

氏名(本籍)	ふち た えい し 淵 田 英 嗣 (和歌山県)		
学位の種類	博 士 (工 学)		
学位記番号	博 甲 第 6405 号		
学位授与年月日	平成 25 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	ガス搬送されたナノ粒子あるいは微粒子のノズル噴射による膜形成技術の研究		
主査	査	筑波大学教授	工学博士 喜 多 英 治
副査	査	筑波大学教授	理学博士 秋 本 克 洋
副査	査	筑波大学教授	理学博士 目 義 雄
副査	査	筑波大学准教授	工学博士 谷 本 久 典
副査	査	筑波大学准教授	博士(工学) 柳 原 英 人
副査	査	物質・材料研究機構 環境・エネルギー材料部門 サイアロンユニットユニット長	工学博士 広 崎 尚 登

論 文 の 内 容 の 要 旨

この論文は、ナノ粒子あるいは微粒子をノズルから噴射し、対向する基板上に堆積膜を形成する技術、ガスデポジション (Gas Deposition) 法およびエアロゾル化ガスデポジション (Aerosol Gas Deposition) 法について行われた研究および開発に関するものである。

ガスデポジション法の特徴は、ガス中蒸発法を用いて蒸発・生成された粒子表面等が清浄で、凝集粒子の少ないナノ粒子体を直接ガス搬送し、ノズルから噴射・堆積させる。このため 250℃以下の低温基板で成膜できることを生かして、導電体のパターンニング (50μm から 1.2mm 線幅) ができる成膜技術を確立した。成膜生産機として重要な要素技術として、成膜の ON-OFF を行なうバルブレスのシャッターシステム、高純度 He ガスの循環・精製システム、基材の操作、描画プログラムなどを完成させた。また、局所成膜としての応用として、危険物であるリチウムの高純度厚膜の形成技術を確立した。

エアロゾル化ガスデポジション法では、ガス搬送された微粒子をノズルから噴射させる膜形成でセラミックス微粒子による常温成膜を可能とした。様々な応用が期待できる酸化ジルコニア (ZrO₂) について密着性に優れる成膜の条件を原料粉の作製法と粒径、比表面積に対して整理し、原料と生成物の組織や構造の関係を明らかにした。その結果、緻密な膜が形成される条件下では、原料はミクロンサイズであっても生成物のグレインサイズは 10-20nm であり、従来提唱されている膜生成機構である衝突時の変形では説明が困難であることを明らかにした。X 線回折を種々の熱処理後の試料と、高温におけるその場観察を丹念に行い、粒子性長と構造変態の様子についてその全容を明らかにした。安定化を行わない ZrO₂ については 800℃まで顕著な粒成長は起こらないことを示し、相変態に伴う体積減少によりバルクでは存在しない高温相の正方晶が、常温でも薄膜内に形成される原因と推察した。

同時に膜生成に際し、ノズルと基板の間に放電現象が起こることを発見した。この理由としてガス搬送される原料微粉は、エアロゾル化室内壁や搬送管及びノズル内壁と衝突し電子を内壁に与えて正に荷電し、基

板に吹き付けられる。荷電粒子が基板表面に接近したとき、放電条件を満たした途端に、基板側から電子が荷電粒子に向かい放出される。その際に電子は搬送ガス分子と衝突し、搬送ガスを電離させ、プラズマを発生させる。プラズマの陽イオンは激しく原料粉表面を叩き、原料粉分子を叩き出し、そのたたき出された原料の分子がナノ粒子化し基板上に膜として成長するという成長機構を提案した。すなわち、室温成膜のメカニズムは荷電粒子によるプラズマの発生とそれによるスパッター現象と結論づけた。最後に、荷電粒子の利用ゆえに、物質の仕事関数が関係していることは明らかである。今後、多くの粉物質、粉および壁面の表面性状、そして印加電圧の制御など多岐にわたる成膜条件が究明され明らかになれば、なお一層の技術革新が成されるものと確信している。

審査の結果の要旨

この論文はナノ粒子からミクロンサイズの粒子を原材料として、バルクに近い厚さの膜形成を実現する技術を扱っている。特に1ミクロン以上の厚さの材料を自由に膜形成でき、耐熱性や耐食性に優れた機能を持たせることは応用上の大きな意味を持ち、広く利用途が見込まれる技術である。この研究では金属とセラミックスについてガスデポジションとエアロゾルデポジションの2つの手法を開発した。いずれも1980年代前半から筆者が中心となって開発を続けてきた手法であり、長年の経験と知識が生かされている。生産に即した製造装置の開発は様々な要因を含み、時には本質的な成膜機構の理解が必要となる。この論文では、セラミックスの酸化ジルコニアについて緻密な膜形成が可能な成長条件を見だし、生成物と原料について詳細な構造解析を行い、相変態と歪みの関係から常温で高温相である正方晶が存在する理由を明らかにした。また緻密な膜はナノサイズの結晶粒から構成され、成膜時には必ず放電現象が伴うことを発見した。セラミックス粒子の摩擦による帯電-放電現象とスパッタによるナノ粒子生成を膜形成の機構として提唱した。今まで困難とされてきたミクロン以上の膜厚の材料作製に新しい手法を完成させ、その生成過程を議論したこの論文の工学的な意義は非常に高いと判断できる。

平成25年2月21日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、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。