

## Recent Topics on Nonlinear Dynamics in Charge Density Waves

京大基研 伊藤 浩之

### □ そもそも

現在の日本の物理学界を見てみると、いわゆる物性物理学というものは非線形物理学からまだまだ疎遠な位置にあるように思われる。確かに非線形物理学での方法論や概念を物性物理学に応用した仕事も存在しているが、物性物理学側から非線形科学に対して問題を提起した例はほとんど無いように思われる。たとえば Josephson 接合や Ge 半導体などでの AC + DC 電流下でのモードロッキングとカオスの現象は 1 自由度の circle map の universality の検証にこそなれ、カオス研究自身の進歩への貢献は少なかったように思える。その意味で著者が最近注目しているものに準一次元系物質における電荷密度波 (Charge Density Waves、以下 CDW と略す) のダイナミクスの実験がある。この分野はまだ歴史が浅いために、実験事実 (特にダイナミクスに関して) が発展途上の段階にある。それ故に、時々理論家が何とか現象を理解したと安心している時に、「こんなことまで、出てしまいました!」と行って実験家側の手痛い反撃をくらうということが度々生じている。そこで、本講演では、CDW の外部電場下でのダイナミクスに関する最近の実験の結果について私なりのバイアスのかかった視点からみた Review を行うことにする。理論家が実験だけの Review をするというのは考えてみれば少し情けない気もするが、これらの現象は現時点ではほとんど理論的に説明されておらず、かつカオス研究の進展というものに一石を投げればとの願いをこめて行うものである。

### □ CDW って何?

ここ十数年ぐらい前から、3次元の結晶ではあるが、ある方向に対して特に異方性の強い (多くの場合 1次元方向に鎖状構造をとっている) 物質 (準一次元系物質) [たとえば、 $\text{NbSe}_3$ ,  $\text{TaS}_3$ ,  $\text{K}_{0.3}\text{MnO}_3$  など] の低温での電氣的振舞いの研究が盛んに行われてきた。これらの物質は、理論的には、一次元の電子と格子の自由度の結合系として扱われるが、このような系は低温ではペイエルズ転移を生じて格子自由度の空間変調を伴って電荷密度が空間的に一定の波長で波打つ状

態が基底状態（CDW）となる。これは、空間的に一様な状態よりたとえ格子歪みの弾性エネルギーを損しても電子のバンドにギャップを作ることによって電子の運動エネルギーを得、そして全体としてよりエネルギーの低い状態へと転移するものである。CDW の空間変調の波長と、歪む前の格子定数が単純な整数比でない時を不整合 CDW と呼ぶが、この状態では、空間並進対称性を持っているので励起エネルギーゼロの並進モードを持っている。CDW は電荷を持った状態なので CDW の存在する次元方向（鎖方向）に一様な外部電場を加えると、この方向に並進運動することが予想される。しかし、現実の試料では、試料中に不均一に分布、存在する荷電不純物によりピン止めされているために、並進対称性は破れている。しかし、このピン止めを打ち破る大きさ以上の外部電場を加えれば、CDW が試料全体にわたってマクロに並進運動すると予想され、これは現実にも生じることが実験的に示されている。CDW は空間的に広がった状態であるので、このようなものが空間的コヒーレンスを保ったままで、並進するというのは驚くべきことであるが、現在多くの実験事実がこれを支持している。

#### □ CDW の外部電場下の運動（実験事実） [1]

CDW の存在する鎖方向に直流電場  $E$  を加えるとする。試料にはしきい値電場  $E_T$  というものが存在し、 $E < E_T$  の外場下では、CDW は不純物にピン止めされており  $E > E_T$  でピン止めをはずして並進運動を始める。この並進運動に伴って CDW によって運ばれる電流  $J_{CDW}$  が流れる。これは大きさが電場  $E$  に依存した non-ohmic な非線形電導度として観測される。しかし、CDW のダイナミクスにおいて最も興味深いと思われるのは次の2つの現象であろう。

直流電場という時間的に何の構造も持たないものを加えているのに、CDW の並進に伴って電流反応に非常に時間的にコヒーレンスの良い振動成分が観測される。これは Narrow Band Noise (NBN) と呼ばれている。この振動成分は Fourier スペクトルに基本周波数とその高調波成分とからなるシャープなピークとして現われる。CDW は試料中固定された位置にある荷電不純物との相互作用により並進速度に変調を生じさせられる。CDW 自身が一定波長の空間変調を持っているので、この速度の変調は時間的に一定周期で生じる。これが NBN の正体と考えられている。CDW の全体の並進速度は CDW によって試料に流れるトータルな電流  $J_{CDW}$  に比例する。しかし、試料中には非常に多くの不純物が乱雑な位置に分布しているのであるから、各不純物が受ける速度の変調は試料全体（三次元的に違った鎖に対しても）で位相がかなり合っていないとトータルな電流に時間的にコヒーレントな変調は生じないはずである。この意味で、現実の試料で、鋭いスペクトルピークの NBN 成分が観測されるということも驚くべきことである。

さて、もう一つの興味深い現象は、CDW の並進に伴って観測される CDW 電流に含まれる時間的にインコヒーレントなゆらぎの成分である。これは Broad Band Noise (BBN) と呼ばれ非常に低周波なゆらぎで  $1/f$  的な特性を示す。  $E < E_T$  の CDW がピン止めされた状態では単に白色雑音が存在するだけである。

#### □ CDW を記述するモデル

この系の物理的特徴を理解するために CDW を記述するモデルの例を示す。現在最も系の本質を捉えていると考えられるモデルは Fukuyama-Lee-Rice (FLR) モデルであろう。 [2] これは、CDW を試料中にランダムに位置する不純物にピン止めされた古典弾性体として扱うものである。CDW は試料全体にわたってコヒーレンスを保って並進運動を行なう。このようにマクロで有効質量が大きいものの運動は古典的に扱っても良いであろうという思想に基づいている。また、電子の運動は格子の運動に比べると十分に速いので、まず格子変調を決め、その作る断熱ポテンシャルの中での電子バンドに電子を詰めて議論するという断熱近似をとることで CDW の自由度は格子の自由度だけで記述される。CDW は  $\rho(x) = \rho_0 + \rho_1(x) \cos(Qx + \phi(x))$  ( $x$  は空間変数)、  $Q = 2\pi/\lambda$  は CDW の波数 ( $\lambda$  は波長) と記述され振幅  $\rho_1(x)$  と位相  $\phi(x)$  の 2 つの場の自由度を持っている。  $\rho_0$  は空間一様な電荷密度。FLR モデルでは励起エネルギーの大きな振幅の自由度は凍結させ、位相  $\phi(x)$  の自由度で空間中ランダムな位置  $X_i$  ( $i = 1, \dots, N$  :  $N$  は不純物の数) に分布する不純物との相互作用によるエネルギーを最小にするように変形させる。このモデルでは CDW と不純物との相互作用が不純物のある位置だけに  $\delta$  -関数的に働くので、さらに有効な自由度を落として、CDW の状態を不純物のある位置での CDW の位相  $\phi_i \equiv \phi(x = X_i)$  の組で記述するという近似が成り立つ。結局、CDW の運動は、位相  $\{\phi_i\}$  の時間発展で記述される。CDW の AC 電場に対する反応から CDW の運動は、質量項 ( $\frac{d^2\phi_i}{dt^2}$  に比例する項) よりも減衰項 ( $\frac{d\phi_i}{dt}$  に比例する項) が支配することがわかる。結局 CDW の運動は以下の緩和型の運動方程式に従う。

$$\dot{\phi}_i = E - \sin(\phi_i - \alpha_i) - \kappa[(\phi_i - \phi_{i+1}) + (\phi_i - \phi_{i-1})] \quad (1)$$

$$(i = 1, \dots, N)$$

ここで右辺第一項は、空間的に一様に働く外場  $E$  によるドライブ、第二項は各不純物が CDW との相互作用により位相  $\phi_i$  をエネルギー的に好ましい位相  $\alpha_i$  にピン止めしようとする項である。不純物の空間配置は CDW の周期的な空間変調に対してランダムであるので  $\alpha_i$  は各サイトで独

立な一様乱数をとる。最後の項が CDW の弾性項で  $\kappa$  は弾性定数。直観的には系の特徴は図 1 に示したような振子の集団の描像を考えると理解し易い。各振子は、それぞれランダムな方向  $\alpha_i$  に位相を合わせようとするが、一次元に弾性的につながっているのでとなり合う位相は、変化を少なくしようとする。これに外場として各振子に一様なトルク  $E$  がかかっている。このモデルでまたはこのモデルの拡張で実際の CDW の基本的な実験結果の多くが説明されている。ピン止めポテンシャルをこえる大きなトルク  $E$  をかけた時には、各振子は回転し始め、これが CDW の並進運動に対応するが、このときの CDW によって運ばれる電流  $J_{CDW}$  は

$$J_{CDW} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \dot{\phi}_i \quad (2)$$

という形で、各振子の角速度の空間平均で与えられるマクロな量である。運動方程式 (1) から理解されるように  $\dot{\phi}_i$  は  $\sin$  項によって時間変調される。この変調が各振子で位相がだいたい合っていれば電流  $J_{CDW}$  にコヒーレントな振動が生じる。これが NBN だと考える。このモデルでは多自由度性とランダムネスが本質的である。

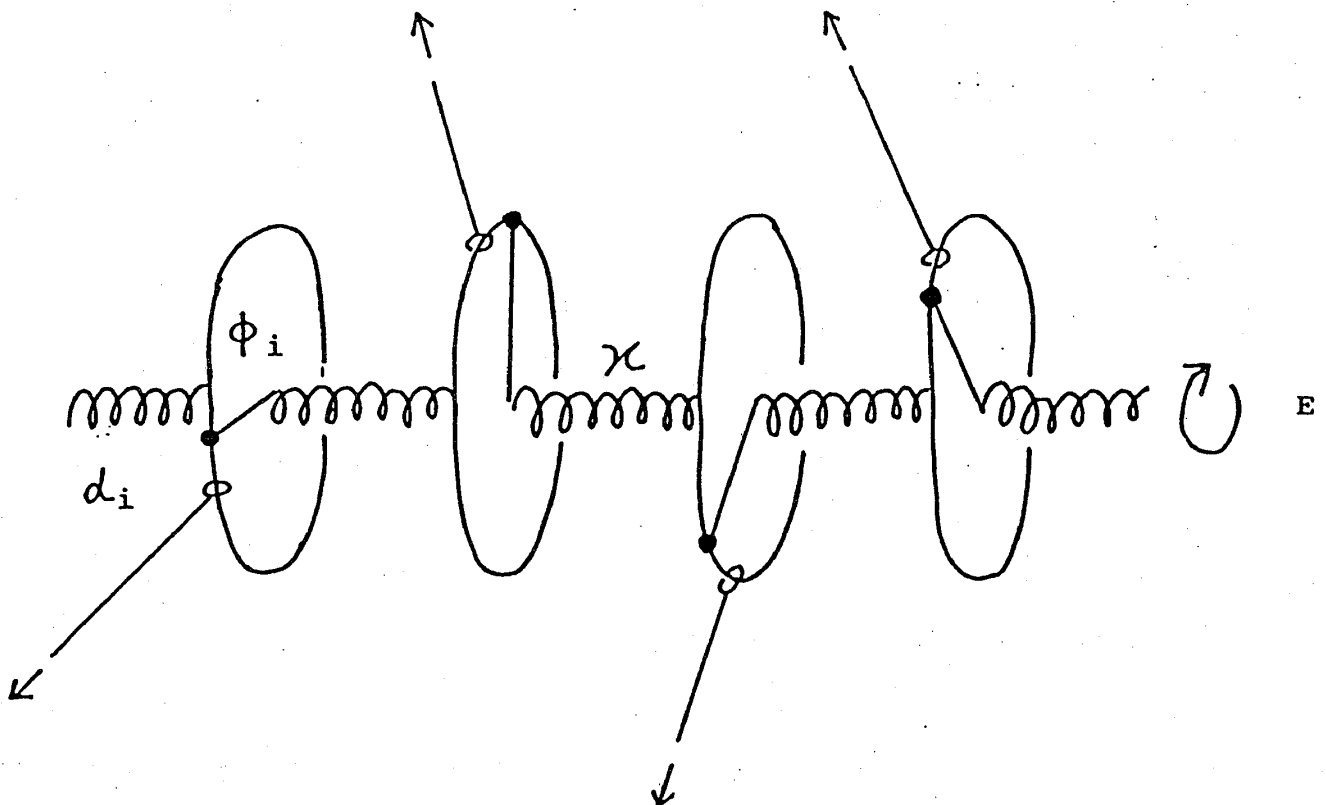


図 1

## □ 第一の論文紹介

“Temporal Coherence in the Sliding Charge-Density-Wave Condensate”

S. Bhattacharya, J.P. Stokes, M.J. Higgins and R.A. Klemm: Phys. Rev. Lett. 59 (1987) 1849.

CDW 系に直流と交流の外場を同時に加えるとモードロッキングが観測されることが知られている。直流外場  $V_{dc}$  で CDW の並進運動を生じさせ、これに伴って、NBN 周波数  $\omega_0$  の電流振動が生じ、さらにこれに交流外場  $V_{ac} \sin(\omega t)$  (周波数  $\omega$ ) を加えることで CDW の NBN 周波数  $\omega_0$  が  $\omega_0/\omega = p/q$  ( $p, q$ : 整数) にロッキングされる。このような現象は Josephson 接合や半導体などでも報告されているが、これらは結局一自由度の circle map で説明されてしまう単純な現象であった。この論文では、CDW のモードロッキングの構造について調べるものである。彼らは、モードロッキングを周波数領域 (frequency domain) で観測する。交流外場の周波数  $\omega$  を固定して、直流外場の大きさ  $V_{dc}$  を変化させていく。NBN 周波数  $\omega_0$  は  $V_{dc}$  とともに変化する。彼らははじめ  $\omega_0$  を  $\omega_0/\omega = 1/2$  を満たす値より小さくしておき  $V_{dc}$  をふやして、 $\omega_0$  を増大させて行き、モードロッキングが生じると何が生じるかを観測した。以下が結果である。まず、 $\omega_0$  がまだ小さくてモードロッキングしない時は、 $\omega_0$  に基本周波数のピーク、 $\omega - \omega_0$  にサイドバンドのピークが観測される。どちらのピークも測定可能な線巾を持っている。 $\omega_0$  を増やして行くと2つのピークは近づき、ある程度近づくと、 $\omega_0$  は  $\omega_0/\omega = 1/2$  に引き込まれ (2つのピークはマージする)  $V_{dc}$  を増加させても  $\omega_0$  は固定されている。このモードロッキングが生じている時には、ピークの線幅は測定限度以下まで大きく減少する。またこの時、モードロッキングしていない時には観測された  $1/f$  的な BBN がほとんど完全に消失する。 $V_{dc}$  をさらに増加させて行くと、モードロッキングがはずれ、また、 $\omega_0$  は増加して行き、線幅は広がり、BBN が登場する。これらの現象はどのように理解したらよいのだろうか。

ところで、そもそも NBN のスペクトルピークの線幅というのは何に由来しているのだろうか。いままで広く信じられていた常識は以下のようなものであった。CDW は一次元の鎖方向に強くコヒーレンスを持っているが、違った鎖の間はそれよりもずっとコヒーレンスが弱いであろうことが予想される。一本の鎖の上の CDW の運動は直流外場を加えて十分に時間がたてば平衡状態に達しているだろうと予想する。この時各鎖での CDW の並進速度、NBN 周波数は不均一に分布していると考え。ここで注意しなくてはいけないのは、CDW の運動は各鎖で平衡状態に達しているとしたので、この分布は時間不変である。実験で測定されている電流は、試料

全体の総量であるので、このスペクトルは有限の不均一幅を持つであろう。さて、ここに交流外場をかけると各鎖での周波数がモードロッキングの結果均一化されて、スペクトルの線巾が減るであろう。

この論文の著者達は、この常識が正しくないことを実験的に証明していく。CDW に外場を加えて電流を測定することで電流の時間変化のデータが得られる。このデータを十分長い時間区間で区切って1つの時系列データから多くのサンプリングデータを切り出す。その各サンプリングデータの Fourier スペクトルをとることにより、CDW 電流が時間的にゆらいでいるかどうかを調べることができる。彼らは、各サンプリングデータでの NBN 周波数のピーク位置 $\omega_0$ と、ピークの振幅のヒストグラムを求めた。以下が観測結果である。

◎モードロッキングしていない時、または交流外場  $V_{ac} = 0$  の時

- NBN の ピーク周波数  $\omega_0$
- ピークの振幅                      が
- 高調波成分組成

非常にゆっくりとした時間スケール ( $\gg 1/\omega_0$ ) で時間的にゆらいでいる。注意すべき点は、各サンプリングデータでのスペクトルでは、ピークは、十分に鋭いということである。この鋭いピークの位置が各サンプリングデータごとにゆらぎ、ヒストグラムでは、ガウス分布的に分布する。また、ピークの振幅のゆらぎもガウス分布的である。

- BBN ( $1/f$ 的) が観測される。
- 各サンプリングデータの観測時間幅よりもずっと長い時間域での電流変化のデータからのスペクトル (いわゆる普通のスペクトルデータ) では、ピークの線幅が広い。

◎モードロッキングしている時

- NBN のピーク周波数 $\omega_0$ の時間的ゆらぎは凍結される。しかしピークの振幅のゆらぎは依然として残る。
- BBN の振幅は大きく減少する。
- 長時間データからのスペクトルのピークの線幅は測定限度以下に大きく減る。

これらの実験結果を総合すると、次の描像がユニークであることが理解されるであろう。  
「NBN のピークの線幅は不均一幅ではなく、CDW のトータル電流というシステムにマクロな量 (NBN 周波数 $\omega_0$ ) 自体が非常に長い時間スケールでゆらぐために生じる。また  $1/f$  的な BBN は、このゆらぎに由来する。」

□ 第二の論文紹介

“Noise, Intermittency and Modelockings in Sliding Charge Density Wave Conductors”

S. Bhattacharya, M.J. Higgins, J.P. Stokes and R.A. Klemm

Phys. Rev. **B38** (1988) 10093.

この論文は前論文の続編であるが、非線形科学者にはより刺激的だと思われる。先にも触れたが、モードロッキングしていない時、CDW 電流は、時間的に非常にゆっくりゆらいでいて、これが  $1/f$  的な BBN を生じさせている。このゆらぎは決定論的カオスというよりは、むしろ熱雑音によって誘発されるものだと信じられている。少なくともバルクの CDW 自体でカオスが生じるという報告は1つも無い。構造のない白色雑音を入力として CDW 系のダイナミクスが長時間的なゆらぎ  $1/f$  ノイズを作り出しているというのは十分に興味深い問題である。CDW は非常に多自由度系だと信じられている。観測している CDW 電流はこれら多自由度的なものの平均量で、いわばマクロな変数である。実験結果からは、このマクロな物理量が非常に長い時間スケールでゆらいでいることが示された。これは、系のいくつかの自由度が独立に熱的にゆらいでいるというものではなく、系全体の自由度が位相空間の中で大域的にゆっくりとゆらいでいる必要があると考えられる。これがどのように生じているのかは、理論的にはほとんど理解されてはいない。さて、この二番目の論文では、このようなゆらぎの存在する系においてモードロッキングがどのように生じているかに対して興味ある報告をしている。交流外場の無い時には、違った時間域でとったスペクトルのデータはピーク位置 $\omega_0$ のバラつきがガウス分布を示している。交流外場を加えていても、モードロッキングしていない時では、同様だが、少し注意が必要である。彼らは、NBN 周波数の平均値 $\bar{\omega}_0$ が交流外場の周波数 $\omega$ に対して $\bar{\omega}_0/\omega = 2/3$ を満たすより少しだけ大きいという場合に各サンプリングデータでの NBN 周波数 $\omega_0$ の分布を測定している。やはり周波数 $\omega_0$ は時間的にゆらいでいるが、分布はガウスのではなく $\omega_0/\omega$ が  $2/3, 7/10, 5/7, 3/4$  と  $2/3$  に近い整数比にピークを持っている (当然  $2/3$  のピークが最も大きい)。

交流外場の存在のために相空間に新たに $\omega_0/\omega = p/q$  ( $p, q$ : 整数) のロッキングトーラスができて、これをアトラクターとして CDW の自由度が吸い込まれる。しかし、もともと周波数 $\omega_0$ をゆらがせるような不安定性を CDW のダイナミクス自身が内在しているために、時々このアトラクターから逃げ、他の回転比のトーラスの Basin へ落ち込み、こんどは違った回転比に周波数 $\omega_0$ がロックされるといったシナリオが予想される。残念ながら、このアトラクター飛び移りで、1つのアトラクターに滞在している時間スケールについては何も調べられてはいない。また、このアトラクター飛び移りは、決定論的力学系自身がトランジェントになっているという訳ではないことは次の例から明らかである。

CDW 電流で観測される BBN の大きさ (振幅) にはサンプル依存性がある。どんなサンプルでも入力される熱雑音 (白色雑音) のレベルは同じだと考えられるので、CDW のダイナミクス自体、すなわち位相空間が  $1/f$  的なゆらぎを造り出す能力がサンプルにより違っていると考えるのが自然であろう。(そもそも何によって BBN が生み出されるかも理解されていないのであるが。) 彼らは、BBN の大きさの小さい、電流のゆらぎの小さいサンプルで先と同じ実験を行っている。この場合は NBN の平均周波数が先の例と同じであっても周波数 $\omega_0$ の分布は整数比にピークを持つことはなく、平均値まわりにガウス分布している。つまり、周波数のゆらぎが小さいためにどのロッキングトーラスの Basin にもつかまらないのである。この場合平均周波数をさらに  $2/3$  ロッキングに近づけて行くと、あるところでシャープにロッキングされ、ゆらぎはほとんど凍結する。このゆらぎの大きさでは、この  $2/3$  ロッキングトーラスの Basin の外に逃れることが出来ないからである。

#### □ 残された問題点

1. 入力される白色熱雑音で CDW の多自由度変数が相空間をマクロに非常にゆっくりと diffusion するという描像で理解すると考えているのだが、このためには、CDW のダイナミクス自身にこのような不安定性を内在している必要があると思われる。この意味で、量子カオスの雑音で誘発される拡散と似ているように感じられる。このような不安定性はどのような構造から導かれるのであろうか? 最近行われた宮下-高山による数値計算は、実験事実との対応でいくつかの問題点を含んではいるが示唆的である。 [3]
2. この系にさらに交流外場を加えた時のモードロッキングで観測されたアトラクター飛び移りはどのような構造で生じているのだろうか。アトラクターに捕まっている時は系の有効な自由度は



落ちているが、飛び移る時にはもとの多自由度の力学系であるはずである。

3. ロッキングして NBN 周波数のゆらぎが凍結しても、スペクトルピークの振幅は依然としてゆらいでいる。何の自由度がゆらいでいるのか？
4. 今回は触れなかったが Bhattacharya 達は、モードロッキングに関してもう 1 つの実験を報告している。[4] Josephson 接合や半導体で見られるモードロッキングでは、加えている交流外場の大きさ  $V_{ac}$  を大きくしていくとロッキング領域が広がり、あるしきい値より増すとレゾナンスオーバーラップを生じ、Period Doubling ルートでカオスになることが報告されている。結局これは、サークルマップの相構造で説明されてしまう。ところが CDW 系ではだいぶ話が違っているらしい。 $V_{ac}$  が小さいとロッキングは生じない。 $V_{ac}$  を大きくしていくとロッキング域は広がるが、単調ではなく、ある程度大きくするとむしろ狭くなって行き、結局カオスになるどころかロッキングすら生じなくなってしまう (reentrant unlocked)。これも興味深い事実だが、この現象の意味をさらにくわしく理解するには、CDW 系自身のもっと深い知識が必要となるので、興味のある方は原論文を参考していただきたい。

□ さいごに

アイデアのある実験家のすごみを羨望しつつも、次回の理論家側からの反撃を誓って、この奇妙な理論家による実験のレビューはいいかげんに終わりにする。

## References

- [1] G. Grüner and A. Zettle, Phys. Rep. **119** (1985) 117.
- [2] H. Fukuyama and P.A. Lee, Phys. Rev. **B17** (1978) 535;  
P.A. Lee and T.M. Rice, Phys. Rev. **B19** (1979) 3970.
- [3] T. Miyashita and H. Takayama, J. Phys. Soc. Jpn. **57** (1988) 2889.
- [4] S. Bhattacharya, M.J. Higgins and J.P. Stokes, Phys. Rev. **B38** (1988) 7177.