超電流は光によって誘起できるか？

室谷悠太

2020 年 3 月 22 日

1　序

超伝導体 $\mathrm{Nb_3Sn}$ 薄膜からの第二高調波発生が文献 [1] によって観測された。その起源はテラヘルツ電磁波パルスが長寿命の超電流を誘起したことだとされている。著者らはその具体的なメカニズムを考えず、何らかの非線形性が関与しているかもしれないと予想するに留めた。本稿では、線形応答の枠内でも超電流の生成が可能であることを示す。

2　超電流生成の条件

正味の電荷がないとして、静電ポテンシャルを 0 とするゲージを選ぶ。低周波において、超電流はロンドン電流

$$\mathbf{j}_{\mathrm{s}}(\mathbf{r},t) = -\frac{e^2 n_{\mathrm{s}}}{m^*}\mathbf{A}(\mathbf{r},t) \tag{1}$$

によって近似的に表される。したがって、テラヘルツパルスの入射前に $\mathbf{j}_{\mathrm{s}} = 0$ だったものが透過後に $\mathbf{j}_{\mathrm{s}} \neq 0$ となるとすれば、まず単純には

$$\lim_{t\to-\infty}\mathbf{A}(\mathbf{r},t) = 0, \quad \lim_{t\to\infty}\mathbf{A}(\mathbf{r},t) \neq 0 \tag{2}$$

となる光パルスを使えばよいように思われる。しかし普通これは許されない。なぜなら、光の電場を $\mathbf{E}(\mathbf{r},t) = -\partial\mathbf{A}(\mathbf{r},t)/\partial t$ とすると、必ず

$$\int_{-\infty}^{\infty} dt\ \mathbf{E}(\mathbf{r},t) = 0 \tag{3}$$

が成り立つからである[*1]。(3) 式は

$$\lim_{t\to\infty}\mathbf{A}(\mathbf{r},t) - \lim_{t\to-\infty}\mathbf{A}(\mathbf{r},t) = 0 \tag{4}$$

を要請し、(2) 式と矛盾する。したがって光の電場を用いて定常的な超電流を作ることはできない。しかし、実際には何も定常的である必要はなく、光との相互作用に比べて超電流の減衰が十分ゆっくりであればよいのである。実際、

$$\lim_{t\to\infty}\mathbf{A}(\mathbf{r},t) = 0 \tag{5}$$

[*1] これは次のような物理的考察をすると理解しやすい。光が入射する前、今のゲージではベクトルポテンシャルは 0、すなわち $\mathbf{A}(\mathbf{r},t=-\infty) = 0$ である。ここに電磁波が入射すると、$\mathbf{A}(\mathbf{r},t) = \int_{-\infty}^{t} dt'\ \mathbf{E}(\mathbf{r},t')$ に従ってビームが通過した領域だけベクトルポテンシャルの値が変化する。しかしビームの通過後に空間的に不均一なベクトルポテンシャルが残されていると、それは静磁場を生み出してしまう。これを避けるには、結局全空間において $\mathbf{A}(\mathbf{r},t=\infty) = 0$ としなければならず、(3) 式が要請されることになる。

であっても

$$\mathbf{A}(\mathbf{r}, t_0) \neq 0 \tag{6}$$

となるような電磁場を考えることは可能である。ここで t_0 は入射パルスが透過した後のある時刻を指す。すなわち入射電場を $\mathbf{E}_{\mathrm{in}}(\mathbf{r}, t)$ として

$$\mathbf{E}_{\mathrm{in}}(\mathbf{r}, t \geq t_0) = 0 \tag{7}$$

である。このことは、光電場の性質 (4) と組み合わせると

$$\begin{aligned}\mathbf{A}_{\mathrm{in}}(\mathbf{r}, t \geq t_0) &= \mathrm{const.} \\ &= 0\end{aligned} \tag{8}$$

を要請するため、一見すると (6) 式とそぐわない。しかし $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ は全電磁場を表しており、入射光の寄与 $\mathbf{A}_{\mathrm{in}}(\mathbf{r}, t)$ と放射の寄与 $\mathbf{A}_{\mathrm{em}}(\mathbf{r}, t)$ が足し合わさったものであることに注意が必要である。入射光が $t < t_0$ だけに限られていても、放射が $t \geq t_0$ で続いていれば (6) 式は成立しうる。もちろん放射も電磁波だから、時間がたてば (5) 式に近づいていくはずである。

これだけなら、超伝導体に限らずいかなる物質の光学応答においても起こりうることである。例えばドルーデモデルでも、放射は運動量緩和時間 τ_{tr} 程度は持続する。超電流が誘起されたと言うためには、それが (1) 式のような無散逸の電流であることに加え[*2]、減衰時間が他の典型的な時間スケールに比べて十分長いことが必要であろう。特に超伝導ギャップの逆数（ヒッグスモードの周期）$h/2\Delta$ よりも長ければよいと考えられる。

3　超電流の放射減衰

薄膜試料の場合、超電流の減衰時間を決めるのは放射減衰（radiative decay）である。試料の厚み d が小さい極限で、電磁場の境界条件より

$$\mathbf{E}(t) = \frac{2n_1}{n_1 + n_2}\mathbf{E}_{\mathrm{in}}(t) - \frac{Z_0 d}{n_1 + n_2}\mathbf{j}(t) \tag{9}$$

が成り立つ[*3]。ここで $\mathbf{E}(t)$、$\mathbf{j}(t)$ 等は薄膜上での値を指すものとし、ω_{b} は試料の背景誘電率、$Z_0 \simeq 377\ \Omega$ は真空のインピーダンスである。$n_{1,2}$ は薄膜試料を挟む媒質の屈折率で、n_1 が入射側、n_2 が透過側を表す。透過波は $\mathbf{E}(t)$ に一致し、反射波は $\mathbf{E}(t) - \mathbf{E}_{\mathrm{in}}(t)$ によって与えられる。

超電流の振る舞いは $\mathbf{j}(t) \to \mathbf{j}_{\mathrm{s}}(t)$ とおけば調べられる。このとき、(1) 式を代入することで

$$\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A}(t) = -\frac{1}{\tau_{\mathrm{s}}}\mathbf{A}(t) - \frac{2n_1}{n_1 + n_2}\mathbf{E}_{\mathrm{in}}(t) \tag{10}$$

が得られる。ただし

$$\tau_{\mathrm{s}} = \frac{(n_1 + n_2)m^*}{Z_0 d e^2 n_{\mathrm{s}}} \tag{11}$$

[*2] ジュール熱 J.H. を計算すると

$$\mathrm{J.H.} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt\ \mathbf{j}_{\mathrm{s}} \cdot \mathbf{E} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt\ \mathbf{A} \cdot \frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t} \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt\ \frac{\partial \mathbf{A}^2}{\partial t} = 0$$

より、散逸（吸収）が起こらないことがわかる。

[*3] 薄膜を挟む媒質内で平面波解を求め、それを試料位置で接続すればよい。または転送行列を使っても同じ結果に辿り着く。

とおいた。(10) 式は所与の入射光 $\mathbf{E}_{\mathrm{in}}(t)$ に対して透過光のベクトルポテンシャル $\mathbf{A}(t)$ を決める式になっており、τ_{s} はその減衰時間を与えている。これが超電流の放射減衰である。

実際には、ロンドン電流 (1) は周波数が $2\Delta/h$ よりも十分低くなければ有効でない。したがって (10) 式が妥当になるのは $\tau_{\mathrm{s}} \gg h/2\Delta$ の場合に限られる。具体的に τ_{s} の大きさを見積もると

$$\tau_{\mathrm{s}} = 1.0 \times \frac{(n_1+n_2)(m^*/m_0)}{d\ [\mu\mathrm{m}] \times n_{\mathrm{s}}\ [10^{26}\ \mathrm{cm}^{-3}]}\ \mathrm{fs} \tag{12}$$

となるから、典型的な超伝導の応答時間 $h/2\Delta \sim 1$ ps よりも大きくするには厚み d や超流動密度 n_{s} を何桁か小さくしなければならない。これがどの程度現実的なのかわからないが、少なくとも原理的には光を使って有限寿命の超電流を生み出せることがわかった。

どのような光パルスがそれに適しているだろうか。厚み d が小さければ、(9) 式は d に関する摂動論によって計算することができる。すなわち

$$\mathbf{E}(t) = \sum_{j=0}^{\infty} \mathbf{E}_j(t) \tag{13}$$

と展開し、

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_0(t) &= \frac{2n_1}{n_1+n_2}\mathbf{E}_{\mathrm{in}}(t) \\
\mathbf{E}_1(t) &= -\frac{1}{\tau_{\mathrm{s}}}\int_{-\infty}^{t} dt'\ \mathbf{E}_0(t') \\
\mathbf{E}_2(t) &= -\frac{1}{\tau_{\mathrm{s}}}\int_{-\infty}^{t} dt'\ \mathbf{E}_1(t') \\
&\ \ \vdots
\end{aligned} \tag{14}$$

に逐次代入していけばよい（$\tau_{\mathrm{s}}^{-1} \propto d$ に注意）。時間がたつと高次項が微小でなくなり、摂動展開があまりいい処理法ではなくなるが、光パルスが透過した直後は低次の $\mathbf{E}_j(t)$ だけで十分である[*4]。さて、入射光自体が作る超電流 $\mathbf{j}_0(t) \propto \int_{-\infty}^{t} dt'\ \mathbf{E}_0(t')$ がパルスの透過後に消えることは (3) 式より明らかである。しかし最低次の放射が作る超電流 $\mathbf{j}_1(t) \propto \int_{-\infty}^{t} dt'\ \mathbf{E}_1(t')$ はパルスが透過した後でも有限にすることができる。そのためには

$$\int_{-\infty}^{\infty} dt\ \mathbf{E}_1(t) \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt\ \int_{-\infty}^{t} dt'\ \mathbf{E}_{\mathrm{in}}(t') \propto \int_{-\infty}^{\infty} dt\ \mathbf{A}_{\mathrm{in}}(t) \neq 0 \tag{15}$$

であればよい。これは文献 [2] で提案された type-II プローブパルスに他ならない。cos 型の電場より sin 型の電場の方が有利ということであるが、モノサイクルパルスを使うと準粒子励起も起こしてしまうため、超電流のみを作るには単色光の方が適している。ただ、光の単色性が高くなるとキャリアエンベロープ位相はあまり重要でなくなってくるから、光で作り出せる超電流は結局あまり大きくないかもしれない。

[*4] 仮に $\mathbf{E}_0(t) = \mathbf{e}_0\tau_{\mathrm{s}}\delta(t)$ としてみよう。このとき

$$\mathbf{E}_j(t) = -\frac{\mathbf{e}_0}{(j-1)!}\left(-\frac{t}{\tau_{\mathrm{s}}}\right)^{j-1}\Theta(t)$$

となり、$t \gg \tau_{\mathrm{s}}$ では高次の項が非常に大きくなる。ただ、これから得られる

$$\sum_{j=1}^{\infty} \mathbf{E}_j(t) = -\mathbf{e}_0 e^{-t/\tau_{\mathrm{s}}}$$

は放射減衰を正しく記述しているから、展開自体が破綻するわけではなく、ある次数で打ち切ることができなくなるということである。また、パルスが透過してから τ_{s} 程度の時間は低次の項だけで十分であることも上の式から確認できる。

4　実験的検証

以上の効果が実際に起こるかどうかを調べるには、まずは超電流の放射減衰を透過電場の形で直接観測できれば理想的である。実験条件としては入射光のキャリアエンベロープ位相を操作できると嬉しい。しかし実験的にはなかなか難しいため、代わりに d や n_{s} の異なる試料を比較することも考えられる。ただ、d を大きくしすぎると薄膜極限の式 (10) が使えなくなり、話がややこしくなる[*5]。理論的にはマクスウェル方程式と連立し、さらにロンドン方程式を越えたマティス・バーディーン型の応答関数を考慮することで、より系統的な計算ができるだろう。

参考文献

[1] X. Yang, C. Vaswani, C. Sundahl, M. Mootz, L. Luo, J. H. Kang, I. E. Perakis, C. B. Eom, and J. Wang, "Lightwave-driven gapless superconductivity and forbidden quantum beats by terahertz symmetry breaking," Nat. Photon. **13**, 707 (2019).

[2] D. M. Kennes, E. Y. Wilner, D. R. Reichman, and A. J. Millis, "Nonequilibrium optical conductivity: General theory and application to transient phases," Phys. Rev. B **96**, 054506 (2017).

[*5] 例えば、今は $\tau_{\mathrm{s}} \propto d^{-1}$ となっており、試料が厚いほど放射減衰が速くなるが、これは試料全体で超電流の位相が揃っていて強い放射が起こるからである。しかし試料が厚くなり内部での位相差が現れてくると、放射の干渉が起こり始め、あるところから放射減衰が遅くなっていくように思われる。これは一種の位相整合条件として捉えることができるかもしれない。