

論文内容の要旨

博士論文題目 ビスマス層状化合物の配向制御とその圧電特性に関する研究

氏名 木村雅彦

(論文内容の要旨)

電子部品に含まれる環境負荷化学物質の代替、削減は今日の材料科学/工学の重要な課題となっている。圧電セラミックスは過去半世紀にわたり家庭電化製品や工業用製品など幅広い分野の電子部品に使用されてきたが、多くの場合鉛元素を含む酸化物で構成されていた。鉛は長期にわたって人体に蓄積した場合に中毒症状を起こすことが知られており、環境負荷化学物質として定義されることが多い。このような状況から、近年、鉛を含まない新材料開発の取り組みが精力的に行われている。

しかしながら、現在のところ、機能、信頼性、使い易さなどのトータル性能で既存鉛系材料を代替できる材料は未だ得られていない。これは圧電セラミックスの応用範囲がセンサ、アクチュエータ、フィルタ、発振子など多岐にわたり、用途ごとに求められる特性が大きく異なるためである。現在検討されている無鉛圧電セラミック材料では、一部特性においては鉛系材料に匹敵するほどの特性を持つ材料も報告されているが、鉛系ペロブスカイト化合物のように広範な応用に対応可能な材料系はみあたらない。従って、用途に合わせて結晶構造、構成元素の異なる材料系から適切な系を選択し、その特徴を生かすような材料開発が求められている。

このような考えのもと、本論文では、セラミック発振子などの共振子用途における鉛系材料の代替を実現するべく、無鉛ビスマス層状化合物の共振子特性の向上を目的に研究を行っている。

第1章では、一般的な圧電セラミック実用の状況と無鉛材料に関する既往の研究について述べ、これらをふまえた上で無鉛圧電セラミックの課題についての議論を行い本論文の目的を示している。

第2章では、無配向のビスマス層状化合物について、共振子用材料としての基礎的な圧電特性の評価を行っている。その結果、これらの材料では既存の鉛

系材料に匹敵する共振子特性が得られているが、鉛系材料と同等の性能ではコスト等の観点から代替が困難であり、真に鉛系材料を代替するためにはより高い性能の実現が必要であるとしている。

第 3 章では、より高い共振子特性を実現するための手法として結晶の配向軸制御を提案し、2 種の配向手法を用いて配向軸が異なる配向セラミックスの作製とその特性評価を行っている。ひとつめの配向手法であるホット・フォージ法では、c 軸が一軸配向した配向セラミックスが作製可能であり、厚みすべり振動モードにおいて共振周波数温度特性の大幅な改善が可能であることを明らかにしている。一方、強磁場成形法を用いると、a(b) 軸が一軸配向した配向セラミックスが作製可能で、配向化によって圧電諸特性が向上すること、および a(b) 軸配向の利点を生かして共振子用途で有用な積層構造の実現が可能となることを示している。

第 4 章では、ホット・フォージ法に比べ配向度の制御が容易な手法である Templated Grain Growth (TGG) 法を用いて、c 軸配向セラミックスの配向度と共振特性の関係を調べている。その結果、c 軸配向セラミックスからの素子の切り出し角、および配向度を制御することで、共振周波数の温度特性がゼロに近い材料が得られることを明らかにしている。また、この配向セラミックスの温度特性を広範な温度範囲で評価し、この材料が特に広い温度領域で用いる共振子用材料として有用であることを示している。

第 5 章では、ビスマス層状化合物の配向軸、配向性を制御することで共振子用材料として、従来の鉛系ペロブスカイト化合物を代替可能な優れたセラミックス材料が得られることを述べ、ビスマス層状化合物の配向制御に関する知見の総括と今後の課題の提示を行っている。

以上のように、本論文では、鉛系ペロブスカイト化合物を代替可能な共振子用材料としてビスマス層状化合物を選択し、その配向軸、配向性を制御することで、鉛系に匹敵する特性が得られることを明らかにしており、環境問題の観点から鉛系ペロブスカイト材料の代替材料開発が急がれる中、大変有意義な知見をであると言える。

氏名	木村雅彦
----	------

(論文審査結果の要旨)

電子部品に含まれる環境負荷化学物質の代替、削減は今日の材料科学/工学の重要な課題となっている。圧電セラミックスは過去半世紀にわたり家庭電化製品や工業用製品など幅広い分野の電子部品に使用されてきたが、多くの場合鉛元素を含む酸化物で構成されていた。鉛は長期にわたって人体に蓄積した場合に中毒症状を起こすことが知られており、環境負荷化学物質として定義されることが多い。このような状況から、近年、鉛を含まない新材料開発の取り組みが精力的に行われている。

しかしながら、現在のところ、機能、信頼性、使い易さなどのトータル性能で既存鉛系材料を代替できる材料は未だ得られていない。これは圧電セラミックスの応用範囲がセンサ、アクチュエータ、フィルタ、発振子など多岐にわたり、用途ごとに求められる特性が大きく異なるためである。現在検討されている無鉛圧電セラミック材料では、一部特性においては鉛系材料に匹敵するほどの特性を持つ材料も報告されているが、鉛系ペロブスカイト化合物のように広範な応用に対応可能な材料系はみあたらない。従って、用途に合わせて結晶構造、構成元素の異なる材料系から適切な系を選択し、その特徴を生かすような材料開発が求められている。

このような背景のもと、本論文では、セラミック発振子などの共振子用途における鉛系材料の代替を実現するべく、無鉛ビスマス層状化合物の共振子特性の向上を目的に研究を行っている。

第1章では、一般的な圧電セラミックス実用の状況と無鉛材料に関する既往の研究について述べ、これらをふまえた上で無鉛圧電セラミックスの課題についての議論を行い本論文の目的を示している。

第2章では、無配向のビスマス層状化合物について、共振子用材料としての基礎的な圧電特性の評価を行っている。その結果、これらの材料では既存の鉛系材料に匹敵する共振子特性が得られているが、鉛系材料と同等の性能ではコスト等の観点から代替が困難であり、真に鉛系材料を代替するためにはより高い性能の実現が必要であるとしている。

第3章では、より高い共振子特性を実現するための手法として結晶の配向軸制御を提案し、2種の配向手法を用いて配向軸が異なる配向セラミックスの作製とその特性評価を行っている。ひとつめの配向手法であるホット・フォージ法では、c軸が一軸配向した配向セラミックスが作製可能であり、厚みすべり振動モードにおいて共振周波数温度特性の大幅な改善が可能であることを明らかにしている。一方、強磁場成形法を用いると、a(b)軸が一軸配向した配向セラミックスが作製可能で、配向化によって圧電諸特性が向上すること、およびa(b)軸配向の利点を生かして共振子用途で有用な積層構造の実現が可能となることを示している。

第4章では、ホット・フォージ法に比べ配向度の制御が容易な手法である Templated Grain Growth (TGG) 法を用いて、c軸配向セラミックスの配向度と共振特性の関係を調べている。

その結果、c 軸配向セラミックスからの素子の切り出し角、および配向度を制御することで、共振周波数の温度特性がゼロに近い材料が得られることを明らかにしている。また、この配向セラミックスの温度特性を広範な温度範囲で評価し、この材料が特に広い温度領域で用いる共振子用材料として有用であることを明らかにしている。

第 5 章では、ビスマス層状化合物の配向軸、配向性を制御することで共振子用材料として、従来の鉛系ペロブスカイト化合物を代替可能な優れたセラミックス材料が得られることを述べ、ビスマス層状化合物の配向制御に関する知見の総括と今後の課題の提示を行っている。

以上のように、本論文では、鉛系ペロブスカイト化合物を代替可能な共振子用材料としてビスマス層状化合物を選択し、その配向軸、配向性を制御することで、鉛系に匹敵する特性が得られることを明らかにしている。本論文で得られた知見は、環境問題の観点から鉛系ペロブスカイト化合物の代替材料の開発が急がれる中、大変有益なものといえることができる。よって、本論文は博士(工学)の学位論文として価値あるものと認められる。