

溶液合成した前駆体の MoS_2 への変化過程

Observation of conversion of solution prepared precursor to MoS_2

北大・工¹, 北大・総合化学院², ○島田敏宏¹, 橋本遊², 柳瀬隆¹, 長浜太郎¹, 米澤 徹¹

Hokkaido Univ., ○T. Shimada, Y. Hashimoto, T. Yanase, T. Nagahama, T. Yonezawa

E-mail: shimadat@eng.hokudai.ac.jp

MoS_2 は、層状半導体としてフレキシブルデバイスへの応用可能性を期待されており、単結晶の他 MoO_3 を原料とした CVD や前駆体の溶液塗布による製膜が行われている。しかし、結晶性の良い MoS_2 を得るには 600°C 以上の高温が必要である。我々は、溶液から合成した前駆体を透過電子顕微鏡 (TEM) 観察しながら真空中加熱することにより、なぜ高温が必要であるかを調べた[1]。前駆体は $(\text{NH}_4)_6\text{Mo}_7\text{O}_{24} \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ 水溶液に $(\text{NH}_4)_2\text{S}$ 水溶液を加え攪拌することにより $(\text{NH}_4)_2\text{MoS}_4$ を得、その後 NaBH_4 を加えることにより MoS_x とした。TEM観察を容易にするため反応をポリビニルピロリドン水溶液中で行い、前駆体を微粒子として合成した。

TEM観察の結果、前駆体は大きさ $200\sim 500\text{nm}$ 程度のアモルファス粒子であった。TEM観察のための電子線照射により、 $5\sim 20\text{nm}$ 程度の結晶粒子が現れた。観察される格子間隔は、図1に示すように 0.22nm , 0.26nm , 0.32nm , 0.45nm , 0.50nm であり、既知の Mo-S 化合物では説明できない。真空中で加熱を行っても 400°C 程度までは変化が見られなかった。さらに加熱していくと、 500°C で図2aに示すように $\text{MoS}_2(0001)$ に対応する間隔 0.62nm の層状構造が弱く現れるが、 550°C (図2b) でコントラストが上がるとともに半分の 0.31nm の構造になる。さらに 600°C にすると明確な 0.62nm の構造に変化する。 MoS_2 の生成に 600°C を要する原因は、より低温で図1や図2bに示すような別の物質ができていることによるものと考えられる。

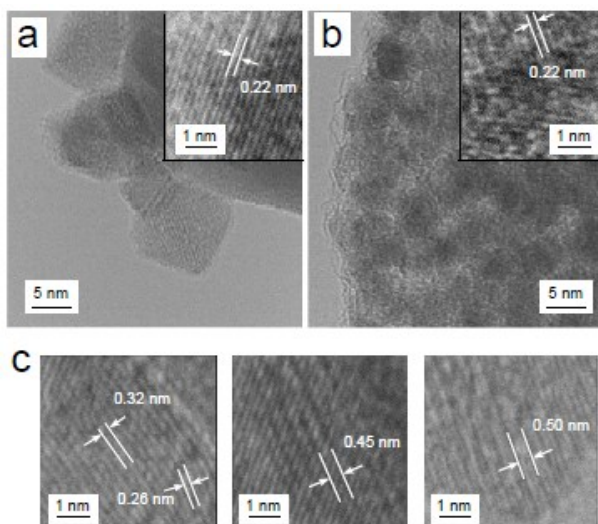


図 1

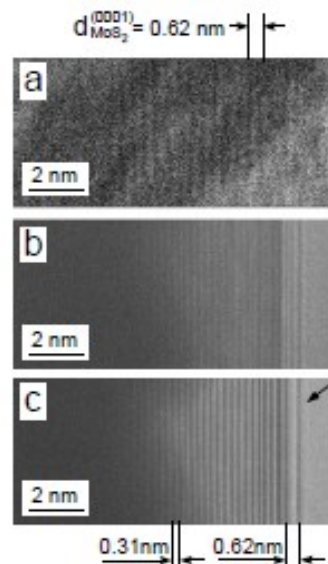


図 2

本発表の一部は文献[1]の共著者の方々との共同研究であり、関係各位に感謝申し上げます。

[1] A. Hanzawa et al.: J. NanoSci. Nanotech. 9, 6736 (2009).