

固液界面アニール現象を利用した単結晶酸化物ナノワイヤの Unintentional Doping の劇的抑制と超高純度化の実現

True Vapor-Liquid-Solid Process Prevents Unintentional Doping of Single Crystalline Metal Oxide Nanowires

九大総理工¹, 九大先導研², 大阪市大理³, 東大工⁴ ○安西 宇宙¹, 長島 一樹², 鈴木 将²,
Z. Zhu¹, 金井 真樹², Y. He², G. Zhang², 鐘本 勝一³, 関 岳人⁴, 柴田 直哉⁴, 柳田 剛^{1,2}

Eng. Sci. Kyushu Univ.¹, IMCE Kyushu Univ.², Osaka city Univ.³, Univ. of Tokyo.⁴

○H. Anzai¹, K. Nagashima², M. Suzuki², Z. Zhu¹, M. Kanai², Y. He², G. Zhang²,

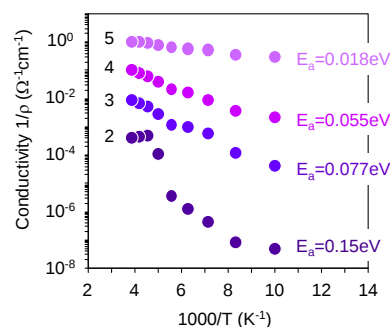
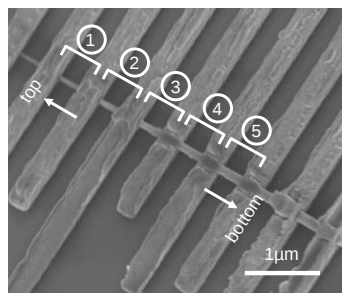
K. Kanemoto³, T. Seki⁴, N. Shibata⁴, T. Yanagida^{1,2}

E-mail: 2ES15065N@s.kyushu-u.ac.jp

【はじめに】 単結晶金属酸化物ナノワイヤは、SiやⅢ-V族半導体材料では見られない多彩な機能性を有し、大気や水中において極めて高い安定性を有するため、ナノ物性に関する基礎研究からナノデバイス応用展開に至る幅広い分野で注目されている。本質的に、多くの単結晶金属酸化物材料はワイドバンドギャップを有する絶縁体であるべきであるが、従来報告されている全ての単結晶金属酸化物ナノワイヤでは伝導性を示しており、その意図しないドーピング効果(不純物・結晶欠陥など)を制御することは、単結晶酸化物ナノワイヤの半導体デバイス応用における本質的な長年の課題となっている。本研究では、①単結晶金属酸化物ナノワイヤ形成メカニズム及び構造制御技術、②単一ナノワイヤを用いた電子輸送特性評価、③単一ナノワイヤ中の断面化学組成評価、④MDシミュレーションによる不純物導入ダイナミクス評価技術を駆使することによって、単結晶金属酸化物ナノワイヤ成長中における結晶欠陥・不純物導入メカニズムの解明、更にはその劇的な抑制及び高純度化に世界に先駆けて成功したので報告する。

【実験】 金触媒を堆積した $\text{Al}_2\text{O}_3(110)$ 基板上に、パルスレーザー堆積法(PLD)法を用いて単結晶酸化物半導体ナノワイヤを気液固(VLS)メカニズムにより成長させた。作製した酸化物ナノワイヤの形状・結晶性・結晶構造・化学組成を FESEM、XRD、STEM-EELS により評価した。電子輸送特性評価は単一ナノワイヤデバイスを用いて 100-300K の温度条件で行った。加えて、結晶成長中における不純物導入メカニズムを明らかにするために分子動力学(MD)シミュレーションを行った。

【結果】 成長条件の異なる酸化物半導体ナノワイヤ(SnO_2 ナノワイヤ)の電子輸送特性を評価した結果、8 桁に及ぶ電気抵抗の差異が観測された。ナノワイヤ形状及び伝導特性の相関性を詳細に検証した結果、ナノワイヤ構造内に伝導性の不均一空間分布が存在し、得られた伝導性が気固(VS)界面により形成された結晶に起因するものであることが明らかとなった。断面 STEM-EELS 分析の結果、VS 界面を介して結晶欠陥が導入され、VS 結晶成長を抑制することによりナノワイヤ中の結晶欠陥形成を劇的に抑制可能であることが明らかとなった。MDシミュレーションによる解析の結果、液固(LS)界面では VS 界面を介した結晶成長と比較して、より高い不純物排出効果(アニール効果)が得られることを見出した。本研究で得られた一連の結果は、従来未解明であった単結晶酸化物ナノワイヤにおける伝導性の起源の本質に迫る重要な知見であり、酸化物ナノワイヤにおける新機能創出の礎となる極めて有意義な発見である。



References:

- Anzai et al. *ACS Appl. Mater. Interfaces* **8**, 27892-27899 (2016)
Anzai et al. *Nano Lett.* **16**, 7495-7502 (2016)
Anzai et al. (2017) in submission