

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 29 日現在

機関番号：73905
 研究種目：基盤研究（C）
 研究期間：2010～2012
 課題番号：22560673
 研究課題名（和文）低誘電率・高Qを持つ次世代ミリ波用誘電体の研究開発
 研究課題名（英文）R&D of next generation millimeter-wave dielectrics with low dielectric constant and high Q
 研究代表者
 大里 齊（OHSATO HITOSHI）
 公益財団法人名古屋産業科学研究所・その他部局等・研究員
 研究者番号：20024333

研究成果の概要（和文）：コーディエライト組成のガラスから、結晶化ガラスミリ波誘電体を作製した。コーディエライトの多形であるインディアライトを主とするセラミックスが得られ、ロスが少ない高 $Qf > 200,000$ GHz、低誘電率 $\epsilon_r = 4.7$ 、共振周波数の温度係数 $TCf = -27$ ppm/°C の特性の優れた次世代ミリ波誘電体を作製した。しかし、このガラスセラミックスは、表面からの結晶化で極めて異方性が強いものであった。コーディエライトは、低熱膨張で知られ、 c 軸方向にマイナス、 a 軸方向へプラスの熱膨張をもつ。表面失透で c 軸方向に伸長した結晶が垂直にぶつかる点でクラックを発生、割れが生じた。冷却速度を調整して大きなクラックは避けることができ、ミリ波誘電特性は測定可能であった。しかし、細かいクラックは避けることができず、品質係数に大きなバラツキを与えていた。さらに、この細かいクラックをも無くす目的で、ルチルを核形成剤として用い、ポリウム結晶化を目指した。ルチルを 10、20 wt% 添加したガラスを作製し、結晶化ガラスを得た。SEM 観察で微細なクラックを抑えることができ、ミリ波誘電体特性も優れたものが得られた。品質係数 $Qf = 120,000$ GHz、温特 $TCf = 0$ ppm/°C、誘電率 7。

研究成果の概要（英文）：Millimeter-wave dielectrics of glass ceramics are formed from the glass with cordierite composition. Glass ceramics composed by indialite which is a polymorph of cordierite were formed. The glass ceramics with superior properties such as high $Qf > 200,000$ GHz, low dielectric constant (ϵ_r) of 4.7, temperature coefficient of resonant frequency (TCf) = -27 ppm/°C. But, the glass ceramics shown an anisotropic feature crystallized from glass surface. Cordierite is well known as low thermal expansion material with minus expansion to c -axis and plus expansion to a -axis. A serious problem of clacks appears at the point met the crystals grew from different glass surface. As large cracks are reduced by slow cooling after sintering, measurement of millimeter-wave properties was possible. But, small clacks affected to the Qf values so as to be random variation. Moreover, rutile powder was added in the glass composition for crystal growth agent so as to crystalize in the volume of grass. Consequently, millimeter-wave dielectrics without the cracks and with good properties were fabricated. The properties are as follows: $Qf = 120,000$ GHz, $TCf = 0$ ppm/°C, $\epsilon_r = 7$.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	1,500,000	450,000	1,950,000
2011年度	1,000,000	300,000	1,300,000
2012年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・無機材料・物性

キーワード：ミリ波誘電体高 Q、高品質係数、低誘電体損失、温特ゼロ、インディアライト/コーディエライト、結晶化ガラス、国際研究者交流

1. 研究開始当初の背景

近年、情報通信技術の爆発的な発展によって、産業革命以上の変革を遂げている。マイクロ波を利用した携帯電話は大容量・高速データ通信の第四世代に、ワイヤレス LAN (2.4GHz/5GHz) も一般化し、超広帯域 (UWB) 近距離ワイヤレス通信 (3.1~10.6GHz) へと、情報の伝達は超高周波化・高速化・大容量化へ向かっている。非圧縮高速デジタル通信のワイヤレス PAN やマルチメディア機器への利用が検討されている。超高速無線 LAN は、GHz 帯で Mbps 程度の大容量通信が可能となっている。一方、高度道路交通システム (ITS) では、ETC (5.8MHz)、車車間/路車間通信 (5.8GHz)、プリクラッシュシステム (PCS) 等で使われるレーダ (76.0-77.0 GHz) 等が実用にされている。この様に超高周波帯の利用は進んでいる。

総務省の「周波数再編アクションプラン (H20 年 11 月改訂)」によれば、36GHz 超の周波数帯は未利用周波数帯が多く、マイクロ波帯での周波数逼迫状況の解消に資することが期待できるとしている。この帯域は、広帯域、大容量、近距離伝送に向いている。また、直進性が強いので降雨等による減衰が大きいですが、レーダ等には適している。この未利用周波数帯の有効利用促進のため、無線デバイス技術、損失・干渉等の要素技術の研究開発が必要とされている。

レーダ発信器は車のラジエータの前の狭いスペースに設置されているので、周波数を 150GHz 程度へ高くすることにより小型化が計画されている。150GHz 帯では、樹脂基板ではロスが大きすぎるので、高 Q のセラミックス基板が検討されている。また、ラジエータ前の狭い空間に設置されているので、外気温 (-40~50°C) との狭間で、厳しい温度環境にあるので温特の良いものが求められている。

その為の材料としては、高 Q、温特のよい誘電体が求められている。超高周波では、電波の交番による誘電ロスが大きくなるので高 Q が求められる。また、一般に超高周波材料の温度特性はゼロから大きく外れているので、温特ゼロの材料が求められている。超高周波は、波長が短いので工作精度が求められ、電波の遅延時間が小さい低誘電率材料が求められている。

2. 研究の目的

近年、非圧縮画像転送 (PAN、LAN) やプリ

クラッシュセーフティシステム等に於いてミリ波用誘電体基板の利用が進んでいる。ミリ波用誘電体としては誘電率の小さい珪酸塩が注目される。中でもコーディエライトは誘電率が低く、温度特性が良い点に注目して研究を始めた。更に、Ni のドーブにより高品質係数 (高 Q) 化し、高温型のインディエライト構造に近づくことが明らかとなった。そこで、本研究では、ミリ波用誘電体材料として低誘電率・高 Q のインディエライトの研究開発を目的とする。インディエライトは理論組成近傍で種々の固溶体の生成が考えられるので、結晶構造と特性との相関から材料設計を図る。また、Ni 等をドーブして高 Q 化を図る。

3. 研究の方法

H22 年度・研究 I：前実験として固相反応法でコーディエライトの固溶状態と特性との相関を明らかにする。研究 II：これに基づいて、インディエライトの単一相が得られる組成を設計し、ガラス粉末を作製し、成型・結晶化させる。(インディエライトは固相反応法では合成が難しいのでガラスから結晶化させる。) 析出結晶の同定、組織観察、特性評価、必要に応じてリートベルト解析を行い、組織・結晶構造と特性との相関を明らかにする。研究 III：更に問題点を明らかにして、ガラスセラミックスの焼結方法の改善を図る。

H23, 24 年度・研究 I：前年度の組織・結晶構造と特性の相関から得られた指針に基づいて、組成の設計を行い、目的の低誘電率・高 Q のミリ波誘電体を作製する。研究 II：結晶構造と特性の知見に基づき、Ni 等の陽イオン置換により、高 Q 化を達成する。

4. 研究成果

コーディエライト組成のガラスから、結晶化ガラスミリ波誘電体を作製した。コーディエライトの多形であるインディアライトを主とするセラミックスが得られ、ロスの少ない高 $Q_f > 200,000$ GHz、低誘電率・ $r = 4.7$ 、共振周波数の温度係数 $Tcf = -27$ ppm/oC の特性の優れた次世代ミリ波誘電体を作製した。しかし、このガラスセラミックスは、表面からの結晶化で極めて異方性が強いものであった。コーディエライトは、低熱膨張で知られ、c-軸方向にマイナス、a-軸方向へプラスの熱膨張をもつ。表面失透で c-軸方向に伸長した結晶が垂直にぶつかる点でクラッ

クを発生、割れが生じた。冷却速度を調整して大きなクラックは避けることができ、ミリ波誘電特性は測定可能であった。しかし、細かいクラックは避けることができず、品質係数に大きなバラツキを与えていた。さらに、この細かいクラックをも無くす目的で、ルチルを核形成剤として用い、ポリウム結晶化を目指した。ルチルを 10、20 wt% 添加したガラスを作製し、結晶化ガラスを得た。SEM 観察で微細なクラックを抑えることができ、ミリ波誘電体特性も優れたものが得られた。品質係数 $Q_f = 120,000\text{GHz}$ 、温特 $\text{TCf} = 0 \text{ ppm/oC}$ 、誘電率 7。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 7 件)

- (1) Hitoshi OHSATO, "INTERNAL STRAIN AND DIELECTRIC LOSSES BY COMPOSITIONAL ORDERING ON THE", The American Ceramic Society's Ceramic Transactions", Ms&T12, (2013)1-9.
 - (2) H. Ohsato, I. Kagomiya, and K-W. Chae, "Microwave dielectric ceramics with rare-earth elements (I)", J. Korean Phys. Soc., 61(6), 971-979 (2012).
 - (3) H. Ohsato and I. Kagomiya, "Microwave dielectric losses based on polarities", Chinese Journal of Physics, 50, 885-895 (2012).
 - (4) Hitoshi OHSATO, M. Teradal, I. Kagomiya, K. Kwamura and K. Kakimoto, Fabrication Conditions of Diopside for Millimeterwave Dielectrics", Jpn. J. Appl. Phys., 51, (2012) 09LF02-1-4.
 - (5) H. Ohsato, "Functional advances of microwave dielectrics for next generation", Ceramics International, 2011, CER1-4180.
 - (6) Hitoshi Ohsato, Jeong-Seog Kim, A-Young Kim, Chae-Il Cheon, and Ki-Woong Chae, "Millimeter-Wave Dielectric Properties of Cordierite/Indialite Glass Ceramics", Jpn. J. Applied Physics, 50(9), (2011) 09NF01-1-5.
 - (7) Sang Hwan Moon, Jeong Seog Kim, Chae Il Cheon, Eung Soo Kim, and Hitoshi Ohsato, "Microwave Dielectric Properties of $\text{CaTiO}_3\text{-(LiNd)TiO}_3\text{-(BiNa)TiO}_3$ Ceramics", Jpn. J. Appl. Phys., 49(9), (2010).
- [学会発表] (計 25 件)
- (1) 大里 齊, J-S. Kim, C-I. Cheon, 籠宮功, "コーディエライトとインディエライトにおける Si/Al オーダリングを Si/Al 四面体の体積・共有結合性から見積もる", 日本セラミックス協会 2013 年会, (東工大、東京, 2013.3.18).
 - (2) Ohsato and I. Kagomiya, "Microwave dielectrics as paraelectrics", The 7th International Conference on Microwave Materials and their Applications (MMA2012), (Taipei, Taiwan, June, 4th, 2012).
 - (3) 招待講演 H. Ohsato, A-Y. Kim, J-S. Kim, C-I. Cheon, K-W. Chae, & I. Kagomiya, "Fabrication of indialite glass ceramics with low dielectric constant for millimeterwave dielectrics", Electroceramics XIII, (Enschede, Netherlands, June, 25, 2012).
 - (4) H. Ohsato, "Internal strain and dielectric losses by compositional ordering on the microwave dielectrics pseudo-tungstenbronze $\text{Ba}_6\text{-3xR}_8\text{+2xTi}_{18}\text{O}_{54}$ (R = rare earth) solid solutions", Materials Science & Technology (MS&T) 2012, (Pittsburg, Pennsylvania, USA, October, 9th, 2012).
 - (5) H. Ohsato, J-S. Kim, A-Y. Kim, C-I. Cheon, K-W. Chae and I. Kagomiya, "Fabrication of indialite glass ceramics with high Q and low dielectric constant for millimeterwave dielectrics", The 29th International Korea-Japan Seminar on Ceramics (KJ-Ceramics 2012), (Degue, Korea, November, 23rd, 2012).
 - (6) 大里 齊, 寺田美緒, 川村敬三, "マイクロ波・ミリ波誘電体デジオブサイドの作製条件", 第 29 回強誘電体応用会議 (fma-29), (京大、京都, 2012/5/26).
 - (7) 大里 齊, "マイクロ波誘電体疑似タンゲステンブロンズにおける Compositional ordering による歪みと誘電ロス", 口頭発表、第 24 回秋季シンポジウム, セラミックス協会, (名大、名古屋, 2012.9.20).
 - (8) 大里 齊, "誘電体の世界", ポスター、第 24 回秋季シンポジウム, セラミックス協会, (名大、名古屋, 2012.9.20).
 - (9) Microwave Dielectric Ceramics with Rare-Earth (I), Hitoshi OHSATO, Isao KAGOMIYA, Jeong Seog KIM, Chae Il Cheon, The 21st Symposium on Dielectric and Advanced Matter Physics & The 13th Workshop on High Dielectric and Ferroelectric Device and Materials, (Muju, Korea, 2012/2/13).
 - (10) マイクロ波誘電体の新応用を目指して: 誘電体損について, 大里 齊, 籠宮

- 功, 日本セラミックス協会 2012 年会, (京都, 2012.3.20) .
- (11) Hitoshi OHSATO, Tsuyoshi IWATAKI, Ye-Ji LEE and Chae-il CHEON, Crystal Structure and Origin of Piezoelectric Properties on Four Component Langasite $A_3BGa_3Si_2O_{14}$ ", The 28th Japan-Korea International Seminar on Ceramics, Okayama, Japan (2011/11/23-26).
- (12) Relationship between ordering ratio and microwave Q factor on cordierite glass ceramics, H. Ohsato, A-Y. Kim, C-I. Cheon, K-W. Chae, J-S. Kim, I. Kagomiya, The 9th Pacific Rim Conference on Ceramic and Glass Technology (PACRIM 10), (Cairns Australia, 2011.7.11).
- (13) Indialite and cordierite in glass ceramics for millimeterwave dielectrics, H. Ohsato, T. Ida, J-S. Kim and C-I. Cheon, International conference of International Union of Crystallography (IUCr2011), (Madrid Spain, 2011.8.29).
- (14) Crystal structure ordering and Quality factor on microwave dielectrics, Hitoshi OHSATO, American Ceramic Society anneal meeting, (Columbus, USA, 2011.10.19).
- (15) コーディエライト結晶化ガラスのミリ波誘電特性, 大里 齊, Lee Ye Ji, C-I. Cheon, K-W. Chae, J-S. Kim, , 第 28 回強誘電体応用会議, (京都, 2011/5/27).
- (16) 低誘電率・高 Q インディエライト/コーディエライト結晶化ガラス誘電体, 大里 齊, J-S. KIM, Y-J. LEE, C-I. Cheon and I. Kagomiya, 第 24 回秋季シンポジウム, セラミックス協会, (札幌, 2011.9.9).
- (17) H. Ohsato, A-Y. Kim, C-I. Cheon, K-W. Chae, J-S. Kim, I. Kagomiya, "Order-disorder transition and microwave Q factor in cordierite glass ceramics", 第 20 回誘電体物性シンポジウム, 第 12 回強誘電体材料ワークショップ, (Muju, Korea, 2011/2/13-2/15).
- (18) H. Ohsato, A-Y. Kim, C-I. Cheon, K-W. Chae, J-S. Kim, I. Kagomiya, "Microwave dielectric properties of cordierite/indielite glass ceramics", 27th Korea-Japan International Seminar on Ceramics, (Songdo, Korea, November 24-26, 2010).
- (19) H. Ohsato, A-Y. Kim, C-I. Cheon, K-W. Chae, J-S. Kim and I. Kagomiya, "Microwave Dielectric Properties and Crystal Structures on Ni-doped Cordierite and Indialite System", 3rd International Congress on Ceramics, Osaka International Convention Center (Grand Cube Osaka), (Osaka, Japan: November 14-18, 2010).
- (20) H. Ohsato, A-Y. Kim, T. Sakakura, N. Ishizawa, C-I. Cheon, and J-S. Kim, "Crystal structure and microwave dielectric properties of indialite", The 10th Conference of the Asian Crystallographic Association (AsCA2010), (BEXCO, Busan, Korea, 2010/10/31-11/3)
- (21) [招待講演] H. Ohsato, "Our Research on Electroceramics Based on Crystallography", 7th International Symposium on Advanced Materials, 嶺南大学 (Yeungnam University), Material Science and Engineering, (Tegu, Korea, 2010/10/4-10/5)
- (22) H. Ohsato, A-Y. Kim, C-I. Cheon, K-W. Chae, J-S. Kim and I. Kagomiya, "Microwave dielectric properties of indielite glass ceramics", The Sixth International Conference on Microwave Materials and their Applications (MMA2010), (Warsaw, Poland, 2010/8/31-9/3).
- (23) [招待講演] H. Ohsato, "Advance of Function on Microwave Dielectrics for Next Generation", Joint International Conference on the 7th Asian Meeting on Ferroelectricity (AMF-7) and the 7th Asian Meeting on Electroceramics (AMEC-7), (Jeju island, Korea, 2010/6/28-7/1, 2010).
- (24) H. Ohsato, A-Yong Kim, C-I, Cheon, J-S. Kim, "Millimeterwave dielectrics with low dielectric constant", 2010/06/16 Electroceramics XII, Norwegian University of Science and Technology, NTNU, Trondheim, Norway, 13th- 16th of June 2010.
- (25) Sang Hwan Moon, Jeong Seog Kim, Chae Il Cheon, Eung Soo Kim, and Hitoshi Ohsato, "Microwave Dielectric Properties of $CaTiO_3-(LiNd)TiO_3-(BiNa)TiO_3$ Ceramics", 第 27 回強誘電体応用会議, (京都, 2010/5/26-5/29).
- [図書] (計 3 件)
- (1) H. Ohsato, "Origin of Piezoelectricity on Langasite" Materials Science and Technology, ISBN 978-953-51-0193-2, edited by Sabar D. Hutagalung, (Intech, 2012) Chapter 2.

- (2) 大里 齊、“マイクロ波誘電体”、第3編
第2章2 『セラミックス機能化ハンド
ブック』、pp152-166, 2011(1/21), (株)エ
ヌ・ティ・エス。
- (3) Edited by J. Akedo, H. Ohsato, and T.
Shimada, Volume Editor: M. Singh,
“Advances in Multifunctional
Materials and Systems”, Ceramic
Transactions, Volume 216, Copyright ©
2010 by The American Ceramic Society,
Published by John Wiley & Sons, Inc.,
Hoboken, New Jersey.

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 3 件)

名称：導電材料および抵抗体用ペースト
発明者：大里 齊、籠宮 功、三輪和也、松
本慎司、前田幸則
権利者：名古屋工業大学、コア (株)
種類：特許
番号：特許第 5115949 号
取得年月日：2012 年 10 月 26 日
国内外の別：国内

名称：抵抗ペーストおよび厚膜抵抗器の製造
方法
発明者：大里 齊、三輪和也、前田幸則
権利者：名古屋工業大学、コア (株)
種類：特許
番号：特許第 4974268 号
取得年月日：2012 年 4 月 20 日
国内外の別：国内

名称：誘電体磁器組成物の製造方法
発明者：大里 齊、三宅慎哉
権利者：名古屋工業大学、
種類：特許
番号：特許第 4616615 号
取得年月日：2010 年 10 月 29 日
国内外の別：国内

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.nisri.jp/dor/report/2011/achievements2011.html#03>

<http://www.nisri.jp/dor/report/2010/achievements2010.html#02>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

大里 齊 (OHSATO HITOSHI)
公益財団法人名古屋産業科学研究所・その
他部局等・研究員
研究者番号：20024333

(2) 研究分担者

籠宮 功 (KAGOMIYA ISAO)
名古屋工業大学・工学研究科・准教授
研究者番号：40318811

(3) 連携研究者

角岡 勉 (TSUNOOKA TSUTOMU 2012 年 12
月 5 日歿)
名古屋工業大学・工学部・プロジェクト教
授
研究者番号：60512449

(3) 連携研究者

安藤 汀 (ANDO MINATO)
名古屋工業大学・工学部・プロジェクト教
授
研究者番号：50512456