

Mo₂S₃ の相転移と電気的性質

東京大学工学部物理工学科

北沢宏一・野上孝・二木俊郎

§1. はじめに Mo₂S₃は室温で単斜晶で、b軸方向にMo原子がジグザグな結合をもち、その結合間隔は金属Moと同程度である。しかし他方向の間隔は3.2 Åとb方向の2.85 Åよりかなり大きい¹⁾。このためその電気的性質は1次元적ではないかと考えられていた²⁾。単結晶も化学輸送法²⁻³⁾、高温固相反応法¹⁾とも針状晶が得られ、b軸方向の電気抵抗などの測定が報告され¹⁻³⁾、315 K以下で2~3の相転移があるとされている。

§2. 結果および考察 AgMo₆S₈組成の原料をアルミナルツボに充填し、数10気圧Ar下約1750°Cで溶融し、3.5°C/hrでルツボ下より冷却凝固した後18°C/hrで徐冷したルツボ底付近に、層状に劈開する数mm径のMo₂S₃を得た。EPMAではAgは検出されなかつた。試料は<101>方向に長さ2mm、b軸方向の幅1.25mm

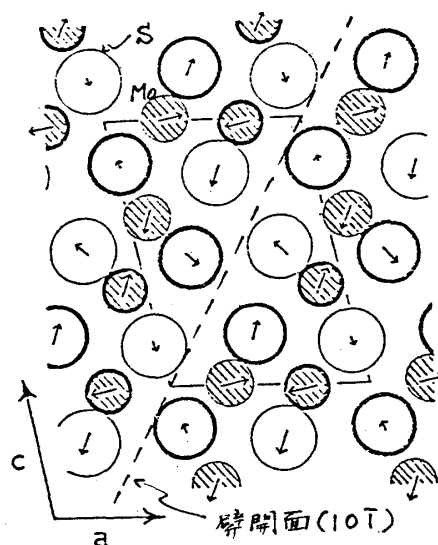


図1

厚み0.1mmで6端子法の測定を行なつた。図1に単結晶X線回折より得た劈開面を示す。図2のように抵抗率の温度依存は全体的には金属的であるが、急冷試料では温度上昇時に120 K付近でρが急増し、150 K付近の極大を経た後、190 Kで不連続な減少を示す。190 K以下の挙動は大きなヒステリシスを示す。図3は77 Kより314 Kでρとホール係数の同時測定を行なつた結果である。キャリアはp型で、190 K以下では $4 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ のほぼ一定値を示すが、190 Kで不連続的に増大する。この比1.5~1.6倍は同温度での抵抗率減少比に対応する。キャリア密度は190 K以上で連続的に増大するが、この間抵抗率は逆に上昇する。このような特異性はCDWのIncommensurate相で見られることがあるが起

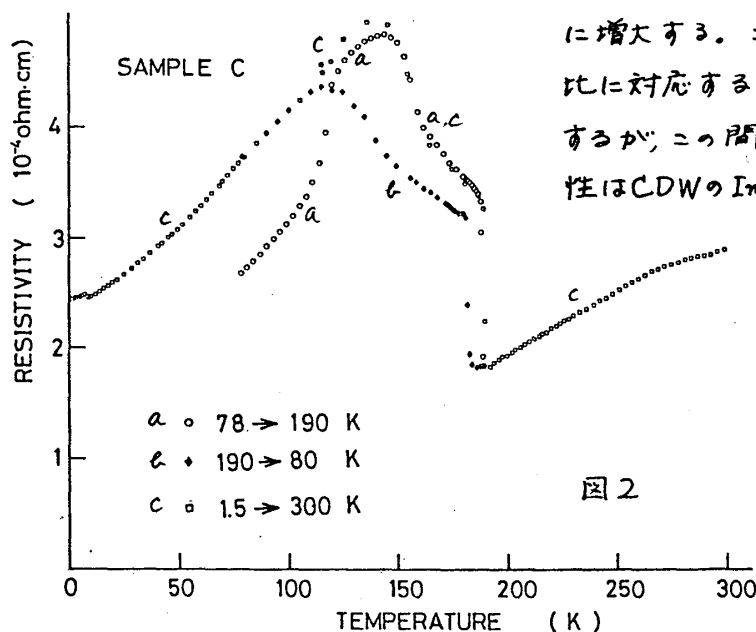
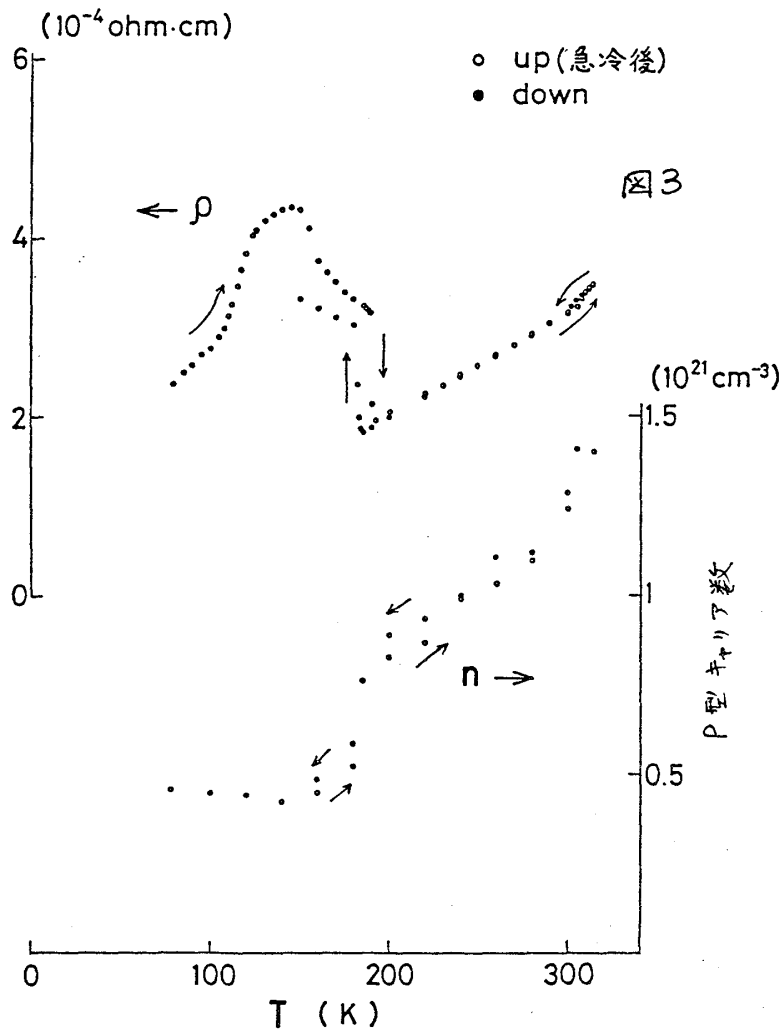


図2

源は確立していない。306~310 Kでρは小さなヒステリシスをもちわずかに増加する。同温度でb軸方向の2倍周期の超格子構造が消失するこゝがX線解析より報告されているが¹⁾、これをCDWの消失とするとこの抵抗率の挙動と単純にはマッチしない。またここでキャリア数の顕著な変化には観測されなかつた。図4は11.2 kOeの磁



場中で求めた帯磁率の温度変化を示す。急冷試料は昇温時に100~110 K付近で χ がフェルミ面の収縮に対応した変化を示し、190 K付近で逆に拡大に対応した変化を示す。この変化は図3に見られる ρ の110 K付近の増大、および190 K付近の減少と対応している。しかしながら、余冷時には110 K付近の異常は見られない。したがって昇温時に観測される110 K付近の異常は、高温相が凍結され、それが110 K付近まで昇温されるとかなり急激に低温相へ相転移するためと考えられる。より低温での χ の増大は不純物などの局在スピンのためと思われる。

4.2 Kでは正の磁気抵抗が得られ、その磁場依存性は $H^{1.3}$ で、50 kOeでの $\Delta\rho/\rho$ は約13%であった。

X線回折の結果では¹⁾ 190 K付近の転移は単斜晶から三斜晶への小さな歪みであるが、上記の結果と合わせると、この対称性の低下がこの温度でフェルミ面を収縮させてキャリア密度を約1.6倍程度減らし、それに対応した抵抗率の増大を招来するものと理解できる。一方室温単斜晶はb軸方向の2倍同期の超格子構造を示すことが本試料の単結晶X線回折からも示されたが、その特異な ρ や χ の変化をCDWに関連づけるべきかは今後の課題である。一方我々の得た $\langle 101 \rangle$ 方向の ρ はb軸方向の $\rho^{1-2)}$ とほぼ同程度ないしむしろ小さいので、本物質系は電気的には2次元的と捉えた方が妥当であることを示唆した。

1) R. de Jonge et al., J. Solid State Chem. **2** 188 (1970)

2) M. H. Rashid et al., Solid State Commun. **43** 675 (1982)

3) A. K. Rastogi et al., Indian J. Cryog. **1** 127, 145 (1976)

