

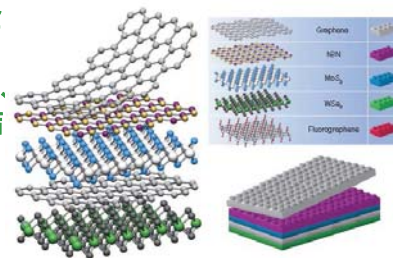
2次元遷移金属カルコゲナイド結晶の高品位化に向けた調査研究

Study for obtaining high quality TMDC crystals

概要

グラフェンを初めとする2次元電子系物質において、半導体であるMoS₂等の遷移金属カルコゲナイド(以下TMDC)は応用面で特に重要な研究対象である。しかし、既存のTMDC系ではキャリア移動度が低く、その改善が課題である。本調査研究では、高圧、高温下でTMDC結晶の分解を抑制しつつ融解-再結晶することにより良質結晶を合成し、その特性を明らかにした。

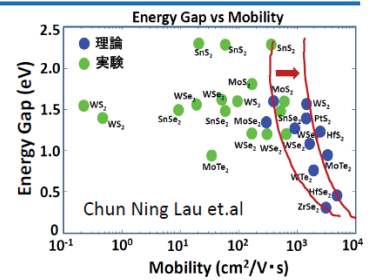
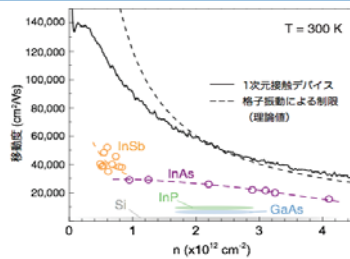
Among 2D materials such as graphene, improvement for the semiconducting properties of transition metal dichalcogenides (TMDC) is an important subject for their device application. In this study, high pressure melt growth technique was applied for obtaining high quality TMDC crystals with suppression for their stoichiometry control.



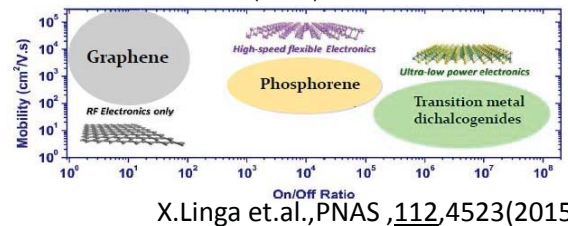
A.Geim, I.V.Grigorieva, Nature, 499,419(2013).

本研究ではTMDC結晶の品質を向上させることで、TMDC結晶のキャリア移動度向上の可能性を調査した。

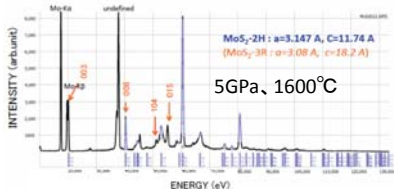
具体的には、高圧、高温下でSやSeの分解、蒸発を抑えた上で、一致熔融状態からの除冷法により単結晶を合成し(KEK,NIMS)、その光学的特性、キャリア移動度等を評価した(筑波大学、東大)。対象物質群としては、MoS₂, MoSe₂, MoTe₂, WS₂, WSe₂等のTMDC (含合金系)を中心に進め、MoS₂結晶について構造解析(産総研)、移動度の評価(東大)を行った。高品質単結晶合成の前提となる高圧下での圧力-温度相図の調査を目的として、MoS₂結晶の5万気圧、1600°C領域までの高圧高温下でのX線回折実験を行い、2H構造から3R構造への転換を観測した(KEK)。更に5万気圧2200°C領域からの徐冷により3R型MoS₂単結晶を合成した(NIMS)。過去の報告値を上回るものではないが、合成環境下への硫黄過剰添加の下で得られたMoS₂結晶に移動度の向上が見られた(東大)。原料とした市販試薬の純度は99.5%程度であり、今後高純度結晶を原料として、アニオン種過剰添加の下で結晶成長を行い、更なる高移動度の実現を目指す。参加各機関が連携することで、課題である高圧下でのP-T相図の調査、単結晶合成、結晶性の評価、並びに、デバイスの基礎物性(キャリア移動度)評価を相互補完的に進めることができた。



L. Wanget.al., Science 342 614-617 (2013). 理論と実験の乖離

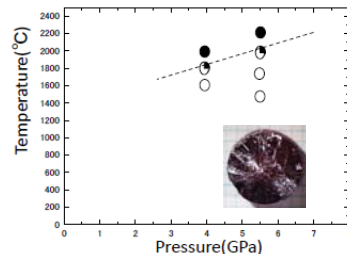


X.Linga et.al.,PNAS, 112,4523(2015).

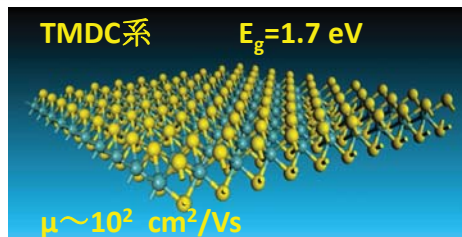


KEK: 亀卦川班
温度-圧力相図、融解曲線を調査

NIMS: 谷口班
高温高圧下で単結晶を合成



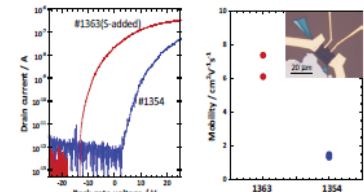
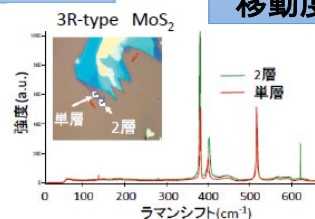
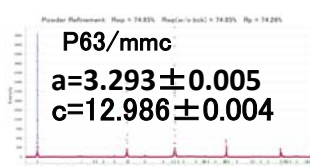
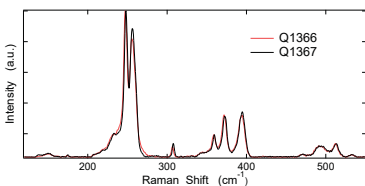
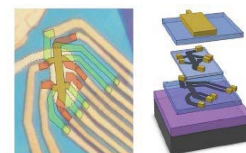
高圧合成したMoS₂結晶



筑波大: 松石班
単結晶のラマン散乱、発光測定
点欠陥、局所構造等の評価

産総研: 藤久班
結晶性の評価
新相構造解析

東大: 長汐班
単結晶から原子薄膜デバイスを作成
移動度等の電気物性評価



今後:高純度原料を用いて、良質、高移動度TMDC結晶を合成する。

アニオンの過剰添加による輸送特性向上