

論文内容の要旨

博士論文題目

Research on the fabrication of three-dimensional periodic nanostructure in solution-derived semiconductor materials toward lowering of thermal conductivity
低熱伝導率化に向けた塗布型半導体材料内への三次元周期的ナノ構造形成に関する研究

氏名 王旭東方

(論文内容の要旨)

三次元(3D)周期的ナノ構造体は、材料固有の特性に加え周期構造由来の特性も発現することから、デバイスの更なる高性能化が期待されている。本研究では熱電変換素子に向け、高レベルの出力因子を維持し、溶液由来の半導体材料を通じて格子熱伝導率を低下させることを始めとする三次元周期的ナノ構造体に着目し、塗布型半導体材料を用いた非真空プロセスによる三次元周期的ナノ構造体の新規作製プロセス確立および最適化を目的とした。

本論文は第一章序論から第六章結論までの全六章で構成されている。第二章では、3D 周期構造体創製に向け、Proximity field nanopatterning (PnP) プロセスを用いた感光性樹脂の 3D 構造体形成について検討している。PnP プロセスを用いた 3D 構造体の作製では、均一な加熱、露光する前に可能な限り溶媒を蒸発させ、また異なる感光性樹脂では、必要な照射量も異なるということ (SU8 : 10 mJ/cm², KMPR : 25 mJ/cm²) が重要なポイントであることを示した。第三章では、PnP プロセスで形成した 3D 周期構造体をテンプレートとして利用し、塗布型 ZnO を非真空プロセスにより浸透することによる 3D 反転構造作製プロセスの最適化について検討した。その結果、ZnO 前駆体濃度の変化により、脱泡プロセスを先に実行するプロセスでは、表面残留物のない良好なナノ構造形成ができた。また、作製した構造体面外方向のナノ構造サイズをある程度に制御することができ、更に、面内方向の周期性を精度よく制御することができることを明らかにした。第四章では、ZnO より低い熱伝導率を有する水素化アモルファスシリコン (a-Si:H) を塗布型シクロペンタシランを用いたプロセスの最適化により、同じ浸透プロセスを実行することで 3D 反転構造の作製を試みた。その結果、ナノ構造では高温アニーリングにより面外方向に大きな収縮が発生し、面内方向の周期性では約 6.7% の収縮が起きることがわかった。以上より、PnP および溶液半導体材料充填による 3D 周期ナノ構造形成プロセスは ZnO だけでなく他材料系にも展開可能であることを示した。第五章では、作製した周期構造の熱電性能に係る特性評価を検討した。その結果、3D 周期構造体からの散乱は透過率を低下させ、反射率を効果的に高めることができた。また、ZnO 濃度の低減に連れてゼーベック係数が下がることも判明した。

以上の結果より、塗布型半導体材料を用いた非真空プロセスによる周期的ナノ構造体創製に成功した。本研究で得られた知見により、熱電変換素子の低熱伝導率化が実現可能となり、熱電変換素子の高効率に貢献すると期待される。

(論文審査結果の要旨)

高い性能をもつ熱電変換素子の実現に向け、溶液状態の半導体材料を用いて、格子熱伝導率を低減することで、三次元周期的ナノ構造体の作製プロセス確立を目的とした研究に取り組んだ。本研究では、以下に述べる4つの課題に取り組んだ結果、以下の知見を得た。

- ① 感光性樹脂の3Dテンプレート形成に向けたUVレーザー照射システムの構築およびプロセス条件の最適化と二種類のネガ型感光性樹脂に対するプロセス条件の検討および構造体の形成を行った。それらの結果より、Proximity field nanopatterning (PnP)を用いた3D構造体の作製において、均一な加熱が必要であり、露光する前に可能な限り溶媒を蒸発させ、また感光性樹脂が異なれば、必要な照射量も異なるということが重要なポイントであることが明らかになった。
- ② PnPプロセスで形成したネガ型感光性樹脂の3Dナノ周期構造体をテンプレートとして利用し、塗布型ZnOを非真空プロセスである充填プロセスにより浸透することによる3D反転構造作製プロセスの最適化および構造体の形成について検討した。その結果、塗布型ZnO前駆体濃度の最適化により、脱泡プロセスを先に実行するプロセスでは、表面残留物の無い均一なナノ構造形成ができた。また、作製した構造体の面外方向のナノ構造サイズを制御することができ、更に、ナノ構造の面内方向の周期性を精度よく制御することができた。
- ③ ZnOより低い熱伝導率を有する水素化アモルファスシリコン(a-Si:H)を塗布型シクロペンタシランから形成し、プロセスの最適化により、同じ浸透プロセスを実行することでa-Si:Hの3D反転構造の作製を試みた。その結果、シクロペンタシランを使用するため、作製したナノ構造では高温アニーリングにより面外方向に大きな収縮が発生し、面内方向の周期性では約6.7%の収縮が発生した。以上より、PnPおよび溶液半導体材料充填による三次元周期的ナノ構造形成プロセスはZnOだけでなく他材料系にも展開可能であることを示した。
- ④ 作製した周期ナノ構造の熱電性能に係る特性評価を実施した。それらの結果より、3D周期的ナノ構造からの散乱は透過率を低下させ、反射率を効果的に高めることができた。また、ZnO濃度の低減に伴ってゼーベック係数が下がることも判明した。

以上のように、本論文は三次元ナノ周期構造体創製に向けて、塗布型ZnOおよびシクロペンタシランを用いた非真空プロセスによる新規作製プロセスを提案しており、それらが有効であることを実証した点で工学的に高い価値を有すると考えられる。従って審査員一同は、本論文が博士(工学)の学位論文として価値あるものと認められる。