

### 3A11

#### ポンプ・プローブ分光法で見た $\kappa$ - $(\text{ET})_2\text{Cu}[\text{N}(\text{CN})_2]\text{X}$ (X = Br, Cl) の電子状態

(北海道大学 創成科学共同研究機構<sup>1</sup>・大学院理学研究院<sup>2</sup>・工学研究科<sup>3</sup>)

内藤 俊雄<sup>1,2</sup>, 山田 祐香理<sup>2</sup>, 稲辺 保<sup>2</sup>, 戸田 泰則<sup>1,3</sup>

【序論】 表題の化合物は電子相関や高温超伝導の観点から、その発見(1990年)以来、広範囲の物性研究者たちの興味を引き続けてきた有機超伝導体である。その結果、多大な関連研究の蓄積があり、クロスオーバーで接する領域も含めると複雑で多様な電子状態が提唱されている[1]。例えば高温側の電子相は、金属と絶縁体の区別が着かない超臨界状態にあるとされており、dynamical mean-field theory (DMFT)[2]による Fermi liquid/bad metal といった区別が実験的にどう検出されるかなど、電気伝導を担う(準)粒子の運動や寿命に関して、直接的知見を得る努力が必要である。こうした問題に対しては、フェルミ準位近傍の電子や準粒子の励起状態の緩和過程を高い時間分解能で直接観測することが有力な知見を与える。そこで我々は超短時間域の観測を可能とする、パルスレーザー(パルス幅=130 fs)を用いた顕微偏光反射分光により、フェルミ面近傍の電子の緩和過程に関する過渡応答を観測し、X = Br, Cl の両物質(以下それぞれ Br 塩、Cl 塩)について電子状態の温度依存性を調べた。

【実験と結果】 今回用いた光学系では、顕微分光と偏光依存性の測定を可能とするため、通常とは異なり、ポンプ光・プローブ光(ビーム径 $\phi$  10  $\mu\text{m}$ )を同軸とした二色励起型を採用している。反射率そのものではなく、定常状態との反射率の差を検出しているため、伝導電子の挙動を観測したい場合でも、通常の反射スペクトルのように(加熱効果の強い)赤外光を必ずしも要しない。本研究では、最も信号が強く得られたという理由で、ポンプ光 = 1160 nm(20-140  $\mu\text{W}$ )、プローブ

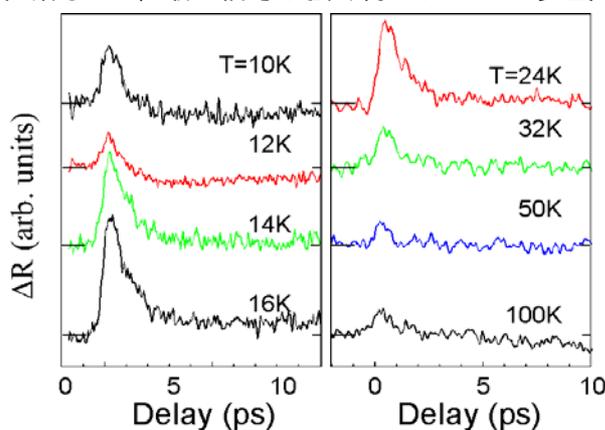


図1. Br 塩の過渡応答信号

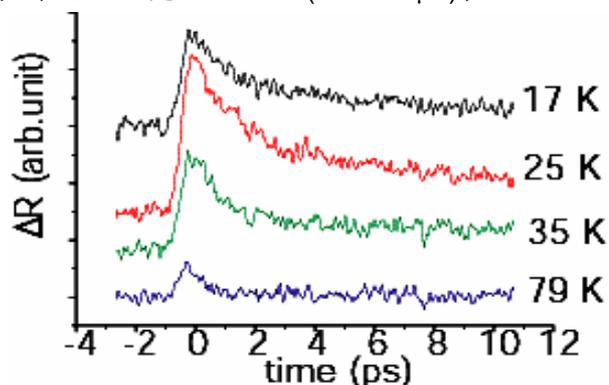


図2. Cl 塩の過渡応答信号

光 = 800 nm(75  $\mu\text{W}$ )を選んだ。このどちらも、既報の反射スペクトル[3]や関連物質も含めたバンド計算[4]と照らし合わせる限り、吸収ピークではない波長(非共鳴励起)に相当し、対応する光学遷移が一目瞭然には決まらないが、おおよそ ET 分子の HOMO-LUMO 遷移(ポンプ光) および HOMO-next HUMO(プローブ光)間の遷移の裾野ではないかと考えている。冷却速度はどちらの塩も平均毎分 K であり、低温物性に影響の大きいとされるガラス転移温度の 80 K 以上ではこれよりも遅く、それ以下では若干早く冷却した。過渡信号の温度依存性の大きな領域で、レーザーのパワーをいろいろ変えた実験結果から、試料の温度上昇を見積もって補正した。得られた結果の内、Br, Cl 塩の代表的な過渡応答信号の温度変化をそれぞれ図1、2に示す。Br 塩の過渡応答信号に関しては顕著な特徴が2つあり、 $\sim 30$  K 以下から始まり 15 K 付近に向けて急激に成長して行く速い緩和過程(0 ps 付近のピーク)がある、12 K 以下でオフセット(遅い緩和過程)が出現し、しかもそれが負である。一方、Cl 塩の過渡応答信号では、減衰として観測できる速い緩

和 (decay) と、10 ps 程度の時間スケールでは定常状態に見える offset (正) がほぼ連動して変化した。 decay が遅くなり始める 40-50 K 以下で正の offset が急に現れ、温度低下と共に発達 (増大) していった。得られた全ての過渡応答信号を以下の (式 1) にしたがって fitting を行い、振幅(A)、decay(B)、offset(C)の温度依存性を抽出した。紙面の都合上、ここではBr 塩の結果だけを図3に示す。

$$\Delta R = A \exp(-t/B) + C \quad (\text{式 1})$$

【結論】上述の結果は、12 K (以下) で試料が超伝導になっていることに対応する。その他、Br 塩の電子構造の温度変化に関し、次のことが分かった。36 K 以上 (~100 K まで) では、バンドギャップの存在を示す遅い緩和と、フェルミ面上の速い緩和が共存している。これはフェルミレベル近傍で準粒子の状態が Mott 転移臨界点 (~40 K) より低温でも有限のまま残っており、電気伝導を担っているという描像と定性的に一致する。また 36 - 12 K では、擬ギャップの発達が示唆された。興味深いことに、パラメーター B の温度変化は電気特性や基底状態 (弱強磁性絶縁体) が全く異なる Cl 塩でも、全温度領域で Br 塩と酷似する傾向が見られた。

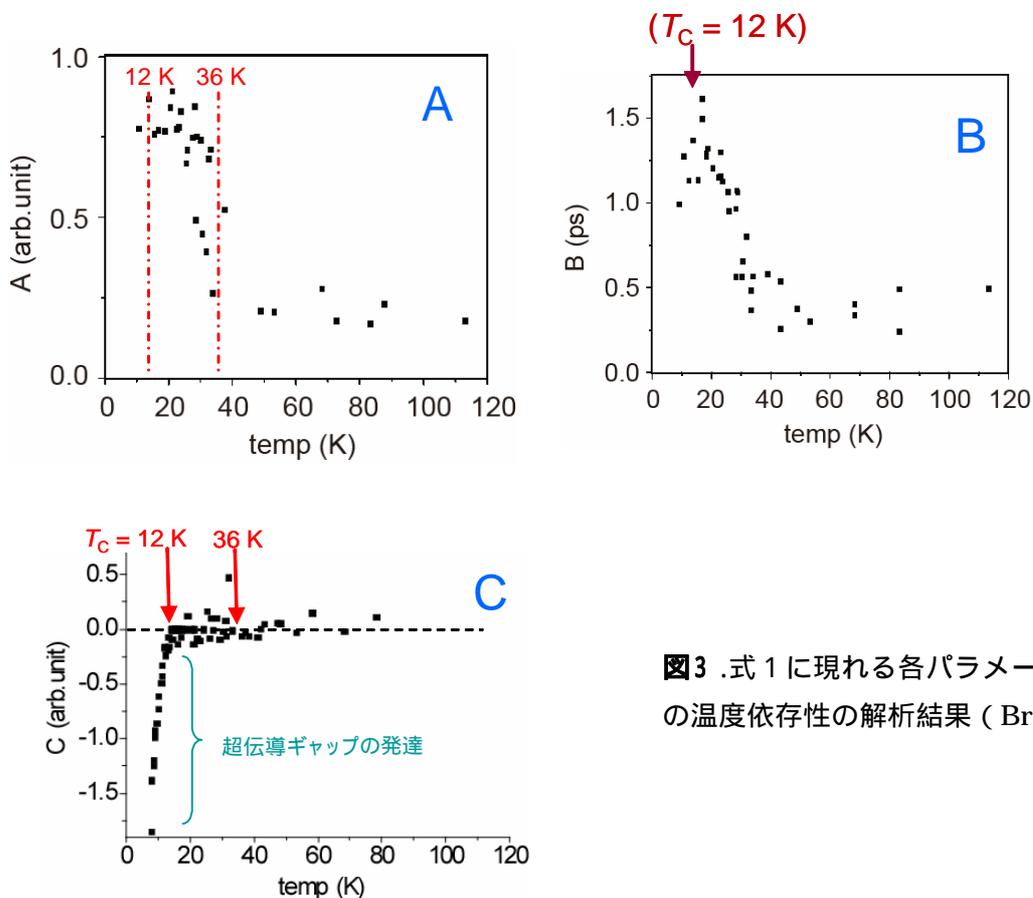


図3 .式 1 に現れる各パラメーターの温度依存性の解析結果 (Br 塩)

#### 【参考文献】

- [1] 多数あるが、例えば K. Kanoda, *J. Phys. Soc. Jpn* **75**, 051007(2006); T. Sasaki *et al*, *J. Phys. Soc. Jpn* **74**, 2351(2005); K. Miyagawa *et al*, *Chem. Rev.* **104**, 5635(2004).
- [2] 例えば総説として、A. Georges *et al*, *Rev. Mod. Phys.* **68**, 13(1996).
- [3] R. Masuda *et al*, *Synth. Met.* **55-57**, 2489(1993).
- [4] Y.-N. Xu *et al*, *Phys. Rev. B* **52**, 12946(1995); W. Y. Ching *et al*, *Phys. Rev. B* **55**, 2780(1997).