

Title	酸化物粉体ーガラス系厚膜材料とその応用に関する研究
Author(s)	池上, 昭
Citation	大阪大学, 1988, 博士論文
Version Type	
URL	<a href="https://hdl.handle.net/11094/36488">https://hdl.handle.net/11094/36488</a>
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉</a> 大阪大学の博士論文について <a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed">〈/a〉</a> をご参照ください。

***Osaka University Knowledge Archive : OUKA***

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名・(本籍)	池 上 昭
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	第 8 2 7 9 号
学位授与の日付	昭 和 63 年 6 月 9 日
学位授与の要件	学位規則第 5 条第 2 項該当
学位論文題目	酸化物粉体—ガラス系厚膜材料とその応用に関する研究
論文審査委員	(主査) 教 授 平 木 昭 夫 (副査) 教 授 藤 井 克 彦 教 授 白 藤 純 嗣 教 授 鈴 木 胖 教 授 埴 輝 雄

### 論 文 内 容 の 要 旨

本研究は、酸化物粉体、ガラスの2成分系を基本とする厚膜コンデンサ材料および厚膜サーミスタ材料に関し、その組成と諸特性、諸特性と微構造または化学反応の関係、信頼性とこれに与えるガラスパッシベーションの効果などに関する総合的研究結果およびこれらの成果に基き厚膜コンデンサおよび厚膜サーミスタを工業化した結果をまとめたものである。

本論文は以下の7章から構成されている。

第1章では、本研究に関連する分野のこれまでの歴史的背景と経緯について述べ、本研究の目的を明らかにしている。

第2章では、まず初めに温度補償用厚膜コンデンサ材料として $\text{TiO}_2$ - $\text{MgO}$ - $\text{ZrO}_2$ 系誘電体粉体とガラスから成る2成分系について検討した結果を述べている。この系の誘電率、温度係数は成分となる誘電体およびガラスのそれらをよく反映しておりこれらにより予測可能であること、Q値は誘電体およびガラスのそれだけでなく電極材料の種類により大きく影響されることを実験的に明らかにしている。

次いで、高誘電率厚膜コンデンサを得るため、 $\text{BaTiO}_3$ 系誘電体粉体とガラスの2成分系を検討した結果を述べている。この系の誘電率は、誘電体バルクの誘電率が $10^4$ 以上の誘電体粉体を用いても、約 $10^3$ を越える値にならないこと、その原因は粉体作成時の機械加工が粉体の誘電率を著しく低下させるためであることを実験的に明らかにしている。

第3章では、厚膜サーミスタの基本組成として遷移金属酸化物粉体とガラスの2成分系の電気的性質とその改善について検討した結果を述べている。この2成分系は、その抵抗値の再現性と電圧依存性から、厚膜サーミスタとして実用化不可能であること、その改善にはPdや $\text{RuO}_2$ の添加が有効であるこ

と、これがガラス母相中での導電粒子網の連鎖と分断に関係あることなどを明らかにしている。

第4章では、遷移金属酸化物粉体、 $\text{RuO}_2$ 、ガラスから成る3成分系につき組成と抵抗値、サーミスタ定数の関係を詳細に調べた結果を述べている。この3成分系は、原料として用いた遷移金属酸化物のサーミスタ定数より大きなサーミスタ定数を持つ組成領域Ⅰ、同じ値を持つⅡ、小さな値を持つⅢに3分割されること、これがガラス母相中における遷移金属酸化物粒子と $\text{RuO}_2$ 粒子の直・並列配置と対応していることを明らかにしている。また、特に実用的に優れた組成領域Ⅱに属する材料の諸特性に与える遷移金属酸化物の電気的性質、 $\text{RuO}_2$ の粒径、ガラス材料の軟化点の効果を明らかにしている。

第5章では、まず厚膜コンデンサの信頼性とガラスパッシベーションの欠陥との関連、欠陥発生とプロセス条件の関係などを明らかにし、結晶化ガラスとこれを覆う非晶質ガラスの2層構造のガラスパッシベーションが、高信頼度化に必要な不可欠であることを示している。次いで厚膜サーミスタの抵抗値の経時変化が、アレニウスの温度加速式に従うこと、上記の2層構造のパッシベーションがその高信頼度化に著しい効果をもたらすことを明らかにしている。

第6章では、2～5章の結果を基に厚膜コンデンサのハイブリッドICへの応用、厚膜サーミスタの温度センサおよび電子回路の温度補償素子としての応用結果を示し、その適用が電子回路および温度センサの高精度、小形、高信頼度化などに対する強い工業的要請に十分答え得ることを実証している。

第7章では、本研究で得られた結論を総括している。

## 論文の審査結果の要旨

本論文は、厚膜コンデンサおよび厚膜サーミスタの適用により厚膜ハイブリッドモジュールおよびセンサの機能向上、小形化、高信頼度化をはかるため、酸化物粉体-ガラス系の電気的性質、信頼性について行なった一連の研究をまとめたもので、その成果はすでに各種電子機器用厚膜モジュール、温度センサ、工業用圧力伝送器などに活用されているが、要約すると次のとおりである。

- (1) 温度補償用厚膜コンデンサ材料として用いる $\text{TiO}_2$ - $\text{MgO}$ - $\text{ZrO}_2$ 系誘電粉体とガラスから成る2成分系の誘電率および誘電率の温度係数は成分となるガラスおよび誘電体の性質を良く反映しており、これらから推定できること、また、系のQが原料誘電体のそれだけでなく、用いるガラスのQと電極の種類により大きく影響を受けることを実験的に明らかにしている。
- (2) 高誘電率厚膜コンデンサとして用いる $\text{BaTiO}_3$ 系誘電体とガラスの2成分系の誘電率が誘電体バルクの誘電率より予測した値より著しく低いこと、この原因が粉体作成時の機械加工が粉体の誘電率を著しく低下させるためであることを明らかにしている。
- (3) 酸化物半導体-ガラスの2成分系は、その抵抗値の電圧依存性およびその再現性から、厚膜サーミスタとして実用不可能であることを膜の微構造と関連付けて明らかにし、その改善には、Pdや $\text{RuO}_2$ の添加が有効であることを実験的に確認している。
- (4) 酸化物半導体- $\text{RuO}_2$ -ガラス3成分系につき、組成と抵抗値、サーミスタ定数の関係を詳細に調

べ、この系の電氣的性質がガラス母相中における酸化物半導体粉体と  $\text{RuO}_2$  粉体の直・並列配置と対応していることをつきとめている。また、安定性の優れた直列配置を示す組成につきその特性を与える酸化物半導体の性質、 $\text{RuO}_2$  粒径、ガラス材料の効果について調べ、その諸効果を明らかにしている。

- (5) 厚膜コンデンサおよび厚膜サーミスタの信頼性確保に不可欠なガラスパッシベーションにつき、そのプロセス条件とガラスの欠陥、ガラスの欠陥と信頼性の関連を明らかにし、結晶化ガラスと非結晶化ガラスの2層パッシベーションが最も優れていることを明らかにしている。
- (6) 厚膜コンデンサのハイブリッドモジュールへの適用を行い、その適用がモジュールの小形化、信頼性向上に有効であることを示している。

また、電子回路および電子部品の温度補償用素子として厚膜サーミスタの有効性を、テレビ垂直出力モジュール、工業用圧力伝送器への応用例により示している。これらの応用では、いずれも厚膜回路との組合せで厚膜サーミスタの膜としての特徴が活用されることを明らかにしている。工業用圧力伝送器への応用では特に高精度、高信頼度が要求されるが、厚膜サーミスタはその要求に十分応え得ることを実証している。

以上のように、本論文は厚膜コンデンサおよび厚膜サーミスタの工業化に対する種々の課題に対し多くの知見を得ており、電子工学、特に電子機器の小形化、高精度化、高信頼度化の実現に寄与するところが大である。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。