

学位論文内容の要旨	
学位論文題目	アルミナを主とした誘電セラミックスの低温焼結化とエレクトロニックデバイスへの応用 (Low Temperature Sintering of Dielectric Ceramics Typified by Alumina and Their Applications to Electronic Devices)
氏名	茂野 交市
<p>本論文は、アルミナ(<math>\text{Al}_2\text{O}_3</math>)を主とした誘電セラミックスの低温焼結化とエレクトロニックデバイスへの応用について述べたものである。</p> <p>アルミナは高熱伝導・高強度かつ良好な電気特性を有しており、配線基板や IC パッケージ等のエレクトロニックデバイス用材料として広く使用されている。しかし、一般的なアルミナの焼結温度は約 <math>1500\text{ }^\circ\text{C}</math> 以上と高いため、導体と同時焼成する際に W や Mo など高融点・高抵抗の金属を使用する必要があった。アルミナを LTCC(Low Temperature Co-fired Ceramics: 低温同時焼成セラミックス)材料として低融点・低抵抗の金属である Ag(融点 <math>961\text{ }^\circ\text{C}</math>)や Cu(融点 <math>1084\text{ }^\circ\text{C}</math>)と同時焼成するためには、焼結助剤として多量のガラス(全量の約 50%)を添加する必要があった。そのため LTCC 材料のほとんどは低熱伝導(約 <math>2\sim 5\text{ W/mK}</math>)・低強度であるという欠点があった。そこで少量の添加でアルミナの低温焼結が可能な焼結助剤の開発と開発した材料の高熱伝導性の実証、焼結メカニズムの解明、エレクトロニックデバイスへの応用を目的として研究を行った。</p> <p>本研究で得られた結論の要約を各章ごとに以下に示す。</p> <p>第1章では、まず、広い視野から見たセラミックスの低温焼結化の意義について自らの考えを述べた。次に、ターゲットを本研究テーマであるエレクトロニックデバイス用途の LTCC に定め、LTCC に求められる特性及び既往の研究成果について述べた。そして、未解決の問題点を挙げ、本研究の目的を明確化した。</p> <p>第2章では、少量の添加で <math>\text{Al}_2\text{O}_3</math>(アルミナ)誘電体セラミックスの低温焼結化が可能な助剤の開発と焼結メカニズムに関する考察を行った。まず、CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 助剤を 5 mass% 添加することで <math>935\text{ }^\circ\text{C}</math> (保持時間 2 h) という Ag の融点未満の低温での緻密化を可能にした。さらに、上記 CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 助剤に Ag<sub>2</sub>O を加えた CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O 系助剤を用いることでさらなるアルミナの低温焼結化を実現した。つまり、<math>835\text{ }^\circ\text{C}</math> (保持時間 96 h) という Ag の融点よりも <math>100\text{ }^\circ\text{C}</math> 以上低温での緻密化が可能であることがわかった。次に、CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 助剤添加アルミナを例にとり、本系における焼結メカニズムを考察した。焼結助剤および焼結助剤とアルミナの混合粉体の熔融温度を測定し、いずれの組成においても熔融温度は約 <math>970\text{ }^\circ\text{C}</math> であり、アルミナの添加による熔融温度の低下はほぼないことが判明した。一般的な LTCC については、助剤である多量添加したガラスを介した液相焼結により緻密化が達成されるとされている。これに対して、本系におけるアルミナの焼結は液相生成前の固相状態にて促進すること(固相活性化焼結)が明らかとなった。さらに、アルミナ及び助剤の格子定数測定及び焼結体の TEM-EDS 分析より、アルミナの助剤への固容量が助剤のアルミナへの固容量よりも大きいことが示唆</p>	

され、本系における上記固相活性化焼結を裏付ける結果が得られた。なお、935 °C (保持時間 6 h) の条件で作成した上記焼結体の熱伝導率は 22 W/mK と極めて高い値を記録した。また、 $\epsilon_r$  (比誘電率): 10.2,  $Q \times f$  (誘電損失と共振周波数の積): 47000 GHz,  $\tau_f$  (共振周波数の温度係数): -50 ppm/K と良好な誘電特性が得られた。

第 3 章では、第 2 章で開発した CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O 系助剤を添加したアルミナと Ag 電極との同時焼成を行い、積層デバイス(共振器)の作成を試みた。そして、助剤の化学組成、特に助剤中の Ag<sub>2</sub>O 量が Ag 電極との反応性に大きく影響を及ぼすことを明らかにした。Ag<sub>2</sub>O 量が少ない組成のとき、860 °C 焼成で Ag 電極の消失が認められ、電気特性の測定が不可能であった。一方で Ag<sub>2</sub>O 量を増加させると、860 °C 焼成で Ag 電極の消失は認められず、共振器の電気特性は従来の LTCC 材料を用いたそれと同等の値を確保した。これらより、開発した材料の高熱伝導 LTCC デバイスとしての実現可能性を示すことができた。

第 4 章では、上記 CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 系及び CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O 系助剤添加アルミナのさらなる低温焼結化を目指し、焼成雰囲気が低温焼結アルミナの低温焼結性に及ぼす影響を調べた。N<sub>2</sub>-O<sub>2</sub> の流量比により酸素分圧を変えて焼成を行った結果、焼結体密度が最高となる酸素分圧の存在が判明した。具体的には、大気雰囲気の酸素分圧である 0.21 atm よりも低い酸素分圧において焼結体密度が最大値をとることがわかり、さらなる低温焼結化が達成された。また、原因分析の結果、焼結性向上には①助剤溶解温度の低下、②特定の化合物(Cu-Ti-Nb-(Ag)-O 系複合酸化物)の生成、の両立が重要であることを実験的に明らかにした。

第 5 章では、上述の助剤添加アルミナの誘電特性向上を目指した組成改良に取り組んだ。LTCC 材料として求められる重要な特性の 1 つは共振周波数温度係数( $\tau_f$ )がゼロに近いことである。しかし、第 2 章で開発した CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O 系助剤 5 mass% 添加アルミナのそれは -87 ppm/K とアルミナ単成分(約 -50 ppm/K)よりも負に大きい値であった。そこで、 $\tau_f$  の改善を目的とし、アルミナの一部を正の  $\tau_f$  を有する TiO<sub>2</sub> で置換する検討を行った。その結果、第 2 相となる化合物が変化して  $\tau_f$  を制御できることがわかり、12 mol% の置換により 900 °C (保持時間 24 h) での焼結性確保と  $\tau_f$  ゼロ化を両立した。誘電特性は  $\epsilon_r$ : 14.8,  $Q \times f$ : 6200 GHz,  $\tau_f$ : 0 ppm/K であり、熱伝導率は 17 W/mK と従来の LTCC 材料と比較して数倍の値を示した。

第 6 章では、本研究で開発した助剤のアルミナ以外のセラミックスへの適用を目的とした。母材として結晶配向した針状酸化チタンを用い、助剤の添加が配向度や焼結性、誘電特性に及ぼす影響について調べた。CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O 系助剤 5 mass% の添加により、高い配向度を保ちつつ助剤無添加の場合と比較して約 380 °C の低温焼結化を実現した。さらに、1000 °C で焼成した上記助剤添加サンプルの絶縁抵抗は助剤無添加サンプルの値よりも 10<sup>4</sup> 倍以上高く、微細構造との相関が認められた。本研究はあくまでも酸化チタンを例としたものであり、種々の配向セラミックスへの応用が期待できる。

第 7 章は総括であり、本研究で得られた結論を要約した。

学 位 論 文 内 容 の 要 旨	
学位論文題目	Low Temperature Sintering of Dielectric Ceramics Typified by Alumina and Their Applications to Electronic Devices
氏 名	SHIGENO Koichi
<p>This thesis discussed about low temperature sintering of dielectric ceramics typified by alumina (<math>\text{Al}_2\text{O}_3</math>) and their applications to electronic devices.</p> <p>Alumina (<math>\text{Al}_2\text{O}_3</math>) has been widely used as a material for electronic devices such as wired substrates and IC packages because of its high thermal conductivity, high physical strength and good electrical characteristics. However, due to its high sintering temperature of approx. 1500 °C or higher, it cannot be co-fired with conductors that have low electrical resistance such as silver (Ag, m.p. of 961 °C) and copper (Cu, m.p. of 1084 °C) to form a Low Temperature Co-fired Ceramic (LTCC). Hence, conventional LTCC materials contain a large quantity of glass (approx. 50 % of the total mass) for an achievement of low-temperature sintering, and the majority of such materials have a shortcoming, namely low thermal conductivity (approx. 2-5 W/mK). Therefore, the author has studied for the purpose of development of sintering additives capable of low temperature sintering of alumina with a small quantity of additives, verification of high thermal conductivities of developed materials, elucidation of sintering mechanism and application to electronic devices.</p> <p>A summary of the conclusions obtained in this study is shown below for each chapter.</p> <p>In chapter 1, firstly, my own thoughts on the significance of low temperature sintering of ceramics from a broad perspective was mentioned. Next, targets were set to LTCC materials for electronic devices application which were the subject of this research, then the properties required for LTCC materials and the previous research results were described. Finally, unsolved problems were pointed out and the purpose of this research was clarified.</p> <p>In chapter 2, development of sintering additives capable of low temperature sintering of alumina (<math>\text{Al}_2\text{O}_3</math>) dielectric ceramic with a small quantity of additives and discussion for its sintering mechanism were given. First, by adding 5 mass% of a <math>\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5</math> additive, densification at a low temperature of 935 °C (holding time: 2 h), which is less than the melting point of Ag, was made possible. Furthermore, by using the <math>\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5\text{-Ag}_2\text{O}</math> additive, which was obtained by addition of <math>\text{Ag}_2\text{O}</math> to the <math>\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5</math> additive, further low temperature sintering of alumina was realized. In other words, it was found that densification can be performed at a temperature of 835 °C (holding time: 96 h), which is 100 °C or lower than the melting point of Ag. Next, taking as an example the alumina containing the <math>\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5</math> additive, the sintering mechanism in this system was discussed. The melting temperatures of the sintering aid and the mixed powder of the sintering aid and alumina were measured. The melting temperatures were about 970 °C in any compositions and it was found that the melting temperature was not substantially lowered by the addition of alumina. For general LTCC, it is said that densification can be achieved by liquid phase sintering through a large amount of glasses as sintering additives. On the other hand, sintering of alumina in this system was found to be promoted in the solid state before liquid phase formation (solid-state-activated-sintering). Furthermore, by measuring the lattice constant of alumina and the additive, and TEM-EDS analyses of sintered bodies, it is suggested that the solid solution amount of alumina in the additive is larger than the solid solution amount of the additive in alumina. These obtained results back up the mechanism of the solid-state-activated-sintering shown above. The thermal conductivity of the sintered body produced under the condition of 935 °C (holding time: 6 h) was</p>	

extremely high as 22 W/mK. Further, good dielectric properties such as  $\epsilon_r$  (relative dielectric constant): 10.2,  $Q \times f$  (product of dielectric loss and resonant frequency): 47000 GHz,  $\tau_f$  (temperature coefficient of resonant frequency): -50 ppm/K were obtained.

In chapter 3, co-firing of alumina containing the CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O additive developed in chapter 2 with Ag electrodes was examined to produce laminated devices (dielectric resonator). It was found to be clarified that the chemical composition of the additive, particularly the amount of Ag<sub>2</sub>O in the additive, greatly affects the reactivity with the Ag electrodes. In the case of a composition with a small amount of Ag<sub>2</sub>O, disappearance of the Ag electrodes was observed at the firing temperature of 860 °C, and it was impossible to measure the electric characteristics. On the other hand, when the amount of Ag<sub>2</sub>O was increased, disappearance of the Ag electrodes was not observed at the firing temperature of 860 °C, and the electric characteristics of the resonator were secured to values equivalent to those of the conventional LTCC material. From these results, it was possible to demonstrate feasibility of the developed material as a LTCC device with high thermal conductivity.

In Chapter 4, for the purpose of further lowering the sintering temperature of alumina containing the CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> and the CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O additives, effects induced by changes in the firing atmospheres were examined. As a result of firing by changing the oxygen partial pressure by controlling the flow rate ratio of N<sub>2</sub>-O<sub>2</sub>, it was found that the oxygen partial pressure at which density of the sintered body was the highest. Specifically, it was found that the sintered density reached a maximum value at an oxygen partial pressure lower than 0.21 atm, which is the oxygen partial pressure of the air atmosphere, and further low temperature sintering was achieved. In addition, as a result of the cause analyses, it was experimentally clarified that compatibility between (1) lowering of the melting temperatures of the additive and (2) production of specific compound (Cu-Ti-Nb-(Ag)-O type composite oxide) was important for further improvement of sinterability.

In chapter 5, development of the composition aiming at improving the dielectric properties of the above-mentioned alumina with additives was examined. One of the important characteristics required as the LTCC material is that the temperature coefficient of resonant frequency ( $\tau_f$ ) is close to zero. However,  $\tau_f$  of the alumina with 5 mass% of the CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O additive developed in Chapter 2 was -87 ppm/K, which was negatively larger than that of a single component of alumina (about -50 ppm/K). Therefore, in order to improve  $\tau_f$ , the replacing a part of alumina with TiO<sub>2</sub> having a positive  $\tau_f$  was examined. As a result, it was found that  $\tau_f$  can be controlled by changing the compound to be the second phase. By substitution of 12 mol%, it was possible to satisfy both good sinterability at 900 °C (holding time: 24 h) and zero  $\tau_f$  value. The dielectric properties were  $\epsilon_r$ : 14.8,  $Q \times f$ : 6200 GHz,  $\tau_f$ : 0 ppm/K. And the thermal conductivity was 17 W/mK, which was several times higher than that of conventional LTCC material.

In Chapter 6, the purpose was to apply the additive developed in this research to ceramics other than alumina. The needle-like titanium oxide, which was crystal-oriented, as a base material was used to investigate the effect of the additive on degree of orientation, sinterability and dielectric properties. By adding 5 mass% of CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O additive, lower temperature sintering of about 380 °C was realized compared to the additive-free sample, while maintaining a high degree of orientation. Furthermore, the insulation resistance of the sample with the additive fired at 1000 °C was more than 10<sup>4</sup> times as high as that of the additive-free sample and correlation with the fine structure was recognized. This research is merely an example of titanium oxide, and it can be expected to be applied to various oriented ceramics.

In chapter 7, the results of this research were summarized.

# 学位論文審査の結果及び最終試験の結果報告書

## (博士後期課程博士用)

山口大学大学院理工学研究科

報告番号	理工博甲 第 <b>718</b> 号	氏名	茂野 交市
最終試験担当者		主 査	藤森 宏高
		審査委員	小柳 剛
		審査委員	酒多 喜久
		審査委員	吉本 信子
		審査委員	浅田 裕法
【論文題目】 アルミナを主とした誘電セラミックスの低温焼結化とエレクトロニックデバイスへの応用 (Low Temperature Sintering of Dielectric Ceramics Typified by Alumina and Their Applications to Electronic Devices)			
【論文審査の結果及び最終試験の結果】			
<p>アルミナは高熱伝導・高強度かつ良好な誘電特性を有しており、配線基板やICパッケージ等のエレクトロニックデバイス用材料として広く使用されている。しかし、一般的なアルミナの焼結温度は約 1500 °C以上と高いため、導体と同時焼成する際に W や Mo など高融点・高抵抗の金属を使用する必要があった。アルミナを LTCC(Low Temperature Co-fired Ceramics: 低温同時焼成セラミックス)材料として低融点・低抵抗の金属である Ag(融点 961 °C)や Cu(融点 1084 °C)と同時焼成するためには、焼結助剤として多量のガラス(全量の約 50%)を添加する必要があった。そのため LTCC 材料のほとんどは低熱伝導(約 2~5 W/mK)・低強度であるという欠点があった。そこで、少量の添加でアルミナの低温焼結が可能な焼結助剤の開発と高熱伝導性の実証、焼結メカニズムの解明、エレクトロニックデバイスへの応用を目的として研究を行った。</p> <p>本研究で得られた結論の要約を各章ごとに以下に示す。</p> <p>第1章では、まず、広い視野から見たセラミックスの低温焼結化の意義について自らの考えを述べた。次に、ターゲットを本研究テーマであるエレクトロニックデバイス用途の LTCC に定め、LTCC に求められる特性及び既往の研究成果について述べた。そして、未解決の問題点を挙げ、本研究の目的を明確化した。</p> <p>第2章では、少量の添加で Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(アルミナ)誘電体セラミックスの低温焼結化が可能な助剤の開発と高熱伝導性の実証、焼結メカニズムに関する考察を行った。まず、CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 助剤を 5 mass% 添加することで 935 °C (保持時間 2 h) という Ag の融点未満の低温での緻密化を可能にした。さらに、上記 CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 助剤に Ag<sub>2</sub>O を加えた CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O 系助剤を用いることでさらなるアルミナの低温焼結化を実現した。つまり、835 °C (保持時間 96 h) という Ag の融点よりも 100 °C 以上低温での緻密化が可能であることがわかった。次に、CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 助剤添加アルミナを例にとり、本系における焼結メカニズムを考察した。焼結助剤および焼結助剤とアルミナの混合粉体の溶融温度を測定し、いずれの組成においても溶融温度は約 970 °C であり、アルミナの添加による溶融温度の低下はほぼないことが判明した。一般的な LTCC については、助剤である多量添加したガラスを介した液相焼結により緻密化が達成されるとされている。これに対して、本系におけるアルミナの焼結は液相生成前の固相状態にて促進すること(固相活性化焼結)が明らかとなった。さらに、アルミナ及び助剤の格子定数測定及び焼結体の TEM-EDS 分析より、アルミナの助剤への固溶量が助剤のアルミナへの固溶量よりも大きいことが示唆され、本系における上記固相活性化焼結を裏付ける結果が得られた。935 °C (保持時間 6 h) の条件で作成した上記焼結体の熱伝導率は 22 W/mK と極めて高い値を記録した。また、ε<sub>r</sub> (比誘電率): 10.2, Q×f (誘電損失と共振周波数の積): 47000 GHz, τ<sub>r</sub> (共振周波数の温度係数): -50 ppm/K と良好な誘電特性が得られた。</p> <p>第3章では、第2章で開発した CuO-TiO<sub>2</sub>-Nb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Ag<sub>2</sub>O 系助剤を添加したアルミナと Ag 電極との同時焼成を行い、積層デバイス(共振器)の作成を試みた。そして、助剤の化学組成、特に助剤中の Ag<sub>2</sub>O 量が Ag 電極との反応性に大きく影響を及ぼすことを明らかにした。Ag<sub>2</sub>O 量が少ない組成のとき、860 °C 焼成で Ag 電極の消失が</p>			

認められ、電気特性の測定が不可能であった。一方で  $\text{Ag}_2\text{O}$  量を増加させると、 $860^\circ\text{C}$  焼成で  $\text{Ag}$  電極の消失は認められず、共振器の電気特性は従来の LTCC 材料を用いたそれと同等の値を確保した。これらより、開発した材料の高熱伝導 LTCC デバイスとしての実現可能性を示すことができた。

第 4 章では、上記  $\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5$  系及び  $\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5\text{-Ag}_2\text{O}$  系助剤添加アルミナのさらなる低温焼結化を目指し、焼成雰囲気が低温焼結アルミナの低温焼結性に及ぼす影響を調べた。 $\text{N}_2\text{-O}_2$  の流量比により酸素分圧を変えて焼成を行った結果、焼結体密度が最高となる酸素分圧の存在が判明した。具体的には、大気雰囲気の酸素分圧である  $0.21\text{ atm}$  よりも低い酸素分圧において焼結体密度が最大値をとることがわかり、さらなる低温焼結化が達成された。また、原因分析の結果、焼結性向上には①助剤溶解温度の低下、②特定の化合物 ( $\text{Cu-Ti-Nb-(Ag)-O}$  系複合酸化物) の生成、の両立が重要であることを実験的に明らかにした。

第 5 章では、上述の助剤添加アルミナの誘電特性向上を目指した組成改良に取り組んだ。LTCC 材料として求められる重要な特性の 1 つは共振周波数温度係数 ( $\tau_f$ ) がゼロに近いことである。しかし、第 2 章で開発した  $\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5\text{-Ag}_2\text{O}$  系助剤 5 mass% 添加アルミナのそれは  $-87\text{ ppm/K}$  とアルミナ単成分 (約  $-50\text{ ppm/K}$ ) よりも負に大きい値であった。そこで、 $\tau_f$  の改善を目的とし、アルミナの一部を正の  $\tau_f$  を有する  $\text{TiO}_2$  で置換する検討を行った。その結果、第 2 相となる化合物が変化して  $\tau_f$  を制御できることがわかり、12 mol% の置換により  $900^\circ\text{C}$  (保持時間 24 h) での焼結性確保と  $\tau_f$  ゼロ化を両立した。誘電特性は  $\epsilon_r: 14.8$ ,  $Q \times f: 6200\text{ GHz}$ ,  $\tau_f: 0\text{ ppm/K}$  であり、熱伝導率は  $17\text{ W/mK}$  と従来の LTCC 材料と比較して数倍の値を示した。

第 6 章では、本研究で開発した助剤のアルミナ以外のセラミックスへの適用を目的とした。母材として結晶配向した針状酸化チタンを用い、助剤の添加が配向度や焼結性、誘電特性に及ぼす影響について調べた。 $\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5\text{-Ag}_2\text{O}$  系助剤 5 mass% の添加により、高い配向度を保ちつつ助剤無添加の場合と比較して約  $380^\circ\text{C}$  の低温焼結化を実現した。さらに、 $1000^\circ\text{C}$  で焼成した上記助剤添加サンプルの絶縁抵抗は助剤無添加サンプルの値よりも  $10^4$  倍以上高く、微細構造との相関が認められた。本研究はあくまでも酸化チタンを例としたものであり、種々の配向セラミックスへの応用が期待できる。

第 7 章は総括であり、本研究で得られた結論を要約した。

以上のように本研究では、少量の助剤添加によりアルミナの  $900^\circ\text{C}$  以下での低温焼結化に成功し、高熱伝導性を実証した。また、本系の焼結が主として固相状態で起こることを明らかにし、格子定数の測定や元素分析から、焼結のメカニズムの検証を行った。さらに焼結助剤中の  $\text{Ag}_2\text{O}$  の増量により、 $\text{Ag}$  電極とセラミックス材料との反応を抑制し、低抵抗の金属電極との同時焼成に成功した。これにより、高熱伝導 LTCC デバイスの原型を開発することができた。これらの低温焼結化に関する研究成果はセラミックス製造の際の省エネルギー化はもちろんのこと、携帯電話等に使用されるエレクトロニックデバイスの放熱性向上に有効であり、今後の電子機器の分野に大きく貢献すると期待される。

予備審査会において指摘された点は、本審査会においてすべてが改善されており学位申請者からの的確な説明がなされた。本審査会における主な質問・指摘事項は、目的の明確化や焼結メカニズム、論文題目の英語表記の変更に関するものであった。公聴会においては、それらの指摘がすべて反映された内容の発表となっていた。公聴会では学内 16 名、学外 8 名、計 24 名の出席があり、多数の質問があった。主要な質問内容は、アルミナの低温焼結化の開発経緯や新規複合酸化物についての見解、本研究の応用分野、今後の展望などであった。これらの質問に対して申請者よりの的確な回答がなされた。

以上より本研究は独創性、信頼性、有効性、実用性ともに優れ、博士 (工学) の論文に十分値するものと判断した。論文内容及び本審査会、公聴会での質問に対する応対などから、最終試験は合格とした。

なお、主要な関連論文の発表状況は下記のとおりである。

1. Koichi Shigeno, Tadashi Asakawa, Yuto Kuraoka and Hiroataka Fujimori: "Effects of Chemical Compositions on Electrical Properties of Low Temperature Co-fired Alumina Ceramics with Built-in Silver Electrodes", *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*, Vol.41, Number 1, pp.121-126 (2016).
2. Koichi Shigeno, Eisaku Kojima and Hiroataka Fujimori: "Improvement in the Low-Temperature Sintering Performances and Characteristics of Alumina with  $\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5$  Additive by Controlling the Firing Atmosphere", *Journal of the Japan Society of Powder and Powder Metallurgy*, Vol.63, Number 7, pp.701-705 (2016).
3. Koichi Shigeno and Hiroataka Fujimori: "Improvement of Sintering Performances and Dielectric Properties of Oriented  $\text{TiO}_2$  Ceramics Using Sintering Additives.", *Trans. Mat. Res. Soc. Japan*, Vol.41, Number 4, pp.337-340 (2016).
4. Koichi Shigeno, Takumi Nagata and Hiroataka Fujimori, "Effects of Firing Atmosphere on Low Temperature Sintering of  $\text{Al}_2\text{O}_3$  with a Small Quantity of  $\text{CuO-TiO}_2\text{-Nb}_2\text{O}_5\text{-Ag}_2\text{O}$  Additives", *AIP Conference Proceedings*, in press.