

MoS₂ の Si 基板上 CVD 選択成長に向けた前駆体/触媒溶液塗布法の検討

Coating of MoS₂ precursor / catalyst solutions on Si substrate for selective CVD growth

信州大学¹, 信州大学 IFES², °(M1)西村 隆之介¹, 渡辺 健太郎^{1,2}

Shinshu Univ.¹, Shinshu Univ. IFES², °Ryunosuke Nishimura¹, Kentaro Watanabe^{1,2}

E-mail: kentaro_watanabe@shinshu-u.ac.jp

【背景】電界効果トランジスタ(FET)の更なる高速化・低消費電力化・フレキシブルデバイス化を見据えた新しい半導体材料として、層状物質の層数を数層以下にした二次元材料が注目されている。遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDs) (化学式 MX₂; M = Mo, W; X = S, Se, Te)はバンドギャップが $E_g = 1\sim 2$ eV の層状半導体であり、層数を多層→単層にするとバンド構造が間接遷移型→直接遷移型に転移するため次世代発光材料の候補であるほか、数原子層厚の MoS₂ は化学的に安定で高い電子移動度を有するため、高速・省エネの FET チャネル材料の筆頭候補である。

数ある成長法のうち化学気相成長(CVD)法は大粒径の結晶が比較的容易に得られる手法であり、近年の CVD 成長技術の進展により結晶粒径 100 μm 程度の単層 TMDs が得られるようになった[1]。その一方で、CVD 法においてもデバイス配列化に必要な選択成長技術は未成熟であり、報告されている選択成長 TMDs 膜は粒径の小さな多結晶合体膜である[2]。FET チャネル材料が多結晶膜であると結晶粒界で電流リークが発生し $I_{\text{ON}}/I_{\text{OFF}}$ 比が劣化(=待機時の消費電力が増大)し、また FET 集積回路の歩留まりも下がる。よって選択成長においても結晶粒界を含まない単結晶膜を得るには、成長基板上の結晶核形成サイトの空間制御性の改善が必要である。

本研究では選択成長法として Si 基板上の金属マスク蒸着法[2]のほか、親水性/疎水性パターンと組合せ可能な前駆体/Na 触媒溶液塗布法[3]に着目し、MoS₂ の CVD 成長サイト制御を試みた。

【実験・結果・考察】MoS₂ 成長には 3-Zone 管状炉ベースの減圧 CVD 装置(自作)を用いた。CVD 成長の標準条件を以下に示す。酸素雰囲気中 1000°C で熱酸化した *p*-Si(111)基板(2×6cm²)を4枚に分割し、それぞれに異なる濃度の前駆体 MoO₃ アンモニア溶液および成長触媒 NaCl 水溶液を予め塗布した成長基板配列と、前駆体の硫黄粉末をマウントしたセラミックボートを共に CVD 装置内の加熱 Zone に配置し 1Pa 程度まで真空排気後、0.50 SLM の Ar キャリアガスを流して真空度を 200 Pa に保った[Fig.1]。次に上流側の硫黄粉末、下流側の成長基板配列をそれぞれ 130°C、770°C に加熱開始し、その4分後に中央のゾーンを約 527°C まで加熱開始して CVD 成長を行い、硫黄と基板の加熱開始から 60 分後に全ての加熱を終了し装置と基板を急冷した。各 Si 基板上に成長した MoS₂ 結晶膜は、光学顕微鏡で結晶粒径・結晶粒面密度を評価し、Raman Shift のピーク波数差から MoS₂ 結晶の層数を同定した[4]。結果、前駆体 MoO₃ アンモニア溶液および成長触媒 NaCl 水溶液を共に塗布した基板において数層の MoS₂ 結晶膜が得られること、溶液濃度の異なる基板間で層数が顕著に異なることから、溶液塗布法における CVD 成長の確認[Fig.2]および基板スケールのマクロな成長サイト制御[Fig.1]が確認できた。成長選択性に関しては、成長基板上への Au 膜部分蒸着による CVD 成長とも比較検討した。MoS₂ 結晶膜の多結晶性に関しては、前駆体を加熱昇華させて成長基板上に気流で供給する従来法やソーダライムガラス基板の利用による Na 触媒供給法との比較も行った。より微細な成長サイト制御、MoS₂ 結晶粒の粒径拡大・配向制御については今後検討する。

【謝辞】本研究は科研費基盤研究(B)[20H02632] および文部科学省卓越研究員事業の支援を受けた。

参考文献

- [1] K. Fujii, *et al.*, M-2-03, SSDM2023 (2023.9). [2] P. K. Mohapatra, *et al.*, *Adv. Mater. Interf.* **7**, 2001549 (2020). [3] Shisheng Li, *et al.*, *Nanoscale*. **11**, 16122 (2019). [4] X. Zhang, *et al.*, *Chem. Soc. Rev.* **44**, 2757 (2015).

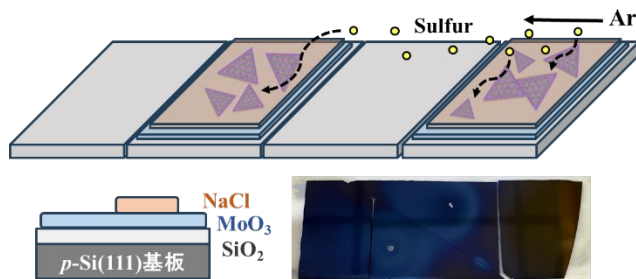


Fig. 1 Array of SiO₂ / Si substrates for MoS₂ CVD growth which are coated sequentially by MoO₃ ammonia solution and NaCl_{aq} at different concentrations.

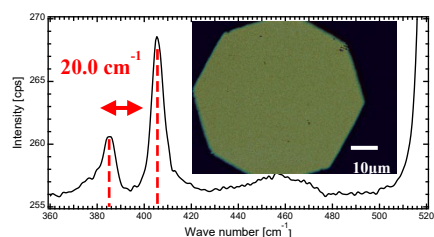


Fig. 2 Optical microscope image of CVD-grown few-layer MoS₂ film and its Raman spectrum.