

ミスト CVD による二硫化モリブデン(MoS₂)層状薄膜作製への挑戦

Challenge to the fabrication of molybdenum disulfide (MoS₂) layer film by mist CVD

佐藤 翔太¹, 川原村 敏幸^{1,2}

¹高知工大院知能機械, ²総研

Shota Sato¹, Toshiyuki Kawaharamura^{1,2}

Kochi Univ. of Technol., ¹Intelligent Mech. Sys. Eng., ²Res. Inst.

E-mail : 195025j@gs.kochi-tech.ac.jp, kawaharamura.toshiyuki@kochi-tech.ac.jp

1. 背景

近年, グラフェンや遷移金属ダイカルコゲナイド(Transitional Metal Dichalcogenide : TMD)のような 2 次元材料を用いた, 次世代高性能電子デバイス開発に向けて盛んに研究が行われている。TMD はバンドギャップを持つため, ゼロギャップ半導体であるグラフェンと比較して, 素子への応用が容易である[1]。本研究では, 単層の場合, 約 1.8 eV のバンドギャップを持つ直接遷移型半導体である二硫化モリブデン(MoS₂)に着目した。一般的に MoS₂ 等の TMD を作製する手法として, 化学気相成長(CVD)法や分子線エピタキシー(MBE)法が用いられる[2,3]。これらの手法は成膜時に 750°C 以上の高温や真空状態を維持する必要があり, エネルギー消費が大きく, 非常に環境負荷の高い手法であるといえる。そこで本研究室では環境負荷低減のため, 低温かつ大気圧下での作製を目指している。

2. 低温・大気圧下薄膜作製技術「ミスト CVD」

先行研究として, ミストアニール(MA)という手法を用いて MoS₂ の作製を行った[4]。これは, スパッタリング法により基板にモリブデン(Mo)薄膜を成膜し, その後, 霧状硫黄(S)前駆体溶液中で熱処理を行う手法である。MA では, 真空プロセスを経るため, 本質的な環境負荷低減を達成しているとは言いがたい。そこで本研究では, ミスト CVD を用いて基板上へ直接, MoS₂ を成膜することを試みた。ミスト CVD とは, 高純度汎用試薬を溶解した溶液を超音波振動によって霧化し, 霧状にした原料溶液で満たした反応炉内で熱分解によって成膜する手法である[5]。これまでに, ミスト CVD により高品質な金属酸化物薄膜作製に成功したという報告が多数されており, MoS₂ においてもモリブデン(Mo)前駆体, 硫黄(S)前駆体を同時に供給することにより, 高品質な薄膜を得ることが期待できる。

3. 結果

モリブデン(Mo)前駆体に 7 モリブデン酸 6 アンモニウム四水和物((NH₄)₆Mo₇O₂₄·4H₂O), 硫黄(S)前駆体にチオウレア(CH₄N₂S)を用いた。実験条件を Table1 に示す。作製したサンプルはラマン分光法, SEM-EDS, AFM 等を用いて分析を行った。ラマン分光法による結果を Fig.1 に示す。今回用いたラマン分光装置の励起レーザーの波長は 532 nm(2.33 eV)である。Fig.1 より 380 cm⁻¹, 410 cm⁻¹にピークが確認できる。MoS₂ のラマンピークはバルクの場合, 383.0 cm⁻¹(E_{2g}¹), 407.8 cm⁻¹(A_{1g})の 2 つの振動状態にピークが確認されると報告があり[6], ミスト CVD によって MoS₂ が直接, 基板に成膜されていることを示唆する結果となった。当日は実験条件や測定結果に関して詳細に報告する。

参考文献

- [1] 上野啓司, 塚越一仁, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.83 (2014)
 [2] R. Kappera, *et al.*, APL Materials 2, 092516 (2014)
 [3] F.S. Ohuchi, *et al.*, J. Appl. Phys., Vol.68 (1990)
 [4] 佐藤翔太, *et al.*, 第62回応用物理学会春季学術講演会講演予稿集 (2015)
 [5] 川原村敏幸, Jpn. J. Appl. Phys., Vol.53 (2014)
 [6] H. Li, *et al.*, Adv. Funct. Mater 22 (2012) 1390

Table1 実験条件

溶質	CH ₄ N ₂ S, (NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄ ·4H ₂ O
溶媒	CH ₃ OH = 200 mL
濃度	CH ₄ N ₂ S, (NH ₄) ₆ Mo ₇ O ₂₄ ·4H ₂ O : 0.05, 0.0018 mol/L
種類	Fine Channel
搬送ガス	Ar : 2.5 L/min
希釈ガス	Ar : 4.5 L/min
噴霧時間	10 min
基板温度	200~450 °C

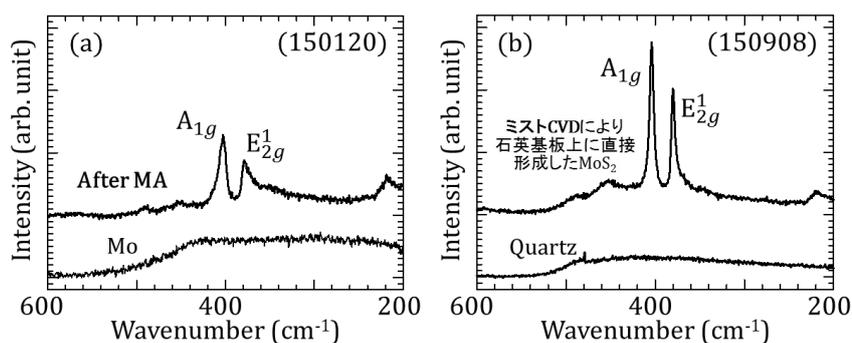


Fig.1 (a) ミストアニール(MA)及び, (b) ミストCVDにより作製したサンプルと各基板のラマン分光法による分析結果