

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 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 350 K で Incommensurate 相より Nearly Commensurate (NC-) 相へさらに約 200 K 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 280 K 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 $\sqrt{2} \times \sqrt{2}$ 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

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 280 K 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、東大物性研、稲田ルミ子さんのものも使用した。

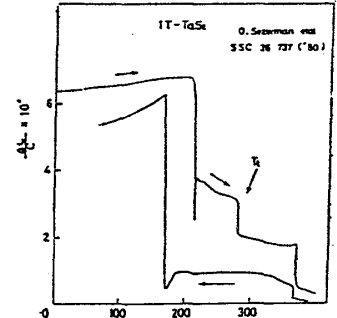


Fig. 1

< 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 150.1 K。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 ~0.1 C* 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。

この半値巾より correlation length $\xi_{\perp}$ を推定すると、 $\xi_{\perp} \approx 20 \text{ \AA}$ (格子

定数 C = 5.93 \AA より 約 3 C)。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 ~0.001 C*)

によるものでなく、C 相特

有のものである。低温 (

4.5 K) での抵抗率の高い

($\rho_{4.5K} = 8.8 \Omega \cdot \text{cm}$) 試料で

も低い ($\rho_{4.5K} = 5.8 \times 10^{-2} \Omega \cdot \text{cm}$)

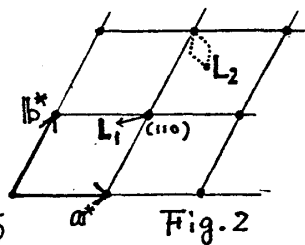


Fig. 2

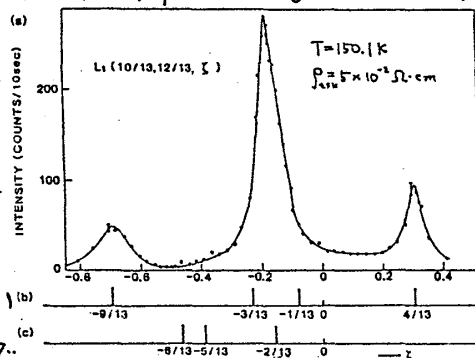


Fig. 3

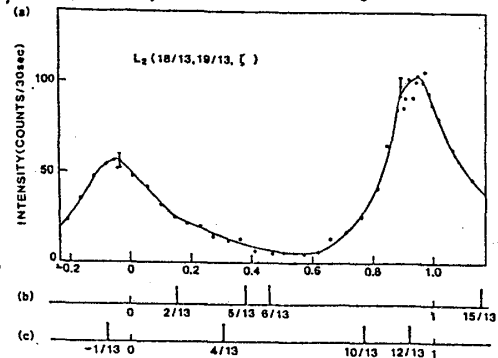


Fig. 4

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。

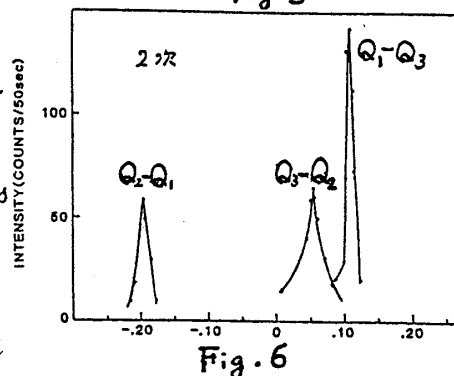
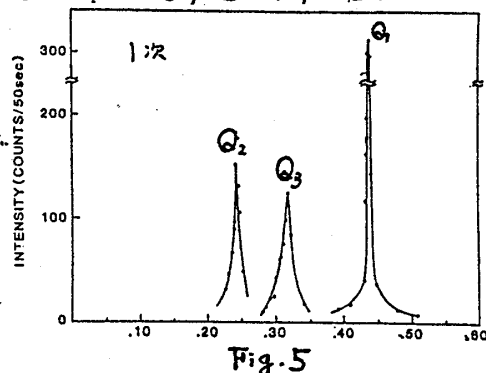
もし Scruby らのいう $\vec{a}+\vec{c}$ stacking ならば、 L_1 上には sharp な spot が $-\frac{3}{13}, -\frac{1}{13}, \frac{4}{13}$ に現れるはずである。又 $1T-TaSe_2$ のように $2\vec{a}+\vec{c}$ stacking ならば $-\frac{6}{13}, -\frac{5}{13}, -\frac{2}{13}$ に出現するはずである。さらに $\vec{c}$ stacking ならば C^* 成分は 0 になる。Commensurability 条件を満たす stacking 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 上に巾の広い peak が $\frac{1}{3}C^*$ に出現するはずである。

$1T-TaS_2$ 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 220 K 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 280 K 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。280 K 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 225 K での L_1, L_2 付近の T 相の satellite の C^* -scan である。 L_1 付近 (1 次の 3 つの satellites) の C^* 成分は $Q_1 = 0.439 C^*$, $Q_2 = 0.242 C^*$, $Q_3 = 0.319 C^*$ で $Q_1 + Q_2 + Q_3 = 1$ になる。この 3 つの satellites が所謂トリプル Q を形成していることがわかる。 L_2 付近 (2 次) の satellite はこのトリプル Q の和として考えられ、 C^* 成分も説明できる。1 つの場所 (例えば 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、トリプル Q 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。トリプル Q 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 相のトリプル Q を表し T 相のトリプル Q が少しずれているのかわかる。このずれ $\delta\vec{Q}_i$ が $\delta\vec{Q}_i \parallel \delta\vec{Q}_j$ ($i, j = 1, 2, 3; i \neq j$) 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 相のトリプル Q を使って実空間に焼き直し discommensuration 構造を考えると Fig. 8



Triple-Q in T-phase

T = 225K (on heating)

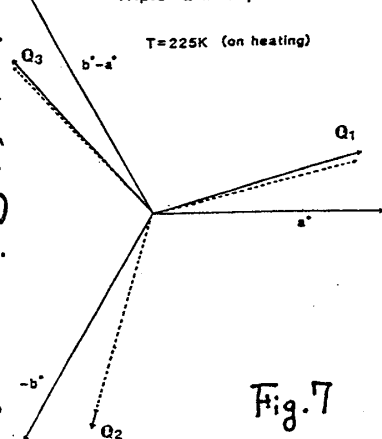


Fig. 7

のような Honeycomb でも stripe でもない形をしたドメイン構造であることがわかった。

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

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

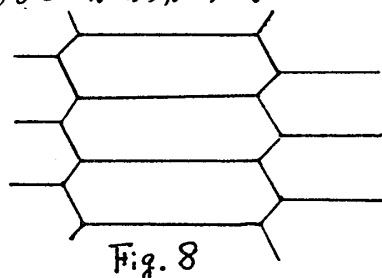


Fig. 8