

令和 3 年 6 月 4 日現在

機関番号：22604

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2020

課題番号：19K15393

研究課題名(和文)原子層物質と3次元固体接合の作製と界面構造の解明

研究課題名(英文)Fabrication and understanding the interface junction between atomic layers and 3D solids

研究代表者

LIM HONGEN (LIM, HONGEN)

東京都立大学・理学研究科・特任助教

研究者番号：20794861

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：ファンデルワールス物質と固体材料との界面構造への理解は、合成した結晶の構造や成長方向および位置の制御に向けた重要な手がかりとなる。本研究では、化学気相成長法を用いて、そのような接合構造の作製に取り組んできた。主要な成果として、(1)異なる種類の固体界面における遷移金属ダイカルコゲナイド原子層の合成と(2)遷移金属カルコゲナイド原子細線の多量かつ配向制御合成技術を世界に先駆けて確立に成功してきた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

基板の表面ではなく、異なる固体の界面を原子層物質の成長に利用する研究はこれまでなく、新たな原子層の合成やデバイス作製プロセスを可能にするインパクトの大きい研究になる。特に金属と基板の界面において原子層の直接合成が出来れば、電子デバイスへの応用に主要の問題となる接触界面が大幅に改善する可能性がある。原子細線に関しては、多量生成に成功したことで新たな量子現象や機能を持つ新奇材料の探索にも期待できる。新規ナノ材料成長技術のみではなく、物性の探索やデバイス応用まで幅広い研究分野へ影響する波及効果が期待できる。

研究成果の概要(英文)：Studying the interface junction between van der Waals materials and bulk solids provides an important key towards possible control of their crystallographic structure, growth orientation and location. In this work, such junctions were fabricated using chemical vapor deposition. Based on the results obtained, we succeeded in (1) the growth of transition metal dichalcogenide atomic layers at the interface between dissimilar solids, and (2) the wafer-scale growth of transition metal chalcogenide atomic wires for the first time.

研究分野：ナノ材料科学

キーワード：化学気相成長法 ファンデルワールス物質 遷移金属ダイカルコゲナイド 遷移金属カルコゲナイド

1. 研究開始当初の背景

炭素の単原子膜であるグラフェンの単離以来、様々な原子層や原子細線などのファンデルワールス物質の研究が盛んに行われてきた。特に、図1に示すような二次元遷移金属ダイカルコゲナイド(TMDC)や一次元遷移金属カルコゲナイド(TMC)ナノワイヤーは、優れた光・電気伝導特性より、次世代エレクトロニクスへの応用が非常に期待されている [F. Xia *et al.*, Nat. Photonics 2014; Y. Xia *et al.* Nano Lett. 2020]。実用化に向け、様々な合成法が開発されてきたが [J. Zhou *et al.*, Nature, 2018; Y. Yu *et al.*, Nano Lett. 2018; M. Nagata *et al.* Nano Lett. 2019]、デバイスの作製で重要となる結晶成長の位置と方位の制御や多量合成が大きな課題となっている。

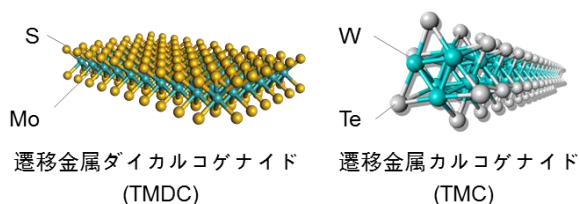


図1. TMDC 原子層・TMC 原子細線のモデル図。

2. 研究の目的

本研究では、化学気相成長法(CVD)を用いて、TMDC 原子層および TMC 原子細線の合成に取り組んだ。TMDC に関しては、金属薄膜と SiO₂ の 3 次元固体の界面に TMDC 原子層を成長させ、2 次元-3 次元物質の作製とその接合界面を明らかにする。TMC に関しては、成長基板の結晶構造を利用し、原子細線の大量合成かつ配向制御技術を確立する。この研究を通じ、従来では実現できなかった原子層・原子細線の位置・方向・方位の制御に関する基盤技術を構築し、また合成した物質の電子輸送特性の解明を目指す。

3. 研究の方法

CVD の重要な反応要素である合成温度・時間・基板・出発原料・金属・ガス雰囲気などを検討しながら、単層 TMDC と TMC 原子細線の高収率な試料作製条件の探索を進めてきた。また、デバイス作製に向けた位置・構造・方向制御合成する手法を開発した。電子顕微鏡の構造観察・元素分析と各種分光法により、合成機構の解明に取り組んできた。さらに、電気伝導測定や密度汎関数法第一原理計算を通じて、合成した物質の性質や電子状態を評価した。

4. 研究成果

本研究では、単層二硫化モリブデン (MoS₂) 膜を金と SiO₂ の界面に成長させること、WTe ナノワイヤーの多量かつ配向制御合成することに成功した。特に今まで報告していない異なるバルク固体界面での合成は、将来極めて薄いあるいは不安定な物質の層数、結晶方位、デバイス統合手法に繋がるため、とても重要な成果である。又、初めて成功した WTe ナノワイヤーの多量合成は、まだ未知である TMC 原子細線の物性探索と応用研究の新しい展開が期待される。

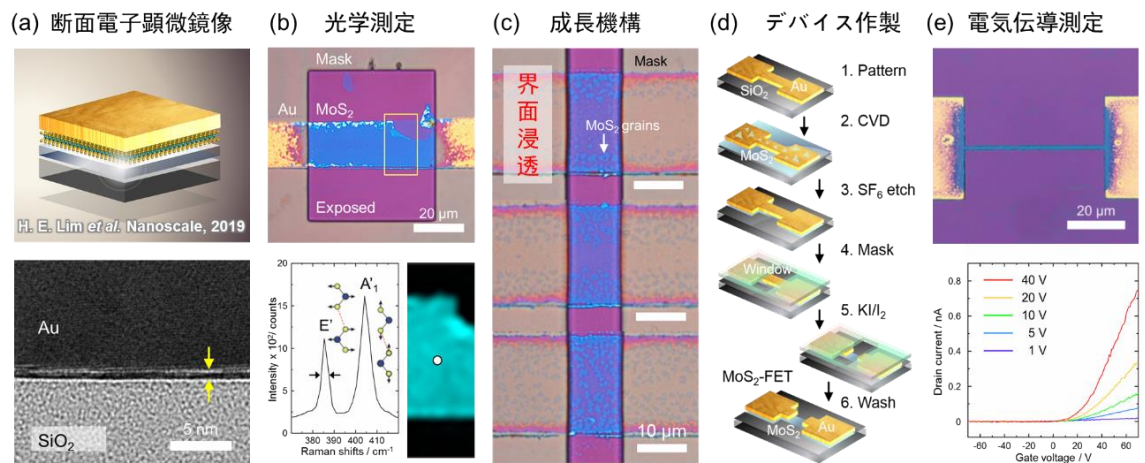


図2. Au-SiO₂ 界面における単層 MoS₂ の成長。(a) 断面透過型電子顕微鏡像 (b) ラマン分光測定 (c) 界面浸透成長機構 (d) 新しい FET デバイス作製プロセス (e) N 型電気伝導特性。Reproduced from Ref. 1 (<https://doi.org/10.1039/C9NR05119H>) with permission from The Royal Society of

図 2a に CVD 合成を行った金薄膜を蒸着したシリコン基板の断面透過型電子顕微鏡像を示す。Au と SiO_2 の間に厚み約 1 ナノメートル程の層状物質が観察できた。その金薄膜を除去し、界面に成長した薄いシートを露出させることで、単層の MoS_2 膜ができていることを専用のラマン振動モードや蛍光発光から実証した (図 2b)。通常の表面成長と違い、 MoS_2 の膜が金と SiO_2 の界面の外側から徐々に浸透し、形成した MoS_2 グレーン同士が融合することを明らかにした (図 2c)。この新奇な合成手法を用いて、図 2d に示すような新たなデバイス作製プロセス技術を開発し、簡単手法で決まった位置・形の N-型 MoS_2 電界効果トランジスタ (FET) の作成に成功した (図 2e)。

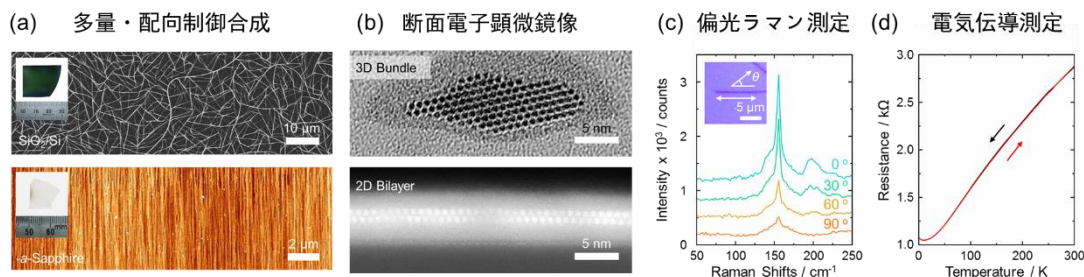


図 3. WTe 原子細線の多量・配向制御合成。(a)センチメートルスケールのランダムと配列した WTe ナノワイヤー(b)2・3次元 WTe ナノワイヤー集合体の断面電子顕微鏡像(c)偏光ラマンスペクトル(d)(e)WTe ナノワイヤー薄膜の電気伝導特性。Reproduced with permission from Ref. 2 (<https://pubs.acs.org/doi/10.1021/acs.nanolett.0c03456>). Copyright 2020 American Chemical Society (ACS); further permissions related to the material excerpted should be directed to the ACS.

図 3a に合成した WTe ナノワイヤーの様子を示す。基板の選択することにより、ランダムなネットワークと配向性を持つナノワイヤーの行列がシリコン基板とサファイア基板上で多量に合成できた。ナノワイヤー成長の方向性だけではなく、それらの断面観察から WTe 集合体の形状が基板に強く依存することを明らかにした。図 3b に示すように、3次元束状および2次元シート状の WTe バンドルが形成することが分かった。又、図 3c の偏光ラマンスペクトルから、WTe ナノワイヤーが1次元の光学特性を有することを示した。更に、四端子電気伝導測定によって、カーボンナノチューブ並みに優れた電気伝導性を持つことが分かり、高い導電性薄膜材料として使えらることを示唆されている (図 3d)。

参考文献

1. Lim, H. E.; Irisawa, T.; Okada, N.; Okada, M.; Endo, T.; Nakanishi, Y.; Maniwa, Y.; Miyata, Y. Monolayer MoS_2 growth at the Au- SiO_2 interface, *Nanoscale* **2019**, *11* (42), 19700-19704.
2. Lim, H. E.; Nakanishi, Y.; Liu, Z.; Pu, J.; Maruyama, M.; Endo, T.; Ando, C.; Shimizu, H.; Yanagi, K.; Okada, S.; Takenobu, T.; Miyata, Y. Wafer-Scale Growth of One-Dimensional Transition-Metal Telluride Nanowires, *Nano Lett.* **2021**, *21* (1), 243-249.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 3件）

1. 著者名 Lim Hong En, Irisawa Toshifumi, Okada Naoya, Okada Mitsuhiro, Endo Takahiko, Nakanishi Yusuke, Maniwa Yutaka, Miyata Yasumitsu	4. 巻 11
2. 論文標題 Monolayer MoS ₂ growth at the Au-SiO ₂ interface	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 19700 ~ 19704
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/C9NR05119H	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Lim Hong En, Nakanishi Yusuke, Liu Zheng, Pu Jiang, Maruyama Mina, Endo Takahiko, Ando Chisato, Shimizu Hiroshi, Yanagi Kazuhiro, Okada Susumu, Takenobu Taishi, Miyata Yasumitsu	4. 巻 21
2. 論文標題 Wafer-Scale Growth of One-Dimensional Transition-Metal Telluride Nanowires	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Nano Letters	6. 最初と最後の頁 243 ~ 249
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.nanolett.0c03456	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -
1. 著者名 Li Shisheng, Hong Jinhua, Gao Bo, Lin Yung Chang, Lim Hong En, Lu Xueyi, Wu Jing, Liu Song, Tateyama Yoshitaka, Sakuma Yoshiki, Tsukagoshi Kazuhito, Suenaga Kazu, Taniguchi Takaaki	4. 巻 -
2. 論文標題 Tunable Doping of Rhenium and Vanadium into Transition Metal Dichalcogenides for Two Dimensional Electronics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Advanced Science	6. 最初と最後の頁 2004438 ~ 2004438
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/advs.202004438	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Ogura Hiroto, Kaneda Masahiko, Nakanishi Yusuke, Nonoguchi Yoshiyuki, Pu Jiang, Ohfuchi Mari, Irisawa Toshifumi, Lim Hong En, Endo Takahiko, Yanagi Kazuhiro, Takenobu Taishi, Miyata Yasumitsu	4. 巻 13
2. 論文標題 Air-stable and efficient electron doping of monolayer MoS ₂ by salt-crown ether treatment	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanoscale	6. 最初と最後の頁 8784 ~ 8789
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d1nr01279g	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 6件）

1. 発表者名 Hong En Lim, Yusuke Nakanishi, Zheng Liu, Jiang Pu, Takahiko Endo, Chisato Ando, Hiroshi Shimizu, Kazuhiro Yanagi, Taishi Takenobu, Yasumitsu Miyata
2. 発表標題 Wafer-Scale Synthesis of 1D Transition Metal Chalcogenide Nanowires
3. 学会等名 第59回フラーレン・ナノチューブ・グラフェン総合シンポジウム（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hong En Lim, Yusuke Nakanishi, Zheng Liu, Jiang Pu, Takahiko Endo, Chisato Ando, Hiroshi Shimizu, Kazuhiro Yanagi, Taishi Takenobu and Yasumitsu Miyata
2. 発表標題 Controlled, Wafer-Scale Growth of Transition Metal Chalcogenide Nanowires
3. 学会等名 33rd International Microprocesses and Nanotechnology Conference（国際学会）
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Hong En Lim, Toshifumi Irisawa, Naoya Okada, Takahiko Endo, Yusuke Nakanishi, Yutaka Maniwa and Yasumitsu Miyata
2. 発表標題 Monolayer MoS2 Growth at Metal-Insulator Interface
3. 学会等名 Recent Progress in Graphene & 2D Materials Research（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hong En Lim, Toshifumi Irisawa, Naoya Okada, Takahiko Endo, Yusuke Nakanishi, Yutaka Maniwa and Yasumitsu Miyata
2. 発表標題 Interface Growth of Molybdenum Disulfide
3. 学会等名 Graphene Week 2019（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hong En Lim, Toshifumi Irisawa, Naoya Okada, Takahiko Endo, Yusuke Nakanishi, Yutaka Maniwa and Yasumitsu Miyata
2. 発表標題 Interface Growth of Monolayer MoS2
3. 学会等名 7th International Conference for Young Scientists (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Hong En Lim, Toshifumi Irisawa, Naoya Okada, Takahiko Endo, Yutaka Maniwa and Yasumitsu Miyata
2. 発表標題 Gold-Mediated Growth of Few-layer Molybdenum Disulfide
3. 学会等名 56th Fullerenes-Nanotubes-Graphene General Symposium (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 導電膜、導電部材及び導電膜の製造方法	発明者 宮田耕充、中西勇介、リムホンエン、遠藤尚彦、安藤千	権利者 同左
産業財産権の種類、番号 特許、2020-079285	出願年 2020年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

<p>東京都立大学ナノ物性研究室ニュース http://www.comp.tmu.ac.jp/nanotube/index.html Transition metal nanowires scale up https://www.nature.com/articles/s41928-021-00540-w Atomic-scale nanowire can now be produced at scale https://www.eurekalert.org/pub_releases/2020-12/tmu-anc121820.php 究極的に細い原子細線からなる大面積薄膜を実現 ~ 次世代の電子・エネルギーデバイス応用に期待 ~ https://www.tmu.ac.jp/news/topics/30557.html 究極的に細い原子細線からなる大面積薄膜を実現 ~ 次世代の電子・エネルギーデバイス応用に期待 ~ https://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2020/pr20201214_2/pr20201214_2.html 究極的に細い原子細線からなる大面積薄膜を実現 ~ 次世代の電子・エネルギーデバイス応用に期待 ~ https://www.nagoya-u.ac.jp/about-nu/public-relations/researchinfo/upload_images/20201214_engg1.pdf 究極的に細い原子細線からなる大面積薄膜を実現 ~ 次世代の電子・エネルギーデバイス応用に期待 ~ https://www.tsukuba.ac.jp/journal/pdf/p202012141400.pdf</p>
--

6. 研究組織		
氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------