

单层MoS₂薄膜的NaCl双辅助生长方法

王奋陶 樊腾 张仕雄 孙真昊 付雷 贾伟 沈波 唐宁

Growth of monolayer MoS₂ films dual-assisted by NaCl

Wang Fen-Tao Fan Teng Zhang Shi-Xiong Sun Zhen-Hao Fu Lei Jia Wei Shen Bo Tang Ning

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 128104 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220273

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220273>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

单层二硫化钼的制备及在器件应用方面的研究

Controllable growth of monolayer MoS₂ films and their applications in devices

物理学报. 2022, 71(10): 108102 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20212447>

高质量单层二硫化钼薄膜的研究进展

Research progress of high-quality monolayer MoS₂ films

物理学报. 2018, 67(12): 128103 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180732>

基于熔融玻璃的预沉积法生长毫米级单晶MoS₂及WS₂-MoS₂异质结

Millimeter-level MoS₂ monolayers and WS₂-MoS₂ heterojunctions grown on molten glass by pre-chemical vapor deposition

物理学报. 2022, 71(4): 048101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20211735>

拉伸应变对单层二硫化钼光电特性的影响

Effects of photoelectric properties of monolayer MoS₂ under tensile strain

物理学报. 2021, 70(21): 217101 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210816>

外电场辅助化学气相沉积方法制备网格状β-Ga₂O₃纳米线及其特性研究

Growth and characterization of grid-like β-Ga₂O₃ nanowires by electric field assisted chemical vapor deposition method

物理学报. 2018, 67(21): 218101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180805>

非共振圆偏振光作用下单层二硫化钼电子结构及其自旋/谷输运性质

Electronic structure and spin/valley transport properties of monolayer MoS₂ under the irradiation of the off-resonant circularly polarized light

物理学报. 2018, 67(10): 107101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180213>

专题: 低维材料的新奇物性

单层 MoS_2 薄膜的 NaCl 双辅助生长方法*王奋陶¹⁾ 樊腾²⁾ 张仕雄²⁾ 孙真昊²⁾ 付雷²⁾贾伟^{1)†} 沈波²⁾ 唐宁^{2)‡}

1) (太原理工大学, 新材料界面科学与工程教育部重点实验室, 太原 030024)

2) (北京大学物理学院, 人工微结构和介观物理国家重点实验室, 北京 100871)

(2022 年 2 月 14 日收到; 2022 年 4 月 17 日收到修改稿)

以单层二硫化钼 (MoS_2) 为代表的过渡金属硫族化合物半导体材料具有良好的光学、电学性质, 近十年来引起了人们广泛的研究兴趣. 合成高质量单层 MoS_2 薄膜是科学研究及工业应用的基础. 最近科研人员提出了盐辅助化学气相沉积生长单层薄膜的方法, 大大提高了单层 MoS_2 薄膜的生长速度及晶体质量. 本文基于此方法, 提出利用氯化钠 (NaCl) 的双辅助方法, 成功制备了高质量的单层 MoS_2 薄膜. 光致发光 (PL) 谱显示其发光强度比无 NaCl 辅助生长的样品有了明显的提高. 本文提出的 NaCl 双辅助生长方法为二维材料的大规模生长提供了思路.

关键词: 二硫化钼, 化学气相沉积, 氯化钠双辅助作用, 单层薄膜生长**PACS:** 81.07.-b, 81.15.Gh, 68.55.A-, 81.10.-h**DOI:** 10.7498/aps.71.20220273

1 引言

二维材料研究的兴起离不开石墨烯的发现. 2004 年研究人员通过一种特殊的胶带对块体石墨进行剥离, 成功得到了单层石墨烯, 因其良好的物理和化学性能而引起了人们的广泛关注^[1]. 石墨烯的带隙为零, 使得它在电子器件应用方面受到了很大的限制. 具有独特层状结构的过渡金属硫族化合物 (TMDCs), 由于其优异的电学和光学性质^[2–5], 同时具有较宽的带隙, 逐步出现在人们的视野中. 在 TMDCs 材料中, 单层二硫化钼 (MoS_2) 具有宽的直接带隙 (约 1.8 eV)^[6]、高载流子迁移率 (约 $410 \text{ cm}^2 \cdot \text{V}^{-1} \cdot \text{s}^{-1}$)^[7]、可见光谱范围内的强光致发光 (PL)^[8], 有望成为制备下一代电子和光电子器件的优选材料, 如柔性场效应晶体管、光电探测

器、非线性光学器件等^[9–12].

TMDCs 材料的广泛应用迫切需要开发可靠的制备方法. 由于晶界会降低 TMDCs 薄膜的光电性质, 因此连续的单晶薄膜的可控生长尤为重要. 目前, 研究人员探索了多种方法来获得高质量的单层 MoS_2 材料, 其中包括机械剥离、锂离子插层、物理气相沉积和化学气相沉积 (CVD) 等^[13–17]. 在这些方法中, CVD 具有可重复制造高质量大面积单层单晶的巨大潜力.

由于熔融盐可以提供强极化力, 使金属键、离子键和共价键在高温下不稳定^[18], 一些水溶性、热稳定性较佳且储量丰富的盐 (NaCl , KBr 等) 成为了常规 CVD 合成二维材料的重要添加剂^[19,20]. 有研究表明^[21], 通过在三氧化钼前驱体中加入卤化钠, 会促进单层 MoS_2 的横向生长; 北京大学 Yang 等^[22] 利用钠钙玻璃做为衬底, 生长了大面积的

* 国家重点研发计划 (批准号: 2018YFE0125700) 和国家自然科学基金 (批准号: 61574006, 61927806) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: jiawei@tyut.edu.cn‡ 通信作者. E-mail: ntang@pku.edu.cn

MoS₂ 单层薄膜, 根据实验和理论计算, 证明了是玻璃中均匀分布的钠使二硫化钼生长的最高能量势垒从 0.53 eV 降低到 0.29 eV, 从而得到了这种高效的生长方式. 现在, 盐辅助的 CVD 策略在很多单层二维材料的制备中均已成功实现^[23–26], 这些辅助剂可以与前驱体 (WO₃ 和 MoO₃ 等) 反应形成熔点较低的中间体, 有利于后续生长的进行. 但是这种策略仅仅停留在前驱体中掺杂, 或是使用含有钠的衬底, 且 NaCl 的加入方式对生长的影响缺乏探索, 这极大地限制了盐辅助 CVD 法制备二维材料的工业化应用. 本文利用新设计的一种半封闭的石英坩埚, 分别研究了在钼 (Mo) 源和硅衬底生长面处掺入 NaCl 对 MoS₂ 薄膜形貌和光学性能的影响, 并利用 NaCl 在衬底和前驱体中起到的双辅助效应, 生长了大面积的单层 MoS₂ 薄膜. 研究发现, 这种效应可以进一步提高生长速度, 获得的单层薄膜在宏观上更均匀, 质量更高, 为大规模低成本的 TMDC 薄膜材料的生长方式提供了新的方向.

2 实验部分

2.1 实验步骤

本实验通过常压 CVD 制备 MoS₂ 薄片, 实验

装置如图 1(a) 所示. 生长之前, 先用丙酮、无水乙醇、去离子水先后对 Si/SiO₂ (300 nm) 衬底进行清洁. 硫粉 (S) 和三氧化钼 (MoO₃) 粉末分别作 S 源和 Mo 源, 称取 500 mg 的 S 和 10 mg 的 MoO₃ 粉末单独放在两个石英舟内. 盛放 Mo 源的石英舟结构如图 1(b) 所示, 将石英舟的载气上游一侧的侧壁去除, 将衬底的 SiO₂ 面 (生长面) 朝下扣在载气下游一侧的侧壁处, 形成一种半封闭结构; Mo 源位于衬底上游 2 cm 处, 生长时载气携带气态的 Mo 源在衬底下方形成涡旋, 提高了生长区域的 MoO₃ 分压^[27]. 为提高单位区域内钼源和硫源的气体分压, 将石英舟放在一根较细的石英管中并放入加热区, 载气上游为 S 源, 下游为 Mo 源. 载气是高纯氩气 (Ar), 气体流量为 50 sccm (1 sccm = 1 mL/min). 装好样品后将管式炉反应器用真空泵抽真空, 通入 Ar 气以去除环境污染物 (反复 3—5 次). 在生长过程中, 将管式炉反应器在 40 min 内升温至 180 °C(左) 和 750 °C(右), 然后保温 15 min. 生长结束后缓慢冷却至 500 °C 左右, 最后快速冷却至室温, 温度通过控温程序设定, 变化趋势如图 1(c) 所示.

为了研究 NaCl 在 MoS₂ 生长中所起的作用, 按照不同的添加方式进行了两组实验, 第一组将

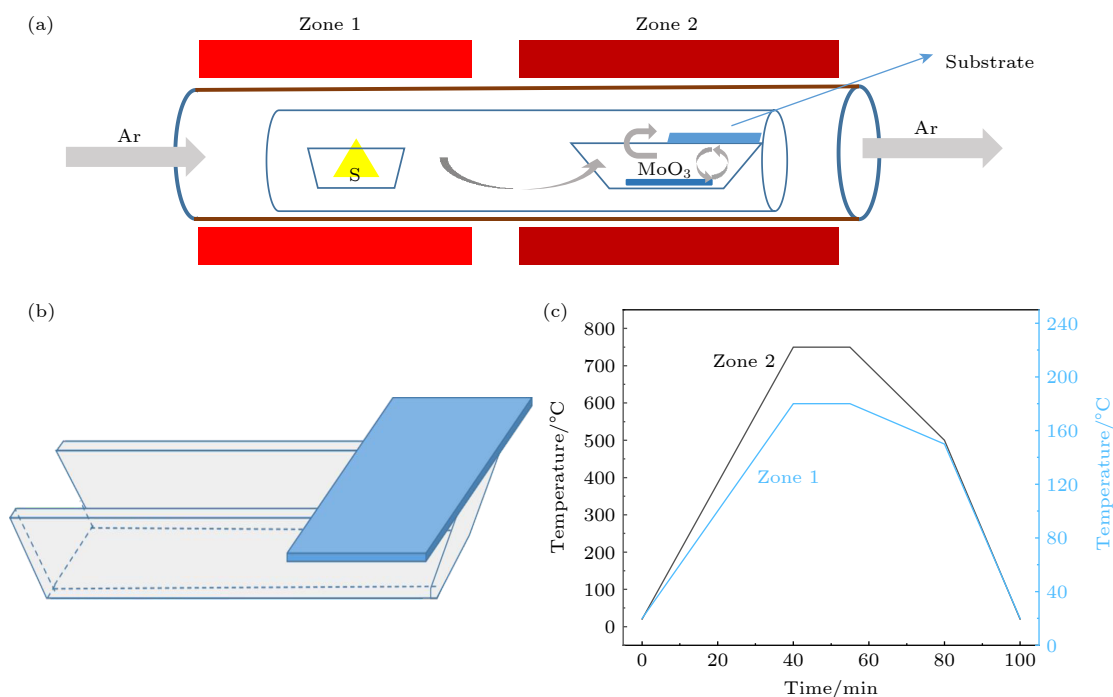


图 1 (a) 生长装置示意图; (b) 盛放 Mo 源的半封闭式石英舟; (c) 温度变化趋势图

Fig. 1. (a) Schematic illustrations of the experimental set-up; (b) semi-enclosed quartz boat for Mo source; (c) temperature program for the growth.

5, 10 和 15 mg 的 NaCl 分别添加在 MoO_3 前驱体中, 第二组将摩尔浓度为 0.1, 0.3 和 0.5 mmol/L 的 NaCl 溶液分别滴加 2 滴在 Si/SiO₂ 衬底上并在 90 °C 的加热板上蒸干以去除溶剂. 以上单组对比实验表明 NaCl 在 MoS_2 的生长过程中所起到的作用有所区别. 本文将两者结合, 在 Mo 源中添加 10 mg 的 NaCl, 同时在衬底上滴加 2 滴摩尔浓度为 0.1, 0.3, 0.5 mmol/L 的 NaCl 溶液, 结果显示这种双辅助方式对于生长单层成膜 MoS_2 有着很好的促进作用.

2.2 样品表征及测试

采用光学显微镜 (OM)、扫描电子显微镜 (SEM, Quanta 200 FEG, FEI 美国) 以及原子力显微镜 (AFM, Dimension Icon, Bruker 美国) 表征样品的形貌; 采用拉曼光谱仪 (Raman) 表征样品的振动模式进而判断样品的层数; 采用 X-射线光电子能谱 (XPS, AXIS Supra, Kratos Analytical Ltd. 英国) 表征样品的化学结合状态; 采用 532 nm 固态激光器作光源的微区光致发光光谱 (PL Spectrum) 表征不同条件下生长的样品的光学性质.

3 结果与讨论

通过调控生长温度、生长时间和载气流量等变量, 在没有添加任何催化剂的条件下得到了单层的 MoS_2 样品. 如图 2(a)—(c) 所示, 随着生长时间的延长, 从 10 min, 15 min 到 20 min, 得到的 MoS_2 三角形并没有明显地扩大. 采用 AFM 测量了 MoS_2 的厚度, 如图 2(b) 插图所示, 测量得到生长样品厚度为 0.78 nm, 与机械剥离得到的单层 MoS_2 厚度一致. 如图 2 的 OM 显示, 增加反应时间对于 MoS_2 的横向生长没有明显的提升作用, 无法将岛状单层

生长成为大面积 MoS_2 单层膜.

通过继续延长生长时间来增加初始成核阶段所需的钼过饱和度并不能得到尺寸大且连续成膜的单层 MoS_2 . 为了提升生长速率, 需寻找合适的反应催化剂. Zhou 等^[28]报道了 NaCl 参与的 CVD 生长可广泛用于各种 TMDCs. 他们证明, 金属氧化物和盐混合可以产生熔融液滴或金属氯化物 (MoO_2Cl_2), 与金属氧化物相比, 可以增加 Mo 源的质量通量和蒸汽压, 增加反应和成核速率, 从而促进均匀、高质量的二维单层材料的大规模生长^[28]. 钼源较高的过饱和度有助于增加单晶的尺寸, 但随着过饱和度的增加, 成核密度也有所增加, 同时更大的成核密度会导致晶向不同的单晶聚结生长^[29]. 在生长过程中, 可以通过控制钼源的过饱和来调节成核密度, 而钼源的过饱和度可以通过改变 NaCl 的量来调节, 与此同时, 为了探究 NaCl 在 MoS_2 生长过程中所起到的不同作用, 本实验改变了 NaCl 的不同掺入方式, 探寻单层 MoS_2 的最佳生长条件.

首先仅在 Mo 源中加入 NaCl 固体, NaCl 的添加量是决定 MoS_2 三角形尺寸的关键. 图 3(a)—(d) 分别显示氯化钠添加量分别为 0, 5, 10 和 15 mg 的 MoS_2 三角形在 Si/SiO₂ 衬底上的光学图像. 从图 3 可看出, 成核密度可以通过 NaCl 的量来调整. 在没有 NaCl (图 3(a)) 的情况下, 成核密度较低, 此时由于钼源的过饱和度较低, 单晶的尺寸较小. 随 NaCl 的加入, 成核密度增加, 单晶的尺寸也增大 (图 3(a)—(c)), 图 3(c) 插图 AFM 结果显示 MoS_2 为单层. 随着 NaCl 量的进一步增加, 如图 3(d) 所示, 成核密度大大增加, 发生了重叠生长 (层数的变化可以明显地从 OM 图像中看出), 单晶的尺度开始缩小. 通过研究结果可以看到, 在 Mo 源处添加 NaCl 提升前驱体的过饱和度以及实现 Mo 源的



图 2 不同生长时间下的 MoS_2 光学显微镜图像 (a) 10 min; (b) 15 min, 内插图为单个 MoS_2 的 AFM 图; (c) 20 min

Fig. 2. Optical microscope images of MoS_2 at different growth times: (a) 10 min; (b) 15 min, the inside image is AFM diagram of single MoS_2 ; (c) 20 min.

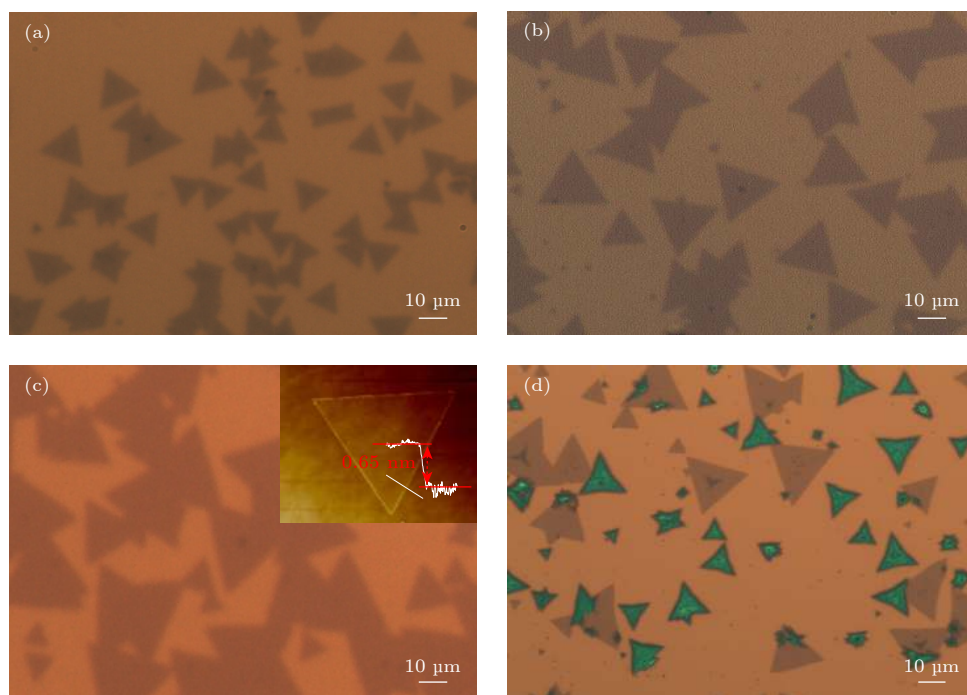


图 3 Mo 源中加入不同 NaCl 量的光学显微镜图像 (a) 0 mg; (b) 5 mg; (c) 10 mg, 内插图为单个 MoS₂ 的 AFM 图; (d) 15 mg
Fig. 3. Optical microscope images of Mo source with different amounts of NaCl: (a) 0 mg; (b) 5 mg; (c) 10 mg, the inside image is an AFM diagram of single MoS₂; (d) 15 mg.

快速供应, 合适的过饱和度对于扩大 MoS₂ 的成核密度和尺寸有着积极的一面. 同时掺入 NaCl 生长的 MoS₂ 均在生长时间为 10 min 下得到, 这是因为熔融盐与前驱体生成的中间态熔点较低, 从而降低了材料的生长温度, 这种碱金属盐在 MoS₂ 生长中所起的作用可以用以下反应总结^[30,31]:

$M_aX + MoO_{3-x} \rightarrow M_2MoO_4 + M_2Mo_2O_7 + \text{byproduct}\uparrow$,
其中 M 表示碱金属元素, X 表示卤素元素, 气体副产物可以是 MoO_{*x*}Cl_{*y*}、水等^[32].

可以看出 NaCl 的存在可以降低生长温度, 中间产物氯氧化物的形成使得反应更容易进行. 为了生长成膜的样品, MoS₂ 的成核点也是必须要考虑的因素, 为了研究衬底上滴加 NaCl 辅助剂对生长过程产生的影响, 将 NaCl 分别配置成摩尔浓度为 0.1, 0.3 和 0.5 mmol/L 的溶液, 将它们分别滴加在清洁的衬底上, 放到 90 °C 的加热板烘干 10 min 以除去溶剂, 生长过程中钼源区域没有添加 NaCl. 图 4(a)—(c) 是生长时间为 10 min 的样品的光学图像, 随着 NaCl 摩尔浓度从 0.1 mmol/L 增加到 0.5 mmol/L, MoS₂ 的成核密度先增加后减少. 与图 3 的光学图像比较可以看出, NaCl 添加在衬底上更容易增加 MoS₂ 的成核点, 同时成核达到一定密度后 MoS₂ 厚度也发生了变化. 当 NaCl 位于衬

底上时, NaCl 附近 Mo 源的中间产物浓度相当高, 显著提高了前驱体 MoOCl_{*x*} 的蒸汽压, 导致双层和多层的形成^[32]. 因此, 可以通过调节衬底上添加盐的量, 精确控制二硫化钼薄片的厚度, 提高 MoS₂ 的均匀成核率. 同样地, Yang 等^[22] 通过用钠钙玻璃为衬底, 钼箔为金属前驱体, 通过面对面供应策略证实了 Na 在衬底上可以起到均匀成核的作用.

如上所述, 更快速和连续的前驱体供应是高质量单层 MoS₂ 薄膜材料生长的必要条件, 但 MoS₂ 三角形层数增加不利于得到成膜的单层样品. 通过以上两组实验可以看出, 在 Mo 源处添加 NaCl 能降低反应温度, 提升前驱体的过饱和度, 实现 Mo 源的快速供应; 在衬底上添加 NaCl, 可增大成核点的密度, 且能够实现 MoS₂ 的层数控制. 为了实现 MoS₂ 的单层成膜生长, 本文提出 NaCl 的双协同辅助催化, 采用 Mo 源和衬底同时加入 NaCl 的方式, 通过调节掺入时不同的浓度搭配, 所得结果见图 5—图 8. 如图 5(a)—(c) 所示, 当 Mo 源与衬底处 NaCl 的摩尔浓度分别为 10 mg 和 0.3 mmol/L 时, 生长得到的 MoS₂ 尺寸最大, 且仅在衬底边缘处能看到单个的 MoS₂ 三角形, 生长时间缩短到 3 min 左右. 图 5(d) 为使用 Si/SiO₂ 衬底并在最佳条件下生长后的实物照片, 以及硅片上方左中右三

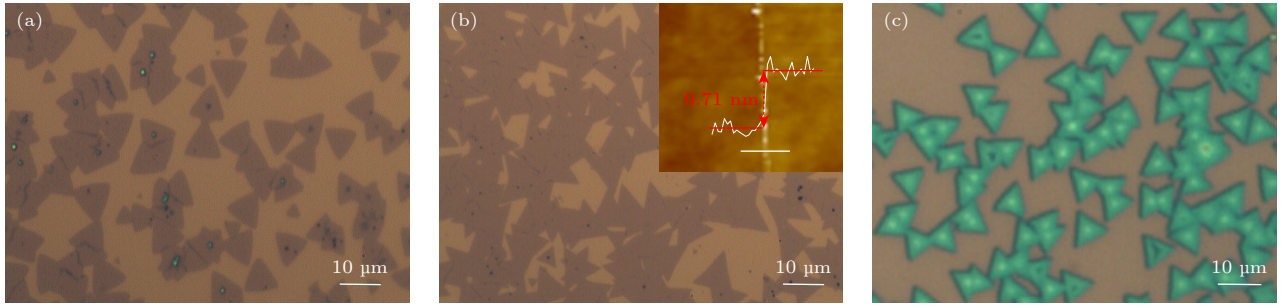


图 4 衬底上添加不同浓度 NaCl 的光学显微镜图像 (a) 0.1 mmol/L; (b) 0.3 mmol/L, 内插图为单个 MoS₂ 的 AFM 图; (c) 0.5 mmol/L

Fig. 4. Optical microscope images of different concentrations of NaCl: (a) 0.1 mmol/L; (b) 0.3 mmol/L, the inside image is an AFM diagram of single MoS₂; (c) 0.5 mmol/L.

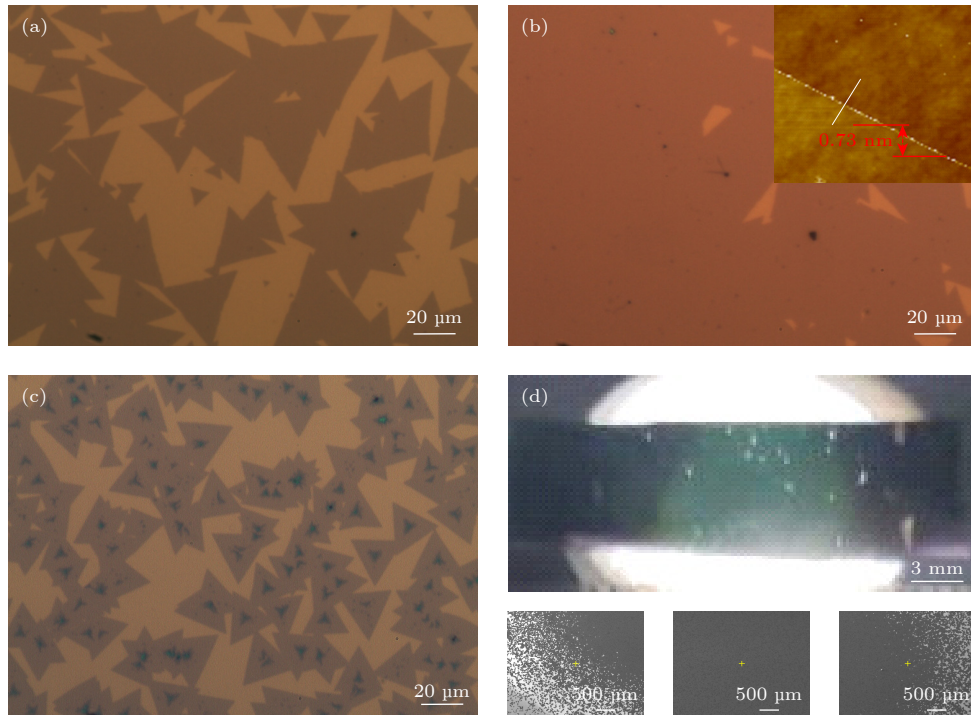


图 5 (a)–(c) 不同浓度的 NaCl 搭配下的光学显微镜图像 (a) 10 mg + 0.1 mmol/L; (b) 10 mg + 0.3 mmol/L, 内插图为 MoS₂ 边界的 AFM 图; (c) 10 mg + 0.5 mmol/L. (d) 10 mg + 0.3 mmol/L 条件下生长的 MoS₂ 在 Si 衬底的照片以及左中右三块区域的大范围 SEM 图像

Fig. 5. (a)–(c) Optical microscope images with different concentrations of NaCl: (a) 10 mg + 0.1 mmol/L; (b) 10 mg + 0.3 mmol/L, the inside image is an AFM diagram of MoS₂ boundary; (c) 10 mg + 0.5 mmol/L. (d) Photographs of MoS₂ grown under the condition of 10 mg + 0.3 mmol/L and large range SEM images corresponding to the three regions of left, middle and right.

块区域 500 μm 比例尺下的 SEM 图. 从图 5(d) 可以明显地看到, 边缘处样品由单个三角形向中间连续生长成膜的转变. AFM 测试 (图 5(b) 插图) 得到膜边界厚度为 0.73 nm, 为单层 MoS₂ 的厚度值.

分别对未掺入 NaCl、在 Mo 源中加入 NaCl、在衬底上滴加 NaCl 以及在 Mo 源中和衬底上均加入 NaCl 的样品进行了微区拉曼表征, 如图 6 所示. 在 4 种 MoS₂ 样品的拉曼光谱中均可清晰地分辨两个典型的特征峰: 一个明显的峰 (波数为 382 cm⁻¹)

属于 E_{2g}¹ 模式, 另外一个更高波数 (约 402 cm⁻¹) 的峰为 A_{1g} 模式 [33]. 在 NaCl 作用下, 二硫化钼的 A_{1g} 和 E_{2g}¹ 峰的位置变化不大, 两种拉曼模式之间的波数差约为 20 cm⁻¹, 与单层结构相对应.

图 7(a)–(d) 为未掺入 NaCl 生长的 MoS₂ 和 NaCl 双辅助生长的成膜 MoS₂ 的 XPS 光谱. 图 7(a) 和图 7(b) 显示无论 NaCl 是否存在, 在 229.3 和 233.5 eV 处附近均有两个峰, 分别对应于 Mo 3d 的 Mo 3d_{5/2} 和 Mo 3d_{3/2}, 在 163.0 和 164.3 eV 附

近有两个峰对应 S 2p 的 $2p_{3/2}$ 和 $2p_{1/2}$, 与之前报道的结果一致 [34]. 是否掺入 NaCl 对于 1077 eV 附近的 Na 1s 峰差异明显, 如图 7(c) 所示. 结果表明, NaCl 在反应过程中可以微量地并入 MoS₂, 而其中 Mo, S 比几乎不发生变化. 因此, NaCl 对 MoS₂ 的合成存在一定作用, 也会微弱地并入晶格, 并不会对 MoS₂ 的成键产生明显的影响.

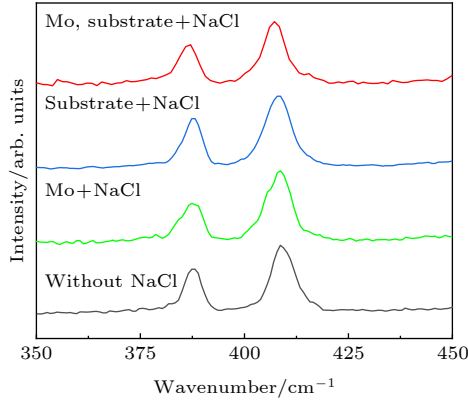


图 6 在不同位置添加 NaCl 生长的 MoS₂ 的拉曼图

Fig. 6. Raman spectra of MoS₂ growing at different locations of NaCl.

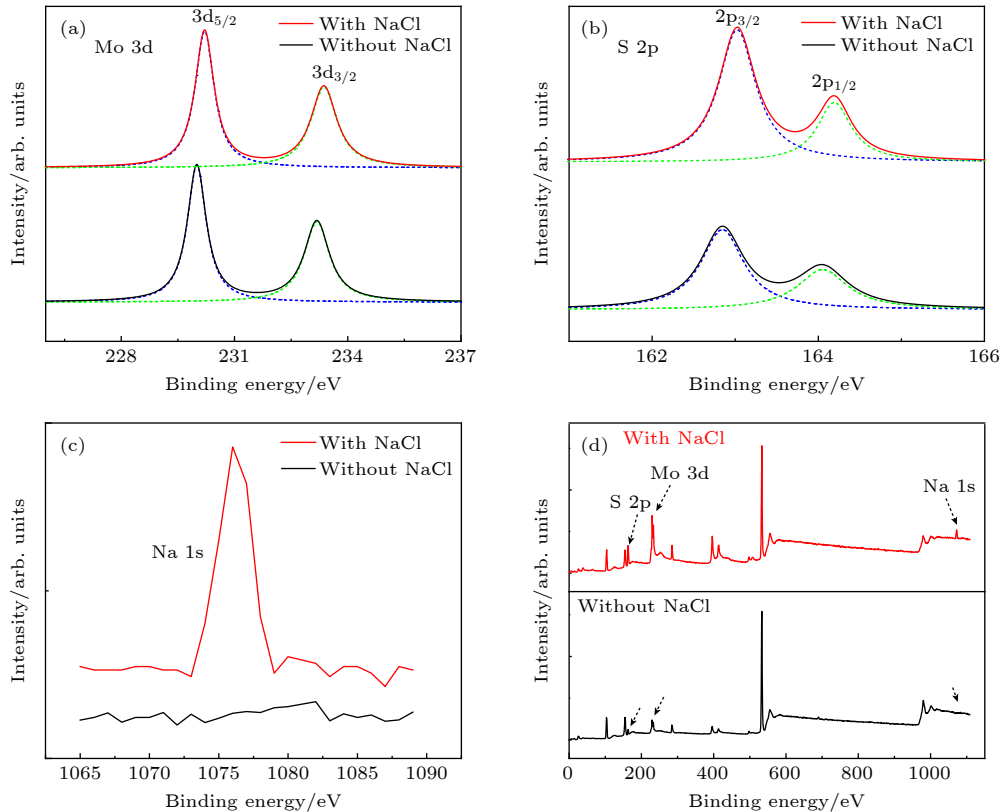


图 7 掺入 NaCl 和未掺入 NaCl 条件下合成单层 MoS₂ 的 XPS 表征, 其中 (a)—(c) 分别是 (a) Mo 3d, (b) S 2p 和 (c) Na 1s 的 XPS 图; (d) XPS 全谱

Fig. 7. XPS characterizations of monolayer MoS₂ synthesized with NaCl and without NaCl. The XPS spectra of two MoS₂ samples: (a) Mo 3d; (b) S 2p; (c) Na 1s. (d) The full spectrum of XPS.

图 8(a) 和图 8(b) 显示了 4 个同样位置 MoS₂ 样品在同一测试条件下的微区 PL 光谱. 在掺入 NaCl 生长的 3 个 MoS₂ 样品中, PL 强度更强, 半高全宽更窄, 使用 NaCl 双辅助的样品比未添加的 PL 强度提升了 48 倍, 比单处添加的 PL 强度也提高了 2—3 倍. 这些结果表明, 生长过程 NaCl 的掺杂在 PL 增强中起着重要的作用. 如图 8(a) 所示, 在掺入 NaCl 生长的 MoS₂ 样品中, 可以识别出两个明显的峰: 位于 1.83 eV 附近的较强峰对应 A 峰, 位于 1.96 eV 附近的较弱峰对应 B 峰. 与未掺入 NaCl 的样品相比, A 峰的位置红移了约 26 meV, 如图 8(b) 所示. 由于单层 MoS₂ 的自旋-轨道耦合作用导致价带劈裂, A 峰和 B 峰分别对应 A 激子 (X_{A0}) 和 B 激子的光学跃迁 [35]. 而盐辅助 MoS₂ 样品中 A 峰的红移与带负电荷的激子 (trions, X_{A-} : 自由电子通过库仑相互作用与中性激子结合) 的重组有关. 中性激子 X_{A0} 的增强以及带电激子 X_{A-} 的出现都表明生长过程中 NaCl 的加入可以促进其激子的发射效率 [36].

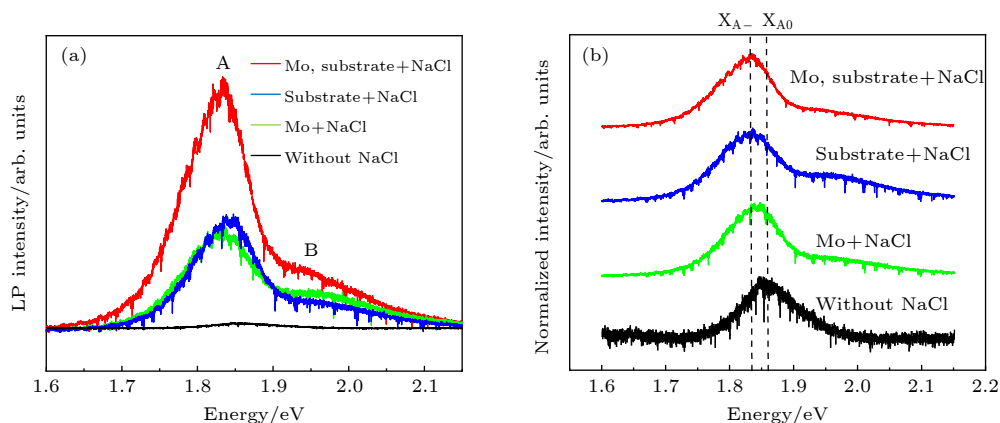


图 8 (a) 4 种在不同位置添加 NaCl 生长的单层 MoS₂ 的 PL 光谱; (b) 4 种样品的归一化 PL 光谱

Fig. 8. (a) PL spectra of four monolayer MoS₂ grown at different locations with NaCl addition; (b) normalized PL spectra of four samples.

4 结 论

本研究将实验装置进行了优化, 通过定制石英舟使载气承载的 Mo 源更充分地到达衬底位置. 提出了 NaCl 的双辅助生长方法, 发现 NaCl 辅助生长可以增加前驱体过饱和度并增加 MoS₂ 生长的成核点, 这两者的调控对于 MoS₂ 薄膜的制备非常关键. PL 测试结果显示 MoS₂ 薄膜发光强度比无 NaCl 掺入生长的样品提高了 48 倍, 也比单处添加 NaCl 生长的 MoS₂ 薄膜提高了 2—3 倍. 本研究为单层 MoS₂ 薄膜的生长提供了新的思路.

参考文献

- [1] Novoselov K S, Geim A K, Morozov S V, Jiang D, Zhang Y, Dubonos S V, Grigorieva I V, Firsov A A 2004 *Science* **306** 666
- [2] Xie Y, Wang Z, Zhan Y, Zhang P, Wu R, Jiang T, Wu S, Wang H, Zhao Y, Nan T, Ma X 2017 *Nanotechnology* **28** 084001
- [3] Chen J, Zhao X, Tan S J, Xu H, Wu B, Liu B, Fu D, Fu W, Geng D, Liu Y, Liu W, Tang W, Li L, Zhou W, Sun T C, Loh K P 2017 *J. Am. Chem. Soc.* **139** 1073
- [4] Wu T, Zhang X, Yuan Q, Xue J, Lu G, Liu Z, Wang H, Wang H, Ding F, Yu Q, Xie X, Jiang M 2016 *Nat. Mater.* **15** 43
- [5] Xu Y Q, Wang C 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 184216 (in Chinese) [徐依全, 王聪 2020 物理学报 **69** 184216]
- [6] Mak K F, Lee C, Hone J, Shan J, Heinz T F 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 136805
- [7] Yu Z, Ong Z Y, Li S, Xu J B, Zhang G, Zhang Y W, Shi Y, Wang X 2017 *Adv. Funct. Mater.* **27** 1604093
- [8] Han T, Liu H, Wang S, Chen S, Li W, Yang X, Cai M, Yang K 2019 *Nanomaterials* **9** 740
- [9] Lembke D, Kis A 2012 *ACS Nano* **6** 10070
- [10] Zhang W, Huang J K, Chen C H, Chang Y H, Cheng Y J, Li L J 2013 *Adv. Mater.* **25** 3456
- [11] Yin X B, Ye Z L, Chenet D A, Ye Y, Brien K O, Hone J C, Zhang X 2014 *Science* **344** 488
- [12] Fan Z R, Kong Y Y, Li Y H, Li Z, Jia T T 2019 *J. Synth. Cryst.* **48** 1190 (in Chinese) [樊子冉, 孔洋洋, 李宇豪, 李志, 贾婷婷 2019 人工晶体学报 **48** 1190]
- [13] Fu D, Zhao X, Zhang Y Y, Li L, Xu H, Jang A R, Yoon S I, Song P, Poh S M, Ren T, Ding Z, Fu W, Shin T J, Shin H S, Pantelides S T, Zhou W, Loh K P 2017 *J. Am. Chem. Soc.* **139** 9392
- [14] Zeng Z, Yin Z, Huang X, Li H, He Q, Lu G, Boey F, Zhang H 2011 *Angew. Chem. Int. Ed.* **50** 11093
- [15] Wang S, Rong Y, Fan Y, Pacios M, Bhaskaran H, He K, Warner J H 2014 *Chem. Mater.* **26** 6371
- [16] Wei X X, Cheng Y, Huo D, Zhang Y H, Wang J Z, Hu Y, Shi Y 2014 *Acta Phys. Sin.* **63** 217802 (in Chinese) [魏晓旭, 程英, 霍达, 张宇涵, 王军转, 胡勇, 施毅 2014 物理学报 **63** 217802]
- [17] Huang Y, Pan Y H, Yang R, Bao L H, Meng L, Luo H L, Cai Y Q, Liu G D, Zhao W J, Zhou Z, Wu L M, Zhu Z L, Huang M, Liu L W, Liu L, Cheng P, Wu K H, Tian S B, Gu C Z, Shi Y G, Guo Y F, Cheng Z G, Hu J P, Zhao L, Yang G H, Sutter E, Sutter P, Wang Y L, Ji W, Zhou X J, Gao H J 2020 *Nat. Commun.* **11** 2453
- [18] Liu X, Fechler N, Antonietti M 2013 *Chem. Soc. Rev.* **42** 8237
- [19] Huang L, Hu Z, Jin H, Wu J, Liu K, Xu Z, Wan J, Zhou H, Duan J, Hu B, Zhou J 2020 *Adv. Funct. Mater.* **30** 1908486
- [20] Chen K, Chen Z, Wan X, Zheng Z, Xie F, Chen W, Gui X, Chen H, Xie W, Xu J 2017 *Adv. Mater.* **29** 1700704
- [21] Xie Y, Ma X, Wang Z, Nan T, Wu R, Zhang P, Wang H, Wang Y, Zhan Y, Hao Y 2018 *MRS Adv.* **3** 365
- [22] Yang P, Zou X, Zhang Z, Hong M, Shi J, Chen S, Shu J, Zhao L, Jiang S, Zhou X, Huan Y, Xie C, Gao P, Chen Q, Zhang Q, Liu Z, Zhang Y 2018 *Nat. Commun.* **9** 979
- [23] Lin Y C, Yeh C H, Lin H C, Siao M D, Liu Z, Nakajima H, Okazaki T, Chou M Y, Suenaga K, Chiu P W 2018 *ACS Nano* **12** 12080
- [24] Pandey S K, Alsalman H, Azadani J G, Izquierdo N, Low T, Campbell S A 2018 *Nanoscale* **10** 21374
- [25] Huan Y, Shi J, Zou X, Gong Y, Xie C, Yang Z, Zhang Z, Gao Y, Shi Y, Li M, Yang P, Jiang S, Hong M, Gu L, Zhang Q, Yan X, Zhang Y 2019 *J. Am. Chem. Soc.* **141** 18694
- [26] Li P, Cui J, Zhou J, Guo D, Zhao Z, Yi J, Fan J, Ji Z, Jing X, Qu F, Yang C, Lu L, Lin J, Liu Z, Liu G 2019 *Adv.*

- Mater.* **31** e1904641
- [27] Lan F, Yang R, Xu Y, Qian S, Zhang S, Cheng H, Zhang Y 2018 *Nanomaterials* **8** 100
- [28] Zhou J, Lin J, Huang X, Zhou Y, Chen Y, Xia J, Wang H, Xie Y, Yu H, Lei J, Wu D, Liu F, Fu Q, Zeng Q, Hsu C H, Yang C, Lu L, Yu T, Shen Z, Lin H, Yakobson B I, Liu Q, Suenaga K, Liu G, Liu Z 2018 *Nature* **556** 355
- [29] Chen L, Zang L, Chen L, Wu J, Jiang C, Song J 2021 *CrystEngComm* **23** 5337
- [30] Li S, Wang S, Tang D M, Zhao W, Xu H, Chu L, Bando Y, Golberg D, Eda G 2015 *Appl. Mater. Today* **1** 60
- [31] Wang P, Lei J, Qu J, Cao S, Jiang H, He M, Shi H, Sun X, Gao B, Liu W 2019 *Chem. Mater.* **31** 873
- [32] Xie C, Yang P, Huan Y, Cui F, Zhang Y 2020 *Dalton Trans.* **49** 10319
- [33] Wang W, Shu H, Wang J, Cheng Y, Liang P, Chen X 2020 *ACS Appl. Mater. Interfaces* **12** 9563
- [34] Song J G, Ryu G H, Lee S J, Sim S, Lee C W, Choi T, Jung H, Kim Y, Lee Z, Myoung J M, Dussarrat C, Lansalot-Matras C, Park J, Choi H, Kim H 2015 *Nat. Commun.* **6** 7817
- [35] Splendiani A, Sun L, Zhang Y, Li T, Kim J, Chim C Y, Galli G, Wang F 2010 *Nano Lett.* **10** 1271
- [36] Mak K F, He K, Lee C, Lee G H, Hone J, Heinz T F, Shan J 2013 *Nat. Mater.* **12** 207

SPECIAL TOPIC—Novel properties of low-dimensional materials

Growth of monolayer MoS₂ films dual-assisted by NaCl*

Wang Fen-Tao¹⁾ Fan Teng²⁾ Zhang Shi-Xiong²⁾ Sun Zhen-Hao²⁾
 Fu Lei²⁾ Jia Wei^{1)†} Shen Bo²⁾ Tang Ning^{2)‡}

1) (Key Laboratory of Interface Science and Engineering for Advanced Materials, Ministry of Education,
 Taiyuan University of Technology, Taiyuan 030024, China)

2) (State Key Laboratory of Artificial Microstructure and Mesoscopic Physics,
 School of Physics, Peking University, Beijing 100871, China)

(Received 14 February 2022; revised manuscript received 17 April 2022)

Abstract

In recent years, transition metal dichalcogenides materials represented by monolayer molybdenum disulfide (MoS₂) have aroused great interest due to their excellent optical and electrical properties. The synthesis method of high-quality monolayer MoS₂ film is a key problem for scientific research and industrial application. Recently, researchers have proposed a salt-assisted chemical vapor deposition method for growing the monolayer films, which greatly promotes the growth rate and quality of monolayer film. By using this method, we design a growth source of semi-enclosed quartz boat, and successfully obtain high-quality monolayer MoS₂ films by using the double auxiliary action of sodium chloride (NaCl). Scanning electron microscopy shows the excellent film formation, and the photoluminescence spectra show that the luminescence intensity is significantly higher than that of the sample grown without NaCl. The NaCl double-assisted growth method proposed in this study can reduce the growth temperature of MoS₂, shorten the growth time, and improve the optical properties of the films. Besides, the operation is simple and the cost is low, which provides an idea for growing the large-scale two-dimensional materials.

Keywords: MoS₂, chemical vapor deposition, NaCl dual-assist strategy, monolayer film growth

PACS: 81.07.-b, 81.15.Gh, 68.55.A-, 81.10.-h

DOI: 10.7498/aps.71.20220273

* Project supported by the National Key Research and Development Program of China (Grant No. 2018YFE0125700) and the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 61574006, 61927806).

† Corresponding author. E-mail: jiawei@tyut.edu.cn

‡ Corresponding author. E-mail: ntang@pku.edu.cn