

湿式化学合成プロセスによるチタン酸ナノ結晶の合成と
電子デバイスへの応用

2013 年度

竹 澤 洋 子

主 論 文 要 旨

報告番号	乙 第 号	氏 名	竹澤 洋子
主 論 文 題 目 :			
湿式化学合成プロセスによるチタン酸ナノ結晶の合成と電子デバイスへの応用			
(内容の要旨)			
<p>電子機器の小型化・高性能化が進み、用いられる電子材料においては形態がナノメートルスケールでコントロールされた合成技術の確立が求められている。無機ナノ粒子合成および形態コントロールには湿式プロセスが有効であり、これまでに、ナノロッドやナノシートなど特異的な形態を有する様々な材料の合成が可能になっている。本研究では、二酸化チタン・層状チタン酸・チタン酸バリウムなどの酸化チタン系材料をターゲットとし、湿式化学プロセスにおける反応場・前駆体・イオン濃度などが形態へ与える影響を検討した。また、得られたナノ結晶について誘電体薄膜を形成し、その電子材料としての可能性を評価した。</p> <p>第1章では、溶液系における結晶成長メカニズムと湿式化学プロセスの研究動向を概説し、本研究の背景および目的を示した。</p> <p>第2章では、ゲルマトリクスを反応場としたチタン酸ナノ結晶の作製と形態コントロールについて論じた。高分子ゲルを原料の拡散律速場として用いることで、ナノからマイクロメートルにわたる高次構造を有するチタン酸ナノシートを合成した。また、これを比較的低温で熱処理することで、高次構造を保持したアナターゼ型二酸化チタンナノシートが合成できることを見出した。</p> <p>第3章では、第2章で得られたチタン酸ナノシートの合成条件を基に、層状チタン酸とアナターゼ型二酸化チタンの選択的合成について論じた。原料溶液のpHとカウンターカチオンの種類が層状チタン酸の結晶構造や形態に影響を与えることを見出した。</p> <p>第4章では、高濃度ゾルゲル法による高結晶・高分散のチタン酸バリウムナノ結晶の合成について論じた。実験条件を検証して合成メカニズムを考察し、低コストで実用的なプロセスへの方向性を示した。</p> <p>第5章では、高濃度ゾルゲル法によるチタン酸バリウムナノ結晶の誘電体薄膜への応用について論じた。実用プロセスで必要とされる還元雰囲気での熱処理においてチタン酸バリウムの絶縁性が低下することが問題であったが、ここでは、マンガンの添加によりチタン酸バリウムナノ結晶に耐還元性を付与することに成功し、実用的な誘電体薄膜への応用の可能性を示した。</p> <p>第6章では、高濃度ゾルゲル法によるチタン酸バリウムナノ結晶の実用化に向けてプロセス温度の低下を試みた。ホウ素を添加したチタン酸バリウムナノ結晶では、粒成長が促進され、電極基板上での粒成長温度が50°C程度低下した。添加物濃度の最適化によって高結晶チタン酸バリウム薄膜が形成され、誘電体として高い特性を有することが確認された。</p> <p>第7章では、本研究で得られた知見を総括し、チタン酸ナノ結晶の合成における湿式化学プロセスの優位性と今後の発展性を示した。</p>			

SUMMARY OF Ph.D. DISSERTATION

School Integrated Design Engineering	Student Identification Number	SURNAME, First name TAKEZAWA, Yoko
<p>Title</p> <p style="text-align: center;">Preparation of titanate nanocrystals by wet chemical processes and their application to electronic devices</p>		
<p>Abstract</p> <p>Progress of fabrication technologies of micrometric and nanometric materials with highly designed morphologies has been needed for production of high performance, miniaturized electronic devices. This study focuses preparation of nanostructured titanates with wet chemical processes that are well-known to be effective for formation of a variety of nanoscale architectures. Various titanates, such as titanium dioxide, layered titanates, and barium titanate, are widely utilized for electronic, optical, and electrochemical applications. Here, the influences of reaction media, precursor species, and other reaction conditions, were investigated to control the crystal phase, morphology, and property of the titanates nanocrystals. Moreover, nanoscale particles of barium titanates prepared in this work were applied to high performance dielectric thin films.</p> <p>Chapter 1 reviews the crystal growth mechanism of inorganic materials in solution systems and the previous research trends of wet chemical processes, and describes the objective of this study.</p> <p>Chapter 2 describes synthesis processes and morphology control of titanate nanocrystals using a gel matrix as a reaction medium. Various kinds of hierarchical morphologies were produced with a novel type of layered titanate nanosheets with ammonium ions. Moreover, hierarchically organized anatase-type titanium dioxide nanosheets were successfully obtained by the phase transition of the layered titanate nanosheets.</p> <p>Chapter 3 describes selective synthesis of two kinds of layered titanate nanosheets and anatase-type titanium dioxide nanospines. The influence of pH and the counterions, such as ammonium and sodium ions, on the crystal structure and the morphology of titanate crystals was clarified.</p> <p>Chapter 4 describes direct synthesis of crystalline barium titanate nanocrystals by a sol-gel method with high concentration alkoxide solutions. The formation mechanism of the crystalline phase was investigated to apply the technique for other resources.</p> <p>Chapter 5 describes fabrication of dielectric thin films on practical electrodes from barium titanate nanocrystals prepared by the sol-gel method. Doping of manganese ions as an acceptor is effective to provide resistance to sintering under a reductive condition.</p> <p>Chapter 6 describes lowering sintering temperature to produce the dielectric thin films having a high dielectric constant. Addition of boron promotes sintering of the nanocrystals and subsequent grain growth on the electrode substrate.</p> <p>Chapter 7 summarizes the results and discussion of this study and proposes advantages and possibilities of the wet chemical processes for the fabrication of nanoscale titanates as electronic materials.</p>		