

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	高性能有機無機コンポジット誘電体用SrTiO ₃ 系コアシェルナノ構造の低温作製
Title(English)	Low-temperature fabrication of SrTiO ₃ -based core/shell nanostructure for high performance organic/inorganic composite dielectrics
著者(和文)	ChoMyung-Yeon
Author(English)	Myung-Yeon Cho
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12714号, 授与年月日:2024年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:保科 拓也,中島 章,松下 伸広,宮内 雅浩,岸 哲生
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12714号, Conferred date:2024/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

(博士課程)

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	Myung-Yeon Cho		
論文審査 審査員		氏名	職名		氏名	職名
	主査	保科 拓也	准教授	審査員	岸 哲生	准教授
	審査員	中島 章	教授			
		松下 伸広	教授			
宮内 雅浩		教授				

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は、「Low-temperature fabrication of SrTiO₃-based core/shell nanostructure for high performance organic/inorganic composite dielectrics (高性能有機・無機コンポジット誘電体用 SrTiO₃系コアシェルナノ構造の低温作製)」と題し、6章から構成されている。

第1章「Introduction」では、次世代のパワーデバイスや蓄エネルギーデバイス等を実現するために高電圧下で利用可能な高性能キャパシタの開発が重要であること、キャパシタ材料として有機・無機コンポジット誘電体が有望であることを説明している。また、一般的に誘電率と絶縁破壊強度は相反する関係の特性であり、高い誘電率と高い絶縁破壊強度を両立するのは困難であるが、コンポジット中の無機フィラー材料の設計によりこの相反関係が打破できる可能性がある」と述べている。本論文では、誘電性能を向上させるための新たな無機フィラー材料の構造として、Nbをドープした SrTiO₃ (Nb-SrTiO₃) と Mn をドープした SrTiO₃ (Mn-SrTiO₃) をそれぞれコアとシェルとして利用したコアシェルナノ構造を提案している。SrTiO₃ 中で Nb と Mn はそれぞれドナーとアクセプタとして働き、コア内の電荷移動に伴う界面分極とシェルでの電荷のトラップにより、高い誘電率と高い絶縁破壊強度が期待されると説明している。これらを踏まえた上で、Nb-SrTiO₃/Mn-SrTiO₃ コアシェルナノ構造を作製し、それを利用することで有機・無機コンポジットの誘電性能を向上させることを本論文の目的としていることを述べている。

第2章「Low temperature synthesis of Nb-doped and Mn-doped SrTiO₃ with easily controllable particle size」では、NbあるいはMnがドープされた SrTiO₃ 微粒子を 40°C以下の低温で液相合成している。合成中の溶媒として用いる H₂O とエタノールの比率、2段階のエージングプロセス条件、水溶液中のアルカリ濃度を変化させることによって、合成粒子の粒子径を制御できることを見出し、目的とするコアシェル構造に適した平均粒径 600 nm の Nb-SrTiO₃ 微粒子および平均粒径 25 nm の Mn-SrTiO₃ 微粒子を合成している。

第3章「Thermal annealing-induced oxidation state transition of Mn in Mn-doped SrTiO₃」では、Mn-SrTiO₃ の絶縁破壊強度を向上させる目的でポストアニール処理を施し、欠陥密度や Mn の酸化数を変化させた Mn-SrTiO₃ 微粒子を作製している。液相プロセスによって作製した微粒子であるため、ポストアニール温度が低い場合には水酸化物イオン等の欠陥が格子中に含まれ、これが絶縁性の低下の原因になると説明している。一方、ポストアニール温度が高い場合には、酸化状態が変化して Mn は SrTiO₃ 中でアクセプタとして機能しなくなるために絶縁性が低下することを明らかにしてい

る。300°Cでポストアニール処理を施した Mn-SrTiO₃ 微粒子をフィラー材として用いることで、高い絶縁破壊強度を有するポリマーコンポジットが得られることが示されている。また、同微粒子が本研究で目指すシェル材料に適すると述べている。

第4章「Room temperature fabrication of Nb-SrTiO₃/Mn-SrTiO₃ core/shell nanostructure via hetero-coagulation technique」では、第2章および第3章で合成した Nb-SrTiO₃ 微粒子及び Mn-SrTiO₃ 微粒子をそれぞれコア材料、シェル材料として用い、コアシェルナノ構造を有する粒子を作製している。コアシェルナノ構造の作製には、コア-シェル間の原子拡散を抑制するために、室温で適用可能なヘテロ凝集法を採用している。微粒子を分散させる液体の pH を適切に制御すると Mn-SrTiO₃ 微粒子と Nb-SrTiO₃ 微粒子の表面電荷がそれぞれ正負に帯電し、静電引力によって両微粒子がヘテロ凝集すると考察している。また、両粒子のサイズの違いや、遠心分離等の実験条件の最適化により、コア粒子へのシェル粒子の被覆率を 80%程度まで向上させることに成功している。

第5章「High performance dielectric capacitor with organic/inorganic composite films comprised of Nb-SrTiO₃/Mn-SrTiO₃ core/shell nanostructure」では、第4章で作製したコアシェルナノ構造を有する粒子を用いて有機・無機コンポジット膜を作製し、同コンポジット膜の誘電特性や絶縁破壊強度を評価している。様々なコンポジット試料と比較を行い、Nb-SrTiO₃/Mn-SrTiO₃ コアシェル粒子をフィラー材としたコンポジット膜が高誘電率を有すること、それがコア内の電荷移動に伴う界面分極に起因することを明らかにしている。さらに、Mn-SrTiO₃ から成るシェルが電荷をトラップする役割を担うため、コンポジット膜として著しく高い絶縁破壊強度を有することを実証している。Nb-SrTiO₃/Mn-SrTiO₃ コアシェル粒子を用いることにより、高誘電率と高絶縁破壊強度を両立し、コンポジット膜としてはトップレベルのエネルギー密度を有する誘電材料が得られている。

第6章「Conclusion」では、各章で得られた成果を総括して結論を述べている。

これらを要するに本論文は、独創的な Nb-SrTiO₃/Mn-SrTiO₃ コアシェル構造の設計・作製・評価を通して、高誘電率と高絶縁破壊強度を両立した有機・無機コンポジット膜を実現している。誘電体のヘテロ構造の設計や合成プロセスに関する新たな指針を示したものであり、工学上ならびに工業上貢献するところが大きい。よって本論文は博士（工学）の学位論文として十分価値あるものと認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」は、東工大リサーチポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。