

研 究 報 告 書

「高強度テラヘルツ電場による量子多体系の非平衡物理の探索」

研究タイプ: 通常型

研究期間: 2016 年 10 月～2020 年 3 月

研 究 者: 松永 隆佑

1. 研究のねらい

超短パルスレーザー技術の発展によって、様々な物質において非平衡状態の超高速ダイナミクスがフェムト秒あるいはアト秒領域で調べられてきた。高強度化したパルスレーザーのパルス幅がモノサイクル程度にまで短くなると、パルスのキャリアエンベロープ位相に敏感な非摂動論的相互作用が現れるため、位相安定な光源を実現することが必要である。近年ではこのような光源を用いることで、光を強い ac 電場と見なし、時間変化する強い光電場と物質の相互作用が盛んに研究されている。

このような最先端フォトニクス技術が物性物理学や物質科学においても大きな役割を果たすことが期待される。しかし実際に行われている研究の対象は、一電子描像がよく成り立つ半導体や、初等的な量子力学でよく記述される原子・分子などの単純な系がその多くを占めている。現代の物質科学・物性物理学における最大の興味は、物質中の様々な自由度からなる量子力学的な多体効果と、この多体相関に由来して現れる多種多様で非自明な秩序(相)にある。凝縮系物理における素励起の典型的なエネルギースケールは meV 程度、周波数領域で言えばテラヘルツ帯に相当する。凝縮系の性質を観測し、素励起を強く引き起こして非平衡状態へと駆動するといった研究のためには、テラヘルツ光源を最大限利活用することが重要である。

近年ではテラヘルツ分光技術に加えて高強度テラヘルツパルス発生技術開発の進展が著しく、様々な非線形テラヘルツ応答の研究が国内外で進められている。しかしその多くは半導体などの単純な系をベースとしたものであり、量子的な多体相関が強く現れる複雑な系において高強度テラヘルツ光電場を活用した例はごく僅かしか報告されていない。テラヘルツ分光の最先端技術を、量子多体系の物性物理研究へと積極的に活用し役立てていくことが本研究のねらいである。本研究では、高強度テラヘルツパルス発生を主軸としたフォトニクス技術を活用して、量子多体系の凝縮状態において現れる秩序の性質を解明し、対称性の自発的な破れに付随する普遍的かつ未解明の現象を探索する。マクロスケールで発現する量子凝縮の代表といえる超伝導や、トポロジカルな電子的性質を示すディラック半金属・ワイル半金属に着目し、その非平衡ダイナミクスの解明と光電場による制御を通して、物性物理学と最先端光学技術が融合した研究分野を開拓していくことを目指す。

2. 研究成果

(1) 概要

高強度テラヘルツパルス発生を主軸としたフォトニクス技術を活用して、量子多体系の凝縮状態において現れる秩序の性質を解明していくことが本研究の主題である。具体的な主な物質系としては、

- ・ 従来型超伝導体

- ・ d 波の対称性を持つ銅酸化物高温超伝導体
- ・ ワイル反強磁性体
- ・ ディラック半金属

の 4 つの物質系について研究を行った。さらにそのためのテラヘルツ技術として、

- ・ Yb 系レーザーによる高強度テラヘルツパルス・中赤外パルス発生及び検出
- ・ 高精度偏光分解テラヘルツ時間領域分光システムの構築

などに関するフォトンクス技術開発を行った。下記ではその詳細について、研究テーマ A, B, C, D, E の 5 つに分けて解説する。

研究テーマ A では、従来型超伝導体 NbN のテラヘルツ非線形応答を結晶の対称性と電場の偏光に注目して調べた。その結果、従来型超伝導を記述するうえで最も重要な BCS 平均場近似が、非線形応答を考える際には容易に破綻し、集団励起(ヒッグスモード)を過小評価してしまうことを明らかにした。

研究テーマ B では、d 波の対称性を持つ銅酸化物高温超伝導体物 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCuO}_{8+x}$ について高強度テラヘルツ電場パルス照射における可視域の反射率変化の超高速ダイナミクスを調べた。偏光分解したポンププローブ分光により、d 波超伝導の全対称(A_{1g})ヒッグスモードの観測に初めて成功した。

研究テーマ C では、Yb 系媒質を用いたテラヘルツ技術の開拓に取り組んだ。新たなパルス圧縮方法として安価・安定で低パルスエネルギーでも可能なマルチプレート多段階自己位相変調法を開拓し、250 fs 以上のレーザーのパルス幅を 11 fs 程度にまで圧縮し、揺らぎを 0.05% 以下に抑えることに成功した。これを用いて 60 THz 帯にまたがる位相安定な広帯域パルスの発生と検出方法を確認した。

研究テーマ D では、反強磁性スピン由来の巨大応答が応用面で期待されているワイル反強磁性体において、テラヘルツ周波数帯での巨大異常ホール伝導の振る舞いを明らかにした。またディラック半金属の性質についても最先端のテラヘルツ分光技術を用いることで詳細に調べ、その光機能性を明らかにした。

(2) 詳細

研究テーマ A 「偏光分解テラヘルツ非線形分光による従来型超伝導の集団励起と BCS 平均場近似の破れの研究」

従来型超伝導体である NbN 薄膜のテラヘルツ帯非線形感受率の偏光特性を詳細に調べた。我々の過去の研究において超伝導とテラヘルツ波の非線形相互作用により第三高調波が発生することを発見し、これが超伝導特有の集団励起(ヒッグスモード)の共鳴効果によるものであることを示した。しかしその後、個別励起によっても定性的にはこの現象が説明できること、BCS 平均場近似の下では集団励起よりも個別励起の寄与の方が遥かに大きいことが理論的に指摘されたため、実験結果の解釈が議論になっていた。本研究で、我々は結晶の対称性に対するテラヘルツ電場の偏光依存性に注目しながら第三高調波の性質を調べること、非線形応答が極めて等方的であることを示した。これは個別励起では説明できず、集団励起の寄与の方が遥かに大きいことを実験的に明らかにした。

これは、通常 BCS 近似が良く成り立つとされる従来型超伝導体においても、その非線形応

答を考える際には BCS 近似が破綻しており、集団励起の寄与を著しく過小評価してしまうことを意味している。対形成相互作用における遅延効果や不純物散乱など、BCS 近似では無視されてしまう効果を取り入れた計算を行うことで実験結果をよく説明することができる。この内容は Physical Review B (Rapid Communications)誌に掲載された。

研究テーマ B 「銅酸化物超伝導体における d 波ヒッグスモードの観測」

d 波の対称性を持つ銅酸化物高温超伝導体 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCuO}_{8+x}$ について高強度テラヘルツ電場パルス(ポンプ)照射における可視域の反射率変化(プローブ)の超高速ダイナミクスを調べた。ポンプとプローブの偏光を変えることで非線形信号の中から A_{1g} 及び B_{1g} の対称性を持つ成分を抽出し、細かい温度依存性とホールドープ濃度依存性を系統的に調べることで、d 波超伝導の全対称(A_{1g})ヒッグスモードの観測に初めて成功した。この成果は Physical Review Letters 誌に掲載され、Editors' suggestion に選出された。

研究テーマ C 「Yb 系フェムト秒レーザーにおける高強度テラヘルツパルスおよび中赤外テラヘルツパルス生成」

テラヘルツ発生・検出のベースとなる超短パルス技術において、広い利得帯域が得られる Ti:S 結晶ベースのレーザーが長らく主流であったが、最近では、高安定・高繰返しが可能な Yb 系媒質によるパルスレーザーが注目されている。しかし Yb 系媒質では典型的に 200 fs 程度の長いパルス幅しか得られないという欠点がある。その点を克服することを重点的に考えながら、テラヘルツパルス発生技術の開発を進めた。まず 1 THz 周波数帯の高強度テラヘルツパルス生成を目指し、窒素冷却 LiNbO₃ 結晶の光整流効果とパルス面傾斜法を用いて、400 kV/cm を超えるテラヘルツパルス発生を確認した。中心周波数は 2 THz に達しており、これは非線形結晶の中で生じる 3 次の非線形効果によって自己位相変調が生じ、結晶伝搬中に広いバンド幅を獲得して帯域が広がったものと考えられる。

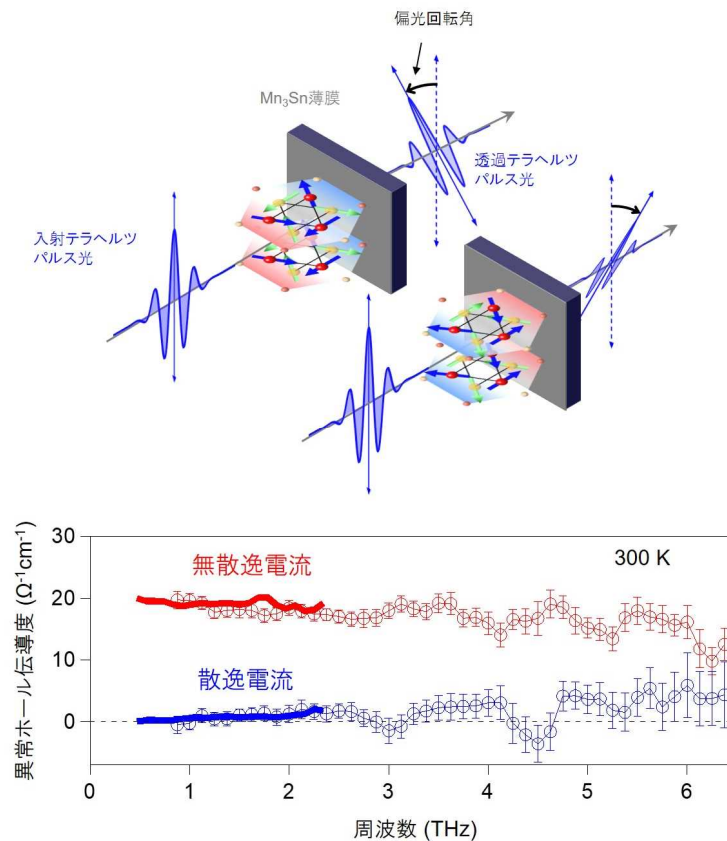
さらに数十 THz 帯の中赤外領域において位相安定な高強度テラヘルツ光源を開発することを目指し、まず差周波発生によって中赤外テラヘルツパルスを発生させ、それを光パラメトリック増幅して高強度化する方針を立てた。そのためにマルチプレート多段階自己位相変調法を導入し、250 fs 以上のレーザーのパルス幅を 11 fs 程度にまで圧縮することに成功した。これは中空ファイバーによるパルス幅圧縮と比べ極めて安価でかつ低いパルスエネルギーで実現可能であり、さらに圧縮後のショットごとの揺らぎが 0.05%以下に抑えられており安定性も極めて高い。この光源と GaSe 劈開剥片を利用して、60 THz 帯にまたがる広帯域パルスを発生させた。位相安定性はジッター 0.4 fs 以下に達しており、15 秒ほどの短い時間内に明瞭な電場波形を取得する検出方法確立した。

研究テーマ D 「ワイル反強磁性体 Mn_3Sn における室温テラヘルツ巨大異常ホール伝導」

反強磁性体は一般にスピンの歳差運動が強磁性体よりも桁違いに速くテラヘルツ周波数帯で駆動すること及び漏れ磁場が小さいことから、次世代の高速スピントロニクス材料として期待されている。しかし外場に対する応答が強磁性体と比べ非常に小さいため、スピンの情報を読み出すことが難しく、実用化には至っていない。最近マンガン化合物 Mn_3Sn が室温で

巨大な異常ホール効果を示すことが発見され、自発磁化が非常に小さい反強磁性体であるにも関わらず強磁性体並みの巨大応答を示すことから大きな注目を集めている。これは積層カゴメ格子においてスピンの逆 120 度構造を取ることによってワイル反強磁性体として振舞うためと考えられている。テラヘルツ周波数帯における Mn_3Sn の動的性質を調べることは、反強磁性スピンの巨大応答を活用した新しいスピントロニクスデバイスに繋がる可能性がある。

本研究では、 Mn_3Sn 薄膜の異常ホール伝導度スペクトルをテラヘルツ周波数領域で調べることで、反強磁性スピンの情報を高速にテラヘルツ帯で読み出すことに成功した。異常ホール伝導は光電場に対する偏光回転として現れるため、我々はテラヘルツ偏光回転スペクトルの精密計測に取り組み、0.5–2.0 THz の周波数帯において 20 min の積算で 0.05 mrad の精度が得られる高精度偏光分解テラヘルツ分光システムを構築した。これを用いて巨大異常ホール伝導をテラヘルツ周波数帯で観測し、1 THz 周波数帯でも異常ホール電流が極めて非散逸的であること、低温ではスピン秩序における時間反転対称性が回復することで偏光回転が消失すること等を示した。



ワイル反強磁性体の巨大異常ホール効果の観測。(上)反強磁性スピン秩序情報をテラヘルツパルスの偏光回転として高速に取り取ることを実現。(下)観測された異常ホール伝導度の周波数特性。1 THz 帯まではほぼ無散逸にホール電流が流れる。

3. 今後の展開

研究テーマ A 及び B については、高強度テラヘルツ波を用いた物性物理学研究として、非平衡超伝導の性質と非線形応答を明らかにすることに成功した。BCS 理論によって基本的な性質はほぼ解明されつくしたとも思われた従来型超伝導においても高強度テラヘルツパルスのような技術の進展によって基礎的な理解が進んだことは興味深く、今後もフロンティアが広がることが期待される。特に非線形応答における BCS 平均場近似の破綻を示したことで、これまで主に BCS 平均場近似によって解釈されていたラマン散乱の実験結果についても新たな議論が必要になると考えられ、ラマン散乱測定で観測されるコヒーレントピークが集団励起由来である可能性を検証したいと考えている。

研究テーマ C で実現した、Yb 系高安定フェムト秒パルスレーザーを用いた高強度テラヘルツパルス発生技術は、1 THz 周波数帯における極めて強い光源として、現在我々が進めている物性研究において極めて重要な役割を果たしている。また超短パルスレーザー圧縮技術によって 60 THz あたりにまで及ぶ高周波テラヘルツパルス発生が可能にあり、広帯域のポンププローブにより今後はトポロジカル半金属の非平衡状態を調べていく予定である。さらに今後は高周波テラヘルツパルスの光パラメトリック増幅による高強度化に取り組み、この位相安定高強度光源による光電場駆動を用いた更なる非平衡物性研究に取り組む。

研究テーマ D ではワイル反強磁性体の巨大異常ホール伝導をテラヘルツ周波数帯で観測することに成功し、反強磁性スピン情報の高速読み出しが実現した。今後はこれを高強度テラヘルツ磁場と組み合わせることで、テラヘルツ磁場により反強磁性スピンを高速反転させそれを時間分解して検出する技術に発展させることが期待される。また、異常ホール伝導度を超高速に時間分解することが可能になったため、可視光ポンプ-THz プローブ分光により光励起後の異常ホール伝導を調べる研究を進める予定である。異常ホール伝導の起源として、電子分布関数とベリー曲率に由来して散逸なしで生じる「内因性異常ホール効果」と、不純物との散乱によって決まる「外因性異常ホール伝導」の 2 種類が存在することが知られ、未だに議論の対象となっている。光励起によって電子分布関数を変化させたときの過渡的非平衡状態において電子の散乱確率と異常ホール伝導がどう変化するかを調べることで、この問題について明瞭な結論を得ることができると期待される。

4. 自己評価

研究の進め方については、さきがけ 2 年目にあたる 2017 年 7 月より東京大学物性研究所に着任して新しく研究室を立ちあげることになり、当初の予定からは方針変更が必要となった。特にもっとも大きな購入物であるフェムト秒パルスレーザーについて、新所属後の導入になったことに加えて予算前倒し申請による機器のアップグレードを行い、結果的に納品されたのがさきがけ 2 年目の年度末になるなどの遅れが生じた。しかしそれでも当初の大きな研究目的として掲げた「高強度テラヘルツ電場をベースとした最先端光技術を活用し、量子多体系と凝縮状態において現れる秩序の解明と光電場による制御を通して、物性物理学と光学技術が融合した研究分野を開拓していくことを目指す」という点において、まさにその目的に合致した成果を残すことができた。具体的には、従来型超伝導、非従来型銅酸化物高温超伝導、ワイル反強磁性体、ディラック半金属など、物性物理学・凝縮系物理学における中心的トピック

クである物質系に対して、それぞれ興味深い研究成果を上げることができた。そのベースとなっているものは、さがけ予算の大半を投じて導入した Yb 系フェムト秒パルスレーザーの再生増幅器であり、パルスエネルギー 2 mJ、繰り返し 3 kHz、パルス幅 255 fs の非常に強力かつ安定な光源を導入できたことで、新しい研究室の立ち上げという状況下においても先端的な実験が可能となった。このレーザーを用いてテラヘルツを中心とした最先端光技術をさらに進め、本さがけ研究にも、高強度テラヘルツ発生、位相安定中赤外テラヘルツパルス発生、高精度偏光分解テラヘルツ時間領域分光など、それぞれの計測に必要な光学システムを立ち上げて活用し、物性研究に役立てることができた。

特に、ワイル反強磁性体およびディラック半金属に対して行った研究では、テラヘルツ周波数における新たな光機能性を「室温で」発現している点を実証したという点が重要である。ワイル反強磁性体におけるテラヘルツ巨大異常ホール伝導、およびディラック半金属におけるテラヘルツ巨大非線形伝導と周波数変換は、いずれも物質科学における最先端トピックである電子状態のトポロジーに起因した新奇応答によるものであり、これを活用した高速テラヘルツスピントロニクスおよびエレクトロニクスにおけるデバイス開発に役立つことが期待される。

5. 主な研究成果リスト

(1) 論文(原著論文)発表

1. Ryusuke Matsunaga, Naoto Tsuji, Kazumasa Makise, Hirotaka 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 Rapid Communications* (2017) 96, 020505(R) (2017).
2. 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).
3. Takuya Matsuda, Natsuki Kanda, Tomoya Higo, N. P. Armitage, Satoru Nakatsuji, and Ryusuke Matsunaga, "Room-Temperature Terahertz Anomalous Hall Effect in Weyl Antiferromagnet Mn_3Sn Thin Films", *Nature Communications* in press (2020).

(2) 特許出願

研究期間累積件数: 0 件(公開前の出願件名については件数のみ記載)

(3) その他の成果(主要な学会発表、受賞、著作物、プレスリリース等)

<https://www.jst.go.jp/pr/announce/20200318-2/index.html> (受賞) 平成 30 年度科学技術分野の文部科学大臣表彰 若手科学者賞、2018 年 4 月 17 日

- ・ (Invited talk) Ryusuke Matsunaga, "Ultrafast dynamics in superconductor and Dirac semimetal with efficient terahertz harmonic generation", Workshop for Nano- and Ultrafast Surface Sciences, Garching, Germany, Sep. 25-27th, 2019 (Invited talk)
- ・ (招待講演) 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", 一般社団法人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

- (Invited talk) Ryusuke Matsunaga, "Higgs Amplitude Mode in Superconductors Studied by Nonlinear Terahertz Spectroscopy", the 31st International Symposium on Superconductivity, Tsukuba, Japan, Dec. 12-14th, 2018 (Invited talk)
- (招待講演) 松永隆佑、"テラヘルツ非線形分光による超伝導ダイナミクス研究の戦略"、シンポジウム「テラヘルツ科学の最先端 IV」(KKR ホテル熱海), 2017 年 12 月 4-6 日
- プレスリリース「反強磁性金属薄膜のテラヘルツ異常ホール効果を観測」2020 年 3 月 18 日