

電荷密度波の非線型パルス電場応答における端効果

広島大学大学院先端物質科学研究科

磯部 義興

1. 序

電荷密度波 (CDW) は、あるしきい電場 E_T 以上で並進運動し、それに関連した様々な興味深い現象が観測されている。中でも、非線型伝導現象は低周波領域の現象であり、コヒーレントな CDW 自体が関与している現象でもある。また、古典論的には CDW を連続弾性体として取り扱い、その運動を摩擦との関連でとらえられる対象でもある。

我々はこれまで、擬二次元伝導体である η - Mo_4O_{11} 単結晶について、パルス電場応答測定による CDW の非線形伝導の研究を行ってきた。1) この物質系は、35 K と 105 K で 2 度の CDW 転移を起こす。これまでの研究で得られた典型的なパルス電場応答波形を図 1 に示す。これからわかるように、パルスが立ち上がった後の伝導率はいったん減少し、その後次第に増大するという変化を示す。前者は CDW の変形過程、後者は CDW の並進運動による事が既にわかっている。すなわち CDW に電場を加えると、最初 CDW はピン止め中心による制動をうけて変形し、過渡的変位電流により伝導率は次第に減少する。この時、変形による分極も生じ、周りのノーマルキャリアによるスクリーニングが起こると考えられる。その後 CDW はピン止めから外れて、並進運動を開始して伝導率が増大する。ここで変形過程の緩和時間を τ_D 、並進過程の緩和時間を τ_S とする。これらは以下の式で近似できる事が知られている。

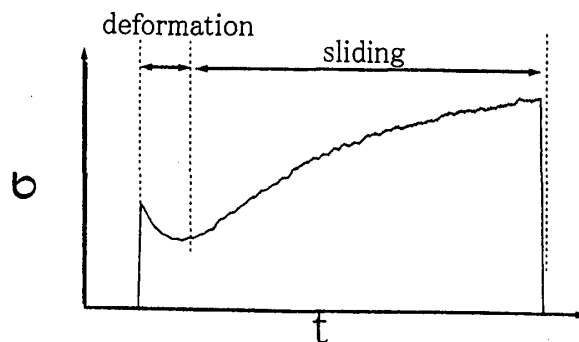


図 1 η - Mo_4O_{11} 単結晶における非線型パルス電場応答波形

$$\tau_D = m_{\text{CDW}} / \alpha(E) E^2, \quad \tau_S = m_{\text{CDW}} / K(E) E, \quad (1)$$

ここで $\alpha(E)$ は変形に伴う分極率、 $K(E)$ はピン止め中心等による摩擦係数である。

これまでの CDW のダイナミクスに関する研究のほとんどは、バルクな物性についてなされたものであり、電極や端の効果は考慮されていない。しかし現実

の結晶系では電極や端が存在し、電極近傍で CDW がどのように生成・消滅するのか、あるいは CDW そのものが試料端近傍でどのように振る舞うのかなどは興味深い問題である。最近、高解像度 X 線回折実験及び数値計算から、格子の周期歪みによる衛星反射スポットの位置が電場を加えると端子付近で図 2 の様に変化する事、また CDW 電流及び電場も試料中で図 2 のような分布を示す事が Brazovskii 等によって報告され、その原因についての考察が行われた。²⁾

図 3 は CDW 系に電流を流した時の、試料内におけるノーマルキャリアー CDW 間のキャリアの conversion を模式的に示したものである。しきい電場以上の電場をかけると、左の端子から注入されたノーマルキャリアは電極近傍で CDW を生成し、試料内を並進して、右の電極近傍で CDW は消滅してノーマルキャリアとなり試料外へ出て行く。これから予想されるように、電流端子近傍を含む測定系で非線型伝導現象を観測すれば、CDW の生成・消滅を含む端の効果による CDW 状態の変化などが観測されるものと期待される。

本研究の目的は、CDW の非線形パルス電場応答に及ぼすこのような端効果を明らかにする事である。そのため、我々は、非線形パルス電場応答、及び抵抗率やしきい電場といった物理量の端子位置依存性を測定し、CDW のダイナミクスに及ぼす端効果について考察した。

実験法

測定には、C V T (Chemical Vapor Transport) 法で育成した η - Mo_4O_{11} 単結晶を用いた。非線形パルス電場応答測定は、基本的には直流四端子法で、電流・電圧端子はインジウムを用いて端子づけした。今回の研究では、パルス電場応答の位置依存性を測定するため、電圧端子は一方の電流端子からほぼ等間隔に、多数

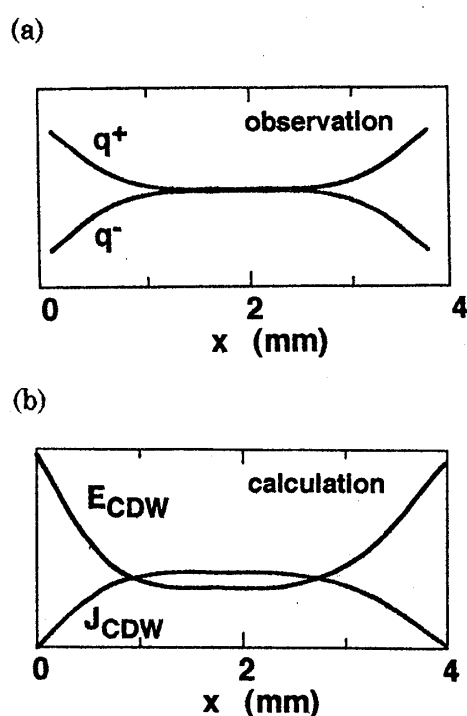


図 2 (a)衛星反射の電場による移動
(b)CDW電流・電場の分布

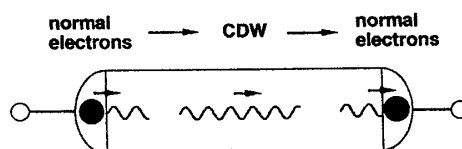


図 3 CDW系での carrier conversion

(5 個程度) 取り付けた。電流端子間に矩形パルス電流を流し、電圧端子間の電位差の時間変化をデジタルオシロスコープで測定して、伝導率に変換して記録・解析した。測定に用いたパルス電場強度は $10 \sim 500$ mV/cm, パルス幅は 1.6 ms で、 4.2 K で測定した。また、しきい電場 E_T の測定には上の測定装置を用い、パルス幅を 3 ms と長くして行った。この場合、伝導率は測定電位差の時間平均から得た。測定に用いた試料 # 1 は 4.2 K での残留抵抗が約 $15 \mu\Omega\text{cm}$ であり、# 2 は約 $10 \mu\Omega\text{cm}$ である。これらの値から、# 2 のほうが比較的良好な試料である事が分かった。

2. 結果

図 4 は残留抵抗の異なる二つの試料 # 1 及び # 2 について、伝導率の非線形応答の端子位置依存性を示したものである。測定では、挿入図のように、試料側面に約 0.4 mm 間隔で 5 つの電圧端子を取り付け、位置 X を変えて測定を行った。ここで X は、電圧端子間の中点と電流端子との距離で定義した。いずれの試料でも、各端子位置 X について、伝導率 σ は短時間領域で指数関数的に減少し、長時間側で増大する。これは前述した CDW の変形・並進過程によるものであり、報告されている結果と定性的によく合っている。

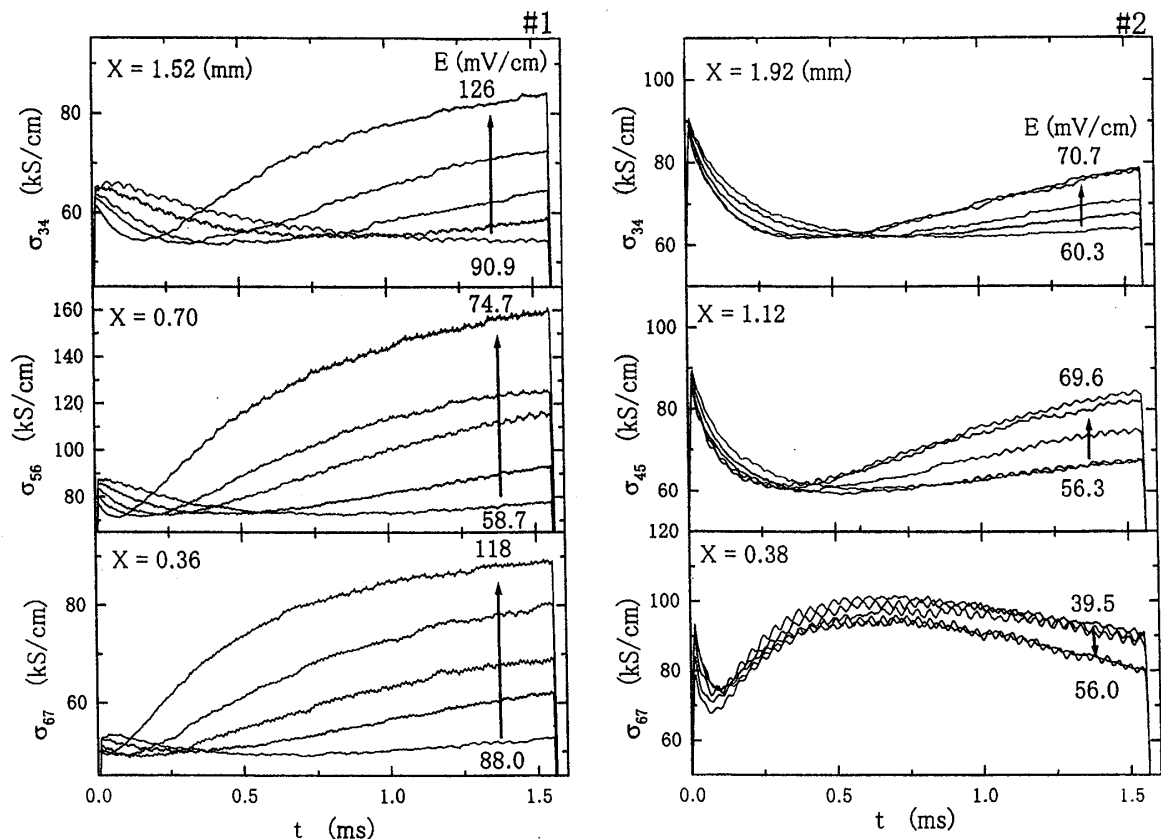


図 4 非線形パルス電場応答の位置依存性

試料 # 1 の結果を見ると、試料のほぼ中央で測定した σ_{34} と、より電流端子近傍で測定した σ_{56} , σ_{67} では、明らかに後者の方が変形過程の変化が小さく、その緩和時間 τ_D が速くなっている。また、並進過程の緩和時間 τ_s でも早くなる傾向が見られる。一方、# 2 については、# 1 と同様の伝導率の位置依存性が見られ、また # 1 に比べて変形過程の緩和時間が長いという違いが現れた。これは、この試料が良質でピン止め中心濃度が小さいためと考えられる。(# 2 において、 σ_{67} に 0.5 ms 以上での伝導率の低下が観測されているが、これについては未だ不明である。)

次に試料 # 1 について、抵抗率及びしきい電場の位置依存性を測定した。図 5 は 200 K の抵抗率で規格化した ρ/ρ_{200} の温度依存性を各 X についてプロットしたものである。高温側のノーマル相では、実験結果は誤差の範囲内で一致しているが、低温の CDW 相では、中央付近の $X = 1.52, 1.09$ mm に比べ端近傍である $X = 0.36$ mm における抵抗率が大きくなっ

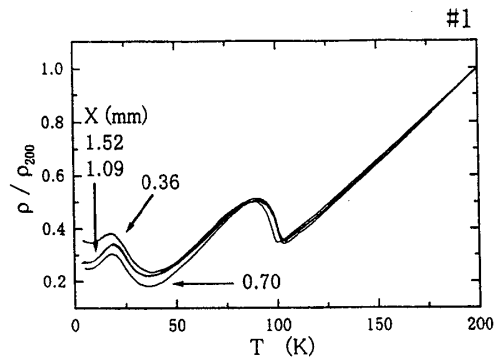


図 5 抵抗率の位置依存性

ている ($X=0.70$ mm では逆に小さくなっているが、このプロットのみ 30~80 K で他より小さくなっているため、端効果以外の何らかの原因によると考えられる)。 $X=0.36$ mm における残留抵抗率の増大は、端付近で不純物濃度が少し大きい事を示唆している。図 6 は、しきい電場 E_T の位置依存性である。前述した通り、この測定は通常の定常電流ではなく、パルス幅 3 ms のパルス電場を用いたため測定誤差はかなり大きいですが、明らかに端に近づくにつれて E_T は大きくなっている。この物質系では E_T は 15~20 mV/cm 程度とされているが、このような大きな位置依存性が見られる事が特に注目される。定性的には、残留抵抗率の位置依存性と対応している。

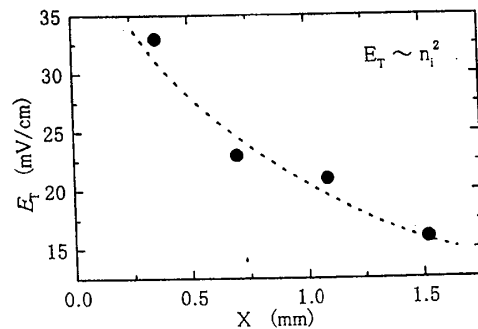


図 6 しきい電場 E_T の位置依存性

3. 考察

CDW のダイナミクスに関する知見を得るため、緩和時間 τ_D 及び τ_s の解析を行った。ここで、# 1 は変形過程の大きさが小さく、解析による緩和時間の誤

差が大きいため、並進過程についてのみ解析を行った。また試料#2は並進過程が測定時間内に緩和していないため、同様の理由から変形過程のみ解析した。図7(a)は#2における変形過程の緩和時間 τ_D の電場依存性で、(1)式で示すように

ほぼ E^{-2} に比例して減少し、

また電流端子に近づくにつれ小さくなっている。また

ここには示さないが、#1の並進過程の緩和時間 τ_s も、定性的によく似た振舞いを示した。このような τ_D 及び τ_s の位置依存性をプロットしたのが図7(b)で、

明らかにいずれの過程の緩和時間も、端に近づくにつれ急激に小さくなっている。CDWのコヒーレンス長は一般に μm のオーダーである事を考慮すれば、そのダイナミクスも同程度の長さスケールで変化すると考えられるのに、測定結果を見ると端から1 mm という非常に長いスケールで変化

しているという事が特筆すべき点である。

一方、Brazovskii 等は、高電場下での衛星反射シフトや電流密度の空間分布について考察し、その原因はノーマルキャリアからCDWへの conversion rate の空間変化によるものだと結論づけている。この考えに基づくと、試料を流れる全電流密度 j_{tot} はノーマルキャリアによる線形項 j_n とCDWによる非線型項 j_{CDW} の和で

$$j_{\text{tot}} = j_n + j_{\text{CDW}} = E(\sigma_n + \sigma_{\text{CDW}}) = \text{constant}, \quad (2)$$

と表わされ、 j_n と j_{CDW} の割合が位置によって変化する。すなわち、端子付近では中央に比べてCDWのキャリア濃度が低く、これによる伝導率が小さくなっていると考えられる。緩和時間やキャリア濃度などに関する以上の様な議論を踏まえ

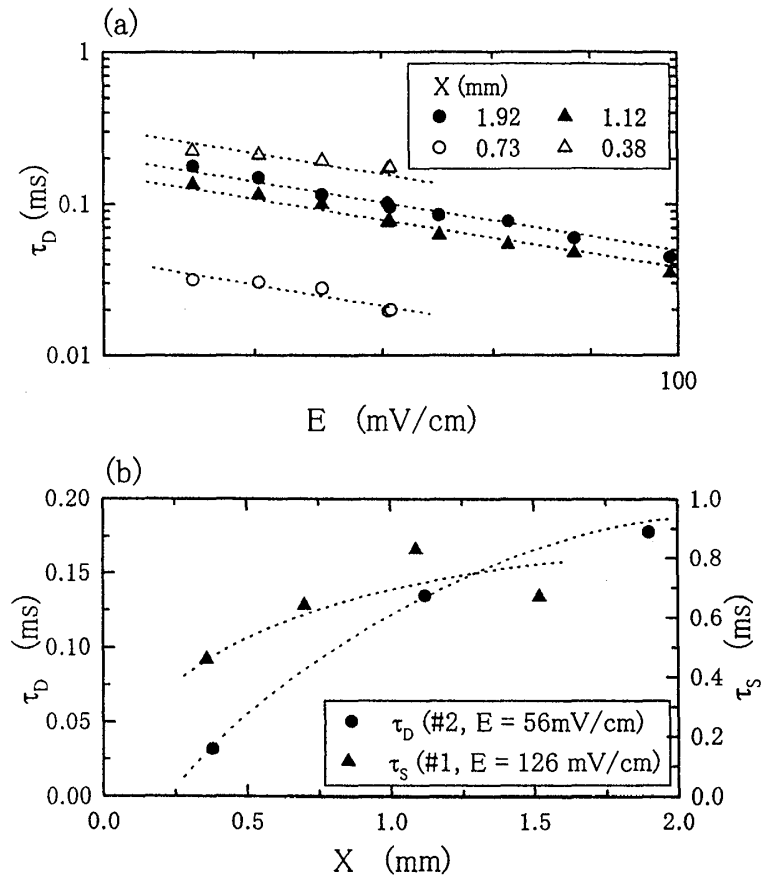


図7 緩和時間 τ_D 及び τ_s の
(a)電場依存性, (b)位置依存性

て、我々は実験結果を説明するため以下の様なモデルを考えた。

電流端子のある試料の端近傍では、おそらく格子欠陥等のピン止め中心が多く分布していると考えらる。その場合、しきい電場 E_T は、端近傍でピン止め中心濃度の2乗に比例して増大し、抵抗率も大きくなる。また同時に、電流端子近傍では前述のようにキャリアのCDWへの conversion が小さく、CDWのキャリア濃度が低いと考えられる。CDWが運動する時、結晶格子もクーロン相互作用により同期して振動する。格子の陽イオンは電子に比べはるかに重いので、この微小振動がCDWの有効質量を大きくしている。しかしCDWのキャリア濃度が低く、格子との相互作用が小さい場合、CDWの運動に伴う格子の振動は小さく、CDWは動きやすく（有効質量が軽く）なり、その結果緩和時間が端付近で小さくなると考えられる。

4. 参考文献

- 1) M. Sasaki, G. Houzaki, M. Koyano and M. Inoue: J. Phys. Solids **57** (1996) 281.
- 2) S. Brazovskii, N. Kirova, H. Requardt, F. Ya. Nad, P. Monceau, R. Currat, J. E. Lorenzo, G. Grübel and Ch. Vettier: Phys. Rev. B **61** (2000) 10640.