

論文審査の結果の要旨

氏名 魯 楊帆

本論文は題目「ゼロギャップ半導体 Ta_2NiSe_5 における励起子絶縁体転移」に表現されるように、直接遷移型半導体である Ta_2NiSe_5 における励起子絶縁体転移の実験的検証を目指した研究である。論文は全 8 章からなる。

第 1 章では、励起子絶縁体転移の物理的概念とその実現について、これまでの研究のレビューが述べられている。励起子絶縁体は強い電子・正孔相互作用が創るエキゾチック電子相の一種であり、BCS-BEC クロスオーバーの物理を内包する可能性があることから現実の物質中における実現が期待される。これまで候補とされてきた物質は間接遷移型のバンド構造を有し、励起子絶縁体転移に伴い周期的な格子の歪みを生じる。格子歪みの存在は励起子絶縁体と電荷密度波絶縁体の区別を困難にし、現実物質における励起子絶縁体の同定には曖昧さが残る。上記の問題点を解決するアプローチとして直接遷移型半導体 Ta_2NiSe_5 に着目した。 Ta_2NiSe_5 は 328 K で半導体・絶縁体転移を生じ、APRES や XPS 等により励起子絶縁体転移が示唆されている。 Ta_2NiSe_5 では相転移において長周期構造が出現せず、他の候補物質とは質的に異なる特徴を有する。

第 2 章では、 Ta_2NiSe_5 における励起子絶縁相を確立することが研究の目的として掲げられている。具体的なアプローチとして、輸送・光学・熱力学特性の測定を通じて、励起子絶縁体特有の現象である励起子ギャップの形成や特徴的な電子相図を明らかにすることを提案している。

第 3 章では、実験方法について述べている。化学気相輸送法による単結晶育成法、結晶構造の評価法、輸送・光学・比熱測定法の詳細を記述している。

第 4 章では Ta_2NiSe_5 の輸送特性、光学スペクトル、比熱などの基本的データを提示し、電子状態のイメージを構築している。高温相でゼロギャップに近い半導体である一方、 T_c 以下で 0.3 eV 程度の明確なギャップが出現することを明らかにした。比熱から求めた転移に伴うエントロピー変化は、電子系に由来するエントロピーだけで占められており、格子の寄与は小さい。これらの結果は励起子絶縁体の描像から期待される振る舞いと矛盾しない。

第 5 章では、 T_c 相図が提示されている。化学的置換、物理的圧力の印可によって半導体ギャップを制御したことが述べられている。その結果、ゼロギャップ状態を中心に、エネルギーギャップの関数としてドーム状に励起子絶縁体とされる状態が出現することを明らかにした。このような相転移のギャップ依存性は励起子絶縁体に特徴的な振る舞いである。

第 6 章では、Ni サイトを Pd に置換した物質 $\text{Ta}_2\text{Pd}_x\text{S}_5$ の超伝導転移について述べている。 $\text{Ta}_2\text{Pd}_x\text{S}_5$ は半金属であるが、バンドの重なりが大きく、 Ta_2NiSe_5 をより金属化し

た状態にある。 $\text{Ta}_2\text{Pd}_x\text{S}_5$ は $T_c = 6\text{ K}$ で超伝導転移を示し、パウリ極限を大きく上回る 31 Tにも及ぶ上部臨界磁場 H_{c2} を有する。その起源として、スピン軌道相互作用による効果が議論されている。

第7章では得られた実験事実を基に、 Ta_2NiSe_5 における励起子絶縁体の実現について、総括的討論が行われている。励起子束縛エネルギーの大きさを見積り、予想されるエネルギーギャップより十分に大きいこと、観測された励起子ギャップと同程度であることを指摘した。これらの事実と T_c 相図の振る舞いが理論的に予想されたもの符合することを根拠に、本論文の主な結論として Ta_2NiSe_5 において励起子絶縁体相が実現していることを主張した。

第8章では結論として本研究で行われた研究についてまとめられ、その展望や研究の意義について述べられている。

本論文は高木英典、高山知弘、河野洋人、Andreas W. Rost、Alimamy F. Bangura、桂ゆかり、橋爪大輔各氏との共同研究である。提示されている主な実験、すなわち試料作製および輸送・熱力学特性の測定はすべて本人が行ったものであり、解析も本人が中心となって進められている。本研究は論文提出者の貢献が主であると判断された。

以上、本論文はゼロギャップ半導体 Ta_2NiSe_5 に慧眼し、励起子絶縁体を実現していることを実験的に検証した。これらの研究結果は新奇な電子相の存在を確立することから、物性物理・固体化学の発展に寄与するところが大きい。したがって、本論文は博士(科学)の学位請求論文として合格と認められる。

以上 1679 字