

アルカリ金属フリー環境下における気体原料を用いた マイクロメートルスケール WS₂ 原子層の化学気相成長

Gas-source chemical vapor deposition growth of micrometer-scale

tungsten disulfide atomic layers under alkali-metal free condition

産総研, °岡田 光博, 岡田 直也, 張 文馨, 清水 哲夫, 久保 利隆, 石原 正統, 入沢 寿史

AIST, °Mitsuhiro Okada, Naoya Okada, Wen-Hsin Chang, Tetsuo Shimizu, Toshitaka Kubo,

Masatou Ishihara, and Toshifumi Irisawa

E-mail: mi.okada@aist.go.jp

【序論】原子層遷移金属ダイカルコゲナイド(transition metal dichalcogenides, TMD)の実応用のためには、大面積成膜技術は必要不可欠である。その実現のため、我々は常温・常圧で気体である H₂S・WF₆を原料として TMD の一種である WS₂ の化学気相成長(chemical vapor deposition, CVD)技術開発を進めてきた。[1-2]気体原料であるため、通常の TMD の CVD 原料である固体原料では困難なウェハスケールでの WS₂ 均一薄膜成長も可能である。一方でその結晶サイズはアルカリ金属アシストなしでは 1 μm に遥かに満たず[1-2]、高密度のグレインバウンダリ等に由来する品質低下が問題であった。本研究では、この解決策として結晶成長の速度論的な手法に注目し、アルカリ金属アシストなしでマイクロメートルサイズの結晶を得ることに成功したので報告する。[3]

【結果・考察】大粒径単結晶を得るため、本研究では既報と比べ、原料供給を減らすべく Ar 希釈した WF₆(Ar:WF₆~99:1)を W 源とし、より高温(最大 900 度)にて WS₂ の CVD 成長を行った。図 1 に、SiO₂/Si 基板上に成膜させた WS₂ 結晶の温度依存性を示す。成長温度を上昇させるにつれて結晶粒径は顕著に増大し、900 度にてそのサイズは 1.5 μm に達した。この結晶粒径サイズおよび核密度の温度依存性はアレニウスの式でフィッティングでき、その成長は一般的な薄膜成長における熱活性モデルで説明できることが分かった。また、得られた結晶の発光特性を図 2 に示す。成長温度 800 度ではその線幅は固体原料で得られた WS₂ と遜色ない 54 meV であったが、900 度では線幅は 80 meV に劣化した。これは高温で成長させたことによる WS₂ からの S 脱離が原因であると考えられ、成長時の H₂S 濃度制御により回復出来る事が確認されている。

【結論】アルカリ金属フリーの環境下にて気体原料を用いた WS₂ の CVD 成長を行い、世界で初めてマイクロメートルサイズの結晶を得ることに成功した。

【謝辞】本研究は JST-CREST Grant No. JPMJCR16F3 及び JSPS 科研費 Grant No. 19K15403 の補助の下行われた。

【参考文献】 [1] T. Irisawa *et al.*, *IEEE J. Electron Devices Soc.* (2018)., [2] M. Okada *et al.*, *Sci. Rep.* (2019)., [3] M. Okada *et al.*, *Jpn. J. Appl. Phys.* In press.

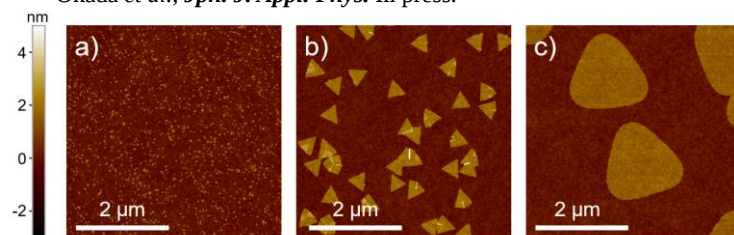


図 1. Atomic force microscopy images of WS₂ grown on SiO₂/Si with a growth temperature of a): 700 °C; b):800 °C; c): 900 °C.

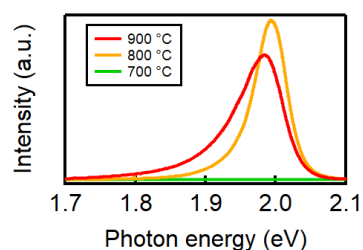


図 2. Growth-temperature dependent photoluminescence properties of WS₂.