

(TMTSF)₂ReO₄の超格子構造解析による電荷秩序の観測と

高感度極低温 X 線散漫散乱カメラの製作

量子構造物性学講座 41417109 中島悠策

近年、(TMTTF)₂X の非金属状態について、クーロン反発 V の効果により $4k_F$ の電荷秩序を示す実験結果が誘電率や磁気共鳴測定により報告されている[1]。さらに精密構造解析によって、陰イオンの形状や大きさに依存し、電荷秩序のパターンが $2k_F$ に変わり得ることが報告されている。TMTTF 分子の硫黄 S をセレン Se に置換した TMTSF 分子の錯体(TMTSF)₂X は、(TMTTF)₂X と結晶構造がほぼ同じであるが、電子輸送にセレンの π 電子が伝導に寄与するため、硫黄 S の π 電子が寄与する(TMTTF)₂X より金属状態が安定で極低温で超伝導またはスピン密度波転移を起こす。比較的高温 $T_{A0} = 180K$ で金属絶縁体転移を起こす物質に (TMTSF)₂ReO₄ があるが、その絶縁化メカニズムの詳細は知られていない。(TMTSF)₂ReO₄ は、陰イオン ReO₄ が中心対称を持たない 4 面体型であり陰イオンが秩序化する T_{A0} で金属-絶縁体転移を起こしている。ほとんど陰イオン秩序化温度で $2k_F$ の電荷秩序を起こす(TMTTF)₂ReO₄ との絶縁化メカニズムの比較を行うために、(TMTSF)₂ReO₄ の低温 X 線単結晶構造解析を行った。

(TMTSF)₂X の多くは双晶で、精密構造解析を行うためには、微小結晶を用いかつ放射光損傷を抑える必要がある。そのため同時に多数の反射が高感度で測定できるイメージングプレート回折装置を用いた。その結果、陰イオン秩序化によって形成される弱い超格子反射を含んだ X 線構造解析に高精度で成功し、分子の形状と分子間の移動積分を計算することで、(TMTSF)₂ReO₄ の電荷秩序の様子を観測した。

(TMTSF)₂ReO₄ の電荷秩序は(TMTTF)₂ReO₄ と同じ周期の $2k_F$ 電荷秩序であるが、異なるパターンである(図 1、2)。(TMTTF)₂ReO₄ の電荷秩序は、陰イオンの配向によって TMTTF 分子の位置が変化させられ、2 量体の 2 量体化である“4 量体化”を起こすことにより、図 1 のようなパターンの $2k_F$ の電荷秩序が間接的に誘起されていると考えられている。しかし、(TMTSF)₂ReO₄ の $2k_F$ 電荷秩序のパターンは図 2 の様であり、(TMTTF)₂ReO₄ とは異なり 2 量体の 2 量体化という意味での 4 量体化が起きてはいない。この原因は、(TMTSF)₂ReO₄ では、バンド幅が相対的に広いため、電子相関 V の影響が小さくなり応答関数 $\chi(2k_F)$ が大きいためだと考えられる。つまり、陰イオンの $2k_F$ 配向秩序によるポテンシャルに電子系が応答し、陰イオンに近接した分子対上にキャリアが存在しやすくなって、 $2k_F$ 電荷秩序が起こると考えられる。

また、4K 以下に冷却可能な高感度極低温 X 線散漫散乱カメラを開発し、 $4k_F$ 電荷秩序とスピンパイエルス転移の共存が示唆される(TMTTF)₂AsF₆[1]で、9K 以下でスピンパイエルス転移による衛星反射を観測した。

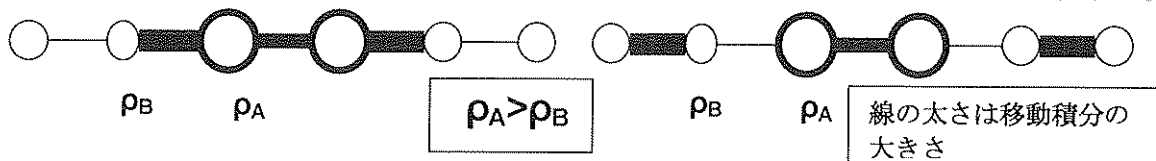


図 1 : (TMTTF)₂ReO₄ の電荷秩序パターン

図 2 : (TMTSF)₂ReO₄ の電荷秩序パターン

[1] F. Zamborsky, *et al.*, Phys. Rev. B66, (2002) 081103