

【助成 41-29】

自動ガス供給システム付き縦型流路分離式 CVD によるウェハサイズ TMDC 薄膜の安定的合成技術の開発

研究者 東邦大学理学部 講師 柳瀬 隆

〔研究の概要〕

原子層デバイス材料として期待されている遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)の安定的基盤合成技術を確認するために、新たに自動ガス供給システム付き流路分離式縦型化学気相蒸着装置(AGSS-TF-VCVD)を構築した。本研究では、AGSS-TF-VCVD ならば原料の都度交換なしで、サファイア基板の上にエピタキシャル成長した WS₂ ナノシートを作製できることを実証した。現時点では WS₂ ナノシートは 50-100nm と厚いため、単層化に向けて反応条件を最適化していく。将来的には、さらなる装置安定性の向上や大面積化を含めて、さまざまな TMDC を AGSS-TF-VCVD により自在に合成できるようになることを目指す。

〔研究経過および成果〕

グラフェンの研究が契機となり、他の 2 次元物質も再び注目されるようになった。その中で遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)は 20 種以上からなる 2 次元物質群で、グラフェンにはない特性と多様性から原子層デバイス材料として注目されている。高品質かつ大面積の TMDC ナノシートを作製できる手法として化学気相蒸着法(CVD 法)があるが、これまでの研究では大気中での取り扱いが可能な酸化物を原料に用いることがほとんどであった。そのため、選択可能な遷移金属が Mo と W に限られ、その他の遷移金属を利用できないという問題がある。この問題を解決し、すべての TMDC を有効に利用できるようにするため、筆者は独自の流路分離式 CVD 装置を構築して塩化物原料による TMDC の合成に取り組んできた。本研究では TMDC ナノシートの均一性・配向性・結晶性を高めるために、自動ガス供給システム付き流路分離式縦型 CVD 装置(AGSS-TF-VCVD)の開発と TMDC ナノシートの安定的基盤合成技術の確認を目的として研究を行った。

研究開始直後、当初の計画に従って図1に示す AGSS-TF-VCVD を構築した。原料は反応領域と分離し、2つの原料流路にマスフローコントローラー(MFC)を取り付け、コンピュータ制御によりガス供給を自動化した。さらに、縦型にしたことで基板表面における温度が均一化され、さらに対流が抑制された。このことは流体シミュレーションにより確認した(図 2)。

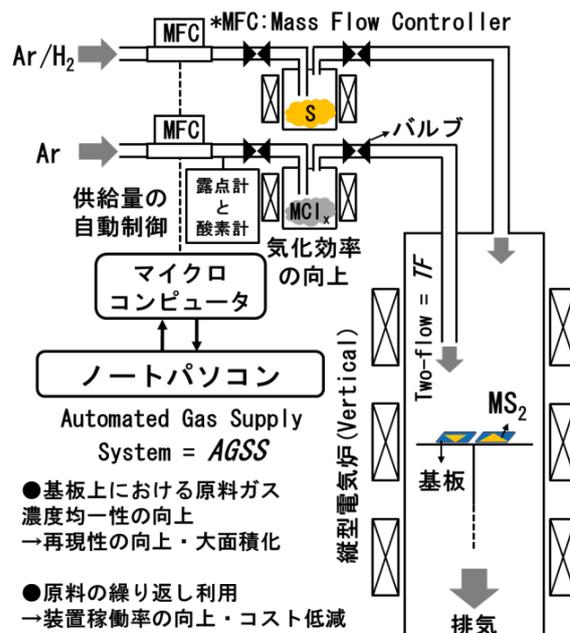


図1 AGSS-TF-VCVD の模式図

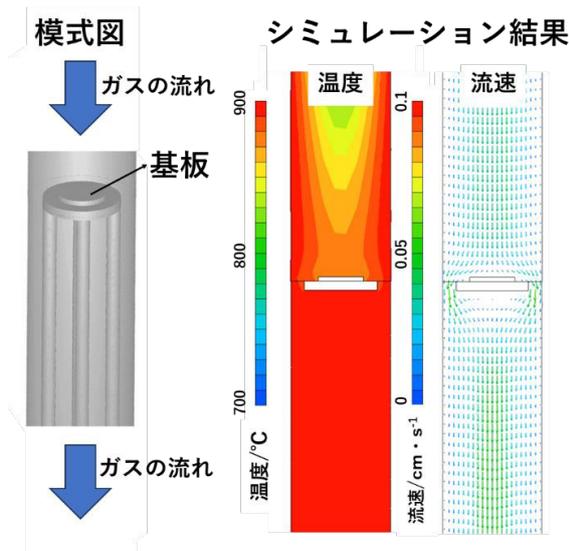


図 2 VCVD に対する流体シミュレーションの結果

また、申請段階で提案した気化器を実際に導入したことで原料の都度交換が不要となり、合成実験の効率化を実現した。その結果、当初の予定通り一日当たり 4 回まで CVD を行うことができるようになった。その上、原料交換はひと月に 1 回程度となり、このことは実用化するにあたり、低コスト化および生産性の向上に貢献すると考えられる。

製作した AGSS-TF-VCVD の動作確認を含めて WS_2 の合成実験を行ったところ、5mm×5mm のサファイア基板上に三角形ドメインを有する WS_2 ナノシートの作製に成功した(図 3 の挿入図を参照)。得られたナノシートが WS_2 であることは X 線回折パターン(ここでは示していない)および Raman スペクトル(図 3)から同定した。X 線回折パターンでは 00 l からの回折のみが観測され、エピタキシャル成長していることを確認できた。また、対応する 2θ から層間距離を計算すると 0.61nm となり、これは WS_2 のそれとほとんど一致する。また、Raman スペクトルでは WS_2 特有の振動モードである A_{1g} と E_{2g} のピークが観測され、このことから WS_2 ナノシートの合成に成功したと結論づけることができる。

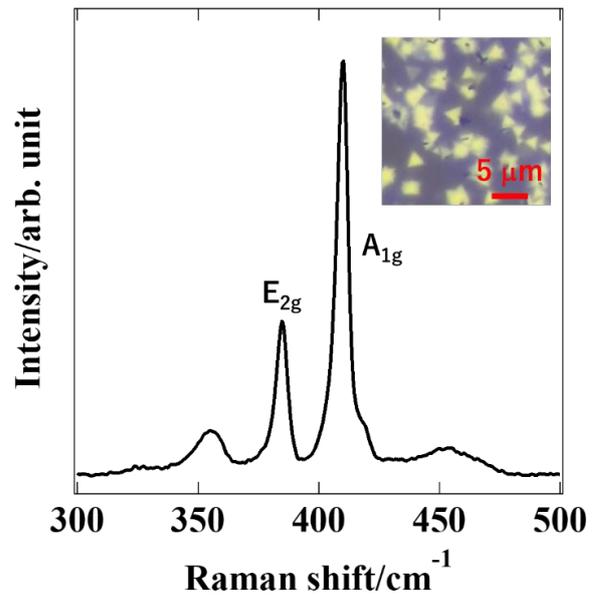


図 3 WS_2 ナノシートの Raman スペクトル

(挿入図は WS_2 ナノシートの光学顕微鏡像)

ただし、現状では合成した WS_2 ナノシートは 50-100nm と厚いため、将来的には単層化に向けて合成条件を最適化する必要がある。その上で、当初の目的である 1cm×1cm 以上の基板上にさまざまな TMDC を合成できるようになることが重要である。CVD 装置のより高い安定性と制御性を実現しつつ大型化を進めながら、すべての TMDC を本研究で開発した AGSS-TF-VCVD を用いて合成できるようになることを目指して、さらなる改良を進めて行く。

[学会発表]

1. 江橋美羽, 柳瀬隆, 流路分離式化学気相蒸着装置を用いた TaS_2 連続膜の合成, 応用物理学会, 朱鷺メッセ(新潟), 2024/9/17

[謝辞]

流体シミュレーションは秋田大学の高牟礼講師の Raman スペクトルの取得はお茶の水女子大学の近松准教授の協力により行われました。この場を借りて厚く御礼申し上げます。