

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 9 日現在

機関番号：10101

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24340063

研究課題名(和文)ピスマス系高温超伝導体における光誘起超伝導相転移ダイナミクスの研究

研究課題名(英文)Photoinduced superconducting phase transition dynamics in Bi-based high-Tc superconductors

研究代表者

戸田 泰則 (TODA, YASUNORI)

北海道大学・工学(系)研究科(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) 12,200,000円

研究成果の概要(和文)：ピスマス系高温超伝導体における超伝導と擬ギャップの光誘起相転移ダイナミクスを超短パルス光を用いて調査し、1)擬ギャップが自発的対称性破れを伴うこと、2)超伝導ギャップ形成と位相コヒーレンスの関係性、3)擬ギャップ形成ダイナミクスが長距離秩序を持たない局在状態を反映すること、4)アンダードープ領域において超伝導秩序形成における擬ギャップの相関が強まることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Photoinduced phase transition dynamics in the superconducting and pseudogap states of Bi-based high-Tc superconductors have been investigated using ultrashort pulses and the following conclusions are obtained: 1) existence of a spontaneous symmetry breaking in the pseudogap state, 2) distinct relationship between phase coherence and gap formation, 3) absence of long-range electronic ordering and carrier localization in the pseudogap formation, 4) enhanced contribution of the pseudogap to the gap formation in the underdoped sample.

研究分野：光物性

キーワード：光物性 光誘起相転移 ポンププローブ分光 高温超伝導体 銅酸化物 擬ギャップ

1. 研究開始当初の背景

銅酸化物高温超伝導体の物性研究は、角度分解光電子分光 (ARPES)、トンネル顕微分光 (STM/STS) に牽引されて大きく進展してきた。ARPES では波数空間、STM/STS では実空間の超伝導秩序形成が明らかになりつつある。他方、超短パルス光励起によって実現される非平衡準粒子ダイナミクス観測は、時間領域から秩序形成メカニズムを探る第三のアプローチとして精力的な研究が行われてきた。

特に研究開始当時に実現された高強度超短パルス光による相蒸発 (相融解) は非熱的な秩序形成の実時間観測を可能にしており、銅酸化物超伝導物質 [1-5] をはじめ、電荷密度波 (CDW) [6,7] や鉄系超伝導 [8] 等様々な物質系に広く応用されつつあった。一方、申請者は分担者の小田と共にピスマス系銅酸化物 (Bi2212) の準粒子ダイナミクスの選択励起に成功し、擬ギャップと超伝導ギャップの共存する条件下で超伝導相転移ダイナミクスの物性解析が可能であることを示した。

2. 研究の目的

高温超伝導体に特徴的な擬ギャップの存在が超伝導の発現に対してどのような役割を果たしているか、光誘起超伝導相転移ダイナミクスから明らかにすることを目指した。特に Bi2212 試料における擬ギャップ起源の光誘起超伝導相転移ダイナミクスに着目し、1) 時空間制御光波を用いた超伝導と擬ギャップ準粒子の選択励起、ダイナミクス検出および解析手法を確立すること、2) 擬ギャップ起源および超伝導秩序形成への関与を明らかにすること、を目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、Bi 系銅酸化物高温超伝導体に対して超短パルス光を用いた下記のポンププローブ分光を適用し、研究を実施した。

(1) 高強度ポンプパルスによる光誘起相蒸発

超伝導相 (擬ギャップ相) における準粒子ダイナミクスの光応答は、ポンプ光に対して飽和特性を示す。これは励起領域で超伝導相 (擬ギャップ相) が瞬時的に相蒸発することを意味しており、コヒーレントな超伝導相転移ダイナミクスを観測できる。また高強度パルスをプレパルスとする 3 パルス実験では、コヒーレントな秩序相形成ダイナミクスの検出が可能となる。

(2) 偏光分解ポンププローブ分光

Bi2212 試料に対して、研究成果(1)に示すようなプローブ偏光に対する応答変化が見出された。ポンプ光に対しては偏光特性を持たないこと、温度特性が擬ギャップ応答に対応していることから、自発的対称性破れにもとづく応答が検出されたと言える。対称性解析から超伝導および擬ギャップに起因する準粒子緩和を選択的に検出可能であり、光誘起超伝導相転移下における相関測定が実現でき

る。

4. 研究成果

(1) 擬ギャップ準粒子ダイナミクスにおける自発的対称性破れ

長時間安定性に優れた偏光分解型ポンププローブ分光装置を用いて、詳細な偏光分解測定を実現した。準粒子偏光応答の温度依存性は擬ギャップ転移温度 T^* 以下で有為な異方性成分の発現を示し、さらに超伝導転移温度 T_c 以下では別の対称性を持つ異方性成分が出現する。Bi2212 は層状構造面内で擬似的に等方性結晶と見なせるため、観測結果は電子状態の自発的対称性破れに帰着される。実際、超伝導と擬ギャップ準粒子の対称性解析から、各異方性成分は超伝導および擬ギャップ準粒子ダイナミクス本来の温度特性を示すことが確認され、選択励起としての有効性も実証された。偏光励起メカニズムは自発的対称性破れに伴う光誘起相転移の偏光応答変化に対応し、ラマン解析と同様の誘電率テンソルの対称要素にもとづく解析が可能となった。またインコヒーレント励起にもかかわらず対称性解析が可能となる理由は、光誘起超伝導相抑圧が瞬時的な対称性変化をもたらすことに起因している。擬ギャップ領域では、STM/STS を用いた電荷秩序やドメイン構造の存在が明らかにされており [9]、その関連性が示唆される。この観点から、擬ギャップの起源および相関スケールに対する考察を下記に示す(2)および(3)において進めた。

(2) 超伝導揺らぎに起因する秩序形成ダイナミクス

T_c 以上の温度領域 (擬ギャップ領域) において、超伝導ギャップ揺らぎに伴うクーパ対形成ダイナミクスの観測に成功し、ペアリングコヒーレンスと位相コヒーレンスとの差異を明らかにした。特にアンダードープ (UD) 試料とオプティマルドープ (OD) 試料では T_c から 20K 以上高温の温度領域において揺らぎ状態が検出された。3 パルスポンププローブ分光では、瞬時的な相蒸発に伴う秩序形成ダイナミクスが観測されるが、今回、揺らぎ領域においてペアリングダイナミクスを反映する相蒸発が確認され、クーパ対形成時間を正確に見積もることが可能となった。

高周波伝導の位相歪から見積もられるクーパ対密度とポンププローブ分光の過渡反射率変化の温度依存性はきわめて良い一致を示す。一方、前者から見積もられる位相コヒーレンスと後者のペアリング時間 (すなわち振幅コヒーレンス) は大きく異なり、位相緩和時間が T_c に向けて発散的な増加を示すのに対し、振幅緩和は単調的な増加によってコヒーレントな超伝導相へと連続的に変化することを見出した。測定結果は振幅と位相コヒーレンスが独立した異なる時間スケールを有していることを示している。

(3) 擬ギャップの相関スケール

(2)で明らかにした T_c 以上の揺らぎ領域における超伝導および擬ギャップ準粒子の共存は、擬ギャップがモットギャップ的な局在状態を反映していることを示唆している。しかしながら不均一性を伴う擬ギャップ準粒子の緩和ダイナミクスの逐次的温度特性から相関スケールを見積もることは困難である。本項目では、光誘起相蒸発を用いた3パルス測定を擬ギャップ相に適用し、瞬時的な相抑制を通してコヒーレントな擬ギャップ形成ダイナミクスの観測に成功した。3パルス測定において擬ギャップは時間に対して一様に形成されるため、もし長距離秩序を起源とするならば、臨界緩和を反映した発散的なダイナミクスが観測される。系統的な測定結果は Bi2212 試料において臨界緩和が存在しないこと、すなわち擬ギャップは集団的電子秩序を起源とするのではなくモットギャップ的な局在状態であることを明らかにした。ダイナミクスから見積もられる相関長は 25 Å 以下であり、これは ARPES の結果と良く一致する[10]。

(4)ホール濃度特性から見た超伝導と擬ギャップ相関特性

Bi 試料において、擬ギャップはアンダードープ(UD)領域で大きく発達し、オプティマルドープ(OP)に向けて単調に減少した後、オーバードープ(OD)領域で消失もしくは非支配的となる。したがって擬ギャップを理解する上で、ホール濃度の異なる試料に対する系統的な測定が重要となる。上記(1)-(3)の各項目の結論は、いずれも系統的な測定結果にもとづいているが、本項目では T_c 以下の温度領域で観測される超伝導と擬ギャップ準粒子の相関ダイナミクスについて調査した。

T_c 以下の温度領域で強度超短パルス光による相蒸発を用いると、超伝導秩序形成に遅延が生じる様子が観測される。他方、擬ギャップは超伝導相飽和条件において独立な緩和ダイナミクスを示す。超伝導の秩序形成時における擬ギャップ準粒子応答の大きさは、強度と無関係に一定の値を示し、超伝導秩序形成への関与が示唆される。ほぼ同一の励起条件においてホール濃度依存性を調べると、擬ギャップ応答の大きさは OD > UD に対して小さくなる傾向が観測された。この結果は擬ギャップの発達する UD 領域において、 T_c が低くなるにもかかわらず超伝導秩序形成に対して擬ギャップの寄与が強まることを示している。

(5)Bi2212 以外の関連物質への展開

上記項目において確立した手法を用いて、下記関連物質の物性探索へと展開した。

1 次元ナノカーボン系物質：金属相における緩和ダイナミクスから電子格子相互作用を見積もり、カーボン系物質の特徴、特に超

伝導との関係性を明らかにした。

有機超伝導物質：化学圧力や磁気特性の異なる低次元有機導体に対する系統的な調査を行い、準粒子緩和ダイナミクスの特異性および銅酸化物高温超伝導体との類似性を示すことができた。

CDW 系物質：長距離秩序が支配的である CDW 系物質に対して系統的な調査を行い、高温超伝導物質との差異と類似性について明らかにした。

<引用文献>

- [1]Phys. Rev. Lett. 101, 227001 (2008).
- [2]Phys. Rev. B 79, 224502 (2009).
- [3]Nature commun. 2, 323 (2011).
- [4]Phys. Rev. B 72, 060510R (2005).
- [5]Phys. Rev. Lett. 99, 197001 (2007).
- [6]Nature Phys. 6, 681 (2010).
- [7]Nature 468, 799 (2010).
- [8]Phys. Rev. Lett. 102, 117002 (2009).
- [9]Science 315, 1380 (2007).
- [10]Rep. Prog. Phys. 62, 61-122 (1999)

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計12件)

I. Madan, T. Kurosawa, Y. Toda, M. Oda, T. Mertelj, P. Kusar and D. Mihailovic, "Evidence for carrier localisation in the pseudogap state of cuprate superconductors from coherent quench experiments", Nature commun. 6, 6958 (2015), 査読有, DOI: 10.1038/ncomms7958

Y. Toda, F. Kawanokami, T. Kurosawa, M. Oda, I. Madan, T. Mertelj, V. V. Kabanov, D. Mihailovic, "Rotational symmetry breaking in Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+δ} probed by polarized femtosecond spectroscopy", Phys. Rev. B. 90, 094513-1-5 (2014), 査読有, DOI : 10.1103/PhysRevB.90.094513

I. Madan, T. Kurosawa, Y. Toda, M. Oda, T. Mertelj, P. Kusar and D. Mihailovic, "Separating pairing from quantum phase coherence dynamics above the superconducting transition by femtosecond spectroscopy", Sci. Rep. 4, 5656 (2014), 査読有, DOI : 10.1038/srep05656

S. Ono, Y. Toda, and J. Onoe, "Unified understanding of the electron-phonon coupling strength for nanocarbon allotropes", Phys. Rev. B. 90, 155435-1-5 (2014), 査読有, DOI : 10.1103/PhysRevB.90.155435

C. Gadermaier, V.V. Kabanov, A.S.

Alexandrov, L. Stojchevska, T. Mertelj, C. Manzoni, G. Cerullo, N.D. Zhigadlo, J. Karpinski, Y.Q. Cai, X. Yao, Y. Toda, M. Oda, S. Sugai, and D. Mihailovic, "Strain-Induced Enhancement of the Electron Energy Relaxation in Strongly Correlated Superconductors", Phys. Rev. X 4, 011056 (2014), 査読有, DOI : PhysRevX.4.011056

T. Naito, S. Matsuo, T. Inabe, Y. Toda, "Direct Observation and Interpretation of Carrier Dynamics of Molecular Magnetic Superconductors", J. Supercond. Nov. Magn. 26, 1679-1682 (2013). , 査読有, DOI : 10.1007/s10948-012-2007-1

Shota Ono, Hiroyuki Shima, and Yasunori Toda: "Revealing the anomalous nonequilibrium carrier relaxation dynamics in C60-related materials" Trans. Mater. Res. Soc. Jpn. 38, 283-286 (2013), 査読有, DOI : 10.14723/tmrsj.38.283

Y. Toda, T. Mertelj, P. Kusar, T. Kurosawa, M. Oda, M. Ido, D. Mihailovic: "Impact of pseudogap on photoinduced superconducting phase transition in underdoped Bi2212: "Physica C : Superconductivity and its applications, 493, 112-113 (2013), 査読有, DOI: 10.1016/j.physc.2013.03.041

Shota Ono, Hiroyuki Shima, and Yasunori Toda: "Theory of photoexcited carrier relaxation across the energy gap of phase-ordered materials" Phys. Rev. B 86, 104512 (2012), 査読有, DOI : 10.1103/PhysRevB.86.104512

T. Naito, S. Matsuo, T. Inaba, and Y. Toda: "Carrier Dynamics in a Series of Organic Magnetic Superconductors" J. Phys. Chem. C 116. 2588-2593 (2012), 査読有, DOI : 10.1021/jp210966u

J. Onoe, T. Ito, SI. Kimura, H. Shima, Y. Toda, H. Yoshioka: "One-Dimensional Uneven Peanut-Shaped C60 Polymer : A Quantum Electronic System in Riemannian Space" Fullerenes, Nanotubes and Carbon Nanostructures 20. 1-16 (2012), 査読有, DOI : 10.1080/1536383X.2011.586618

K. Yamane, Y. Toda, and R. Morita: "Ultrashort optical-vortex pulse generation in few-cycle regime" Opt. Express 20. 18986-18993 (2012), 査読有, DOI:10.1364/OE.20.018986

{ 学会発表 } (計 10 件)

Y. Toda, K. Watanabe, S. Tsuchiya, T. Kurosawa, M. Oda, T. Mertelj, I. Madan, V. V. Kabanov, D. Mihailovic, "Time-resolved polarimetry for quasi-particle dynamics in Bi2212" 10th International Conference on New Theories, Discoveries, and Applications of Superconductors and Related Materials, New3SC-10, (20141026) Chongqing, China (招待講演).

土屋 聡, 菅原悠太, 丹田 聡, 戸田 泰則, 2次元層状化合物 DyTe₃ における光誘起準粒子ダイナミクスのプローブ偏光特性, 日本物理学会 2014 年秋季大会 7aBB-2 中部大学 (春日井市) 9月(2014).

渡辺健太, 土屋 聡, 戸田 泰則, 板垣征一郎, 黒澤 徹, 小田 研, Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+d} のノード・アンチノード対称性にもとづく光誘起準粒子ダイナミクスの選択的観測, 第75回応用物理学会秋季学術講演会 北海道大学 (札幌市) 9月17 - 20日(2014).

Y. Toda, K. Watanabe, S. Tsuchiya, T. Kurosawa, M. Oda, T. Mertelj, I. Madan, V. V. Kabanov, D. Mihailovic, "Polarized femtosecond spectroscopy for quasiparticle dynamics associated with symmetry breaking in Bi₂Sr₂CaCu₂O_{8+d}" 5th International Conference on Photo Induced Phase Transitions and Cooperative Phenomena (PIPT5) (20140608), Hotel Golf, Bled, Slovenia (招待講演)

S. Tsuchiya, Y. Sugawara, S. Tanda, Y. Toda, "Femtosecond pump-probe spectroscopy for a charge-density-wave system of DyTe₃ resolved by the probe polarization", 5th International Conference on Photo Induced Phase Transitions and Cooperative Phenomena (PIPT5) (20140608), Hotel Golf, Bled, Slovenia.

川之上 史篤, 土屋 聡, 戸田 泰則, 板垣征一郎, 黒澤 徹, 小田 研, 伊土 政幸, "オーバードープ高温超伝導体(Bi2212)の光誘起超伝導相転移における準粒子ダイナミクス" 第49回応用物理学会北海道支部 / 第10回日本光学会北海道地区合同学術講演会 A-28 北海道大学 (札幌市), 12月(2013)

川之上史篤, 戸田 泰則, 板垣征一郎, 黒澤 徹, 小田 研, 伊土 政幸, "OD-Bi2212 の光誘起超伝導相転移における準粒子ダイナミクス" 日本物理学会 2013 年秋季大会 26aKQ-8 徳島大学 (徳島市) 9月(2013)

Y. Toda, F. Kawanokami, T. Kurosawa, M. Oda, M. Ido, T. Mertelj, P. Kusar, D. Mihailovic: "Role of pseudogap in the photoinduced superconducting phase transition of underdoped Bi2212" Study of matter at extreme conditions 2013 Inhomogeneous Superconductors and Related Functional Materials. (20130328). Miami Florida USA (招待講演)

Y. Toda, T. Mertelj, P. Kusar, T. Kurosawa, M. Oda, M. Ido, D. Mihailovic: "A study of pseudogap in UD-Bi2212 using ultrafast optical spectroscopy" International Workshop on Spintronic Nano-Materials. (20121106). Hokkaido University, Sapporo, Japan (招待講演)

Y. Toda, T. Mertelj, P. Kusar, T. Kurosawa, M. Oda, M. Ido, D. Mihailovic: "Impact of pseudogap on photoinduced superconducting phase transition in underdoped Bi2212" 9th International Conference on New Theories, Discoveries, and Applications of Superconductors and Related Materials, New3SC-9. (20120919). Frascati - Rome, Italy (招待講演)

〔図書〕(計1件)

Y. Toda and R. Morita, "Laser Spectroscopy Using Topological Light Beams", Springer Series in Progress in Nanophotonics 3, 2014, pp 83-117, Eds. T. Yatsui and M. Ohtsu

〔その他〕

ホームページ等

<http://renault-ap.eng.hokudai.ac.jp/Research.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

戸田 泰則 (TODA YASUNORI)

研究者番号 : 00313106

北海道大学・大学院工学研究院・教授

(2) 研究分担者

小田 研 (ODA MIGAKU)

研究者番号 : 70204211

北海道大学・大学院理学研究院・教授