

論文の内容の要旨

論文題目 水平配向単層カーボンナノチューブの合成制御

氏名 井ノ上 泰輝

単層カーボンナノチューブ(SWCNT)は多くの優れた性質を持つことから様々な応用が期待されているが、デバイス応用の実現に向けては個々のSWCNTの構造および集合体としてのSWCNTの形態を精密に制御することが必要となる。本研究ではデバイス作製に適した形態である水晶基板上での水平配向SWCNTについての合成制御技術および操作処理技術の開発を目的とし、水平配向SWCNTの合成および処理に関して研究を行った。

水晶基板に金属微粒子触媒をパターン担持し、エタノールを炭素源としたアルコール化学気相成長法により水平配向SWCNTを合成した。電子デバイス応用において必要とされている高密度水平配向SWCNTの合成に向けて、合成条件が水平配向SWCNTの形態に与える影響を調べた。炭素源供給量を変化し、水平配向SWCNT成長の合成および分析を行った。水平配向SWCNTの密度が最大となる炭素源供給量は、別の成長形態である垂直配向SWCNTの合成量の場合と比較して、1桁以上低いことが分かった。より詳細に成長機構を調べるため、異なる炭素源供給量の条件において、合成時間を変えて水平配向SWCNT成長の時間変化を分析した。炭素源供給量の低下により、触媒部分および水平配向部分のSWCNTが時間とともに増大することを確認した。炭素源供給量が高い場合に、触媒部分のSWCNT成長は持続するにも関わらず水平配向部分のSWCNT量の増加が少ないことから、個々のSWCNTの成長以外に複数のSWCNTの成長が水平配向SWCNTの形態に影響することが示された。炭素源供給量によるSWCNTの直径への影響は小さいことを確認した。また、触媒担持方法の最適化により部分的に20本/ μm の水平配向SWCNTの合成に成功した。

デバイス作製のためのSWCNTのカイラリティ制御に向けては、個々のSWCNTの構造の本数・長さを独立に分析することが必要となる。そこで、水平配向SWCNTの形態を利用して、個々のSWCNTのカイラリティの分析を行った。比較的低密度の水平配向SWCNTを合成し、配向方向と垂直にラマンスペクトルを測定することで、個々のSWCNTからのラマンスペクトルを取得した。得られたラマンスペクトルのRBMピーク波数と励起光波長からカイラリティを同定した。今回分析したサンプルにおいて、SWCNT本数におけるカイラル角の分布が一様であることが分かった。

た。先行研究におけるカイラル角の偏りは、SWCNT本数ではなくSWCNT長さによるものであることが示唆された。また、直径の小さいSWCNTの合成および、透過型電子顕微鏡による水平配向SWCNTの分析を行った。

SWCNTを用いた電界効果トランジスタの大規模作製の実現に向けて、金属SWCNTを長尺・広範囲に除去する手法を開発した。水平配向SWCNT上に有機薄膜を塗布したのちに、ゲート電圧を制御して半導体SWCNTをオフ状態にし、ドレイン電圧により金属SWCNTに高電流を流すことで、金属SWCNTを長尺にわたり選択的除去することに成功した。オンオフ比は10,000に上昇したことから高い除去選択性が確認された。最大除去長さは16 μm 、最大分解能は55 nmを達成した。長尺除去の機構としては、SWCNTの燃焼熱に加えて周囲の有機物の燃焼熱が発生し、SWCNTが放熱により冷却する前に比較的に長い範囲に燃焼が伝播することが考えられる。既存の金属SWCNTの長尺除去の手法と比較し、本手法は簡便性と分解能の点で有利だといえる。

水晶基板上の水平配向SWCNTを用いて、ポリマー膜上にSWCNTの架橋構造を作製する手法、およびSWCNTを部分的にバンドル化する手法を開発した。これは、ポリマー膜による転写技術に加え、フォトリソグラフィにより形成されるレジストパターンを犠牲層として用い、ポリマー上でSWCNTを架橋させることで実現した。さらに、隣接するSWCNT同士が液滴の蒸発により凝集することを利用し、隣接するSWCNT同士を部分的にバンドル化することに成功した。本手法は基板一面のSWCNTに対する一括処理であることから、大規模なSWCNTのネットワーク構造操作が可能になるといえる。