1)超伝導キャリア(クーパー対)のOAM励起及びダイナミクス検出、(2)OAMダイナミクスにもとづく超伝導物性探索、(3)光渦励起にもとづく新機能開拓と制御応用、の3つの研究項目に取り組んだ。次節で各項目に対する研究成果をまとめる。

4. 研究成果

(1) 超伝導キャリア(クーパー対)のOAM励起及びダイナミクス検出

図2に示すのは光渦パルス励起で観測される代表的な超伝導(SC)応答およびOAM応答である。測定温度10Kに対し、通常的光パルス励起で検出される過渡反射率変化は超伝導ギャップ間のキャリア緩和を反映したSC応答が支配的となる。他方、カイラリティ変調を施した光渦パルス励起により、反射率変化からカイラリティのみに依存するOAM応答を選択検出することに成功した。図に示すように、両者の緩和時間には顕著な違いが見られ、光渦パルス励起が超伝導状態に変化(異なるOAMカイラリティを持つ成分の増強 and/or 同じOAMカイラリティを持つ成分の抑圧)をもたらすことが明らかとなった。つまり超伝導の電子対もしくは準粒子は光渦のOAMを受け取り、そのカイラリティに依存した誘電率変化、すなわち大域的

な反射率変化が誘起される。同様の OAM 応答は、カイラリティの異なる光渦パルス励起による SC 応答の差分検出から見積もることが可能であるが、カイラリティ変調測定では反射率変化において支配的となるキャリア緩和がキャンセルされることにより大幅な検出感度向上が実現された。

(2) OAM ダイナミクスにもとづく超伝導物性探索

Bi 高温超伝導体試料の巨視的電子相関を評価するため、OAM 応答の温度特性を調査した。図 2 内挿図に示すとおり、SC 応答は T_c 以上でクーパ対形成に起因する量子ゆらぎを反映した残留応答を示すのに対し、OAM 応答は T_c 以上で大きく減少する。過渡応答における量子ゆらぎの寄与を明らかにするため、超伝導飽和強度（光照射領域全体のクーパ対を破壊する強度）で発現する過渡的常伝導相を通して秩序再形成の対称性解析を行った[論文]。時間依存ギンツブルグ-ランダウモデルにもとづく秩序変数解析を実施し、その時間発展からクーパ対の初期形成時に特徴的な量子ゆらぎ応答が存在することを明らかにした。OAM 応答に見られる量子ゆらぎの減少は、この初期過程が空間的な不均一性を反映していることを示唆している。他方、この考察にもとづけば、 T_c 以下で観測される OAM 応答は超伝導に誘起されるコヒーレントなカイラリティ変化を反映することになる。すなわち本研究手法を基盤としたユニークな超伝導相制御への展開を示すことができた。

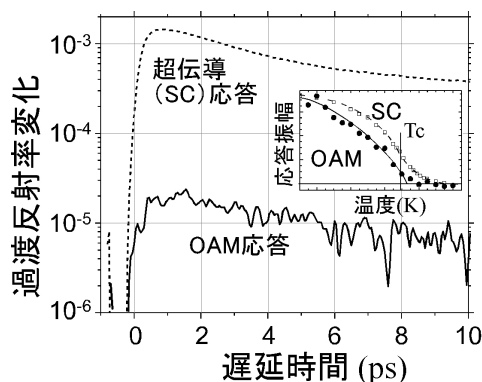


図2 : Bi2212試料で観測されたSC応答とOAM応答 (T=10K) および各応答の温度特性 (内挿図) [論文]。

OAM 応答にもとづく高温超伝導体の自発的対称性破れの起源と発現機構を明らかにするため、本研究では偏光応答[8]を組み合わせた対称性解析にも合わせて取り組んだ。特に高温超伝導体の大きな特徴である擬ギャップの自発的対称性破れの起源が長距離秩序に由来するのか、モット電子的（局在的）な性質を持つのか、OAM 応答に反映される大域相関特性との関係性に着目し、ホール濃度の異なる Bi2212 試料、および有機超伝導体を含む関連物質に対する系統的調査を実施した[論文 - , -]。重要な結果として、臨界点から大きく離れた有機超伝導体試料で著しい差異が温度特性に確認された。電子相関が本質的な役割を果たす有機超伝導体において、得られた結果は光誘起相分離が量子ゆらぎの影響を反映することを示唆している。

(3) 光渦励起にもとづく新機能開拓と制御応用

OAM 励起のもたらす物質機能開拓と制御応用への展開を目指し、光渦を制御光波とする OAM 制御の基盤構築にも取り組んだ[論文]。解析を容易にするため、本項目では半導体微小共振器レーザー（面発光レーザー）を制御対象とし、光帰還にもとづく OAM を反映した空間モード制御を実現した。超伝導試料とは異なり量子相関の果たす役割は限定的であるが、共振器形状や内部歪みのもたらす対称性破れは偏光特性や OAM 特性に反映され、空間モードとして電子密度や光帰還率に依存した特徴的な大域特性を示す。興味深い結果として、異方的偏光応答に対する光帰還は OAM モードに依存した偏光特性を示すことが明らかとなった。具体的には光帰還を用いて OAM のもつ大域的なカイラリティの対称性破れを誘起すると、同時に偏光応答にも異方性が発現する。この結果は光渦を制御光波とする新しい空間モード制御の可能性を示しており、様々な物質系に応用可能である。

< 引用文献 >

- [1] N. Munnikes, *et al.*, "Pair breaking versus symmetry breaking", *Phys. Rev. B* 84, 144523 (2011).
- [2] S. Benhabib, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 114, 147001 (2015).
- [3] H. Kung, *et al.*, "Chirality density wave of the "hidden order" phase in URu₂Si₂", *Science* 347, 1339 (2015).
- [4] Rui-Hua He, *et al.*, "From a single-band metal to a high-temperature superconductor via two thermal phase transitions", *Science* 331, 1579 (2011).
- [5] H. Karapetyan, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* 112, 047003 (2014).
- [6] Y. Lubashevsky, *et al.*, "Optical birefringence and dichroism of cuprate superconductors in the THz regime" *Phys. Rev. Lett.* 112, 147001 (2014).
- [7] D. Torchinsky, *et al.*, *Nat. Mater.* 12, 387 (2013).
- [8] Y. Toda, *et al.*, "Rotational symmetry breaking in Bi2212 probed by polarized femtosecond spectroscopy", *Phys. Rev. B* 90, 094513(1-5) (2014).
- [9] K. Shigematsu, *et al.*, "Coherent dynamics of exciton orbital angular momentum transferred by optical vortex pulses", *Phys. Rev. B* 93 045205/1-8 (2016).

5 . 主な発表論文等

[雑誌論文](計 1 1 件)

K. Nakagawa, S. Tsuchiya, J. Yamada and Y. Toda, "Fluctuating superconductivity in

-type organic compounds probed by polarized time-resolved spectroscopy”, Europhys. Lett. 122, 67003/1-6 (2018), 査読有, DOI: 10.1209/0295-5075/122/67003

Y. Toda, H. Mochizuki, S. Tsuchiya, T. Kurosawa, M. Oda, T. Mertelj, and D. Mihailovic, “Nonequilibrium quasiparticle dynamics in Bi-based superconductors measured by modulation photoexcitation spectroscopy”, J. Supercond. Nov. Magn. 31, 753-756 (2018), 査読有, DOI: 10.1007/s10948-017-4325-9

戸田泰則、重松恭平、山根啓作、森田隆二, “光渦・偏光渦を使った窒化ガリウム励起子のコヒーレント分光”, レーザー研究 46 210-214 (2018), 査読有, 掲載誌情報: <https://jglobal.jst.go.jp/public/201802270290067867>

戸田泰則, “トポロジカル光波を用いたレーザー分光”, 光アライアンス 28 11-15 (2017), 査読無, 掲載誌情報: <https://iss.ndl.go.jp/books/R100000002-I000000075729-00>

S. Tsuchiya, K. Nakagawa, J. Yamada, H. Taniguchi, and Y. Toda, “Photoinduced phase separation with local structural ordering in organic molecular conductors”, Phys. Rev. B 96, 134311/1-6 (2017), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.96.134311

I. Madan, V. V. Baranov, Y. Toda, M. Oda, T. Kurosawa, V. V. Kabanov, T. Mertelj, and D. Mihailovic, “Dynamics of superconducting order parameter through ultrafast normal-to-superconducting phase transition in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ from multipulse polarization-resolved transient optical reflectivity”, Phys. Rev. B 96, 184522/1-9 (2017), 査読有, DOI: 10.1103/PhysRevB.96.184522

Y. Toda, A. Moriya, K. Yamane, R. Morita, K. Shigematsu, and Y. Awaji, “Single orbital angular mode emission from externally feed-backed vertical cavity surface emitting laser”, Appl. Phys. Lett. 111, 101102/1-5 (2017), 査読有, DOI: 10.1063/1.4989479

戸田泰則, 黒澤徹, 小田研, “銅酸化物高温超伝導体の超伝導ギャップ・擬ギャップダイナミクス”, 日本物理学会誌 71 830-835 (2016), 査読無, DOI:10.11316/butsuri.71.12_830

K. Nakagawa, S. Tsuchiya, J. Yamada, Y. Toda, “Pump- and Probe-polarization Analyses of Ultrafast Carrier Dynamics in Organic Superconductors”, J. Supercond. Nov. Magn. 29, 3741-6 (2016), 査読有, DOI: 10.1007/s10948-016-3741-6

S. Tsuchiya, K. Nakagawa, J. Yamada and Y. Toda, “Carrier Relaxation Dynamics in the Organic Superconductor $(\text{BEDT-TTF})_2\text{Cu}(\text{NCS})_2$ Under Pressure”, J. Supercond. Nov. Magn. 29, 3751-4 (2016), 査読有, DOI: 10.1007/s10948-016-3751-4

S. Tsuchiya, Y. Kino, K. Nakagawa, D. Nakagawa, J. Yamada and Y. Toda, “Development of an optical time-resolved measurement system under high-pressure and low-temperature with a piston-cylinder pressure cell”, Rev. Sci. Inst. 87, 043104/1-6 (2016), 査読有, DOI: 10.1063/1.4945303

[学会発表](計16件)

Y. Toda, H. Moriya, K. Yamane, R. Morita, (Invited) “Vortex mode emissions from large-area vertical-cavity surface-emitting laser with optical feedback”, The 37th JSST Annual International Conference on Simulation Technology, Muroran Inst. Tech (Muroran), Japan Sept. 18 (2018).

H. Mochizuki, Y. Toda, S. Tsuchiya, K. Yamane, R. Morita, T. Kurosawa, M. Oda, “Optical vortex pulse induced orbital angular momentum dynamics in superconductors”, The 37th JSST Annual International Conference on Simulation Technology, Muroran Inst. Tech (Muroran), Japan Sept. 18 (2018).

戸田泰則, “液晶的電子状態の探索に向けたトポロジカル分光”, 東京大学物性研究所 短期研究会 「量子多体効果が生み出す液晶的電子状態」(柏市) 12月27日-28日(2018).

戸田泰則, “光渦を用いた物性研究: 巨視的量子相関ダイナミクス探索”, 第3回光渦討論会 東京大学先端科学技術研究センター(東京都) 3月21日(2018).

戸田泰則, “光渦による物性研究”, 日本物理学会第73回年次大会 24pK606-2 東京理科大学野田キャンパス(野田市) 3月24日(2018).

戸田泰則, “光渦による固体のトポロジカル分光”, 日本学術振興会光電相互変換第241回研究会、明治大学(東京都) 5月25日(2018).

Y. Toda, H. Moriya, K. Shigematsu, K. Yamane, R. Morita, “Single OAM mode emission from VCSEL by optical feedback”, The 4th Optical Manipulation Conference 2017 (OMC'17), OMC2-2 20 April (2017), Pacifico Yokohama (Yokohama), Japan.

Y. Toda, (Invited) “Coherent spectroscopy using topological lightwaves”, International Workshop on Quantum and Nanoscale Photonics, March 30 (2017), Hokkaido University (Sapporo), Japan.

Y. Toda, S. Tsuchiya, T. Kurosawa, M. Oda, T. Mertelj, D. Mihailovic, (Invited) "Nonequilibrium quasiparticle dynamics in Bi-based superconductors measured by modulation photoexcitation spectroscopy", Superstripes 2017, June 5-10 (2017), (Ischia), Italy.

Y. Toda (Invited) "Measurements of Photo-Induced Orbital Angular Momentum Dynamics of Superconductor", International Workshop on NanoScience and NanoOptics, 1-3 November, (2017), Hokkaido University (Sapporo), Japan.

森谷 淳史、戸田 泰則、山根 啓作、森田 隆二、重松 恭平、淡路 祥成, "空間変調光帰還型面発光レーザーの OAM モード発振特性", 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 6p-S45-2 福岡コンベンションセンター(福岡市) 9月5日-8日(2017).

望月 洋人、戸田 泰則、土屋 聡、山根 啓作、森田 隆二、黒澤 徹、小田 研, "光渦パルス励起による超伝導準粒子軌道角運動量ダイナミクス観測", 第 78 回応用物理学会秋季学術講演会 6a-S45-5 福岡コンベンションセンター(福岡市) 9月5日-8日(2017).

戸田 泰則, (招待講演) "トポロジカル光波を用いた半導体光物性探索", 千葉大学キラリティー研究センター 第 2 回公開シンポジウム 千葉大学(千葉市)3月08日(2017).

戸田 泰則、黒澤 徹、小田 研、イバン・マダン、トマーシュ・マテリ、ドラガン・ミハイロビッチ, (招待講演) "銅酸化物高温超伝導体の超伝導ギャップ・擬ギャップダイナミクス", Frontiers in Strongly Correlated Electron System 北海道大学(札幌市)10月19日-20日(2017).

戸田 泰則, (招待講演) "光渦による物性探求", 合同研究会「光渦と原子分子・物質系の相互作用」 広島大学放射光科学研究センター (東広島市)12月1日-2日(2017).

Y. Toda, S. Tsuchiya, T. Kurosawa, M. Oda, T. Mertelj, I.Madan, D. Mihailovic (Invited) "Photoexcited quasiparticle dynamics in the pseudogap state of high-Tc superconductors", International Conference on Low-Energy Electrodynamics in Solids (LEES2016), May 29-June 3 (2016), Hotel LAFORET Biwako (Moriyama), Japan.

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.eng.hokudai.ac.jp/labo/optphys/exp/Research.html>

6. 研究組織

(1) 研究分担者

研究分担者氏名：土屋 聡

ローマ字氏名：TSUCHIYA SATOSHI

所属研究機関名：北海道大学

部局名：工学研究院

職名：助教

研究者番号(8桁)：80597633

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。