超伝導準粒子緩和における Rothwarf-Taylor モデルの導出
A derivation of the Rothwarf-Taylor model for quasiparticle relaxation in superconductors

小野頌太 *
Shota Ono

岐阜大学　工学部　電気電子・情報工学科 応用物理コース
Department of Electrical, Electronic and Computer Engineering, Gifu University, Gifu 501-1193, Japan

概要

Starting from the Boltzmann equation for the quasiparticle and the phonon distribution functions in superconductors, we derive the Rothwarf-Taylor model that describes their dynamics near the gap edge: the quasiparticle recombination and creation via the phonon emission and absorption. We show how the coherence factor is related to the quasiparticle relaxation dynamics.

1　背景

Bardeen-Cooper-Schrieffer(BCS) 型超伝導体の基底状態は、フォノンを媒介として形成されたフェルミ面近傍電子の対（クーパー対）の凝縮相である。この励起状態は、フェルミ統計に従う準粒子（ボゴリューボフ粒子）の生成によって表すことができる。準粒子のエネルギースペクトルには、フェルミ面直上で超伝導ギャップ Δ が開いている。従って、2Δ 以上の熱エネルギーまたは光エネルギーが系に与えられると、クーパー対の結合が断ち切られ 2 個の準粒子が生成される。その準粒子ダイナミクスに関する研究は、超伝導研究の黎明期から現在まで長い歴史がある。現在では、ギャップ端にある準粒子の緩和過程は、フォノンの吸収・放出による 2 個の準粒子の生成・消滅過程からなると考えられている。具体的には、準粒子は 2Δ 以上のエネルギーを持つ高エネルギーフォノンと定常状態を形成し、その緩和は高エネルギーフォノンの非調和減衰によって支配される。このように、フォノンによってその緩和が支配される現象をフォノンボトルネック効果と呼ぶ。この効果を表す現象論モデルとして、Rothwarf-Taylor(RT) モデルが知られている [1]。

$$\frac{\partial n_{\rm QP}}{\partial t} = \gamma n_{\rm ph} - R n_{\rm QP}^2 \tag{1}$$

$$\frac{\partial n_{\rm ph}}{\partial t} = -\frac{\gamma n_{\rm ph}}{2} + \frac{R n_{\rm QP}^2}{2} - \frac{n_{\rm ph} - n_T}{\tau_a} \tag{2}$$

ここで、$n_{\rm QP}$ と $n_{\rm ph}$ は、それぞれ準粒子数と 2Δ 以上のエネルギーを持つフォノン数である。γ はフォノンによる準粒子対生成確率、R は準粒子対の消滅（再結合）確率を表す。式 (2) の因子 1/2 は、1 個のフォノンが 2 個の準粒子を生成することに対応する。式 (2) の右辺第 3 項は、高エネルギーフォノンの非調和減衰を現象論的に表しており、τ_a はその緩和時間 [2, 3]、n_T は熱平衡におけるフォノン数である。超高速分光技術の進展に伴い、この RT モデルは準粒子の過渡光学応答実験に適用されている [4]。

RT モデルの微視的導出に関して、いくつかの先行研究がある。例えば、Chang と Scalapino らは、準粒子分布とフォノン分布に対する発展方程式から出発し、RT モデルの形式的な導出を与えている [5]。しかし、導出された R や γ は、Eliashberg 関数、コヒーレンス因子、状態密度などの積の準粒子分布での期待値またはフォノン分布での期待値として表され、従ってその物理的意味の把握が難しい。また最近 Smallwood らは、半導体のバンド理論を用いて準

* shota_o@gifu-u.ac.jp

粒子励起をモデル化することで、準粒子分布ダイナミクスを擬似的に再現し、RT モデルの導出を行っている [6]。しかし、このモデルは、次節で導入するコヒーレンス因子の効果が考慮されておらず物理的に不適切である。本研究では、準粒子分布とフォノン分布に対する Boltzmann 方程式に基づき準粒子とフォノンのダイナミクスを議論し、ギャップ端の準粒子緩和を記述するモデルとして RT モデルを導出する。また、この導出においてコヒーレンス因子がどのような役割を果たすかについて明らかにする。2.1 節と 2.2 節では、準粒子フォノンハミルトニアンに現れるコヒーレンス因子および分布関数の時間発展方程式を紹介する。準粒子緩和の物理的側面のみに興味のある読者は、2.3 節まで進んでもかまわない。

2　理論

2.1　ハミルトニアン

まず正常金属における電子フォノン相互作用ハミルトニアン

$$\mathcal{H}_{\mathrm{e-ph}} = \sum_{\boldsymbol{k},\sigma}\sum_{\boldsymbol{Q}} g_{\boldsymbol{Q}} a^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}\sigma} a_{\boldsymbol{k}\sigma}(b_{\boldsymbol{Q}} + b^\dagger_{-\boldsymbol{Q}}) \quad (3)$$

から出発する。$a_{\boldsymbol{k}\sigma}(a^\dagger_{\boldsymbol{k}\sigma})$ は波数 $\boldsymbol{k}$ とスピン σ の電子についての消滅（生成）演算子である。$b_{\boldsymbol{Q}}(b^\dagger_{\boldsymbol{Q}})$ は波数 $\boldsymbol{Q}$ のフォノンについての消滅（生成）演算子である。$a^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}\sigma} a_{\boldsymbol{k}\sigma} b_{\boldsymbol{Q}}$ は、$(\boldsymbol{k},\sigma)$ の電子が $\boldsymbol{Q}$ のフォノンを吸収することで、$(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q},\sigma)$ の電子に散乱される過程を表す。同様に、$a^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}\sigma} a_{\boldsymbol{k}\sigma} b^\dagger_{-\boldsymbol{Q}}$ は、$-\boldsymbol{Q}$ のフォノンを放出する電子散乱過程を表す。$g_{\boldsymbol{Q}}$ はこれらの過程を表す行列要素である。変形ポテンシャル相互作用を介した電子-音響フォノン散乱を仮定し、行列要素は $\boldsymbol{Q}$ のみに依存すると仮定した。

次に式 (3) を準粒子フォノン相互作用ハミルトニアンに変換する。電子と超伝導準粒子との関係は、以下の Bogoliubov 変換によって与えられる。

$$\begin{pmatrix} a_{\boldsymbol{k}\uparrow} \\ a^\dagger_{-\boldsymbol{k}\downarrow} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} u^*_{\boldsymbol{k}} & v_{\boldsymbol{k}} \\ -v^*_{\boldsymbol{k}} & u_{\boldsymbol{k}} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \alpha_{\boldsymbol{k}} \\ \beta^\dagger_{-\boldsymbol{k}} \end{pmatrix} \quad (4)$$

ここで、$\alpha_{\boldsymbol{k}}$ と $\beta_{\boldsymbol{k}}$ は、それぞれ電子的またはホール的な準粒子の消滅演算子である。振幅は

$$u^2_{\boldsymbol{k}} = \frac{1}{2}\left(1 + \frac{\xi_{\boldsymbol{k}}}{E_{\boldsymbol{k}}}\right), \quad v^2_{\boldsymbol{k}} = \frac{1}{2}\left(1 - \frac{\xi_{\boldsymbol{k}}}{E_{\boldsymbol{k}}}\right) \quad (5)$$

で与えられる。$\xi_{\boldsymbol{k}}$ はフェルミエネルギーから測った一粒子エネルギー、$E_{\boldsymbol{k}} = \sqrt{\xi^2_{\boldsymbol{k}} + \Delta^2}$ は準粒子エネルギーである。式 (3) は、$\sum_{\boldsymbol{k},\boldsymbol{Q}} g_{\boldsymbol{Q}}(b_{\boldsymbol{Q}} + b^\dagger_{-\boldsymbol{Q}})$ を省略し $\sum_\sigma a^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}\sigma} a_{\boldsymbol{k}\sigma}$ のみ書き下すと、フォノン吸収・放出による準粒子散乱

$$(u_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} u^*_{\boldsymbol{k}} - v_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} v^*_{\boldsymbol{k}})(\alpha^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} \alpha_{\boldsymbol{k}} + \beta^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} \beta_{\boldsymbol{k}}) \quad (6)$$

と 2 個の準粒子生成

$$(u_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} v_{\boldsymbol{k}} + u_{\boldsymbol{k}} v_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}}) \alpha^\dagger_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} \beta^\dagger_{-\boldsymbol{k}} \quad (7)$$

および 2 個の準粒子消滅

$$(u^*_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} v^*_{\boldsymbol{k}} + u^*_{\boldsymbol{k}} v^*_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}}) \beta_{-(\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q})} \alpha_{\boldsymbol{k}} \quad (8)$$

に分けることができる。ここで金属相と超伝導相との重要な差異は、式 (7) と (8) にあるように、超伝導相において、2 個の準粒子生成および消滅を表す項が現れた点にある。また、「コヒーレンス因子」と呼ばれる $u_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} u^*_{\boldsymbol{k}} - v_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} v^*_{\boldsymbol{k}}$ および $u_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}} v_{\boldsymbol{k}} + u_{\boldsymbol{k}} v_{\boldsymbol{k}+\boldsymbol{Q}}$ は、準粒子波数 $\boldsymbol{k}$ に依存して行列要素の大きさを変調し、後述するように、RT モデル導出において重要な役割を担う。

2.2　Boltzmann 方程式

2.1 節で得られた準粒子フォノン相互作用ハミルトニアンを用いると、準粒子分布・フォノン分布に対する Boltzmann 方程式を得る。次に、分布関数に対して波数平均をとり、波数表示をエネルギー表示に変換する。エネルギー E の準粒子分布を $f(E)$、周波数 ω のフォノン分布を $n(\omega)$ とする。簡単のため、準粒子に対しては電子的励起とホール的励起の対称性を仮定する。準粒子の空間的な拡散を無視すると、$f(E)$ の時間発展は、

$$\begin{aligned}\frac{\partial f(E)}{\partial t} &= 2\pi \int dE' \int d\omega C^{(-)}_{q\to p}(E,E',\omega) S[f,n] \\ &+ 2\pi \int dE' \int d\omega C^{(+)}_{q\to p}(E,E',\omega) G[f,n]\end{aligned} \quad (9)$$

のように表すことができる。ここで、$C^{(\pm)}_{q\to p}(E,E',\omega)$ は準粒子フォノン結合関数であり、

$$C^{(\pm)}_{q\to p}(E,E',\omega) = \alpha^2 F(\omega)\left(1 \pm \frac{\Delta^2}{EE'}\right) N_{\mathrm{SC}}(E') \quad (10)$$

とかける。$\alpha^2 F(\omega)$ は超伝導の強結合理論における Eliashberg 関数である。$(1 \pm \Delta^2/(EE'))$ は上述のコヒーレンス因子に由来し、$N_{\mathrm{SC}}(E) = E/\sqrt{E^2 - \Delta^2}$ は金属相の状態密度によって規格化された準粒子状

態密度である。$S[f,n]$ と $G[f,n]$ は、準粒子分布 f とフォノン分布 n の汎関数であり、それぞれ式 (6) の準粒子フォノン散乱項と式 (7) と (8) の準粒子生成・消滅項から導かれる。例えば、$G[f,n]$ は以下のように表すことができる。

$$\begin{aligned} G[f,n] = \Big\{ & n(\omega)[1-f(E)][1-f(E')] \\ & - [n(\omega)+1]f(E)f(E') \Big\} \\ & \times \delta(E+E'-\hbar\omega) \end{aligned} \tag{11}$$

$\{\cdots\}$ 内第 1 項はフォノン吸収による準粒子対生成、第 2 項はフォノン放出による準粒子対消滅を表している。3 行目の δ 関数はエネルギー保存を表しており、2 つの準粒子エネルギーの和 $E+E'$ がフォノンエネルギー $\hbar\omega$ に等しい過程のみ起こることを保証する。

同様に、フォノン分布の時間発展は

$$\begin{aligned} \frac{\partial n(\omega)}{\partial t} &= 4\pi \int dE \int dE' C^{(-)}_{p\to q}(E,E',\omega) T[f,n] \\ &\quad - 2\pi \int dE \int dE' C^{(+)}_{p\to q}(E,E',\omega) G[f,n] \end{aligned} \tag{12}$$

のように表すことができる。フォノン準粒子結合関数 $C^{(\pm)}_{p\to q}$ は、式 (10) と以下の関係にある。

$$C^{(\pm)}_{p\to q}(E,E',\omega) = \frac{2N_0 N_{\mathrm{SC}}(E)}{D(\omega)} C^{(\pm)}_{q\to p}(E,E',\omega) \tag{13}$$

ここで、N_0 は金属相のフェルミ面での状態密度、$D(\omega)$ はフォノン状態密度である。

2.3 RT モデルの導出

超伝導体への光照射により、非平衡準粒子分布が形成されたとする。超伝導ギャップ Δ よりも十分に大きなエネルギー E を持つ準粒子は、準粒子フォノン散乱を通してフォノン系にエネルギーを与える。これは、準粒子分布に対するボルツマン方程式 (9) の右辺第 1 項によって表される。このとき、式 (10) の結合関数は

$$C^{(-)}_{q\to p}(E,E',\omega) \simeq \alpha^2 F(\omega) \tag{14}$$

のように近似できるので、この準粒子フォノン散乱を正常金属相と同様の電子フォノン散乱あるいはホールフォノン散乱と考えて差し支えない（図 1 の過程 (I)）。準粒子のエネルギーがフォノン系に分配され

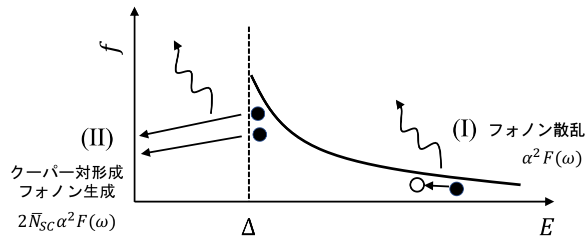

図 1　光励起された準粒子緩和の概念図。縦軸は準粒子分布、横軸は準粒子エネルギーを表す。励起された準粒子は散乱 (I)（準粒子 ⇆ 準粒子 + フォノン）を経て、ギャップ端に分布する。その後、ギャップ端において顕著となるコヒーレンス因子効果によって、散乱 (II)（準粒子 + 準粒子 ⇆ フォノン）が頻繁に起こり、準粒子とフォノンは定常分布を形成する。最終的には、エネルギー 2Δ 以上のフォノンが非調和減衰することで系は熱平衡状態に緩和する。

るにつれて、準粒子は超伝導ギャップ端 ($E \simeq \Delta$) に分布する。このとき、コヒーレンス因子効果により、

$$C^{(-)}_{q\to p}(E,E',\omega) \simeq 0 \tag{15}$$

となり、準粒子フォノン散乱が消失する。従って、準粒子分布の時間発展は、式 (9) の右辺第 2 項にのみ支配される。すなわち、準粒子緩和は 2Δ のエネルギーを持つフォノンの吸収と放出による準粒子対生成と対消滅過程によって支配される（図 1 の過程 (II)）。この最終段階の緩和は、フォノンボトルネック効果の発現として解釈でき、RT モデルによって記述される。RT モデルを導出するために、準粒子数 n_{QP} とフォノン数 n_{ph} をそれぞれ

$$\begin{aligned} n_{\mathrm{QP}} &= 4\int_{\Delta}^{\infty} dE N_0 N_{\mathrm{SC}}(E) f(E) \\ n_{\mathrm{ph}} &= \int_0^{\omega_D} d\omega D(\omega) n(\omega) \end{aligned} \tag{16}$$

によって定義する。ここで、因子 4 はスピン自由度 2 と電子ホール自由度 2 の積である。ω_D は Debye 周波数を表す。準粒子はギャップ端付近にエネルギー幅 δE で分布しており、フォノンは $2\Delta/\hbar$（$\hbar$ は Planck 定数）の周波数付近に幅 $\delta\omega(=\delta E/\hbar)$ で分布しているとする。このとき、準粒子数を $n_{\mathrm{QP}} \simeq 4f(\Delta)N_0\bar{N}_{\mathrm{SC}}\delta E$（$\bar{N}_{\mathrm{SC}}$ は $E=\Delta$ 付近の平均準粒子状態密度）、フォノン数を $n_{\mathrm{ph}} \simeq D(2\Delta)n(2\Delta)\delta\omega$ のように近似する。同様の近似のもと、式 (10) は

$$C^{(+)}_{q\to p}(E,E',\omega) \simeq 2\bar{N}_{\mathrm{SC}}\alpha^2 F(2\Delta) \tag{17}$$

となる。右辺の 2 はコヒーレンス因子を考慮することで現れたものである。以上より、式 (9) と式 (12) を用いて、n_{QP} と n_{ph} の時間発展方程式を書き下すと、それぞれ式 (1) と式 (2) が導かれる。ただし、

$$R = \frac{\pi\alpha^2 F(2\Delta)}{\hbar N_0} \tag{18}$$

$$\gamma = \frac{(4N_0\bar{N}_{\mathrm{SC}}\delta E)^2}{D(2\Delta)\delta\omega}R \tag{19}$$

であり、それぞれ $\omega \simeq 2\Delta/\hbar$ における Eliashberg 関数に比例している。また、これらの係数は、Smallwood らによって導出された表式 [6] と一致する。なお、RT モデルの導出において、式 (11) の評価に $f(E) \ll 1$ と $n(\omega) \ll 1$ であることをを用いた。この条件は低温下 $k_{\mathrm{B}}T \ll \Delta$ および弱励起下において成立する。

3 まとめ

本研究では、Boltzmann 理論に基づき準粒子分布とフォノン分布の時間発展方程式を定式化した。コヒーレンス因子効果によりギャップ端で準粒子フォノン散乱が消失することに注目し、RT モデルを微視的に導出した。本結果は、エネルギーギャップだけでなくコヒーレンス因子も準粒子緩和に影響を与えることを示唆している。

近年では、準粒子のマイクロ波吸収による非平衡分布の形成と超伝導ギャップ増強 [7]、波数空間における超伝導ギャップの対称性を反映した超高速準粒子ダイナミクス [8] など準粒子の非平衡性に起因した実験が活発に行われている。最近では、銅酸化物高温超伝導体の準粒子緩和とコヒーレンス因子とが相関を持つとの時間分解分光実験も報告されている [9]。今後は、超伝導ギャップにノードがある場合の準粒子緩和を扱う理論を整備し、実験と比較することで、超高速現象の観点から超伝導物理の理解を深めることが課題である。

参考文献

[1] A. Rothwarf and B. N. Taylor, Phys. Rev. Lett. **19**, 27 (1967).

[2] V. V. Kabanov, J. Demsar, B. Podobnik, and D. Mihailovic, Phys. Rev. B **59**, 1497 (1999).

[3] S. Ono, H. Shima, and Y. Toda, Phys. Rev. B **86**, 104512 (2012).

[4] V. V. Kabanov, J. Demsar, and D. Mihailovic, Phys. Rev. Lett. **95**, 147002 (2005).

[5] J. J. Chang and D. J. Scalapino, Phys. Rev. B **15**, 2651 (1977).

[6] C. L. Smallwood, T. L. Miller, W. Zhang, R. A. Kaindl, and A. Lanzara, Phys. Rev. B **93**, 235107 (2016).

[7] P. J. de Visser *et al.*, Phys. Rev. Lett. **112**, 047004 (2014).

[8] 戸田 泰則, 黒澤 徹, 小田 研, 日本物理学会誌, **71**, 830 (2016).

[9] J. P. Hinton *et al.*, Sci. Rep. **6**, 23610 (2016).