

# 高分解能光電子分光による有機伝導体の研究

## High resolution Photoemission study on organic conductors

理研 SPring-8 辛 埴

RIKEN SPring-8 Shik SHIN

固体で発現する諸物性はその電子状態と深く結びついており、特に物質のフェルミ準位( $E_F$ )近傍の電子状態を知ることが物質の設計や応用にとって非常に重要である。その電子状態を直接観測することのできる手法として角度分解光電子分光(ARPES)がある。この手法は占有状態を直接観測できるのみではなく、電子構造を運動量まで分解して観測することのできるほぼ唯一の方法である。

有機伝導体はその低次元性に基づく電荷密度波(CDW)やスピン密度波(SDW)、エキゾチック超伝導など多彩な基底状態を取りうるとともに、金属相においても次元のクロスオーバーによる Fermi 液体から

Tomonaga-Luttinger 液体へのクロスオーバーなど、多様な物性を含む独特で魅力的な物質群である。しかし有機伝導体は試料の取り扱いが難しく、測定が困難なことから、特に ARPES の報告は世界的にもほとんどない。

VUV レーザーを用いた ARPES は、レーザーの単色性により高分解能であるだけでなく、低エネルギーのため光照射による損傷を抑えることができ、また有機伝導体中で伝導を担う

s,p 電子に対するクロスセクションが大きいといった特徴を持つ。さらにはバルク敏感性も併せ持つため、有機伝導体の測定に有利な手法である。そこで、我々は VUV レーザー光電子分光を用いて、典型的な CDW 物質である TSF·TCNQ の及び典型的な SDW 物質であり次元クロスオーバーを示す(TMTSF)<sub>2</sub>PF<sub>6</sub> の電子状態とその温度変化を詳細に調べた。

図 1 は第 1 ブリルアンゾーンの  $E_F$  の強度プロットの温度依存性であり、強度はすべて規格化してある。これからすべて一次元的な形状であることがわかる。しかし、その強度と鋭さに違いが見られる。250K から 60K では強度が増大しつつ鋭くなっている。これは 60K において運動量が良い量子数になっていることを示している。また、60K から 6K では鋭さはそのままに強度が減少している。これは 6K で CDW ギャップが開くためである。

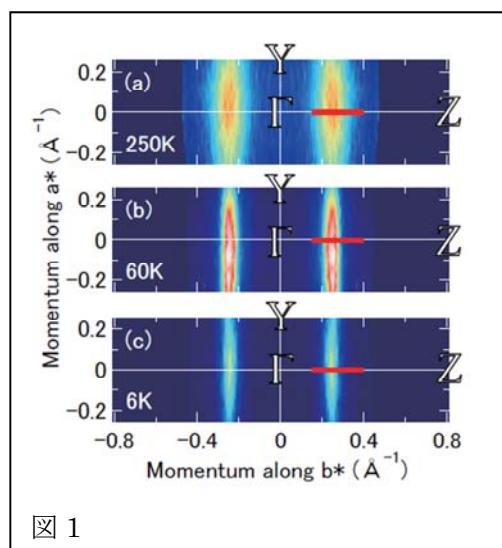


図 1

図2はフェルミ準位( $E_F$ )近傍のバンド分散の温度変化をフェルミ分布関数で割って温度の補正をするとともに強度も規格化してある。これを見ると、250K から60K にむけてバンドが

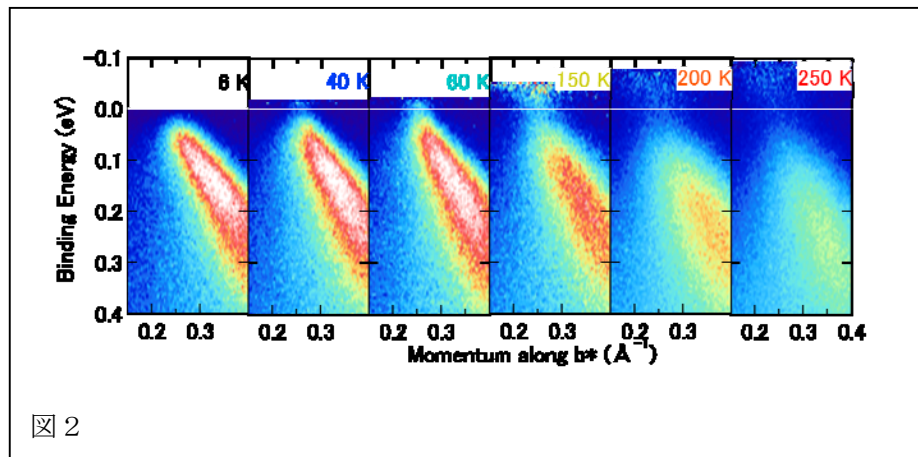


図2

形成され、温度降下とともに先鋭化している。バンド計算からこのバンドはTSFバンドである。これは準粒子が形成され温度降下とともに成長していることを示唆している。一方60K以下では40Kで $E_F$ 直近のみ強度が減少し、6Kでは消失している。これはCDWギャップが生じているためである。

図3はバンドが $E_F$ を過ぎる波数 $k_F$ におけるエネルギースペクトルの温度変化である。これを見ると、実際に250Kではピークが見られないが、200K( $=T^*$ )でピークが形成され、温度降下とともにそのピークが成長し先鋭化していることがわかる。このようなピークの成長およびバンドの形成は複数の層状酸化物金属においても観測されており、低次元性や電子相関効果に起因するインコヒーレント-コヒーレントクロスオーバーとして議論されている。また図3左図は60K以上の拡大図であるが、ここでは $E_F$ 付近の強度が温度降下とともに増加していることがわかる。さらに図3右図は60K以下の拡大図であり、今度は $E_F$ 付近の強度が温度降下とともに減少していき10K以下ではほとんど消失している。これは三次元 $2k_F$ -CDW ゆらぎの出現( $T_{3D} = 55$  K)に伴う20 meV程度のギャップ形成を示唆している。

図4上段は準粒子のピーク位置を温度に対してプロットしたもので幅は準粒子の幅に対応している。これを見ると200Kで準粒子ピークが出現し、温度降下とともに急激に先鋭化していき55K以下では幅は温度に依存せずほぼ一定になっている。また $E_F$ 上の強度[図4中段]を見ると温度降下とともに強度が増加し55K以下では逆に

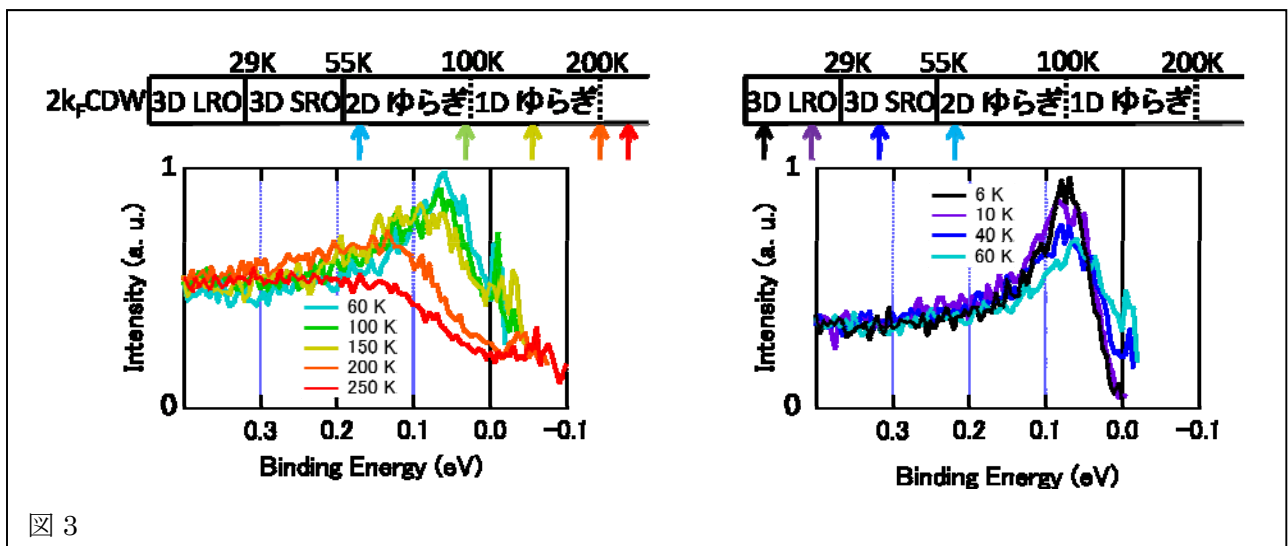


図3

温度降下とともに郷土が減少しており、29K 以下ではほとんど消失している。さらに図 4 下段は抵抗率を温度に対してプロットしたものと ARPES の  $E_F$  の運動量分布曲線(MDC)をローレンツ関数でフィッティングしたときのピーク幅を温度に対してプロットしたものを並べたもので両者はよく相関していることがわかる。そして、55K から 29K の三次元の短距離秩序が形成される領域では、ARPES ではギャップが観測されるが、抵抗率の結果は金属的であり、擬ギャップが生じていることを示唆している。

この ARPES 結果において  $E_F$  近傍に準粒子ピークが現れる  $T^*=200K$  は、ちょうど X 線散乱で一次元的な  $2k_F$ -CDW ゆらぎが観測され始める温度  $T_{1D}$  に対応している。このことは  $T^*$  以下で系のコヒーレンスが良好になりフェルミ面が明瞭になるとともに、ネスティングが効くようになることを示唆している。

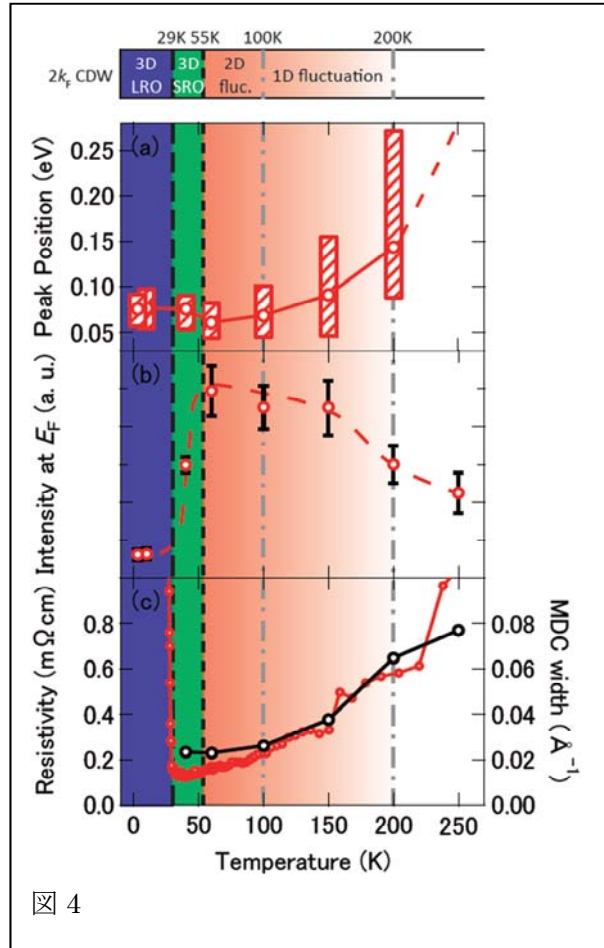


図 4