

## 放射光 X 線を用いた単結晶 MEM 解析による 分子性物質系の分子軌道の直接観測

研究代表者 名古屋大学 澤 博

最終年度を迎えた本課題では、イメージングプレートを検出器に持つ回折計により様々な系の構造物性研究を行ってきた。電子密度解析を用いた精密な測定だけでなく、磁場や電場、圧力などの外場依存性についても研究を行った。対象となる物質群についても非常に多岐に亘り、成果全体を概観することは容易ではない。ここでは手法的な側面から成果を紹介する。

PF の BM の X 線ビームラインとしての BL1A は、10~18keV のエネルギー領域を主に利用することで、パフォーマンスが最大となる。そこで、精密な解析を行う場合には比較的軽元素からなる分子性物質を対象とすることに研究の方向性がある程度絞った。放射光による大強度で平行性が高い X 線を用いることによって、通常の構造解析とは一味もふた味も異なる構造物性研究が可能であることを示したのが、水素分子内包フラーレンにおける水素分子の可視化、低次元分子性導体における電子相関による電子結晶化などの研究である。

水素分子の可視化については、合成の途中段階である開口  $C_{60}$  に水素分子を閉じ込めた系の単結晶構造解析によって、水素ガス分子を観測できたことから[1]、 $H_2@C_{60}$  完全体の精密解析を試みた結果、PF でも十分解析可能であることがわかった。分子性結晶における軽元素の状態を十分議論可能であることから、様々な系への展開が期待される。

一方、分子性結晶における分子軌道の直接観測は、結果から述べれば極めて困難であることがわかった。この研究の方向として、 $(DI-DCNQI)_2Ag$  のウィグナー結晶化[2]やディラック・コーン型の分散を持つ  $\alpha$ - $(BEDT-TTF)_2I_3$  の常圧電荷秩序相の解析[3]を精密に行ってみたところ、確かに興味深い電子状態を明らかにすることができたが、分子の電荷分布の直接観測までは困難であることがわかった。原因については、目下鋭意調査中である。

また、東大物性研の森研究室による電荷秩序物質  $\beta$ - $(meso-DMBEDT-TTF)_2PF_6$  では、電荷秩序を解析し[4]、現在は電場誘起の準安定相の解明に取り組んでいる。電界を印加した状態での回折実験など、様々な外場応答に対応可能であることがこのビームラインの特徴の一つである。このことは、東大総合文化の近藤ら(鹿児島研)によるベリリウムクランプセルを用いた高压下の回折実験にも見られる。特に彼らのグループでは一軸性圧縮を用いた電子状態の精密制御について多くの技術を持っており[5]、今後の展開が極めて注目される。

このビームラインでは分子性物質だけではなく、遷移金属酸化物のような無機化合物における様々な興味ある物性についても成果が上がりつつある。最近のトピックスとして、東北大多元研の有馬らはオービトロニクスと呼ばれる概念に基づく軌道整列の電場制御を試みており、その物性の X 線回折による検証を行っている。

以上のような多くの成果を輩出した本課題は、将来の展開を見据えつつ終了する。

[1] H. Sawa *et al.*, *Angew. Chem. Int. Ed.*, **44** (2005) 1981.

[2] T. Kakiuchi, *et al.*, *Phys. Rev. Lett.*, **98** (2007) 066402.

[3] T. Kakiuchi *et al.*, *J. Phys. Soc. Jpn.*, **76** (2007) 113702.

[4] S. Kimura, *et al.*, *J. Am. Chem. Soc.*, **128** (2006) 1456.

[5] R. Kondo *et al.*, *R.S.I.* **76** (2005) 093902.