

## Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub> の共鳴光電子分光 Resonant photoemission spectroscopy of Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub>

三田将隆<sup>1\*</sup>, 石田達広<sup>1</sup>, 湯澤祐介<sup>1</sup>, 大槻太毅<sup>1</sup>, 北村未歩<sup>2</sup>, 丸岡うらら<sup>3</sup>, 中埜彰俊<sup>3</sup>, 寺崎一郎<sup>3</sup>, 吉田鉄平<sup>1</sup>  
<sup>1</sup>京都大学大学院人間・環境学研究科, 〒606-8501 京都市左京区吉田二本松町  
<sup>2</sup>高エネルギー加速器研究機構 物質構造科学研究所 放射光科学研究施設, 〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1  
<sup>3</sup>名古屋大学理学研究科, 〒464-8602 名古屋市千種区不老町  
M.Sanda<sup>1</sup>, T. Ishida<sup>1</sup>, Y. Yuzawa<sup>1</sup>, D. Ootsuki<sup>1</sup>, M. Kitamura<sup>2</sup>, U. Maruoka<sup>3</sup>, T. Nakano<sup>3</sup>, I. Terasaki<sup>3</sup>, and T. Yoshida<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Graduate School of Human and Environmental Studies, Kyoto University, Sakyo-ku, Kyoto 606-8501, Japan

<sup>2</sup>Photon Factory, Institute of Materials Structure Science, High Energy Accelerator Research Organization, 1-1 Oho, Tsukuba, 305-0801, Japan

<sup>3</sup>Department of Physics, Nagoya University, Nagoya 464-8602, Japan

### 1 はじめに

層状遷移金属カルコゲナイド化合物 Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub> は Ta と Ni の擬一次元鎖構造を有しており、328 K で構造相転移する。角度分解光電子分光の結果から価電子帯の上端においてフラットバンドが形成されており、この相転移が伝導帯の電子と価電子帯の正孔の対形成からなる励起子絶縁体転移であると提案されている[1]。しかし、近年、Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub> の相転移機構は励起子凝縮ではなく、構造相転移による対称性の破れを起源とする説が提唱されており、議論が続いている[2]。本実験では、Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub> の相転移機構を明らかにするため、Ni 3p - 3d 共鳴光電子分光によりフェルミ準位近傍のバンドの軌道成分を決定した。

### 2 実験

Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub> はフラスコ法で合成された。共鳴光電子分光実験は、Photon Factory BL-28A にて行った。電子分析器は Scienta DA30 を用い、入射光エネルギーを  $h\nu = 60$  eV から 80 eV まで変化させて行った。エネルギー分解能は 29 meV、試料温度は  $T = 300$  K である。

### 3 結果および考察

図 1(a) に入射光エネルギー  $h\nu = 60 \sim 80$  eV での Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub> の光電子スペクトルを示す。励起子凝縮の根拠とされている -0.2 eV 付近のフラットバンド構造が観測されている。また、-0.4 ~ -0.8 eV には Ni 3d と Se 4p の混成軌道から成る構造が観測されている。特に、-0.4 eV より深い結合エネルギーの強度が入射光エネルギーに対して変化していることが分かる。これは価電子帯の光電子放出過程と内殻電子との共鳴による光電子放出過程の量子干渉による強度増大と考えられる。図 1(a) の -0.4 eV ~ -0.8 eV の CIS (Constant Initial State) スペクトルを図 1(b) に示す。 $h\nu = 66$  eV 付近で強度が減少しており、 $h\nu = 70$  eV 付近で強度が増大していることが分かる。光イオン化断面積により入射光エネルギーが上がるにつれて、光電子放出確率が下がることを考慮して Ni 3p-3d の非共鳴エネルギーを  $h\nu = 69$  eV、共鳴エネルギーを  $h\nu = 65$  eV と定めた。図 1(c)、(d) に非共鳴、共鳴の ARPES のスペクトルを示す。また、共鳴スペクトルから非共鳴スペクトルを引いた差分スペクトルを図 1(e) に示す。差分スペクトルから価電子帯の大部分が共鳴増大しており、Ni 3d 軌道由来のバンド構造であることがわかる。しかし、価電子帯の上端のフラットバンドの強度はほとんど変化しておらず、Ni 3d の寄与がほとんどないことが分かった。

ルから非共鳴スペクトルを引いた差分スペクトルを図 1(e) に示す。差分スペクトルから価電子帯の大部分が共鳴増大しており、Ni 3d 軌道由来のバンド構造であることがわかる。しかし、価電子帯の上端のフラットバンドの強度はほとんど変化しておらず、Ni 3d の寄与がほとんどないことが分かった。

### 4 まとめ

Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub> の Ni 3p - 3d 共鳴光電子分光を行った。共鳴スペクトルから非共鳴スペクトルを差し引いた差分スペクトルから Ni 3d 軌道の寄与が価電子帯に広く存在していることがわかった。一方、価電子帯頂上は共鳴、非共鳴で強度の変化がほとんど見られず Ni 3d 軌道成分は支配的でないと言える。これらの結果は伝導帯の Ta 5d 軌道と価電子帯の Ni 3d 軌

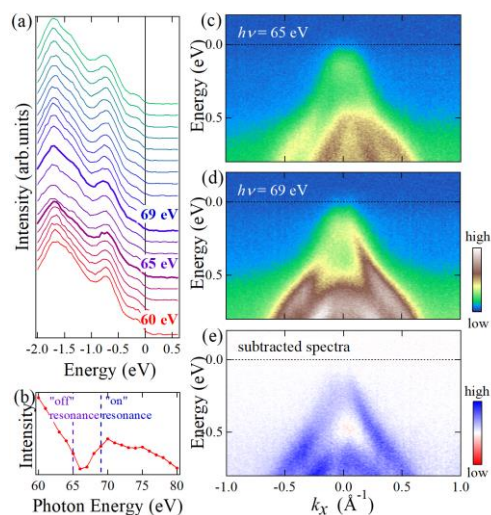


図 1 : (a) Ta<sub>2</sub>NiSe<sub>5</sub> の光電子スペクトルの入射光依存性 ( $h\nu = 60 \sim 80$  eV). (b) CIS スペクトル. (c) 非共鳴 ARPES スペクトル ( $h\nu = 65$  eV), (d) 共鳴 ARPES スペクトル ( $h\nu = 69$  eV). (e) 共鳴と非共鳴の差分スペクトル.

道の軌道混成を示唆している。

### 参考文献

[1] Y. Wakisaka *et al.*, Phys. Rev. Lett. **103**, 026402 (2009). [2] D. Watson *et al.*, Phys. Rev. Research **2**, 013236 (2020).

\* sanda.masataka.84e@st.kyoto-u.ac.jp