

マジックアングルグラフェンにおける量子異常ホール状態

安田 憲司 / マサチューセッツ工科大学 PD

1. はじめに

2018年、2層のグラフェンを魔法角と呼ばれる、約1.1度という特定の角度だけずらして重ねたマジックアングルグラフェン (Magic angle twisted bilayer graphene, MATBG) において、電子相関に由来した絶縁体状態とその近傍の超伝導状態が報告された [1,2]。これは元々1枚のグラフェンを切断し、それらのグラフェンに角度をつけた上でファンデルワールス力によって接合することで実現できる。このとき、図1(a)に示すように、元々の結晶格子間隔に比べて長周期の構造が実現し、例えば1.1度の角度では約13 nm程度のモアレ超格子が生じる。TBGのバンド構造は、2枚のグラフェンのディラックバンド分散をずらして重ねたものとして理解できる。図1(b)に示すように、2枚のグラフェンの逆格子ベクトル K_1 , K_2 の差から、長周期のモアレ超格子のミニブリルアンゾーンが生成される。この超格子ブリルアンゾーンに着目すると、 K_1 , K_2 に生じるディラックコーンが、層間のホッピングによってその交点付近にエネルギーギャップを生じる結果、層間角度

に依存してディラック点のフェルミ速度が劇的に変化する (図1(c,d)) [1,3]。(ここでは、 K 点付近の構造に着目したが、同様な構造は K' 点付近にも生じるため、バレーの自由度が存在する。)特に魔法角1.1度においては、フェルミ速度が0に近づき、ディラック点の上下にバンド幅 W が10 meV以下の極めて平坦な2枚のバンドが生じる (図1(d))。このとき電子相関 U が W に対して支配的となり、1電子近似からは物性を予測できない強相関系が実現する。MATBGはグラフェン特有の移動度の高さに加えて、ゲート電圧によるバンド全体に渡るフェルミ準位の制御が可能なることから、強相関系を調べる上での最適なモデル物質になると期待でき、初期の報告の後、理論・実験の両面から盛んに研究が進められてきた。例えば、層間角度・キャリア密度の面内一様性の改善、圧力効果、STMや走査SQUID等の局所プローブ測定を通して、キャリア密度に依存した電子状態の鋭敏な変化が観測されてきた。それと同時に、相関角度や歪等の試料の詳細に対してバンド構造が極めて敏感であることに由来して、その相図が試料ごとに顕著に異なることも明らかになっている。さらに近年になって、積層の自由度を利用することにより、当初の予想を超えた発見もされており、スタンフォードのグループによって六方晶窒化ホウ素 (hBN) をグラフェンの方位に対して揃えたMATBGにおいて、特定の占有率でのみヒステリシスを伴う強磁性が現れることが報告された [4]。その直後、サンタバーバラのグループによって類似の試料において、ホール抵抗がゼロ磁場で量子化する量子異常ホール効果が観測された [5]。このことは、特定のキャリア密度において、電子相関がチャーン絶縁体を誘起することを意味しており、他に類似のない非常に興味深い系になっている。筆者は直接本研究には携わっていないが、本稿では関連する分野の観点から [5] の論文を中心として紹介する。

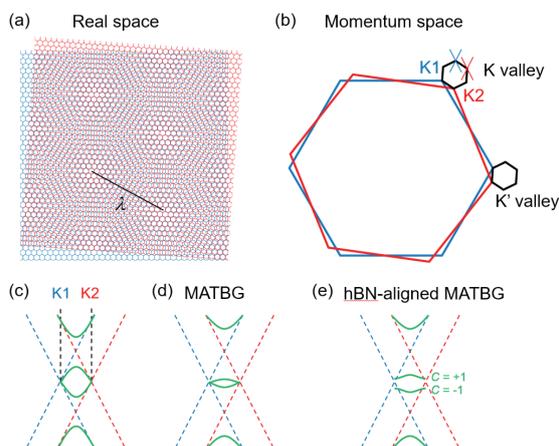


図1: (a) マジックアングルグラフェンの模式図。(b) グラフェンのブリルアンゾーン (赤、青の六角形) と、モアレ超格子の逆格子から生成されるミニブリルアンゾーン (小さい黒の六角形) が生じる。(c,d) K valley 付近のミニブリルアンゾーンにおけるバンド構造の角度依存性。層間のホッピングの効果によって、1層目 (青点線) と2層目 (赤点線) のディラックコーンが混成する結果、緑色の線で示したようにディラック点のフェルミ速度が変化する。特に、魔法角において平坦バンドが実現する (d)。(e) hBNと方位の揃ったMATBGのバンド構造。電荷中性点におけるギャップが開くことにより、上側、下側の平坦バンドがそれぞれ $C=+1$, $C=-1$ のチャーン数を生じる。

2. 強磁性と量子異常ホール状態の観測

高品質なグラフェンのデバイスを作製する場合、界面の不純物を取り除き、かつゲート絶縁層として利用する目的からhBNで挟んだ積層構造を用いるのが一般的である。このとき、グラフェン同士の間に加えて、hBNとグラフェンの相対的な角度の自由度が存在する。ファンデル

TOPICS

ワールスヘテロ構造を作製する場合、一般にはhBNとグラフェンの方位はランダムな角度となるが、結晶軸方向に薄片のエッジが現れやすいことを利用することで、これらの方位を意図的に揃えることができる。図2(a)にhBNの方位を揃えたMATBGの輸送特性のゲート電圧依存性を示す[5]。まず、 $\nu = 4, -4$ の占有状態において抵抗の大きい絶縁体状態が現れる。 ν はモアレ単位胞あたりの電子数に相当し、K点、K'点のバレーとスピンの自由度のため、 $\nu = 4 (-4)$ の時2枚の平坦バンドが完全占有(非占有)となる。この時フェルミエネルギーがバンドギャップ内に相当するバンド絶縁体を実現する。この自明な絶縁体状態に加え、 $\nu = 2, 3$ において特徴的な抵抗の変化がみられる。特に興味深いのが、 $\nu = 3$ での振る舞いであり、ホール抵抗が h/e^2 の量子化値をとるとともに、縦抵抗が顕著に減少している。磁場依存性を調べると、図2(b)のように、零磁場においても量子化抵抗が保たれるとともに、0.1 T以下の低磁場で面直異方性のヒステリシスを伴ってホール抵抗が h/e^2 から $-h/e^2$ へと変化する。これらの振る舞いは、 $\nu = 3$ において系が強磁性となり、それによって有限のチャーン数 $C = 1$ を有する量子異常ホール状態が実現していることを意味している。特に、このようなヒステリシスと異常ホール抵抗が、1電子近似からは金属的な振る舞いが予期される $\nu = 3$ 近傍においてのみ生じることから、電子相関によって時間反転対称性が破れていることがわかる。異常ホール効果を伴う強磁性は転移温度 $T_C \approx 9$ K程度まで生じ、3 K程度まで量子化抵抗が保たれる(図2(c))。低温でのアレニウスプロットから得られる活性化エネルギーは30 K程度と転移温度に比べて高く、このことは量子化温度が強磁性転移温度自体によって支配されていることを意味している[5]。

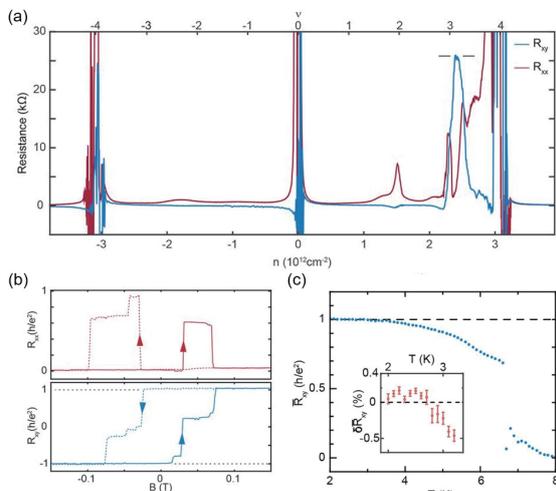


図2：(a) 縦抵抗 R_{xx} (赤)、ホール抵抗 R_{xy} (青) の電子密度 n 依存性。(b) $\nu = 3$ における抵抗の磁場依存性。(c) $\nu = 3$ におけるホール抵抗の温度依存性。[5] より引用。
【Science 誌から許可を得て掲載】

3. 理論的理解

hBNの方位がランダムなMATBGにおいては、 $\nu = 3$ において絶縁体状態が観測されている試料であっても、強磁性や異常ホール効果が現れていない。このことから、hBNとMATBGの方位が揃うことが、強磁性の発現に重要な役割を果たしていると考えられる。この機構は未だ完全には解明されていないが、現時点でのもっともらしい理解を紹介する。まず、単層グラフェンの方位がhBNと揃っている場合のバンド構造を議論する。グラフェンの低エネルギー有効ハミルトニアンは質量のないディラックバンド分散で書き表される。グラフェンのディラック点はAB副格子の対称性に守られているが、hBNとの方位と揃えた場合、基板のホウ素と窒素の非等価性に由来してA副格子とB副格子に異なるポテンシャルが誘起される。その結果、ディラックバンド分散に20 meV程度のギャップが開き、K点(K'点)近傍において有限のベリー曲率が生じるとともに、価電子帯のバンドが $+1/2 (-1/2)$ のチャーン数を持つ[6]。hBNとMATBGの方位が揃う時、同様な機構によって、K点(K'点)におけるミニブリルアンゾーンの平坦バンドの電荷中性点にギャップが開き、上側の平坦バンドが $C = +1$ ($C = -1$)、下側の平坦バンドが $C = -1$ ($C = +1$)のチャーン数を有することになる(図1(e)) [7]。以上のバンド構造と、 $\nu = 3$ において量子異常ホール効果が観測されていることを考え合わせると、図3(b)に示すように、 $\nu = 3$ においてバレー並びにスピンの偏極した状態が実現していると考えるのがもっともらしい。つまり、交換相互作用によって、特定のバレー並びにスピン偏極した平坦バンドのみが占有され、自発的に時間反転対称性を破っているというわけである。これは、量子ホール状態においてランダウレベルが形成したとき、特定の占有率でスピンの揃った量子ホール強磁性並びに特定のバレーのみが占有されたバレー偏極状態が実現することと類似している。ここでグラフェンのスピン軌道相互作用は無視できるほど小さいため、磁性がスピンに由来しているとすると磁気異方性は生じないはずである。従って、実験的に面直の磁気異方性が観測されていることは、イジング的なバレー自由度の偏極、つまり軌道角運動量の秩序が強磁性の起源となっていることを意味している[5]。ここで、電子スピンの偏極は $\nu = 3$ においてギャップを開く上で重要な役割を果たすが、異方性はなく、異常ホール効果にも寄与していないことに注意していただきたい。

量子異常ホール効果は、磁性元素CrあるいはVを添加したトポロジカル絶縁体 $(\text{Bi,Sb})_2\text{Te}_3$ 薄膜において精力的に調べられてきた(近年では MnBi_2Te_4 薄片においても量子異常ホール効果が観測されている)[7]。これらの系では、トポロ

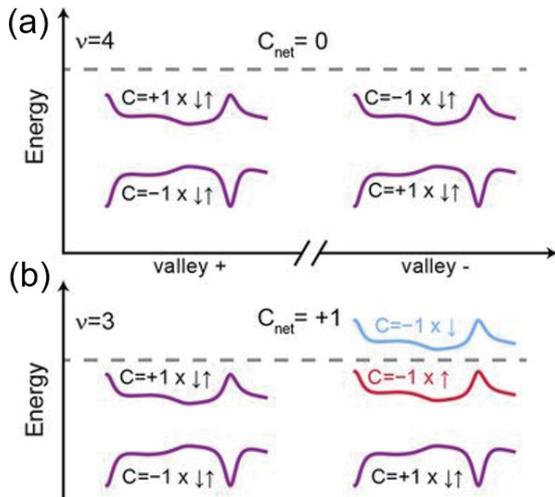


図3: $\nu = 4$ (a)と $\nu = 3$ (b)におけるバンド構造の模式図。 $\nu = 3$ の時チャーン絶縁体を実現する。[5]より引用。
【Science誌から許可を得て掲載】

ジカル絶縁体表面のスピンの偏極したギャップレスなディラックバンド分散が、局在磁化との相互作用によってギャップを開くことでベリー曲率を生じ、チャーン絶縁体となる。つまり、スピン強磁性とスピン軌道相互作用が合わさることで量子化したホール効果として電子の運動に影響を与える。一方、本系においては、電子の軌道自体が強制的に秩序することで、スピン軌道相互作用を介さずに量子化が起こるという点で、磁性トポロジカル絶縁体と明確に区別される。

4. まとめと今後の展望

本稿では、hBNと方位を揃えたMATBGの $\nu = 3$ の占有率において、強磁性チャーン絶縁体を実現することを紹介した。その起源は、有限なチャーン数を持つ平坦バンドを舞台として、電子相関によってバレー並びにスピンの対称性の破れが誘起されることとして大まかに理解できるが、未だ不明な点も多くさらなる研究が求められる。例えば、単純な考察からは同様の機構で $\nu = 1, -1, -3$ の占有についても、チャーン絶縁体が生じてよいように思えるが、これらの占有率でも量子異常ホール効果が生じるのかかという疑問が考えられる。さらに興味深いことに、本系では 10^3 A cm^{-2} という低電流密度において磁化とホール抵抗が反転することが報告されている。これは、典型的な強磁性金属/重金属接合の接合において必要な $10^{7-8} \text{ A cm}^{-2}$ に比べて極めて小さく、またこれらの場合と異なりスピン軌道相互作用に依らない電流誘起磁化反転が起こっていると考えられることから、その起源の解明が課題である[4,5]。低電流で磁化並びにカイラルエッジ電流の方向を制御できることから、これを用いたデバイスへの展開も考えられる。

類似の系の探索も進められており、hBNの方位が揃っていないと考えられるMATBGにおいても、4 T程度の磁場下ではあるものの、 $\nu = -1$ の占有率で異常ホール効果のヒステリシスを伴う磁気転移が観測されている[9]。加えて、hBNと方位を揃えたABC三層グラフェンにおいても（この系では、hBNとグラフェンの格子不整合によってモアレ超格子が形成される）、 $\nu = -1$ の占有率で $C = 2$ の量子異常ホール効果が観測されている。さらに興味深いことに、本系では面直方向に印加する電場の方向に依存して、 $C = 0$ の自明な絶縁体から $C = 2$ のチャーン絶縁体へのトポロジカル相転移が誘起される[10]。本稿で紹介したように、ファンデルワールスヘテロ接合においては、積層の設計自由度を利用することでミクロなハミルトニアンが制御でき、その結果、強相関電子系の基底状態が劇的に変化することが明らかになってきた。今後MATBGを舞台として、強相関電子系の理解がさらに深まることが期待できる。

原稿執筆の機会を下さった上田正仁先生、柏谷聡先生、PDメンターのPablo Jarillo-Herrero教授にこの場を借りて感謝いたします。

- [1] Y. Cao et al., Nature **556**, 80–84 (2018).
- [2] Y. Cao et al., Nature **556**, 43–50 (2018).
- [3] R. Bistritzer, and A. H. MacDonald, Proc. Natl. Acad. Sci. **108**, 12233–12237 (2011).
- [4] A. L. Sharpe et al., Science **365**, 605–608 (2019).
- [5] M. Serlin et al., Science **eaay5533** (2019).
- [6] B. Hunt et al, Science **340**, 1427–1430 (2013).
- [7] N. Bultinck, S. Chatterjee, and M. P. Zaletel, arxiv:1901.08110.
- [8] Y. Tokura, K. Yasuda, and A. Tsukazaki, Nat. Rev. Phys. **1**, 126–143 (2019).
- [9] X. Lu et al., Nature **574**, 653–657 (2019).
- [10] G. Chen et al., arXiv:1905.06535.

著者紹介



やすだけんじ
安田 憲司

1991年東京都生まれ。2018年9月東京大学大学院博士課程修了。2018年10月より現職。