XPS時間依存測定による二次元MoS2膜の放射線損傷に関する研究 Study on Radiation Damage of 2D MoS2 Film by XPS Time-Dependent Measurement 東大院工¹, JAXA宇宙研², 東工大・工学院³ °松沢 理宏^{1, 2}, 五十嵐 智³, 小林 大輔², 若林 整³, 廣瀬 和之^{1, 2} Univ. Tokyo¹, ISAS/JAXA², Tokyo Tech³, °Masahiro Matsuzawa^{1,2}, Satoshi Igarashi³, Daisuke Kobayashi², Hitoshi Wakabayashi³, Kazuyuki Hirose^{1, 2} E-mail: matsuzawa-masahiro583@g.ecc.u-tokyo.ac.jp, hirose@isas.jaxa.jp については、Fig. 1よりX線照射後3hあたりから時間ととも

【背景と目的】

二次元MoS₂ FETがポストMOSFETの候補として研究されている. MoS₂層は数ナノメートルという極薄膜であることから, MoS₂ FETで構成されるメモリーは優れたソフトエラー耐性を持つ宇宙用メモリとして期待されている[1]. 宇宙応用にあたっては,高エネルギー放射線が当たったときにだけ起きる一過性のソフトエラーだけでなく,当たった数の履歴で決まる持続的な「トータルドーズ効果」への耐性も重要であるが,先行研究は少ない.例えば,放射線照射により,結晶が相転移し[2]不純物MoO₃の酸素空孔に正孔トラップが生成した「結晶相転移モデル」[3],あるいは硫黄空孔に電子トラップが発生した「電荷捕獲モデル」[4]についてシミュレーション計算での報告があるが,これらについて実験的に知見は得られていない.

本研究では、薄膜の結晶相転移や電荷捕獲の評価が 可能なXPS時間依存測定[5]を用いて、電荷捕獲モデルと 結晶転移モデルの実験的な検証を試みた.

【実験方法】

XPS装置(ESCALAB220i_XL)を用い,単色化したAl-Kα X線(1486.6 eV)を照射し続け,Si2p,O1s,Mo3d,S2pピー ク結合エネルギーEbを40時間にわたり測定した.試料に は世界初ノーマリーオフ動作に成功した[6]MoS2純度 99.9%(3N MoS2)と,更なる性能向上が期待されるMoS2純度 99.9%(4N MoS2)の MoS2(3nm)/SiO2(400nm)/n 型 Si(100)の2種類を使用した.MoS2膜はRFマグネトロンスパ ッタリング法で成膜した.スパッタリング後,硫黄欠損を補 填するため700℃で硫化アニーリング処理(3N MoS2:40分, 4N MoS2:60分)を施した.なお,過去のラマン評価[7]によ り,こうして得られた2種類の試料のピーク形状がほぼ一致 することが分かっている.

【実験結果と考察】

Fig. 1にMo3dピークの結合エネルギーシフト量 Δ E_{b(Mo3d)}からSi2pピークの結合エネルギーシフト量 Δ E_{b(Si2p)}を引いた差分 δ Δ E_bのX線照射時間依存性を,それぞれの試料について示す.Fig. 2にX線照射40h後のMo3dスペクトルを,それぞれの試料について示す.

3N MoS₂については, Fig. 1よりX線照射時間とともに δ Δ E_bがおおむね単調減少し負に転じることからMoS₂膜中 に電子が捕獲されていることがわかった. また, Fig. 2よりX 線照射後MoS₂の結晶相は半導体相のみであることがわ かった. 電子が捕獲されていることと結晶の相転移が認め られないことから3N MoS₂に対する放射線の影響は「電子 捕獲モデル」で説明できると考えられる.一方, 4N MoS₂ に 5 Λ E_bが大きくなることからMoS₂膜中に正孔が捕獲さ れていることがわかった. Fig. 2より X線照射後40hに Mo3dスペクトルに金属相[2]と考えられるピークが出現し ていることがわかった. 正孔が捕獲されていることと相転 移が求められたことからから4N MoS₂に対する放射線の影 響は「結晶相転移モデル」で説明できると考えられる.

以上の通り,実際のMoS2薄膜のX線照射効果(トータルドーズ効果)は,電荷捕獲モデルと結晶相転移モデル で説明できそうなことがわかった.どちらのモデルで説明 できるかは,一意的に決まるものではなく,成膜条件に依 存することが分かった.それは,ラマンのピーク比較では 判定できないことが示唆される.また,4N MoS2は正孔トラ ップ起因のMoO3が多いため,結晶転移が起きやすいこと が推測される.



Fig. 1 Difference in binding energy shift between Mo3d and Si2p depending on X-ray irradiation time.



Fig. 2 Mo3d spectra after 40 hours of X-ray irradiation on (a) 3N MoS₂ and (b) 4N MoS₂.

- [1] S. Zheng, et al., IEEE Access 7, 79989-79996 (2019).
- [2] Y. Lin, et al., Nat. Nanotechnol. 9, 391-396 (2014).
- [3] J.-I. Park, et al., J. Alloys Compd. 814, 152134 (2020).
- [4] C. Zhang, et al., IEEE TNS 61, 2862-2867 (2014).
- [5] K. Hirose, et al., J. Prog. Surf. Sci. 82, 3-54 (2007).
- [6] K. Matsuura, et al., Jpn. J. Appl. Phys. 59, 080906 (2020).
- [7] K. Matsuura, et al., J. Electron. Mater. 47, 3497-3501 (2018).