

審査の結果の要旨

氏名 宇都野 正史

近年、電波を利用した情報通信の分野で GHz 帯のマイクロ波を利用した技術が利用されるようになってきた。マイクロ波の利用に際しては電波を反射する材料、透過する材料、吸収する材料が必要である。本論文は、電波を反射しにくく、透過しやすい材料を作製するために低誘電率の中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子を作製するための条件を明確にし、得られた中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子を高分子マトリックス中へ分散させた低誘電率で電波を反射しにくい複合材料への応用可能性を明確にすることを目的としたものである。

第 1 章は序論であり、GHz 帯域で用いられる低誘電率材料に関する従来の研究結果を整理し、本論文の目的を示した。一般的に、低誘電率特性を得るための方法として、材料中に空気を導入する方法および低誘電率材料を複合化する方法が役立つことを従来の研究結果を整理することにより示した。その一方で、空気を導入する方法は、実用上重要な機械的特性の低下を招くため、空気導入量にも限界があり、新たな材料開発の必要性があることも明確にした。

この問題を解決するために、ナノ粒子の利用が考えられることを示した。工業的な観点から Al_2O_3 系の材料に着目し、 Al_2O_3 の殻のみで構成される中空構造ナノ粒子を複合材料の分散粒子として利用することが有望であることを説明した。さらに、この技術を利用するためには中空 Al_2O_3 ナノ粒子を製造する方法を確立することや、得られた粒子の可能性を複合材料として検証することが必要であることを示し、本論文の背景と目的を明確にした。

第 2 章では、本論文で使用する Al_2O_3 ナノ粒子の作製方法を検討した。本章では、直径が 20~200nm の粒子径分布をもつ Al ナノ粒子を用い、大気雰囲気中における Al ナノ粒子の巨視的な酸化挙動について調べた。まず、示差熱重量分析(TG-DTA)装置を用いて、酸化に伴う重量増加および示差熱重量分析を行った。TG 曲線から Al ナノ粒子の酸化挙動と温度の関係や酸化に伴い、Al ナノ粒子の色が灰色から白色に変化する現象を観察した。また、加熱酸化した Al ナノ粒子の X 線回折測定を行い、最大加熱温度が高くなるに従い、生成する Al_2O_3 は $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、 $\theta\text{-Al}_2\text{O}_3$ 及び $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ に変化することを明らかにした。

第 3 章では、第 2 章で調べた Al ナノ粒子の酸化現象について、酸化した粒子の形状や酸化膜厚さについて詳細に調べた。第 2 章と同様の Al ナノ粒子を TG-DTA 装置を用いて、大気中で加熱を行い、加熱後の Al ナノ粒子を透過型電子顕微鏡で観察した。その結果、大気中で 797K まで加熱した Al ナノ粒子では、球状の酸化膜層に囲まれた Al の一部に空隙が存在していることを観察した。最大加熱温度が高くなるに従い、内部の金属 Al の部分が減少し、空隙部分の体積が増加する傾向があることを見だし、直径が 20~200nm の Al ナノ粒子を酸化すると、直径が 40~300nm の中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子が生成することを明らかにした。実験で用いた Al ナノ粒子の場合には、 Al_2O_3 ナノ中空粒子の Al_2O_3 層の厚さは 6~40nm の範囲にあり、粒子直径が小さいものほど小さい傾向であることを明らかにした。

第 4 章では、第 3 章で得られた知見を基に中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子を作製し、その電波反射率、透過率および誘電特性を 18~30GHz の周波数帯域で調べた。中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子をポリメタクリル酸メチル樹脂製 (PMMA) の箱に充填し、自由空間法を用いて電波透過率、反射率および有効誘電率を測定した。また、比較のため、中空構造を示す $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ナノ粒子についても

同様に測定を行った。その結果、中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子の反射率は 0.2~0.7%であり、体積率 2.5vol%の $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ナノ粒子の反射率が 0.7~0.9%である場合よりも小さかった。一方、中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子の場合でも、一般的に Al_2O_3 粒子で観察されているように粒子体積率の増加に伴い、有効誘電率の実部が増加する傾向が認められた。中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子は 1.5~2.8vol%の粒子体積率の範囲において、有効誘電率の実部が 1.1~1.3、虚部は 0.02~0.06 であり、 $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ナノ粒子と比較して、誘電率が小さな材料であることが明らかとなった。

第 5 章では、低誘電率を有するナノ粒子分散複合材料実現の可能性について検討することを目的とした。第 4 章で誘電率を測定した中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子を用いて粒子分散エポキシ複合材料を作製し、その誘電特性を測定した。比較のため、低誘電率を示すことが報告されている Al ナノ粒子および中実構造を示す $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ナノ粒子を分散したエポキシ複合材料も作製した。これらの複合材料の電波に対する特性を第 4 章と同様な方法で測定した。

その結果、すべての複合材料で粒子体積率が増加するに従って、有効誘電率が増加する傾向を示したが、同じ粒子体積率で比較した場合、中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子分散エポキシ複合材料は中実構造を示す $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ ナノ粒子や Al ナノ粒子と比べ、低誘電率を示すことが明らかとなり、中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子を用いた場合に低誘電率材料が得られる可能性を証明した。

第 6 章では本論文で得られた結果を総括した。

以上のように、本論文では、Al ナノ粒子の酸化挙動を利用することで、容易に中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子を作製する方法を確立し、中空構造 Al_2O_3 ナノ粒子の低誘電率材料への応用の可能性を示したものであり、材料工学に寄与するところが大きい。よって、本論文を博士(工学)の学位請求論文として合格と認める。