

マイクロリアクタ内の閉じ込め空間制御による 遷移金属ダイカルコゲナイドのミリスケール化と面内ヘテロ成長 Millimeter-scale and Lateral Hetero Growth of Transition Metal Dichalcogenides by Controlled Confined Space of Microreactor

岡大院自然¹, 都立大理² °橋本 龍季¹, 三澤 賢明¹, 鶴田 健二¹,
宮田 耕充², 林 靖彦¹, 鈴木 弘朗¹

Okayama Univ.¹, Tokyo Metropolitan Univ.², °Ryoki Hashimoto¹, Masaaki Misawa¹, Kenji Tsuruta¹,
Yasumitsu Miyata², Yasuhiko Hayashi¹, Hiroo Suzuki¹

E-mail: hiroo.suzuki@okayama-u.ac.jp

遷移金属ダイカルコゲナイド (TMDCs) は、高い機械的柔軟性と直接遷移型のバンドギャップによる光吸収・発光特性を持つため、太陽電池、光検出器、発光ダイオードなどの光電子デバイスへの応用に注目されている。TMDCs の応用に向け、結晶粒界を抑制し、欠陥や不純物の影響を低減するために結晶サイズの制御が重要な課題である。本研究では、低融点の金属塩を原料とする Vapor-Liquid-Solid (VLS) 成長と二枚の合成基板で構築したマイクロリアクタを組み合わせた、新しい化学気相成長 (CVD) 法による複数種類の TMDCs とそれらの面内ヘテロ構造の合成を検討した。[1]

Na_2WO_4 水溶液を Si/SiO₂ 基板上にスピコートし、もう一枚の Si/SiO₂ 基板を重ね合わせることで、二枚の基板からなるマイクロリアクタ内に Na_2WO_4 を閉じ込めた。マイクロリアクタを赤外加熱炉中で有機硫黄 ((t-C₄H₉)₂S₂) の蒸気と反応させ、WS₂ を合成した (Fig. 1a)。合成した結晶のフォトルミネッセンス (PL) 測定から最適な合成温度を同定し、その温度下で原料濃度、硫黄供給レート等を最適化することで最大で ~1100 μm の極めて大きいサイズの結晶が得られた。また、結晶サイズの合成温度に対するアレニウス型の活性化エネルギーと原料の拡散エネルギーの理論計算などからマイクロリアクタ内での WS₂ の成長が、表面拡散律速に支配されていることを明らかにした。成長基板サイズを大きくし、原料拡散勾配による核生成密度の低減によって、更なる大面積化に成功した (~1400 μm)。 (Fig. 1b)。また、マイクロリアクタを応用し、二枚の基板に Na_2WO_4 と Na_2MoO_4 をそれぞれ塗布することで、単層の WS₂ と MoS₂ が面内で接合した、WS₂/MoS₂ 面内ヘテロ構造の合成に成功した。

[1] H. Suzuki, R. Hashimoto, *et al.*, ACS Nano 16 (2022): 11360-11373

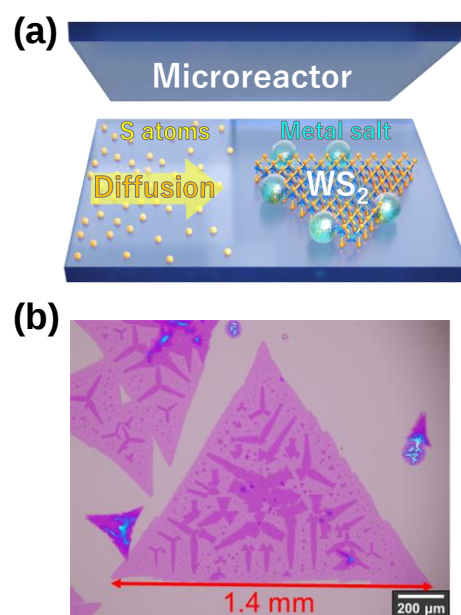


Fig.1: (a) Growth model of WS₂ in the confined space of microreactor. (b) Optical microscope image of millimeter-scale WS₂ crystal.