

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 3 日現在

機関番号：12601

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2013～2014

課題番号：25800175

研究課題名(和文) 高強度THzパルスを用いた非平衡BCS状態のコヒーレント制御

研究課題名(英文) Coherent control of nonequilibrium BCS state by intense THz pulse

研究代表者

松永 隆佑 (Matsunaga, Ryusuke)

東京大学・理学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：50615309

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)：高強度モノサイクルテラヘルツパルスによる超伝導状態の非断熱的励起という手法を初めて実現し、素粒子物理のヒッグス粒子に対応した超伝導秩序パラメーターの振動現象、いわゆるヒッグスモードを観測することに成功した。またギャップ周波数以下の狭帯域高強度テラヘルツ波を用いることで秩序パラメーターをテラヘルツパルスの2倍の周波数で強制振動させることに成功し、さらにこの駆動周波数とヒッグスモードの周波数が一致した時に共鳴が生じて巨大な第三高調波が発生することを発見した。これは線形応答では光と相互作用しないヒッグスモードを非線形応答領域で共鳴させることに成功した例として大きな注目を集めた。

研究成果の概要(英文)：We realized nonadiabatic excitation to an s-wave superconductor NbTiN by using an intense monocycle THz pulse, and reported time-resolved observation of the Higgs mode as a free oscillation of the order parameter amplitude after the nonadiabatic perturbation. This collective mode is a condensed matter analog of the Higgs bosons in particle physics. We also examined the dynamics of the order parameter during the irradiation of the strong THz electric field, and showed that strong sub-gap electric field induces forced oscillation of the order parameter with twice the pump frequency, accompanied by third harmonics generation (THG). We found that the forced oscillation and THG are strongly enhanced when the nonlinear driving frequency is equal to the Higgs mode frequency. This result is the first discovery of the resonance between light and Higgs mode in nonlinear response regime and paves a way for ultrafast control of macroscopic quantum condensates by light.

研究分野：光物性

キーワード：テラヘルツ分光 ヒッグスモード 超伝導

1. 研究開始当初の背景

光誘起による相転移現象は基底状態の背後にある隠れた秩序が浮き彫りになること、光を用いて人為的に新たな物性を生み出すことから、これまで様々な物質系において興味深い現象として注目されてきた。光励起後の非平衡状態で発現する電子相関効果を明らかにし、光による新しい物質相の創成と制御の可能性を追求するためには、フェルミ面近傍の低エネルギー領域、つまりテラヘルツ (THz) 帯の応答を明らかにすることが重要である。特に 1 ピコ秒の高い時間分解能を持つ THz 時間領域分光法は、光励起後における過渡的な電子相関を詳細にプローブすることが可能である。さらに近年では非常に強い電場尖頭値を持つ高強度 THz 波の発生技術が著しく進歩しており、高強度 THz 波で誘起された新たな非平衡状態の研究が活発化している。そこで非平衡状態を THz 波で制御するための基盤となる光学測定技術を構築していくとともに、THz 帯における低エネルギーの光と物質の非線形な相互作用について理解を深めていくことが強く求められている。

2. 研究の目的

強い THz 電場で駆動された新しい量子相制御の舞台として、超伝導状態に着目する。固体金属からなる BCS 超伝導の非平衡下における電磁応答は応用上でも極めて重要であるとともに、銅酸化物や鉄・砒素系の高温度超伝導物質に代表される他の様々な新規超伝導体の理解においても礎となる非常に重要な研究対象である。さらに超伝導は、「対称性の自発的な破れ」という観点から極めて普遍的な基礎物理探索の舞台となっており、素粒子物理における南部理論やヒッグス機構と言った基本的な概念も歴史を遡れば BCS 理論に端を発している。レーザー等の外場で駆動された非平衡超伝導の時間発展を調べることは、対称性の破れた量子多体系で現れる普遍的な物理を調べることのできる重要な研究テーマである。

秩序パラメーターに対応するエネルギー領域である THz 帯の分光技術が近年進展したことで、非平衡 BCS 状態の超高速なダイナミクスを詳細に調べることが可能になった。特に高強度 THz パルスを用いることで、励起された電子 (準粒子) の余剰エネルギーによる格子系の加熱を抑えて電子系のみを強く励起したり、あるいは準粒子励起の起こらないギャップ以下の周波数で系をコヒーレントに駆動するといった、可視光では決してなしえない実験を行うことが可能になると考えられる。本研究では高強度 THz 波を駆使してこれらの実験を行うことにより、非平衡量子多体系における新しい学理を追求し、超伝導秩序パラメーターを外場によって制御する技術へと発展させることを目的として研究を遂行した。

3. 研究の方法

パルス面傾斜法と LiNbO_3 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。低エネルギー電磁場によって誘起された非平衡状態を THz 帯の電磁応答を通して観測する THz ポンプ-THz プロブ分光測定光学系を先駆的に開発した。一般的な THz 時間領域分光と同様にゲート光遅延時間を制御して THz 電場の時間波形を検出するとともに、ポンプ-プローブ間の遅延時間も精密に制御することで、プローブ電場を 2 つの時間領域で測定することができる。この 2 次元時間領域 THz 分光を用いて、非平衡超伝導の低エネルギー応答のダイナミクスをピコ秒以下の時間スケールで調べる実験を行った。

4. 研究成果

1) 非断熱的 THz パルス励起による秩序パラメーター振動 (ヒッグスモード) の観測:

金属から超伝導への相転移は、電子の波動関数の位相に関する $U(1)$ 対称性の自発的な破れを伴う。このような対称性の破れた系では、秩序パラメーターの振幅および位相の揺らぎに相当する集団励起モードが出現する。このうち振幅の振動モードは素粒子物理におけるヒッグス粒子との類似性から近年ではヒッグスモードと呼ばれ、凝縮系における研究が近年盛んに進められている。特に超伝導は長距離クーロン相互作用によってアンダーソン-ヒッグス機構が働きフォトンが伝搬できなくなる (質量を獲得する) という点で素粒子物理との類似性が極めて高く、超伝導におけるヒッグスモードの振る舞いを調べる研究が大きく注目されている。しかし超伝導のヒッグスモードは分極を伴わず、線形応答の範囲では光と結合しないため、その性質は電荷秩序波と共存する特殊な系を除いてこれまで実験的に調べられていなかった。

我々は s 波超伝導体 $\text{Nb}_{1-x}\text{Ti}_x\text{N}$ に対して THz ポンプ-THz プロブ分光測定を進めてきた。モノサイクル高強度 THz パルスを用いてギャップ端に高密度の準粒子を注入することで、格子系を加熱することなく瞬時に BCS 状態を励起することができる。このように瞬時的な摂動を与えることで、BCS 状態の応答時間よりも速く (非断熱的に) 秩序パラメーターを平衡状態の値から変化させることが可能になり、ヒッグスモードが誘起される可能性がある。さらに励起後の時間変化をもう 1 つのプローブ THz パルスによって時間分解検出することで、非平衡超伝導状態の超高速ダイナミクスを調べることが可能である。

ポンプ THz パルスが過ぎ去ってから 10 ピコ秒ほどの間、透過プローブ THz 電場に明瞭な振動が出現し、振動の周波数が励起後の秩序パラメーターの大きさ 2Δ とよく一致することが分かった。これは非断熱的励起によって誘起されるヒッグスモードの特徴とよく合致している。さらに 2 次元時間領域における

THz 分光を行い光学伝導度スペクトルの時間発展を調べ、超流動密度を反映するスペクトルウェイトが時間的に振動することを観測し、この振動がヒッグスモードであることを確かめることに成功した。

2) ヒッグスモードと光の共鳴現象の発見:

ギャップエネルギーよりも低い周波数の電磁波によってコヒーレントに駆動された BCS 状態の応答も興味深い。我々は s 波超伝導体 NbN に対して、そのギャップエネルギー $2\Delta(T=0)=1.3$ THz よりも周波数の低い狭帯域高強度 THz パルス (中心周波数 $\omega=0.6$ THz) を生成し、 $2\Delta(T)$ の値を温度によって制御しながら THz ポンプ-THz プロブ測定を行った。その結果、狭帯域 THz 波が照射されている間、秩序パラメーターが周波数 2ω でコヒーレントに振動し、さらに 3ω の周波数の第三高調波が非常に高効率に発生することを発見した。

これらの現象は、アンダーソンの擬スピン表現を用いて単色電磁場中での BCS 基底状態の時間発展を微視的に解くことでよく説明することができる。興味深いことに、これらの振動は $2\omega=2\Delta(T)$ の関係を満たすときに共鳴的に増強することが実験と理論の両面から発見された。これは非線形応答まで考慮すると電磁場のベクトルポテンシャルの 2 次の項がヒッグスモードと結合することに起因している。外場と集団励起モードが共鳴することにより、薄膜中で巨大な THz 帯非線形応答が発現することが明らかになった。

これらの実験結果は、超伝導というマクロな量子状態を光によって超高速に制御する新たな道筋を示すものである。銅酸化物高温超伝導体、鉄系超伝導体、スピン三重項超伝導体などの非従来型超伝導体への拡張も大変興味深く、今後の発展が期待される。

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 4 件)

Ryusuke Matsunaga and Ryo Shimano, Higgs amplitude mode in s -wave superconductors revealed by terahertz pump-terahertz probe spectroscopy, Proc. SPIE **9361**, 93611D (2015). 査読有

Ryusuke Matsunaga, Naoto Tsuji, Hiroyuki Fujita, Arata Sugioka, Kazumasa Makise, Yoshinori Uzawa, Hirotaka Terai, Zhen Wang, Hideo Aoki, and Ryo Shimano, Light-induced collective pseudospin precession resonating with Higgs mode in a superconductor, Science **345**, 1145-1149 (2014). 査読有

DOI: 10.1126/science.1254697

松永隆佑、島野亮、テラヘルツパルスを用いた s 波超伝導体のヒッグスモードの

観測、日本物理学会誌 **69** 巻, 453-458 (2014). 査読有

Ryusuke Matsunaga, Yuki I. Hamada, Kazumasa Makise, Yoshinori Uzawa, Hirotaka Terai, Zhen Wang, and Ryo Shimano, Higgs Amplitude Mode in the BCS Superconductors Nb_{1-x}Ti_xN induced by Terahertz Pulse Excitation, Phys. Rev. Lett. **111**, 057002-1-5 (2013). 査読有

[学会発表](計 16 件)

濱田裕紀, 富田圭祐, 松永隆佑, 島野亮, YBa₂Cu₃O₇ 薄膜におけるテラヘルツ非線形応答、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 24 日、早稲田大学(東京都・新宿区)

松永隆佑、テラヘルツ波を用いた超伝導体におけるヒッグスモードの研究(領域 5 若手奨励賞受賞記念講演)、日本物理学会第 70 回年次大会、2015 年 3 月 22 日、早稲田大学(東京都・新宿区)

Ryusuke Matsunaga and Ryo Shimano, Higgs amplitude mode in s -wave superconductors revealed by terahertz pump-terahertz probe spectroscopy (招待講演), SPIE Photonics West OPTO: Ultrafast Phenomena and Nanophotonics XIX, 2015 年 2 月 10 日、San Francisco (USA)

Yuki I. Hamada, Ryusuke Matsunaga and Ryo Shimano, Development of Time-resolved Terahertz Near-field Microscope for Observing Ultrafast Spatiotemporal Dynamics in Solids, Fujihara Seminar: Real-time Dynamics of Physical Phenomena and Manipulation by External Fields, 2014 年 9 月 24-27 日、グランドホテルニュー王子(北海道・苫小牧市)

松永隆佑, 富田圭祐, 濱田裕紀, 島野亮, s 波超伝導体 NbTiN におけるテラヘルツ波誘起ヒッグスモードのダイナミクス、日本物理学会 2014 年秋季大会、2014 年 9 月 8 日、中部大学(愛知県・春日井市)
松永隆佑、テラヘルツ波を用いた超伝導体中のヒッグスモードの研究、応用物理学会テラヘルツ電磁波技術研究会若手研究者サマースクール、2014 年 8 月 19 日、竜宮城ホテル三日月(千葉県・木更津市)
Ryo Shimano, Ryusuke Matsunaga, Yuki Hamada, Arata Sugioka, Hiroyuki Fujita, Kazumasa Makise, Yoshinori Uzawa, Hirotaka Terai, Zhen Wang, Naoto Tsuji, and Hideo Aoki, Higgs Mode and Terahertz Nonlinear Optics in Superconductors (招待講演), 19th International Conference on Ultrafast Phenomena (UP), 2014 年 7 月 10 日、沖縄コンベンションセンター(沖縄県・宜野湾市)

Ryusuke Matsunaga, Naoto Tsuji, Hiroyuki Fujita, Arata Sugioka, Hideo Aoki, and Ryo Shimano, Collective pseudospin precession

in a superconductor NbN driven by sub-gap THz electric fields, Low Energy Electrodynamics in Solids (LEES) 2014, 2014年6月30日-7月2日, Loire Valley (France)

濱田裕紀, 富田圭祐, 松永隆佑, 島野亮, 時間分解テラヘルツ近接場イメージ計測によるSi中の光励起キャリアダイナミクスの定量評価, 日本物理学会第69回年次大会, 2014年3月29日, 東海大学(神奈川県・平塚市)

松永隆佑, BCS状態におけるテラヘルツ波誘起ヒッグスモード, 日本物理学会第69回年次大会シンポジウム: 限界駆動の物質光科学, 2014年3月28日, 東海大学(神奈川県・平塚市)

松永隆佑, 島野亮, s波BCS超伝導体NbTiNにおけるテラヘルツ波誘起ヒッグスモードの観測, 第5回東京大学低温センター研究交流会, 2014年2月27日, 東京大学(東京都・文京区)

松永隆佑, THzポンプ-THzプローブ分光を用いた非平衡BCS超伝導状態の超高速ダイナミクスの研究, 第2回先進的観測技術研究会, 2014年2月21日, 高エネルギー加速器研究機構(茨城県・つくば市)

濱田裕紀, 柳済允, 松永隆佑, 島野亮, 時間分解テラヘルツ近接場顕微鏡による半導体中の光励起キャリアの動的イメージング, 2013年日本物理学会秋季大会, 2013年9月27日, 徳島大学(徳島県・徳島市)

松永隆佑, 濱田裕紀, 牧瀬圭正, 鵜澤佳徳, 寺井弘高, 王鎮, 島野亮, 非断熱的テラヘルツパルス励起によるBCS超伝導体 $Nb_{1-x}Ti_xN$ におけるヒッグスモードの観測, 2013年日本物理学会秋季大会, 2013年9月26日, 徳島大学(徳島県・徳島市)

Ryusuke Matsunaga, Yuki I. Hamada, Kazumasa Makise, Yoshinori Uzawa, Hirotaka Terai, Zhen Wang, and Ryo Shimano, Intense THz Pulse-Induced Higgs Amplitude Mode in a BCS Superconductor $Nb_{1-x}Ti_xN$ Film (招待講演), The 38th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, 2013年9月5日, Mainz (Germany)

Ryusuke Matsunaga, Yuki I. Hamada, Kazumasa Makise, Yoshinori Uzawa, Hirotaka Terai, Zhen Wang, and Ryo Shimano, Terahertz Pulse-Induced Higgs Mode in a BCS Superconductor $Nb_{0.8}Ti_{0.2}N$ Film, CLEO:2013, 2013年6月13日, San Jose (USA)

[その他]

ホームページ等

<http://thz.phys.s.u-tokyo.ac.jp/matsunaga>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松永 隆佑 (MATSUNAGA Ryusuke)
東京大学・理学(系)研究科・助教
研究者番号: 50615309