

平成 30 年 6 月 19 日現在

機関番号：13801

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H03991

研究課題名(和文)量子ドットサイズ耐過酷環境性ナノ構造ハイパワーデバイスの研究

研究課題名(英文) Research on nanostructured quantum dots-size and environment-hard high power devices

研究代表者

中本 正幸 (NAKAMOTO, MASAYUKI)

静岡大学・工学部・特任教授

研究者番号：10377723

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：独自の転写モールド法エミッタ作製技術及び低仕事関数材料等を用いて、先鋭な極微小電子源を作製、ナノ構造量子ドットサイズ耐過酷環境性大電流極微小電子源を開発し、CO2削減に寄与をする、太陽光・風力・スマートグリッドシステム、超伝導送電に有用な超低損失超小型電力変換デバイス、高効率・高現実感・3次元ディスプレイ、大面積量子効果デバイス等の基礎技術の実現を目指す。
低仕事関数・耐環境性エミッタ材料を持つ基底部長さ36～41nm、先端曲率半径2.6～2.8nmの先鋭性に優れ極微小電子源を開発し、電子放出電流密度は1.6A/cm²となり、本研究の目標値の約1A/cm²を上回る極微小電子源の開発に成功した。

研究成果の概要(英文)：Nanostructured quantum dots-size and environment-hard field emitter arrays (FEAs) were fabricated by using Transfer Mold emitter fabrication method and low work function emitter materials, which are originated by Prof. Nakamoto, to establish fundamental technology about ultra-low loss and ultra-small power switching devices, being useful for solar energy, wind power, smart grid system, and superconducting power transfer system, high efficiency and high reality 3D displays, large area quantum effect devices and so on.
Extremely sharp, nanostructured, low work function and environment-hard FEAs having the base length of 36-41 nm and tip radius of 2.6-2.8 nm, were successfully developed by using Transfer Mold emitter fabrication method. The emission current density of these extremely sharp and nanostructured Transfer Mold FEAs was as high as 1.6 A/cm², compared with target value of this research, about 1 A/cm².

研究分野：工学

キーワード：電子デバイス・機器 先端機能デバイス マイクロ・ナノデバイス パワーデバイス 電力変換

1. 研究開始当初の背景

ナノエレクトロメカニカルシステム (NEMS) 技術の真空デバイスへの応用、所謂、真空ナノテクノロジーには、真空と半導体微細加工技術等の先端技術の両者の利点を活かした高機能・極限デバイスの創製が期待できる。そのため、研究代表者(中本)が提唱・基本特許を持つ提唱・基本特許を持つ2つの未来デバイス、21世紀COE「ナノビジョンサイエンスの拠点創成」を獲得したナノサイズ微小電子源を用いた高現実感・3次元ナノビジョンディスプレイ、半導体デバイスを用いた5階建ての建物サイズの現在の電力変換設備を約1m×数10cm(H)の1/100サイズに小型化し、電力損失を1/10に低減する真空ナノパワースイッチングデバイスなどの研究が活発に行われている。特に、洞爺湖サミットで2050年までにCO₂削減50%が提唱され、NEDO「グリーンエレクトロニクス技術プロジェクト」が中本も委員委嘱を要請され発足したが、太陽光・風力・原子力発電、スマートグリッドシステム、超伝導送電などの電力変換の損失低減・超小型化のための革新的技術として、最近、真空ナノパワースイッチングデバイスが、極めて注目されている。

更に、中本が考案・提唱するJAXAと共同研究中の小惑星探査機“はやぶさ”等の次世代宇宙用電気推進エンジンへの微小電子源への応用も有望である。真空ナノデバイスは、微小電子源を主要構成要素とし、約40年前よりカーボンナノチューブ(CNT)等を用いて、様々な研究が盛んに行われてきた。しかし、エミッタ構造不均一性、電子放出位置ばらつき等のエミッタに起因した微小電子源の破壊・劣化、電流の揺らぎ(通常:±5~数1000%)、電子ビームの形状不均一性等が障害となり未だに実用化されていない。実用化のためには、超精密位置制御の確立、電界電子放出特性や動作特性の変化の解明は不十分であり、ナノスケールオーダーの位置・構造制御と物性解明は必須である。

研究代表者の独自技術であり100件以上の特許網を構築した、鋳型を用いて突起型微小電子源を形成する転写モールド法微小電子源作製技術は、ナノメートルオーダーの先端曲率半径と一様な構造均一性を持つ大面積・低コストの微小電子源の作製を可能とした。世界最高先鋭度(先端曲率半径:1~3nm)、世界最小駆動電圧7V(他法:50~500V)、世界最小電流変動±1.6%(他方法:±5~数1000%)、世界初の低仕事関数材料エミッタ試作(LaB₆)等、世界トップデータを達成した。従来エミッタ基底部長さは通常1~3μm、最小がMITの100nm(2001年)等であるが、先端曲率半径30~60nmと大きく不均一であった。基底部長さ36nm~41nm、先端曲率半径1~2nm、均一な量子ドットレベル世界最小エミッタ作製に成功し、放出電流の増大も見出した。

従って、材料選択性が高く先鋭で均一な工

ミッタ作製法の転写モールド法と、低仕事関数・耐環境性エミッタ材料作製技術を融合させれば、ナノ構造量子ドットサイズ耐過酷環境性大電流極微小電子源開発が可能で、グリーンエレクトロニクスの創製に寄与する真空ナノパワースイッチングデバイスや次世代宇宙用電気推進エンジン等の未来デバイスを実現できると考えるに至った。

2. 研究の目的

本研究は、独自の転写モールド法エミッタ作製技術を用いて、仕事関数が低く耐環境性のあるアモルファスカーボン、TiN、導電性セラミック材料等の耐過酷環境性エミッタ材料を探索するとともに、エミッタ基底部長さが30~100nmであり、電流変動率1%程度の先鋭な極微小電子源を作製し、エミッタ材料の基本電子物性と電界放出特性との関係、代表研究者が新規開発した真空一貫エミッタ作製評価システムを用いてガス雰囲気との関係等を究明し、ナノ構造量子ドットサイズ耐過酷環境性大電流極微小電子源を開発する。これによりCO₂削減に大きな寄与をする、太陽光・風力・スマートグリッドシステム、超伝導送電に有用な超低損失超小型電力変換デバイス、高効率・高現実感・3次元ディスプレイならびに小惑星探査機“はやぶさ”等の次世代宇宙用電気推進エンジン、更に、大面積量子効果デバイス等の基礎技術の実現を目指す。

3. 研究の方法

エミッタ材料としては、仕事関数が低く耐環境性のあるアモルファスカーボン、TiN、導電性セラミック材料等を候補とする。

研究代表者が独自に発見し現在研究中有る、全単体金属中で最も低い不安定なCs(1.9 eV)とほぼ同じ仕事関数1.8eVを有し、安定な導電性セラミック材料等のエミッタ材料とし、アモルファスカーボン(仕事関数:3.5-4.0eV)は、高熱伝導度、高化学耐性材料のため、大電流、過酷環境材料としては有望である。作製法としては、本研究ではバイアス電圧による幅広い膜質制御が可能で、水素フリーの硬質アモルファスカーボン薄膜を形成できるプラズマCVD法によりアモルファスカーボン薄膜の形成を行い、水素(H₂)ガスとメタン(CH₄)やアセチレン(C₂H₂)ガスを原料ガスとし、UPS、XPS、表面障壁評価装置等による仕事関数測定、電界放出特性、反応性ガス雰囲気に対する安定性などを考慮し、最適組成を決定する。TiNの仕事関数は2.8-3.7eVであり、融点は3000と高く、化学的に非常に安定であり、アモルファスカーボンと同じく低仕事関数・耐環境性エミッタ材料として有望である。TiNの被覆法としては、化学気相成長法が広く用いられてきたが、反応温度として1000以上必要とする。そのため、本研究では、低温で作製することができ、膜形成速度の制御も容易であるスパ

ツタリング法を用いる。

(1) Si 鋳型内形成型転写モールド法極微小電子源開発：転写モールド法を用いて、H27 年度は電子ビーム露光法により 400nm ~ 1.6 μ m、H28 年度は 100nm ~ 400nm、H29 年度は量子ドットサイズ 50nm ~ 100nm の Si 鋳型の均一形成の作製条件検討・試作、Si 鋳型内形成型の場合は、低仕事関数・耐環境性エミッタ材料と Si 鋳型内面の Si 酸化膜及び陰極充填材料 (Ta 等) の密着性・先鋭度の変化等の検討、機械的剥離・Si 溶解除去などの Si 除去方法検討等を行い、H27 年度は基底部長さ 400nm ~ 1.6 μ m、H28 年度は基底部長さ 100nm ~ 400nm、H29 年度は基底部長さ 30nm ~ 100nm、先端極率半径 1 ~ 5nm の極微小電子源を開発する。

(2) 低仕事関数・耐環境性エミッタ材料の開発：エミッタ材料として耐腐食性に優れ、高硬度・高化学安定性なアモルファスカーボンと TiN を候補とする。アモルファスカーボン薄膜は、プラズマ CVD 法により、水素 (H_2) ガス、メタン (CH_4) やアセチレン (C_2H_2) ガスを原料ガスとし、アモルファスカーボン薄膜を試作する。

(3) 電界電子放出特性及び仕事関数材料の評価・解析：(2) (3) で開発した極微小電子源の電界電子放出特性・F E - S E M などによる表面観察ならびに XPS, UPS, 電界電子放出特性等から仕事関数を求め、エミッタ材料作製条件・組成・モフォロジーと仕事関数・電界電子放出特性等との関係を明らかにする。

(4) 大電流電界電子放出評価ユニットを用いた・設計・試作：本研究では、電力変換デバイス・高効率・高現実感・3次元ディスプレイ実現のため、従来の数 nA ~ 数 mA 程度の電界電子放出電流ではなく、従来作製の無い数 A/cm^2 レベルの電界電子放出電流をひとつの目標としている。そのため、数十 mA 程度しか測定できない現在所有の電界電子放出評価装置の電流評価能力向上のため、電力変換デバイス・高性能 3次元ディスプレイデバイスの検討に基づき、4 ~ 5 A/cm^2 程度の大電流電界電子放出電流評価ユニットを設計・発注・試作する。H27 年度から大電流電界電子放出電流評価ユニットを設置・立ち上げ、(1)(2)(3)の結果をもとに、約 $1A/cm^2$ 程度の大電界放出電流が得られる極微小電子源を試作、エミッタ材料組成、表面障等と大電流・電流安定性・均一性等との関係を究明する。同時に、高性能 3次元ディスプレイデバイスや電力変換デバイスとしてのエミッタ概念・構造設計も進め、例えば、既存の半導体パワーデバイス IEGT 等を用いた N700 系新幹線の 3.3kV, 1.2kA、大きさ 3,250(W) \times 2,180(L) \times 700(T)mm、実効電流密度 17mA/ cm^2 をモチーフに、300(W) \times 400(L) \times 5(mm) の超小型高効率真空ナノパワースイッチングデバイスで同等の性能が得られるか検討する。なお、MIT の Tuller (NEMS ベンチャーを創業、

材料物性の世界的泰斗) と英国ケンブリッジ大学 Center for Advanced Photonics and Electronics (CAPE) 先端光電子工学研究所の所長の Milne (ナノテクノロジーの世界的泰斗) を連携研究者として招聘し、共同研究を行った。

4. 研究成果

転写モールド法エミッタ作製技術を用いて、低仕事関数・耐環境性エミッタ材料としてアモルファスカーボン薄膜を Si 鋳型内に形成する。アモルファスカーボン薄膜は、プラズマ CVD 法により、アセチレン (C_2H_2) ガスを原料ガスとし、常温で行いを試作した。更に金属支持層を充填、Si 溶解除去を用い Si 鋳型を除去し、微小電子源を試作した。低温作製可能で膜形成速度制御も容易なスパッタリング法を用い TiN 被覆型転写モールド法微小電子源を試作した。

試作したエミッタ材料であるアモルファスカーボンと TiN の仕事関数は 3.2eV-3.6eV となり一般的なエミッタ材料の Mo の 4.5eV と比較して低くなった。

転写モールド法エミッタ作製技術と電子ビーム露光法により 400nm ~ 1.6 μ m の Si 鋳型、100 nm ~ 400nm の Si 鋳型、50nm ~ 100nm の Si 鋳型を試作し、それぞれ基底部長さ 383nm ~ 1.58 μ m、110 ~ 180nm、36nm ~ 41nm の先端曲率半径 3.0 nm ~ 3.2 nm、2.9nm ~ 3.5nm、2.6 ~ 2.8nm の先端曲率半径の先鋭性に優れた極微小電子源の開発に成功した。先端曲率半径の標準偏差も 1.3nm から 0.8nm へと小さくなった。転写モールド法微小電子源の微小化により先端先鋭性と均一性が向上した。従来の微小電子源の基底部長さは 100nm ~ 数 μ m までであったが、作製した基底部長さ 36nm の転写モールド法極微小電子源は、世界最小値である。

更に、基底部長さ 383nm の極微小電子源の場合は、ピッチを 1 倍から 0.75 倍、0.55 倍程度までに集積化しエミッタ密度が 2.0×10^8 個から 2.8×10^8 個、 5.3×10^8 個までに約 2.7 倍に増加した高密度エミッタの極微小電子源を作成した。

次に、試作した転写モールド法微小電子源の電界電子放出特性を調べた。基底部長さ 1.58 μ m から 36nm まで微小化した転写モールド法微小電子源の turn-on 電界は、17.5V/ μ m から 10.2V/ μ m と低くなり、既存の Spindt 型微小電子源などの 50-600 V/ μ m と比較して turn-on 電界が低くなった。基底部長さ 1.57 μ m から 36nm までの微小化により先端曲率半径が 3.2 nm から 2.6nm まで先端先鋭性が向上し、電界集中係数が増加したためと考えられる。

更に、基底部長さ 383nm の極微小電子源の場合は、ピッチを 1 倍から 0.75 倍、0.55 倍程度までに集積化しエミッタ密度が 2.0×10^8 個から 2.8×10^8 個、 5.3×10^8 個までに約 2.7 倍に増加した高密度転写モールド法微小電

子源の電界電子放出特性を調べて、turn-on電界は 15.4 V/ μm より 15.3 V/ μm 、14.8 V/ μm に低くなった。電子放出電流密度はピッチを 1 倍から 0.75 倍、0.55 倍程度までに集積化し、電子放出サイトが増加したため、61.6mA/cm² から 101.9mA/cm²、164.8mA/cm² に増加したためと考えられる。

更に、バラスト抵抗を用いない基底部長さ 36 nm の転写モールド法微小電子源の電界電子放出電流の経時変動は、 $\pm 1.6\%$ となった。 $\pm 1.6\%$ はバラスト抵抗を用いない微小電子源の中で世界最高の安定性を示す値である。

電力変換デバイス・高効率・高現実感・3次元ディスプレイ実現のため、数十~1A 程度の大電流電界電子放出電流評価ユニットを設計・試作した。

転写モールド法微小電子源の電子放出電流密度は 1.6 A/cm² となり、電力変換デバイス・高効率・高現実感・3次元ディスプレイ実現のため、本研究の目標値の約 1A/cm² を上回る極微小電子源の開発に成功した。

本研究は太陽光・風力・原子力・スマートグリッドシステム、超伝導送電に有用な超低損失超小型電力変換デバイス、高効率・高現実感・3次元ディスプレイ、ならびに宇宙用電気推進エンジンの実現、更に、大面積量子効果デバイス作製基礎技術の実現を目指すものであり、本研究で試作した極微小電子源の結果から高性能3次元ディスプレイデバイスや電力変換デバイスとしてのエミッタ概念・構造設計も進め、例えば、既存の半導体パワーデバイス IEGT 等を用いた N700 系新幹線の

3.3kV, 1.2kA, 3250(W)x2180(L)x700(T)mm, 実効電流密度 17mA/cm² をモチーフに、300(W)x400(L)x 5(mm)の超小型高効率真空ナノパワースイッチングデバイスで同等の性能が得られることが今後期待される。

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 12 件)

M. Nakamoto, J. Moon, High Density Vacuum Nanoelectronic Devices by Transfer Mold Method for Green Electronics, Tech. Digest of EMN (Energy Materials and Nanotechnology) Meeting on Environment and Materials 2017, 査読有、10 巻、2017、102 - 103

M. Nakamoto, J. Moon, Extremely Stable and Low Work Function Conductive Ceramic Materials for Display Devices, Proc. of the 37th IDRC, 査読有、37 巻、2017、85 - 86

M. Nakamoto, J. Moon, New Environment-Hard Nanomaterials for Vacuum Nanoelectronics, Proc. of the 11th International Nanotechnology/MEMS

Seminar (INMS) 2017, 査読有、11 巻、2017、S3-3-1 - S3-3-11

M. Nakamoto, J. Moon, Vacuum Nanostructured Field Emitters for Power Conversion Devices, Tech. Digest of EMN Prague Meeting 2016 (Energy Materials and Nanotechnology), 査読有、9 巻、2016、102 - 103

M. Nakamoto, J. Moon, Aerospace Environmental Stability of Nanostructured Transfer Mold Amorphous Carbon Field Emitter Arrays, Tech. Digest of 2016 29th International Vacuum Nanoelectronics Conference (IVNC), 査読有、29 巻、2016、210 - 211、DOI: 10.1109/IVNC.2016.7551528

M. Nakamoto, J. Moon, Nanostructured field emitter arrays by Transfer Mold Method, Proc. of the 10th International Nanotechnology/MEMS Seminar (INMS) 2016, 査読有、10 巻、2016、S3-3-1 S3-1-16

M. Nakamoto, J. Moon, New low work function materials and numerical calculations for Transfer Mold field emitter arrays, Proc. of the 8th Japan-Korea Vacuum Nanoelectronics Symposium, 査読有、8 巻、2016、26 - 27
中本正幸, 転写モールド法による耐環境電子源の研究, 第 14 回真空ナノエレクトロニクスシンポジウム予稿集, 査読有、14 巻、2016、97 - 108

M. Nakamoto, J. Moon, Quantum Dot LED fabricated by Transfer Mold Method, Institute of Image Information and Television Engineers Technical Report, 査読有、39 巻、2015、21 - 25

M. Nakamoto, J. Moon, Stable, ruggedized, and nanometer-order size transfer mold field emitter array in harsh oxygen radical environment, J. Vac. Sci. Technol. B, 査読有、33 巻、2015、03C1071-1 - 03C1071-8、DOI: 10.1116/1.4905046

M. Nakamoto, J. Moon, Uniform Quantum Dot Light Emitting Diodes Fabricated by Transfer Mold Method, Society for Information Display (SID) Symposium Digest of Technical Papers, 査読有、46 巻、2015、11、DOI: 10.1002/sdtp.10547

M. Nakamoto, J. Moon, Stable and Harsh Environment Transfer Mold Vacuum Nanoelectronic Green Devices, Energy Materials and Nanotechnology (EMN) Vacuum Electronics Meeting, 査読有、8 巻、2015、88 - 89

[学会発表](計 15 件)

M. Nakamoto, High Density Vacuum Nanoelectronic Devices by Transfer Mold Method for Green Electronics, EMN

(Energy Materials and Nanotechnology) Meeting on Environment and Materials 2017 (招待講演)、2017年

M. Nakamoto、Extremely Stable and Low Work Function Conductive Ceramic Materials for Display Devices、EuroDisplay 2017、2017年

M. Nakamoto、New environment-hard nanomaterials for vacuum nanoelectronics、The 11th International Nanotechnology/MEMS Seminar (INMS) 2017 (招待講演)、2017年

中本正幸、第一原理計算を用いた転写モールド法エミッタ用導電性セラミック材料の電子状態(Ⅳ)、第78回応用物理学会秋季学術講演会、2017年

中本正幸、転写モールド法による耐環境電子源の研究、第14回真空ナノエレクトロニクスシンポジウム(招待講演)、2017年

M. Nakamoto、Vacuum Nanostructured Field Emitters for Power Conversion Devices、EMN Prague Meeting 2016 (Energy Materials and Nanotechnology) (招待講演)、2016年

M. Nakamoto、Aerospace Environmental Stability of Nanostructured Transfer Mold Amorphous Carbon Field Emitter Arrays、2016 29th International Vacuum Nanoelectronics Conference (IVNC)、2016年

M. Nakamoto、Nanostructured field emitter arrays by Transfer Mold Method、The 10th International Nanotechnology/MEMS Seminar (INMS) 2016 (招待講演)、2016年

M. Nakamoto、New low work function materials and numerical calculations for Transfer Mold field emitter arrays、The 8th Japan-Korea Vacuum Nanoelectronics Symposium (招待講演)、2016年

中本正幸、第一原理計算を用いた転写モールド法エミッタ用導電性セラミック材料の電子状態(V)、第63回応用物理学会春季学術講演会、2016年

M. Nakamoto、Stable and Harsh Environment Transfer Mold Vacuum Nanoelectronic Green Devices、Energy Materials and Nanotechnology (EMN) Vacuum Electronics Meeting 2015(招待講演)、2015年

M. Nakamoto、Low Operation Voltage and High Aspect Ratio Transfer Mold Carbon Nanotubes Field Emitter Arrays、the 9th International Nanotechnology/MEMS Seminar (INMS2015) (招待講演)、2015年

M. Nakamoto、Low Operation Voltage and

High Aspect Ratio Transfer Mold Field Emitter Arrays with Position-Controlled Carbon Nanotube、Energy Materials and Nanotechnology (EMN) Qingdao Meeting 2015 (招待講演)、2015年

M. Nakamoto、Uniform Quantum Dot Light Emitting Diodes fabricated by Transfer Mold Method、Eurodisplay 2015、2015年

中本正幸、転写モールド法極微小エミッタアレイの放電電流安定性、第76回応用物理学会秋季学術講演会、2015年

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.rie.shizuoka.ac.jp/advancednanomachining.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中本 正幸 (NAKAMOTO, Masayuki)

静岡大学・工学部・特任教授

研究者番号： 10377723

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者

佐々木 正弘 (SASAKI, Masahiro)

筑波大学・数理物質科学研究科(系)・教授

研究者番号： 80282333

山口 作太郎 (YAMAGUCHI, Satarou)

中部大学・藤原洋記念超伝導・持続可能エネルギー研究センター・教授

研究者番号： 10249964

後藤 康仁 (GOTOH, Yasuhito)

京都大学・工学研究科・准教授

研究者番号： 00225666

Harry Tuller (TULLER, Harry)

米国マサチューセッツ工学大学(MIT)・工学研究科・教授

William I. Milne (MILNE, William I.)

英国ケンブリッジ大学・先端光電子工学研究所・教授

文 宗鉉 (MOON, Jonghyun)

静岡大学・工学部・助教

研究者番号： 30514947