

共鳴軟 X 線散乱でみた有機導体における電荷秩序状態

Resonant soft x-ray scattering study of charge-ordered state in organic conductor

小林賢介^{1,*}, 中尾裕則^{1,2}, 熊井玲児^{1,2}, 中尾朗子³, 岡本淳¹, 須田山貴亮¹,
山崎裕一¹, 高橋由香利¹, 村上洋一¹, 十倉好紀^{4,5}, 森初果⁶

¹KEK 物質構造科学研究所 構造物性研究センター, 〒305-0801 つくば市大穂 1-1

²JST-CREST, ³CROSS, ⁴東京大学, ⁵理研 CEMS, ⁶東京大学物性研究所

K. Kobayashi¹, H. Nakao^{1,2}, R. Kumai^{1,2}, A. Nakao³, J. Okamoto¹, T. Sudayama¹,

Y. Yamasaki¹, Y. Takahashi^{1,2}, Y. Murakami¹, Y. Tokura^{4,5}, and H. Mori⁶

¹CMRC-PF, IMSS, KEK, ²JST-CREST, ³CROSS,

⁴Univ. of Tokyo, ⁵RIKEN CEMS, ⁶ISSP, Univ. of Tokyo

1 はじめに

共鳴 X 線散乱法は、酸化物の軌道・電荷秩序状態を解明する手法として非常に有用な実験手法である[1]。含有される元素の吸収端に合わせた X 線を用いることで、特定の軌道が強く関与する電子状態の情報を得ることができる。我々は、この実験手法を有機導体へ適用した場合に電荷秩序状態における HOMO の電子状態において新たな知見が得られることを期待して、bisethylenedithio-tetrathiafulvalen (BEDT-TTF) 分子に含まれる硫黄の K 吸収端(2472 eV)における共鳴軟 X 線散乱実験を電荷秩序を示す有機導体 β -(BEDT-TTF)₂PF₆ に対して試みた。

2 実験

実験は KEK PF の BL-11B において軟 X 線回折計を用いて行った。 β -(BEDT-TTF)₂PF₆ は有機分子 BEDT-TTF と無機アニオン PF₆ からなるラジカルカチオン塩であり、電気伝導は主に BEDT-TTF 分子の π 軌道から成る HOMO が担っている。この物質は室温付近(297K)で金属-絶縁体転移を示す物質としてよく知られており[2]、低温の X 線構造解析結果から絶縁相は電荷秩序状態であることが報告されている[3]。297 K 以下では、電荷秩序状態を反映した超格子反射 $q = (h, k, l/2)$ が存在し、この反射を用いた共鳴軟 X 線散乱実験を行った。

3 結果および考察

BEDT-TTF 分子には 8 個の硫黄原子が含まれており、金属相では分子全体の価数は+0.5 価である。297 K 以下では+0.8 価と+0.2 価に価数分離し、電荷秩序化する。220 K における超格子反射(2 4 -1/2)のエネルギー依存性を図 1 に示す。散乱強度は硫黄の K 吸収端付近で増大しており、共鳴散乱の振る舞いを示している。この共鳴エネルギーは報告されている HOMO のエネルギーと一致するため[4]、硫黄原子の 3p 軌道が HOMO に大きな寄与を持ち、電荷秩序化が HOMO で起きていることを明確に示している。低エネルギー側の非共鳴散乱強度が高エネルギー

一側に比べて大きいのは試料自身の吸収などの効果によるものと考えられる。

有機導体における電荷秩序状態を共鳴散乱法によって観測し、分子全体の価数差が 0.6 価程度であっても十分な強度の共鳴散乱が観測可能であることが分かった。分子の僅かな価数変化による電荷秩序化を検出できる共鳴散乱法は、今後有機導体の研究においても有益な情報をもたらす手法となる事が期待される。

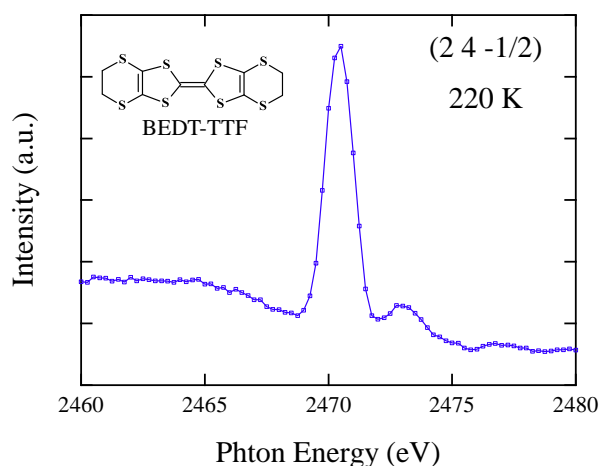


図 1: 超格子反射のエネルギー依存性.

参考文献

- [1] Y. Murakami *et al.*, Phys. Rev. Lett. **80**, 1932 (1998).
[2] H. Kobayashi *et al.*, Chem. Lett., 581 (1983).
[3] Y. Nogami and H. Mori, J. Phys. IV France **12**, Pr9-233 (2002).
[4] T. Hatsui *et al.*, Chem. Phys. Lett. **330**, 309 (2000).

* kensuke.kobayashi@kek.jp