時間分解電気伝導度測定による磁性有機導体λ-(BETS)₂FeCl₄の 光励起ダイナミクスの研究

(室蘭工大¹・北大電子研²) ○飯森 俊文¹, 生沼 要², 太田 信廣²

Photoexcitation dynamics investigated by time-resolved electrical conductivity measurement in the magnetic organic conductor λ -(BETS)₂FeCl₄

(Muroran Tech., Hokkaido Univ.) Toshifumi Iimori, Kaname Oinuma, Nobuhiro Ohta

【緒言】

有機導体は、モット絶縁体相や超伝導相を含む多様な相状態が拮抗して出現し、多彩な物 理現象を提供する舞台であり、光・電場・静磁場や圧力などの外部刺激に対して物性が鋭敏 な応答をしめす¹⁻²。Bis(ethylenedithio)tetraselenafulvalene (BETS, Fig. 1)の有機電荷移動錯体で ある λ -(BETS)₂FeCl₄ (λ -Fe)は、 $T_N \cong 8$ K において金属一絶縁体相転移と常磁性一反強磁性相転 移を同時に示す磁性有機導体であることが知られている。結晶中で鉄原子上の d 電子は大き なスピン角運動量を持ち、BETS 分子上の π 電子とともに結晶の磁性を担っており、d 電子と π 電子との間の磁気的な相互作用の解明は、特異的な相転移および電子状態を理解するうえ で重要であると考えられる。

パルスレーザー光を用いた時間分解測定法は、光励起ダイナミクスや電子間の相互作用を 解明するうえで強力な手法である。また物性のなかでも特に電気伝導は、デバイスへの応用

の観点から重要である。さらに電気伝導度は相状態に よって大きく異なることから、相状態の変化を鋭敏に 反映するプローブとしても有用である。本研究では、 相転移温度 *T*_N 近傍の温度域においてナノ秒パルスレ ーザー光を結晶に照射し、電気伝導度の時間分解測定 を行い、光励起ダイナミクスについて研究を行った。



Fig. 1. Chemical structure of BETS.

【実験手法】

試料の単結晶は、文献³⁾に従い電気分解法により合成し、黒色の針状結晶として得られた (Fig. 2)。光学窓付きのクライオスタット(Oxford Instruments)を使用して温度制御と光照射を行 った。実験に用いたパルススキームと回路を Fig. 3 に示す。試料の表面に金ペーストを用い て電極を作成し、2つの端子間に定電圧パルスを加え、レー ザー光照射と同期した電流値の過渡的な変化をデジタルオ シロスコープを用いて測定した。光源としてナノ秒パルス Nd:YAG レーザーでポンプした OPO レーザー(波長 470 nm、 パルス時間幅 10 ns)を用いた。



Fig. 2. Single crystals of λ -Fe.

【結果と考察】

λ-Feの抵抗値は、室温からの温度冷却にともなって約 100 K において極大を示したあと減 少するが、約 8 K において急激な増加を示し、既に報告されている結果³⁾を再現することを 確認した。転移温度 *T*_N近傍においてレーザー光を照射したときの時間分解コンダクタンス変 化を Fig. 4 に示す。光照射により、過渡的に電気伝導度が増加することが明らかになった。 ピーク強度は温度に依存して変化し、*T*_Nに近づくとともにピーク強度は増大することがわか った。光応答のメカニズムとして、光照射によって結晶の温度が上昇し電気伝導度が増加す る可能性について検討を行った。しかし *T*_Nよりも高温において電気伝導度の増加がみられる ことから、光応答には温度上昇ではなく光励起による電子状態の変化が寄与している可能性 が明らかになった。また Fig. 4 における緩和速度は *T*_Nに近づくとともに遅くなることがわか った。緩和速度の温度依存性を動的臨界現象の枠組みによって解析を行った結果、およびそ の結果から示唆される電子間の磁気的相互作用に関しても報告する。

【参考文献】(1)太田信廣·飯森俊文:現代化学 2011, 483, 38. (2) Iimori, T.; Ohta, N. J. Phys. Chem. C 2014, 118, 7251. (3) Kobayashi, H. et al., J. Am. Chem. Soc. 1996, 89, 017003.



Fig. 3. (a) Circuit diagram. (b) Pulse scheme.



Fig. 4. Time-resolved conductance change.