

## 論文審査の結果の要旨および担当者

報告番号	※ 甲 第 12546 号
------	---------------

氏 名 中埜 彰俊

### 論 文 題 目

放射光X線散乱による励起子相の構造物性研究  
(Structural physics study on the excitonic phase by synchrotron  
x-ray scattering experiments)

### 論文審査担当者

主査	名古屋大学	教授	澤 博
委員	名古屋大学	教授	田仲 由喜夫
委員	名古屋大学	准教授	片山 尚幸
委員	東北大学	教授	石原 純夫

## 論文審査の結果の要旨

中埜彰俊君提出の論文「放射光X線散乱による励起子相の構造物性研究」は、励起子絶縁体という新奇な電子相であると考えられている物質の電子状態を構造物性の観点から明らかにしている。各章の概要は以下の通りである。

第1章「序論」では、励起子絶縁体とその候補物質について、これまでの研究背景と問題点を述べている。1961年にMottによって、ナローギャップの半導体や半金属における励起子絶縁体という新奇な絶縁状態への相転移が予言されたが、長い間現実の系での候補物質が見つからず、実験的な検証が進んでいなかった。近年、ナローギャップ半導体 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ においてこの励起子絶縁体を実現している可能性がいくつかの実験から指摘され、その検証に興味を持たれている。しかし、電子状態を考える上での基礎となる結晶構造解析は十分に進んでいなかった。申請者は様々な圧力・温度における結晶構造解析を行うことで、電子状態と物性発現機構を解明することを目指して研究を行った。

第2章「実験の原理と装置」では、使用した実験装置とその原理を説明している。

第3章「 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ における電子格子相互作用と構造相転移」では、放射光単結晶X線回折実験と非弾性散乱実験を組み合わせることで、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ における励起子絶縁体相転移機構を議論している。非弾性散乱ではTaイオンおよびSeイオンの関与する $B_{2g}$ の対称性を持つ光学モードにおいて、相転移よりも高温でフォノンのエネルギー線幅に明らかなブロードニングを観測した。これはこれらのフォノンモードが電子状態と結合することで前駆的に強く揺らいでいることを示唆している。さらに、これらのフォノンモードは相転移に伴って凍結し、系の鏡映対称性を破ることを明らかにした。この鏡映対称性の破れは電子軌道とホール軌道の混成を可能とするため、励起子絶縁体を形成する上で電子格子相互作用が重要な役割を担っていることを示す重要な知見である。

第4章「高圧下における $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ の結晶構造解明」では、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ が励起子絶縁体であることを検証する上で有用な知見である圧力・温度に対する電子相図を明らかにした。 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ は常圧では半導体的な電気伝導を示すが、圧力印可によって半金属、そして超伝導という多彩な電子状態を示す。しかしこの劇的な物性の変化に対応した高圧下の結晶構造は解明されていない。申請者はまず粉末X線回折実験により、3 GPa前後において、層全体がコヒーレントにスライドする結晶学的に非常に珍しい構造相転移が生じていることを解明した。さらに、圧力下の物性の詳細を明らかにするために単結晶X線回折を用いることで、電子状態が議論できる精度で高圧低温相の結晶構造を決定することに成功した。その結果、高圧低温においても常圧と同じようにTaとSeの鏡映対称性を破る原子変位が生じていることを明らかにした。この結果は、超伝導が現れる圧力域に至るまで、常圧と類似した電子系の相互作用が生き残っていることを示唆している。バンドギャップの開いた半導体領域から半金属領域まで同様の相転移が生じる点は他の絶縁状態には見られない特徴的な振る舞いであり、理論的に予言された励起子絶縁体の電子相図とよく対応する。よって申請者明らかにした $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ の圧力温度に対する電子相図はこの系の電子状態を議論する上で非常に重要となると考えられる。

第5章「総括」では本研究の結論を与え、今後の展望を述べている。

以上のように本論文では1960年代からの謎であった励起子絶縁体の実験的な解釈について、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$ における電子格子相互作用の重要性と圧力温度相図を明らかにした。よって、本論文の提出者である中埜彰俊君は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格があると判断した。