

氏名(本籍地)	川端章夫
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第 7238 号
学位授与年月日	平成 27 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	

触媒分析によるカーボンナノチューブ高密度化検討とその放熱特性

主査	筑波大学教授	工学博士	山部紀久夫
副査	筑波大学教授	工学博士	重川秀実
副査	筑波大学教授	Ph.D	佐野伸行
副査	筑波大学准教授	工学博士	蓮沼 隆

論 文 の 要 旨

最先端超高集積回路では、待機時に pn 接合を流れる電流つまり待機電力が世代とともに大きくなり、動作時の電力に近づきつつあり、全消費電力として無視できないレベルになってきている。待機電流を抑制するためには、チップ温度の低下が有効である。シリコンチップと冷却部位の接続において、熱伝導を高め、温度差による変形に対する応答性をもたせることが放熱の重要なポイントであり、現在用いられている半田やインジウムは、シリコンよりも熱伝導率が低く、放熱のネックとなっており、理論的に銅の熱伝導率 $400\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ より 10 倍以上高い $6600\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ のカーボンナノチューブ(CNT)が接続部材サーマルインターフェイス材料(TIM)として期待される。

従来、CNT の成長では、密度と長さが不足し、上記工学的応用には供し得なかった。CNT を高密度長尺化する技術を目指し、研究開発を進めた結果、第一段階の研究結果として得られた 450°C での成長では、Dense Vertical and Horizontal Graphene (DVHG)なる構造、つまり、成長初期にグラフェンが形成され、厚さ 500nm 程度で成長が止まることがわかった。成長は、触媒となる Fe 微粒子の表面で、一旦溶け込んだ C 原子が飽和状態から表面で CNT として成長することが提案されている。気相から CNT への流れを Fe 微粒子が触媒としてサポートする。成長点は、Fe 微粒子と CNT 界面である。CNT が成長し続けるためには、原料ガスが Fe 微粒子まで供給され、Fe 微粒子が触媒として活性でありつづけることが必要である。

本技術を基に、成長温度を 800°C まで高め、触媒活性の寿命を高めることができることを実証することができ、DVHG の下部に CNT を成長させることができた。しかし、CNT 密度を高めることができたものの、長さは数 μm と短く、変形を吸収できる弾力性を実現することはできなかった。そこで、 450°C から 800°C の間の温度変化を制御する Slope control of Temperature Profile (STEP) を提案し、種々の温度変化率で成長を試みたところ、CNT 占有率を 0.014 から 0.21 に高めることができ、STEP 成長法の有効性を

実証することができた。

さらに、触媒となる Fe 微粒子の触媒活性性の継続がもうひとつのポイントとなる。Fe 微粒子が酸化され酸化物となったり、基板となるシリコンに Fe が拡散してシリサイドを形成したりすると、Fe 微粒子は縮小することになり、触媒活性性が低下する。一方、酸化物を還元し、かつ基板へ拡散しシリサイド化することを抑制することで、触媒活性を継続し、CNT を成長し続けることができることが明らかとなった。結果、CNT 密度 0.14g/cm^3 、長さ $40\ \mu\text{m}$ を実現するに至った。

高密度化は CNT 表面の鏡面化を実現し、同時にサーモフレクタンズ法による CNT 表面の温度計測を可能にした。その結果、熱伝導率 $260\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ となり、接合温度 7.6 度の低下を実現した。CNT-TIM の効果を In-TIM と比較したところ、CNT-TIM の方が熱抵抗が 3.9% 低くなり、CNT の有効性を実証することができた。

審 査 の 要 旨

[批評]

発展するシリコンテクノロジーの中、微細化だけでなく、周辺技術を含めて、集積回路の性能を上げていくことが求められている。本研究は、広く超高集積回路技術を俯瞰し、動作時のシリコンチップ温度の低下による消費電力を低下する技術に着眼し、最先端ナノテクノロジーの一つである CNT を放熱部材に応用することを勧めた。応用を行うための基礎技術を構築したものであり、多くの課題を残しつつも、実証と基礎的理解を両立させた例として考えることができる。

CNT-TIM が実用的に有効性を示したばかりでなく、CNT 成長、特に高密度長尺化成長には、Fe 微粒子の径保存が重要であり、酸化と拡散を制御することがポイントとなることを実験的に明らかにしたことは、今後、さらなる技術革新を進めていくための大きな礎を構築した。このことは、学術的にも工学的にも大きく評価できる。

さらに、CNT を高密度に成長させることで、表面の鏡面化が実現され、サーモフレクタンズ法による表面温度の観測を可能とすることができることを示したことも大きな成果である。

また、CNT は、ナノエレクトロニクスでは、一本一本をトランジスタに適用したり、コンタクト抵抗を低減したりする技術への適用に目を奪われがちである。しかし、現実世界では本研究のような応用があることを示しつつ、CNT の成長メカニズムを明らかにしていった。着眼点の多様性を持つことの重要性を示したことは、博士学位取得の一つの目的を果たしていると言える。

低迷する日本のナノエレクトロニクス産業における一つの攻め所、日本の技術の底力を見せていると考えることができる研究である。

[最終試験結果]

平成 27 年 2 月 16 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

[結論]

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。