

SICORP EU final summary
“Development of New Materials for the Substitution of Critical Metals”

Project acronym	IRENA
Project title	Indium replacement by single-walled carbon nanotube thin films
Coordinator of the EU part of the project (company/organization)	Esko Ilmari Kauppinen (Aalto University)
Coordinator of the Japanese part of the project (company/organization)	Shigeo Maruyama (The University of Tokyo)
Project period (Start date – End date)	Sept.2, 2013 – Mar.31, 2017
Project website	http://irena.aalto.fi

Consolidated public summary in English

Title of the project

Indium replacement by single-walled carbon nanotube thin films

Catchy title of the project

High-performance, flexible carbon nanotube transparent conductor and thin-film transistors for displays

Objective and Issue

Indium, one of critical metals, is essential for manufacturing indium tin oxide (ITO), transparent conductive thin films which are commonly used in displays, touch sensors, and for manufacturing of emerging indium gallium zinc oxide (IGZO) based thin film transistors (TFTs), which offer better performance and energy-saving operation of displays over traditional amorphous silicon technology.

Single-walled carbon nanotube (CNT) films are a strong candidate for the replacement of the critical metal-based transparent conductive thin films and TFTs in displays. They also offer a possibility of realization of future flexible displays. The main goals of this project are to develop high performance SWCNT thin film materials: metallic and semiconducting films to completely eliminate the use of these critical metals in

display industry. However, the transmittance-conductivity performance of SWCNT-based transparent conductive films should be still improved to meet the industrial requirements for wide range of display applications. The most important issues of SWCNT-based TFTs are the uniformity of device property and the current density sufficient for high-speed driving of display devices such as OLEDs.

The development of SWCNT materials is achieved by rational approaches where nanoscale characterization and modelling are used to guide the discovery of new configurations and optimization of material technology for device level applications and experimental demonstrations, with focus on the interplay between theory and large-scale computational screening and experimental methods. In-situ TEM analysis is also introduced to understand growth mechanism. Post-growth separation technique is also studied to obtain highly-pure semiconducting SWCNTs for TFTs. The achievements of this project are proved by demonstrating high-performance transparent conductive films, touch sensors, and high-performance TFT array with uniform property on plastic film.

Project main results

Significant results were obtained in this project as listed below,

- Deep understandings of SWCNT growth mechanism, which are quite valuable for mass production of SWCNT material and devices as well as for fundamental nano science, have been obtained.
- A novel technology for large scale, rapid extraction of semiconducting SWCNT was developed.
- State-of-the-art SWCNT transparent conductors with a sheet resistance of 29 ohm/sq. at transmittance of 87% have been realized. Highly-transparent film with 69 ohm/sq. at 97%, which is unachievable by conventional ITO, has also been developed.
- 12x12-zone touch sensor, fabricated by one-step transfer printing method, was demonstrated.
- SWCNT TFTs with high on-current of >1 mA/mm have been developed by using purified semiconductors.
- High-yield fabrication of both p- and n-TFTs ($>99.2\%$ for $>1,000$ devices) on plastic film has been achieved, implying a possibility of large-scale integration of SWCNT TFTs.
- Novel high efficiency perovskite solar cells employing SWCNT film as hole transport layer and electrode with power conversion efficiency of $>17\%$ has been achieved.

Added Value from International collaborative work

Japanese groups studied the growth mechanism and its control in the supported-catalyst CNT growth, purification of CNT materials, and thin-film device integration. EU groups studied the growth and control in the floating-catalyst CNT growth and in-situ TEM observation to understand the growth mechanism. By engaging both teams, the performance and reliability of CNT thin film devices have been drastically improved on the basis of full understandings of the growth and physical properties.

Factual information

The IRENA project is a fundamental research project coordinated by Esko I. Kauppinen in EU and by Shigeo Maruyama in Japan. It associated Christophe Bichara, French National Centre for Scientific Research, Jakob B. Wagner, Technical University of Denmark, as well as Hisanori Shinohara and Yutaka Ohno, Nagoya University. The project started on September 2nd, 2013 and lasted March 31, 2017. EU grant amounted to €1,799,648 and JST grant amounted to ¥199,953,000

Consolidated public summary in Japanese

研究課題名

単層カーボンナノチューブ薄膜によるインジウム代替

キャチフレーズ

ディスプレイのための高性能で柔軟なカーボンナノチューブ透明導伝膜及び薄膜トランジスタ

研究概要

希少元素であるインジウムは、ディスプレイやタッチセンサにおいて用いられるインジウムスズ酸化物 (ITO) を構成する重要な元素である。また、最近、ディスプレイのアクティブマトリクスにおいて、従来のシリコン薄膜トランジスタ (TFT) に替えて、インジウムガリウム亜鉛酸化物 (IGZO) 半導体が導入されつつあり、インジウムは TFT 材料としても需要が増えつつある。

希少元素を用いる ITO や IGZO の代替材料として、単層カーボンナノチューブは強力な候補である。また、ナノチューブは将来のフレキシブルディスプレイなどのフレキシブルデバイスの実現を可能にする材料でもある。本プロジェクトの目的は、ディスプレイに用いられる希少元素を代替するための高性能なカーボンナノチューブ薄膜を実

現することである。しかしながら、現状では、カーボンナノチューブ透明導伝膜の性能は幅広い応用において要求される性能を満たしていない。また、カーボンナノチューブ TFT については、素子特性の均一化や OLED の駆動に必要なオン電流の増加が必須である。

カーボンナノチューブ材料の創出においては、ナノスケールの実験的研究と計算科学の両面から成長機構を明らかにし、触媒や成長条件の最適化を進める。特に、成長機構の実験的理解には環境 TEMを用いたその場観察技術を導入する。TFT 用の高純度半導体カーボンナノチューブを得るための分離技術についても研究を進める。また、高性能透明導伝膜やタッチセンサ、均一な特性をもつ高性能 TFT アレイを実証することにより本研究の有効性を明らかにする。

本研究の主な成果

本研究では以下に示すような多くの重要な成果が得られている。

- 単層カーボンナノチューブの成長機構の深い理解を得た。これは、基礎的なナノ科学の深化のみならず、CNT 材料や薄膜デバイスの大量製造に繋がる重要な知見である。
- 半導体カーボンナノチューブを高速かつ大量に分離できる新規の分離技術を創出した。
- 最高性能のカーボンナノチューブ透明導伝膜を得ている（シート抵抗 29 ohm/sq.、透過率 87%）。また、従来の ITO では到達できない透明性をもつ透明導電膜も実現している（69 ohm/sq., 97%）。
- ワンステップの印刷転写法を用いて 12x12 ズーンの静電容量型タッチセンサを実現した。
- 高純度半導体 CNT を用いて 1mA/mm 以上の高い電流密度をもつ TFT を実現した。
- p 型 TFT および n 型 TFT とともに、高均一な素子を高歩留まり (>99.2%, >1,000 素子) でプラスチック基板上に実現し、大規模集積の可能性を示した。
- ペロブスカイト太陽電池において、CNT 薄膜を正孔輸送層として用いることにより、高効率化（効率>17%）を実現した。

国際共同研究の価値

日本側は支持基材上における CNT の成長機構解明と成長制御、材料精製や薄膜デバイス集積を行い、EU 側は気相合成法における CNT の成長制御、その場観察による成長機構解明などを行った。双方の研究チームが得意とする異なる手法を用いて、相互補完的に取り組むことにより、基礎的な物性理解に基づいて CNT 薄膜・デバイスの性能・信頼性の向上に至った。

事業の概要

本研究課題は EU 側のエスコ・カウピネンと日本側の丸山茂夫により取り纏められた基礎研究プロジェクトである。共同研究者はクリストフ・ビチャラ（フランス国立科学技術センター）、ヤコブ・ワグナー（デンマーク工科大学）、篠原久典（名古屋大学）、大野雄高（名古屋大学）である。プロジェクト期間は 2013 年 9 月 2 日から 2017 年 3 月 31 日である。