

令和 5 年 6 月 8 日現在

機関番号：63903

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2021～2022

課題番号：21K20358

研究課題名(和文) 励起子絶縁体における自発的励起子生成メカニズムの解明

研究課題名(英文) Investigations on formation mechanisms of spontaneous excitons in excitonic insulators

研究代表者

福谷 圭祐 (Fukutani, Keisuke)

分子科学研究所・光分子科学研究領域・助教

研究者番号：10706021

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,400,000円

研究成果の概要(和文)：半導体への光照射で生成される不安定な「励起子」は現代の量子デバイスの動作の根本を担う極めて重要な粒子である。本研究課題の目的は、近年発見された「励起子絶縁体」と呼ばれる物質において発現する永続的な励起子(自発的励起子)の生成メカニズムを解明することである。本課題においては、これら自発的励起子の生成・消滅の境界線近傍における励起子絶縁体の振る舞いを観測することにより、自発的励起子の生成はある特定の物質環境において段階的に生成され、その過程において、励起子のサイズ・粒子の束縛力に顕著な変化が現れることを突き止めた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本課題の研究により、自発的励起子はその消失に近づくにつれて、段階的に密度が減少するだけでなく励起子自体のサイズが増大しておりその束縛力の減少が連続的に起こっているであろうとの示唆を得た。これは、自発的励起子がこれまで考えられてきた特殊な物質のみならず、より広く産業応用されている半導体物質等においても物質設計により発生させることが可能であることを示唆する重要な成果であると考えられる。

研究成果の概要(英文)：Excitons are the unstable particles within semiconductor materials that are formed transiently under light irradiations. In recent years, a new phase of matter called "excitonic insulator" has garnered much attentions. In the excitonic insulator phase, the electrons and holes are spontaneously bound to form an excitons and exist as a permanent particle. In this research project, by directly observing the behaviors of these spontaneously formed excitons near their formation boundary, I have revealed that the formation of these spontaneously formed excitons gradually occur under the appropriate material properties and conditions, while their physical sizes and the binding energies are progressively changed.

研究分野：物性物理学

キーワード：励起子絶縁体 光電子分光 自発的励起子

## 1. 研究開始当初の背景

半導体において光励起などで生成される励起子は、太陽電池や光検出器など現代の量子デバイスの動作原理の中心的役割を担う極めて重要な準粒子である。近年これらの励起子が物質中で自発的に生成され、低温において凝縮する励起子絶縁体 (EI) と呼ばれる新奇物性の存在が実験において明らかになりつつあり、その凝縮機構の解明を目的とする研究が精力的に行われてきた。一方、EI 物質のバンドギャップや温度によっては、凝縮下でない高温状態でも励起子が永続的に存在可能であることが近年実験によって明らかにされた。これらの永続的な励起子は「自発的励起子(preformed excitons)」と呼ばれ、半導体物質の新たな可能性を拓くことが期待されている。しかしながら、実験に基づくこのような自発的励起子の生成メカニズムは未解明であり、基礎物性の知見に基づく微視的な生成機構の解明が急務である。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は「EI 転移温度以上で既に存在する自発的励起子の生成メカニズムは何であるか」という学術的問いに対して実験に基づく有望な仮説を見出すことである。特に本研究では、自発的励起子の生成メカニズムに迫るため、「通常相」と「自発的励起子相」の境界近傍において理論予測通り励起子の束縛エネルギーの上昇とボア半径の縮小により励起子密度の連続的な増加が起こるのか、あるいは境界線を跨いで急激な励起子生成(相転移現象)が起こるのかを見極める。

## 3. 研究の方法

本課題においては、励起子絶縁体物質内のバンドギャップと温度を制御することにより、励起子絶縁体相・自発的励起子相・通常相の間で変化させ、物質内に安定して存在する自発的励起子の特性(束縛エネルギー、ボア半径、励起子密度等)の変化等を測定する。

(1) 励起子絶縁体物質には  $Ta_2Ni(Se_{1-x}S_x)_5$  を用いてカルコゲン (S, Se) の組成比  $x$  を制御した様々なバルク単結晶を作成し、用いる。

(2) 自発的励起子の特性の観測には主に角度分解光電子分光(ARPES)を用いる。

## 4. 研究成果

(1): 国際共同研究者等との協力のもと化学気相輸送法を用いて上述のカルコゲン置換型励起子絶縁体物質  $Ta_2Ni(Se_{1-x}S_x)_5$  の作成を行い、カルコゲン比がそれぞれ  $x = 0\%$ ,  $20\%$ ,  $28\%$ ,  $40\%$ ,  $58\%$ ,  $94\%$ ,  $100\%$  の純良バルク単結晶の合成に成功した。

(2): 上記のそれぞれのカルコゲン置換型励起子絶縁体物質について、様々な温度 ( $T = 10\text{--}400\text{K}$ ) において、ARPES 測定を行い、本物質系の電子バンド構造の詳細を励起子絶縁体相図(図1)の様々な測定点において解明することに成功した。これら一連の相図探索による価電子帯近傍のバンド構造を図2に示す。

(3): (2)において詳細に観測した電子構造から、すべての組成比において励起子絶縁相内(図

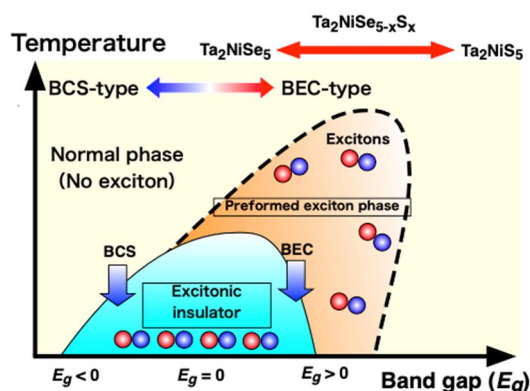


図1: 励起子絶縁体の理論上の相図

2青網掛け)の領域においては価電子帯の頂上付近のエネルギー帯にそのシグナルが観測される自発的励起子は観測されず、自発的励起子相(図2 オレンジ網掛け)にのみ励起子のシグナルが観測されている。これは、励起子絶縁相においては凝縮状態にある励起子単体からの光電子放出は起こらず、転移温度以上において自由かつ安定な励起子が発現した際にのみ光電子放出が起こる励起子の性質と一致しており、これまで母物質である  $Ta_2NiSe_5$  のみでその存在が確認されていた自発的励起子がよりバンドギャップの大きいカルコゲン置換物質系においても存在することを新たに示す結果である。

(4)カルコゲン置換比 94%, 100%の物質においては励起子絶縁相は存在しないため、これらは通常の半導体であると考えられてきたが、本研究により、物質自体が励起子絶縁体への転移を有さずとも自発的励起子を発現可能であることが示された。これは、自発的励起子が(励起子絶縁体に限らず)より広い範囲の物質群によって発現可能であることを示すとともに、それら安定した励起子のデバイス・産業応用などへの戸口を開く可能性を示していると考えられる。

(5)自発的励起子相からさらに温度を上昇させることにより、各組成比の物質において顕著な励起子シグナルの減少を観測することに成功した。これは理論予測通り、安定的な励起子の密度が昇温により段階的に減少し消失しつつあることを明示するものである。これらの観測結果から、励起子絶縁体相・自発的励起子相・通常相の3つの物質相間では「励起子絶縁体相-自発的励起子相」の間においては相転移現象が存在するが、「自発的励起子相-通常相」においては段階的な励起子の密度・特性の変化を伴うクロスオーバー現象が発現することを実験的に解明した。

(6)自発的励起子相における励起子特性について解析を行った結果、物質の温度上昇につれて(すなわち自発的励起子の生成・消滅の境界に近づくに伴い)励起子のボア半径(電子と正孔間の平均距離であり励起子のサイズ)及び励起子の束縛エネルギーが有意に変化していることが突き止められた。これは、励起子が自発的励起子の生成・消滅の境界に近づくに伴いその粒子としての性質が変化していることを示すものであり、微視的な自発的励起子生成のメカニズムに迫る結果であると考えられる。

従って自発的励起子相と通常相(半導体相)間に相転移現象には相転移現象は存在せずこれらの相は励起子の密度が連続的に変化し段階的に自発的励起子が生成されることを示唆するものである。

これら一連の研究成果は 2021-2022 年度において複数の学会において発表しているとともに、現在論文を執筆中である。

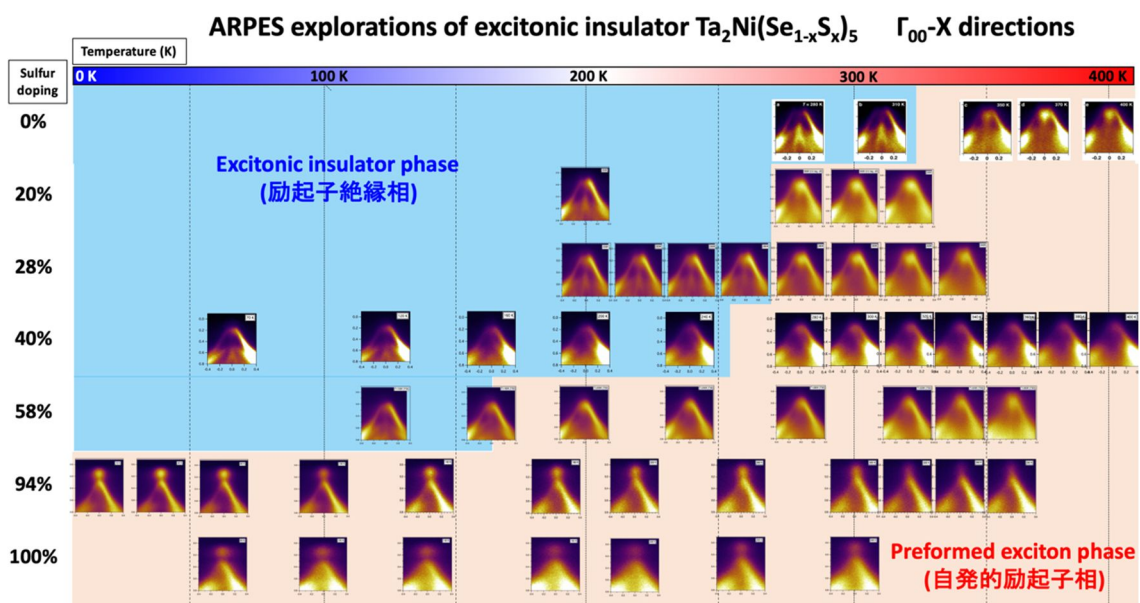


図2：励起子絶縁相・自発的励起子相・通常相における角度分解光電子分光を用いた相図探索

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 福谷圭祐
2. 発表標題 励起子絶縁体物質Ta <sub>2</sub> Ni (Sex-1Sx)5の自発的励起子相における電子相関
3. 学会等名 日本物理学会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 福谷圭祐
2. 発表標題 励起子絶縁体物質Ta <sub>2</sub> Ni (Se1-xSx)5の自発的励起子相の電子相関
3. 学会等名 応用物理学会
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
韓国	Institute for Basic Science	Pohang Univ. of Science and Technology	