

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和 2 年 6 月 5 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2019

課題番号：18K13498

研究課題名(和文) 軟X線レーザー角度分解光電子分光法・テラヘルツ分光法による光誘起超伝導の研究

研究課題名(英文) Photo-Induced Superconductivity Studied by Soft X-Ray Laser Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy and Terahertz Spectroscopy

研究代表者

鈴木 剛 (Suzuki, Takeshi)

東京大学・物性研究所・助教

研究者番号：30815915

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、光励起後に現れる新奇な相を調べるために、高温超伝導体をはじめとする量子物質を対象として、高次高調波光電子分光法及びテラヘルツ時間領域分光法を用いて研究してきた。その結果、鉄系超伝導体FeSeにおける光誘起超伝導状態の発見、励起子絶縁体候補物質Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub>における光誘起金属状態の発見、そして、準結晶二層グラフェンにおける超高速キャリア不均衡の発見をすることに成功した。これらの成果は、当該研究期間を通じて、主著4本を含む学術雑誌7本の出版と、招待講演1つとポスター賞1つを含む国際学術会議4つでの発表、及び、登壇者としては国内学術会議6つでの発表として、収めることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で見出された、光励起後に表れる量子物質での新奇な相や状態は、次世代の電気光デバイスの開発においても大変重要な知見をもたらすことを見出し、特に以下の3つの研究については、プレスリリースにより発表した。

鉄系超伝導体FeSeにおける光誘起超伝導の発現は、太陽電池や電子回路に取り入れることで発熱を抑え、将来のエネルギー問題解決への糸口になることを示した。また、励起子絶縁体候補物質Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub>における光誘起金属状態の発見は、次世代の光スイッチング素子としての可能性を提示した。さらに、準結晶二層グラフェンにおける超高速キャリア不均衡の発見は、超高速電圧素子としての可能性を提示することに成功した。

研究成果の概要(英文)：We have studied photo-induced phases in various quantum materials including high-temperature superconducting materials by using high harmonic generation time-resolved ARPES and terahertz spectroscopy.

We have successfully revealed photo-induced superconductivity in FeSe, photo-induced metallic state in Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub>, and ultrafast unbalanced carrier distribution in a quasicrystalline twisted-bilayer graphene.

As a result, we have published 7 journals including 4 journals that I have contributed as the first author. Also, I have presented the research results at 4 international conferences including 1 invited talks and 1 poster award. At 6 Japanese conferences, I have given talks as a presenter.

研究分野：光物性

キーワード：光誘起相転移 超伝導 量子物質 超高速現象 非平衡状態

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

研究開発当時、次世代の光電気デバイスの開発や物質の非平衡状態への新たな知見の追求から、様々な物質において、光誘起相転移現象および超高速現象が研究されてきた。特に、光誘起超伝導の研究に目を向けると、主に銅酸化物高温超伝導体を対象として行われており、過渡的でありながら超伝導転移温度が室温に迫る報告がなされ、世界中で大きな注目を集めていた。

一方、光源技術に着目すると、テラヘルツ電場や高次高調波発生などの光源開発技術が目覚ましく向上しており、テラヘルツ電場では、1 MV/cm に迫る高強度化が実現されており、また、高次高調波を用いた時間分解光電子分光測定も可能になってきた。

しかしながら、当時の研究状況では、光誘起超伝導については、対象が主に銅酸化物高温超伝導体に限られており、また、テラヘルツ分光や高次高調波時間分解光電子分光測定については、それぞれ独立に研究が進められていた。光誘起により発現する新奇な相を解明するためには、様々な物質における光誘起相や状態について実験的に調べていき、知見を広げていくことがまず重要である。

### 2. 研究の目的

このような研究当初の背景を受け、本研究の目的は、光誘起超伝導を主な興味の対象として、様々な量子物質における光誘起相や超高速現象を調べて、次世代の光電気デバイスへの指針と非平衡状態における新たな知見を与えることである。

### 3. 研究の方法

上記目的のために、本研究では、鉄系超伝導体 FeSe をはじめとして、励起子絶縁体の候補物質である Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub>、及び準結晶二層グラフェンを対象として、高次高調波光電子分光及びテラヘルツ時間領域分光法による観測を目差した。高次高調波光電子分光測定では、波数分解された状態密度を過渡的に観測できることから、バンド構造の変化やキャリアダイナミクス、さらに波数に依存したギャップの変化などを追跡することができる。一方、テラヘルツ分光測定は、遠赤外領域(1-30 meV)のパルス状の電磁波による観測であることから、過渡的な伝導特性の変化を捉えることができる。図 1(a),(b)にそれぞれの模式図を示す。まず高次高調波分光(図 1(a))については、1 kHz と 10 kHz の2つの異なる繰り返し周波数のレーザーシステムを用いることで、試料特性に応じた測定を行うことが可能である。すなわち、1 kHz のシステムでは、高いパルスエネルギーが得られるため、より高密度な励起が可能になり、10 kHz のシステムでは、繰り返しパルス数が多いので、より高感度な測定を行うことができる。一方、テラヘルツ分光測定(図 1(b))では、ZnTe を発生と検出の素子として用いることで、1-10 meV (1-3 THz)でのプローブが可能になる。

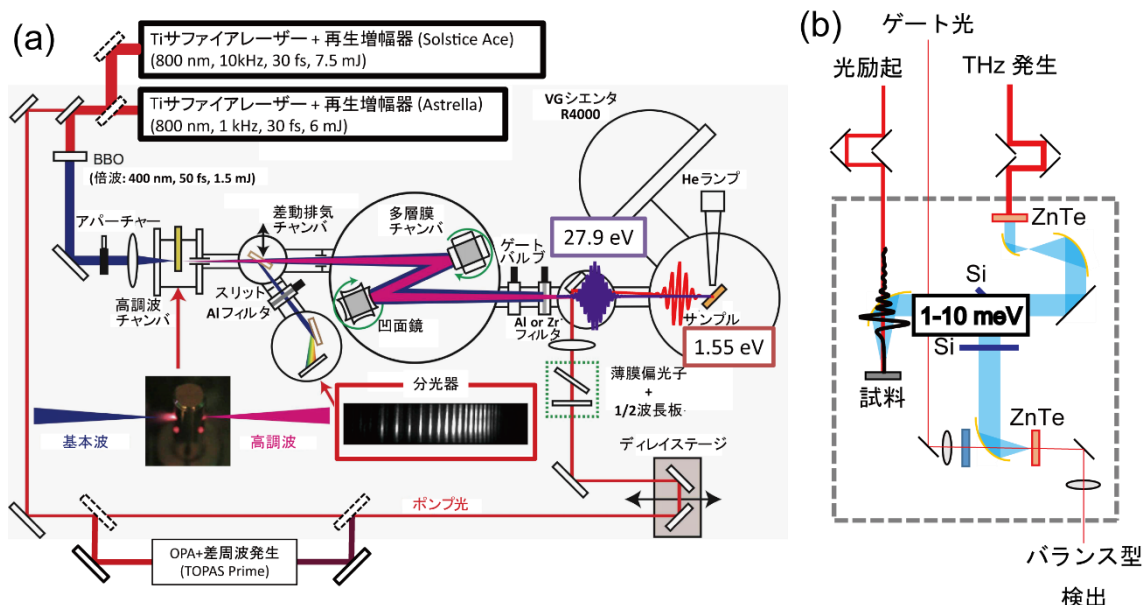


図 1 (a)高次高調波光電子分光測定と(b)テラヘルツ分光測定の模式図。

### 4. 研究成果

本研究期間を通じて、主著 4 本を含む学術雑誌 7 本の出版と、招待講演 1 つとポスター賞 1 つを含む国際学術会議 4 つでの発表、及び、登壇者としては国内学術会議 6 つでの発表として、研究成果を収めることができた。主な研究結果について以下述べる。

#### (1) 鉄系超伝導体 FeSe

鉄系超伝導は、銅酸化物に次ぐ高い超伝導転移温度を示し、さらに、様々な外場下で飛躍的

に超伝導温度が向上する点で、非常に注目を受け、盛んに研究されてきた。我々は、鉄系超伝導体 FeSe を対象として、高次高調波時間分解光電子分光法を行うことで、正孔バンドが存在する  $\Gamma$  点と電子バンドが存在する M 点における電子ダイナミクスを、それぞれ捉えることに成功した。その結果、両バンドにおいて、電子の励起と共に顕著な振動が現れ、これは、 $A_{1g}$  コヒーレントフォノンに相当するものであることが明らかになった。振動の解析から、観測されたコヒーレントフォノンは、変異励起型であり、これは、光励起後に実現される最安定な格子状態が、図 2(a)に示すように、Se が矢印方向に延びた格子変調であることを示している。さらに、詳細な解析と測定により、光励起により、電子が正孔バンドから電子バンドに移り、それに伴い、超伝導ギャップのような振る舞いが出現することが明らかになった(図 2(b))。そして、このような光励起状態は非常に長く持続し( $\sim 1$  ns)、これは、鉄系超伝導体を持つ間接型半金属としてのバンド構造に由来すると考えられ、単一正孔バンドから成る銅酸化物とは顕著に異なる性質が現れている。これらの成果は、主著 1 本を含む 2 本の学術雑誌 (引用文献①、②) に掲載され、当該機関のプレスリリースによって外部発信した。

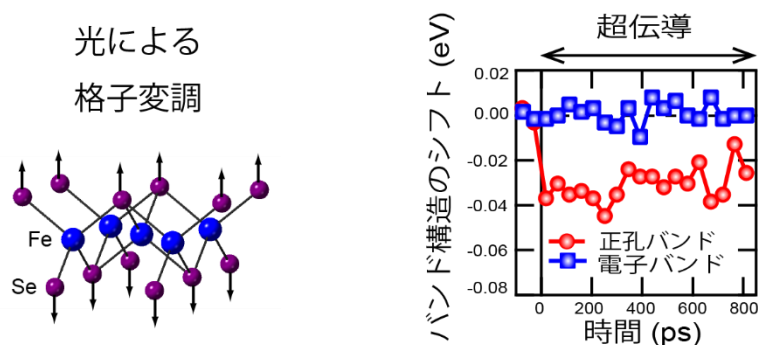


図 2 (a)FeSe における光による格子変調と(b)バンド構造のシフト。

(2) 励起子絶縁体候補物質  $Ta_2NiSe_5$

$Ta_2NiSe_5$  は、電荷密度波相への相転移を伴わずに、低温において励起子絶縁相のような振る舞いを示す点で、励起子絶縁体の候補物質として注目されてきた (引用文献③、④)。我々は、高次高調波光電子分光法を用いて、光励起後に、新奇な半金属状態を見出すことに成功した。この状態は、温度変化では起こりえない性質を示す点で、この系における新しい相であり、将来の光デバイス素子としての可能性を提示することに成功した。さらに、励起子絶縁相としての性質に着目すると、詳細な時間変化測定から、励起子絶縁体特有の振る舞いを見出し、これにより、より有力な候補物質としての証拠を示すことに成功した。これらの成果は、1 本の学術雑誌 (引用文献⑤) に掲載され、当該機関のプレスリリースによって外部発信した。

(3) 準結晶二層グラフェン

伝導・光学・応力特性において、特異な性質を兼ね揃えたグラフェンは、次世代におけるスーパーマテリアルとして着目され、2010 年のノーベル賞に代表されるように、様々な研究が精力的に行われてきた。ごく最近、二層グラフェンにおいて、層間の角度を変えることにより、超伝導などの新奇な相が出現し (引用文献⑥、⑦)、さらに、層間の角度を  $30^\circ$  にすることで、準結晶状態を形成することが発見され (引用文献⑧)、新しい視点から注目されている。我々は、準結晶二層グラフェンを対象にして、高次高調波光電子分光法を用いて、上層と下層のディラックバンドにおける超高速キャリアダイナミクスについて観測を行った。その結果、上層と下層との間で、1ps 以下の超高速な時間領域において、キャリア数が不均一化している振る舞いを発見した。これは、過渡的でありながら、上層と下層との間で、起電力を生成できることを示しており、次世代の超高速光スイッチング素子としての可能性が期待される。これらの成果は、1 本の学術雑誌 (引用文献⑨) に掲載され、当該機関のプレスリリースによって外部発信した。

<引用文献>

- ① K. Okazaki, T. Suzuki (第三著者), *et al.*, “Antiphase Fermi-surface modulations accompanying displacement excitation in a parent compound of iron-based superconductors.” *Phys. Rev. B* **97**, 121107 (2018).
- ② T. Suzuki, *et al.*, “Photoinduced possible superconducting state with long-lived disproportionate band filling in FeSe.” *Commun. Phys.* **2**, 115 (2019).
- ③ Y. Wakisaka, *et al.*, “Excitonic Insulator State in  $Ta_2NiSe_5$  Probed by Photoemission Spectroscopy.” *Phys. Rev. Lett.* **103**, 026402 (2009).

- ④ Y. Lu, *et al.*, “Zero-gap semiconductor to excitonic insulator transition in Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub>.” Nat. Commun. **8**, 14408 (2017).
- ⑤ K. Okazaki, T. Suzuki (第三著者), *et al.*, “Photo-induced semimetallic states realised in electron-hole coupled insulators.” Nat. Commun. **9**, 4322 (2018).
- ⑥ Y. Cao, *et al.*, “Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices.” Nature **556**, 43 (2018).
- ⑦ Y. Cao, *et al.*, “Correlated insulator behaviour at half-filling in magic-angle graphene superlattices.” Nature **556**, 80 (2018).
- ⑧ S. J. Ahn, *et al.*, “Dirac electrons in a dodecagonal graphene quasicrystal.” Science **361**, 782 (2018).
- ⑨ T. Suzuki *et al.*, “Ultrafast Unbalanced Electron Distributions in Quasicrystalline 30° Twisted Bilayer Graphene.” ACS Nano **13**, 11981—11987 (2019).

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計7件（うち査読付論文 7件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Okazaki Kozo, Suzuki Hakuto, Suzuki Takeshi, Yamamoto Takashi, Someya Takashi, Ogawa Yu, Okada Masaru, Fujisawa Masami, Kanai Teruto, Ishii Nobuhisa, Itatani Jiro, Nakajima Masamichi, Eisaki Hiroshi, Fujimori Atsushi, Shin Shik	4. 巻 97
2. 論文標題 Antiphase Fermi-surface modulations accompanying displacement excitation in a parent compound of iron-based superconductors	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 121107(R)(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.121107">https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.121107</a>	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 Liu Ro-Ya, Lin Meng-Kai, Chen Peng, Suzuki Takeshi, Clark Pip C. J., Lewis Nathan K., Cacho Cephise, Springate Emma, Chang Chia-Seng, Okazaki Kozo, Flavell Wendy, Matsuda Iwao, Chiang Tai-Chang	4. 巻 100
2. 論文標題 Symmetry-breaking and spin-blockage effects on carrier dynamics in single-layer tungsten diselenide	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 214309(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.214309">https://doi.org/10.1103/PhysRevB.100.214309</a>	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 Suzuki Takeshi, Iimori Takushi, Ahn Sung Joon, Zhao Yuhao, Watanabe Mari, Xu Jiadi, Fujisawa Masami, Kanai Teruto, Ishii Nobuhisa, Itatani Jiro, Suwa Kento, Fukidome Hirokazu, Tanaka Satoru, Ahn Joung Real, Okazaki Kozo, Shin Shik, Komori Fumio, Matsuda Iwao	4. 巻 13
2. 論文標題 Ultrafast Unbalanced Electron Distributions in Quasicrystalline 30° Twisted Bilayer Graphene	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Nano	6. 最初と最後の頁 11981 ~ 11987
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1021/acsnano.9b06091">https://doi.org/10.1021/acsnano.9b06091</a>	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 Suzuki Takeshi, Someya Takashi, Hashimoto Takahiro, Michimae Shoya, Watanabe Mari, Fujisawa Masami, Kanai Teruto, Ishii Nobuhisa, Itatani Jiro, Kasahara Shigeru, Matsuda Yuji, Shibauchi Takasada, Okazaki Kozo, Shin Shik	4. 巻 2
2. 論文標題 Photoinduced possible superconducting state with long-lived disproportionate band filling in FeSe	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Communications Physics	6. 最初と最後の頁 115(1-7)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1038/s42005-019-0219-4">https://doi.org/10.1038/s42005-019-0219-4</a>	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 Suzuki Takeshi, Singh Rohan, Bayer Manfred, Ludwig Arne, Wieck Andreas D., Cundiff Steven T.	4. 巻 97
2. 論文標題 Detuning dependence of Rabi oscillations in an InAs self-assembled quantum dot ensemble	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 161301(R)(1-5)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.161301">https://doi.org/10.1103/PhysRevB.97.161301</a>	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 Okazaki Kozo, Ogawa Yu, Suzuki Takeshi, Yamamoto Takashi, Someya Takashi, Michimae Shoya, Watanabe Mari, Lu Yangfan, Nohara Minoru, Takagi Hidenori, Katayama Naoyuki, Sawa Hiroshi, Fujisawa Masami, Kanai Teruto, Ishii Nobuhisa, Itatani Jiro, Mizokawa Takashi, Shin Shik	4. 巻 9
2. 論文標題 Photo-induced semimetallic states realised in electron-hole coupled insulators	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Nature Communications	6. 最初と最後の頁 4322(1-6)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1038/s41467-018-06801-1">https://doi.org/10.1038/s41467-018-06801-1</a>	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 Suzuki Takeshi, Singh Rohan, Moody Galan, Assmann Marc, Bayer Manfred, Ludwig Arne, Wieck Andreas D., Cundiff Steven T.	4. 巻 98
2. 論文標題 Dephasing of InAs quantum dot p-shell excitons studied using two-dimensional coherent spectroscopy	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Physical Review B	6. 最初と最後の頁 195304(1-9)
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) <a href="https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.195304">https://doi.org/10.1103/PhysRevB.98.195304</a>	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

[学会発表] 計13件(うち招待講演 1件/うち国際学会 4件)

1. 発表者名 Takeshi Suzuki
2. 発表標題 Ultrafast carrier dynamics in a twisted bilayer graphene quasicrystal studied by time- and angle-resolved photoemission spectroscopy
3. 学会等名 The 81st Okazaki Conference (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Suzuki, T. Imori, S. J. Ahn, Z. Yuhao, M. Watanabe, J. Xu, M. Fujisawa, T. Kanai, N. Ishii, J. Itatani, K. Suwa, H. Fukidome, S. Tanaka, J. R. Ahn, K. Okazaki, S. Shin, F. Komori, and I. Matsuda
2. 発表標題 Ultrafast Carrier Dynamics in a Twisted Bilayer Graphene Quasicrystal
3. 学会等名 The 11-th International Symposium on Ultrafast Surface Dynamics (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Suzuki, Y. Shinohara, Y. Lu, M. Watanabe, J. Xu, H. Takagi, M. Nohara, N. Katayama, H. Sawa, M. Fujisawa, T. Kanai, N. Ishii, J. Itatani, T. Mizokawa, K. L. Ishikawa, K. Okazaki, and S. Shin
2. 発表標題 Time-resolved ARPES study on Ta <sub>2</sub> NiSe <sub>5</sub>
3. 学会等名 Spectroscopies in Novel Superconductors 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木 剛, 飯森 拓嗣, Sung Joon Ahn, 趙 宇豪, 渡邊 真莉, 徐 佳笛, 藤澤 正美, 金井 輝人, 石井 順久, 板谷 治郎, 諏訪 健斗, 吹留 博一, 田中 悟, Joung Real Ahn, 岡崎 浩三, 辛 埴, 小森 文夫, 松田 巖
2. 発表標題 時間分解光電子分光法による準結晶ねじれ二層グラフェン における超高速キャリアダイナミクスの研究
3. 学会等名 2019年日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木 剛, 篠原 康, 魯 楊帆, 渡邊 真莉, 徐 佳笛, 高木 英典, 野原 実, 片山 尚幸, 澤 博, 藤澤 正美, 金井 輝人, 石井 順久, 板谷 治郎, 溝川 貴司, 石川 顕一, 岡崎 浩三, 辛 埴
2. 発表標題 周波数領域角度分解光電子分光法による Ta <sub>2</sub> NiSe <sub>5</sub> における光誘起絶縁体金属転移の研究(実験)
3. 学会等名 2019年日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 鈴木 剛, 久保田 雄也, 下志万 貴博, 中村 飛鳥, 田久保 耕, 伊藤 俊, 山本 航平, 道前 翔矢, 佐藤 光, 平松 秀典, 細野 秀雄, 富樫 格, 矢橋 牧名, 和達 大樹, 松田 巖, 辛 埴, 岡崎 浩三
2. 発表標題 時間分解X線回折によるBaFe <sub>2</sub> As <sub>2</sub> における 超高速格子変調ダイナミクスの観測
3. 学会等名 第33回日本放射光学会年会・放射光科学合同シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Jiadi Xu, Takeshi Suzuki, Mari Watanabe, Masami Fujisawa, Teruto Kanai, Nobuhisa Ishii, Jiro Itatani, Shik Shin, Kozo Okazaki
2. 発表標題 HHG-laser Time-resolved ARPES study on 1T-TiSe <sub>2</sub>
3. 学会等名 2019年日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 密岡 拓心, 鈴木 剛, 渡邊 真莉, 藤澤 正美, 金井 輝人, 石井 順久, 板谷 治郎, 岡崎 浩三, 辛 埴, 野原 実, 片山 尚幸, 澤 博, 魯 楊帆, 高木 英典, 溝川 貴司
2. 発表標題 励起子絶縁体 Ta <sub>2</sub> Ni <sub>1-x</sub> CoxSe <sub>5</sub> の時間分解光電子分光
3. 学会等名 2019年日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2019年



1. 発表者名 坂本 実可子, 鈴木 剛, 辻川 夕貴, 濱田 雅史, 佐藤 祐輔, 徐 佳笛, 任 千慧, 岡崎 浩三, 辛 埴, 松田 巖, 高山 あかり
2. 発表標題 時間分解角度分解光電子分光による Si(111)基板上Cu <sub>2</sub> Si層の電子状態の解明
3. 学会等名 2019年日本表面真空学会学術講演会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 T. Suzuki, M. Watanabe, Y. F. Lu, M. Nohara, H. Takagi, N. Katayama, H. Sawa, M. Fujisawa, T. Kanai, N. Ishii, J. Itatani, T. Mizokawa, K. Okazaki, and S. Shin
2. 発表標題 Time-resolved ARPES study on Ta <sub>2</sub> NiSe <sub>5</sub>
3. 学会等名 TASPEC (International Workshop on Trends in Advanced Spectroscopy in Materials Science) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木剛、Rohan Singh、Galan Moody、 Marc Assmann、Manfred Beyer、Arne Ludwig、Andreas Wieck、Steven T. Cundiff
2. 発表標題 二次元コヒーレント分光法によるInAs量子ドットにおけるp-shell励起子の位相緩和機構
3. 学会等名 2018年日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木剛、渡邊真莉、魯楊帆、野原実、高木英典、片山尚幸、澤博、藤澤正美、金井輝人、石井順久、板谷治郎、溝川貴司、辛埴、岡崎浩三
2. 発表標題 高次高調波レーザー時間分解光電子分光法によるTa <sub>2</sub> NiSe <sub>5</sub> のコヒーレントフォノン観測
3. 学会等名 2018年日本物理学会秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 鈴木剛、久保田雄也、下志万貴博、中村飛鳥、田久保耕、伊藤俊、山本航平、道前翔矢、平松秀典、細野秀雄、富樫格、矢橋牧名、和達大樹、松田巖、岡崎浩三、辛埴
2. 発表標題 時間分解X線回折によるBaFe <sub>2</sub> As <sub>2</sub> における超高速格子変調ダイナミクスの観測
3. 学会等名 2018年日本物理学会第74回年次大会
4. 発表年 2018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
--	---------------------------	-----------------------	----