

## 時間分解光電子分光による励起子絶縁体 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ の研究

指導教官：岡崎浩三 特任准教授 修了年月：2017年3月

47-156102 岡崎研究室 修士2年 小川優

キーワード：光誘起相転移, 時間分解光電子分光, 励起子絶縁体

### 【研究背景】

物質に光を照射することで、その電気的性質、磁氣的性質などの物性に劇的な変化をもたらすことがある。このような、光照射によって物質に巨視的な変化を発現させる「光誘起相転移」は、熱平衡状態における相転移を光によって生じさせることができるだけでなく、光励起によってのみ実現可能な新規な非平衡物質相を実現できることが期待されており、長年注目を集めている物理現象の1つである。このような非平衡状態において発現する物性を解明するための手法として、本研究において用いた時間分解光電子分光法が挙げられる。時間分解光電子分光法を用いることで、物質の非平衡状態に実現する電子状態を直接観測することが出来る。

本論文では、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  における非平衡電子状態を観測した結果について報告する。 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  は、 $\sim 328\text{ K}$  付近で斜方晶から単斜晶への構造相転移を伴い、半導体相から絶縁体相への相転移を起こすことが先行研究によって報告されている[1]。この相転移の起源は長年未解明であったが、近年の研究によって低温で励起子絶縁体相と呼ばれる電子状態への転移であることが強く示唆されるようになった[2]。励起子絶縁体とは、バンドギャップの小さい半導体やバンドの重なりが小さい半金属において、励起子と呼ばれる電子正孔対が自発的に形成されることで絶縁体化した状態である。励起子絶縁体相における候補物質としては、半金属領

域では  $\text{TmSe}_{0.45}\text{Te}_{0.55}$  や  $1T\text{-TiSe}_2$  などいくつかの候補物質があるが、半導体領域では  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  が唯一の候補物質である。図1に、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  における半導体-励起子絶縁体転移の模式図を示す。 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  のフェルミ準位近傍における電子状態は、二重縮退した Ta 5d 軌道によって構成される伝導バンドと、Ni 3d 軌道と Se 4p 軌道が混成した価電子バンドによって構成される。励起子の束縛エネルギー  $E_{\text{ex}}$  がバンドギャップの大きさ  $E_{\text{gap}}$  を超えると、励起子が自発的に形成され、絶縁体化する。励起子絶縁体相への転移が起こると、価電子帯頂点にフラットなバンド構造が形成される。

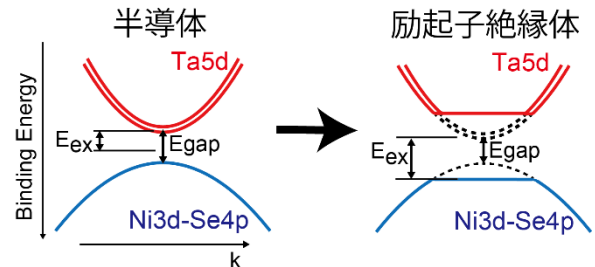


図1: 半導体-励起子絶縁体転移の模式図

### 【研究目的】

本研究対象である  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  は、熱平衡状態において半導体-励起子絶縁体転移を生じる特異な電子状態を形成しており、このような電子状態を持つ物質が非平衡状態に実現する電子状態は観測された例がない。1つの予想として、多くの場合光励起することで高温相に実現している電子状態に近づくため、光励起によって励起子絶縁体相から半導体相への転移を起こすことが出来ると期待される。このような観点から、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  における

時間分解光電子分光測定を行った。

## [論文の構成]

本論文は全7章によって構成されている。第1章では、励起子絶縁体の基本的な概念について紹介する。第2章では、研究対象である  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  における先行研究を紹介し、励起子絶縁体相との関係性について説明する。第3章では、本研究手法である光電子分光、時間分解光電子分光の原理について説明する。第4章では、時間分解光電子分光に用いた高次高調波の基本的な概念、高次高調波のスペクトルを測定した結果を説明する。第5章では、5.9 eV レーザーを用いた時間分解光電子分光測定の結果について議論する。第6章では、高次高調波を用いた時間分解光電子分光測定の結果について議論する。第7章では、今回の研究に関する総括・今後の展望を説明する。

以下では、第6章における光誘起絶縁体-金属転移の観測について簡単に紹介する。

## [光誘起絶縁体-金属転移の観測]

図2に時間分解光電子分光によって観測された光励起前 (-510 fs)、光励起後 (250 fs) の光電子スペクトルを示す。測定温度は 100 K、ポンプ光の励起密度は  $0.78 \text{ mJ/cm}^2$  で測定を行った。光励起前の電子状態は、先行研究によって観測されているような価電子帯頂点にフラットなバンド構造が明瞭に観測され、100 K においては励起子絶縁体的な電子状態になっていることが分かる。一方で、光励起後の電子状態を見てみると、フラットバンドはほぼ完全に消失し、フェルミ準位を横切った新しいバンドが出現している。この結果から、光励起によって絶縁体-金属転移が生じていることが分かる。このような、完全に絶縁体的な電子状態を光励起によって金属化し、時間分解光電子分光によってそれを観測した例はこれまでになく、

本研究において初めて観測された。さらに、熱平衡状態における  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  の高温相は半導体であることを考えると、今回観測された光励起状態は熱平衡状態において実現し得ない電子状態であり、光励起によってのみ実現可能な新規な非平衡物質相へ転移していると考えられる。

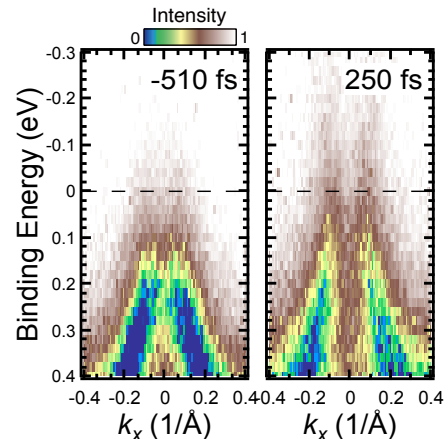


図 2:  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  における時間分解光電子分光による光誘起絶縁体-金属転移の観測。左側が光励起前 (-510 fs)、右側が光励起後 (250 fs) の光電子スペクトルを示す。

## [結論]

本研究によって、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  の光励起状態は予想された励起子絶縁体相から半導体相への転移ではなく、励起子絶縁体相から金属相への転移が起こる様子が観測された。さらに、本研究によって観測された光励起状態は、熱平衡状態において実現しない光誘起特有の電子状態であることが強く示唆された。本研究によって、光誘起相転移の新しい可能性を見出すことができ、物性物理における大きな目標の1つである「光による物性の制御」の達成へ大きく近づくことが期待される。

## [参考文献]

- [1] F. J. Disalvo *et al.*, *Journal of the Less-Common Metals*, **116** 51-61 (1986).
- [2] Y. Wakisaka *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 026042(2009).