

1T-TaS₂ の X線回折

北海道大学理学部物理学科

丹田 聡 伊土政幸 三本木 孝

1T-TaS₂は その準2次元フェルミ面の存在により、種々のCDW相転移を引き起こす。温度を下げるに従って、約350Kで Incommensurate相より Nearly Commensurate (NC)相へさらに約200Kで Commensurate (C)相へ転移することが知られている。

最近 C相より温度を上げていくと、約280Kで 抵抗率、ゼーベック係数、C軸方向の弾性係数 (Fig.1), イオンチャネリング等の実験において、ある転移に伴う異常が報告されている。又 C相における stacking order に関して、Scrabyらの X線回折による実験では $a+c$ stacking と報告している。又 Fung らは かなり disorder であると報告している。しかし

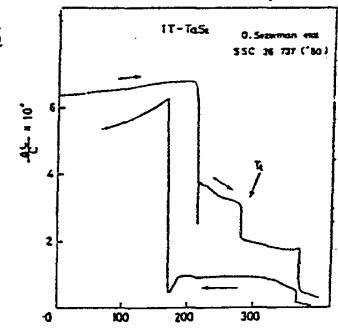


Fig. 1

未だ具体的な stacking のしかたは明らかになっていない。我々は 280K の異常の原因及び C相の stacking を調べる為、X線回折の方法を用い、CDWに伴う衛星反射並びに超格子反射の位置を測定した結果を報告する。試料は 東大工学部(現電総研) 谷俊朗氏のものを使用し、比較の為に 東大物性研、稲田ルミ子さんのものも使用した。

< C相の stacking order >

調べた超格子反射は Fig.2 の L₁ (NC相では 1次 satellite に対応する), L₂ (2次 satellite に対応する) の場所である。測定温度は 150.1K。Fig.3 は L₁ line 上に C* 方向に scan した図である。中の広い 2つの peak が出現する。半値巾は 各々 ~0.1C* で peak の C* 成分は (0.310 ± 0.003)C*, (0.825 ± 0.003)C* である。後者の Intensity は前者のそれより 4倍程度大きい。

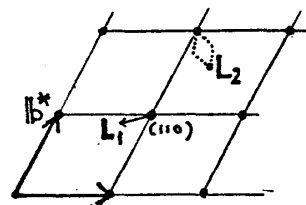


Fig. 2

この半値巾より correlation length ξ_{\perp} を推定すると、 $\xi_{\perp} \approx 20\text{\AA}$ (格子定数 $C = 5.93\text{\AA}$ より 約 3C)。Fig.4 は L₂ line 上に C* 方向に scan した図で、L₁ 上よりもさらに中の広い peak が (-0.020 ± 0.003)C* に出現する。L₁, L₂ line 上すべての所に Background より高い強度がある。

これらの中の広さは、装置上の分解能 (Bragg 反射 (110) の半値巾は ~0.001C*) によるものでなく、C相特有のものである。低温 (4.5K) での抵抗率の高い ($\rho_{4.5K} = 8.8\ \Omega \cdot \text{cm}$) 試料でも低い ($\rho_{4.5K} = 5.8 \times 10^{-2}\ \Omega \cdot \text{cm}$)

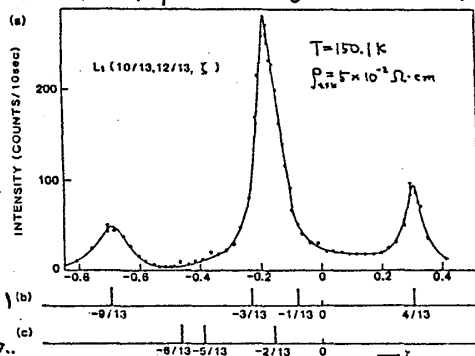


Fig. 3

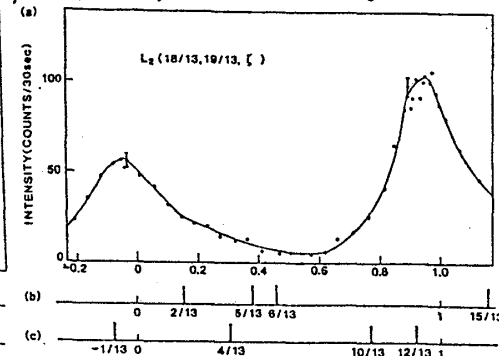


Fig. 4

試料でもほとんど同じ結果が得られた。以上の結果より、C相の stacking について考察する。

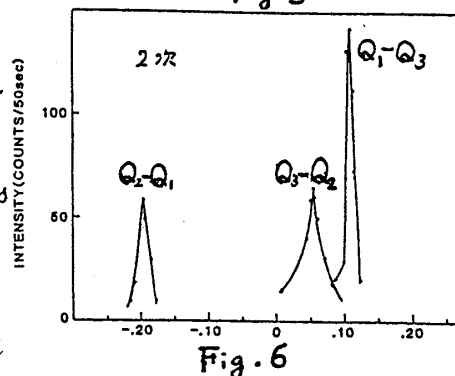
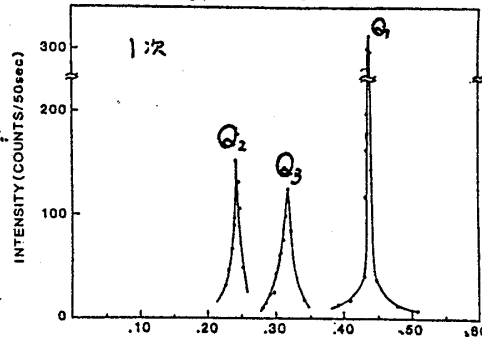
もし Scrubyらのいう $\vec{a}+\vec{c}$ stacking ならば、 L_1 上には sharpな spotが $-\frac{3}{13}, -\frac{1}{13}, \frac{4}{13}$ に現れるはずである。又 $1T-TaSe_2$ のように $2\vec{a}+\vec{c}$ stacking ならば $-\frac{6}{13}, -\frac{5}{13}, -\frac{2}{13}$ に出現するはずである。さらに \vec{c} stacking ならば C^* 成分は0になる。Commensurability条件を満たす stacking は $2\vec{a}+\vec{c}, \vec{a}+\vec{c}, \vec{c}$ しかない。これらの order 状態ではない。さらに Monctonらの $1T-Ta_{1-x}Se_2$ の中性子回折実験の結果のように、 $2\vec{a}+\vec{c}, \vec{a}+\vec{c}$ の \vec{a} 方向が 120° ずつ離れた3方向にランダムに積み重なるとすれば、 L_1 上に中の広い peak が $\frac{1}{3}C^*$ に出現するはずである。

$1T-TaSe_2$ の C相の stacking は、かなりの disorder を伴う $2\vec{a}+\vec{c}, \vec{a}+\vec{c}, \vec{c}$ の複合化したものと考えられる。

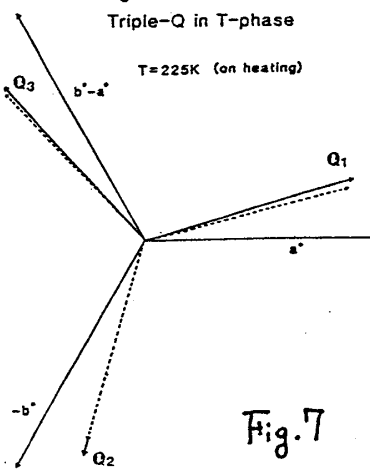
< new T相 (220k~280k); on heating >

C相を3時間以上保った後、温度を上げていくと、約220kで超格子反射は消え、新たに sharpな satellite が L_1, L_2 付近各々に3点ずつ出現する。その satellites は NC相のものとは異なる。さらに温度を上げていくと約280kでこの3点の satellites は消え NC相の satellite が出現する。この温度上昇時 (220k~280k) の間の相を T相と名付ける。280kでの種々の物理量の異常はこの T相から NC相への転移に対応する。T相の出現は、試料によらず、heating rate にも関係なく、single-phase である。

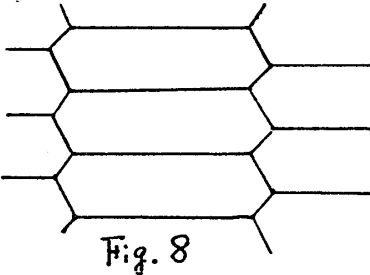
Fig.5 Fig.6 は 温度225kでの L_1, L_2 付近の T相の satellites の C^* -scan である。 L_1 付近 (1次の3つの satellites) の C^* 成分は $Q_1=0.439C^*, Q_2=0.242C^*, Q_3=0.319C^*$ で $Q_1+Q_2+Q_3=1$ になる。この3つの satellites が 所謂トリアングルを形成していること



とかわかる。 L_2 付近 (2次) の satellite はこのトリアングルをの初として考えられ、 C^* 成分も説明できる。1つの場所 (例之は L_1 付近) に3つの satellites が観測される理由は、 $2H-TaSe_2$ の stripe 相のように、トリアングルが trigonalな symmetry からずれた3つの 120° メインが存在するからである。トリアングルの面内成分はこの L_1, L_2 の3つの satellites と Bragg 反射 (110) の位置より決めた。(Fig.7) 点線は C相のトリアングルを表し T相のトリアングルが少しずれているのかわかる。このずれ $\delta\vec{Q}_i$ が $\delta\vec{Q}_i \parallel \delta\vec{Q}_j (i=1,2,3; i \neq j)$ ならば stripe 相であるが T相では少し平行条件からはずれている。T相のトリアングルを便して実空間に焼き直し discommensuration 構造を考えると Fig.8 のような Honeycomb でも stripe でもない開いたドメイン構造であることがわかった。



T相のトリアングルの波数ベクトル T=225K	
\vec{Q}_1	$= 0.230a^* + 0.090b^* + 0.439c^*$
\vec{Q}_2	$= 0.084a^* - 0.332b^* + 0.242c^*$
\vec{Q}_3	$= -0.314a^* + 0.242b^* + 0.319c^*$



[Reference] J. phys. Soc. Jap. '84 53 No2