

平成15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/>

乱れた第2種超伝導体のボルテックス状態の研究、およびボルテックス系を舞台にした新しい物理現象の研究を進めている。本年度は運動するボルテックス系の発生する電圧のゆらぎやノイズを検出するダイナミカルな測定を重視するとともに、ボルテックス系を試料内に閉じ込め、勾配をもった駆動力をかけて回転運動させることのできるコルビノディスク(CD)の手法を用いることにより、いくつかの新奇なボルテックスのダイナミクスを見出すことに成功した。一方、これらとは独立なテーマとして、結晶のホウ化物超伝導体との比較物質となるアモルファス(a-)M_xB_{1-x}膜(M=Mg, Nb)の研究も行った。

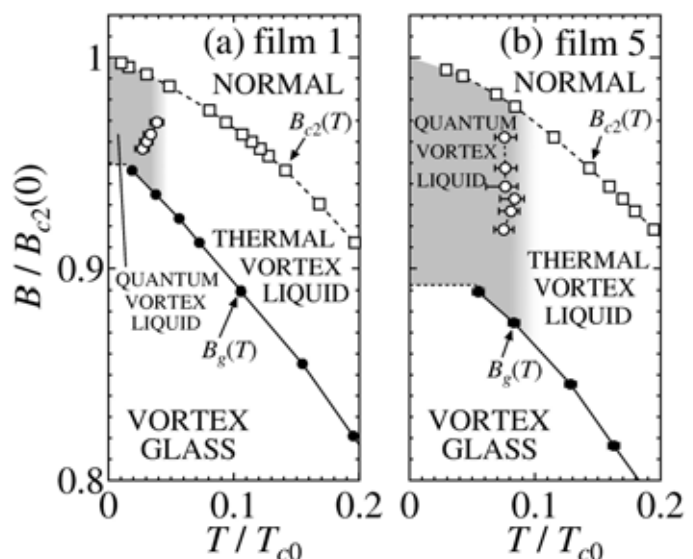
1. 3次元系量子ボルテックス液体(QVL)相における異常なボルテックスフロー

一様な構造と適度に強い乱れをもつ厚い(100 nm)a-Mo_xSi_{1-x}膜の極低温・高磁場域におけるボルテックス状態、特に量子ゆらぎがボルテックス固体の融解転移と相図に及ぼす影響を系統的に調べた。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)高磁場域までボルテックスグラス(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(ボルテックス系の臨界緩和測定)によって明らかにした。さらに、 $T = 0$ まで液体相、すなわち量子ボルテックス液体(QVL)相が存在することを示した(図1) [1,2]。

理論的[3,4]には量子ゆらぎの強さは乱れ(常伝導抵抗率 ρ_n)に比例すると考えられている。そこでQVL相の確証を得ることを目指して、 ρ_n がQVL相に及ぼす影響を調べた。各試料の上部臨界磁場と超伝導転移温度で規格化した、磁場軸上および温度軸上での相対的なQVL相の広さは、ほぼ 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がわかった(図2)。得られた結果は、「 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」という描像と一致する[5,6]。

図1 極低温・高磁場域のボルテックス相図の拡大図。film 1(左)に比べて ρ_n が大きいfilm 5(右)ほど磁場・温度軸上でQVL相の大きさは広がる[5]。



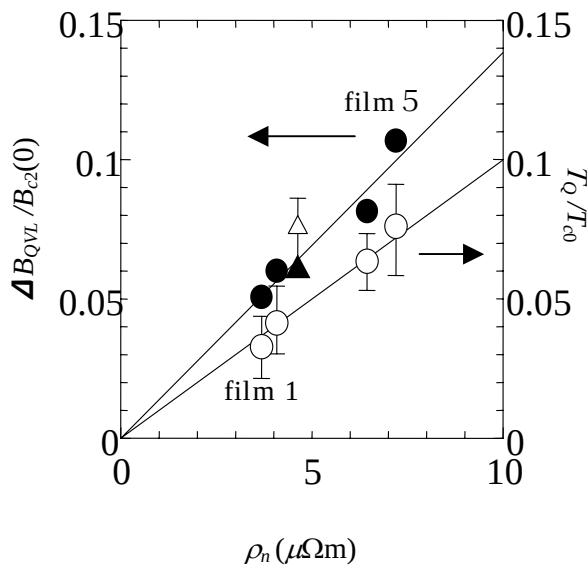


図 2 (上) 常伝導抵抗率 ρ_n に対してプロットした磁場軸及び温度軸上での QVL 相の広がり [5].

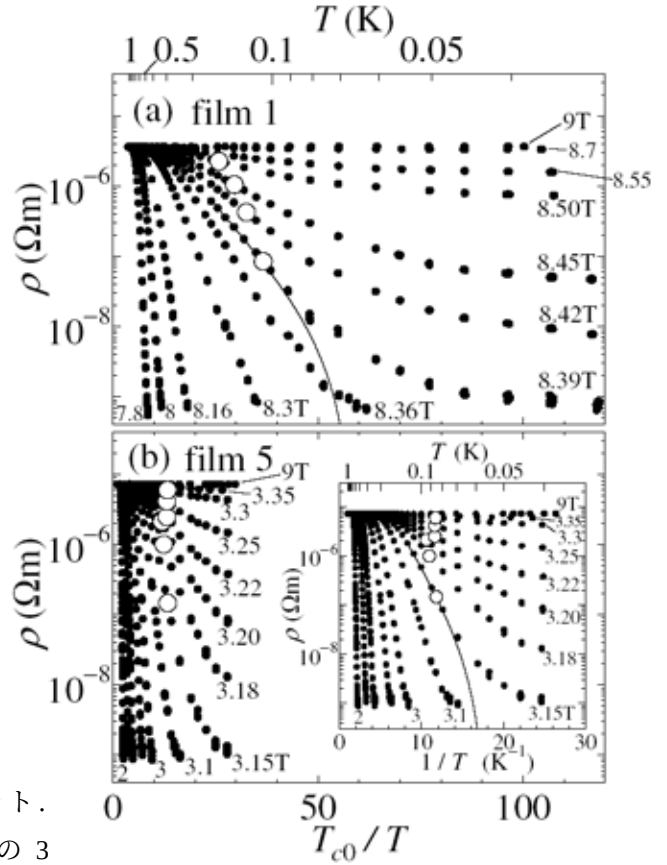


図 3 (右) 磁場中の抵抗率のアレニウスプロット. 白丸は変極点 (T_Q). 実線は量子効果のない場合の 3 次元ボルテックスグラス理論によるフィット [5].

つぎに温度の減少に伴い、熱的（古典的）液体相から量子的液体相へどのように移り変わっていくかを、複数の測定手法を用いて調べた。 $T=0$ の QVL 相に相当する磁場中で高温から温度を減少させると、 $T=0$ に向かって電気抵抗率が残るような振舞いをする（図 3）。すなわち、ある温度 T_Q で抵抗の温度依存性の曲率が上に凸から下に凸へ変化する。この T_Q は熱的液体相から量子的液体相へのクロスオーバーを表す特徴的温度と解釈される [5]。一方、複素交流インピーダンス測定から求めた VG 転移の動的臨界指数 z も、 T_Q よりやや高いある温度以下で上昇するという異常が見られた [1,2]。

QVL 相におけるボルテックスダイナミクスは理論的にも実験的 [7,8] にもほとんどわかっていない。本研究ではボルテックス液体相において、ボルテックスフローに伴って発生する電圧のノイズスペクトラムと電圧の時間依存性 [時系列 $V(t)$] 測定を行うことにより、熱的液体相から QVL 相への移り変わりに伴うボルテックスダイナミクスの変化を調べた [9]。図 4 の $\circ$ は、極低温・高磁場域の相図上でこれらの測定を行った点を、 $\diamond$ は T_Q を表す。また図 5 は、熱的液体相と QVL 相における、ボルテックスフローによって発生した電圧の平均値のまわりの電圧ゆらぎ $\delta V(t)$ とその分布 $P(\delta V(t))$ を示したものである。熱的液体相では、観測された $\delta V(t)$ は外来ノイズ等のフロー電圧以外の起源から来るが（図 5 左）、極低温域の QVL 相では、ボルテックスフローによる $\delta V(t)$ が観測され、その分布にボルテックスの進行方向に向かって長い裾野をもつ異常な非対称性が現れることがわかった（図 5 右下）。これは、QVL 相では

ボルテックスのフローが定常的ではなく、ボルテックスの速度あるいは数が時間 t の関数として断続的（突発的）に増大することを示している。またここでは、大きなブロードバンドノイズが発生した。このような異常が見え始める温度は、上記の T_Q あるいは z が増大する温度と近い極低温(~ 0.1 K)であった。これらの実験結果は、QVL相において異常なボルテックスダイナミクスが存在していることを示している[9]。

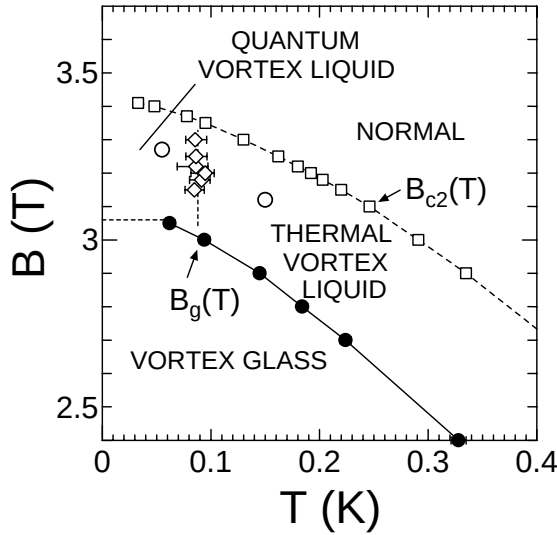
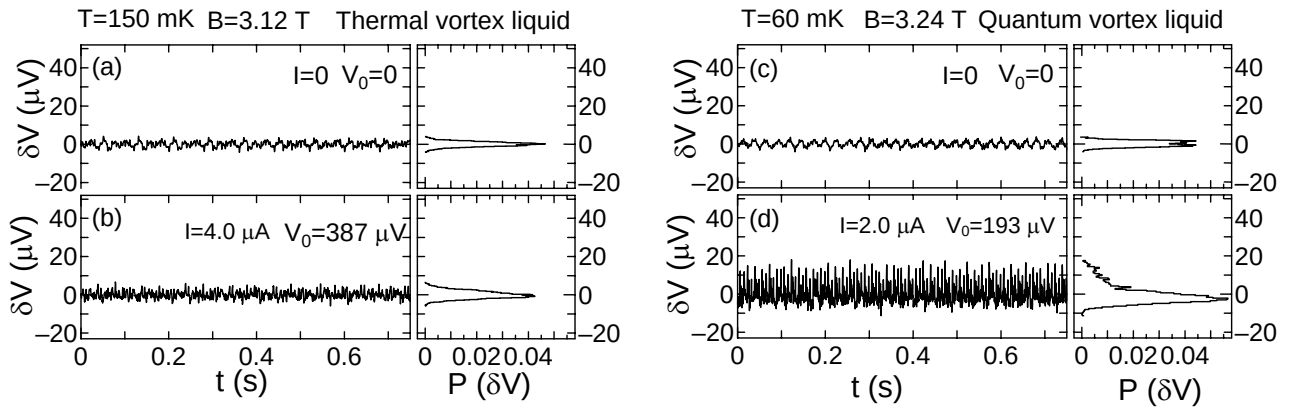


図 4 (左) 極低温・高磁場域の温度・磁場相図. $\diamond$ は抵抗率から決めた熱的液体相とQVL 相の移り変わりを, $\circ$ は $\delta V(t)$ 測定を行った点を表す[9].

図 5(下) (a), (b)は熱的液体相, (c), (d)はQVL 相における平均電圧の周りのゆらぎ $\delta V(t)$ とその分布 $P(\delta V)$. (a)と(c)はゼロ電流におけるデータ, すなわちバックグラウンド成分を表す[9].



-
- [1] S. Okuma, Y. Imamoto, and M. Morita, Phys. Rev. Lett. **86**, 3136 (2001).
 - [2] S. Okuma, M. Morita, and Y. Imamoto, Phys. Rev. B **66**, 104506 (2002).
 - [3] G. Blatter *et al.*, Phys. Rev. B **50**, 13 013 (1994).
 - [4] H. Ishida and R. Ikeda, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 254 (2002).
 - [5] S. Okuma, S. Togo, and M. Morita, Phys. Rev. Lett. **91**, 067001(2003).
 - [6] S. Okuma, F. Saito, and M. Morita, J. Low Temp. Phys. **131**, 1019 (2003).
 - [7] T. Sasaki *et al.*, Phys. Rev. B **57**, 10889 (1998).
 - [8] T. Shibauchi *et al.*, Phys. Rev. B **67**, 064514 (2003).
 - [9] S. Okuma, M. Kamada, and M. Kobayashi, Phys. Rev. Lett., submitted: Physica C, in press.

2. コルビノディスク法による磁場誘起 2 次元超伝導絶縁体転移 (SIT) の検証

NbSe₂などのピン止め効果の弱いクリーンな単結晶試料では、エッジ付近の強いピン止め効果により、通常の輸送現象測定では試料内部の本質的な（平衡状態における）ボルテックス状態を観測することはできないという報告がされている（エッジ汚染効果）[10]。

一方、2 次元超伝導絶縁体転移 (SIT) の研究分野では、 $T = 0$ における広範な磁場中金属相 (QVL 相) の存在が外国の複数のグループによって報告され[11,12], 理論家を巻き込んだ大きな議論になっている。もしこれが事実だとすると 2 次元 SIT の枠組を壊すことになるため、この問題は重大である。我々はこれまでに、磁場および乱れ誘起 2 次元 SIT を支持する実験事実を報告してきおり、実験の立場からこの問題を明らかにする必要がある[13]。

3 次元で VG 転移を示すような我々のアモルファス系では、エッジ効果は効かないと予想されるが、万一エッジのピン止め効果により、本来金属的な QVL 相になっているものが見かけ上超伝導体的に見えているとすると、これまでの SIT の主張を見直さなければならない。そこで本研究では、ボルテックス系を試料中心の周りに回転させることにより、エッジ効果を見捨てることのできるコルビノディスク (CD) 法を用いて、 $T=0$ 近傍における磁場誘起 SIT の実験を行った。試料は膜厚 6 nm の 2 次元薄膜で、同一基板上に CD とストリップ的形狀の電極をもつ。

‘SIT’ の臨界磁場以下の一定磁場中で、電気抵抗の温度依存性を測定した結果、両電極形状で共に最低温度まで (2 次元 SIT に特有な) アレニウス型の温度依存性に乗ることがわかった。このことから、我々のアモルファス系ではエッジの効果は効かないこと、すなわち、これまでの磁場誘起 2 次元 SIT の主張は正しいことがわかった。

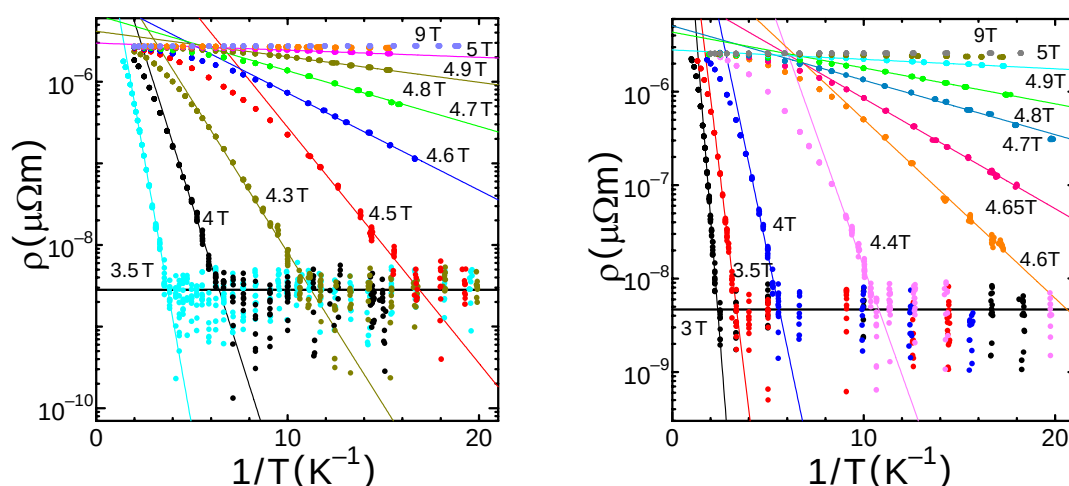


図 6 (左) コルビノディスク形状と(右)ストリップ的形狀の電極配置をもつ 2 次元薄膜試料の磁場中抵抗率のアレニウスプロット. 水平に引いた線は測定限界を示す.

さらに、金属的 QVL 相存在の可能性を完全に排除するため、最低温 (0.05 K) で 2 次元薄膜の微小抵抗測定を行った。 $T = 0$ における微小な残留抵抗を示唆する微弱な磁気抵抗を観測したが、これは 2 次元 VG 中で極少数のボルテックス (欠陥) が量子クリープを起こしていることを示しており[14]、2 次元 SIT を覆すような多数のボルテックスによる金属的 QVL 相[11,12]の証拠は見つからなかった。

以上述べた厚い膜および薄い膜の実験結果より、我々のアモルファス膜系ではそれぞれ、3 次元および 2 次元 VG 転移が起こっていることがわかった[2]。そして、特に 2 次元系では、従来から主張しているとおり、SIT の確証を得ることができた[15,16]。

[10] Y. Paltiel, *et al.*, Nature **403**, 398 (2000); Phys. Rev. Lett., **85**, 3712 (2000).

[11] N. Mason and A. Kapitulnik, Phys. Rev. B **64**, 060504 (2001).

[12] J. A. Chervenak and J. M. Valles, Jr., Phys. Rev. B **61**, R9245 (2000).

[13] S. Okuma, S. Shinozaki, M. Morita, Phys. Rev. B **63**, 054523 (2001).

[14] M. Morita and S. Okuma, Int. J. Mod. Phys. B **17**, 3445 (2003); Physica C **392**, 406 (2003).

[15] 大熊 哲, 森田真規子, 固体物理 **37**, 453 (2002).

[16] 森田真規子, 博士論文 (東京工業大学, 2003, 12 月)

3. 回転させたVG系のプラスチックフロー

ボルテックス固体のフロー状態の研究[17]は、摩擦を受けて動く固体の物理や、大陸プレート運動・雪崩現象など自然界に広く見られる固体の plastic flow 現象を研究するための数少ない、かつ最も適した実験系である[18]。本研究では、同一試料基板上にコルビノディスク (CD) 形状とストリップ的の形状の電極配置をもつアモルファス $\text{Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜試料 (膜厚 100 nm) を用い、半径方向に歪みをかけて回転運動させたボルテックスガラス (VG) 系のダイナミクスを、駆動力 (電流 I) の関数として調べた。強いピン止め力 (摩擦力) が存在する VG 系を用いた研究はこれまでになく、本研究により新しい動的状態の変化の観測が期待できる。

CD とストリップ的試料で得られた結果を比較すると、ボルテックス液体相では両形状で電流-電圧 (I - V) 曲線の形に際立った違いが見られないのに対して、VG 相では CD においてのみ、ある電流値 I^* で $d\log V/d\log I$ が極小値をとる (I^* 直上で V が急に増加する) という異常が見られた。さらに、 I^* と臨界電流 I_c (電圧のオンセット 10^{-8} V で定義) は磁場の増加とともに減少し、VG 転移磁場 (B_g) 近傍で消失することがわかった (図 7)[19-22]。

最近の CD (クリーンな系) に対するシミュレーションによると、電流を増大させボルテックス格子系を回転させると、ある電流値で弾性的フローからプラスチックフローへ転移し、さらに電流を増やすと別のある電流値で dislocation 対の数が急激に増加し、プラスチックフローから液体的 (laminar) フロー状態へ変化すると予想されている[23]。

我々の乱れた（ピン止めの強い）VG系では、電流増加に伴い、回転運動状態は弾性的フロー状態をとることなく、プラスチックフローから（ I^* において）液体的laminarフロー状態へ変化したものと考えられる（図 7）。電圧ノイズスペクトラムを測定すると、両方のフロー状態でスペクトラムの形は共に $1/f$ 型をしているが、ノイズ（抵抗ノイズ S_R/R ）の大きさの電流依存性（図 2 の○）は、 I^* 付近で小さなhumpを示すことがわかった(図 8)。これは I^* 付近を境に、確かにボルテックスのダイナミクスが変化していることを示している。プラスチックフローからlaminarフローへの変化を示す初めての観測例といえる[21,22]。

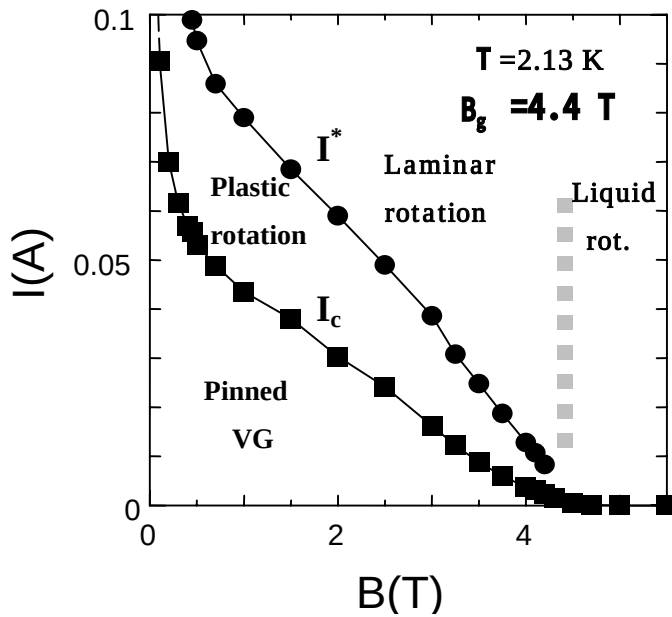


図 7 CD試料における I_c と I^* の磁場依存性. 相図は回転力(駆動電流 I)増大に伴うボルテックス系の動的状態変化を表す.

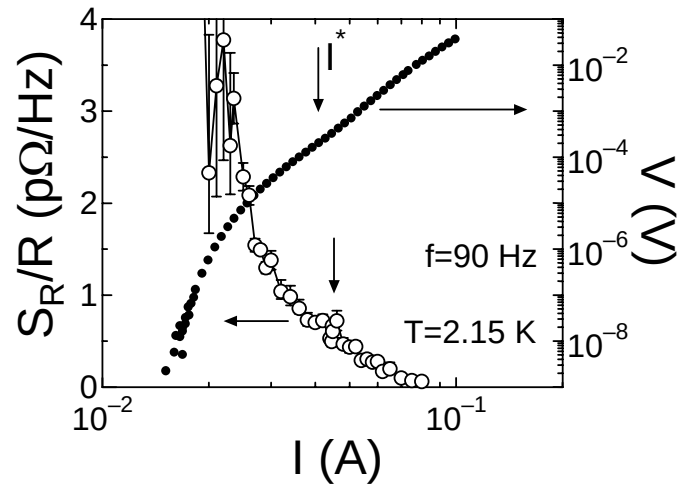


図 8 VG相における、電圧 V と抵抗ノイズ S_R/R の I 依存性. どちらも、 I^* 付近に plastic flow から Laminar flow への動的状態変化を示す異常が見える.

-
- [17] Q. H. Chen and X. Hu, Phys. Rev. Lett. **90**, 117005 (2003).
 - [18] G. W. Crabtree, Nature Mat. **2**, 435 (2003).
 - [19] M. Kamada, Y. Arakawa, and S. Okuma, Physica C **392**, 424 (2003).
 - [20] M. Kamada and S. Okuma, Physica C (2004), in press.
 - [21] M. Kamada and S. Okuma, J. Phys. Soc. Jpn. **73**, 526 (2004).
 - [22] 鎌田幹雄, 博士論文（東京工業大学, 2003, 12 月）
 - [23] M. C. Miguel and S. Zapperi, Nature Mat. **2**, 477 (2003).

4. マイスナー相におけるボルテックスダイナミクス

3次元マイスナー相では、輸送電流 I の下で熱的に生成し成長したボルテックスループは、逆符号をもつ2つの自由なボルテックスに解離する[24]。ストリップ形状試料の場合、これらのボルテックスは試料のエッジに向かって逆向きに動き電圧を発生させ、最後にエッジで消滅する。我々はこれまでに厚い $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜を用いて、マイスナー相ではボルテックスループの生成と成長に伴う大きなボルテックスの密度ゆらぎが存在することを、電圧ノイズ測定によって明らかにしてきた[22,25-27]。一方、コルビノディスク (CD) 形状試料の場合、解離したボルテックスは中心から外側へ放射状に流れる電流によって円運動するためエッジを通過することはない。このとき、逆符号をもつボルテックスは互いに逆向きに回転し続けており、衝突することによってのみ消滅する。このことからCD形状では、ストリップ形状よりも大きなボルテックスの密度ゆらぎが現れることが期待される。

本研究では、同一試料基板上にストリップ型及びCD型の電極配置をもつ厚い (100 nm) $a\text{-Mo}_x\text{Si}_{1-x}$ 膜を用いて、マイスナー相で一定電流 I の下、電圧の時間変化 $V(t)$ を測定したところ、CDでのみ図9に示すような異常な電圧振動が観測された[28]。電圧パルスが現れる周期 t_0 及びその幅 t_w はいずれも数秒以上で、個々のボルテックスが試料を1周する時間 (約 0.1 ms) より4桁以上長かった。また、パルスの高さは常伝導状態の電圧 V_n に匹敵するほど大きかった。これらの事実は、この異常な電圧振動が個々のボルテックスの回転運動に起因するものではなく、集団としてのボルテックスと反ボルテックスの生成と対消滅に伴う大きな数ゆらぎを反映したものであることを意味する[27]。さらに、 t_0 は電流に対して極小値をもつ非単調な依存性を示した (図10)。その理由は不明であるが、この振る舞いは、観測された異常な電圧振動の起源が温度振動などの単純な理由では説明することはできないことを示している[22,28]。

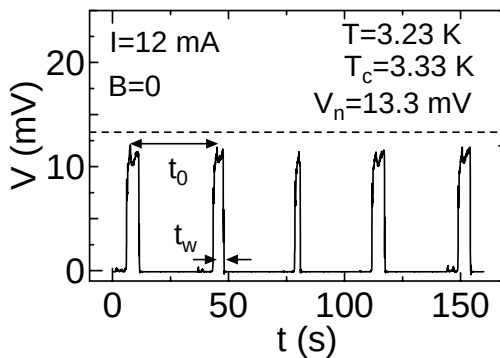


図9 CD型電極における電圧の時間変化 $V(t)$ 。破線は常伝導状態における電圧値 V_n を示す。

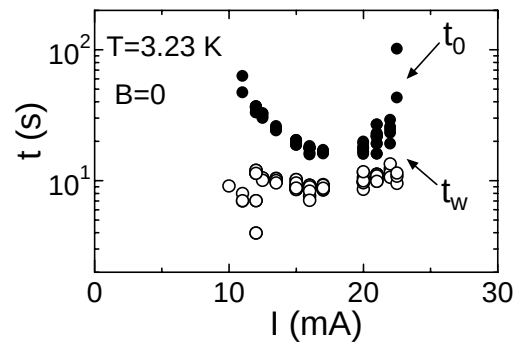


図10 電圧パルスの周期 t_0 、幅 t_w の電流依存性。

-
- [24] D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Phys. Rev. B **43**, 130 (1991).
[25] S. Okuma and N. Kokubo, Phys. Rev. B **61**, 671 (2000).
[26] M. Kamada and S. Okuma, Physica C **388-389**, 783 (2003); *ibid.* **378**, 602 (2002).
[27] S. Okuma and M. Kamada, Phys. Rev. B, in press.
[28] M. Kamada, Y. Watanabe, and S. Okuma, Physica C, in press.

5. アモルファス(a -) M_xB_{1-x} 膜($M=Mg, Nb$)の超伝導

MgB_2 の発見以来, 良質な単結晶作りが活発に行われている。我々はこれまで行われてこなかった微視的に乱れた極限であるアモルファス Mg_xB_{1-x} 膜の作製を試み, 超伝導となる膜を得ることに成功した[29]。マグネシウム濃度 x が $x = 0.3-0.4$ の範囲では, x が増大すると共に常伝導抵抗率は減少し, 超伝導転移温度 T_c は $x = 0.33$ 付近で(すなわちMgとBの組成比が1:2付近で)ピークをもった。ボロン濃度 $1-x$ に対する T_c の変化を図11に示す。ピークをとるマグネシウム濃度を $x_p(\approx 0.33)$ とすると, $x < x_p$ の低濃度側試料では $x > x_p$ の高濃度側試料に比べて臨界磁場 $B_0(T)$ (ゼロ抵抗あるいはボルテックスグラス転移磁場)の傾きが大きくなること, すなわち同じ T_c に対して臨界磁場が大きくなることを明らかにした(図12)[30,31]。これらの結果は, x_p を境としてアモルファス Mg_xB_{1-x} 膜の電子状態とボルテックス状態[32,33]が変化していることを意味する。

キャリア濃度と電子状態および超伝導特性の関係を明らかにするために, 膜厚一定(100nm)で x を変化させた一連のアモルファス Mg_xB_{1-x} 膜を作製し, 常伝導状態においてホール効果測定を行った。これまでに測定を行った低濃度側($x < x_p$)の試料では, x を増大させると, T_c や $B_0(0)$ と共にキャリア濃度が上昇することがわかった。得られたキャリア濃度と常伝導抵抗率からキャリアの散乱時間を求めると, x の増大と共に増大することがわかった。このことから, 低濃度側における, x の変化に対するアモルファス Mg_xB_{1-x} 膜の電子状態および超伝導特性の変化は, 散乱時間とキャリア濃度の双方の変化に起因するものであることがわかった。

ところで, MgB_2 に代わるホウ化化合物 MB_2 (M =金属)の研究が盛んに行われている[34-36]。最近, Nbが欠損した NbB_2 結晶において9.2 Kに超伝導転移 T_c をもつことが報告され, 格子定数と T_c の間の関連性が指摘されている[34]。そこで我々は NbB_2 結晶, および a - Mg_xB_{1-x} 膜との比較物質として超伝導になる a - Nb_xB_{1-x} 膜の成膜を目指した。

これまでに, a - Mg_xB_{1-x} 膜とよく似た超伝導特性を示す試料の作製に成功した。 T_c の x 依存性は結晶試料とは大きく異なり, $x=0.33$ 付近でピーク(約6 K)をもって変化することがわかった。これは定性的には a - Mg_xB_{1-x} 膜の結果(図11)とよく似ている。低濃度側試料では, T_c は ρ_n とともに減少するが, T_c 対 ρ_n のカーブ(同じ ρ_n に対する T_c の値)は a - Mg_xB_{1-x} 膜より下回ることがわかった。

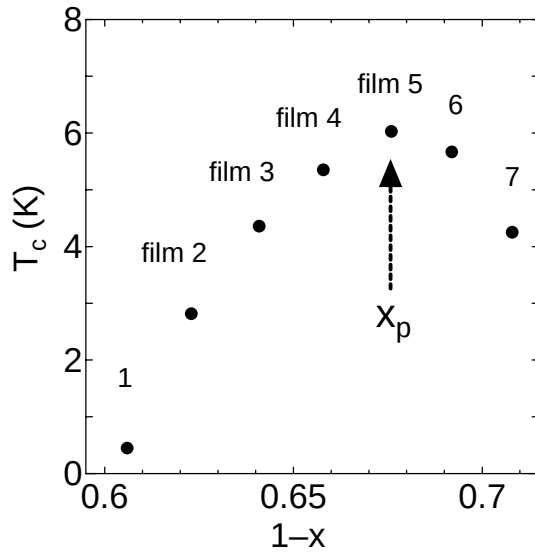


図 11 α - $\text{Mg}_x\text{B}_{1-x}$ 膜のボロン濃度に対する超伝導転移温度の変化[29].

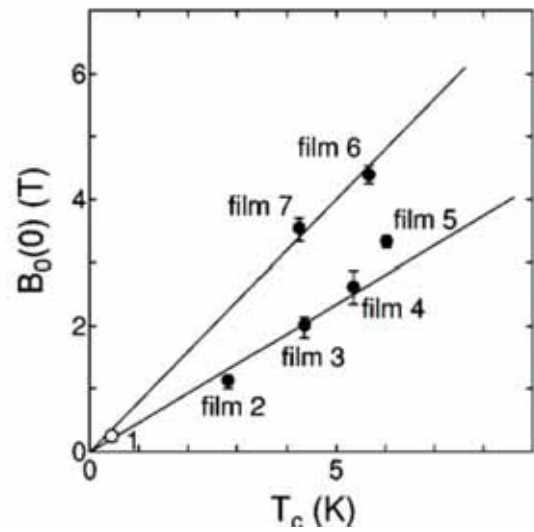


図 12 超伝導転移温度に対する絶対零度における臨界磁場の大きさ[29].

-
- [29] S. Okuma, S. Togo, D. Sanno, K. Amemori, and M. Morita, J. Low Temp. Phys. **131**, 1111 (2003).
 [30] S. Okuma, S. Togo, and K. Amemori, Phys. Rev. B **67**, 172508 (2003).
 [31] S. Okuma, S. Togo, and K. Amemori, Physica C **392**, 336 (2003).
 [32] S. Okuma, S. Togo, and K. Amemori, Int. J. Mod. Phys. B **17**, 3688 (2003).
 [33] S. Okuma, K. Amemori, and S. Togo, Physica C, in press.
 [34] A. Yamamoto, C. Takano, T. Masui, M. Izumi, S. Tajima, Physica C, in press.
 [35] T. Takahashi *et al.*, Physica C, in press.
 [36] T. Ekino; T. Ishida, private communications.

謝辞: 本研究の一部は、科研費基盤研究(B) (大熊 哲), 学振 DC 特別研究員奨励費 (森田真規子), および東工大 COE21 プログラム「量子ナノ物理学」(鎌田幹雄)からの援助によって行われました。