

博士論文の要旨及び審査結果の要旨

氏名 土門 薫  
 学位 博士 (理学)  
 学位記番号 新大院博 (理) 第 446 号  
 学位授与の日付 令和 2 年 3 月 23 日  
 学位授与の要件 学位規則第 4 条第 1 項該当  
 博士論文名 多バンド電子正孔系における新奇な励起子秩序の理論

論文審査委員 主査 教授・大野 義章  
 副査 教授・吉森 明  
 副査 教授・撰待 力生  
 副査 教授・瀧本 哲也  
 副査 准教授・奥西 巧一

博士論文の要旨

本論文では、擬一次元カルコゲナイド  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  の励起子相が理論的に研究されている。励起子相とは、ナローギャップ半導体やバンドの重なり of の小さな半金属において電子-正孔対 (励起子) が量子凝縮した秩序状態で、クーパー対が量子凝縮した超伝導と相似の状態であり、1960 年代初めに Mott や Knox らによって理論的に予言されて以来、探索が続けられてきた。 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  は常圧下  $T_c=328\text{K}$  で斜方晶から単斜晶への 2 次の構造相転移を示すが、最近、 $T_c$  以下で価電子バンドの上端の異常な平坦化が角度分解光電子分光 (ARPES) で観測され、励起子相の可能性が提案された。第一原理計算によれば、伝導帯と価電子帯はそれぞれ主に  $\text{Ta}5d$  と  $\text{Ni}3d$  からなる共に強い 1 次元性をもつバンドで、価電子帯は 1 重、伝導帯は 2 重に縮退している。さらに最近の高圧実験で、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  は加圧により半金属となり、 $T_c$  は減少するものの  $P_c\sim 8\text{GPa}$  で消失するまでは常圧と同様の構造相転移が観測されている。伝導帯と価電子帯の縮退度が異なるため半金属では必然的にフェルミ波数に差が生じるが、そのような場合の励起子相の理論研究はこれまでには無かった。

そこで本論文では、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  の 3 鎖ハバード模型に対して、半金属の場合にも適用できる励起子理論が構築された。磁場中の超伝導では、上下スピンのフェルミ波数に差があるとき、重心運動量  $\mathbf{q}$  が有限のクーパー対が凝集した Fulde-Ferrell-Larkin-Ovchinnikov (FFLO) 状態が議論されているが、その理論を伝導帯と価電子帯のフェルミ波数に差がある場合の励起子相に応用し、励起子の重心運動量  $\mathbf{q}$  が有限の FFLO 状態も含む励起子秩序変数に対する自己無撞着方程式が導出された。この方程式は多数の  $\mathbf{q}$  に対して自己無撞着解が存在するため、自由エネルギーを比較して最も安定な解を探索し、温度とバンドギャップ (圧力に対応) のパラメータ平面において励起子相図を完成させた。この際、FFLO 励起子相では重心運動量  $\mathbf{q}$  に加えて秩序変数に非自明な位相  $\phi$  が伴うことを発見した。さらに、鎖間トランスファーを考慮したより現実的な 2 次元 3 鎖ハバード模型の励起子相を詳細に調べ、伝導バンドと価電子バンド間の 3 種類のネスティング波数  $\mathbf{Q}$  に対応して 3 種類の FFLO 励起子秩序が存在することが明らかにされた。また、上述の FFLO 状態は単一の波数  $\mathbf{q}$  の励起子が凝縮した FF 状態であるが、波数が  $0, \mathbf{q}, -\mathbf{q}$  などを重ね合わせた LO 状態が安定化されるパラメータ領域が存在することも明らかにした。

本論文は、以下のような5つの章から構成されている。第1章の序論では、研究の背景や  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  の基礎物性、先行理論研究がレビューされ、本研究の目的が示された。第2章の3鎖ハバード模型では、FFLO 状態も含む励起子秩序を決定する自己無撞着方程式の導出、および、1次元3鎖ハバード模型に基づき、数値計算によって得られたFFLO 状態を含む励起子相図やリエントラント転移、励起子秩序の実空間表示などの結果が示された。さらに、鎖間トランスファーを考慮した現実的な2次元模型に対して、励起子相図を決定するとともに、3種のFFLO 状態が伝導バンドと価電子バンド間の3種類のネスティング波数  $\mathbf{Q}$  により説明されることを示した。第3章のLO型励起子秩序では、LO 状態を決定する自己無撞着方程式を導出し、その数値計算結果を示すとともに、電荷密度波 (CDW) 状態との違いについて明解に説明した。第4章の第一原理計算に基づく構築模型に対する励起子秩序では、第一原理計算 (WIEN2k) および最局在ワニエ関数を用いて60軌道 d-d-p 模型が導出され、その模型に基づく励起子秩序の数値計算結果が示された。最後に5章の結論と今後の課題では、4章までの結果のまとめに加えて、実験との比較などが議論された。また、付録として数値計算に用いた非線形方程式の解法のアルゴリズムについても追記された。

#### 審査結果の要旨

本論文は、励起絶縁体の候補物質として最近活発に研究されている  $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  の励起子相に関して超伝導のBCS理論を応用して励起子相を調べた。この物質の常圧の半導体領域における励起子相 (励起子絶縁体) については、従来から知られていた理論で説明されていたが、高圧で実現する半金属領域における励起子相については未解明であった。この物質の価電子と伝導電子のバンドの縮重度の違い (前者が1重、後者が2重) によって半金属領域で必然的に生じる電子-正孔のインバランスにいち早く着目し、強磁場下の超伝導においてアップスピンとダウンスピンのインバランスに起因する有限重心運動量のクーパ対が凝縮したFFLO超伝導の理論を励起子秩序に応用して、有限重心運動量の励起子が凝縮したFFLO励起子相の理論を定式化し、励起子秩序を決定する自己無撞着方程式を導出した。この方程式は多数の波数  $\mathbf{q}$  に対して自己無撞着解が存在するため、自由エネルギーを比較して最も安定な解を探す必要があったが、膨大な数値計算をもとに励起子相図を完成させた。その結果、高圧の半金属領域において、新規なFFLO励起子秩序が実現することを理論的に明らかにした。この論文は、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  を含む励起子相の基礎理論として新規秩序状態を提案した十分に価値の高い研究であるとともに、 $\text{Ta}_2\text{NiSe}_5$  の高圧下における物性解明において重要な役割を果たすものとしても高く評価される。

よって、本論文は博士 (理学) の博士論文として十分であると認定した。