

平成18年度 大熊研究室研究報告

極低温物性研究センター 大熊 哲

<http://www.rcltp.titech.ac.jp/~okumalab/>

第2種超伝導体の渦糸系を舞台にした新奇物理現象の探索と解明を目指した研究を進めている。本稿ではその中から、近年特に力を入れて推進している「3次元および2次元系量子液体相における異常な渦糸フロー」の最新の成果と、本年度より開始した「ピーク効果領域を含む渦糸固体相の渦糸ダイナミクス」および、モードロック共鳴法という特徴的手法を駆使した「渦糸固体の動的秩序化の観測」について報告する。

1. 3次元および2次元量子渦糸液体(QVL)相における異常な渦糸フロー

熱ゆらぎによって渦糸固体が融解することは、酸化物高温超伝導体の発見以来多くの研究によって明らかにされてきた。一方、熱ゆらぎのない絶対零度($T=0$)でも量子ゆらぎによって渦糸固体が融解するかどうかは興味ある未解明の問題である。この液体は量子渦糸液体(QVL)[1,2]と呼ばれ、主に2次元(2D)アモルファス薄膜系でその存在が議論されてきたが、その明確な実験証拠は長い間得られてこなかった。我々は、一様な構造と適度に強い乱れをもつ厚い(100 nm)アモルファス(a -) $\text{Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜の極低温・高磁場域における渦糸状態、特に量子ゆらぎが渦糸固体の融解転移と相図に及ぼす影響を系統的に調べてきた。まず $T=0.1$ Kの極低温、($T=0$ における上部臨界磁場近傍の)高磁場域まで渦糸グラス(VG)転移が起こることを、希釈冷凍機温度域における複素交流インピーダンス測定(渦糸系の臨界緩和測定)によって明らかにし、 $T=0$ まで液体相、すなわちQVL相が存在することを示した(図1上左・中)[3,4]。さらに、磁場軸上および温度軸上での(規格化された)QVL相の広さは、ほぼ常伝導抵抗率 ρ_n に比例してそれぞれ磁場軸・温度軸方向に増大することを見出した。これは、「 ρ_n が量子ゆらぎを強めることを通してQVL領域の拡大をもたらす」という描像と一致し、QVL相の確証となった[5,6]。このQVL相は、有機超伝導体[7]、酸化物高温超伝導体[8]、 MgB_2 、あるいは(ドーパされた)ダイヤモンド膜[9]でも、近年その存在が報告されている。

さて、QVL相において、どのような渦糸ダイナミクスが観測されるかは理論的にも実験的にも未知の興味ある問題である。我々は、フロー電圧の平均電圧周りのゆらぎ $\delta V(t)$ を測定することにより、QVL相では量子ゆらぎに起因すると思われる異常な渦糸フロー($\delta V(t)$ の分布 $P(\delta V)$ が非対称となり、その振幅が増大すること)を見出した[10]。さらに、ノイズスペクトラム測定により渦糸フローに伴うローレンツ型の広帯域ノイズ $S_V(f)$ を観測した[11]。これにより異常な渦糸フローの起源は、液体相中に存在する渦糸バンドルの運動によることを明らかにした。 a - $\text{Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜において観測されたこれらの現象が、物質によらない普遍

的な現象であるかどうかは興味もたれる。

そこで本研究ではまず、(1)抵抗率が $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜と近く、転移温度 T_c が数倍高い、厚い $a\text{-Mg}_x\text{B}_{1-x}$ 膜を作成し、その極低温渦糸状態を比較すること、さらに、(2)異常な渦糸ダイナミクスが出現する領域の 2 次元マップを温度-磁場相図上に作成し、その起源に関する新たな情報を得ることを目的とした。

$a\text{-Mg}_x\text{B}_{1-x}$ 膜において、磁場中の抵抗 (フロー抵抗) をアレニウスプロットすると、ある温度 (T_Q) で変曲点をもつ振舞いが観測された。これにより、 $a\text{-Mg}_x\text{B}_{1-x}$ 膜においても $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜で観測されたのと同様な QVL 相が存在することがわかった (図 1 上右)。 $\delta V(t)$ 測定を行ったところ、QVL 相 (およびその近傍) において $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜で見られたような異常な渦糸フローを観測した (図 1 下)。 さらに $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜において、高周波域における $S_V(f)$ 測定を行った結果、これまでに (低周波域で) 観測したローレンツ型の広帯域ノイズを支持する結果を得た (図 2) [11]。

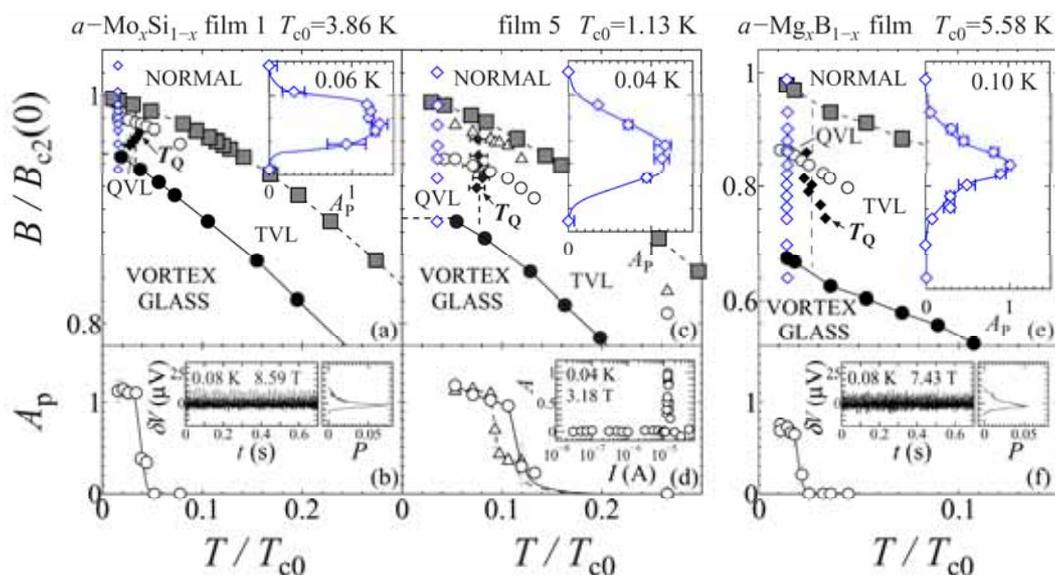


図 1 (上) $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜 (左・中) および $a\text{-Mg}_x\text{B}_{1-x}$ 膜 (右) の低温・高磁場域の温度・磁場相図。(下) 電圧ゆらぎの分布 $P(\delta V)$ の非対称性 (skewness) A_p の温度依存性. [11]

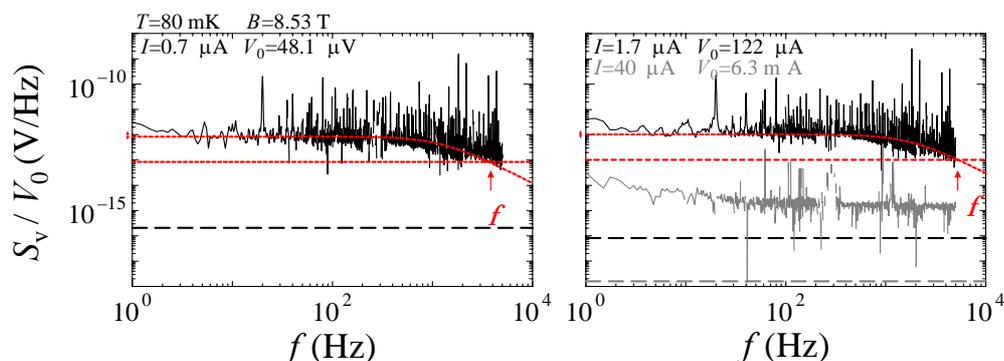


図 2 QVL 相の異なる電流値における電圧ノイズスペクトラム。これは渦糸液体の流れの中を、フロー方向にランダムに渦糸のバンドルが運動し、ノイズを発生していると解釈される.[11]

また、 $a\text{-Mg}_x\text{B}_{1-x}$ 膜では、 $P(\delta V)$ に異常な非対称性が現われ始める温度 (T_q^{Ap}) と、 δV の振幅が増大し始める温度 ($T_q^{\delta V}$) が、どちらも QVL 相の始まりを示す温度 T_Q とはほぼ一致した。これに対し、 $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜では、 $T_q^{\delta V}$ と T_Q はほぼ一致したが、 T_q^{Ap} は T_Q の約 2 倍となり、厳密には一致しなかった。これらの結果から、「 $P(\delta V)$ の非対称性が現われる領域 ($T_q^{Ap} > 0$) が、量子ゆらぎを反映した QVL 相に対応する」、あるいは「 $T_q^{\delta V}$ が QVL 相のはじまりを表し、 T_q^{Ap} は古典的に渦糸バンドルが depin される場所 (例えば渦糸スラッシュ(VS)相[12]のはじまり)を表す」という、異常なフローの起源に対する 2 つの物理的解釈を提案した。

いずれにせよ以上の結果は、QVL 相の存在、および QVL 相における異常な渦糸フローは、アモルファス系の物質によらない普遍的な現象であり、その起源は QVL 相中に存在する渦糸バンドルのランダムな (量子的) 運動にあることを示している。

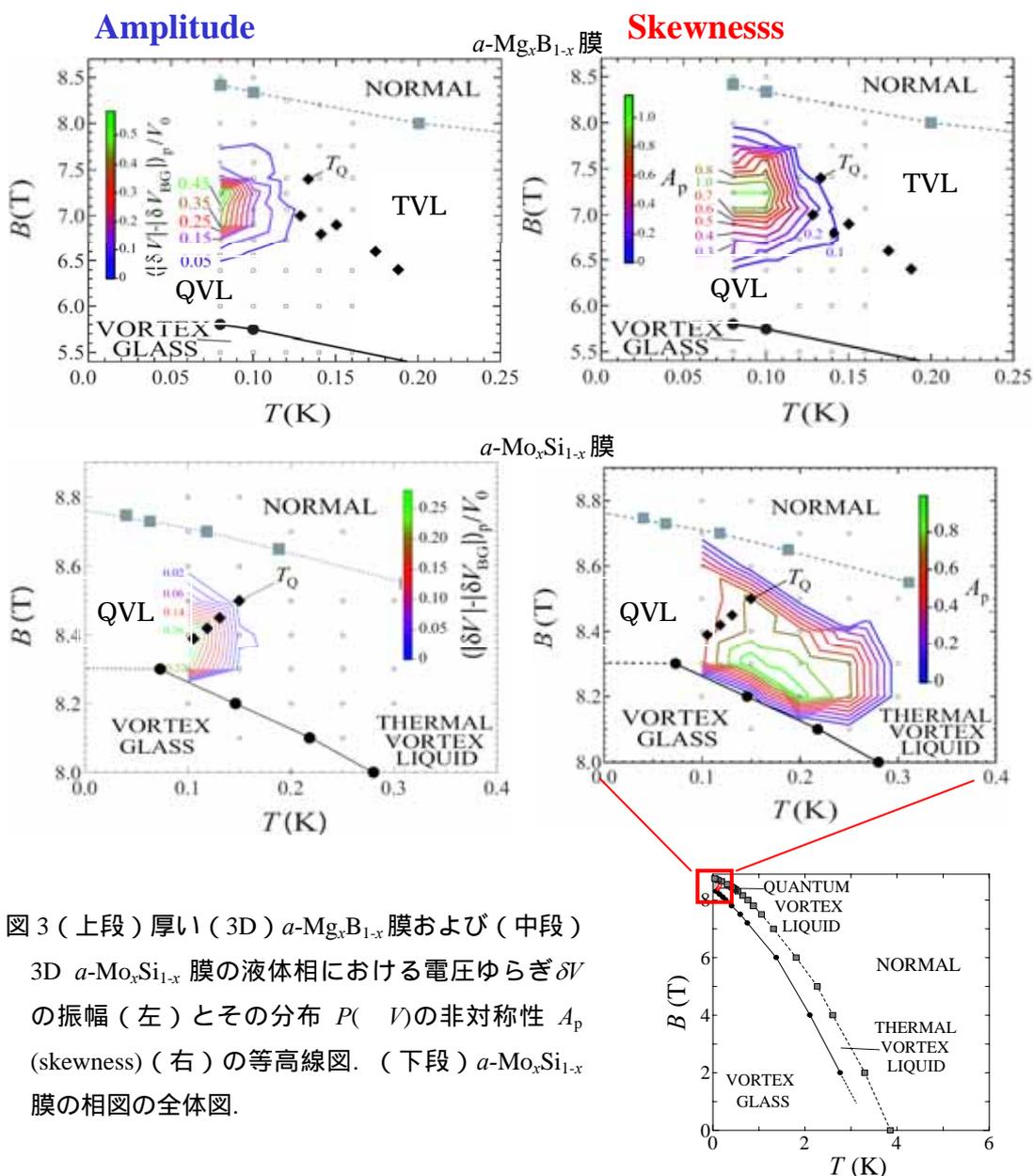


図 3 (上段) 厚い (3D) $a\text{-Mg}_x\text{B}_{1-x}$ 膜および (中段) $3\text{D } a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜の液体相における電圧ゆらぎ δV の振幅 (左) とその分布 $P(\delta V)$ の非対称性 A_p (skewness) (右) の等高線図。(下段) $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜の相図の全体図。

[補足] 渦糸バンドルの起源は、QVL 相内に存在する、小さく、ソフトな渦糸固体片と考えられる。すると、我々の QVL 相では VS 状態が実現されているという見方もできる。しかし、QVL 相と VS 相とではその物理的起源に直接関連性はないので、QVL 相と VS 相が一致しているとみなすべき強い理論的根拠はない。そこで、以下のように考えることもできる。VS 領域は (QVL 領域より) 高温まで広がっているが、そこでは、ほとんどのバンドルは強くピン止めされていて、電圧ノイズには寄与しない。ところが、温度が低下し QVL 相に入ると量子トンネル効果が顕著になり、一定電流下でランダムな depinning-pinning が頻繁に起こり、ノイズ (電圧ゆらぎ) として観測される。この場合、QVL 相では巨視的数の渦糸バンドルのトンネル (Macroscopic Quantum Tunneling) が起こっていることになる[11]。

ここで述べたテーマは、2次元磁場誘起超伝導絶縁体転移 (2D FSIT, または 2D VG 転移) の問題とも密接に関連する。2次元系は強い量子ゆらぎの効果のため、VG 転移は $T=0$ でのみ起こる量子相転移であり(このため静的相図ですら実験的にまだ未解明)、絶縁体相に位置する渦糸液体相は超流動 QVL 相であるという预言もある。最近では vortex metal [13] という新しい 2D 渦糸金属相の存在も提案されているが、これらはまだ実証されていない。その理由のひとつは、従来の研究が通常の電気抵抗測定(静的な平均値測定)に基づく電子状態解明のみに向けられ、動的測定に基づく渦糸状態の視点からの研究が行われてこなかったためである。我々はこれまでに、2D 系では FSIT のみが観測され、金属的 QVL 相を示す抵抗率の曲率変化(T_Q)は観測されないことを報告してきた。一方、電圧ゆらぎ $V(t)$ とノイズスペクトラム $S_V(f)$ 測定を通し、2次元でも 3次元の場合とほぼ同じ極低温域で、3次元と類似の異常な渦糸ダイナミクスが存在することを示した。この実験結果は、量子ゆらぎが効く極低温域の渦糸ダイナミクスが、次元性によらない普遍的なメカニズムに支配されていることを示している[10]。

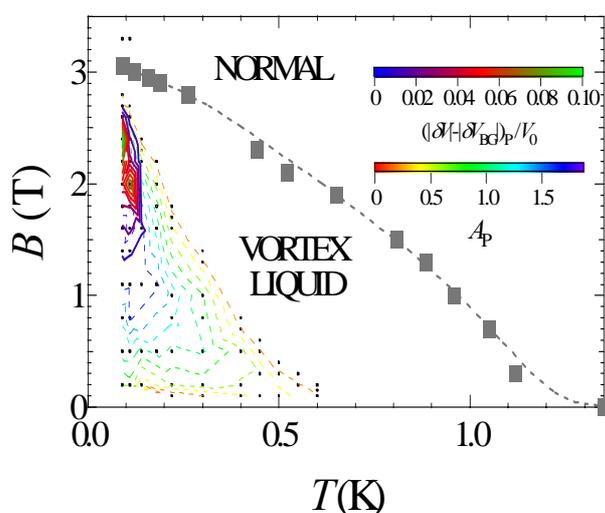


図4 2D $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 薄膜の液体相における電圧ゆらぎ δV の振幅 (実線) と、(その分布 $P(V)$ の) 非対称性 A_p (skewness) (破線) の等高線図。

さらに、2D 渦糸状態を詳しく調べるため、 $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 薄膜の 2D 液体相内の広い温度-磁場領域において $\delta V(t)$ 測定を行った。その結果、図 4 に示すように、極低温域では液体相のほぼ全域において、 $P(\delta V)$ が非対称（破線）となる異常なフローが観測された。また高温ほど、この現象が観測される磁場域は低磁場に向かった。すでに述べたとおり、3D 系では液体相の磁場範囲は 2D 系と比べはるかに狭いが、やはり極低温域では 2D 系と同様に液体相内の広い磁場範囲で異常なフローが観測されている。しかし 2D 系では 3D 系と異なり、より高温域まで異常なフローが観測された。また両次元共に、 $\delta V(t)$ の振幅 $|\delta V(t)|$ が増大する現象は、異常なフローが観測されはじめる温度域よりも低温域で観測された。

ここで $|\delta V(t)|$ の増大が量子ゆらぎに起因すると解釈すると、低温で $|\delta V(t)|$ が増大する領域が 2D QVL 相に対応し、それより高温側に位置する $P(\delta V)$ の非対称性が観測され始める境界が、渦糸液体相から渦糸スラッシュ相へのクロスオーバーラインに対応することになる。このように、ダイナミックな測定によってはじめて、通常の抵抗測定ではわからなかった 2D 渦糸状態（相図）に関する新たな情報を得ることができた。

-
- [1] G. Blatter *et al.*, Phys. Rev. B **50** (1994) 13013.
[2] H. Ishida and R. Ikeda, J. Phys. Soc. Jpn. **71** (2002) 254.
[3] S. Okuma, Y. Imamoto, and M. Morita, Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 3136.
[4] S. Okuma, M. Morita, and Y. Imamoto, Phys. Rev. B **66** (2002) 104506.
[5] S. Okuma, S. Togo, and M. Morita, Phys. Rev. Lett. **91** (2003) 067001.
[6] S. Okuma, F. Saito, and M. Morita, J. Low Temp. Phys. **131** (2003) 1019.
[7] T. Sasaki *et al.*, Phys. Rev. B **57** (1998) 10889.
[8] T. Shibauchi *et al.*, Phys. Rev. B **67** (2003) 064514.
[9] E. Bustarret *et al.*, Phys. Rev. Lett. **93** (2004) 237005.
[10] S. Okuma, M. Kobayashi, and M. Kamada, Phys. Rev. Lett. **94**, (2005) 47003.
[11] S. Okuma, K. Kainuma, and M. Kohara, Phys. Rev. B **74** (2006) 144509.
[12] K. Shibata, T. Nishizaki, T. Sasaki, and N. Kobayashi, Phys. Rev. B **66** (2002) 214518;
Y. Nonomura and X. Hu, Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 5140.
[13] V. M. Galitski *et al.*, Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 077002.

2. 回転させた渦糸格子のプラスチックフロー

固体のプラスチックフローとは、ミクロの立場からは固体の運動に伴い隣接原子の配置が変わる運動を、マクロには歪み力場内での固体の経時変形に対応し、大陸プレートの運動、地滑り(地震)、雪崩現象等、広く自然界で観測される現象である[1]。基礎・実用双方の観点から重要なテーマであるが、弾性論の理論的手法が適用できないことと、実験研究のための適切な系がこれまで見つからなかったことから、その物理の解明は遅れている。コルビノディスク(CD)中の渦糸固体では、(i)電流によって駆動力(ローレンツ力) F の大きさと空間的歪み(F は渦糸の回転半径 r に反比例)を、(ii)磁束密度によって固体の弾性定数を変化でき、さらに(iii)ピン止め中心の導入により摩擦力を変えられることから、この系は「一定の歪み力と摩擦力[2]を受けて運動する固体の、駆動力増大に伴う動的変化を(固体の硬さをパラメタとして)系統的に研究できる」恐らく唯一の実験系と考えられる。

これまでにCD形状の電極をもつ厚い(100 nm) $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 超伝導膜を用いて、半径方向に歪みをかけながら回転運動させた渦糸グラス(VG)系のダイナミクスを調べてきた。その結果、(従来の予想に反し)駆動力(電流)の増大と共に、剛体回転を経ず、プラスチックフロー回転から液体的フロー回転への状態変化を示す電圧及び電圧ノイズの上昇を観測した[3,4]。最近これを支持するシミュレーションが報告されている[5]。この研究は、速度増大に伴って起こる動的相転移現象や渦糸固体の動的相図と関連する興味あるテーマである。

本研究では、 $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜よりピン止めが弱く、渦糸固体が渦糸格子あるいは Bragg glass と考えられる $a\text{-Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 膜のCD形状試料において、同一半径方向に並んだ2つの電圧端子(内側： V_{12} 、外側： V_{23})により渦糸格子系のダイナミクスの空間依存性を調べ、そのメカニズムを解明することを目的とした。[補足: 渦糸固体相が秩序をもった(弱く乱れた)渦糸格子相または Bragg glass 相であることは、渦糸がピン止めを外れる電流値である(静的)臨界電流の磁場依存性 $I_c(B)$ にピーク効果が観測されたこと、および次節で述べるモードロック共鳴が観測されることから判断される。]

結果は、 $a\text{-Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 膜でもやはり剛体回転は観測されず、試料の内側から外側に向かってプラスチックフローが広がっていくことがわかった。図5は、各磁場において、内外2つの端子で発生した電圧値の比 V_{12}/V_{23} の電流依存性を示したものである。固体相では、 V_{12}/V_{23} は電流を増やすに従って減少し、水平線で示した値に漸近する傾向がみられる。この一定値は、渦糸が液体的に振舞う場合に計算から求められる値である。この結果は次のように説明できる。CD形状では渦糸に働く駆動力は半径に反比例するため、外側の渦糸の速度は内側に比べ遅くなり、その分ピン止め力の影響を受けやすくなる。したがって V_{12}/V_{23} は低電流(低速)で大きな値をとる。ピン止めの影響は渦糸の速度が速くなるに従い小さくなるので、電流が増加するにつれて内側外側共に、半径に反比例するローレンツ力だけで決まる液体的な振る舞いに近づいていく。

さらに V_{12}/V_{23} の磁場依存性を調べた。低電流においては、静的なピン止め力を反映した

I_c (白丸) のピーク磁場付近において V_{12}/V_{23} がピークをもつのに対し、高電流においては動的なピン止め力を反映した動的臨界電流 $I_{c,dyn}$ (白四角) のピーク磁場付近に V_{12}/V_{23} がピークをもった。これは 動的ピーク効果 と呼べる現象である。[補足: ここで $I_{c,dyn}$ とは、高電流における電流電圧 (I - V) 特性の $V=0$ への外挿から求めた臨界電流で、物理的には駆動中の渦糸が感じるピン止め力を反映する。 $I_c(B)$ と $I_{c,dyn}(B)$ にはピークが観測され、さらに常に $I_{c,dyn}$ のピーク領域が高磁場側にあることがわかった。これは渦糸が静止しているときよりも駆動しているときの方が、最大のピン止め力を感じる磁場の大きさが大きいこと、すなわち運動状態では、よりソフト化された状態において最大のピン止め力を感じることを意味する。]

この結果は、低速で回転運動している渦糸は静的なピン止め力 (に近い力) を感じ、高速で回転運動している渦糸は動的なピン止め力 (に近い) を感じていることを反映したものである。

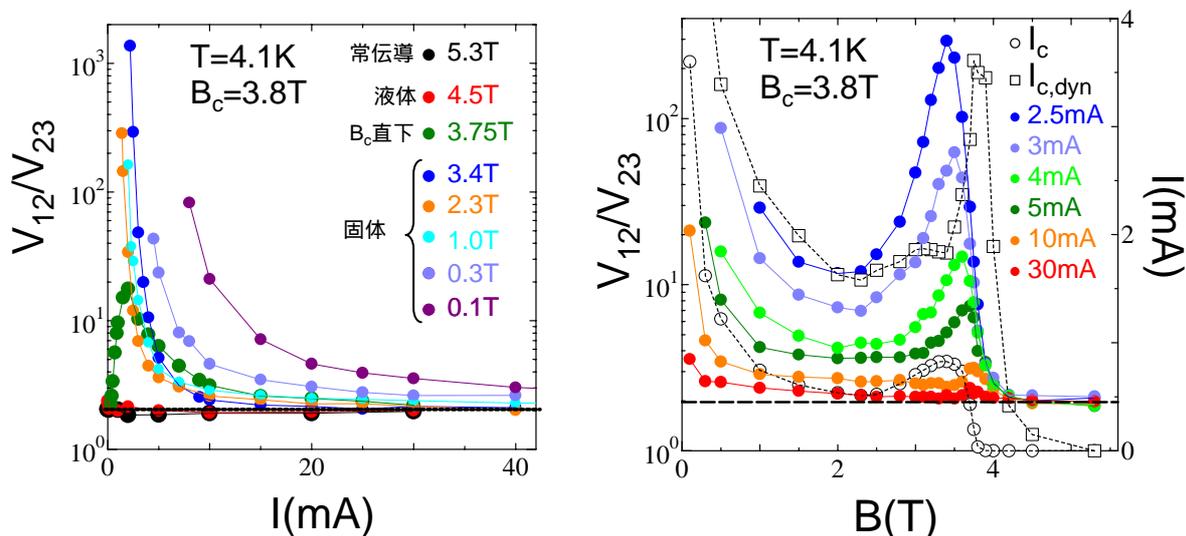


図 5. (左) 各磁場における内外の電圧端子の電圧比 V_{12}/V_{23} の電流依存性。 B_c は固体液体転移磁場。

(右) 各電流における V_{12}/V_{23} の磁場依存性。動的ピーク効果 と呼ぶべき振舞いを示す。

[1] G. W. Crabtree, Nature Mat. **2** (2003) 435.

[2] A. Maeda *et al.*, Phys. Rev. Lett. **94** (2005) 077001.

[3] M. Kamada and S. Okuma, J. Phys. Soc. Jpn. **73** (2004) 526.

[4] 鎌田幹雄, 博士論文 (東京工業大学, 2004)

[5] M. C. Miguel and S. Zapperi, Nature Mat. **2** (2003) 477; Y. Enomoto, private communications.

[6] S. Okuma and S. Morishima, AIP Conf. Proc. **85** (2006) 845; Physica C, in press.

3. 駆動された渦系格子のモードロック共鳴とノイズ

周期 a の周期的ポテンシャル中を並進運動する物体は、その並進速度 v と a の比で決まる周波数(内部周波数 f_{int} と呼ぶ)の速度変調を受ける。ポテンシャルが周期的でない場合でも、もし物体に周期性があれば、物体は同様の速度変調(内部周波数)を感じる。モードロック(ML)共鳴法(下記)を用いると、この内部周波数を実験的に検出することができる。ここでは物体として、超伝導体の渦系系を考える。

ランダムに存在するピン止め中で駆動された渦系系は、速度が小さいうちはピン止めの影響を大きく受け、それぞれの渦系がインコヒーレントにフロー(プラスチックフロー)するが、速度の増大とともに次第にピン止めの影響を見なくなり、格子の秩序が回復する。

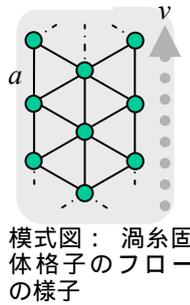
Fioryは、この渦系格子の秩序の回復を、ML共鳴法により最初に測定した[1]。

ML法とは以下のようなものである：ランダムに存在するピン止めセンターの中を一定速度 v で並進運動する渦系固体格子系(格子定数 a)を考える(図6模式図)。ひとつの渦系の列に着目すると、渦系がひとつのピン止めセンターを通るたびに、周波数 $v/a (= f_{\text{int}})$ の速度の変調を受ける。ノイズスペクトラムを測定するとこの周波数(washboard frequencyと呼ばれる)のところで鋭いピークが現れる[2]はずだが、実際の系では多数の渦系列からの寄与が重ね合わされるためdephaseし、これを観測することは困難である。そこで、外からあらかじめ一定周波数 f_{ext} の交流電流を印加しておき、直流電流 I を重畳し徐々に速度 $v(I)$ を変化させていくと、 $v/a = f_{\text{ext}}$ の関係を満たす電流-電圧($I - V$)のところに基本ステップが現れる(交流ジョセフソン効果におけるシャピロステップと類似の現象)。もし運動している渦系固体が液体に転移すると、周期性がなくなるため、当然このステップ構造は消失する。したがって、このMLの方法を用いることにより、渦系系をフローさせた状態で(ピン止めの影響をほとんど受けない状態で)渦系系固有の融解転移(ダイナミック融解)を捉えることができる。近年、この手法を用い[1]、 T_c 近くのピーク効果領域で、ピン止めの影響を排したダイナミック融解転移が観測された[3]。

本研究では、 $a\text{-Mo}_x\text{Ge}_{1-x}$ 膜においてML共鳴を観測した。図6(上)はピーク効果領域における、10 MHzの交流電流(I_{rf})印加時の、直流電流電圧特性である。ML共鳴を示す2つのステップ(縦の破線の位置)が明瞭に見られる。図6(中)はステップ構造を見やすくするため、電流を電圧で微分した[4]。ステップの電圧値から、ただちに運動している格子の形が三角格子であることと、運動する方向が三角形の1つの辺に平行であることがわかる。

ところでインコヒーレントなフロー(プラスチックフロー)状態では、一般に大きな電圧ノイズが発生する。ML状態に移ったとき、このノイズがどう変化するかは興味もたれる。シミュレーションでは、ML共鳴時にノイズの減少が予想されている(ML freezing)が[5]、実験的に明確に示した例は恐らくない。そこで本研究では、インコヒーレントなフロー状態(非ML共鳴状態)からコヒーレントなフロー状態(ML共鳴状態)への転移に伴って、広帯域ノイズがどのように変化するかを調べた。

図 6 (上) 4 K の渦糸固体相における直流駆動電流 I 対発生電圧 V . 10 MHz の交流電流 I_{rf} を重畳させると, I_{rf} の大きさによらず ML を示す第 1 ステップ (基本モード) と第 2 ステップがそれぞれ同一電圧値に現れる (それぞれ縦の破線). 図(中) 微分をとると, ステップの存在がより明瞭になる. ステップの電圧値から直ちに, 3 角格子が模式図のような向きにフローしていることがわかる. 図(下) 高周波域 (ただし rf 周波数よりは小さい) における電圧ノイズ S_V/V は ML 時に明らかに減少する.



模式図: 渦糸固体格子のフローの様子

ML 状態では秩序あるフローが実現するためノイズが減少する.

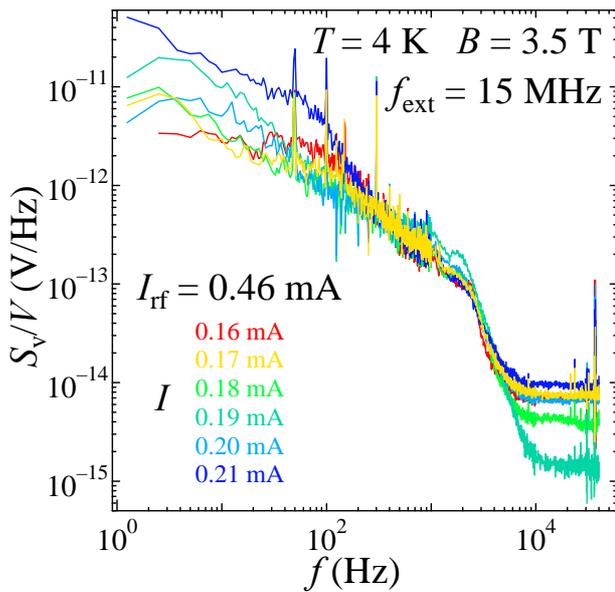
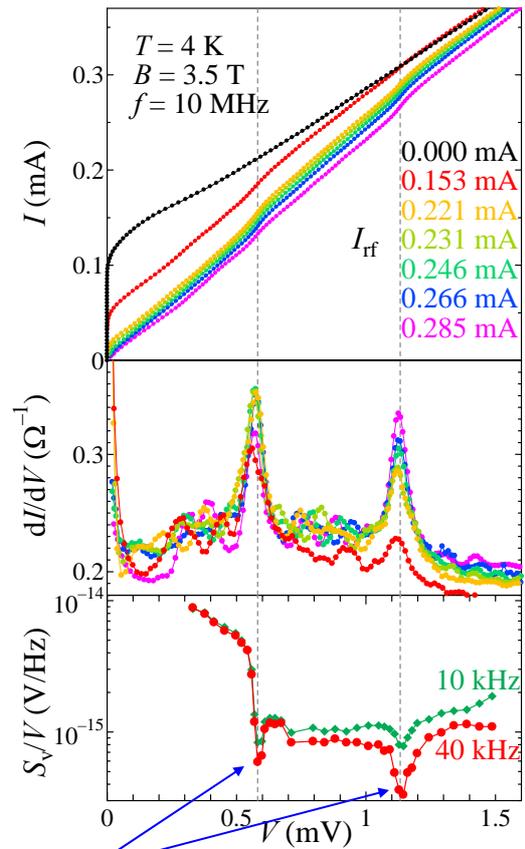


図 7. 15 MHz の交流電流 I_{rf} 印加時の, 様々な直流電流値におけるノイズスペクトラム. $I = 0.19$ mA 付近が基本 ML ステップに対応する. I_{rf} 非印加時は, 高周波のノイズは (通常見られるように) f と共に減少するが, I_{rf} を印加すると 10 kHz 以上の高周波域に f に依らない tail が現れる. この S_V/V の大きさは, I の増加と共に, $I = 0.19$ mA 付近で極小値をとる系統的な変化を示す. 1 kHz 以下の低周波域では, 測定精度の範囲で I に対する S_V/V の依存性は見られない.

図7は15 MHzの交流 (rf) 電流印加時の、様々な直流電流値 I におけるノイズスペクトラムである。MLステップに対応する $I=0.19$ mA付近で高周波のノイズが減少していることがわかる。一定周波数におけるノイズの値 (平均電圧 V で割った値 S_V/V) を直流電流あるいは直流電圧に対してプロットすると、高周波域 (10と40 kHz) では、ML共鳴の起こる電流値において S_V/V が減少する振舞いがみとめられた (図6(下))。このことは、ML共鳴したコヒーレントフロー状態では、(高周波域の) 広帯域ノイズが減少する ML freezing現象 が確かに起こっていることを示している[5,6]。

[1] A. T. Fiory, Phys. Rev. Lett. **27** (1971) 501.

[2] Y. Togawa, R. Abiru, K. Iwaya, H. Kitano, and A. Maeda, Phys. Rev. Lett. **85** (2000) 3716.

[3] N. Kokubo, K. Kadowaki, and K. Takita, Phys. Rev. Lett. **95** (2005) 177005.

[4] S. Okuma, J. Inoue, and N. Kokubo, Physica C, in press.

[6] S. Okuma, J. Inoue, and N. Kokubo, Int. J. Mod. Phys., in press.

[5] A. B. Kolton, D. Dominguez, and N. Gronbech-Jensen, Phys. Rev. Lett. **86** (2001) 4112.

謝辞

本稿で紹介した研究の一部は、科学研究費補助金基盤研究(B) (18-19年度 代表：大熊 哲)、萌芽研究 (18年度 代表：大熊 哲)、日本板硝子材料工学助成会 (18年度 代表：大熊 哲)、および日本学術振興会先端研究拠点事業 (日米欧-国際戦略型 コーディネーター K. Kadowaki(日), W. K. Kwok & G. W. Crabtree(米), V. V. Mochalkov(欧))からの援助によって行われました。