

氏名	井上 和 浩
学位の種類	博士 (工学)
学位記番号	甲博理工第464号
学位授与年月日	平成26年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
学位論文題目	種結晶添加法による低温結晶化アルミナの作製法の開発
審査会	主査 小林 芳 男 委員 阿 部 修 実 委員 久保田 俊 夫 委員 高 橋 東 之 委員 鈴 木 徹 也

論文内容の要旨

本研究は、均一沈殿法による沈殿作製を行い、この沈殿を用いたゾル-ゲル法によるアルミナ作製、および、その諸特性に関するものである。

アルミナは様々な分野で最も多く利用されているセラミックスの一つである。透明な薄膜として作製することで、光学フィルタや反射防止膜など光エレクトロニクス分野で広く利用されている。また、アルミナは様々な結晶構造を持つ。その中で α -型は電気絶縁性を示し、絶縁層として利用することにより各種素子を微細化できる素材として期待されている。しばしば用いられる α -アルミナの作製方法は高温での焼成が必要でありエネルギーを多く消費する。 α -アルミナを作製するための低温プロセスの開発により、エネルギーの節約、さらに、絶縁層作製過程において基板や素子への負荷低減が期待できる。

薄膜の作製法は、真空内で気体を原料として作製する方法と大気圧中で液体を原料とする方法に大別できる。前者の例として化学気相成長法 (CVD) や物理気相成長法 (PVD) などがあるが、これらの方法では大掛かりな装置が必要である。後者の一例としてゾル-ゲル法が挙げられる。ゾル-ゲル法は、溶液を出発物質として調製したゾルをゲル化させることにより材料を作製する低温合成法である。また、様々なコーティング方法を用いることにより厚みが制御された薄膜が作製可能であるため工業的に非常に有用な方法である。

現在、ゾル-ゲル法を用いたアルミナ薄膜作製の研究においてはアルミニウムアルコキシドを出発材料として用いられる方法が主流である。アルミニウムアルコキシドは高価であり、加水分解で生じたアルコールが生成膜内に残存してしまう可能性がある。その他の研究としては、アルミニウム源として無機塩を用い、ゾルの前駆体とする沈殿の作製に塩基を加える方法が報告されている。この方法で作製した沈殿粒子はサイズが比較的大きく不均一である。一方、微細で均一な沈殿の作製法として均一沈殿法がよく知られている。本研究ではこの均一沈殿法に注目した。一般的に膜を構成する粒子は小さい方が、光の散乱が少なくなり透過性は高くなる。また、粒子サイズ

の違いは熱などから受ける影響の違いを生むと考えられる。そのため、アルミナ薄膜の透明性向上、および、 α -アルミナを作製するための低温プロセスの可能性がある。均一沈殿法を用いて調製した沈殿からゾルを作製し、ゾル-ゲル法によりアルミナを作製した。ゾルの作製条件を検討することにより、透明薄膜作製法を確立するとともに、ゾルに種結晶を添加することによる結晶性の評価により α -アルミナ低温合成の可能性も検討した。

本研究は五章で構成されている。各章ごとの概要を以下に示す。

第一章では、諸論として本研究における背景および目的を示した。

第二章では、既往の研究として本研究に関連する既往の研究を紹介し、本研究の課題を明らかにした。

第三章では、均一沈殿法により作製した $\text{Al}(\text{OH})_3$ 沈殿を用い、ゾル-ゲル法による透明アルミナ薄膜の作製について述べた。調製条件を検討した結果、水溶媒使用、 $\text{Al}(\text{NO}_3)_3$ 濃度 0.2 M、尿素濃度 5 M、反応時間 8 h の条件で沈殿を生成し、沈殿熟成時間 12 h、酢酸による解膠時間 12 h という条件が透過率 98% の透明アルミナゾルを作製するのに最適であることを見出した。さらにこの透明アルミナゾルを用いることにより透過率 80% 以上の薄膜が作製できることがわかった。

第四章では、第三章で作製したアルミナゾルに種結晶を添加することにより α -アルミナの作製を行い、種結晶添加によるアルミナゾルの結晶性への影響について検討を行った。種結晶の添加により、通常 1000°C 以上の加熱が必要な α -アルミナへの返還温度を 700°C 程度まで下げることを可能とした。添加する種結晶は粒径が小さいほど、また、種結晶添加量が多いほど α -アルミナへの結晶化に有利であることがわかった。

第五章では、実験で得られた結果を総括するとともに、今後の課題を述べた。均一沈殿法により作製される微細で均一な沈殿により得られるアルミナゾルおよびアルミナ薄膜は透明で、ゾルの解膠において、加熱を必要としないことがわかった。さらに、アルミナゾルに種結晶を添加することにより、通常の温度よりも低い焼成温度において α -アルミナへの結晶化が確認された。この結果は α -アルミナ作製の低温合成の可能性を示した。しかしながら、現在までの実験において、種結晶添加アルミナゾルからの均一な薄膜の作製には至っていない。薄膜作成においては粒子の性状が成膜性に影響を与えると考えられる。そこで、本材料に実用化には、アルミナゾル作製条件の再検討や薄膜作製条件の検討が必要と考えられ、これらの遂行とそれにより得られる結果を踏まえて各作製条件を確立することが今後の課題である。

論文審査の結果の要旨

審査対象の研究は、均一沈殿法による沈殿作製を行い、この沈殿を用いたゾル-ゲル法によるアルミナ作製、およびその諸特性に関するものである。

アルミナは様々な分野で最も多く利用されているセラミックの一つである。その透明な薄膜は、光学フィルタや反射防止膜など光エレクトロニクス分野で広く利用が期待されている。また、アルミナは様々な結晶構造を持つ。その中で α -型は電気絶縁性を示し、絶縁層として利用することにより各種素子の微細化が可能であると予想される。しかしながら、しばしば用いられる α -アルミナの作製方法は高温での焼成が必要でありエネルギーを多く消費する。 α -アルミナを作製するための低温プロセスの開発によりエネルギーの節約がなされる。それだけでなく、絶縁層作製過程において基板や素子への負荷低減も期待できる。

本研究は、均一沈殿法に注目した。均一沈殿法により得られる粒子は微細で均一であることが知られている。一般的に膜を構成する粒子は小さい方が、光の散乱が少なくなり透過性は高くなる。また、粒子サイズの違いは熱などから受ける影響の違いを生むと考えられる。そのため、アルミナ薄膜の透明性向上、および、低温での α -アルミナ作製に期待できる。均一沈殿法により作製した沈殿を用いてゾルを調製し、ゾル-ゲル法によりアルミナを作製した。アルミナゾルの作製条件が膜の性質に与える影響について調査することにより、透明薄膜の作製を試みるとともに、アルミナゾルへの種結晶添加による α -アルミナの低温合成を検討した。

論文は、全5章で構成されている。「均一沈殿法を利用したゾル-ゲル法による透明アルミナ薄膜の作製」(3章)において、透明アルミナゾルおよび透明アルミナ薄膜の最適な作製条件の検討を行い、高透光性および耐熱劣化性を有する薄膜を作製したことは、今後の研究および実用化の際に一つの指針を示していると思われる。さらに解膠において加熱が不要であるという学術的に興味深い結果を示している。「アルミナゾルへの種結晶添加によるアルミナ粉体の結晶性の促進効果」(4章)において、種結晶添加によるアルミナゾルの低温結晶性の調査により、通常約 1000°C である α -アルミナへの結晶化温度を 700°C へと約 300°C 低温化できたことは経済的、環境的観点からみて有用であるばかりでなく、利用範囲の拡大にも大きく貢献する成果であると考えられる。

以上の成果を踏まえ、学位論文、学術論文等の内容と最終試験の結果を総合して、申請者井上和浩は、本学大学院理工学研究科博士後期課程の基準を満たし、博士(工学)として認定できるものと判定する。