

前駆体溶液中の ZnO ナノ結晶の異方成長： 選択成長窓による成長モード制御と残留キャリア濃度の均一化

Anisotropic growth of ZnO nanocrystal in chemical bath synthesis:
growth mode control by selective growth window for its electrical uniformity

東北大 AIMR¹, °渡辺 健太郎¹, Tohoku Univ.¹, °Kentaro Watanabe¹,

E-mail: kentaro.watanabe.c3@tohoku.ac.jp

[背景・目的] 金属酸化物の合成法のひとつである溶液成長法は、前駆体の金属イオンと水酸化物イオンから金属酸化物を化学合成する手法であり、低コスト・低温で結晶成長が可能なため普及している。一般に、金属酸化物の溶液成長では、各結晶面の成長中に一部の-OH 基の脱水過程が完了せずに水素原子が不純物として結晶中に取り込まれて、結晶の電気特性（キャリア濃度・移動度）に寄与する。この不純物取込レートは結晶面方位に依存するため、結晶内部の局所電気特性も成長分域に依存し、電気特性は一般に不均一となる。特にナノ結晶では、微細加工による材料均質化が困難なためデバイス材料として問題である。しかしこれまで、アスペクト比・電気抵抗率など、ナノ結晶の寸法・形状や電気特性についての統計平均的・粗視的評価報告がある反面、バルク水溶液条件（前駆体種、濃度、温度、等）とナノ結晶の微視的・局所電気特性との相関は、未解明であった。これは、①対流・溶質拡散のある複雑な成長系のため、ナノ結晶同士の成長やナノ結晶を構成する各結晶面の成長が互いに独立でなく、バルク溶液条件では制御困難なこと、②ナノ結晶内部の局所電気特性の評価手法が無いこと、に拠る。

我々はこれまで、成長系を単純化して上記相関を解明するため、ZnO 溶液成長をモデルケースとして、レジスト膜を塗布し成長窓を電子線描画した ZnO (0001) 単結晶基板を用いて、*c* 軸配向 ZnO 自立ナノロッド配列のホモエピタキシャル選択成長[1]を行った。前駆体水溶液中のホモエピ選択成長は、成長窓間隔を十分離すことで互いに独立な成長が可能で、成長窓サイズ・形状により自立ナノロッドのサイズ・形状を制御可能な特徴がある。また、SEM-CL (Cathodoluminescence) 顕微分光における半導体バンド端発光エネルギーがキャリア濃度に依存することを利用して、局所キャリア濃度の定量評価法を独自開発した[2]。

本研究では、前駆体水溶液中でホモエピ選択成長した *c* 軸配向 ZnO 自立ナノロッド配列について、成長窓配列条件とナノロッドの寸法・形状、局所キャリア濃度分布の相関を解明する。

[実験・結果] 電子線描画により互いに孤立した直径 100nm~500nm の成長窓を ZnO(0001)基板上に形成し、ZnO 自立ナノロッド配列のホモエピ選択成長を行った。(0001), {1-100} 面から成る六角柱状の ZnO ナノロッドについて、寸法・形状・表面ステップ構造を SEM/AFM で評価し、局所キャリア濃度を SEM-CL 法により評価した。結果、成長窓直径 200nm 以下で、(0001)頂面が分子層レベルで平坦化し、(0001)面成長レートの低下が見られた。結果・考察は本講演で詳述する。

[謝辞] 本研究は科研費 [26790046, 17K05004]の助成を受けたものです。物材機構 長田貴弘 博士、関口隆史 博士、阪大 中村芳明 教授らのご協力を得ましたので謝意を表します。

[1] K. Watanabe, *et al.*, *ACS Nano* **9**, 2989-3001 (2015). [2] K. Watanabe, *et al.*, *Nat. Commun.* **7**, 10609 (2016).