

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 1 日現在

機関番号：32660

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24540384

研究課題名(和文) グラファイトの強磁場誘起密度波多重相の解明

研究課題名(英文) Study of high-magnetic-field-induced density-wave-phases in graphite

研究代表者

矢口 宏 (Yaguchi, Hiroshi)

東京理科大学・理工学部・教授

研究者番号：30314173

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,000,000円

研究成果の概要(和文)：グラファイトは、低温・強磁場下において、電気抵抗の異常な上昇を伴って、電荷密度波またはスピン密度波相に相転移し、53テスラ以上での強磁場で正常相に戻るリエントラント転移が起こると考えられていた。

本研究においては、密度波のより直接的な実験的証拠となる、密度波のスライディング状態で期待される電気伝導度の非線形性を観測した。しかも、これまでは正常相と考えられていた、53テスラを超える磁場領域においても、十分な低温下において、密度波状態を示唆する非線形伝導を観測した。この状態は、電子とホールがペアを作って凝縮する励起子相と同一視できる可能性もあり、電子対の凝縮した超伝導状態との類似性が高く重要である。

研究成果の概要(英文)：Graphite is a semimetal that consists of carbon atoms, and is known to undergo magnetic-field-induced phase transitions at low temperatures and high magnetic fields along the c-axis. These transitions are observed as abrupt resistance changes, and are interpreted as the occurrence of a spin- or charge- density wave along the c-axis. Besides, it has been well believed that the density wave state is terminated at 53 T, above which graphite is in its normal phase.

We have investigated the longitudinal magnetoresistance of graphite in magnetic fields of up to 75 T and found strong indications of the field-induced phase even above 53 T. We have also investigated the current-voltage characteristics in magnetic fields of up to 56 T, with the intention of obtaining more concrete evidence for density wave states, and observed non-linear transport well above 53 T. Consequently, we suggest that another field-induced state is stabilized above 53 T, which may be regarded as an excitonic phase.

研究分野：低温電子物性

キーワード：グラファイト 密度波 強磁場

1. 研究開始当初の背景

近年、単層のグラファイト面であるグラフェンが得られるようになり、理想的な2次元キャリア系として、量子ホール効果などの研究が盛んに行われている。本研究では、グラフェンの多層系の3次元の極限とも言えるグラファイトの低温強磁場下の基底状態に焦点をあてて研究を行う。このことにより、低温強磁場下の3次元キャリア系の基底状態の理解に寄与できると考えられる。

グラフェンのバンド構造は、上下バンドのギャップがつぶれた、ゼロギャップ半導体であるのに対して、グラファイトのバンド構造は、層間の相互作用により上下バンドが重なり合い、 10^{19}cm^{-3} 程度のわずかな電子とホールが生じる。このように、キャリア数が少ないため、c軸方向に7テスラ強の磁場を印加することで、電子・ホールとも最低ランダウ準位のみキャリアの存在する量子極限状態が実現し、低温強磁場での基底状態に関心が持たれる。

低温強磁場下におけるグラファイトに関しては、1980年代に、主に、25-30テスラ程度の定常磁場を用いての研究が行われており(Y. Iye *et al.*, Phys. Rev. B **25** (1982) 5478. など)、密度波相への電子相転移のためと考えられる急激な磁気抵抗の上昇(図1の)が観測された。

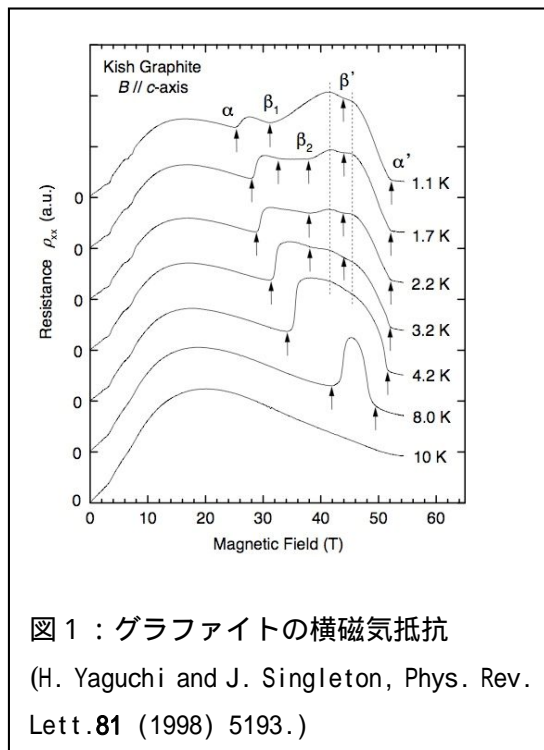


図1：グラファイトの横磁気抵抗
(H. Yaguchi and J. Singleton, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 5193.)

1990年代以降には、研究代表者らのグループ等が、40-55テスラ程度のパルス強磁場を用いた研究を行った。特に、磁場誘起相に相転移(図1の)を起こした後に、約52テスラの磁場で再び正常相にリエントラント相転移(図1の')することが見出され、

磁場誘起電子相の温度・磁場平面における正常相と磁場誘起相の境界が決定された。また、磁場誘起相の内部にも、低温で逐次転移の兆候(図1の)などが観測され、磁場誘起相が多重相であることが示唆されている。(H. Yaguchi and J. Singleton, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 5193. など)

この磁場誘起秩序相の解釈として有力なのは、c軸に平行な磁場によるランダウ量子化のために、エネルギースペクトルが1次元的になることに伴う、c軸方向の電荷密度波(CDW)やスピン密度波(SDW)などの所謂 $2k_F$ 型のネスティング転移である。(D. Yoshioka and H. Fukuyama J. Phys. Soc. Jpn., **50** (1981) 725.)

図2は、グラファイトの温度・磁場平面における相図であり、磁場誘起秩序相(密度波相)と正常相の境界は、よく確立していると言えるが、秩序相の内部での電子状態は、逐

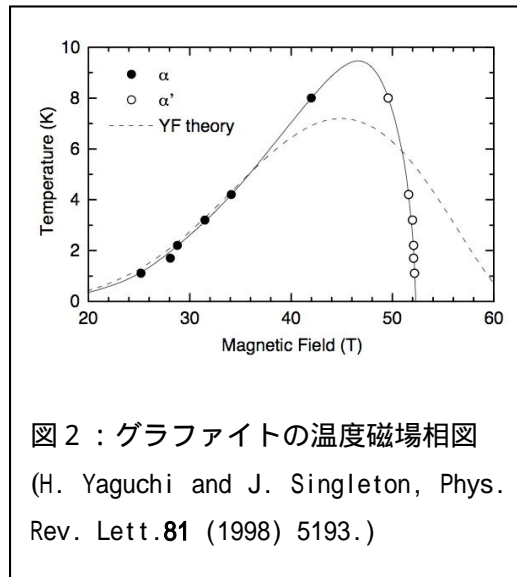


図2：グラファイトの温度磁場相図
(H. Yaguchi and J. Singleton, Phys. Rev. Lett. **81** (1998) 5193.)

次転移による多重相の可能性も含めて、直接的証拠に乏しいこともあり、明確に相境界を決定するに至っていない。

したがって、この現象の観測には、20-30テスラ以上の強磁場が必要であるという実験的制約もあって、磁場誘起密度波相に関する直接的証拠に乏しく、磁場誘起秩序相の性質の本質に迫ることができていない点が、問題点であると考えられる。

2. 研究の目的

グラファイトは、低温強磁場下(20-30テスラ以上)で、磁気抵抗に絶縁体転移的な異常を示し、電荷密度波またはスピン密度波相と考えられる磁場誘起相転移を逐次的に起こすと考えられているが、密度波形成の直接的な証拠に乏しい。

そこで、本研究では、パルス強磁場、及び定常強磁場を用いて、グラファイトにおける磁場誘起密度波多重相に関する理解を深めるために、より直接的な観測を目指す。具体的には、「密度波形成にともなうエネルギー

ギャップの観測」,「非線形伝導など密度波のダイナミクスの観測」を目指すことを中心課題とする。

また、より多角的には、試料依存性、更なる強磁場相の探索等に関して、より強磁場へと測定を拡張する。

3. 研究の方法

(1) 単結晶グラファイトとして知られている Kish グラファイトを用いて、最高磁場が約 75 テスラまでの非破壊型パルス磁場下で、主に交流法を用いて縦磁気抵抗、横磁気抵抗の測定を 1.4 ケルビンの低温まで行った。また、誘導法を用いて磁化の測定を行った。

(2) 単結晶である Kish グラファイトに加えて、Super グラファイトと呼ばれる、HOPG の一種についても、最高磁場が約 55 テスラまでのパルス幅約 30 ミリ秒のパルス磁場の頂上で三角波を掃引する方法によって、電流電圧特性の温度・磁場依存性を調べた。

4. 研究成果

(1) 縦磁気抵抗の測定によって、これまでは正常相と考慮されていた強磁場領域(53 テスラ以上 75 テスラまで)においても、縦磁気抵抗の温度依存性が絶縁体的になることを観測し、この磁場領域でも、53 テスラ以下の密度波相と類似の絶縁体的な秩序相を形成している可能性が高いと考えられる結果を得た。(格子欠陥等が多いと考えられる多結晶でも、同様の傾向を観測し、現象のロバストさを確認した。)この秩序相は、スピンの異なる電子とホールのサブバンド間での密度波の可能性が有力視される。この状態は、電子とホールがペアを作って凝縮する励起子相と同一視できる可能性もあり、電子対の凝縮した超伝導状態との類似性があり、重要性が高いと考えられる。

一方で、横磁気抵抗においては、53 テスラ以上でも 75 テスラまでの温度依存性は金属的であり、絶縁体転移的な構造は観測されずに、縦磁気抵抗との間には、非常に顕著な異方性があることがわかった。このような異方性は、53 テスラ以下の従来から知られていた、密度波相における電気伝導では見られない特徴であり、この 53 テスラ以上の強磁場領域での新たな電子相の異常性を示唆している。

また、従来の電気抵抗の測定以外に、熱力学的な物量である磁化の測定においても、53 テスラ付近での、微小な変化を捉えた。これは、熱力学的に相転移をとらえたものと理解できる。

(2) c 軸方向の密度波のスライディング状態で期待される、縦磁気抵抗における非線形伝導の観測を念頭において、上述の磁場誘起秩序相中の広範な温度・磁場領域において、電流電圧特性の測定を行った結果、顕著な非線

形伝導を観測した。しかも、上述のように、これまでは正常相と考えられていた、53 テスラを超える磁場領域においても、十分に低温においては、密度波状態を示唆するような明瞭な非線形伝導を観測し、この強磁場領域で何らかの秩序相状態が形成されていることを確実にした。

一方で、横磁気抵抗においても、詳細に電流電圧特性の測定を行ったところ、比較的高温・低磁場領域の非常に限られた領域(例えば、4.2 ケルビン、40 テスラ付近)ながら、非線形伝導が観測された。このことは、この磁場誘起秩序相の全体が、必ずしも c 軸方向の密度波相だけでは説明できない多様性を示唆するものと考えられる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 1 件)

Kazuto Akiba, Atsushi Miyake, Hiroshi Yaguchi, Akira Matsuo, Koichi Kindo, and Masashi Tokunaga
“Possible Excitonic Phase of Graphite in the Quantum Limit State”
JOURNAL OF THE PHYSICAL SOCIETY OF JAPAN (査読あり)84 巻 5 号 054709-1-6
DOI: 10.7566/JPSJ.84.054709.

[学会発表](計 4 件)

矢口宏, 徳永将史, 松尾晶, 金道浩一
「強磁場下でグラファイトにおいて誘起される密度波多重相」
日本物理学会、早稲田大学(東京都新宿区)
(2015.3.21.)

Kazuto Akiba, Atsushi Miyake, Hiroshi Yaguchi, Akira Matsuo, Koichi Kindo, Yasuhiro Iye, and Masashi Tokunaga,
“Physical properties of single crystal graphite under pulsed magnetic fields up to 75 T”
The 21st International Conference on High Magnetic Fields in Semiconductor Physics,
Panama City Beach, Florida, USA
(2014.8.3.- 8.6.)

Hiroshi Yaguchi, Masashi Tokunaga, Akira Matsuo and Koichi Kindo
“Exploration of the multiple field-induce density-wave phase in graphite using 75-T-class pulsed magnetic fields”
The international conference on strongly correlated electron systems 2013
Univ. of Tokyo, Tokyo, Japan

(2013.8.5.- 8.9.)

研究者番号：60212015

矢口宏, 徳永将史

「グラファイトの強磁場誘起密度波転移
と非線型伝導」
日本物理学会、広島大学(広島県東広島市)
(2013.3.26.)

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

「強磁場下のグラファイトで正負の電荷対
による超伝導的状态が実現か」の標題のプレ
スリリースが日経産業新聞に掲載。
(2015年4月28日)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

矢口 宏 (YAGUCHI, Hiroshi)
東京理科大学・理工学部・物理学科・教授
研究者番号：30314173

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

徳永将史 (TOKUNAGA, Masashi)
東京大学・物性研究所・准教授
研究者番号：50300885

高増 正 (TAKAMASU, Tadashi)

物質・材料研究機構・量子ドットセンタ
ー・グループリーダー