

別紙 4

報告番号	※ 甲 第 号
------	---------

主 論 文 の 要 旨

論 文 題 目 NMR による圧力下における励起子絶縁体候補物質

 Ta_2NiSe_5 の局所磁性、電荷状態の研究

氏 名 劉 子揚

論 文 内 容 の 要 旨

量子材料、Fe 系超伝導体、トポロジカル物質、そしてキタエフスピン液体をはじめとする物質は、その出現する電子物性に量子効果が現れるために、注目を集めている。これらの材料の中で、励起子絶縁体は、他の奇妙な絶縁体とは著しく異なり、Mott 絶縁体のように電子相関が発現に効いていると考えられている。本研究では、励起子絶縁体の候補物質の一つである Ta_2NiSe_5 について、圧力による絶縁状態の抑制そして金属状態の出現に対して、核磁気共鳴法(NMR)及び核四重極共鳴法(NQR)を用いて、その磁気状態・電荷状態を局所的に調べた結果を報告した。

励起子絶縁体候補物質である Ta_2NiSe_5 は、相転移の性質を理解することが重要な電子系となっている。常圧下での $T_c = 328 \text{ K}$ において、高温で狭いバンドギャップを持つ半導体から非磁性の絶縁体への転移が起こる。同時に、高温斜方晶から単斜晶構造に変化する。光電子分光で観測された価電子バンドの平坦化は、Se-4p および Ni-3d 軌道の混合による励起子の凝縮によって理論的に説明されている。一方、構造転移温度 T_c 以上でも磁化率の抑制とバンドの平坦化が見られ、励起子凝縮の前駆現象が現れると考えられている。この擬ギャップ現象は、電子起源の可能な軌道混成と関連していると考えられるが、

理論研究から、高温斜方晶相で **Ta** と **Ni** の軌道混成の発現は困難と指摘された。圧力をかけると、 T_c は徐々に抑制され、約 **3 GPa** で結晶構造の一次相転移が起こり、これに伴って T_c が急速に減少し、金属相に転移する。結晶構造と電気抵抗の温度および圧力への依存性は、約 **3 GPa** 以上でも低压相と同様の構造転移が起こり、それに伴って電子系の変化が観察された。しかし、圧力下の磁化測定や局所電荷状態の実験手法が限られるため、**Ta₂NiSe₅** に対する圧力下の磁性に関する報告はない。また、系全体の結晶構造は明らかにされているが、局所的な構造変化の研究はなく、電荷状態の研究はまだ少ない。

本研究において、申請者は圧力下磁性特性から構造相転移温度以下のギャップが圧力で T_c にスケールして減少すること示した。特に常圧で観測された T_c 以上の擬ギャップが、温度と圧力に依存した状態相図に広く存在することを示した。この事実、観察された擬ギャップの起源が、単斜晶構造への構造ゆらぎの低エネルギー化あるいは電子相関による自発的な軌道混成の発生から起こるものと考えられることを示す。特に、約 **3 GPa** 以上に現れる室温以下の金属状態でも構造相転移に伴う磁化の抑制を **Se** 核の **NMR** と **Ta** 核の **NQR** から見出し、それが構造相転移に伴う T_c 以上でも続いているという常圧での磁性に類似したものを見出した。低温近くまで金属状態が維持されることから、状態密度の抑制を思わせる擬ギャップ相と名付けた。さらに、**Ta₂NiSe₅** の静的・動的な電気的特性を、**Ta** 核 **NQR** によるスペクトルと核スピン格子緩和率($1/T_1$)を用いて調べた。これまで観測できていなかった **Ta** 核 **NQR** 信号の発見を契機に進められた研究であり、**Ta** サイトの局所構造や電荷分布の増強や対称性の変化を調べることができた。常圧では **Ta** 核の $1/T_1$ からは局所構造に誘起された電荷ゆらぎの発散的増大と T_c 以下の局所構造、電荷分布の発生が観察された。この振舞いは、**Se-NMR** 法によって得られた磁気ゆらぎの温度変化とは大きく異なる。同様な手法を高圧下での金属相の磁気および電荷の状態の検出に用いた。その結果から構造相転移を伴う相転移温度 T_c 以上で局所構造の変化によると考えられる格子電荷状態の変化と磁化の抑制の温度が別れていることがわかった。これは常圧でこの二つの変化がほぼ同時に起こる振舞いと異なる。

以上は励起子絶縁体候補物質 **Ta₂NiSe₅** での磁化の抑制を引き起こす機構が電子的であり、結晶構造の相転移やそのゆらぎを伴わない機能があることを示している。これは理論研究とは異なる結果である。