

学位論文題名

2次元電子系における階層的電荷秩序構造と

その新たな数列法則

学位論文内容の要旨

自然界には構造や現象が数列法則に従って記述されるものが存在する。自然界に現われる数列法則を見つけ出し何故その数列に従うのかを解明することは、数列のもつその単純かつ数学的な美しさは元より、数列法則が現実に具現化しているという自然の神秘性により人々に感動を与える。例えば、元素の周期律は自然数列に従っていると見なせるし、理想的な結晶における原子の位置は格子定数を公差として決定される。これらの整数、またその定数倍で表される比較的単純な等差数列以外にも、非平衡系の代表格である生物系においてしばしば観測されるオウムガイや巻貝の螺旋成長則やヒマワリの種や植物葉序の配位則においてフィボナッチ数列法則が提唱されている。巨視的な系を取り扱う物性物理系においても、強磁場下の2次元電子系で実現する量子ホール効果で整数列が確認されている。また分数量子ホール効果において観測される分数値=整数/奇数が数列的な性質を持っている。

はたして他の2次元電子系にも数列法則に支配されるものは無いのだろうか。筆者はその可能性を持った対象として電荷密度波(CDW)構造に注目した。遷移金属ダイカルコゲナイド(MX_2)におけるそのCDW構造は、格子の周期の他に超格子周期、さらには格子と超格子の比の不整合性からくる超格子のドメイン周期構造が出現する場合がある。そのCDW周期に対応した電子数、原子数またはクラスターサイズを数列の項と見なし2次元電荷秩序構造における数列法則の探索、実証を試みた。本研究において脱カルコゲナイド法という新たな MX_2 合成法を開発し、系のサイズを微細化させることに成功した。この手法で合成された TaSe_2 の薄片上においてバルクで観察されるフェルミ面由来とされる従来の電荷密度波構造と異なる、新たな周期構造($\sqrt{7} \times \sqrt{7}$)を発見した。さらに次の数列項に当たると思われる階層的電荷密度波構造($\sqrt{61} \times \sqrt{61}$)も同時に発見した。そこで両者を統一的に説明するメカニズムと数列法則の提唱を行った。またその数列そのものの一般性を考察したところ、2次元においてクラスターの直径を3倍に成長させていった時、最大に埋め込める構成要素の個数がいくらになるかという命題と同じであることが判明した。

第1章では研究の背景と本論文の目的を述べた。

第2章では電子のクラスタリング、CDW秩序について記述する。2章第1節においてCDWの発現メカニズムについて、第2節においてCDW発現メカニズムに関するvan Hove特異点についての知見をまとめた。

第3章では実験系に関する紹介および実験法について述べた。

3章第1節において TaSe_2 の現在までに報告されている性質と本研究における利点を紹介した。

第2節において用いた実験法について紹介を行った。テンプレートとなる遷移金属トリカルコゲナイド TaSe_3 の合成手段として用いた化学気相輸送法についての紹介後、今回新たに開発をした脱カルコゲナイド法について紹介した。 TaSe_3 を還元力のある水素ガス中で加熱を行うことでカルコゲン原子が水素によって取り除かれた。新たに生じたダングリングボンドを解消するために1次元鎖状の TaSe_3 は鎖間が結合して2次元平面を作り、目標物である TaSe_2 が合成された。本節では TaSe_2 と TaSe_3 の格子定数を比較して導いた TaSe_2 化のモデルも併せて述べた。

第4章では実験結果とその考察について述べた。

4章第1節において化学気相輸送法で得た TaSe₃ 結晶についての評価を行った。

第2節において脱カルコゲナイド法で得た TaSe₂ 結晶についての評価を行った。続いて合成した TaSe₂ ナノ結晶における電荷密度波が解析の結果、新たな秩序相が実現していることを報告する。その構造は7個の電子からなる $\sqrt{7} \times \sqrt{7}$ 構造と、61個の電子からなる $\sqrt{61} \times \sqrt{61}$ 構造である。後者は解析結果、階層的 CDW 構造の可能性を示唆した。

第3節においてこれらの実験結果を統一的に説明するため、階層的電荷密度波メカニズムの提唱を試みた。Rice-Scott らによって電子の状態密度が発散する van Hove 特異点が CDW 発現メカニズムになる、という提唱がなされた。彼らのメカニズムに対し、Fazekas-Tosatti らが提唱した分子モデルの適用を行うと CDW による超周期が新たに van Hove 特異点を作ることに注目した。仮に超周期による van Hove 特異点が次の階層の CDW 転移を起こしたのならば、階層的 CDW 構造を定性的に説明できた。このモデルでは $\sqrt{49} \times \sqrt{49}$ 構造が次の階層構造として導かれるため、実験結果とは異なることが判明した。そこでさらにクラスターの境界面エネルギーに注目し、両者の比較を行った。その結果は $\sqrt{61} \times \sqrt{61}$ 構造の方が安定であることを定量的に示した。

第四節において1クラスターに所属する電子数に注目し、数列法則の探索を試みた。今回得られた結果は階差等比数列 $a_n=9a_{n-1}-2$ という数列で記述される。この数列は2次元3角格子においてクラスターが作る正6角形の対角線の長さが等比数列 $r_n=r_0 \times 3^{n-1}$ に従って成長した時にどれだけの電子をクラスターに埋め込むことができるかという命題と同じであることが判明した。

第5章では本論文の成果が総括される。

- 1) 新たな電荷秩序相である $\sqrt{7} \times \sqrt{7}$ 構造と $\sqrt{61} \times \sqrt{61}$ 階層構造を発見した。
- 2) 階層的電荷密度波構造を超格子 van Hove 特異点のネスティングメカニズムによって説明した。
- 3) クラスター境界面のエネルギー損得を考慮することで構造が安定であることが判明した。
- 4) 2次元3角格子状に配列した電子がクラスタリングを起こす際の1クラスターに属する電子数は $a_n=9a_{n-1}-2$ という数列法則に従うことを示した。
- 5) $a_n=9a_{n-1}-2$ という数列は2次元3角格子系においてクラスターが作る正6角形の対角線の長さを3倍に成長させた時、最大に埋め込める個数と同じ命題である。

以上のように、本論文では2次元3角格子状に配列した電子系におけるクラスタリングが新たな数列法則に従う系を発見し、その数列法則は対角線の長さが3倍に成長していく正6角形状クラスターに最大に埋め込める構成要素の個数がいくらになるかという命題と同じであるという画期的な知見を得た。

学位論文審査の要旨

| | | | |
|----|-----|-----|-----------|
| 主査 | 教授 | 丹田 | 聡 |
| 副査 | 教授 | 石政 | 勉 |
| 副査 | 助教授 | 小田 | 研 (理学研究科) |
| 副査 | 助教授 | 矢久保 | 考介 |
| 副査 | 教授 | 秋山 | 友宏 |

学位論文題名

2次元電子系における階層的電荷秩序構造と その新たな数列法則

自然界には構造や現象が数列法則に従って記述されるものが存在する。自然界に現われる数列法則を見つけ出し何故その数列に従うのかを解明することは、数列のもつその単純かつ数学的な美しさは元より、数列法則が現実に具現化しているという自然の神秘性により人々に感動を与える。例えば、元素の周期律は自然数列に従っていると見なせるし、理想的な結晶における原子の位置は格子定数を公差として決定される。これらの等差数列以外にも、非平衡系の代表格である生物系においてしばしば観測されるオウムガイや巻貝の螺旋成長則やヒマワリの種や植物葉序の配位則においてフィボナッチ数列法則が提唱されている。巨視的な系を取り扱う物性物理系においても、強磁場下の2次元電子系で実現する量子ホール効果で整数列が確認されている。また分数量子ホール効果において観測される分数値=整数/奇数が数列的な性質を持っている。

はたして他の2次元電子系にも数列法則に支配されるものは無いのだろうか。筆者はその可能性を持った対象として電荷密度波 (CDW) 構造に注目した。遷移金属ダイカルコゲナイド (MX_2) におけるその CDW 構造は、格子の周期の他に超格子周期、さらには格子と超格子の比の不整合性からくる超格子のドメイン周期構造が出現する場合がある。その CDW 周期に対応した電子数を数列の項と見なし、2次元電荷秩序構造における数列法則の探索、実証を試みた。

第1章では研究の背景と本論文の目的を述べた。

第2章では CDW 秩序について記述する。2章第1節において CDW の発現メカニズムについて、第2節において van Hove 特異点についての知見をまとめた。

第3章では実験系に関する紹介および実験法について述べた。

3章第1節において $TaSe_2$ の現在までに報告されている性質を紹介した。

第2節において実験法の紹介を行った。テンプレートとなる遷移金属トリカルコゲナイド $TaSe_3$ 合成法の紹介後、今回新たに開発をした脱カルコゲナイド法について紹介した。 $TaSe_3$ を還元力のある水素ガス中で加熱を行うことでカルコゲン原子が水素によって取り除かれた。新たに生じたダングリングボンドを解消するために1次元鎖状の $TaSe_3$ は鎖間が結合して、目標物である $TaSe_2$ が合成された。本節では $TaSe_2$ と $TaSe_3$ の格子定数を比較して導いた $TaSe_2$ 化のモデルも述べた。

第4章では実験結果とその考察について述べた。

4章第1節において化学気相輸送法で得た $TaSe_3$ 結晶についての評価を行った。

第2節において今回得られた $TaSe_2$ ナノ結晶についての評価を行った。解析の結果、新たな CDW

構造が実現していることを報告する。その構造は7個の電子からなる $\sqrt{7} \times \sqrt{7}$ 構造と、61個の電子からなる $\sqrt{61} \times \sqrt{61}$ 構造である。後者は解析結果、階層的 CDW 構造の可能性を示唆した。第3節においてこれらの実験結果を統一的に説明するため、階層的電荷密度波メカニズムの提唱を試みた。Rice-Scott らが提唱した van Hove 特異点による CDW 発現メカニズムに対し、Fazekas-Tosatti らが提唱した分子モデルの適用を行うと CDW による超周期が新たに van Hove 特異点を作ることに注目した。仮にこの特異点が次の階層の CDW 転移を起こしたのならば、階層的 CDW 構造を定性的に説明できた。このモデルでは $\sqrt{49} \times \sqrt{49}$ 構造が次の階層構造として導かれるため、実験結果とは異なる。そこでクラスターの境界面エネルギーに注目し、両者の比較を行った。その結果は $\sqrt{61} \times \sqrt{61}$ 構造の方が安定であることを定量的に示した。

第4節において1クラスターに所属する電子数に注目し、数列法則の探索を試みた。その結果は階差等比数列 $a_n = 9a_{n-1} - 2$ という数列で記述された。この数列は2次元3角格子においてクラスターが作る正六角形の対角線の長さが等比数列 $r_n = r_0 \times 3^{n-1}$ に従って成長した時にどれだけの電子をクラスターに埋め込むことが出来るかという命題と同じであることが判明した。

第5章では本論文の成果が総括される。

- 1) 新たな電荷秩序相である $\sqrt{7} \times \sqrt{7}$ 構造と $\sqrt{61} \times \sqrt{61}$ 階層構造を発見した。
- 2) 階層的電荷密度波構造を超格子 van Hove 特異点のネスティングメカニズムによって説明した。クラスター境界面のエネルギー損得を考慮することで構造が安定であることが判明した。
- 3) 2次元3角格子状に配列した電子がクラスタリングを起こす際の1クラスターに属する電子数は $a_n = 9a_{n-1} - 2$ という数列法則に従うことを示した。
- 4) 上記の数列法則は2次元3角格子系においてクラスターが作る正六角形の対角線の長さを3倍に成長させた時、最大に埋め込める個数と同じ命題である。

これを要するに、著者は2次元電子系におけるクラスタリングが新たな数列法則に従う事を見出し、その数列法則は対角線の長さが3倍に成長していく正六角形状クラスターに最大に埋め込める構成要素の個数がいくらになるかという命題であるという画期的な知見を得た。これは自然界における構造や現象を物理的に解明していく上で、貢献するところ大なるものがある。よって著者は、北海道大学博士(工学)の学位を授与される資格あるものと認める。