• 电子信息材料与器件 •

# 二维纳米机电谐振器高效制备

梁亚春，朱健凯，肖　飞，焦陈寅，徐　博，夏　娟，王曾晖*

(电子科技大学基础与前沿研究院　成都　610054)

【摘要】设计并实现了一种二维纳米器件多功能制备系统，该系统不仅能够完成二维材料的高效转移，还能够实现金属电极的准确淀积，从而实现二维器件的高效、一体化制备。利用该系统，成功制备了基于二维半导体的纳米机电谐振器，并对器件进行了机电谐振幅频特性的测试。研究结果表明，设计的二维纳米器件多功能制备系统在纳米谐振器制备与研究中极具潜力。

**关　键　词**　干法转移；　纳米器件制备；　纳机电谐振器；　金属电极制备

**中图分类号**　TN305.99　　**文献标志码**　A　　doi:10.12178/1001-0548.2021399

# Fast Prototyping of Two-Dimensional Nanoelectromechanical Resonators

LIANG Yachun, ZHU Jiankai, XIAO Fei, JIAO Chenyin, XU Bo, XIA Juan, and WANG Zenghui*

(Institute of Fundamental and Frontier Sciences, University of Electronic Science and Technology of China　Chengdu　610054)

**Abstract**　In this work, we report a multifunctional system for facile fabrication of 2D nanodevices. The system has advantages of achieving both the transfer process and electrodes deposition all using the same setup, and thus can efficiently prototyping nanodevices. Using this multifunctional fabrication system, we successfully fabricate $WSe_2$ resonators and then measure the device performance. Our work shows great potential in realizing resonant 2D devices using this multifunctional nanodevice fabrication system.

**Key words**　dry transfer; nanodevice fabrication; nanoelectromechanical resonator; patterning electrodes

以石墨烯 (graphene)、氮化硼 (h-BN)、过渡金属硫族化合物 (transition metal dichalcogenides, TMDCs) 为代表的二维层状材料具有超薄的原子级厚度、优异的电学和力学[1-3]特性，在二维纳米电子领域引起了极大关注。基于二维材料的纳米机电系统谐振器 (nano-electromechanical system resonator, NEMS resonator) 是一种具有机械自由度的纳米电子器件[4-5]。纳米谐振器在物质探测、传感、射频信号处理等领域具有极大的研究潜力和应用价值[6]。二硒化钨 ($WSe_2$) 是二维 TMDCs 家族成员中的一种具有代表性的半导体材料，因为 $WSe_2$ 不仅具有随层数、厚度可调的禁带宽度 (单层 $WSe_2$ 禁带宽度为 1.7 eV，多层 $WSe_2$ 禁带宽度为 1.2 eV)[7-8]；文献 [9] 研究得出单层 $WSe_2$ 的杨氏模量可以达到 258 GPa，使其在纳米谐振器中具有很大优势。

制备二维纳米器件需要一系列实验，通常包括：1) 制备所需的二维材料薄片；2) 将二维材料转移到目标基底上；3) 在二维材料上制备金属电极，便于进行电学测量。二维材料薄片的获得主要有两种途径：1) 自底向上法，如化学气相沉积 (chemical vapor deposition, CVD) 法[10]；2) 自顶向下法，如机械剥离法[11]。机械剥离法操作简单、灵活、获得的二维晶体质量高，已成为二维纳米器件研究中最为广泛使用的方法。

二维材料的转移方法主要分为湿法转移和干法转移。湿法转移的过程为：在二维材料和基底上旋涂聚甲基丙烯酸甲酯 (ploymethyl methacrylate, PMMA)，接着将其放置到刻蚀溶液中 (如 $FeCl_3$、

收稿日期：2021－12－26；修回日期：2022－01－12
基金项目：国家自然科学基金 (U21A20459)
作者简介：梁亚春 (1987－)，男，博士生，主要从事二维半导体微纳电子器件方面的研究.
*通信作者：王曾晖，E-mail：zenghui.wang@uestc.edu.cn

NaOH 等溶液) 进行基底的刻蚀。完成基底的刻蚀之后，再将粘附二维材料的 PMMA 转移到新的基底上面，最后使用丙酮等有机物除去 PMMA[12-13]。湿法转移适合大面积二维材料，不足之处是器件样品会受到一定的污染。因此，对于具有悬浮结构的纳米机电谐振器，不能利用湿法转移进行器件的制备。干法转移的过程为：将机械剥离的二维薄层材料粘附在聚二甲基硅氧烷 (PDMS) 表面，然后利用二维材料转移对准系统，借助于二维薄层材料与基底之间或二维薄层材料之间的范德华力 (van der Waals force)，直接在目标区域进行材料的“转移+堆叠”[14-15]。材料的干法转移具有灵活、高效等优点，且转移过程中不需要接触任何溶液试剂。对于环境敏感的二维材料，也能够在手套箱中进行干法转移操作。绝大多数情况下，对于纳米机电系统谐振器，只能通过干法转移手段制备器件。

二维材料转移完成后，需要进行金属电极的制备[16-17]。传统金属电极的制备需要旋涂 PMMA，需要掩模版和二维材料之间的精确对准，还需要使用电子束曝光系统或者光刻系统等设备，电极制备过程也不可避免地需要使用丙酮等有机溶剂。在传统纳米器件制备工艺中，二维材料的转移和金属电极制备所需要的对准操作，通常都需要利用多套不同的设备实现。因此，从时间和空间的角度考虑，制备过程效率不高、操作不便。

本文基于干法转移技术在纳米机电谐振器制备研究中的独特优势，设计了二维纳米器件多功能制备系统。通过机械剥离法获得二维薄层材料，该多功能制备系统可以实现二维薄层材料的高效转移，以及金属淀积掩模版和二维薄层之间的高效对准，进而实现高质量金属电极的制备。该系统真正实现了纳米器件从干法转移到金属电极制备的高效、一体化工艺流程。基于该多功能制备系统，成功制备了基于 $WSe_2$ 的纳米谐振器[18]，并对器件进行了拉曼光学表征以及幅频特性的测试。

## 1　二维纳米器件多功能制备系统

本文设计的二维纳米器件多功能制备系统结构如图 1 所示。该多功能制备系统主要由底座、位移模块 (包括 *X*，*Y*，*Z* 轴方向的位移)、多功能转换片以及基底固定台组成。

其中，位移模块主要实现如下 4 个功能：1) 二维材料 (或掩模版) 和目标基底之间的对准；2) 多功能转换片的下压；3) 二维材料 (或掩模版) 和目标基底之间的紧密接触；4) 多功能转换片的上提等操作。多功能转换片的作用是固定 PDMS 或掩模版，用于实现多功能系统在材料干法转移和金属电极制备之间功能的高效切换。基底固定台不仅有固定目标基底的作用，还可以对目标基底进行旋转操作，实时调整二维材料 (或掩模版) 与目标基底之间的相对角度，提高器件制备的效率。

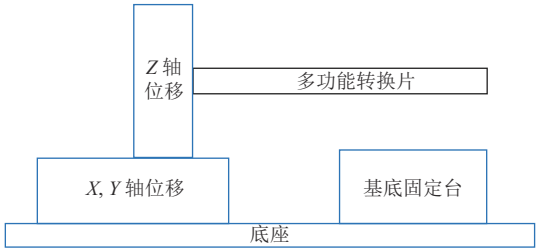



图 1　二维纳米器件多功能制备系统结构

该多功能系统能够高效完成材料的干法转移和金属电极制备，系统升级方便，在基底固定台上安装加热模块，用于满足材料转移过程中基底加热的需求。系统的兼容性也高，可以在绝大多数显微镜和金属淀积设备中兼容使用，也可以将其放置到手套箱中进行材料的转移。

## 2　$WSe_2$ 纳米谐振器的制备

### 2.1　$WSe_2$ 的机械剥离

本文采用机械剥离法获得所需的 $WSe_2$ 薄层。首先，剪取一定尺寸的 PDMS，将其固定到多功能转换片的表面，然后取少量的 $WSe_2$ 晶体，放置到剥离胶带中，将胶带反复对折，直到胶带上的 $WSe_2$ 晶体呈现细小的颗粒状，接着用多功能转换片上的 PDMS 粘取胶带上的 $WSe_2$，最后，在光学显微镜下定位合适的 $WSe_2$薄层。制备得到的二维 $WSe_2$ 薄层在 PDMS 上的光学照片，如图 2 所示。

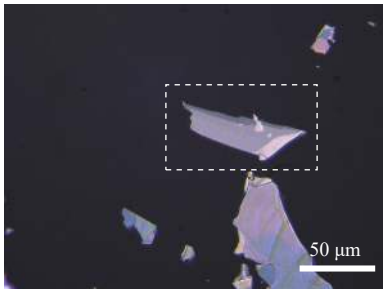



图 2　PDMS 上的 $WSe_2$ 光学照片

### 2.2　多功能制备系统进行 $WSe_2$ 的干法转移

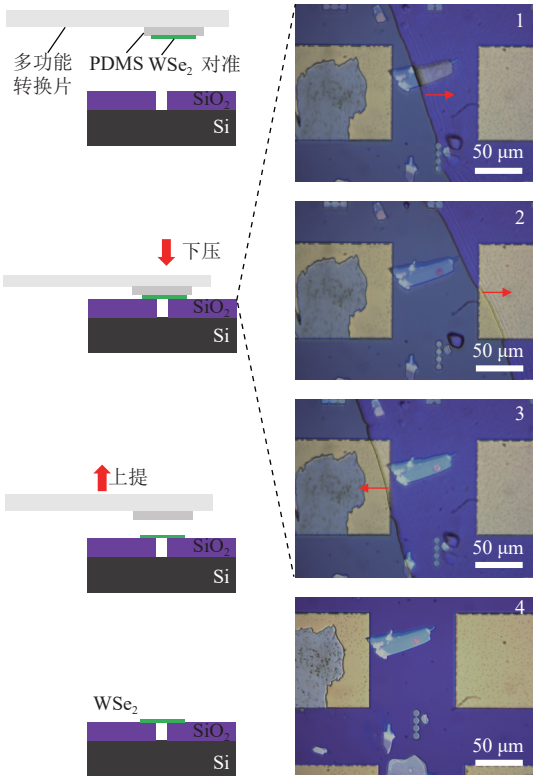
制备 $WSe_2$ 谐振器，首先需要将 $Si/SiO_2$ 基底上刻蚀出圆形的腔洞。然后利用干法转移将二维

$WSe_2$ 薄层转移到有腔洞的基底表面，同时 $WSe_2$ 薄层需要将圆形腔洞完全封闭覆盖，才能成功得到悬浮的二维器件结构。

干法转移前，按照以下步骤清洗 $Si/SiO_2$ 基底：1) 将 $Si/SiO_2$ 基底放置到小烧杯中，加入适量丙酮，超声 10 min，用于除去基底表面附着的杂质和有机物；2) 倒掉超声过的丙酮，烧杯中再加入适量的异丙醇，继续超声 10 min，用于除去基底表面附着的杂质和丙酮，接着用氮气枪吹干 $Si/SiO_2$ 基底的表面；3) 将 $Si/SiO_2$ 基底放置到管式炉中，在氮气气氛下进行退火 (300 °C，0.5 h)。基底退火的目的是彻底清除基底表面的残留物，增加干法转移过程中二维薄层材料与基底之间的附着力。然后将清洗干净的 $Si/SiO_2$ 基底固定在多功能系统的基底固定台上，进行器件的干法转移制备。

图 3 展示了利用多功能制备系统进行 $WSe_2$ 干法转移的原理和转移过程步骤。将粘附有待转移 $WSe_2$ 的多功能转换片固定到多功能制备系统中，然后在显微镜下进行观察，调整系统的位移模块，使得 $WSe_2$ 和 $Si/SiO_2$ 基底目标区域进行对准。继续调整位移模块的 $Z$ 轴方向 (下压)，使 $WSe_2$ 和 $Si/SiO_2$ 基底不断接近，直到 $WSe_2$ 和 $Si/SiO_2$ 基底完全紧密地接触。当 $WSe_2$ 和 $Si/SiO_2$ 基底接触一段时间后，在 $WSe_2$ 和 $Si/SiO_2$ 基底之间产生足够强度的范德华力，然后再慢慢调整位移模块的 $Z$ 轴方向 (上提)，使得多功能转换片 (固定有 PDMS) 和 $WSe_2$ 脱离。最终，$WSe_2$ 会牢牢粘附在 $Si/SiO_2$ 基底的表面，形成具有悬浮结构的二维谐振器件。

多功能转换片下压过程中 (步骤 1)，PDMS(粘附有 $WSe_2$) 和 $Si/SiO_2$ 基底存在着部分接触，其中接触界面存在着空气间隙，被称为“潮水”，箭头表示“潮水”移动的方向。随着多功能转换片进一步下压 (步骤 2)，PDMS(粘附有 $WSe_2$) 和 $Si/SiO_2$ 基底接触更多直到完全接触。当 PDMS 下压时，“潮水”的移动方向与材料 $WSe_2$ 接触基底移动的方向一致。当 $WSe_2$ 与 $Si/SiO_2$ 基底充分接触一段时间后，上提多功能转换片和 PDMS，“潮水”往相反的方向移动。此时，当“潮水”完全离开 $WSe_2$ 后，表示 $WSe_2$ 和 PDMS 完全脱离 (步骤 3)。利用“潮水”的移动方向变化，可以清晰地观测整个材料的干法转移过程。转移成功的 $WSe_2$ 谐振器 (步骤 4)，$WSe_2$ 和 $Si/SiO_2$ 基底之间具有足够强度的范德华力，使得 $WSe_2$ 牢牢粘附在基底的表面。其中，$WSe_2$ 的一端悬浮在基底的圆形腔洞表面，$WSe_2$ 的另一端与基底上的 Pad 相接触。为了获得更好、更稳定的电学接触，则需要在 $WSe_2$ 和基底 Pad 之间进行金属电极淀积。




a. 原理 b. 转移步骤

图 3 基于多功能制备系统的 $WSe_2$ 干法转移

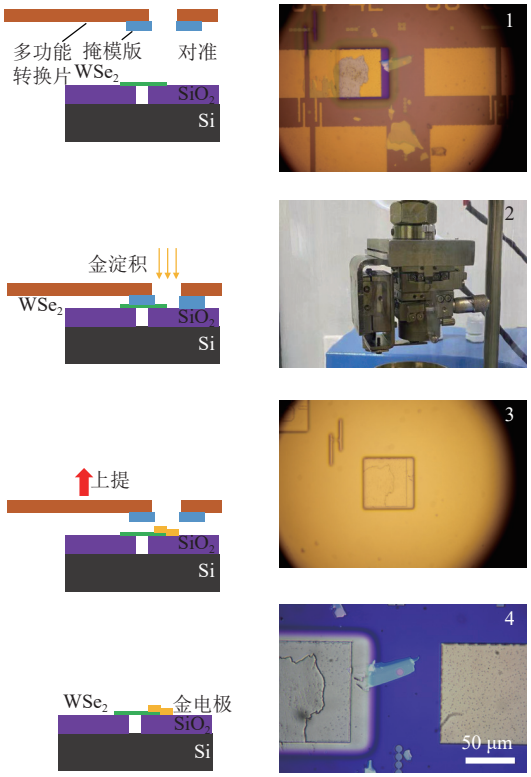
在利用多功能系统转移材料的过程中，通常需要针对不同的材料体系 (如转移特别薄层的 $WSe_2$) 对基底进行特殊加热处理，来提高 $WSe_2$ 和 $Si/SiO_2$ 基底表面之间的范德华力，从而提高转移的成功率。这种加热情况下的干法转移，需要在多功能系统的基底固定台上固定加热模块。

### 2.3 多功能系统进行 $WSe_2$ 谐振器的金属电极制备

为了使干法转移的 $WSe_2$ 谐振器件具有更好地电学接触，便于对器件进行电学激励测试，需要在 $WSe_2$ 连接基底 Pad 的一端制备金属电极。利用多功能系统制备金属电极，需要将材料干法转移用的多功能转换片更换为金属电极淀积用的多功能转换片，然后将掩模版固定在多功能转换片一端的开孔处，最后通过和干法转移相似的工艺步骤进行掩模版的对准，借助于金属淀积设备，即可实现器件金属电极的制备。

图 4 展示了利用多功能制备系统制备金电极的

原理和过程。将含有掩模版的多功能转换片固定到多功能制备系统中，在显微镜下进行观察，调整系统的位移模块，使得掩模版和 $Si/SiO_2$ 基底目标区域进行对准。然后通过调整位移模块的 $Z$ 轴方向 (下压)，使掩模版和 $WSe_2$ 不断接近，直到掩模版和 $WSe_2$ 完全紧密地接触。进一步，将整个系统放置到金属淀积设备中，设置好设备的温度和时间，就可以进行金电极的淀积。当金电极淀积结束后，慢慢调整位移模块的 $Z$ 轴方向 (上提)，使得多功能转换片 (固定有掩模版) 和 $WSe_2$脱离。最终在 $WSe_2$ 相关区域，淀积得到高质量的金电极。




a. 原理　　b. 步骤

图 4　基于多功能制备系统的 $WSe_2$ 谐振器金属电极制备

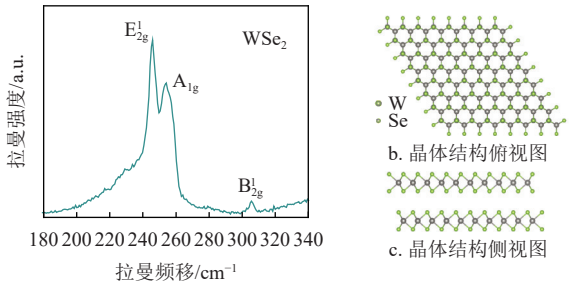
在光学显微镜下，利用多功能制备系统进行掩模版和 $WSe_2$ 的对准，调整多功能系统的 $Z$ 轴方向 (下压)，使掩模版和 $WSe_2$ 紧密地接触 (步骤 1)。完成对准后，将整个制备系统放置到金属淀积系统中进行电极制备，设置好设备的温度和时间，进行金电极的淀积 (步骤 2)。当金电极淀积结束之后，可以看到在掩模版表面存在一层均匀的金薄膜 (步骤 3)。最后上提多功能转换片，可以看到在掩模版窗口区域淀积有高质量的金电极，金电极在基底的 Pad 和 $WSe_2$ 之间具有很好的电学接触 (步骤 4)。

## 3　$WSe_2$ 纳米谐振器的测量

### 3.1　$WSe_2$ 纳米谐振器光学表征

$WSe_2$ 谐振器制备完成后，将器件进行拉曼光学表征，用于验证 $WSe_2$ 谐振器中材料的结构特性。

使用 WITec-alpha300 共聚焦拉曼对 $WSe_2$ 进行测试 (激光波长为 532 nm)，拉曼测试结果如图 5a 所示。从图中，可以看到 $WSe_2$ 明显的拉曼特征峰：包括 $E_{2g}^1$，$A_{1g}$，以及 $B_{2g}^1$ 等特征峰[19-20]。器件的拉曼测试表明，$WSe_2$ 为多层二维材料。另一方面，采用多功能系统制备 $WSe_2$ 谐振器过程中，$WSe_2$ 经历从干法转移到金电极淀积等工艺流程，$WSe_2$ 材料的结构特性并未受到破坏，说明多功能系统在器件制备中具有可行性。




a. 拉曼光谱　　b. 晶体结构俯视图　　c. 晶体结构侧视图

图 5　$WSe_2$ 的谐振器光学表征

### 3.2　$WSe_2$ 纳米谐振器测试平台

利用自建的谐振器测试平台，对 $WSe_2$ 谐振器进行幅频特性测试，谐振器测试平台如图 6 所示。该测试平台可以实现谐振器的电学激励 (光学探测) 和光学激励 (光学探测)。谐振器的电学激励原理为：将矢量网络分析仪输出的射频信号 $V_g^{ac}$ 加载到 $Si/SiO_2$ 上，由于静电力的作用，将引起悬浮 $WSe_2$ 薄膜的周期性受迫振动。光学激励原理为：将调制 405 nm 的激光照射到 $WSe_2$ 薄膜表面，材料吸收激光能量后，导致材料周期性的收缩和膨胀，从而引起 $WSe_2$ 薄膜周期性振动。电学和光学激励谐振器的方案中，均需要在基底的 Si 表面加载直流电压 $V_g^{dc}$，为谐振器提供有效的偏置电压。

本文使用光学方法对谐振器谐振频率进行有效探测，探测原理为：633 nm 探测光入射到周期性振动的 $WSe_2$ 薄膜上，光反射后产生干涉。光电探测器检测到强度周期性变化的干涉光，并将光信号转换为电信号，此时电信号会显示在矢量网络分析仪上，得到谐振器的谐振频谱。其中，参与干涉的反射光包括：633 nm 探测激光照射到周期性振动

的 $WSe_2$ 薄膜表面直接产生的反射光；另外一部分为透过 $WSe_2$ 薄膜后，进入到圆形腔洞后再次反射出去的光。

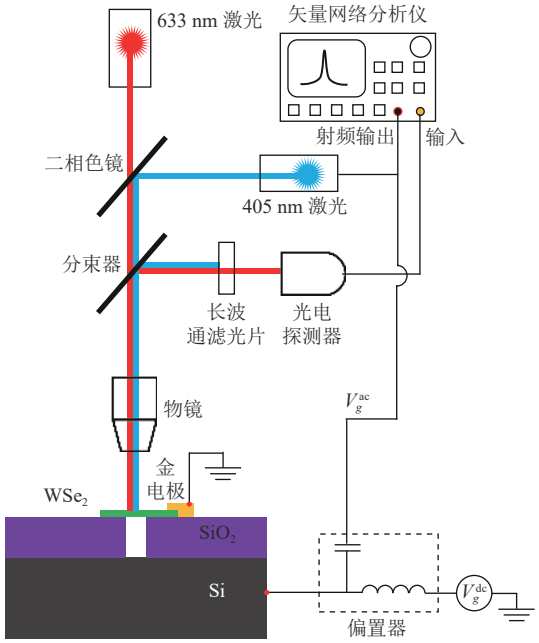
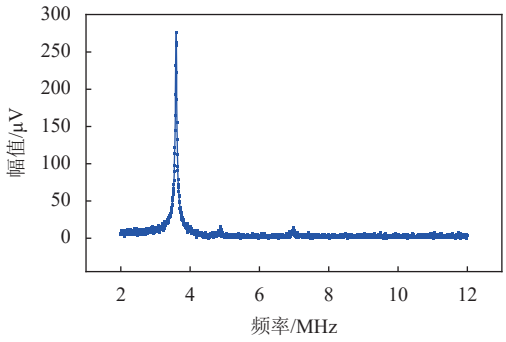


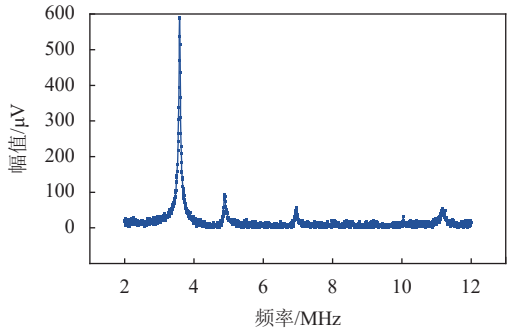

图 6 谐振器光学测试平台

### 3.3 $WSe_2$ 纳米谐振器谐振谱

利用谐振器测试平台对 $WSe_2$ 谐振器进行探测，测试结果如图 7 所示。图 7a 为采用电学激励 (光学探测) 方案获得的谐振幅频曲线图，其中加载到基底的直流电压 $V_g^{dc}$ 为 3 V。从图中可以看到器件谐振峰，器件的谐振频率为 3.6 MHz，品质因数 $Q$ 值为 100。图 7b 为采用光学激励 (光学探测) 方案获得的谐振幅频曲线图，其中加载到基底的直流电压 $V_g^{dc}$ 为 3 V。从图中可以看到器件谐振峰，器件的谐振频率也为 3.6 MHz，品质因数 $Q$ 值为 99。光学激励下谐振器的幅值相对于电学激励的情况至少提高了 2 倍。从两种探测方案的谐振谱图中，都能清楚地看到器件在高阶模态下的谐振峰，其中光学激励条件下谐振器高阶模态的幅值更大。




a. 电学激励 (光学探测)




b. 光学激励 (光学探测)

图 7 $WSe_2$ 的谐振器幅频曲线图

## 4 结 束 语

本文设计了一种二维纳米器件多功能制备系统，利用该系统成功实现了 $WSe_2$ 谐振器的高效制备，包括 $WSe_2$ 薄层的无损转移和金电极的高质量淀积。$WSe_2$ 谐振器在电学激励和光学激励下的谐振频率均达到了 3.6 MHz，品质因数 $Q$ 为 100，并且器件具有明显的多模态谐振。因此，本文设计的多功能制备系统为高性能纳米谐振器提供了极好的制备平台，在纳米谐振器研究中具有广泛的价值和巨大的潜力。

## 参 考 文 献

[1] NOVOSELOV K S, JIANG D, SCHEDIN F, et al. Two-dimensional atomic crystals[J]. Proceedings of the National Academy of Sciences, 2005, 102(30): 10451-10453.

[2] BHIMANAPATI G R, KOZUCH D, ROBINSON J A. Large-scale synthesis and functionalization of hexagonal boron nitride nanosheets[J]. Nanoscale, 2014, 6(20): 11671-11675.

[3] WANG Q H, KALANTAR-ZADEH K, KIS A, et al. Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides[J]. Nature Nanotechnology, 2012, 7(11): 699-712.

[4] LEE J, WANG Z, HE K, et al. High frequency $MoS_2$ nanomechanical resonators[J]. ACS Nano, 2013, 7(7): 6086-6091.

[5] LEE J, WANG Z, HE K, et al. Electrically tunable single- and few-layer $MoS_2$ nanoelectromechanical systems with broad dynamic range[J]. Science Advances, 2018, 4(3): eaao6653.

[6] BUNCH J S, VANDERZANDE A M, VERBRIDGE S S, et al. Electromechanical resonators from graphene sheets[J]. Science, 2007, 315(5811): 490-493.

[7] FANG H, CHUANG S, CHANG T C, et al. High-performance single layered $WSe_2$ p-FETs with chemically doped contacts[J]. Nano Letters, 2012, 12(7): 3788-3792.

[8] LIU W, KANG J, SARKAR D, et al. Role of metal contacts in designing high-performance monolayer n-type $WSe_2$ field effect transistors[J]. Nano Letters, 2013, 13(5): 1983-1990.

[9] FALIN A, HOLWILL M, LYU H, et al. Mechanical properties of atomically thin tungsten dichalcogenides: $WS_2$, $WSe_2$, and $WTe_2$[J]. ACS Nano, 2021, 15(2): 2600-2610.

[10] LEE J H, LEE E K, JOO W J, et al. Wafer-scale growth of single-crystal monolayer graphene on reusable hydrogen-terminated germanium[J]. Science, 2014, 344(6181): 286-289.

[11] RADISAVLJEVIC B, RADENOVIC A, BRIVIO J, et al. Single-layer $MoS_2$ transistors[J]. Nature Nanotechnology, 2011, 6(3): 147-150.

[12] REINA A, SON H, JIAO L, et al. Transferring and identification of single-and few-layer graphene on arbitrary substrates[J]. The Journal of Physical Chemistry C, 2008, 112(46): 17741-17744.

[13] LI X, CAI W, AN J, et al. Large-area synthesis of high-quality and uniform graphene films on copper foils[J]. Science, 2009, 324(5932): 1312-1314.

[14] YANG R, ZHENG X, WANG Z, et al. Multilayer $MoS_2$ transistors enabled by a facile dry-transfer technique and thermal annealing[J]. Journal of Vacuum Science & Technology B, Nanotechnology and Microelectronics: Materials, Processing, Measurement, and Phenomena, 2014, 32(6): 061203.

[15] FRISENDA R, NAVARRO-MORATALLA E, GANT P, et al. Recent progress in the assembly of nanodevices and van der Waals heterostructures by deterministic placement of 2D materials[J]. Chemical Society Reviews, 2018, 47(1): 53-68.

[16] LATE D J, LIU B, MATTE H S S R, et al. Hysteresis in single-layer $MoS_2$ field effect transistors[J]. ACS Nano, 2012, 6(6): 5635-5641.

[17] KIM S, KONAR A, HWANG W S, et al. High-mobility and low-power thin-film transistors based on multilayer $MoS_2$ crystals[J]. Nature Communications, 2012, 3(1): 1-7.

[18] MORELL N, RESERBAT-PLANTEY A, TSIOUTSIOS I, et al. High quality factor mechanical resonators based on $WSe_2$ monolayers[J]. Nano Letters, 2016, 16(8): 5102-5108.

[19] SIERRA-CASTILLO A, HAYE E, ACOSTA S, et al. Synthesis and characterization of highly crystalline vertically aligned $WSe_2$ nanosheets[J]. Applied Sciences, 2020, 10(3): 874.

[20] LI H, LU G, WANG Y, et al. Mechanical exfoliation and characterization of single - and few - layer nanosheets of $WSe_2$, $TaS_2$, and $TaSe_2$[J]. Small, 2013, 9(11): 1974-1981.

编　辑　叶　芳