

イオンチャネリングによる1T-TaS₂及び2H-TaSe₂の構造相転移の研究

北海道大学工学部原子工学科, 北海道大学工学部共通物理^{*}
阿部 寛, 茅賀 哲也, 岡本 幸雄^{*}

イオンチャネリング効果は, チャネル軸を構成する原子列の格子振動の平均振中及び格子位置の微小変位に敏感であり, この特徴は高速イオンビームを固体結晶の構造相転移の研究に利用出来る可能性を示している。ここでは, 1T-TaS₂及び2H-TaSe₂の構造相転移に対して高速イオンをプローブとして得られた実験結果について述べる。

実験は, 通常の高速度イオン後方散乱測定体系を用いて行った。イオンとしては, バンデグラフ型静電加速器による1 MeVのHe⁺イオンを使用した。具体的な測定量は, He⁺イオンビームを試料のC軸方向のチャネルに一致させたときに後方散乱してくるイオンの収量 χ_{min} 及び後方散乱収量のC軸に対する角度依存性である。

§. 実験結果及び考察

1. 1T-TaS₂

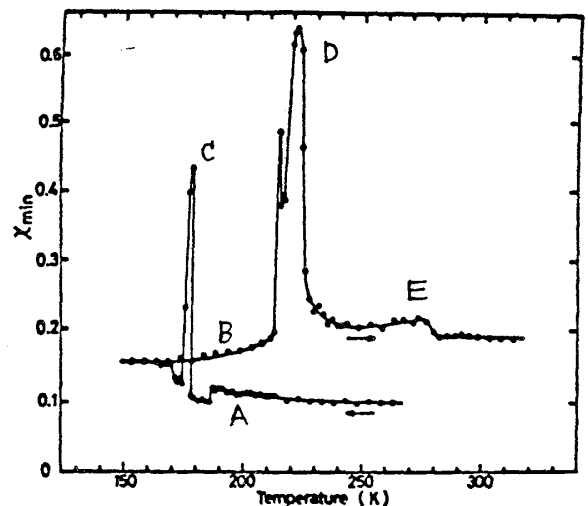
オ1図に典型的な1T-TaS₂の χ_{min} の温度依存性を示す。但し χ_{min} はチャネル方向からずれたrandom方向の後方散乱収量を規格化されている。測定された χ_{min} は次の様な特徴を示している; (1). 図のA, B領域では温度が転移点に近づくに従って, χ_{min} はゆるやかな上昇を示す。単原子から構成されている固体結晶に対する χ_{min} は,

$$\chi_{min} = C \sum_{\mathbf{q}} \langle |U_{\mathbf{q}}|^2 \rangle + \chi_D \quad (1)$$

で表わされる。ここでCは定数, $(\langle |U_{\mathbf{q}}|^2 \rangle)^{1/2}$ はチャネル軸に垂直な面内における格子振動のroot mean square振中である。 χ_D は結晶内の格子欠陥の寄与を表わす項で, ここではその温度依存性を無視する。Taによる後方散乱断面積がSのそれに比べて十分に大きいために, (1)式は今の場合良い近似となっていると考えられる。今, 或る特定のphonon modeが $T=T_0$ でソフト化し, $T=T^*$ で凍結するとする。ソフト化しない他のphonon modesの温度依存性を無視すると, $C \sum_{\mathbf{q}} \langle |U_{\mathbf{q}}|^2 \rangle = \chi_{min}^* + A^*$ とおくことが出来る。ここで χ_{min}^* はソフト化するphonon modeの χ_{min} への寄与を表わす。平均場近似では, χ_{min}^* は,¹⁾

$$\frac{\chi_{min}^*}{T} = C \cdot \left\{ \frac{1}{1-x} - \frac{1}{3} - \left(\frac{x}{(1-x)^3} \right)^{1/2} \tan^{-1} \left(\frac{1-x}{x} \right)^{1/2} \right\}$$

…(2), で表わされる。ここで,



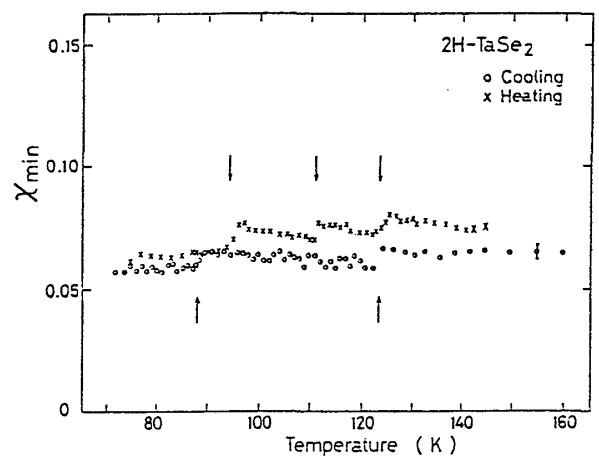
オ1図. 1T-TaS₂における χ_{min} の温度依存性

$\chi = (T - T_c^*) / (T_0 - T_c^*)$ である。オ1図のA及びB領域の χ_{min} は(2)式によってよく記述され、この領域で或る mode の phonon のソフト化が進行していること反映しているものと考えられる。(2). χ_{min} は nearly commensurate相(NC)-commensurate相(C)の相転移点で ~ 0.5 程度の比較的すといピークをつくる。(オ1図, C, D) 1T-TaS₂ における NC-C転移は、非常に複雑で、この一次相転移の際にC軸の格子定数が $\Delta C/C \sim 1 \times 10^3$ 程度の膨脹を伴っている²⁾。C, Dのピークは、転移に伴う大きな歪によりC軸に対して乱雑に傾いた domain 構造又はモザイク構造が生成されるために生ずると考えられる。C, Dの disordered state は、metastable な性質をもち、又ピークの中も試料に依存して2~15Kに渡って分布する傾向を示す。Jericho等による³⁾ 1T-TaS₂ における超音波吸収の実験結果は、我々の χ_{min} の実験結果との間に多くの類似性を示していることは注目に値すると思われる。(3). 280K附近にみられる χ_{min} のピークは、この温度領域に新たな構造相転移の存在を示しており、これは最近、丹田等のX線解析⁴⁾ 及び中西、新波の理論解析⁵⁾ によってその stripe DC 構造が明らかにされつつある。

以上の様に、 χ_{min} の測定は、実空間における格子振動の平均的な情報をとらへるものであるが、逐次相転移の存在、構造相転移と格子欠陥の導入を明らかにする上で有効な手段となりうる事が明らかにされた。

2. 2H-TaSe₂

2H-TaSe₂ について1.と同様の実験を行った結果をオ2図に示す。格子の歪みエネルギーが1T-TaS₂ と比べて小さいために χ_{min} の異常なピークはみられないが、測定された χ_{min} は次の様な特徴を示している；(1). coolingの過程では、123Kと88Kに χ_{min} の変化が存在し、一方 heatingの過程では、95K, 112K, 123Kの3点で χ_{min} の異常がみられる。これはC相から温度上昇するとき、112Kで incommensurate相(IN)に移る前に、もう一つの構造相転移を伴う事を示しており、これは stripe相(S)として詳細に研究された相である。(2). 2H-TaSe₂ の χ_{min} のもう一つの特徴は、Normal相より(C \rightarrow IN \rightarrow C)又は、(C \rightarrow S \rightarrow IN \rightarrow N)の転移において、 χ_{min} の値がC相に近づくに従って階段的に小さくなっていくことである。これは格子歪みみだれが normal相で一番大きく、C相に近づくに従ってそれが減少する事を示している。これは、内藤等⁶⁾ が2H-TaSe₂ の輸送現象の解析で指摘した McMillan の phonon entropy model⁷⁾ に密接に関連した現象と考えられることが出来る。



オ2図. 2H-TaSe₂ における χ_{min} の温度依存性

1) Haga et al., Phys. Rev. Letters. 51, 678 (1983).

2) O. Sezerman et al., Solid State Commu. 36, 737 (1980).

3) M.H. Jericho et al., Phys. Rev. B 22, 4907 (1980).

4) S. Tanda et al., submitted to J. Phys. Soc. Japan.

5) K. Nakanishi & H. Shiba, submitted to J. Phys. Soc. Japan.

6) M. Naito & S. Tanaka, Physica 105B, 136 (1981).

7) W.L. McMillan, Phys. Rev. B 16, 643 (1977).