



Title	Synthesis and Characterization of Lead-free Ferroelectric Nano-materials by Novel Processing
Author(s)	金, 昌烈
Citation	大阪大学, 2002, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/43428
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、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

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

The University of Osaka

氏 名	金 昌 烈
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	第 1 6 9 8 8 号
学 位 授 与 年 月 日	平成 14 年 3 月 25 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科物質化学専攻
学 位 論 文 名	Synthesis and Characterization of Lead-free Ferroelectric Nanomaterials by Novel Processing (新しいプロセッシングによる鉛フリーナノ強誘電体の合成)
論 文 審 査 委 員	(主査) 教 授 新 原 皓 一
	(副査) 教 授 甲 斐 泰 教 授 町 田 憲 一 教 授 城 田 靖 彦 教 授 野 島 正 朋 教 授 小 松 満 男 教 授 平 尾 俊 一 教 授 大 島 巧 教 授 田 川 精 一

論 文 内 容 の 要 旨

本論文では、鉛フリー圧電体として注目されている $\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ (BNT) を取り上げ、その粉末や薄膜をゾルゲル法で作製する研究ならびに、 BaTiO_3/Cu 系複合体の製造プロセス、構造と機能の相関関係に関して研究を行い、鉛フリー電子セラミックスの新しい材料設計の指針を明らかにした。

第 1 章では強誘電体の理論的な背景を考察し、鉛フリー誘電体への研究の方向と目的を提示した。

第 2 章では、BNT ゾル作製とナノ粉末合成についての結果を述べた。酸化ビスマス (Bi_2O_3) と炭酸ナトリウム (Na_2CO_3) を硝酸に溶かした溶液をエチレングリコールに添加・攪拌しながらチタンテトライソプロポキシド (titanium tetraisopropoxide) を導入し、透明なゾルを作り、それを熱処理することより BNT ナノ粉末の合成を試み、成功した。

第 3 章では、本研究で開発したゾルをスピンコーティング法で Si 基板上にコーティングし、得られた薄膜の結晶相の同定、BNT 薄膜の電子顕微鏡による観察、電気的特性、機械的特性および光学的特性の評価を行い、高機能性 BNT 薄膜の材料設計の指針を明らかにした。

第 4 章では、 BaTiO_3 粉末と Cu_2O 粉末を原料とした成形体を窒素雰囲気中で還元・焼結する方法で、 BaTiO_3/Cu コンポジットを作製することに成功した。さらに、還元雰囲気での焼結中に生じる Cu_2O の Cu への還元プロセス、その後に生じる BaTiO_3/Cu コンポジットの焼結挙動を解明すると共に、微細組織と機能の相関関係を明らかにし、金属を複合化することによる BaTiO_3 の機能改善および材料設計の指針を明らかにした。

第 5 章では、本研究の主な結果をまとめて示した。

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は、鉛フリー系の電子セラミックスとして $\text{Bi}_{1/2}\text{Na}_{1/2}\text{TiO}_3$ (BNT) と BaTiO_3 に注目し、BNT ではゾルゲル法による粉末や薄膜の作製を、また BaTiO_3 では Cu 金属を分散した BaTiO_3 基複合体の作製を行い、それらのナノ組織と機能の関連を明らかにしたもので、主な成果を要約すると以下の通りである。

(1) 酸化ビスマス (Bi_2O_3) と炭酸ナトリウム (Na_2CO_3) を硝酸に溶かした溶液を、エチレングリコールに添加・

攪拌しながら、チタンテトライソプロポキシド (titanium tetraisopropoxide) を導入する改良型のゾルゲル法で透明なゾルの合成に成功し、それを熱処理することにより BNT ナノ粉末の合成にも成功している。また、FR-IR と Raman 分光分析から、ビスマスとナトリウムが硝酸塩として存在していること、および、チタンイソプロポキシドはエチレングリコール酸および酢酸により修飾され、透明なゾルが合成されることを見出している。

(2)合成した BNT ゾルを乾燥し、高温 X 線と DTA/TG 熱分析を通し、BNT の結晶化が600°Cから起こることを確認している。また、700°Cで熱処理した BNT 粉末の平均粒径は約100nm であることを見出している。

(3)鉛フリーの強誘電体を実用化するためには薄膜化が必須であることに注目し、本研究で開発した BNT ゾルを Si 及び SiO₂基板上にスピンコーティングする方法で BNT の薄膜化を試み、クラックの存在しない BNT 薄膜が、250°Cで10分間乾燥し、ついで700°Cで30分熱処理するプロセスで作製可能であることを明らかにしている。また、作製した薄膜中の BNT の結晶粒径が約100nm であること、BNT 薄膜の屈折率が約1.7-2.1、バンドギャップエネルギーが3.5eV、硬度が約 9 GPa で、弾性率が180Gpa であり、さらに誘電特性が 1 kHz、550°Cで約460であることを見出している。

(4)鉛フリー強誘電体として注目されている BaTiO₃に注目し、窒素雰囲気下で Cu₂O を Cu に還元・焼結することにより BaTiO₃/Cu 系マイクロ／ナノ複合材料の作製に成功している。DTA/TG 熱分析で100ml/min 窒素フロー雰囲気では900°Cで Cu₂O が Cu に還元し BaTiO₃と共融し、それが固化するプロセスで BaTiO₃/Cu コンポジットが製造可能なことを明らかにし、また、微細組織と強誘電的機能の相関関係を明らかにすることと、金属の複合化による BaTiO₃の機能改善および材料設計の指針を明らかにしている。さらに、少量の Cu₂O 添加でも緻密化が可能になるのは液晶焼結が寄与しているためであり、このために1280°Cからは異常粒成長も確認されることを明らかにしている。

以上のように、本論文は、鉛フリー系の電子セラミックスの製造や材料設計に必要な多くの基礎的知見を与えるもので、材料工学、複合材料工学の確立に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。