

2 インチ GaAs ウエハー上に層数制御したMBE成長 MoSe₂

MBE grown MoSe₂ films on 2 inch GaAs (111)B wafers

NTT 物性基礎研, [○]小野満恒二, Aleksandra Krajewska, Ryan Neufeld, 前田文彦, 熊倉一英, 山本秀樹

NTT BRL, [○]K. Onomitsu, A. Krajewska, R. Neufeld, F. Maeda, K. Kumakura and H. Yamamoto

E-mail: onomitsu.koji@lab.ntt.co.jp

遷移金属ダイカルコゲナイド(TX₂)は、グラファイトに代表される層状物質の一つで、弱い van der Waals 力で層間が結合している。T と X の組み合わせによって半導体、金属、超伝導物質と様々な性質を示す物質が存在する[1]中で、我々は半導体として振る舞う MoSe₂ に注目して研究を進めている[2]。層状物質は、格子不整合が大きな物質同士でもヘテロエピタキシャル成長できる (van der Waals epitaxy[3]) が、マクロな平坦性には基板の表面モフォロジーが影響する。そこで、2 インチ GaAs(111)B ウエハー上に原子層ステップが確認できる平坦な GaAs バッファー層を成長し、その上にウエハースケールで層数制御した MoSe₂ を実現したので報告する。

まず、GaAs(111)B 基板上に Ga+As を 1 秒供給した後、As のみを 1 秒供給するというサイクルで、GaAs を MEE 成長し、原子層レベルで平坦な面を得た。この時、 $\sqrt{19} \times \sqrt{19}$ 表面構造を RHEED により確認した。その後、GaAs 表面を Se 終端によって不活性化させ、MoSe₂ 薄膜の成長を行った。ここで、電子衝撃発光分光法(EIES)を用いた蒸発レート制御システムにより[4]、電子銃によって加熱した Mo の蒸発レートを低レートで高精度に制御した。MoSe₂ 成長を開始すると、RHEED パターンは、成長前の Se 終端 GaAs の 1×1 ストリークに、MoSe₂ の面内の格子定数を反映したより間隔の広い 1×1 ストリークパターンが重なったものとなった。この時、MoSe₂ の [11-20] 方向と GaAs の [1-10] 方向、MoSe₂ の [10-10] 方向と GaAs の [1-21] 方向がそれぞれ平行となり、面内に回転することなくエピタキシャル成長していることも確認された。最終的に MoSe₂ が表面を完全に覆うと GaAs のパターンは消滅する。成長開始からこの時点までの時間より、成長レートは 1ML/20min と見積もることができる。得られた薄膜の AFM 像から、MoSe₂ 薄膜のモフォロジーは GaAs バッファー層表面の原子層ステップを反映していることがわかった (RMS: 0.261nm)。2 層 MoSe₂ 試料に対して、MoSe₂[11-20]//GaAs[1-10] 方向から観察した断面 STEM から、図 1 のように 3 つの原子が 1 組となる層が 2 層存在しており、GaAs のステップを乗り越える様子も確認できた。次に、1 層から 4 層の MoSe₂ と、参照試料として Se 終端 GaAs(111)B のラマン測定の結果を図 2 に示す。剥離法により作製された試料で報告されている 285cm⁻¹ 付近の E_{2g} モードのピークは、GaAs(111)B の LO および TO フォノンピークに隠れて観測することができない。図 2(b) は A_{1g} モードピーク付近の拡大図である。MoSe₂ の層数が増えると、A_{1g} モードのピークは、層間相互作用により高波数側にブルーシフトし、さらに対称性の複雑化からスプリットすることが知られている[5]。図 2(b) のように、MBE 成長した試料においても、層数が増えるにしたがって、A_{1g} モードピークが 240.5cm⁻¹ から 241.7cm⁻¹ にブルーシフトすることが確認できた。しかし、ピークの明確なスプリットは確認できなかった。この理由は、今回用いた試料は次の層の初期形成核が存在するため、部分的に ± 1 層程度層数が揺らいでいる MoSe₂ からのスペクトルが重畳しているためと考えられる。

[1] J. Wilson, A. Yoffe, Adv. Phys. 18, 193 (1969). [2] 小野満他, 第 75 回応用物理学会 18p-B3-9 [3] A. Koma, J. Cryst. Growth 201/202, 236 (1999). [4] H. Yamamoto et al., J. Cryst. Growth 378, 184 (2013). [5] P. Tonndorf et al. Opt. Express 21, 4908 (2013).

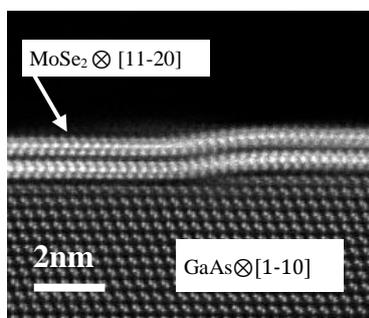


Figure1 Cross sectional STEM image of 2L MoSe₂ around GaAs step.

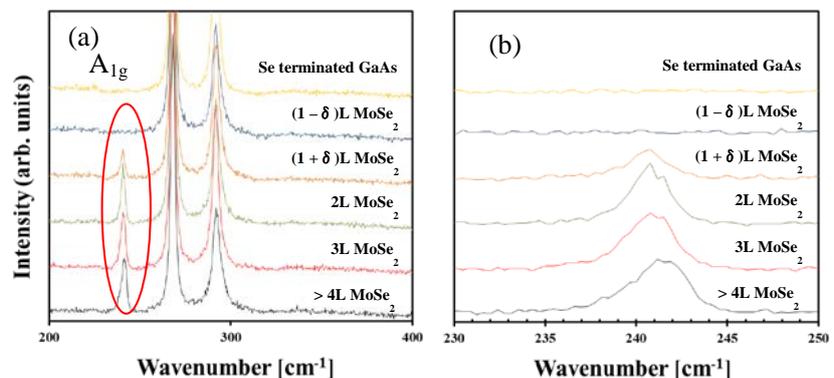


Figure2 (a) Layer number dependence of Raman spectra in MoSe₂. (b) Magnified view around A_{1g}.