【150】

氏　名（本籍）	**イスラム　エムディ　サイドル（バングラデシュ）**
学位の種類	博　　士（工　　学）
学位記番号	博　甲　第　5301　号
学位授与年月日	平成 22 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	**Physical Properties of Modified Bismuth-Layered Ferroelectric Single Crystals, Ceramics, Nano-particles and Thin Films** （ビスマス層状構造強誘電体結晶、セラミクス、薄膜、ナノ粒子の物性）

主　査	筑波大学教授	理学博士	小　島　誠　治
副　査	筑波大学教授	理学博士	黒　田　眞　司
副　査	筑波大学准教授	博士（理学）	鈴　木　修　吾
副　査	筑波大学准教授	理学博士	丸　本　一　弘

論　文　の　内　容　の　要　旨

強誘電体は、不揮発性メモリー、キャパシタ等の電子材料として重要な工学研究の対象である。本研究では、疲労の少ない強誘電体メモリー材料として最も有望視されているランタン添加のチタン酸ビスマス強誘電体について、結晶、セラミクス、薄膜、ナノ粒子と多岐に及ぶ応用に対応できる様々な形態の物理的性質を丹念に調べた、工学的に価値の高い論文である。

ランタン添加のチタン酸ビスマス強誘電体は､酸素八面体を基本構造とするビスマス層状構造強誘電体で、メモリーに使う高品質の薄膜形成が可能である。実用上の問題点としては、書き込み、読み出しを繰り返し行ったときの疲労が大きいことが上げられていた。しかし、最近になってランタン添加によってビスマスの蒸発を抑えて格子欠陥を少なくすることにより、優れたメモリー材料として使えることが明らかとなった。さらに 2007 年にはランタン添加により強誘電相転移が 2 つの相転移に分離し、a c 面内の自発分極は高温側の相転移で a- 軸方向に現れ、低温側の相転移で c- 軸方向の成分が現れることが明らかになった。この高温側の相転移については、過去の低振動数ラマン分光法により光学モードのソフト化がみいだされているが、低温側の相転移における c- 軸方向の自発分極の発現機構はわかっていなかった。このため、フラックス法により作製した高品質単結晶試料を用いて相転移機構を調べる実験を行った。具体的には、テラヘルツ帯のラマン分光よりも低い振動数領域について新たな知見を得るためにギガヘルツ帯の高分解能ブリルアン散乱の実験を行い、c- 軸方向の分極揺らぎに対応するセントラールピークの観測に成功した。その線幅から求めた分極揺らぎの緩和時間は相転移温度において典型的な臨界緩和を示し､c- 軸方向の自発分極の発現は規則･不規則型機構であることを初めて明らかにした。また、次世代の多層キャパシタ作製技術の基礎となるナノ粒子の作製を行い、共沈法により平均粒径の異なるランタン添加のチタン酸ビスマス強誘電体のナノ粒子作製に成功した。このナノ粒子の強誘電相転移に関連した物理的性質を X 線回折、透過電子顕微鏡、誘電測定、ラマン分光法により調べた。その結果、平均粒径が小さくなると高温側の相転移の光学ソフトモードは過減衰となり、また誘電測定よりキュリー温度が低下するという明瞭なサイズ効果を見出した。

さらにビスマス層状構造強誘電体のセラミクスの相転移への添加効果、スピンコーターによる薄膜作製な

どにも成功してその物性を評価し、単結晶、セラミクス、薄膜、ナノ粒子という様々な形態のビスマス層状構造強誘電体についてその工業化への基礎となる新しい知見を得ている。

審 査 の 結 果 の 要 旨

強誘電体には、光学的、電気的、機械的、熱的と極めて多岐に及ぶ有用な機能性があり、その機能性は強誘電体相転移や強誘電性の発現機構と密接な関係がある。強誘電体として様々な物質が知られているが最も重要なのは酸素八面体型強誘電体である。この系の物質としてはペロフスカイト構造強誘電体が工業的に最もよく使われているが、鉛を含むために環境問題が生じている。このため非鉛で機能性の優れたビスマス構造強誘電体が最近注目されている。このような観点から、チタン酸ビスマスなどの従来から知られているビスマス構造強誘電体の諸特性をいかにして向上させるかが重要な課題となっている。その手法の一つが添加効果であり、それに起因した相転移減少の変化や物理的特性の変化を明らかにすることは工学の基礎研究としてきわめて重要である。

本論文では、ランタン添加のチタン酸ビスマス強誘電体を研究対象として、ナノ粒子、薄膜では創意工夫して高品質の試料の作製に成功した。さらに、単結晶、セラミクス、薄膜、ナノ粒子という様々な形態の試料についてその強誘電相転移、物理的性質、並びにそのサイズ効果などをラマン分光法、ブリルアン散乱用、誘電測定、X 線回折、透過電子顕微鏡など様々な実験法により丹念に調べ、自発分極の発現機構、強誘電相転移のサイズ効果などを新たに解明した高レベルで工学のみならず理学の分野においても十分に評価される優れた論文である。

よって、著者は博士（工学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。