

Se 置換した MoTe₂ 単結晶の超伝導特性評価

Evaluation of superconducting properties in Se substituted MoTe₂

○小林碧惟¹, 出村郷志², 高野良樹²*Aoi Kobayashi¹, Satoshi Demura², Yoshiki Takano²

Layered transition metal dichalcogenide 1T'-MoTe₂ shows structural transition to T_d phase at 250 K and then superconductivity at 0.2 K. Recently, the superconducting transition temperature increases 15 times by partial element substitution for Mo site and Te site with the suppression of the structural phase transition. However, the detail of this mechanism is still unknown. In order to investigate the mechanism of the drastic increase of T_c, single crystals of MoTe_{2-x}Se_x were grown, and evaluated by XRD and resistivity measurements.

1. はじめに

最近、空間反転対称性が破れた物質において現れる超伝導が着目されている。層状遷移金属ダイカルコゲナイトの 1T'-MoTe₂ は、その超伝導が現れる候補物質の一つである。この物質は空間反転対称性を持つが、約 250K 以下で、c 軸方向に空間反転対称性の破れた T_d 構造に相転移し、約 0.2K において超伝導を示す。ごく最近、MoTe₂ へ 20% の Se 置換により超伝導転移温度が約 3K まで上昇することが報告された[1]。一方で、構造相転移は約 10% の置換量で消失する。置換によって空間反転対称性の破れが無くなるため、置換前後で超伝導の機構が変化している可能性がある。その検証のため本研究では、Se 置換量を細かく変化させた MoTe_{2-x}Se_x 単結晶の合成を行い、その特性評価を行った。

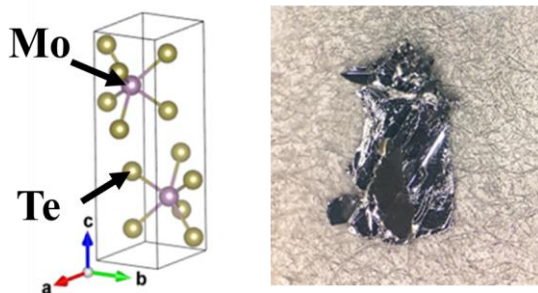


Figure1. Crystal structure of MoTe₂

2. 実験方法

MoTe_{2-x}Se_x の単結晶は、化学気相輸送 (CVD) 法で作製した[2,3]。MoTe_{2-x}Se_x の原材料 1g に、輸送剤である I₂ を 5g/cc 加え、石英管に真空封入し、Figure 2 に示した条件で焼成した。石英管を 900°C まで 13.5 時間で昇温後、1050°C まで 2 時間で昇温し、2 時間かけて高温端が 1050°C、低温端が

950°C になるよう温度差をつけ(Fig2.①)、その状態で 200 時間保持した(Fig2.②)。その後、室温へクエンチした。得られた試料は、X 線回折測定により結晶構造への影響を評価した。また、電気抵抗率測定より超伝導特性を評価した。電気抵抗率測定は、Quantum Design 社製の PPMS (Physical Properties Measurement System) 装置を用い測定を行った。測定は直流四端子法 (測定電流 1 mA) により、2 ~ 300 K の温度範囲で行った。

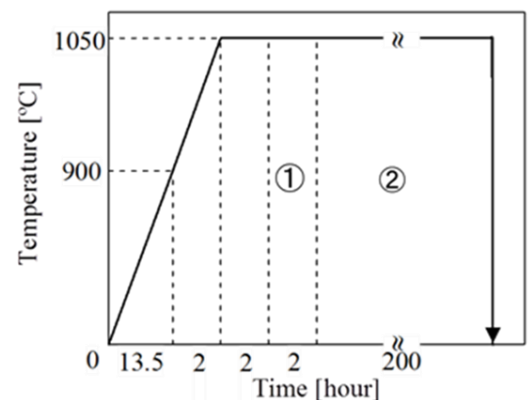


Figure2. Thermal condition of single crystals

3. 実験結果

3-1. XRD 測定

Figure 3 に MoTe_{2-x}Se_x の単結晶の XRD パターンを示す。すべての試料において、1T'型の MoTe₂ のシミュレーションパターンと似た位置に XRD ピークを観測することが出来た。Figure 4 は(004)ピークの拡大図である。x=0.20 以降は低角にシフトしていることがわかる。これは格子の拡大を示しているが、Se のイオン半径は Te よりも小さいため期待された変化とは矛盾する結果となった。その置換効果も調査するため、電気抵抗率測定を行った。

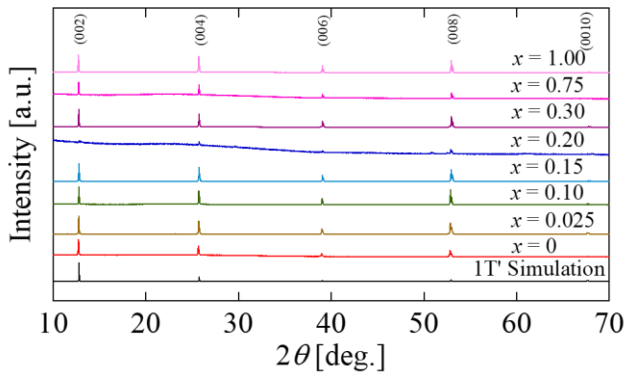


Figure3. XRD patterns of polycrystalline and single-crystalline $\text{MoTe}_{2-x}\text{Se}_x$

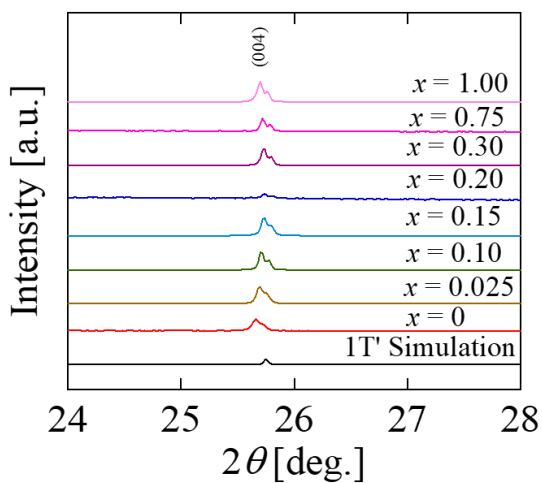


Figure4. Enlarged view around 26°

3-2.電気抵抗率測定

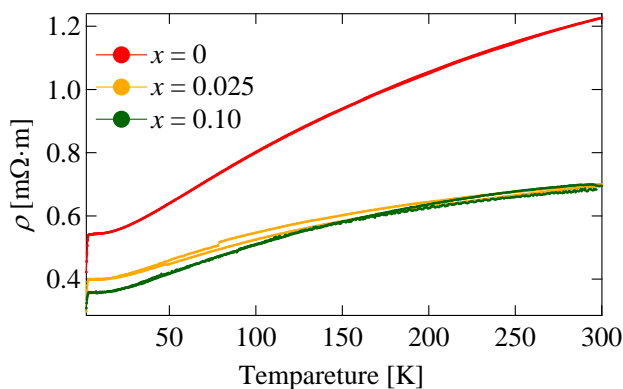


Figure5. All temperature range ($x=0\sim 0.10$)

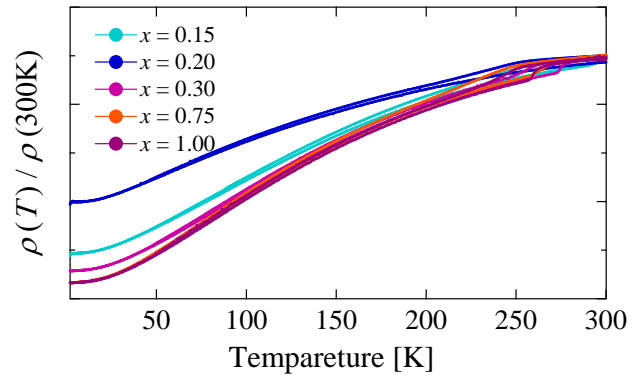


Figure6. All temperature range ($x=0.15\sim 0.30$)

電気抵抗測定から、 $x=0\sim 0.10$ の試料では、少しの異常みられるものの、明瞭な構造相転移が観測できないのに対し、超伝導を示唆する電気抵抗率の減少を観測できた。 $x=0.15$ 以上の試料では、超伝導が観測されないものの、明瞭な構造相転移が観測された。これらの結果は先行研究とは異なっている。

4.まとめ

今回、 MoTe_2 の超伝導特性が向上する機構を調査するため、 $\text{MoTe}_{2-x}\text{Se}_x$ の単結晶を CVD 法で作製し、その物性評価を行った。X 線回折測定の結果から、Se 置換に従って格子が拡大する傾向がみられた。これは Se と Te のイオン半径の違いからは説明できないことが分かった。これらの試料への電気抵抗率測定の結果から、 $x=0.10$ の試料までは構造相転移が観測されない一方で超伝導が発現し、それ以降の置換量では、構造相転移が出現し、超伝導が消失するという、先行研究と異なる結果を得ることが出来た。今後はこの Se 置換により何が起きているのかを調査するため、他の元素置換の結果と合わせて、超伝導が出現する要因を調査する予定である。

参考文献

- [1] M. Mandal et. al., Phys. Rev. Mat. 2 094201(2018).
- [2] 並木宏允ら、「日本物理学会講演概要集」 71.2 pp.1392 (2016).
- [3] 高橋英史ら、「日本物理学会講演概要集」、71.2、pp.1743(2016).