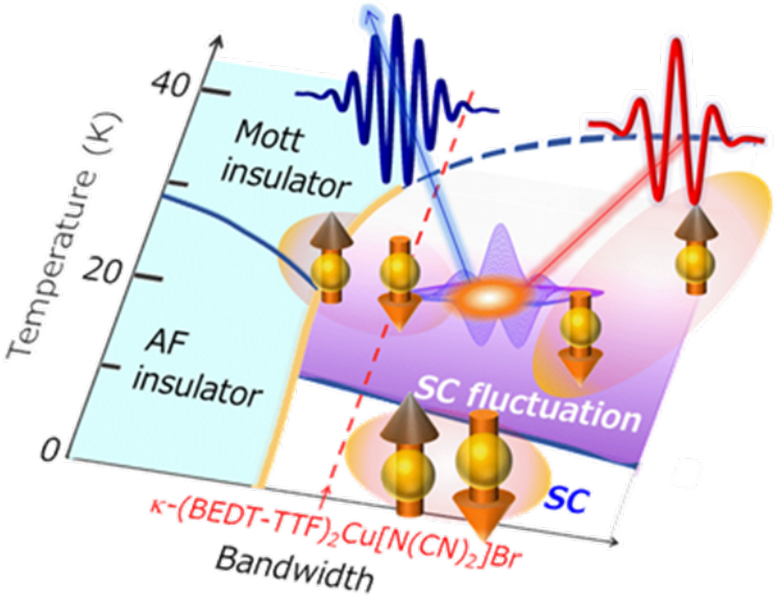

超伝導体内の電流を光で操ることに成功

究極の短パルスレーザー技術が拓くペタヘルツ電子テクノロジー

【発表のポイント】

- 物質中に方向の定まった正味の（平均してもゼロにならない）電流を振動電場である光電場によって流すことはできなかった。
- 超短パルス光の位相制御技術を用いて、超伝導体中に方向の決まった電流を発生させることに成功した（オームの法則に従わない物質中の電子の加速を実現）。
- 銅酸化物や鉄ヒ素化合物などの高温超伝導体 (注 1) への展開により、室温近傍で現在の 1 万倍の超高周波（ペタヘルツ）電子回路の可能性が拓かれる。

【概要】

ペタ（千兆）ヘルツの超高周波電場である光は、現在のギガ（10億）ヘルツ駆動エレクトロニクスを飛躍的に高速化（高周波化）するポテンシャルを秘めています。しかし、振動電場である光によって、電子回路の基本動作である電流を一方向へ流すこと（電子を動かす方向を決めること）はできませんでした。名古屋大学大学院工学研究科の岸田英夫教授、中村優斗助教、東北大学大学院理学研究科の岩井伸一郎教授、川上洋平助教らのグループは、有機超伝導体 (注2) に極めて時間幅の短い光パルスを照射した瞬間、向きの定まった電流が生じることを発見しました。この結果は、オームの法則に従わない電子の加速が超伝導体中で起きていることを示します。今後、銅酸化物や鉄ヒ素化合物などの高温超伝導の機構解明や、ペタヘルツデバイスへの応用に役立つことが期待されます。

この成果は英国科学雑誌「Nature Communications」に 2020 年 8 月 18 日午後 6 時（日本時間）にオンライン掲載されました。

【研究の背景】

物質に「向き」が生じることを物理学では「対称性の破れ」と呼んでいます。この対称性の破れは強誘電体、強磁性体、超伝導体などあらゆる物質の電気・磁気的性質を特徴付ける概念です（図 1(a)）。しかし、光によってそれを観測、操作する仕組みは単純ではありません。その理由は、光の振動電場が図 1(b)に示すように対称的な波形を持っている（平均すれば電場がゼロになる）ためです。第二高調波発生（SHG: Second harmonic generation、レーザー光などの強い光を物質に照射した際に起こる波長変換）が、物質中の電子分布の偏り（＝P[図 1(c)左]）や電流（＝j[図 1(c)右]）などの、「向き」がなければ起きないことが知られていますが、それも同じ理由によります。この「常識」は、よく知られるオームの法則 $j(t)=\sigma E(t)$（j:電流、σ:電気伝導度、E:電場）に電子の運動が従うことを前提にしています。(図 1(d)右上)。オームの法則は、電子が数多くの散乱（損失）を経るために電流が電場に比例するプロセスを記述するものです。もし散乱がなければオームの法則は成り立たず、電子は図 1(d)の右下に示すように、光電場による加速を受けます。注目すべきことに、この無散乱状態における電子の加速運動は、電場の時間平均がゼロであっても正味の電流を生じます。つまりこのメカニズムによって、光によって電流の向きを決めることができます。しかし、物質中の電子の散乱時間はとても短く(およそ 4～40 フェムト秒、1 フェムト秒は 1000 兆分の 1 秒)、その間に電子を加速することは極めて困難と言われてきました。

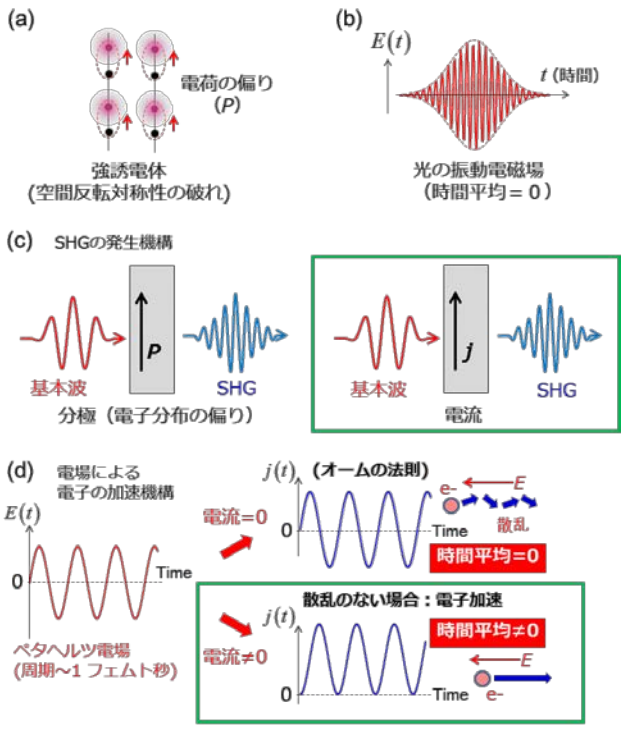

図 1(a)「対称性の破れ」の例
強誘電体 電荷分布に偏りがある。

図 1(b) 光の電場振動波形

図 1(c) SHG の発生機構
左　電子分布の偏り（分極）
右　電流→**本研究における SHG の原理**

図 1(d) 電場による電子の加速（電流の生成）機構
左　電場波形、右上　オームの法則による電流
右下　散乱の無い電子加速による電流
→本研究における光電流の原理

【研究の内容】

・有機超伝導体からの SHG

本研究では、パルス幅およそ 6 フェムト秒（通信波長帯の近赤外光では電場振動の 1 周期に対応する時間）の極限的な短パルス光を用いることによって、散乱のない電子の加速、つまり、光による向きの定まった電流の発生に挑戦しました。

[κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu[N(CN)$_2$]Br]は、よく知られた有機分子の層状構造からなる有機超伝導体です。この物質には「向き」、つまり対称性の破れはありません。6 フェムト秒の近赤外光を照射すると、入射光(基本波)のエネルギー（0.75 eV=1653 nm）の 2 倍の光子エネルギーに第二高調波発生（SHG、図 2(a)の赤線）が観測されます（青線は第 3 高調波(THG：Third harmonic generation)）。しかし、この物質には「対称性の破れ」はないので、SHG などの偶数次の高調波は本来発生しないはずです。有機物質では電子の散乱時間は 40 フェムト秒程度であり、電場の印加時間（＝パルス幅 6 フェムト秒）の方が短いことを考えれば、電子が散乱なく加速され（一方向に電流が流れ）、SHG が生じた可能性があります。

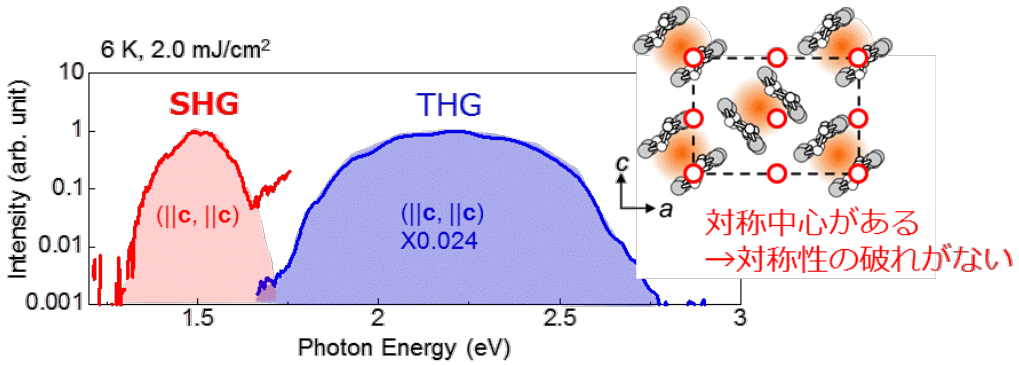

図 2 有機超伝導体κ-(BEDT-TTF)$_2$Cu[N(CN)$_2$]Br に 6 fs パルス光を照射して得られた SHG と THG（x0.024）のスペクトル。基本波、SHG、THG のいずれの偏光も c 軸に平行

・光の電場波形の制御による電流駆動メカニズムの検証

この散乱の無い電子加速による電流は、電場波形の変化に極めて敏感です。本研究では、光の振動の 1 サイクルよりもはるかに短い時間精度（～100 アト秒、1 アト秒は 100 京分の一秒）で光の電場波形を制御する技術 キャリアエンベロープ位相（Career Envelope Phase（以下、CEP）の操作）を用いて、上記の特徴を検証しました。CEP 操作は、光周波数コム(注 3)（2005 年ノーベル物理学賞）とも関係する先端光技術です。図 3(a)に示すように、光のパルス波形を特徴付ける包絡線（黒点線）の内部における、電場振動の位相（時間軸に対するずれ）が CEP です。図 3(a)に示すように CEP を光の振動周期（～5 フェムト

秒）の半周期分変化させることによって、絶対値が最大の時の電場の符号を正から負へ変えることができます。図 3(b)は、電子加速による電流の時間波形の模式図です。CEP が赤から（緑を経て）青まで半周期変化すると、電流の向きが正から負へ変化していることがわかります（CEP が 1 周期変化すると、２回反転します）。

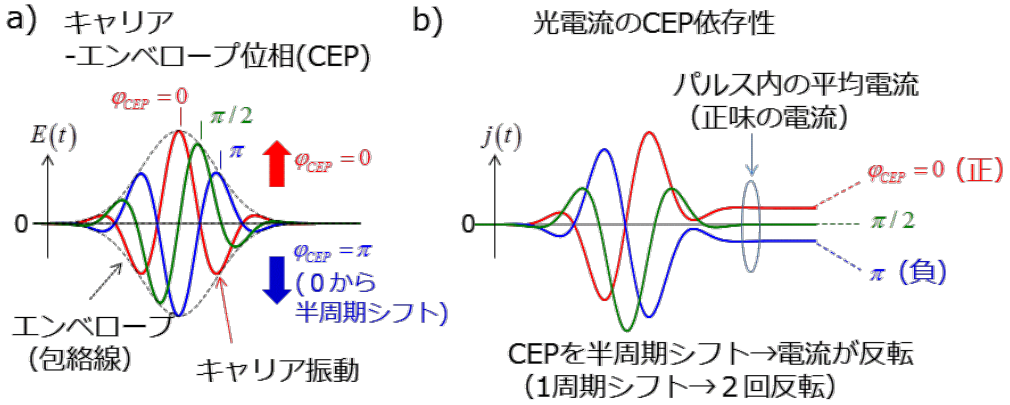

図 3 (a) 単一サイクル光電場のキャリアエンベロープ位相 CEP の模式図。キャリア振動の極大とエンベロープ（包絡線）の極大頂点が一致している場合をゼロにとっている（赤線）。(b) 無散乱の電子加速による電流の時間プロファイルの CEP 依存性。

実際に、有機超伝導体において CEP を変化させて SHG の強度を測定すると、図 4(a)のように CEP が 1 周期変化する間に SHG は 2 周期の変化を示します。図 3(b)に示すように、CEP が半周期変化すると電流の向きが反転（CEP 一周期で 2 回反転）することに対応しています。これは、電流が反転しても絶対値が同じなら SHG の強度は等しいので、2 周期の変化になるためです。このような SHG の CEP 依存性は、SHG が散乱のない電子の加速による電流を起源としていることの証拠と言えます。

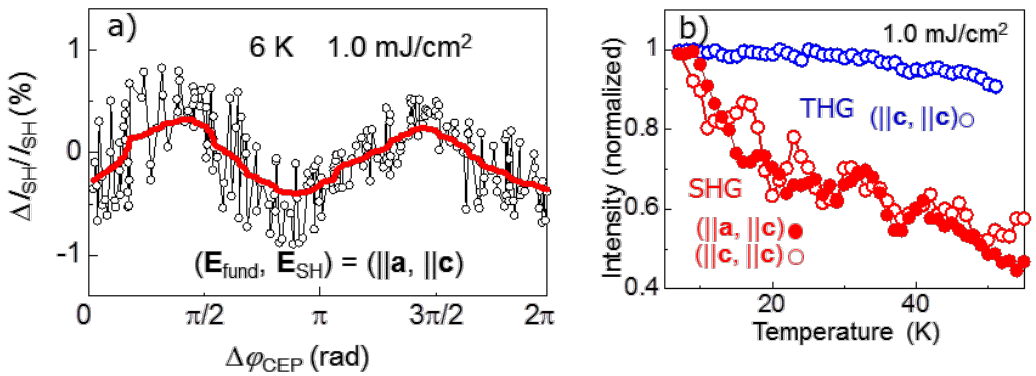

図 4　(a) SHG の CEP 依存性　(b) SHG の温度依存性

・超伝導ゆらぎとの関係

（図 1 の説明によれば）散乱のない電子加速機構によって生じる電流の舞台は、必ずしも超伝導体である必要はありません。しかし、観測された SHG は、超伝導転移温度（11.5 K）に向かって、高温側から低温側へ異常増大しています（図 4(b)）。このことは無散乱電子加速による電流の発生には、超伝導が大きく関わっていることを示しています。図 4(b)は、超伝導転移温度よりも高温（30 K 以上）から SHG が増大を開始することを示しています。図 5 の温度―圧力相図に示すように、多くの超伝導体では、超伝導転移温度以上において超伝導ゆらぎ(注 4)と呼ばれるクーパー対の短距離相関を反映した状態が注目されています。このミクロな超伝導の種とも言える状態は、超伝導の微視的機構の解明だけでなく、サブナノメートルサイズにおける低損失回路への応用も期待されています。

今回我々が観測した光電流は、単に散乱時間内の電子加速というだけでなく、超伝導揺らぎが重要な役割を果たしていることを示しています。

・まとめと波及効果

本研究では、通信波長帯（近赤外光）における単一サイクルパルスのキャリアエンベロープ位相（CEP）操作という最先端光技術を駆使し、散乱（損失）の無い電子の加速による電流を観測しました。また、この電流発生機構が超伝導ゆらぎに関係していることを明らかにしました。さらに我々が注目しているのは、図 1(d)や図 3(b)に示したように、SHG として観測した微視的な電流はフェムト秒周期で振動している「ペタヘルツ電流」です。光によるペタヘルツ電流の発生技術は、現在ギガ（10 億）ヘルツのエレクトロニクスの駆動速度を、100 万倍のペタ（1000 兆）ヘルツへと飛躍的に高周波化する可能性を秘めています。また、今回用いた有機物質では、超伝導ゆらぎは 50 K 以下に制限されますが、銅酸化物などの高温超伝導体を用いることにより、より常温に近い温度での動作も期待できます。従来このようなペタヘルツテクノロジーは、アト秒 X 線を用いて推進されていますが、今回の結果は、光を用いた相補的なアプローチが存在することを示しています。

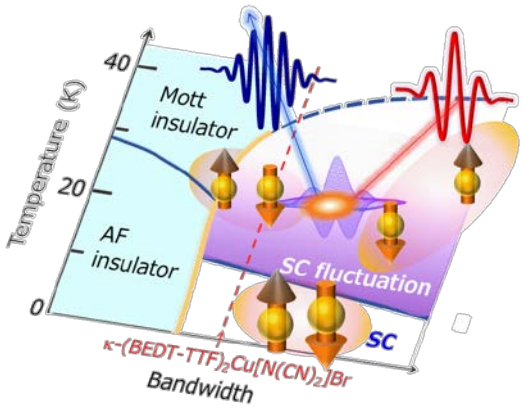

図 5　有機超伝導体の温度―圧力相図と、超伝導ゆらぎ（SC fluctuation）における第二高調波発生の概念図

【謝辞】
本研究は、科学技術振興機構（JST）戦略的創造研究推進事業 CREST 「キャリアエンベロープ位相制御による対称性の破れと光機能発現」(研究代表者 岩井伸一郎 JPMJCR1901)，および文部科学省　光・量子飛躍フラッグシッププログラム （Q-LEAP）基礎基盤研究 「強相関量子物質におけるアト秒光機能の開拓」(研究代表者 岩井伸一郎 JPMXS0118067426)の助成を受けて行われました。

【用語解説】

（注 1）高温超伝導体

水銀、鉛、ニオブなどで観測されていた超伝導は、転移温度が 20 K 以下であった。ところが 1980 年代後半、銅酸化物 $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$（イットリウム系） や $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10}$（ビスマス系）など、液体窒素温度（マイナス 196 度、絶対温度 77 K）より高温で超伝導となる物質が発見された。その後 2008 年には、鉄ヒ素化合物の超伝導体 $LaFeAsO_{1-X}F_X$(転移温度マイナス 240 度、絶対温度～30 K)が注目された。銅酸化物では、モット絶縁体に対してキャリアドープを行うことによって超伝導への転移が起こる。一方、鉄ヒ素系では、さらに複数の軌道がからみあうことが重要だと考えられる。いずれも、BCS 理論では説明できないとされ、長年の研究にもかかわらず、詳細な機構は明らかにされていない。

（注 2）有機超伝導体

1970 年代に導電性ポリマー(2000 年ノーベル化学賞)が発見される以前は、（金属元素を含まない有機物のみの化合物としては）超伝導はおろか、通常の″金属″をつくることでさえ困難であった。しかし、有機物のみからなる超伝導体の研究は 1970 年代の後半に始まり、1980 年代には、TMTSF (テトラメチルテトラセレナフルバレン)や BEDT-TTF(ビスエチレンジチオテトラチアフルバレン)と呼ばれる分子の化合物において､マイナス 270～260 度(絶対温度 0.3 K-10 K)程度の転移温度の超伝導が観測された。その後、金属をドープしたフラーレン（C_{60}）固体ではより高い転移温度（～30 K）が観測されている。これらの有機超伝導体の中で、本研究の対象物質である BEDT-TTF 化合物は、銅酸化物の高温超伝導体と同様に、モット絶縁体（クーロン反発の効果によって電荷が動けなくなった絶縁体）に関係した機構（クーロン反発や反強磁性相互作用）が示唆されているが、いずれの物質系でも詳細な機構は解明されていない。

（注 3）光周波数コム

光周波数コム（2005 年ノーベル物理学賞）は、周波数軸上で等間隔に並んだ櫛（コム）形の離散スペクトルを持つレーザー光源である。極めて高い周波数精度を持つことから、周波数標準（原子時計）の高精度化に応用されている。

本研究で用いた、モードロック超短パルスレーザーの CEP の安定化は、光周波数コム技術の一つとしても知られており、時間軸上での CEP の情報は、光コムの周波数特性と対応している。マイクロ波帯（～100 ギガヘルツ）の電波を、光周波数（ペタヘルツ）の精度で制御できるというその特徴は、光コムの周波数（～ペタヘルツ）が、共振器長で決まる繰り返し周波数（～100 メガヘルツ）と、キャリアエンベロープオフセット周波数（櫛形スペクトルを光領域から、ゼロ近傍まで外挿した際のオフセット～100 ギガヘルツ）のみで記述できることによる。

（注 4）超伝導ゆらぎ

超伝導は、クーパー対と呼ばれる電子対が、凝縮を起こすことによって生じる、電気抵抗がゼロになる現象である。この凝縮が起きる温度が超伝導の転移温度である。しかし、多くの超伝導体では、この超伝導転移温度よりも高温において、電気抵抗や磁気的性質の温度依存性に特徴的な振る舞いが見られる。これらは、クーパー対の形成が時間的、空間的に変動している（できたり壊れたりしている）ことによると考えられている。超伝導ゆらぎと呼ばれるこの現象は、本研究の対象物質である有機超伝導体や銅酸化物高温超伝導体など、多くの第二種超伝導体で見られる現象であり、超伝導の機構解明に関係していることから、多くの研究が行われている。

【論文情報】

雑誌名： Nature Communications
論文タイトル：Petahertz non-linear current in a centrosymmetric organic superconductor(空間反転対称性を持つ有機超伝導体におけるペタヘルツ非線形電流)
著者：川上洋平、天野辰也、大橋拓純、伊藤弘毅（東北大理）、中村優斗、岸田英夫（名大工）、佐々木孝彦（東北大金研）、川口玄太、山本浩史（分子研）、山本薫（岡山理科大）、石原純夫（東北大理）、米満賢治（中央大理工）、岩井伸一郎（東北大理）
DOI 番号：10.1038/s41467-020-17776-3
URL：https://www.nature.com/articles/ s41467-020-17776-3