

氏 名 Liu Huarong

学位（専攻分野） 博士（工学）

学位記番号 総研大甲第 1092 号

学位授与の日付 平成 19 年 9 月 28 日

学位授与の要件 高エネルギー加速器科学研究科 加速器科学専攻
学位規則第 6 条第 1 項該当

学位論文題目 Study on High Intensity Field Emission from Carbon
Nanotubes

論文審査委員	主 査 教授	大澤 哲
	教授	細山 謙二
	教授	古屋 貴章
	教授	小林 仁
	准教授	加藤 茂樹
	教授	田中 俊成（日本大学）

論文内容の要旨

Carbon nanotubes (CNT) were firstly discovered by Iijima in 1991. An ideal nanotube can be considered as a hexagonal network of carbon atoms that has been rolled up to make a seamless hollow cylinder. The length of carbon nanotubes ranges from micrometers to centimeters while the diameter is only several nanometers. There are a variety of applications of carbon nanotubes since they have many special properties, such as remarkable electronic transport properties, unusual mechanical properties.

Among these applications, an important one is fabricate all kinds of field-emission electron sources. Their huge aspect ratios can dramatically concentrate an applied electric field on their tips; their excellent electric and thermal conductance guarantee good field emission stability; their extremely high melting point makes them possible to work at a critical condition. Therefore, they are considered as promising field emission materials.

The purpose of this thesis is focused on producing field emitter with large current density, long lifetime, high stability and good repeatability; the following work has been carried out.

1. Field-emission theory and properties of carbon nanotubes have been reviewed. The reason that CNTs are regarded as promising field-emission materials has been discussed; the main achievements and demerits of current CNT emitters are also investigated.
2. Main equipments related to this research have been introduced, such as experimental setup for field-emission test, SEM, and magnetron sputtering deposition system.
3. The rooting technique has been greatly improved by introducing metal substrates deposited with thin titanium films. The influence of film thickness on the field-emission performance has been studied; $2\mu\text{m}$ is decided as appropriate selection. More than 15 A/cm^2 with a total current of $\sim 10\text{mA}$ was reached at $\sim 6.0\text{ V}/\mu\text{m}$. The lifetime of this kind of emitter was as long as 800 hours at 5.0 A/cm^2 with only a 2.50% increase of the applied electric field.

4. The influence of nano-sized particles appended to CNTs on field emission has been investigated; based on the impregnation with RuO₂ nano-sized particles and the above technique, a low threshold field of ~ 0.85 V/ μm , corresponding to 10 mA/cm², has been reached.
5. Multi-emitter arrays (MEA) have been introduced to achieve a high emission current. The field-emission behavior of a single emitter in a MEA has been studied. A new type of MEA is put forward to improve the performance of emitters based on this study; the effect has been experimentally proved. At the same time, the reliance of emission current density on sample area is also studied.
6. The future work has been discussed; new methods have been put forward, which are very possible to further improve the field emission performance for our field emitters.

論文の審査結果の要旨

Liu Huarong氏の博士論文の趣旨はカーボンナノチューブ（CNT）の高密度電界放出特性に関するもので、次の3本柱からなっている。

① カーボンナノチューブ（CNT）の根付の改善。

これはCNTをベース金属に加熱接合する技術である。従来は厚いTi箔（100 μm ）の上にCNTを根付けしていた。しかし、この方法には、Tiが過剰であるため、TiとCの固溶反応が速くて根付け時間の制御性が良くないという問題と、根付けの制御性が良くないため、必要以上にCNTが厚膜中に埋没するという問題があった。そこでLiu Huarong氏は、過剰なTiを減らし、同時に根付けの均一性とTi-CNT界面における不純物減少を達成するために、超高真空スパッタ析出法によりTi薄膜をTa表面に直接成膜することを試み、膜厚の最適化も行った。その結果、電界放出電流密度を従来よりも1桁以上増大することに成功した。最適なTi厚は2 μm で、そのときの電流密度は、印加電界6.3V/ μm のとき、15A/cm²であった。また、エミッター面積が0.01mm²の場合ではあるが、8.2V/ μm で110A/cm²以上の電流密度が得られた。5A/cm²と10A/cm²の連続DC電流の寿命試験においては、5%の電界増加を寿命と定義すると、それぞれの寿命の期待値が10万時間と1000時間以上であることを示した。

更にTi粒子をCNTに加えた根付の実験を行ない、極めて微小面積（0.005mm²）からではあるが、電界放出電流密度300A/cm²以上を達成した。

これらは独自の技術であり、今後の研究を方向付ける意義深い研究である。

② RuO₂のナノ粒子が電界放出に及ぼす影響の解明

この粒子をCNTに担持すると電界放出特性が改善するという以前の研究を発展させたものである。RuO₂をCNTに担持すると、低電界では確かに閾値が低下するとともに、電界放出電流が増大する。しかし電界が上がり、電流密度が増大すると、 $\sim 10\text{A/cm}^2$ 領域では放電が頻発するため、担持しないCNTよりも電界放出特性が悪化することを明らかにした。

これは、RuO₂粒子を大電流密度のCNTに応用する場合に発生する問題点を明らかにしたものである。

③ 多重エミッター配列の問題点。

微小面積のCNTエミッターから、高い電界放出電流密度を得る見通しが得られたので、次にLiu Huarong氏はエミッターを多数配列したField Emitter Array (FEA)を用いて、実用的な面積のエミッターとすることを試みた。そしてエミッターの数が増加すると1個あたりの放出電流が減少することを実験的に示した。更にこの減少を回避するために、各エミッターを互いにシールド

する方法を考案し、一定の成果を得た。

これは実用的な面積の大電流エミッターを研究する上で、重要な問題提起である。

Liu 氏の研究は、CNT と基板との接合法による電界電子放出特性の改善と RuO_2 粒子担持の限界を明示し、また FEA の問題点を提起した、独創性のある重要な研究である。審査員全員が一致して、Liu Huarong 氏の論文は博士論文に値すると判定した。