

平成 21 年 6 月 5 日現在

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2006～2008

課題番号：18206080

研究課題名（和文）コロイドナノ粒子系構造形成の学理の構築とITOパターン化配線への応用

研究課題名（英文）Understanding of structure formation of colloidal particles and its application to patterned wiring of ITO

研究代表者

山口 由岐夫（YAMAGUCHI YUKIO）

東京大学・大学院工学系研究科・教授

研究者番号 20332570

研究成果の概要：

当研究室においてCVD合成したSWCNTを用い、塗布法にて透明電極を作製した。研究成果として、溶液に超音波分散し、吸引法で作製した様々なSWCNT薄膜を評価した結果、最高値として80%の透過率で500/nを得た。

また、ナノプロセッシングの学理を体系化するために、ナノ粒子のナノ構造と高次構造を予測するシミュレータ（SNAP：Structure of NAno Particle）を開発した。これを用いて、CNTのようなアスペクト比の大きなナノ粒子の乾燥による高次構造形成を予測した。

交付額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	16,000,000	4,800,000	20,800,000
2007年度	11,300,000	3,390,000	14,690,000
2008年度	11,300,000	3,390,000	14,690,000
年度			
年度			
総計	38,600,000	11,580,000	50,180,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：プロセス工学・反応工学、プロセスシステム

キーワード：材料合成プロセス

## 1. 研究開始当初の背景

ナノテクの産業化における技術課題の一つは、応用開発における諸問題を明確にし、学術の専門知識とマッチングさせることにある。特に機能材料はナノ構造制御により、新たな機能を発現することを期待されており、産学連携が必要である。さらに、製造プロセスはナノ構造形成に強く影響を与えるため、構造形成の学理を確立し、産業が使える知識形式に一般化する必要がある。本研究計画はナノ粒子系に焦点を絞り、プロセス・構造・機能の視点で学理と応用をつなぐことを目

## 的とする。

## 2. 研究の目的

具体的な応用として、塗布法にて透明導電性電極の作製を行う。

また、ナノプロセッシングを学理として体系化するために、以下を目的とした。

- （1）コロイドナノ粒子系の自己組織的構造形成の学理
- （2）ナノ構造（ナノ界面）と物性（電気伝導率）との関係の把握
- （3）粒子分散系のナノ構造と物性及び機能の体系化

### 3. 研究の方法

透明導電性電極の作製と、そのナノプロセスを自己組織化の視点で体系化する。そのために、実験的研究とシミュレータの開発を同時に行った。

### 4. 研究成果

当研究室において CVD 合成した SWCNT を用い、塗布法にて透明電極を作製した。昨年度の成果として、溶液に分散し、吸引法で作製した様々な SWCNT 薄膜を評価した結果、最高値として 80% の透過率で 500 / を得た。目標値の 80% 100 / には及ばないが、評価できる成果を得た。実施項目別に成果を述べる。

(1) SWCNT の分散： 水系溶媒にアルコールやアミン系を添加して超音波分散により、SWCNT を約 1 wt% の濃度まで分散した。

(2) SWCNT 分散液の塗布による薄膜作製： できるだけ薄膜化することが、透過率との関係が必要である。その結果、20nm の薄膜で、90% の透過率を得られた。塗布法はバーコータである。

低抵抗化のためには、SWCNT のようなファイバー状粒子を配向制御することが望まれる。つまり、接触抵抗を低下させるために配向させ、接触点を増加することにより実現することが望まれる。そのために、下記のようなシミュレーションを行い、乾燥条件の検討を行った。基本的には、SWCNT をアミン系の表面修飾を行い静電反発系にし、溶液状態では分散配向させておき、乾燥後に配向薄膜を得る。シミュレータとしては、当研究室で開発中の SNAP (Structure of Nano-Particles) を用いた。これは流動場や乾燥場においてナノ粒子群の構造形成を予測するものであり、アスペクト比の大きな SWCNT のような粒子に適用できるように改良した。

(3) SWCNT の溶液中の分散配向と乾燥後の配向予測： SNAP を改良して、溶液中および乾燥後の配向について検討した。その結果、-50mV 位の静電反発が好ましいということが明らかになった。

図 1 に具体的な塗布膜の概観と SEM 像を示す。これより、透明性と導電性が確保できた。

さらにシート抵抗を下げるには、SWCNT の長さ、つまりアスペクト比が大きいことが必須であり、分散における断裂を防ぐことが必要であることを明らかにした。以上の結果は SWCNT に限ることではなく、ITO についても同様のことが示唆される。

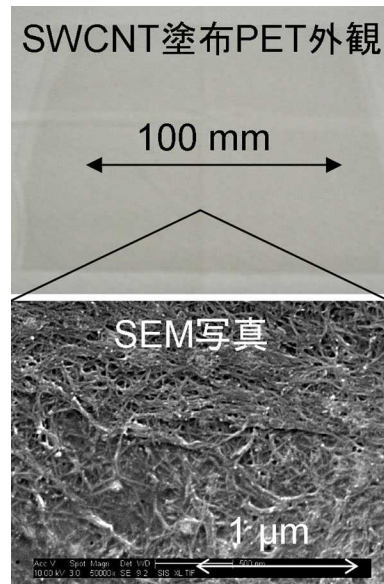


図 1 SWCNT の PET フィルムへの塗布

ナノプロセシングの自己組織化に関しては、汎用シミュレータ SNAP を開発した。

(<http://nanotech.t.u-tokyo.ac.jp/>参照) 特に、アスペクト比の大きなナノ粒子の乾燥における高次構造形成をモデリングした。その結果の一例を図 2 に示す。

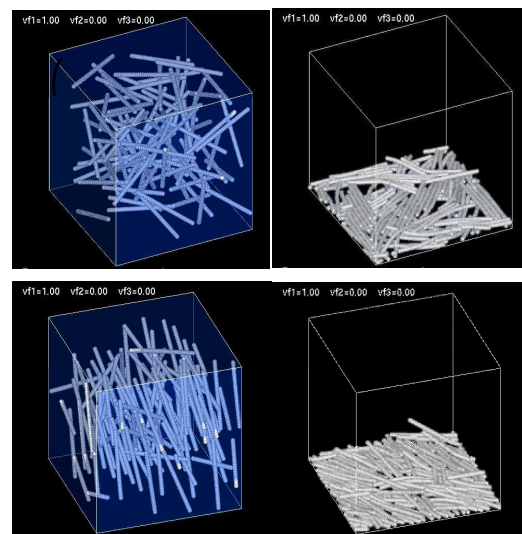


図 2 分散液からの乾燥に伴う配向制御

上段左はゼータ電位 0mV であり、乾燥後ランダムとなる。下段はゼータ電位が -50mV であり、液中ですでに配向しており、乾燥後も配向性が高い。図 1 で示した SEM 像は比較的上段のランダム構造に近いことがわかる。

このように、実験結果とシミュレーションを比較検討することにより、ナノプロセシングの改良と自己組織化(配向)の方法が示唆される。配向により導電性が向上する。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

### 〔雑誌論文〕(計 5 件)

- (1) S. Ohta, S. Inasawa, O. Koike, M. Fujita, and Y. Yamaguchi, "Formation of well aligned thin films of rod-like nanoparticles via solvent evaporation: A simulation study," Appl. Phys. Express **2** (6), 065002-1-3 (2009) 査読有
- (2) H. Sugime, S. Noda, S. Maruyama, and Y. Yamaguchi, "Multiple "optimum" conditions for Co-Mo catalyzed growth of vertically aligned single-walled carbon nanotube forests," Carbon **47** (1), 234-241 (2009). 査読有
- (3) O. Koike, S. Ohta, M. Fujita, and Y. Yamaguchi, "Simulation model of concentrated colloidal rod-like nanoparticles," Jpn. J. Appl. Phys. **47** (10), 8124-8130 (2008). 査読有
- (4) M. Fujita and Y. Yamaguchi, "Simulation model of concentrated colloidal nanoparticulate flows," Physical Review E **77** (2), 026706 (2008). 査読有
- (5) K. Kakehi, S. Noda, S. Maruyama, and Y. Yamaguchi, "Individuals, grasses, and forests of single- and multi-walled carbon nanotubes grown by supported Co catalysts of different nominal thicknesses," Appl. Surf. Sci. **254** (21), 6710-6714 (2008). 査読有

### 〔学会発表〕(計 4 件)

- (1) 伊藤岳大、稲澤晋、藤田昌大、山口由岐夫、流れ場におけるひも状ナノ粒子系のシミュレーション、化学工学会第74年会、2009/03/23、横浜国大
- (2) S. Ohta, O. Koike, M. Fujita and Y. Yamaguchi, "Simulation of Structure Formation and Physical Properties of Colloidal Rod-like Nanoparticles in Drying Process," Proceedings of The 14th International Coating Science and Technology Symposium, Marina del Rey, USA, 10 September 2008.
- (3) Y. Yamaguchi and M. Fujita, "Total Simulation of Meso-scale Structure Formation of Coating Process for Colloidal Solutions," Proceedings of The 14th International Coating Science and Technology Symposium,

Marina del Rey, USA, 9 September 2008.

- (4) M. Fujita, O. Koike and Y. Yamaguchi, "Simulation of Concentrated Colloidal Nanoparticles in Simple Shear between Parallel Flat Plates," Proceedings of The 14th International Coating Science and Technology Symposium, Marina del Rey, USA, 9 September 2008.

### 〔図書〕(計 2 件)

- (1) 内藤牧男、山口由岐夫、他、日刊工業新聞社、究極の粉をつくる、2008、共著、第4章担当 総ページ230ページ
- (2) Yukio Yamaguchi, Nanoparticle Technology Handbook, Elsevier Science, 2007, Co-author

### 〔産業財産権〕

出願状況(計 2 件)

- (1) カーボンナノチューブの製造方法、野田優、杉目恒志、山口由岐夫、他4名、東京大学、PCT/JP2009/054284、2009-03-06、国外
- (2) カーボンナノチューブの製造方法、野田優、杉目恒志、山口由岐夫、他3名、東京大学、特願2008-058825、2008-03-07、国内

取得状況(計 0 件)

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

山口 由岐夫 (YAMAGUCHI YUKIO)  
東京大学・大学院工学系研究科・教授  
研究者番号：20332570

(2) 研究分担者

笹倉 英史 (SASAKURA HIDESHI) 旭化成株式会社  
門脇 徹治 (KADOWAKI TETSUJI) 御国色素株式会社  
藤田 昌大 (FUJITA MASAHIRO) 東京大学・大学院工学系研究科・准教授  
研究者番号：40436530