

平成 22 年 5 月 21 日現在

研究種目：若手研究 (B)  
 研究期間： 2008 ～ 2009  
 課題番号：20740170  
 研究課題名 (和文) 光ポンプ・テラヘルツ波プローブ分光測定による有機導体の密度波ダイナミクスの研究  
 研究課題名 (英文) Study of density wave dynamics in organic conductors by optical pump and terahertz probe experiments  
 研究代表者 渡邊 紳一  
 (WATANABE SHINICHI)  
 研究者番号：10376535

## 研究成果の概要 (和文)：

擬一次元有機導体(TMTSF)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub>におけるスピン密度波状態の光励起ダイナミクスについて光ポンプ・テラヘルツ波プローブ分光計測によって詳細に調べた。近赤外超短パルス光照射後すぐにテラヘルツ帯に存在するスピン密度波ギャップが閉じ、その後ギャップが回復してゆく様子を明瞭に捉えることができた。相転移温度においてギャップは完全に閉じない一方、ギャップ回復時間は発散する様子が確認できた。この現象を、一次元系に特徴的な大きなゆらぎの帰結として現れる相転移温度近傍における臨界緩和現象として考察した。

## 研究成果の概要 (英文)：

Photoexcited dynamics of the spin density-wave (SDW) state in a linear-chain compound bis-(tetramethyl-tetraselenafulvalene)hexafluorophosphate, (TMTSF)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub>, is investigated by optical pump and terahertz probe experiments. After the ultrashort laser-pulse excitation, a sudden closing followed by a recovery of the SDW gap is clearly observed in the far-infrared spectrum. The recovery time is found to diverge toward the phase-transition temperature,  $T_{SDW}$ , while the gap remains open at  $T_{SDW}$ . The observed critical slowing down behavior is interpreted in terms of fluctuation which enlarges near the phase transition temperature.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2008 年度	2,100,000	630,000	2,730,000
2009 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：光物性物理学

科研費の分科・細目：物理学・物性 I (光物性・半導体・誘電体) (実験)

キーワード：有機導体、スピン密度波、テラヘルツ分光、ポンプ・プローブ計測、光物性

## 1. 研究開始当初の背景

TMTSF 塩(Bechgaard 塩)や BEDT-TTF など代表される分子性導体(有機導体)は、その低次元的な電子構造から電子-格子あるいは電子-電子相互作用の効果が極端に表れ、SDW(Spin Density Waves: スピン密度波)やCDW(Charge Density Waves: 電荷密度波)、あるいは超伝導など多彩な相が現れる。構成分子の置換や加圧によって電子系の次元性を人工的に操作でき、これまで鎖間距離や温度の相図をもとに新しい機能をもつ物質が次々と設計・開発されてきた。相図における相境界での電子系のダイナミクスは低次元系特有のゆらぎが深くかかわるとされ、理論的な研究も盛んに行われている。またその電子基底状態についての実験的研究は、帯磁率測定、X線回折測定、また赤外分光や走査トンネル分光をはじめとした各種光学測定を通して詳細に行われてきた。

こうした有機導体における光励起キャリアの緩和過程を観測することは、非平衡電子状態からの密度波形成ダイナミクスを調べることにつながる。光ポンプ・プローブ計測によって密度波の成長過程を実時間観測することで、その形成時における電子-電子(格子)相互作用の働きや低次元ゆらぎの効果をより詳細に考察することが可能になると考えられる。特に相境界近傍でのキャリアの緩和過程を観測することは低次元系に起因するゆらぎの定量的な評価につながるであろう。

これまで有機導体における光ポンプ・プローブ計測は、密度波のギャップエネルギーが meV オーダーであるにも関わらず、技術的な問題から主として可視光領域(eV オーダー)で行われてきた。その結果CDWに起因すると思われる反射率の ps オーダーの時間的振動や、相転移温度近傍でのキャリア緩和時間の発散などが見出されている。しかしその観測エネルギー領域の違いから、密度波の準位とは大きくエネルギー的に離れた高い励起準位を介して間接的に密度波のプローブを行わなければならない。その点、近年発生検出技術が飛躍的に向上したテラヘルツパルス光(数 meV~20 meV)はちょうど密度波のギャップエネルギーに相当するので、これを用いて密度波形成に関わるキャリアの応答を直接的にプローブすることができれば、励起状態を介さない明瞭なダイナミクスの議論が可能となるはずである。

## 2. 研究の目的

テラヘルツ時間領域分光法(THz-TDS)を用いると(サブ)ピコ秒の時間スケールで meV

エネルギー領域の複素伝導度を直接観測することができる。そのため、低エネルギー領域における電子構造の評価やその緩和過程を調べるのに大変適している。本研究では、有機導体におけるスピン密度波・電荷密度波に起因するギャップの直接観測を通して、ゆらぎの効果も含めたその形成ダイナミクスの評価を行うことが目的である。

## 3. 研究の方法

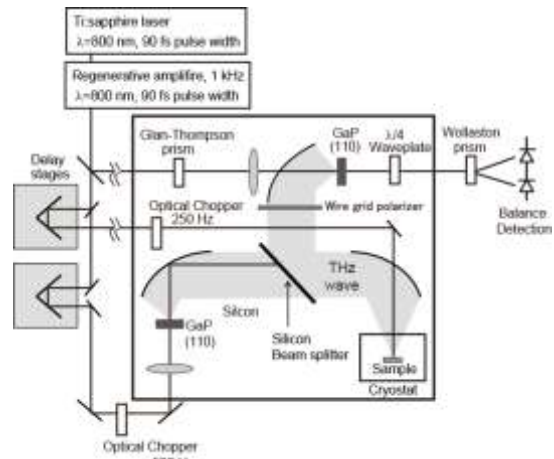


図1: 光ポンプ・テラヘルツ波プローブ分光測定系配置図

図1に光ポンプ・テラヘルツ波プローブ分光測定系の実験配置図を示す。再生増幅器からのレーザー出力(波長 800 nm, 繰り返し周波数 1 kHz, パルス幅 90 fs)を、ビームスプリッターを用いて3つのパスに分け、一つをテラヘルツ波発生に、一つをテラヘルツ波検出に、もう一つを試料の近赤外光ポンプに利用する。近赤外光ポンプ後の試料の低エネルギー物性変化について、遅延ステージによって遅れて到着したテラヘルツ波パルスを用いた反射分光計測によって調べる。

## 4. 研究成果

主要な研究成果は以下の通りである。

- ①近赤外光ポンプ照射後 2 ps 以内で絶縁体-金属転移が起こること。
- ②転移温度  $T_{SDW}$  より十分低温では、光励起による SDW ギャップの収縮と回復が明瞭に観測できたこと。
- ③  $T_{SDW}$  近傍では低次元電子系に起因するゆらぎの効果が非常に大きくなり、光励起後の緩和時間が  $T_{SDW}$  に向けて発散する典型的な臨界緩和現象が確認されたこと。

① 励起強度  $110 \mu\text{J}/\text{cm}^2$  の近赤外光ポンプによって SDW ギャップが完全に閉じ、絶縁体-金属転移が起こることが確認された。この励起強度はユニットセルあたり  $5 \times 10^{-4}$  個の光子を注入することに相当する。これは理論的に予言されている準粒子注入による SDW ギャップの消失に必要な準粒子数に比べて  $1/10$  程度の光子数であり、一つの光子で多数の準粒子が生成されたことを示唆する結果である。また絶縁体-金属転移は我々の測定系の時間分解能である  $2 \text{ ps}$  よりも速い時間で起こることが確認できた。

② 図 2 に、近赤外光照射後の  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  スピン密度波ギャップ伝導度スペクトルの時間発展を示す (励起強度は  $13.7 \mu\text{J}/\text{cm}^2$ )。励起  $3 \text{ ps}$  後にギャップが急激につぶれ、その後徐々にギャップが回復する様子を明瞭に捉えた。これはパルス光照射によって瞬時 ( $t < 3 \text{ ps}$ ) に生成された準粒子によって実効的な電子系の温度が上昇することで SDW ギャップが閉じ、その後準粒子の緩和に伴って再びギャップが開くものと解釈できる。

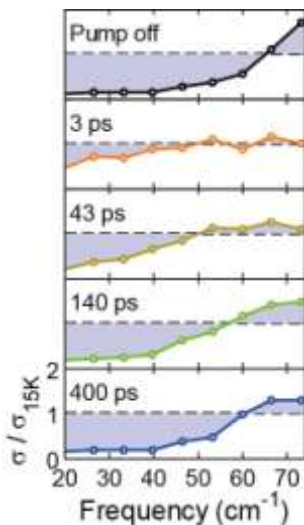


図 2 :  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  スピン密度波ギャップ伝導度スペクトルの光励起ダイナミクス。励起  $3 \text{ ps}$  後にギャップが急激につぶれ、その後徐々に回復する。

③ 図 3 に光励起後のスピン密度波ギャップ回復時間の温度依存性を示す。緩和時間が相転移温度  $T_{SDW}$  において発散する様子が観測された。一般に準粒子緩和時間は、ギャップの縮小によってフォノン緩和が抑制されるフォノンボトルネック効果により、ギャップの大きさの逆数に比例することが知られている。したがって緩和時間の発散は  $T_{SDW}$  において光学ギャップ

が閉じることによるためと始めは考察した。しかしながら詳細な光学伝導度スペクトルの温度依存性計測の結果、 $T_{SDW}$  においてもギャップは完全に閉じていないことが確認された。 $T_{SDW}$  における緩和時間の発散は擬一次元電子構造に由来する大きなゆらぎの効果と、その結果として生じる  $T_{SDW}$  近傍の広い温度領域に渡る臨界緩和現象として解釈することが可能である。

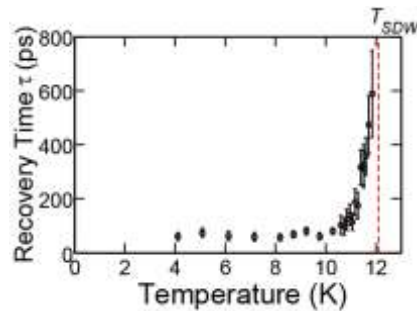


図 3 : 光励起後のスピン密度波ギャップ回復時間の温度依存性。緩和時間は相転移温度  $T_{SDW}$  において発散する。

本研究課題の成果の主要部分は Physical Review B Rapid Communications (Phys. Rev. B **80**, 220408(R) (2009)) に掲載され、更に本論文は Editor's suggestions に選出された。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 3 件)

[1] S. Watanabe, R. Kondo, S. Kagoshima, and R. Shimano, "Ultrafast photo-induced insulator-to-metal transition in the spin density wave system of  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ ", Physica B, in press.

[2] S. Watanabe, R. Kondo, S. Kagoshima, and R. Shimano, "Observation of ultrafast photoinduced closing and recovery of the spin-density-wave gap in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ ", Phys. Rev. B **80**, 220408(R) (2009).

[3] S. Watanabe, R. Kondo, S. Kagoshima, and R. Shimano, "Spin-density-wave gap in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  probed by reflection-type terahertz time-domain spectroscopy", Phys. Stat. Solidi (b) **245**, 2688 (2008).

〔学会発表〕（計 9 件）

[1] S. Tsubota, S. Watanabe, R. Shimano, “Quasi-particle injection by intense terahertz pulse in the spin density of wave state of  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ ”, Nanyang Technology University (NTU)-Todai Joint Workshop, Tokyo, Japan Feb. 22-23, (2010).

[2] S. Watanabe, R. Kondo, S. Kagoshima, and R. Shimano, “Direct Observation of Photo-Induced Spin-Density-Wave Gap Closing and Recovery in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  by Terahertz Time-Domain Spectroscopy”, 8th International Symposium on Crystalline Organic Metals, Superconductors and Ferromagnets (ISCOM2009), Niseko, Hokkaido (Japan) (2009).

[3] S. Watanabe, R. Kondo, S. Kagoshima, and R. Shimano, “Ultrafast terahertz probe of spin-density wave dynamics in organic conductor  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$ ”, 27th International Quantum Electronics Conference (IQEC09), Maryland (USA) (2009).

[4] S. Watanabe, R. Shimano, R. Kondo, and S. Kagoshima, “Spin-density-wave gap in  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  probed by terahertz time domain spectroscopy”, 8th International Conference on Excitonic Processes in Condensed Matter (EXCON'08), Kyoto (Japan) (2008).

[5] 坪田翔悟、渡邊紳一、近藤隆祐、鹿児島誠一、島野亮、「高強度テラヘルツ波パルスによる  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  SDW 相の準粒子注入効果」、日本物理学会第 6 5 回年次大会（岡山大学 2010）.

[6] 渡邊紳一、近藤隆祐、鹿児島誠一、島野亮、「 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  スピン密度波ギャップスペクトルの光誘起変化と回復過程」、日本物理学会 2009 年秋季大会（熊本大学 2009）.

[7] 坪田翔悟、渡邊紳一、近藤隆祐、鹿児島誠一、島野亮、「高強度テラヘルツ波パルス励起による  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  SDW 相の伝導度変化」、日本物理学会 2009 年秋季大会（熊本大学 2009）.

[8] 渡邊紳一、近藤隆祐、鹿児島誠一、島野亮、「 $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  スピン密度波相の光融解ダイナミクス」、日本物理学会第 6 4 回年次大会（立教大学 2009）.

[9] 渡邊紳一、島野亮、近藤隆祐、鹿児島誠一、「テラヘルツ時間領域分光法による  $(\text{TMTSF})_2\text{PF}_6$  のスピン密度波ギャップの観測」、日本物理学会第 6 3 回年次大会（近畿大学 2008）.

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

渡邊 紳一 (WATANABE SHINICHI)  
東京大学大学院理学系研究科・助教  
研究者番号：10376535