強磁場下におけるグラファイトの新奇電子相

国際超強磁場科学研究施設 秋葉 和人、三宅 厚志、徳永 将史

研究の背景

磁場は電子の軌道運動、スピン、および位相を直接精密に制御できる外場であり、物性研究に幅広く用いられている。 実験室で発生可能な磁場による効果は物性を支配する他のエネルギースケールと比べてはるかに小さいため、磁場は通常 既存の状態に対する摂動として扱われる。しかしある種の少数キャリア系では、人工的に発生した磁場下においてサイク ロトロンエネルギーがフェルミエネルギーを凌駕した状況を実現できる。このとき、すべてのキャリアが最低ランダウ準 位に落ち込んだ量子極限状態が実現する。量子極限状態では磁場と垂直な方向のキャリアの運動が最小軌道半径を持つサ イクロトロン軌道に閉じ込められるため、電子間相互作用とバンド幅との比で定義される電子相関の効果が顕著になる。 その結果として、二次元電子系における分数量子ホール効果に代表されるような特異な量子状態が実現する。より一般的 な系の量子極限状態でどのような量子状態が実現するであろうか。特にほぼ同数の電子と正孔が共存する半金属の量子極 限状態は、多彩な量子相実現の舞台として興味深い。半金属における電子正孔系の強磁場物性は、極限的強磁場下におか れた電子-陽子系の物理に通じるものがあり[1]、より一般的な物理学の問題としても注目に価する。

このような背景の中で我々は、代表的半金属の一つとして知られるグラファイトの強磁場物性を研究している。グラファイトはハニカム構造を持つグラフェンを、一層おきに横にずらしながら c 軸方向に積層した構造を持つ。キャリア数密度は電子・正孔ともほぼ同程度で、約3×10¹⁸ cm⁻³と知られている。グラファイトの c 軸方向に 7.4 T 以上の磁場を印加すると、電子的および正孔的ランダウ準位がそれぞれスピン分裂した計4個の準位だけにキャリアが存在する準量子極限状態が実現する。この準量子極限状態にさらなる強磁場を印加すると、多段の相転移が現れる[2-4]。特に最近見出された 53 T 以上の電子相の起源については、過去の報告と整合する説明が得られていない。そこで我々は様々なタイプのグラファイト試料に対してパルス強磁場下における磁化、磁気抵抗、ホール効果の測定を行った。その結果に対する考察から、53 T 以上の磁場下で出現する層間伝導にギャップを持つ状態の起源の一候補として、励起子のBCS 的状態という可能性を指摘した[5]。

実験結果

図 1 は温度 1.4 K で測定した単結晶グラファイトの面内($I \parallel ab$ plane)および面間($I \parallel c$ -axis)の磁気抵抗である。約 27 T ~ 53 T の 磁場領域では面内および面間の電気抵抗がともに増大しており、こ の領域で電荷密度波もしくはスピン密度波が形成されているとして 説明されてきた[6-8]。一方で面間抵抗には 53 T 以上の磁場領域で もう一段の抵抗上昇が見られる。様々な温度での測定結果を見ると この抵抗上昇は低温ほど顕著になっており、面間方向の電気伝導に ギャップが開いていることがわかる。

この 53 T 以上の電子状態を知るために、我々はパルス強磁場下に おける磁化およびホール効果の測定を行った。実験結果の要点は以 下の 3 点に集約される。

(1) 53 T付近に微分磁化率の有意な変化が存在する。(2) ホール抵 抗率およびホール伝導率は53 T以上でほぼゼロとなる。(3) 約 53 T 以上の相への転移磁場は正孔ドープを施したグラファイトでは低下 する。議論の詳細は本論文に委ねるが、以上の結果と理論計算とを



図1 パルス強磁場下で測定した単結晶グラファイト の面内および面間磁気抵抗。

合わせて考察した 53 T 以上におけるグラファイトのバンド分散 を図2に模式的に示す。今対象としている強磁場領域でグラファ イトは磁場と垂直方向に分散を示さず、磁場方向にのみ分散関 係を持った擬一次元系と見なせる。我々の実験結果から考察し た 53 T 以上の状態では、図2のように2本のランダウ・サブバ ンドがフェルミ・レベルと交差する。ここで指数0↓および-1↑ で表された状態は、それぞれ↓スピンの電子的および↑スピン の正孔的ランダウ・サブバンドに対応しており、電子・正孔と もにスピン分裂まで含めた最低ランダウ準位だけを占有する量 子極限状態である。

このような擬一次元導体では一般に2kr不安定性があり、フェ ルミ点間のネスティングによる相転移が起こりやすい[9]。図2 の状況では第一ブリルアン・ゾーン内に4つのフェルミ点が存在



図2 模式的に示した 53 T 以上の磁場領域で実現してい ると期待される電子的(0↓)および正孔的(-1↑)ランダ ウ・サブバンドの分散関係。図中の両矢印 I~III は可能 なネスティング・ベクトルを表している。

するため、図中に両矢印 I~III で示した 3 通りのネスティングが考えられる(図を見やすくするため表示を省略している が残された 2 つのフェルミ点間も同じ波数でネスティングを起こす)。このうち I のネスティングは電荷密度波に相当す る。一方電子的および正孔的サブバンドの間を結ぶネスティングは励起子相であると考えられてきた[10]。励起子相とは 電子-正孔対が BCS 的または BEC 的な凝縮状態を形成した量子相であり、理論的には約半世紀前から存在が指摘されて きた[11-13]。実験的にもいくつかの物質で励起子相実現の可能性が報告されてきたが[14-16]、決定的な証拠は得られて いない状況である。

図 2 に示した量子極限状態にあるグラファイトのバンド構造は励起子相を実現する理想的な状況であるが、実際に 53 T 以上で見られる面間伝導にギャップの開いた相が励起子相であるか否かは現時点で明らかではない。ただ図 2 の III で 示されたネスティングには一つ興味深い特徴がある。図 2 に見られるように $2k_{\Gamma}^{(-1)} + 2k_{\Gamma}^{(0)} + 2\delta k = \pi/c_0$ (co は c 軸長)であ り、これに電荷中性条件から要請される $k_{\Gamma}^{(-1)} = k_{\Gamma}^{(0)}$ という条件を加えると、III の長さは常に $\pi/2c_0$ となる。このような格 子と整合な変調は格子系と結合してさらなるエネルギー利得を得やすいと期待できる。

今後の展開

今後の最優先課題は、53 T 以上で見られる電子相が励起子相か否かを決定づける直接的な証拠を得ることであり、現 在我々は様々な実験手段を使って研究を進めている。また同様の物理はグラファイトに限らず他の半金属でも期待できる。 我々はビスマスや圧力下の黒燐などに対しても強磁場物性研究を進めており[17]、量子極限状態における相転移に関して より一般的な理解を目指している。

物性物理学の中心的テーマとして多くの人々を魅了する超伝導現象は、約百年前に当時高純度試料の得やすかった水銀 で初めて発見された。その後も単純な系で基礎物性が解明されたことが後の BCS 理論の構築に役立ったと言えるだろう。 電子-正孔対の BCS 的状態である励起子相についても、単純な系で基礎物性を明らかにすることが、物理の本質を切り 出すために重要であると我々は考えている。パルス強磁場下で可能な実験手段とその精度は今世紀に入って飛躍的に向上 しており、それらを駆使した実験を通じて量子極限状態における相転移および励起子相の物理の本質を多角的な研究に よって解明したい。

謝辞

この研究成果は東京大学物性研究所の金道浩一教授、松尾晶技術専門職員、東京理科大学の矢口宏教授との共同研究で ある。また東京大学物性研究所の高田康民教授、家泰弘教授(現所属:日本学術振興会)および長田俊人准教授には議論お よび試料提供等を通じて多くのご支援をいただいた。この場を借りてお礼を申し上げる。

参考文献

- [1]「半金属中の電子・正孔相関と超音波の巨大量子減衰」倉本義夫著、物理学最前線(2)、共立出版(1982).
- [2] S. Tanuma et al., Physics in High Magnetic Fields, ed. S. Chikazumi and N. Miura (Springer Berlin, 1981).
- [3] H. Yaguchi and J. Singleton, Phys. Rev. Lett. 81, 5193 (1998).
- [4] B. Fauqué et al., Phys. Rev. Lett. 110, 266601 (2013).
- [5] K. Akiba et al., J. Phys. Soc. Jpn. 84, 054709 (2015).
- [6] D. Yoshioka and H. Fukuyama, J. Phys. Soc. Jpn. 50, 725 (1981).
- [7] K. Sugihara, Phys. Rev. B 29, 6722 (1984).
- [8] K. Takahashi and Y. Takada, Physics B 201, 384 (1994).
- [9] H. Fukuyama, Solid State Commun. 26, 783 (1978).
- [10] Y. Iye et al., Phys. Rev. B 25, 5478 (1982).
- [11] N. F. Mott, Philos. Mag. 6, 287 (1961).

- [12] J. M. Blatt, K. W. Böer, and W. Brandt, Phys. Rev. 126, 1691 (1962).
- [13] D. Jérome, T. M. Rice, and W. Kohn, Phys. Rev. 158, 462 (1967).
- [14] Th. Pillo et al., Phys. Rev. B 61, 16213 (2000).
- [15] B. Bucher, P. Steiner, and P. Wachter, Phys. Rev. Lett. 67, 2717 (1991).

B------

- [16] Y. Wakisaka et al., Phys. Rev. Lett. 103, 026402 (2009).
- [17] K. Akiba et al., J. Phys. Soc. Jpn. 84, 073708 (2015).