

高温超伝導体 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の超高速準粒子ダイナミクス

加藤遼^A, 大橋拓純^A, 天野辰哉^A, 川上洋平^A, 伊藤弘毅^A,
中村優斗^B, 岸田英夫^B, 佐々木孝彦^C, 西寄照和^D, 大串研也^A, 岩井伸一郎^A

東北大学大学院理学研究科物理学専攻^A

名古屋大学大学院工学研究科応用物理学専攻^B

東北大学金属材料研究所^C

九州産業大学理工学部電気工学科^D

Ultrafast quasiparticle dynamics in high- T_c superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$

**R. Kato^A, H. Ohashi^A, T. Amano^A, Y. Kawakami^A, H. Itoh^A,
Y. Nakamura^B, H. Kishida^B, T. Sasaki^C, T. Nishizaki^D, K. Ohgushi^A, S. Iwai^A**

Department of Physics, Tohoku University^A

Department of Applied Physics, Nagoya University^B

Institute for Materials Research, Tohoku University^C

*Department of Electrical Engineering, Faculty of Science and Engineering, Kyushu Sangyo
University^D*

We have investigated ultrafast quasiparticle dynamics in a high- T_c superconducting cuprate $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ($T_c \sim 92$ K). Transient reflectivity ($\Delta R/R$) spectra in the spectral range of 0.1-2 eV at 9 K ($T < T_c$) are characterized by the peak structure around the plasma edge (~ 1.1 eV) of the steady state reflectivity. That is attributed to the response of superconducting CuO_2 plane because we can observe it for both excitation polarization conditions $E_{\text{pump}} \parallel a$ and $E_{\text{pump}} \parallel b$. The analysis using Drude-Lorentz model considering the Drude, mid-IR, intra-band, and inter-band transitions clarifies that the spectral shape of $\Delta R/R$ is governed by the increase of the kinetic energy of the charge carriers (9 K) and scattering rate γ (295 K), respectively. Time evolution of $\Delta R/R$ measured by 6 fs pulse indicates that the increase of kinetic energy of charges plays an important role in the coherent phonon (70 meV) generation in superconducting state.

1. はじめに

銅酸化物高温超伝導体の光応答は、1990年代の始めから現在まで莫大な量の報告がある [1-3]。近年では、中赤外光による光誘起超伝導などの新たな展開も行われている [4-5]。その一方で、超伝導状態にある CuO_2 面を可視光や近赤外光で励起すると生じる準粒子 (壊れたクーパー対) のダイナミクスは、超伝導の光物性の中心課題であり続けている。し

かし、準粒子の緩和過程については多くの知見がある一方、その生成過程には未だに未解明な点が多い。

一般に超伝導ギャップのエネルギーは \sim meV であるが、銅酸化物などの非 BCS 型の超伝導体では、超伝導転移に伴って超伝導ギャップよりもはるかに高エネルギーの近赤外 \sim 紫外光スペクトルの変化が生じる。こうした広帯域の過渡スペクトルの測定や、 < 10

fs の高時間分解の測定が系統的に行われていないのは、この問題の知名度を考えれば、驚くべきことと言ってもよい。非 BCS 型超伝導体における準粒子の生成過程には、その微視的機構を解く鍵が含まれている。

本研究では、代表的な高温超伝導体の一つである $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ($T_c \sim 92 \text{ K}$) を対象に、中赤外 - 可視光領域 (0.16 - 2.1 eV) の過渡反射測定と、近赤外 6 fs パルスを用いた超高時間分解能測定を用いて、準粒子のダイナミクスを調べた。

2. 実験手法

本研究では、i) 中赤外-可視光領域 (0.16 - 2.1 eV) の広帯域波長可変 100 fs パルス、ii) 中心波長 1.7 μm ($\sim 0.7 \text{ eV}$) の近赤外 6 fs 超短パルスの 2 種類の光源を用いたポンププローブ過渡反射測定によって、光励起後のダイナミクスの観測を行った。

3. 実験結果と考察

i) 定常スペクトル

図 1(b)、(c) に本研究で用いた $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ の 10 K (超伝導相) と 300 K (常伝導相) における光学伝導度スペクトル ($E \parallel a$) を示す。これらの光学伝導度スペクトルは、0.24-4.6 eV の反射率スペクトルのクラマースローニッチ変換によって得られる。その際、先行研究[6-10]に従い、10 K, 300 K いずれの光学伝導度スペクトルも、ドルーデ応答 (300 K)、中赤外領域 ($\sim 0.1 \text{ eV}$) のピークと紫外 ($\sim 3 \text{ eV}$) の肩構造などによって再現できるように、低エネルギーと高エネルギーの反射率を外挿した (後述)。

図 1(b)、(c) の白丸は光学伝導度スペクトルを式(1)に示したドルーデローレンツモデルでフィッティングした結果である。解析方法は先行研究[6-10]に倣っており、ドルーデ項

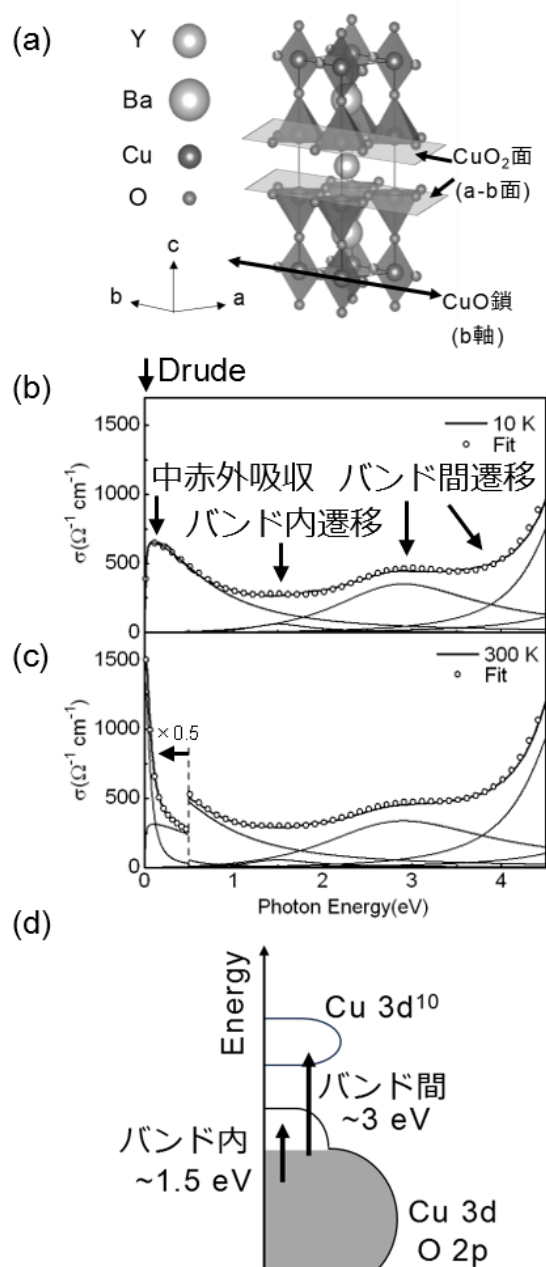


図 1: (a) $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ($y \sim 6.9$) の結晶構造、(b)(c) 光学伝導度の解析 ($E \parallel a$ 、(b) 10 K、(c) 300 K)、(d) 遷移の模式図[8-10]。

に加えて、中赤外吸収 (0.1 eV)、バンド内励起 (1.5 eV)、バンド間励起 (2.9, 4.9, 6.07 eV) などの遷移を考慮している。中赤外吸収は、低ドーパ試料 ($y=6.75$ ($T_c=65 \text{ K}$)) ではドルーデ応答とは明確に区別できるが、本測定の試料 ($y \sim 6.9$ ($T_c=92 \text{ K}$)) ではドルーデ応答と融合している[7]。バンド内励起は、部分的に満たされた酸素 2p と銅 3d 軌道からなる混成

バンド内の励起、2.9 eV のバンド間励起は占有されていない銅 3d¹⁰ バンドへの遷移と関連付けられている[8-10] (図 1(d))。

$$\epsilon(\omega) = \epsilon_{\infty} - \frac{\omega_{pD}^2}{\omega^2 + i\omega\gamma_D} + \sum_{j=1}^5 \frac{\omega_{pj}^2}{\omega_j^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j} \quad \text{式(1)}$$

ii) 過渡反射スペクトル

ii)-a 励起偏光依存性

図 2(a)に、定常反射スペクトル(10 K)、図 2(b)、(c)に、100 fs パルスを用いて測定した超伝導相における過渡反射($\Delta R/R$)スペクトル((b) $E_{\text{pump}} \parallel a$ 、励起強度 0.10 mJ/cm²、(c) $E_{\text{pump}} \parallel b$ 、励起強度 0.15 mJ/cm²、いずれも $E_{\text{probe}} \parallel a$)を示す。励起光(0.89 eV: 図 2(a)内矢印)照射直後 0.1 ps の過渡反射スペクトルは、 $E_{\text{pump}} \parallel a$ 、 $E_{\text{pump}} \parallel b$ とともにプラズマ端近傍(1.1 eV)の反射率増加のピーク構造と、その両側のスペクトル領域の反射率減少によって特徴づけられ、極めて類似している。このことは、図 2(b)(c)に示した過渡スペクトルの形状が、CuO 鎖ではなく超伝導の電子状態を反映する CuO₂ 面の応答であることを示している。

ii)-b 過渡反射スペクトルの解析(超伝導相)

図 2(b)に、過渡反射スペクトル ($E \parallel a$) とドルーデローレンツモデルによる解析結果を示す。表 1 のようにドルーデ項と各ローレンツ振動子の振動子強度と散乱レートを変化させることで過渡スペクトル形状をほぼ再現できる。この解析結果は、過渡スペクトルへの主要な寄与が、i) バンド間遷移から、中赤外吸収およびバンド内遷移へのスペクトル重率の移動と ii)各遷移の散乱レートの増大であることを示している。

紙面の都合で詳細は省くが、こうした電子の運動エネルギーの増大を示すスペクトル

重率の移動は、超伝導相のみで観測され、室温では見られない。

	定常状態	励起後0.1 ps
Drude項	$\omega_{pD}=1.24$ eV	$\omega_{pD(sc)}=0.8867$ eV [$\gamma_{D(sc)}=0$ eV]
	$\gamma_D=0$ eV	$\omega_{pD(M)}=0.8669$ eV [$\gamma_{D(M)}=0.005$ eV]
中赤外吸収	$\omega_{p1}=1.97$ eV	$\omega_{p1}=1.977$ eV(+0.36 %)
	$\gamma_1=0.8$ eV	$\gamma_1=0.804$ eV(+0.5 %)
バンド内遷移	$\omega_{p2}=0.6$ eV	$\omega_{p2}=0.646$ eV(+7.7 %)
	$\gamma_2=0.8$ eV	$\gamma_2=0.88$ eV(+10 %)
バンド間遷移	$\omega_{p3}=2.3$ eV	$\omega_{p3}=2.281$ eV(-0.81 %)
	$\gamma_3=2$ eV	$\gamma_3=2$ eV

表 1: ~11 K での過渡反射スペクトルのフィッティングパラメータ、()内の数字は定常状態からの変化の割合を示す。

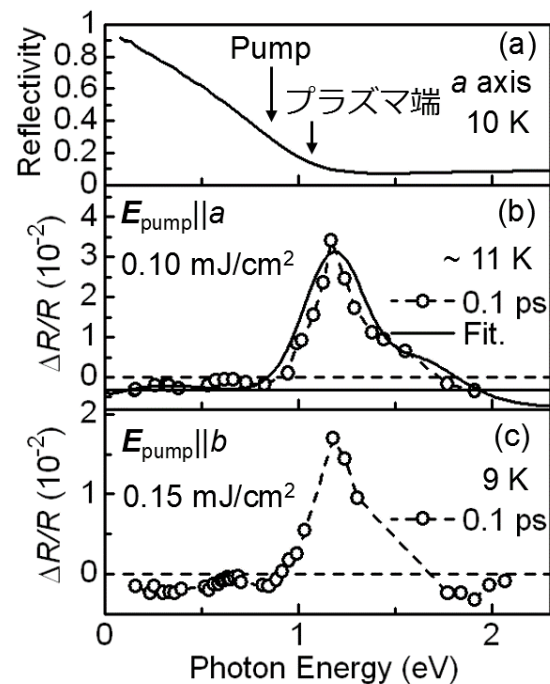


図 2:(a) 軸偏光の定常反射スペクトル(10 K)、(b)過渡反射スペクトル(~11 K, $E_{\text{pump}} \parallel a$)とドルーデローレンツモデルによる解析、(c) 過渡反射スペクトル(9 K, $E_{\text{pump}} \parallel b$)。

iii) 6 fs パルスによる過渡反射測定

図 3 に 6 fs パルス (0.6-1.0 eV) を用いて測定した、超伝導相の過渡反射の時間発展を灰色線で示す。この時間発展は、反射率減少 (立ち上がり 26 fs、減衰 53 fs、> 1ns (2成分))

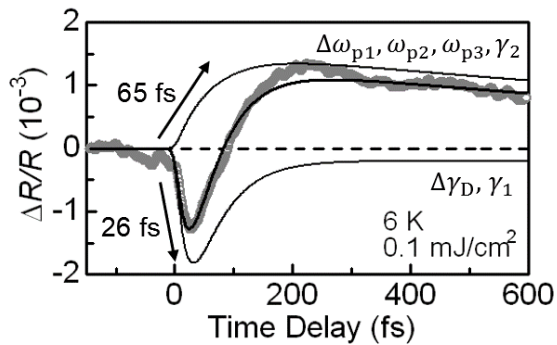


図 3: 6 fs パルスを用いて測定した過渡反射率変化。

と反射率増加(立ち上がり 65 fs, 減衰 1.5 ps)の重ね合わせによって再現できる。一方、ii)-b の解析結果を考え併せると、65 fs の立ち上がり成分は、主にバンド間遷移から中赤外吸収とバンド内遷移へのスペクトル重率の移動、26 fs の反射率減少の立ち上がりは、ドルーデ成分と中赤外吸収の散乱レートの増大を反映すると考えることができる。

図 3 の時間プロファイルには、周期 59 fs の振動成分が含まれる (図 4)。注目すべきことに、その振動数は、ARPES[11] や TrARPES[12] の先行研究で報告されている超伝導準粒子と強く結合した光学フォノンのエネルギーと符合する。

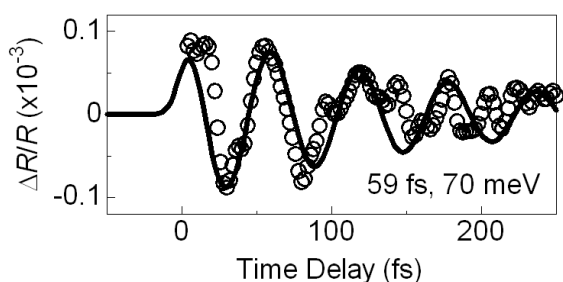


図 4: 過渡反射率変化に見られる高周波振動成分。

この結果は、光励起によって準粒子とフォノンとの結合状態が不安定化し、コヒーレントフォノンを発生することを示唆している。

4. まとめ

本研究では、最適ドーピングの高温超伝導体

YBa₂Cu₃O_y ($T_C \sim 92$ K) を対象に、光励起による準粒子の生成ダイナミクスを調べた。励起後 0.1 ps の過渡反射スペクトルには、 $E_{\text{pump}} \parallel a$ 、 $E_{\text{pump}} \parallel b$ ともにプラズマ端近傍 (1.1 eV) の反射率増加のピーク構造が見られる。このピーク構造は、主にバンド間遷移から、中赤外吸収とバンド内遷移へスペクトル重率が移動する、すなわち、電子の運動エネルギーの増大を示すものである。このスペクトル重率の移動は、超伝導相のみで観測された。

6 fs パルスを用いて測定した過渡反射の時間発展からは、上記のスペクトル重率の移動が、65 fs の時間スケールで開始することが明らかになった。また、同時に観測されたコヒーレントフォノンの周期 (59 fs) が、上記のスペクトル重率移動の時間スケールとほぼ一致する。このことは、スペクトル重率の移動がコヒーレントフォノンの生成に重要な役割を果たしていることを示唆する。

参考文献

- [1] C. Giannetti *et al.*, Adv. Phys. **65**, 58 (2016).
- [2] D. N. Bosov *et al.*, Rev. Mod. Phys. **77**, 721 (2005).
- [3] J. Demsar, J. Low Temp. Phys. **77**, 721 (2005).
- [4] D. Fausti *et al.*, Science. **331**, 189 (2011).
- [5] S. Kaiser *et al.*, Phys. Rev. B **89**, 184516 (2014).
- [6] M. A. Quijada *et al.*, Phys. Rev. B **60**, 14917 (1999).
- [7] Y. S. Lee *et al.*, Phys. Rev. B **72**, 054529 (2005).
- [8] K. Ishioka *et al.*, Phys. Rev. B **107**, 184302 (2023).
- [9] E. T. Heyen *et al.*, Phys. Rev. B **45**, 3037 (1992).
- [10] H. Romberg *et al.*, Z. Phys. B Condensed Matter **78**, 367 (1990).
- [11] A. Lanzara *et al.*, Nature **412**, 510 (2001).
- [12] W. Zhang *et al.*, Nat. Commun. **5**, 4959 (2014).