

# 論文審査の結果の要旨

氏名 脇坂祐輝

本論文は全5章からなる。第1章は序論であり、第2章では角度分解光電子分光(ARPES)を始めとする実験方法とクラスター解析の計算方法が解説されている。第3章および第4章が本論文のオリジナルな研究成果で、それぞれ $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ と $\text{BaFe}_2\text{As}_2$ に対する実験結果とその解釈が詳述されている。第5章は結論である。

バンドギャップやバンドの重なりが非常に小さい半導体や半金属では、キャリア密度が低く価電子帯のホールと伝導帯の電子との間に働くクーロン引力の遮蔽が弱いので、それらの対すなわち励起子の生成に有利である。励起子の束縛エネルギーがバンドギャップや重なりが大きさを上回れば、励起子の生成と凝縮に対して半導体や半金属状態が不安定化し、新たな基底状態が生まれる可能性がある。これは「励起子絶縁体相」と呼ばれ、多くの場合、電荷密度波 (CDW) やスピン密度波 (SDW) 秩序を伴うとされ、古くからその存在が理論的に議論されてきた。しかし、実験的な確証は未だ無く、それを示唆する実験例も限られている。一つの例は $\text{Tm}(\text{Se},\text{Te})$ で、限られた圧力範囲のとき、低温で電気抵抗、ホール抵抗、熱拡散係数に異常な振る舞いが観測されている。もう一つは $1\text{T-TiSe}_2$ で、そのCDW相形成はフェルミ面のネスティングでは説明できず、最近のARPES測定で見出された特異な平坦なバンドは、励起子絶縁体相を仮定した一電子励起スペクトルの理論計算でよく説明できる。こうした背景の元、本研究では新たに二種類の物質を対象にARPES、X線光電子分光 (XPS)、X線吸収分光 (XAS) 測定を行い、その解析から励起子絶縁体転移の可能性を議論した。

第3章では、擬一次元層状構造をもつ $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ に対する実験結果と考察が詳述されている。この物質は $T_c \approx 330 \text{ K}$ でCDWなどの長距離電荷秩序を伴わない可逆的な構造相転移を起こし、それより低温では半導体的な電気抵抗の温度依存性を示すことが知られていた。申請者は $T_c$ 以下の低温( $T = 40 \text{ K}$ )でARPES測定を行い、 $1\text{T-TiSe}_2$ 同様、価電子帯の $\Gamma$ 点付近に特徴的な平坦バンドが出現することを確認した。さらに、 $T = 160 \text{ K}$ で行ったXPSおよびXAS測定とそのクラスター解析の結果、 $\text{Ni}3d$ 状態は $\text{Se}4p$ 状態との混成が大きく電子は完全に詰まっておらず、ホールの存在が示された。これに対応する $\text{Ta}5d$ 状態の電子も存在すると思われ、これらが対となった励起子絶縁相が実現したと考えれば、 $T_c$ 以下の半導体的な振る舞いも自然に理解できる。すなわち、この物質では構造相転移を伴う励起子絶縁体相が実現していることを強く示唆しており、このエキゾチックな基底状態の新た

なそして有力な候補物質が見つかった意義は大きい。特に、励起子形成をより直接的に示唆する Ni3d-4s 状態のホールバンドの存在を示したことは高く評価できる。

第4章では、FeAsの正方格子を有する層状物質BaFe<sub>2</sub>As<sub>2</sub>に対するARPES測定の結果と考察が述べられている。この物質は $T_c \approx 140$  Kで構造相転移を伴うSDW転移を示す半金属である。 $T_c$ より高温( $T = 180$  K)ではフェルミ準位近傍での状態密度の落ち込みが見られ、スピンや軌道由来と思われるゆらぎによる擬ギャップ的な振る舞いが観測された。一方、低温( $T = 10$  K)では、ゆらぎは消失して三本のホール的なバンドと70~100 meV付近に分散の弱いバンドが観測された。これらは、yz/zx成分をもつ二つのホールバンドと一つの電子バンドが相互作用して軌道選択的に一對のホールと電子バンドにギャップが開き、残りのホールバンドはフェルミ準位に留まる、という励起子絶縁体的なSDW転移モデルでうまく説明できる。この場合、フェルミ準位に留まるホールバンドは大きな異方性を示すことが期待され、実際、申請者はその面直方向の分散が観測された三次元的なフェルミ面形状を定性的に説明することを示した。この結果は、半金属的なバンド構造をもつ物質での励起子絶縁体転移の可能性を示唆する新たな実験例として、また、軌道選択的な励起子生成の可能性を初めて示した例として、この分野の研究に重要な寄与があると認められる。

なお、本論文の第3章および第4章は、須田山貴亮氏、田久保耕氏、溝川貴志司氏、有田将司氏、生天目博文氏、谷口雅樹氏、片山尚幸氏、野原実氏、高木英典氏、佐藤卓氏、N.L. Saini 氏、和達大樹氏、G.A. Sawatzky 氏、D.G. Hawthorn 氏、T.Z. Regier 氏との共同研究であるが、論文提出者が主体となって実験の遂行と解析および考察を行ったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（理学）の学位を授与できると認める。