

Title	Multifunctional Silicon Nitride Ceramics Through Nanostructure Control of Grain Boundary
Author(s)	金, 允護
Citation	大阪大学, 2005, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/45893
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"〉 大阪大学の博士論文について 〈/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	金 允 護
博士の専攻分野の名称	博士(工学)
学位記番号	第 19455 号
学位授与年月日	平成 17 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	Multifunctional Silicon Nitride Ceramics Through Nanostructure Control of Grain Boundary (結晶粒界ナノ構造制御による多機能調和型窒化ケイ素)
論文審査委員	(主査) 教授 新原 皓一 (副査) 教授 甲斐 泰 教授 小松 満男 教授 平尾 俊一 教授 大島 巧 教授 今中 信人 教授 桑畑 進 教授 町田 憲一 教授 田川 精一 教授 宇山 浩

論文内容の要旨

本論文は粒界相の組成制御による構造材料への高次機能の付与を目指して、様々なカチオン伝導及び電子伝導性を示す構造用セラミックスの設計・開発および特性評価を目的として行った研究成果をまとめたもので、全五章で構成されている。

第 1 章では、本研究の背景、目的及び論文の構成について記した。

第 2 章では、Li、Na、K、Ca などをキャリアとするイオン伝導性アルミノシリケート焼結体を PECS を用いて作製し、その物理的特性とイオン伝導性の相関を考察した。また、作製したイオン伝導性物質を窒化ケイ素の粒界に分散させた複合材料の作製を試み、その物理的特性と微細構造、機械的特性、伝導のメカニズムの解明を試みた。その結果、イオン伝導性を有し、かつ焼結助剤にもなりうる粒界相を構成する事により、優れた機械的特性や高いイオン伝導性を併せ持つ多機能調和型窒化ケイ素の作製に成功した。特に、 Li^+ と Na^+ イオン伝導性窒化ケイ素の電気伝導度は、一般的な窒化ケイ素に比べて約 10^4 オーダーも高い電気伝導度の向上が確認された。なお、一価カチオンの Li^+ 、 Na^+ 、 K^+ の活性化エネルギーを Arrhenius 式によって計算した結果、 Li^+ の場合は 0.73、 Na^+ の場合は 0.58 eV で、それぞれのガラス自身の値とほぼ一致した。

第 3 章では、窒化ケイ素セラミックスに電気伝導性を付与するもう一つのアプローチとして、常温でも高い電気伝導性を持つ電子伝導性窒化ケイ素作製に着目した。遷移金属である V を多量に含む電子伝導性 V_2O_5 系ガラスを溶融・急冷法で作製し、その物理的特性と電気伝導性の相関を検討した。また、作製した電子伝導性 V_2O_5 系ガラスを用い、 Si_3N_4 粉末と混合焼結して電子伝導性窒化ケイ素の作製に成功し、その物理的特性と微細構造、機械的特性、電気伝導性の相関を解明した。

第 4 章では、電子伝導性窒化ケイ素の新たな作製法として、原料粉末とエタノールの溶液を乾燥させる直前に蒸留水を添加する簡便な手法を提案した。その新たな手法により V_2O_5 が溶媒と共に蒸発することなく、仕込み組成と同様な V_2O_5 系ガラス成分と窒化ケイ素の混合粉末作製に成功した。その結果、常温でも一般的な窒化ケイ素に比べて約 $10^4 \sim 10^6$ オーダーと著しく高い電気伝導度の向上が確認された。また、その焼結体の物理的特性と微細構造、伝

導のメカニズムを解明した。

第5章では、本研究を総括し、主な成果をまとめた。

論文審査の結果の要旨

本論文は、粒界相の組成制御による構造セラミックス材料への高次機能の付与を目指して、様々なカチオンをキャリアとするイオン伝導性ガラス及び遷移金属酸化物系半導性ガラスをマトリックスである窒化ケイ素の粒界に分散させることにより、イオン及び電子伝導性窒化ケイ素を作製し、その微細構造と電気伝導特性および機械的特性との相関を明らかにし、電気伝導メカニズムを解明することで、新しい機能の付与が可能であることを見いだしている。主な結果を要約すると以下のとおりである。

- (1) Li、Na、K、Caなどをキャリアとするイオン伝導性アルミノシリケート焼結体を PECS を用いて作製し、その物理的特性とイオン伝導性の相関を考察している。作製したイオン伝導性物質を窒化ケイ素の粒界に分散させた複合材料の作製を試み、このイオン伝導性物質は、焼結助剤としての役割も持ち、焼結後は粒界の構成相となることを透過型電子顕微鏡で確認している。また、作製した複合材料は、優れた機械的特性と高いイオン伝導性を併せ持つ多機能調和型窒化ケイ素であることを明らかにしている。
- (2) 窒化ケイ素セラミックスに電気伝導性を付与するもう一つのアプローチとして、常温でも高い電気伝導性を持つ電子伝導性窒化ケイ素が作製可能であることを見いだしている。遷移金属である V を多量に含む電子伝導性 V_2O_5 系ガラスを溶融・急冷法で作製し、その物理的特性と電気伝導性の相関を考察している。また、作製した電子伝導性 V_2O_5 系ガラスを用い、 Si_3N_4 粉末と混合焼結して電子伝導性窒化ケイ素の作製に成功し、その物理的特性と微細構造、機械的特性、電気伝導性の相関を明らかにしている。
- (3) 電子伝導性窒化ケイ素の新たな作製法として、原料粉末とエタノールの溶液を乾燥させる直前に蒸留水を添加する簡便な手法を提案している。その新たな手法により V_2O_5 が溶媒と共に蒸発することなく、仕込み組成と同様な V_2O_5 系ガラス成分と窒化ケイ素の混合粉末作製に成功している。その結果、常温でも一般的な窒化ケイ素に比べて約 $10^4 \sim 10^6$ オーダーと著しく高い電気伝導度の向上を確認している。また、その焼結体の物理的特性と微細構造、伝導のメカニズムを明らかにしている。

以上のように、本論文は、代表的な構造用セラミックス材料である窒化ケイ素セラミックスを、最近注目されている 21 世紀の新しい基盤材料として位置付けるために、単機能型材料から多機能型材料へと変身させる事に成功し、材料設計に関して新しい多くの知見を得ている。これらの成果は、セラミックス材料の信頼性の向上に寄与すると共に、イオン及び電子伝導性を付与した多機能材料の設計を可能にするもので、物質化学、材料工学、複合材料工学の発展に大きく寄与するものである。よって、本論文は博士論文として価値あるものと認める。