

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 15 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540270

研究課題名(和文) スピン・層・軌道の自由度が織りなすグラフェンの多彩な量子特性とその素粒子論的側面

研究課題名(英文) Quantum characteristics of graphene reflecting interplay among spin, layer and orbital degrees of freedom and their relations to particle physics

研究代表者

静谷 謙一 (Shizuya, Ken-ichi)

京都大学・基礎物理学研究所・名誉教授

研究者番号：50154216

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：2次元ディラック電子系として注目されるグラフェンについて、その二層化、三層化に伴って出現する軌道縮退・混合という新種の現象とその帰結を追求した。磁場中の二層グラフェンには複数のゼロエネルギー・ランダウ準位が現れるが、これらの準位がディラック電子系に特有な価電子帯の強い量子ゆらぎにより(軌道の違いに応じて)有意に分離することを指摘した。水素原子のラムシフトに類似したこの新種の多体量子効果“軌道”ラムシフトは積層系の最低ランダウ準位の構造を大きく支配し、その様子は量子ホール効果を通して観測できる。三層グラフェンでは積層形式の違いによりこの量子効果の様子も変わり、三層系の多様性を一段と深める。

研究成果の概要(英文)：Graphene is an eminent system of Dirac electrons and, when stacked to form a few layers, reveals even richer electronic characteristics. We explored a new many-body quantum effect in few-layer graphene and its consequences. In a magnetic field bilayer graphene supports eight zero-energy Landau levels with twofold orbital degeneracy. We pointed out that this orbital degeneracy is lifted by quantum fluctuations of the valence band (Dirac sea), leading to the "Lamb shift" as in the hydrogen atom. This "orbital" Lamb shift governs the structure of the lowest Landau level and is observable via the quantum Hall effect. For trilayers the presence of this effect makes them, depending on their stacking pattern, still richer in variety and in function.

研究分野：数物系科学

キーワード：グラフェン ラムシフト 低次元電子系 ゲージ理論 物性理論 素粒子論

1. 研究開始当初の背景

(1) 炭素の一原子層からなる新素材グラフェン (graphene) には [六角結晶格子の構造を反映する] 質量ゼロのディラック粒子のように振る舞う電子が現れる。グラフェンの発見(2005年)以来その独特な量子特性には基礎と応用の両面から熱い関心が向けられてきた。グラフェンは“相対論的な”2次元電子系であり、“場の理論的”な量子現象を身近な物性系で研究・検証する希有な機会を提供する。グラフェンは素粒子論の研究者にとっても魅力的な研究対象である。

(2) 近年良質な試料を用いた実験に牽引される形でグラフェンの諸特性の理解が進み、研究の焦点はグラフェンの二層、三層のような積層系に移行してきた。積層系ではスピン・軌道・層の自由度が連携し、グラフェンの物理と応用は格段に豊かになる。実際、グラフェンの二層系には外電場によりバンド・ギャップを変化・制御できるという他に類のない特性 [T.Ohta, et al., Science 313, 951 (2006)] があることが知られており、応用の面からもその意義は大きい。

(3) 磁場中に置いたグラフェンには (最低ランダウ準位として) 複数のゼロ・エネルギー準位が現れる。このゼロ・モード準位が量子異常や指数定理を通してゲージ原理と密接な関係を持つこと、そしてその力学が潜在的に豊かな内容を持ちうることを研究代表者は素粒子論の研究を通して体得しており、既にこの視点から相対論的な場の理論に固有な真空(ディラックの海=価電子帯)の量子的な性質やゲージ量子異常に由来すると考えられるグラフェンの諸特性を探求してきた。[実試料では層間の(非主要な)結合を通して、これらのゼロ・モード準位は微細に分離して擬ゼロ・モード準位となる。]

特に、二層系グラフェンの考察では、(スピン・層・軌道の違いで最大8重に縮退する)二層系に特有な擬ゼロモード・ランダウ準位の分離幅がホール電流を用いて制御できることを見だし [T. Misumi and K. Shizuya, PRB 77, 195423 (2008)]、またその擬ゼロ・モード・ランダウ準位には (軌道混合という新現象を経て) 電気2重極子をもつ軌道擬スピン波が現れることを指摘 [K. Shizuya, PRB 79, 165402 (2009); R. Cote, J. Lambert, Y. Barlas, A.H. MacDonald, PRB 82, 035445 (2010)] している。さらにグラフェンのサイクロトロン共鳴に対する多体効果を考察して、既存の実験結果に見られる有意な補正が速度因子の繰り込み(の結果磁場の強さとともに走ること)に由来することを指摘してきている。

2. 研究の目的

上述の背景を踏まえて、研究代表者は、グラフェンのもつスピン・層・軌道の自由度が

電子間相互作用を介してもたらず(相対論的な真空構造を反映する)多様な力学の解明をより一段深いレベルに進めたい。特に、グラフェンの二層化、三層化に伴って出現する軌道縮退・混合という新種の現象を正しく理解し、その帰結を追求する。

3. 研究の方法

(1) 研究テーマ

グラフェンはディラック電子を持つ系であるので、伝導帯と価電子帯が密接に結びつく。このためグラフェンでは価電子帯からの強い量子的揺らぎが通常の電子系には類のない新規な特性をもたらすと期待される。二層系に進むとその効果はより顕著になる。磁場中でグラフェンの二層系には(最低ランダウ準位として)スピン・層・軌道について最大8重に縮退する擬ゼロモード準位が現れる。特にこの軌道に係わる縮退はカイラル量子異常に由来する位相的起源をもつ現象であり、グラフェン二層(そして多層)系に固有な現象である。

前述したように、研究代表者は既にこの擬ゼロモード準位上の集団励起の考察から軌道縮退・混合という新種の力学の理解を一段と深める必要性を認識していたが、同時にこの方向で、軌道縮退するゼロモードが価電子帯からの量子揺らぎにより有意に分離するという理論の手がかりも得ていた。これは水素原子のラムシフト^(*)と類似した量子効果であり、その詳細と帰結を明らかにすることなしには、理論的にグラフェンの二層系の構造とその制御特性を決定することはできない。

.....
^(*)Lamb shift: 量子力学の段階では縮退する水素原子の $2P_{1/2}$ と $2S_{1/2}$ 状態が、量子的な真空の揺らぎを通して微細に分離する現象; Lamb-Retherford の実験によるラムシフトの発見は量子力学が量子電気力学(場の理論)へ発展する切っ掛けとなった。
.....

これらの事実を踏まえて、この新種の多体量子効果の吟味をグラフェン二層系、そして三層系へと進めた。時系列的には以下の4つのテーマについて研究した。

- * 二層グラフェンの量子特性
- 二層グラフェンの最低ランダウ準位における多体量子効果「軌道ラムシフト」
- * ABC 積層型三層グラフェンにおける軌道ラムシフト
- * ABA 積層型三層グラフェンにおける軌道ラムシフトと電子・ホールおよび谷非対称性
- * 磁場中の集団励起の効率的な計算法の開発

(2) 研究交流

グラフェンの物理は物性・素粒子の分野を越えたホットな話題であり、進展が早い。グラフェンに関する実験と理論の最新の情報

に接する最良の機会は（主に欧米で開かれる）国際的な研究集会である。この3年間にも、GRANADA '12 (Granada, Spain), Graphene Week 2013 (Chemnitz, Germany), EP2DS-20 (Wrocław, Poland), Graphene Week 2014 (Göteborg, Sweden) 他、に参加して研究発表・情報収集・研究交流に努めた。

4. 研究成果

磁場中のグラフェンには（最低ランダウ準位として）スピンと谷（valley：六角格子中の2つの副格子に付随する2自由度）について4重に縮退するゼロ・エネルギー準位が出現する。二層グラフェンでは更に軌道指数 $n=0$ と $n=1$ のモードの縮退が起こるため8重に縮退する。三層では $4 \times 3 = 12$ 重の縮退が起こる。この「ゼロ・エネルギー準位の出現」と積層系における「軌道縮退」は（理想的な）ディラック電子系に特有な特性であり、カイラル量子異常とも関わる位相的な起源をもつ。

(1) グラフェン二層系の最低ランダウ準位における“軌道”ラムシフト

ディラック電子系では通常の電子系に比べて価電子帯からの量子ゆらぎが強い。以前からこの量子効果の帰結を追求してきたが、その流れの中で二層系の軌道縮退がこの“真空”の量子ゆらぎにより有意に解けることに気づいた[発表論文3]。実際の計算を眺めると、その機構は次の様に直感的にも説明できる：

(i) 軌道縮退はディラック電子の一体（ハミルトニアン）の段階で、しかも最低ランダウ準位内でのみ生じる。

(ii) 電子間の相互作用を考慮に入れると、軌道縮退に関わる各電子モードは価電子帯の量子揺らぎを感じるようになる。その際、軌道が異なると電子モードの空間分布も異なるため、軌道の異なるモード間でその揺らぎの感じ方に違いが生じ、準位エネルギーの分離が起こる。

この意味で、この現象は水素原子におけるラムシフトと同根の多体量子現象である。しかも二層グラフェンにおけるこの“軌道”ラムシフトは スピン・谷・軌道の自由度を伴う“多成分ラムシフト”としてその姿を現す。

この効果の存在は先行する研究では（電子間相互作用として最低ランダウ準位へ射影したもののみを用いたために）見落とされてきたが、その寄与を正しく取り込むことなしには、二層グラフェンの最低ランダウ準位の構造を理解することはできない。実際、この効果は最低ランダウ準位内のスペクトルの電子・ホール対称性を（主要次で）正しく回復する役割を果たす。[この点についてはスウェーデンで開かれた国際研究集会 Graphene Week 2014 の総合講演の中で A. H. MacDonald がその意義について言及してくれました。]

電子密度（準位充填度）を変化すると擬ゼロモードの軌道の混合が起こり、それに応じて準位エネルギーが変移する。各整数充填度における擬ゼロモード準位スペクトルの計算例を下図に示す。電子・ホール対称性（荷電対称性）が正しく実現していることが見て取れる。

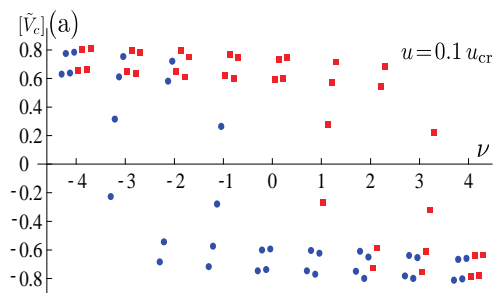


図 1. 各整数充填度における二層グラフェンの擬ゼロモード準位スペクトル

また 充填率 $= 0, \pm 2$ では（軌道混合途中の $= \pm 1, \pm 3$ の状態に比べ）顕著なバンドギャップが現れている。この点を初めとして実験 [B. E. Feldman, et al., Nat. Phys. 5, 889 (2009); Y. Zhao, et al., PRL 104, 066801 (2010)] とは比較的良好に整合している。

引き続き、この軌道ラムシフトに関する考察をグラフェン三層系に拡張した。平成 24 年当時 実験では既に三層グラフェンに関する報告が出始めており、改めて三層系の多様な特性への関心が高まっていた。

積層系の特性は一般に積層の仕方に応じて大きく変わる。六角格子単層は二つの独立した副格子(A,B)からなるが、二層系については一般に上下2層で異なる副格子の一点どうしが重なる AB 型(Bernal 型と呼ばれる)が最も安定な積層形式となり、自然界では二層系は殆どこの型をとる。三層系については、(Bernal 型) ABA 型積層が自然界に最も多くみられ、次に(二層系と共通する)三層の上下反転対称性をもつ ABC 型が並ぶ。

(2) ABC 積層型三層グラフェンにおける軌道ラムシフト

初めに二層系と共通するカイラルな構造をもつ ABC 型三層グラフェンを解析し、二層グラフェンと同様の電子特性と外場による制御性能が引き継がれることを指摘した[発表論文 2]。二層系で起きる2つの軌道モードの混合が、ABC 型三層では3つ軌道モードの間の混合となり、しかもその混合は準位交差を避けるように進行する。その結果、 $= 0, \pm 3$ における顕著な(スピン/谷)分離に加えて、軌道混合に伴う弱い分離が生じ、その様子は量子ホール効果を通して観測できる。

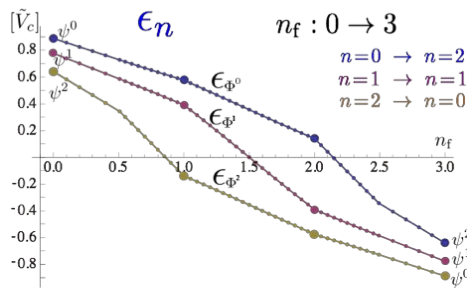


図 2. ABC 型三層 軌道混合が起こり準位交差を回避している:ギャップが持続

(3) ABA 型三層グラフェンにおける軌道ラムシフトと電子・ホールおよび谷非対称性

次に自然界で最も普通に見られる ABA 三層グラフェンについて考察し[発表論文 1]、以下のことを指摘した。

* ABC 型三層とは対照的に、ABA 型三層では電子 1 体の段階で最低ランダウ準位内に一般の非主要な層間結合に由来する谷と電子・ホール非対称性が現れる。これらの非対称性が軌道ラムシフトと電子間相互作用により強められる。

* 最低ランダウ準位内で電子間相互作用と軌道ラムシフトが働く様子は ABC 型と ABA 型で大きく異なる。その結果、以下の図 3、図 4 に見るように、大きなギャップ、あるいは伝導度の平坦部は、ABC 型では充填度のステップ = 3 ごとに、ABA 型ではステップ = 2 又は = 1 ごとに現れる。

今のところ既存の実験結果 [E. A. Henriksen, et al., PRX 2, 011004 (2012); Y. Lee, et al., Nano.Lett. 13, 1627 (2013)] には不確定要素が多いが、その大きな特徴(= -2 の目立つ、そして = 2, 4 にも見える伝導度プラトーや、明白な電子ホール・非対称性など)は上記の考察結果とよく整合している。

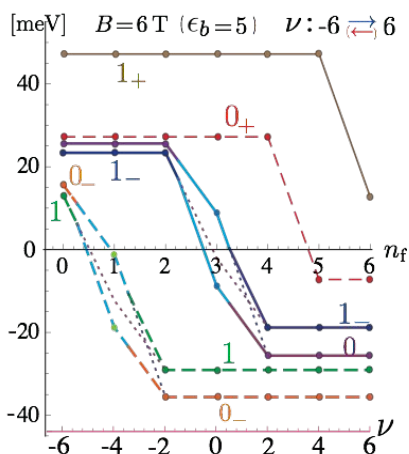


図 3. スペクトル(/スピン)の発展例
混合は 2 軌道モード間で起こり、残る 1 モードは独立に発展する。層間結合の値によっては準位交差も起こりうる。

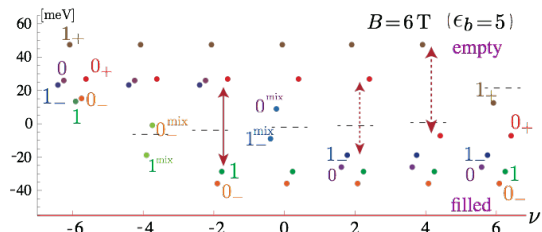


図 4. ABA 三層: 最低ランダウ準位のスペクトル計算例 = ±2, 4 に大きなバンドギャップが見える。

(4) 磁場中の集団励起の効率的な計算法の開発

磁場中では電子間のクーロン(直接)相互作用を交換相互作用が明白な形に書き直すことができる。この相互作用の直接/交換双対性に着目して、代表的な計算法である単一モード近似の枠内で集団励起を記述する実効作用を簡潔な表式にまとめ上げた。その結果、実際の計算が従来に比べ格段に容易となる。目下、応用例として二層グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴や集団励起について(実験で観測されている電子・ホール非対称性を考慮に入れた)再吟味・精密化を進めている。実のところ、新計算法の開発に伴う試行錯誤や各種検証に手間取り、また一時期健康上の問題を抱えたこともあって論文の執筆が大幅に遅れているが、確実に新しい結果が得られているので、今後なるべく早期に論文として発表するべく努めたい。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 3 件)

1 K. Shizuya, "Interaction-enhanced electron-hole and valley asymmetries in the lowest Landau level of ABA-stacked trilayer graphene", Physical Review B 89, 165403 1-10 (2014), 査読有; 10.1103/PhysRevB.89.165403.

2 K. Shizuya, "Orbital Lamb shift and mixing of the pseudo-zero-mode Landau levels in ABC-stacked trilayer graphene", Physical Review B 87, 085413 1-9 (2013), 査読有; 10.1103/PhysRevB.87.085413.

3 K. Shizuya, "Structure and the Lamb-shift like quantum splitting of the pseudo-zero-mode Landau levels in bilayer graphene", Physical Review B 86, 045431 1-11 (2012), 査読有; 10.1103/PhysRevB.86.045431.

[学会発表](計 6 件)

1 静谷謙一, "ABA 積層 3 層グラフェンの最低ランダウ準位における谷および電子・ホール非対称性", 日本物理学会 2014 年秋季大会, 2014 年 9 月 9 日, 中部大学春日井キャンパス。

2 K. Shizuya, “Orbital Lamb shift in the lowest Landau level of graphene trilayers”, Graphene Week 2014, 2014年6月23日, Göteborg, Sweden.

3 静谷謙一, “グラフェン3層系の最低ランダウ準位における軌道ラーム・シフトと混合”, 日本物理学会2013年秋季大会, 2013年9月27日, 徳島大学三島キャンパス.

4 K. Shizuya, “Orbital Lamb shift of the pseudo-zero-mode Landau levels in graphene bilayers and trilayers”, EP2DS-20 (Electronic Properties of Two-Dimensional Systems), 2013年7月4日, Wrocław, Poland.

5 K. Shizuya, “Orbital Lamb shift in the lowest Landau levels of graphene bilayers and trilayers”, Graphene Week 2013, 2013年6月5日, Chemnitz, Germany.

6 静谷謙一, “電子・ホール非対称性を持つ二層グラフェンにおけるサイクロトロン共鳴と多体効果”, 日本物理学会2012年秋季大会, 2012年9月18日, 横浜国立大学常盤台キャンパス.

〔図書〕(計 件)

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

静谷 謙一 (SHIZUYA KEN-ICHI)
京都大学・基礎物理学研究所・名誉教授
研究者番号: 50154216

(2) 研究分担者

()

研究者番号:

(3) 連携研究者

()

研究者番号: