

主 論 文 要 旨

報告番号	乙 第 号	氏 名	茶園 広一
主論文題目： BaTiO ₃ をベースとした積層コンデンサ用誘電体材料における 微細構造と電気特性の関係			
(内容の要旨)			
<p>本研究では、卑金属Niを内部電極とする積層セラミックコンデンサNi-MLCCの薄層大容量化に対して、BaTiO₃(BT)をベースとした誘電体材料の高信頼性化を達成するために微細構造や化学組成に着目して検討した。</p> <p>第1章に、本研究の背景、従来の研究、及び、本研究の目的を述べた。</p> <p>第2章は実験方法であり、試料の作製方法や各種キャラクタリゼーション方法について述べた。</p> <p>第3章では、BT-Nb₂O₅-Co₃O₄系誘電体材料について検討した。この系において、各種組成を変化させ、比誘電率ϵ_rの温度依存性(TCC)と微細構造との関連性を検討した。B特性材料では、微小領域の透過型電子顕微鏡(TEM)観察により微細構造が特徴的なコアシェル構造で形成されていることを示した。詳細な焼結挙動の調査や拡散対実験より、組成(Nb/Co比、及び、NbO_{5/2}+CoO_{4/3}量)の違いによってコアシェル構造の安定性が決定され、その安定性にNb₂O₅が重要な役割を演じていることを示した。</p> <p>第4章においては添加した希土類酸化物の種類を変化させ、希土類酸化物の種類が微細構造や電気特性に与える影響を詳細に調査した。希土類元素の種類によって、微細構造や電気特性に与える影響が異なり、希土類元素のイオン半径と密接な関連性があると思われた。また、Dy₂O₃とHo₂O₃を添加した材料系での検討では、焼成温度を調整することによってほぼ等しい微細構造からなるサンプルを調製することに成功し、化学組成は異なるが同じ微細構造を有するNi-MLCCの電気特性を詳細に比較した。その結果、イオン半径の近い両者に限っては、化学組成が異なっても、微細構造が一致すれば同等な電気特性が得られることが判明した。</p> <p>第5章においてはインピーダンスの周波数特性の解析からB特性Ni-MLCCの等価回路を導出した。等価回路はR成分とC成分が並列接続されたRCユニットを4つ直列接続した4-RCで表現できることが判明した。さらに、それぞれのRC成分をコア、シェル、粒界、セラミック/内部電極間界面、の4つの微細構造に1対1対応させることに成功した。この4-RC等価回路を用いて、酸素欠陥のソースは主としてコアであること、セラミック/内部電極間界面がもっとも高い抵抗を有しているが、寿命が近づくと急激に抵抗が低下すること、その結果、粒界の抵抗と差が小さくなり粒界の担う電界強度が高まること、粒界に高電界が印加されると電気伝導メカニズムがショットキー電流からトンネル電流へと変化すること、などが分かった。これらの結果に基づいて、薄層Ni-MLCCにおける寿命のモデルを提案した。さらに、本実験ではシェル部や粒界近傍のHo濃度を詳細に検討した。その結果、シェル部に対してのHoの固溶限界を見極めることができ、それ以上の添加量ではHoが粒界近傍に存在するようになり、粒界近傍の多量のHoが高信頼性化と密接に関与していることを示した。薄層大容量化に対する知見として、粒界の重要性を指摘し、粒界の化学的・物理的物性制御が重要であることを示した。</p> <p>第6章に、結論として各章で得られた内容を総括し、本研究の成果を要約した。</p>			