

励起子絶縁体から半金属への光誘起相転移過程に出現する擬ギャップ状態

[1] 要旨

励起子絶縁体 Ta_2NiSe_5 では、フェムト秒赤外パルスレーザーの光励起によって価電子帯と伝導帯の間のエネルギーギャップが 100 フェムト秒の時間スケールで消失して半金属となることが知られていた。本研究では、フェムト秒赤外パルスレーザーをポンプ光、その高次高調波の極紫外パルスを探光とする時間分解角度分解光電子分光を用いた詳細な測定により、励起子絶縁体から半金属に遷移する途中で価電子帯と伝導帯の間に擬ギャップ（不完全なエネルギーギャップ）を持つ特異な量子状態が現れることが発見された。

[2] 本文

半金属や半導体において、価電子帯に存在するホールと伝導帯に存在する電子の間にクーロン相互作用がはたらく。このクーロン相互作用によって価電子帯と伝導帯が量子力学的に混成することによって、それらの間にエネルギーギャップが形成されたり（元の系が半金属の場合）、あるいはエネルギーギャップが増大したり（元の系が半導体の場合）すると、励起子絶縁体とよばれる量子状態となる。励起子絶縁体は 1960 年代に理論的に予言されていたが、「励起子絶縁体と確認された物質は皆無」という状況が長く続いていた。ようやく最近になって、層状遷移金属カルコゲナイドのひとつである Ta_2NiSe_5 が理想的な励起子絶縁体に最も近い物質として認められてきた。この Ta_2NiSe_5 は、フェムト秒赤外パルスレーザーの光励起によって価電子帯と伝導帯の間のエネルギーギャップが 100 フェムト秒の時間スケールで消失して半金属となる。この絶縁体から半金属への 100 フェムト秒オーダーでの光誘起相転移の発見は、 Ta_2NiSe_5 が励起子絶縁体であることの証拠のひとつになっている。

最近、早稲田大学先進理工学部、東京大学物性研究所、名古屋大学大学院工学研究科、東京大学大学院理学系研究科のメンバーを中心とする研究グループは、上記の励起子絶縁体から半金属への光誘起相転移の過程を時間分解角度分解光電子分光によって詳細に測定し、その過程で価電子帯と伝導帯の間のエネルギーギャップが不完全になった「擬ギャップ状態」が出現することを発見した。この成果は、JPSJ の 2023 年 6 月号に掲載された。

理想的な励起子絶縁体では、フェムト秒赤外レーザーの光励起によって多数の電子およびホールが生じることで電子・ホール間のクーロン相互作用が遮蔽され、伝導帯のエネルギーが低下すると同時に価電子帯のエネルギーが上昇してエネルギーギャップの閉じた半金属になる。今回の観測結果では、励起子絶縁体から半金属へと変化する過程で、伝導帯のエネルギーは期待どおりに低下する一方で、価電子帯のエネルギーはほとんど変化せず、その結果として両者の間に不完全なギャップが残されていることが明らかになった（図 1）。この不完全なエネルギーギャップをもつ「擬ギャップ状態」が発見されたことで、電子・ホール間のクーロン相互作用以外にも価電子帯に影響を与える別の相互作用が存在することが示唆された。本研究では、この別の相互作用の候補として、電子とホールの非対称な電荷分布と反転対称性を局所的に破る格子変形との間の相互作用（電子格子相互作用の一種）を提案している。

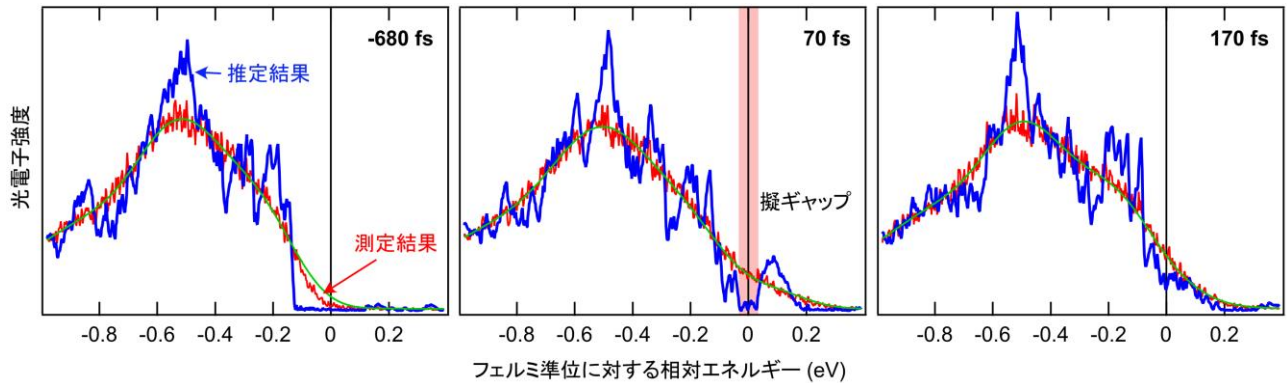


図1. 励起子絶縁体(-680 fs)から擬ギャップ状態(70 fs)を経て半金属相(170 fs)に至る光誘起相転移。赤線が時間分解光電子分光の測定結果、青線がエネルギー分解能によるブロードニングを除去して抽出したスペクトル関数の推定結果である。緑線はそのスペクトル関数をエネルギー分解能で畳み込んだもので測定結果とほぼ一致すること確認できる。 $\text{Ta}_2\text{Ni}_{0.9}\text{Co}_{0.1}\text{Se}_5$ を 100 K で測定した結果であり、ポンプ光 (1.55 eV) のフルエンスは 3.00 mJcm^{-2} 、高次高調波によるプローブ光は 21.7 eV を用い、時間分解能は 80 fs、エネルギー分解能は 250 meV である。

今回研究された Ta_2NiSe_5 は赤外領域の直接バンドギャップを有しており、上で述べたように赤外光パルスによって 100 フェムト秒の時間スケールで絶縁体から半金属へと光誘起相転移を示す。また、この物質は MoS_2 などのような層状遷移金属カルコゲナイドであることから、原子層結晶によるデバイス化も期待される。デバイス化に向けた基礎研究が提案・検討されている段階ではあるが、将来、新しいタイプの光量子デバイスへと応用される可能性を秘めている。

原論文 (2023 年 5 月 25 日公開済)

[Temporal Evolution and Fluence Dependence of Band Structure in Photoexcited \$\text{Ta}_2\text{Ni}_{0.9}\text{Co}_{0.1}\text{Se}_5\$ Probed by Time- and Angle-Resolved Photoemission Spectroscopy](#)

Y. Takahashi, T. Suzuki, M. Hattori, M. Okawa, H. Takagi, N. Katayama, H. Sawa, M. Nohara, Y. Zhong, K. Liu, T. Kanai, J. Itatani, S. Shin, K. Okazaki, and T. Mizokawa, *J. Phys. Soc. Jpn.* **92**, 064706 (2023).

<情報提供：溝川貴司（早稲田大学 先進理工学部）
大川万里生（早稲田大学 先進理工学部）
岡崎浩三（東京大学 物性研究所）>