

超高密度ヘテロ界面を有する多層ナノチューブ型デバイスの開発 (062104001)

Design of the Multi-Walled Nanotube Devices with High Density Hetero Interface

研究代表者

中山 忠親 長岡技術科学大学 大学院 電気電子情報工学専攻
Tadachika NAKAYAMA, Department of Electric Engineering, Nagaoka University of Technology

研究分担者

吉村 武[†]
Takeshi Yoshimura[†]
[†]大阪府立大学 大学院 工学研究科 電子物理工学分野
[†]Osaka Prefecture University, Department of the Physics and Electronics

研究期間 平成 18 年度～平成 20 年度

概要

ユビキタス社会においては電子タグに代表されるように、ありとあらゆるモノに電子素子が組み込まれることが明らかであることから、これまで以上に低コスト型のプロセスが求められている。本申請研究においては、このような小型化・低コスト化への要請に対し、無機系ナノチューブ構造体を基礎とし、その異方構造を活用した超高密度ヘテロ界面を有する三次元多層ナノチューブ構造体という新しいデバイス設計コンセプトを提唱する。同時に、このようなデバイスを創製するために独自のパルスパワー技術により開発する新規な電源を用いた大気圧プラズマ技術およびその派生技術である溶液プラズマ技術を提案するとともに、研究活動を通して様々な材料の合成に適用することで当プロセスの優位性を明らかとする。これら要素技術を融合することでナノICT分野におけるロードマップを一気にブレイクスルーするためのトータルソリューションを提供することを目的とする。

Abstract

In the ubiquitous society, the low-cost process is required until now in the above in order to include the electron element in various equipment. In this study, new device design concept of the three-dimensional and multi-walled nanotube structure using anisotropy of the inorganic nanotube system is proposed. Atmospheric pressure plasma technology and solution plasma engineering using new power supply developed by the original pulsed power technology are proposed in order to create the device of such new structure. The superiority of this process is done clear by applying to the synthesis of various materials through the research activity. It is made that total solution for doing the breakthrough of the roadmap in the nano ICT field at a stretch by fusing the these elemental technology.

1. まえがき

従前から有る平面積層型の構造設計コンセプトに基づく電子デバイスの設計における様々な制約を打破するために、立体的な三次元構造からなる電子デバイスの構造設計指針に基づく材料開発が行われている。本研究においては、研究者らのグループにおいて世界に先駆けて開発された、ピーカーで作ることの出来る、極めて安価に合成できる直径 10nm 以下のナノチューブであるチタニアナノチューブに着目し、この内壁と外壁に第二相を修飾することによって得られる高密度ヘテロ界面を利用した新規な電子デバイスの設計指針の確立、安価で高効率な新規プロセス開発ならびに、これら構造体の有する諸特性の開発に取り組んだので、以下に報告する。

2. 研究内容及び成果

2-1. 大気圧プラズマ法によるナノ粒子の合成ならびにナノ粒子修飾法

本研究において指向する高密度ヘテロ界面を有する三層構造ナノチューブ構造体の合成において、その基礎となるチタニアナノチューブ構造体の合成においては、水熱合成法とよばれる化学的な溶液法で合成することが出来るために、非常に安価かつ大量な合成が可能である。しかし、溶液法によってこのナノチューブの内部および外部を第二相によって修飾することは困難であり、プロセスコストが高い気相法を用いる必要がある。申請者はこれまでのプ

ラズマ科学に関する知見を元に開発した大気圧プラズマ法によって、このようなナノチューブの内部および外部の修飾が可能となれば、これまでに我々が予備研究において取り組んできた CVD 法などに比べ圧倒的に高い活性を有する原子状に乖離した活性種が高い密度でナノチューブの内外に到達することから、安価かつ大量に三層構造からなるナノチューブの合成が可能となると予見した。特に、反応性が高く、温度上昇が低い特徴を有するナノ秒パルス電源方式によるストリーマー放電からなる大気圧プラズマが最も本プロセスに適していると考えた。実際に電源および電極の開発を行い、本プロセスに好適なプラズマ状態の発生に成功した。図 1 に、ナノ秒カメラを用いた放電観察写真を示す。図より分かる通り、線状のファーストストリーマー放電のみからなる高エネルギープラズマの形成が可能となっていることを確認している。



0-5 [ns] 10-15 [ns] 15-20 [ns]
図 1.本研究において開発された大気圧プラズマの放電時の様子(露光時間: 5 [s])

前述の予見に基づき、大気圧プラズマを用いることで、ヘテロ界面を有するチタニアナノチューブに銀あるいは銀、白金、パラジウム、ニッケル、酸化鉄、硫化亜鉛および酸化亜鉛などの種々の第二相を内包化した材料の合成が可能であることを明らかとした。代表例として図2に銀@チタニアナノチューブ構造体のTEM像を示す。本観察によって、銀とチタニアの間にはヘテロエピタキシャル的な接合が形成されていることが確認された。

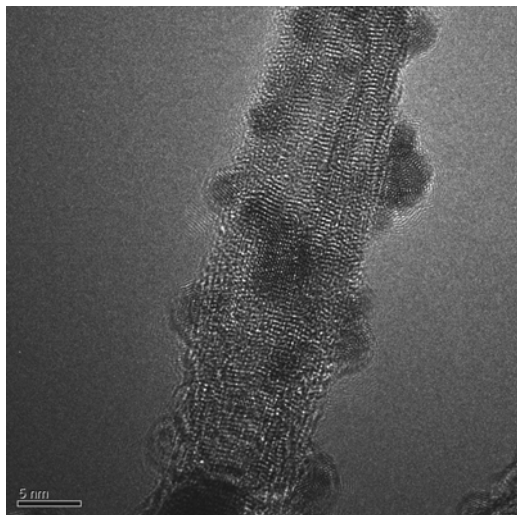


図2. 大気圧プラズマで形成されたチタニアナノチューブ/銀複合材料のTEM像

2-2. ナノチューブ構造体の集積技術の検討

前項のように作成された材料においては、電気的、工学的、化学的および熱的という多様な新規物性が見出された。これをデバイス化に展開するために、ナノチューブ構造体の集積技術の検討を行った。まず、そのテンプレートとなる、表面に微細構造を有したセラミックス焼結体の合成について検討を行った。ナノレベル(平均粒径7nm)のアルミナ粒子をセラミックス原料、重合度の低いポリビニルアルコールをバインダーとし、水を溶媒としてビーズミル(ジルコニアビーズを利用)を行うことで、アルミナ粒子が完全に単分散したスラリーを合成した。これをサブミクロンからミクロンレベルの凸凹を施した金型で成形することによって、表面に凸凹を転写した成形対を合成できた。得られた材料を焼結することにより、アルミナ焼結体を合成することが可能となることを明らかとした。図3に得られたセラミックス焼結体のSEM像を示す。これらをテンプレートとして、前項までに作成された超高密度ヘテロ界面を有するナノチューブ基複合体を極めて安価に配列させることに成功した。

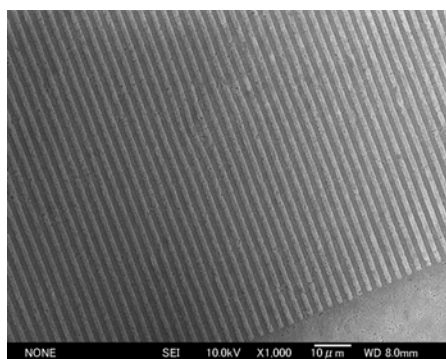


図3. セラミックス構造体におけるナノインプリント加工適用例

3. むすび

安価かつ高機能な手法によって無機系ナノチューブ構造体に第二相のナノ粒子あるいはナノ被覆を均一に修飾する事に成功した。このような構造体を合成するにおいて問題となっていた、ナノチューブ構造体が無機系としては比較的耐熱性が低いこと、また、ナノチューブの内部まで第二相で被覆するために原料雰囲気濃度を高める必要があること等の問題点を克服するために、ナノ秒パルス電源を用いたファーストストリーマー放電からなるリアクタを新規に開発し、この構造体の合成に成功した。得られたナノチューブ構造体の諸特性を計測し、ナノチューブ複合体における新規特性を確認した。これらナノチューブ構造体を配列するための技術としてのナノインプリント手法を提案、実証した。以上のことから、ナノチューブを基礎とし、真空チャンバーを用いない安価な手法で高密度な電子デバイスを合成するための、材料設計指針、合成手法、物性計測手法の開発に成功した。

【誌上发表リスト】

- [1] Tadachika Nakayama, Takashi Minagawa, Shuntaro Suzuki, Hisayuki Suematsu, Koichi Nihara, The Nobel Solution Process Using the Extreme Energy State for Anisotropic Structured Nanomaterials, *Current Applied Physics, In Press* (2009.03.09)
- [2] H.D. Kim, T. Nakayama, J. Yoshimura, K. Imaki, T. Yoshimura, H. Suematsu, T. Suzuki and K. Niihara, Fabrication of the finest structured alumina materials with nanoimprint method, *Journal of the Ceramic Society of Japan*, 117[4] 2009 pp.534-536[express letter] (2009.3.31)
- [3] R. Hayakawa, M. Nakae, T. Yoshimura, A. Ashida, N. Fujimura, T. Uehara, M. Tagawa and Y. Teraoka, "Detailed structural analysis and dielectric properties of silicon nitride film fabricated using pure nitrogen plasma generated near atmospheric pressure", *Journal of Applied Physics*, Vol. 100, 073710-1~8 (2006.10.1)

【申請特許リスト】

- [1] 新原皓一、中山 忠親、末松久幸、鈴木常生、金弘大、表面に微細凹凸パターンを有したセラミックス焼成体及びその製造方法、日本国、2008年8月30日、特願2008-222954
- [2] 新原皓一、中山忠親、末松久幸、鈴木常生、皆川敬、ナノ構造体、ナノ構造体の製造方法及びナノ構造体の合成装置、日本国、2007年8月30日
- [3] 新原皓一、中山忠親、末松久幸、江 偉華、鈴木常生、溶液プラズマ反応装置及び該装置を使用したナノ材料の製造方法、日本国、2006年9月15日

【受賞リスト】

- [1] 中山 忠親、日本セラミックス協会 協会賞 進歩賞 “シングルナノレベル複合設計によるセラミックスの高機能化” 2008年2月27日
- [2] M. Terauchi and T. Nakayama ¥, International Symposium on Hybrid Materials and Processing (HyMaP2008) , *The best poster award*, 2008.10.28.
- [3] M. Shoji and T. Nakayama International Symposium on Multifunctional Ceramic Materials Based on Nanotechnology (ISMCN2009), *The best poster award*, 2009.2.14.

【本研究開発課題を掲載したホームページ】

<http://etigo.nagaokaut.ac.jp/people/staff/nky15/nky15.html>