

## $\beta$ 相 $\text{MoTe}_2$ の大型単結晶合成(2)

### Synthesis of large-sized single-crystals of $\beta$ -phase $\text{MoTe}_2$ (2)

埼玉大院理工 °森 拓哉、上野 啓司

Saitama Univ. °Takuya Mori and Keiji Ueno

E-mail: kei@chem.saitama-u.ac.jp

**【序論】** 金属を M (Mo, W, etc)、カルコゲンを Ch (S, Se, Te)としたとき組成式  $\text{MCh}_2$  で表される層状化合物群のことを遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)という。その一つの  $\text{MoTe}_2$  については、半導体性の  $\alpha$  相についての研究は数多く行われているが、半金属性である  $\beta$  相の研究は比較的少ない。本研究では化学蒸気輸送法(CVT)で単結晶成長を行う際の条件を工夫し、大型の  $\beta$  相  $\text{MoTe}_2$  (いわゆる  $1\text{T}'\text{-MoTe}_2$ ) 単結晶合成を試みた結果を前回<sup>[1]</sup>に引き続き報告する。併せて、ラマンスペクトルの理論計算による解析についても紹介する。

**【実験】**  $\text{MoTe}_2$ 単結晶は、 $\text{TeX}_4$  ( $X = \text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$ )もしくは $\text{MoCl}_x$  ( $x = 3, 5$ )、及びMo, Te粉末を原料とし、化学蒸気輸送法により成長した。その際、輸送剤となるXの量、及び結晶成長時に与える温度勾配を変化させ、最も大型の結晶が得られる条件を探索した。まず、Xの質量が約10 mg~250 mgとなるように $\text{TeX}_4$  (もしくは $\text{MoCl}_x$ )を秤量し、さらに総Moと総Teの比が1:2となるようにMoとTeを秤量し、石英アンブル中に真空封入した。この石英アンブルを3ゾーン管状炉に入れ、原料側が960 °C、結晶成長側が900 °Cとなるような温度勾配を7日間与えた。最後に石英アンブルを管状炉から取り出し、すぐに急冷し、高温安定相である $\beta$ 相の単結晶を得た。得られた単結晶の評価は、ラマン分光、X線回折、X線光電子分光測定により行った。また、Quantum ESPRESSO<sup>[2]</sup>によるDFT計算も行い、 $\alpha$ 相と $\beta$ 相のラマン振動モードを調べた。

**【結果・考察】** 得られた結晶のラマンスペクトル (励起レーザー波長 532 nm) を Fig. 1 に示す。ラマンシフト  $112.4 \text{ cm}^{-1}$ ,  $128.9 \text{ cm}^{-1}$ ,  $261.3 \text{ cm}^{-1}$ ,  $165.1 \text{ cm}^{-1}$ ,  $194.5 \text{ cm}^{-1}$  にピークが観測され、既報告<sup>[3]</sup>の  $\beta$  相  $\text{MoTe}_2$  ラマンスペクトルの  $A_g$  モード、 $B_g$  モードと一致し、DFT 計算結果も概ね一致した。このラマン分光測定に加えて、X 線回折測定からも  $\beta$  相  $\text{MoTe}_2$  単結晶の成長が確認された。Fig. 2 に、Br 輸送剤量を 250 mg および 10 mg として成長した  $\beta$  相  $\text{MoTe}_2$  単結晶の写真を示す。Br 輸送剤の添加量を少なくする方が、より大型の単結晶を合成できることが分かった。Fig. 3 に I 輸送剤と Cl 輸送剤を 50 mg として成長した  $\beta$  相  $\text{MoTe}_2$  単結晶の写真を示す。I 輸送剤と Cl 輸送剤を用いた時には、それぞれ輸送剤量が 50 mg の時に、平坦表面が最も広い結晶が合成された。これまでのところ、Cl 輸送剤が 50 mg の時に、最も大きな平板単結晶が得られている。

**【参考文献】** [1] 森、上野：2019 年秋応物、21a-PB1-74.

[2] P. Giannozzi et al., *J. Phys.: Condens. Matter*, **2009**, 21, 395502. [3] Sera Kim et al.: *2D Mater.*, **2017**, 4, 024004.

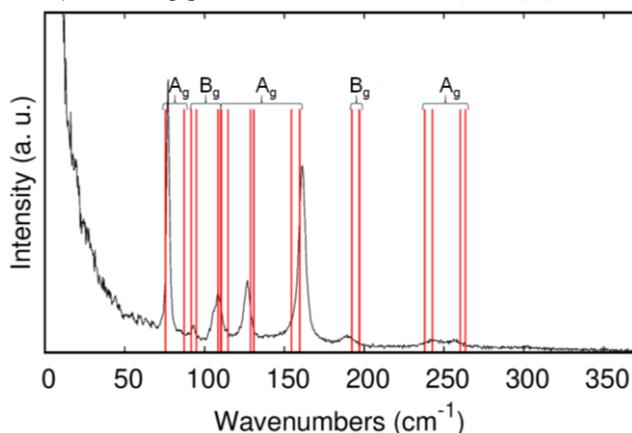


Fig. 1 Raman spectrum of the  $\beta$ - $\text{MoTe}_2$  crystal grown by CVT and calculated Raman active modes of  $\beta$ - $\text{MoTe}_2$  (red lines).

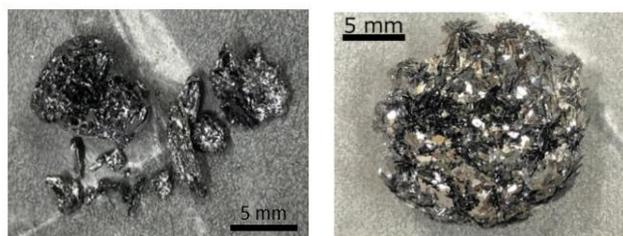


Fig. 2 Optical images of the  $\beta$ - $\text{MoTe}_2$  crystal grown by CVT using 250 mg (left) and 10 mg (right) Br as a transport agent.



Fig. 3 Optical images of the  $\beta$ - $\text{MoTe}_2$  crystal grown by CVT using 50 mg Cl (left) and 50 mg I (right) as a transport agent.