

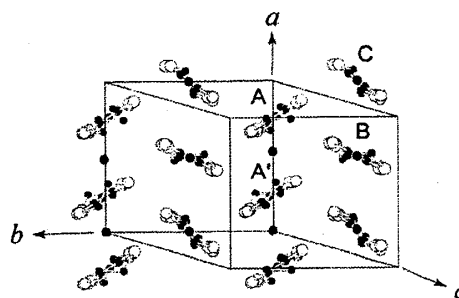
赤外・ラマン分光法による α -(BEDT-TTF)₂I₃ の電荷秩序相転移の研究

分子科学研究所・薬師久弥

α -(BEDT-TTF)₂I₃ の 135 K 以下における電荷秩序相は静水圧や一軸圧によって崩壊し、高圧力下においてはゼロギャップ状態が出現するといわれている。¹⁾ また、対称性が低いために、半金属状態でも電荷の不均化が観測されている。今回、単位格子中の 4 つの分子がどのような電分布をとるのかをラマン分光法を用いて調べた。BEDT-TTF の全対称伸縮振動 ν_2 モードの振動数が分子のもつ電荷に直線的に変化することを利用するが、 $\nu_2(p)=1447+120(1-p)$ を用いて電荷分布の見積もりを行った。²⁾

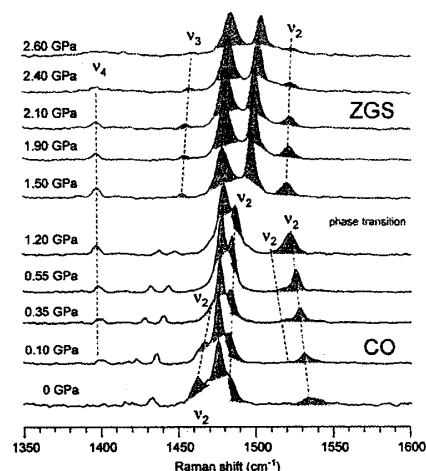
常圧高温相で観測される ν_2 モードは 2 本であるが、低温相ではそれらが 3 本に大きく分裂する。上式から高温相では 0.4₂ と 0.6₈ の二つに分かれ、低温相では 0.2₆、0.6₉、0.8₈ の 3 つに分かれていることを意味するが、場所を特定することはできない。対称性と電荷の和が 2 から大きくずれない条件を課すと下の表のような可能性に絞られる。

常圧	A	A'	B	C	sum
$T > T_{CO}$	0.4 ₂	0.4 ₂	0.4 ₂	0.6 ₈	1.9 ₄
	0.4 ₂	0.4 ₂	0.6 ₈	0.4 ₂	1.9 ₄
$T < T_{CO}$	0.8 ₈	0.2 ₆	0.6 ₉	0.2 ₆	2.0 ₉
	0.6 ₉	0.2 ₆	0.8 ₈	0.2 ₆	2.0 ₉



高圧 20 K においても同様な測定を行い、圧力によるシフトを $d\nu_2/dP=5.4$ (cm⁻¹/GPa) として補正を加えた後に電荷を見積もった結果を下の表に記す。

20 K	A	A'	B	C	sum
0.1 GPa	0.8 ₄	0.3 ₀	0.7 ₁	0.3 ₀	2.1 ₅
0.35 GPa	0.8 ₁	0.3 ₄	0.7 ₁	0.4 ₄	2.3 ₀
1.5 GPa	0.4 ₆	0.4 ₆	0.6 ₄	0.6 ₄	2.1 ₀
2.1 GPa	0.4 ₆	0.4 ₆	0.6 ₄	0.6 ₄	2.1 ₀



この表に示すように電荷秩序相では圧力と共に振幅が減少するが、ゼロギャップ状態では常圧高温相に類似して振幅が小さく、それらは圧力に依存しない。

¹ N. Tajima, S. Sugawara, M. Tamura, R. Kato, Y. Nishi, and K. Kajita, *EPL* **80**, 47002 (2007).

² T. Yamamoto, M. Uruichi, K. Yamamoto, K. Yakushi, A. Kawamoto, and H. Taniguchi, *J. Phys. Chem. B* **109**, 15226 (2005).