

## ステアタイト系材料の表面加工

後藤喜良 伊藤賢次 田中正洋

Grinding and Polishing Technique for  
Steatite Ceramics

By

Kiyoshi GOTO, Kenji ITO and Masahiro TANAKA

高周波絶縁材料として優れた性能を持つステアタイト系材料について平面研削盤及び研磨機による研削・研磨加工実験と比誘電率などの測定のための電極作成を行い、加工特性の把握と加工条件が材料の機械的、電気的性質に及ぼす影響について検討し、次の結果を得た。

- (1) ホワイトアラングム砥石(砥粒サイズ#46)研削では中心線平均粗さが、最小でも $1.2\mu\text{m}$ にしかならず、表面粗さの小さい平滑な面を得るためには、砥粒径の小さい砥石の使用が必要で、砥粒サイズ#1500のレジノイドボンドダイヤモンド砥石の使用により、中心線平均粗さが $0.35\mu\text{m}$ の面が得られた。
- (2) ダイヤモンド砥石(砥粒サイズ#400)研削及び $6\mu\text{m}$ ダイヤモンド砥粒での研磨加工後の曲げ強さは、1軸金型プレス及び等方静水圧成形の焼結体にかかわらず、 $180\text{MPa}$ 前後で曲げ強さの変化は見られなかった。
- (3) アルミニウムの真空蒸着による $1\mu\text{m}$ までの付着面の中心線平均粗さは、ダイヤモンド砥石の各砥粒径による研削面のそれとほぼ同じであった。また、表面粗さと付着力の関係は表面粗さが粗いと付着力も大きく、スパッタ蒸着のほうが真空蒸着より約20%大きい。
- (4) 電気的特性は未研削のものは比誘電率がばらつき、大きめに測定される。研削したものは、銀ペースト、銀スパッタ電極とも $1\text{MHz}$ の周波数で比誘電率が6.0、誘電正接は $6\times 10^{-4}$ であった。 $10\text{GHz}$ の周波数では比誘電率は6.0で変わらないが、誘電正接は $2\times 10^{-3}$ と増加した。

## 1. 緒 言

ステアタイト系磁器は比較的安価で作り易いため、絶縁セラミックスとして回路用基板などに利用されている。

最近、携帯電話や衛星放送受信機の普及にみられるように、マイクロ波領域( $300\text{MHz}\sim 30\text{GHz}$ )での電波利用が一般民生用機器にも及んでおり、今後ますます拡大されていくものと思われる。これらの機器の小型、軽量化に伴い、これに使用する高周波絶縁材料は小さい比誘電率で且つ高周波領域でも損失の少ない材料が要求されている。

(財)ファインセラミックスセンター(JFCC)では、フォルステライト、ステアタイト系材料のより低損失化に向け開発に取り組んでおり、当センターでは研削、研磨加工や電極接着などの表面加工技術を分担研究テーマとして取り上げ、本年度はステアタイト系材料の加工特性が機械的、電気的性質に及ぼす影響について調べた。

## 2. 実験方法

## 2.1 使用原料および加工用試験片

使用原料のステアタイト粉末は、スプレードライ顆粒(共立窯業原料製、KYORIX TA)を用いた。以下SD

粉と呼ぶ。蛍光X線による定量分析結果を表1に、電顕観察による粒径の分布状況を写真1に示す。粉末X線回折による検出鉱物はエンスタタイト、フォルステライト、 $\alpha$ -石英、炭酸バリウム、ジルコンが認められた。真比重は3.09、パウダーテストにより測定した流動性指数は94であった。SD粉および解砕した原粉の粒度分布を表2に示す。

加工用試験片は1軸金型プレス成形、等方静水圧成形(CIP成形)および鋳込成形による成形予備実験と焼成温度( $1280\sim 1380^\circ\text{C}$ )を変化させた焼成予備実験の結果から、成形圧力 $98\text{MPa}$ のプレス成形を行い、温度 $1340^\circ\text{C}$ 、保持時間1時間、昇温速度 $2^\circ\text{C}/\text{min}$ の焼成条件により $30\phi\times 5\text{mm}$ の円板を作成した。

焼結体のかさ密度は $2.80\text{g}/\text{cm}^3$ 、粉末X線回折による検出鉱物はプロトエンスタタイトが主で、少量の $\alpha$ -クリストバライト、ジルコンが認められた。

## 2.2 表面加工および表面粗さの測定

研削加工は試験片を横型平面研削盤(黒田精工製、GS-BMHF)を用いて表3の条件で行った。研磨加工は砥粒径 $15\mu\text{m}$ のダイヤモンドスラリーでラッピング後、 $6\mu\text{m}$ のダイヤモンドスラリーで、研磨機(マルトー製、ダイヤ

表1 ステアタイト原料の化学分析値

(単位:wt%)

SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	TiO <sub>2</sub>	CaO	MgO	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	Total
59.52	2.59	0.21	0.14	1.68	30.17	0.50	0.10	94.96

表2 ステアタイト粉末の粒度分布

(単位:wt%)

スプレー顆粒			原粉			
-106 μm	-74 μm	-44 μm	-10 μm	-5 μm	-3 μm	-1 μm
100	73	26	90	75	55	18
平均粒径 89 μm			平均粒径 2.6 μm			

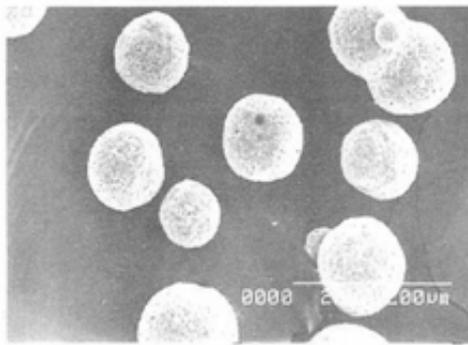


写真1 ステアタイト粉末(スプレー顆粒)の粒径分布

ラップML-150)を用い回転数220rpmで行った。

表面粗さは触針式表面粗さ計(東京精密製、サーフコム200B)により、駆動速度0.3mm/sで中心線平均粗さを測定した。

### 2.3 曲げ強さの測定

S D粉を1軸金型プレス成形(成形圧98MPa)およびC I P成形(成形圧98MPa)により、100×100×15mmの平板を作成し、加工用試験片と同じ条件で焼成した。この焼結体から4×3×38mmの試験片を切り出し、前記の研削、研磨加工を行い、J I S R 1601「ファインセラミックスの曲げ強さ試験方法」により、万能試験機(島津製作所製、AG-5000B)を用いて3点曲げ法で測定した。

### 2.4 電極作成

電気的特性測定のための電極作成実験を行った。真空蒸着装置(東京真空機械製、EVD, G S, 28800)により最大電流2.5A、真空度 $2 \times 10^{-4}$ Torrの条件でアルミニウムを、スパッタ装置(日電アネルパ製、SPF-210H)により直流200W、1分間の条件で銀を蒸着させた。

付着状態を調べるため蒸着面の表面粗さの測定と2φの銅棒をエポキシ樹脂により蒸着面に接着し、引っ張り強さによる付着力を測定した。

### 2.5 比誘電率、誘電正接の測定

最初に、焼結密度と比誘電率との関係を調べた。この際に、未焼結試料に研削加工を行うと研削液の浸透、研削屑の混入による誤測定が予想されるので、試験片は、1280~1380℃焼成のものを未研削のまま用いることとし、形状は焼きっぱなしのため反りが生じにくいように直径の小さい30φ×1mmとした。測定器は迅速測定のため、L F ・インピーダンスアナライザ(Y H P製、4192A)および誘電

体測定電極(Y H P製、HP16451B)を用い、電極(主電極径:14mm)は一般的に行われている銀ペーストを560℃で焼き付けた。

次に、研削加工による影響を調べるため、吸水のない1340℃以上の焼結体について、J I S C 2141「電気絶縁用セラミックス材料試験方法」に規定されている主電極径38mmが確保できる51φ×1mmの面積の大きい試験片を研削加工して作成した。これに電極作成法の違いによる影響を見るため、銀ペースト焼き付け電極と銀スパッタ電極の2種類を付けた。測定器は、L F ・インピーダンスアナライザ(Y H P製、4192A)では誘電正接を内部プログラムで計算するので、コンダクタンスの値をいくつに設定しているのか不明のため、コンダクタンスを実際に測定する誘電体損測定器(安藤電気製、TR-10C)を用い、変成器ブリッジ法により測定した。周波数はいずれも1MHzで測定したが、誘電正接の変化を見るため、J F C Cの東田ら<sup>1)</sup>の開発した空洞共振器法により10GHzでも測定を行った。

## 3. 実験結果と考察

### 3.1 表面加工と表面粗さ

ステアタイト磁器はセラミックスの中ではどちらかという易削材であるので、最初に金属研削用のW A 砥石を用いて研削し表面粗さを測定した。焼成温度と中心線平均粗さ(Ra)の関係を図1に示す。

焼成温度1340℃のものが最低のRa1.2μmを示し、この温度を境にして低温側、高温側のいずれもRaは大きくなった。これは1340℃未満の未焼結体では粒子間の結合が弱いこと、砥粒の当たらないところも削り取られること、気孔がまだ大きいまま残っていることが原因と考えられる。1340℃以上の焼結体では吸水率は0であるが、かさ密度および曲げ強さは1340℃で2.80g/cm<sup>3</sup>、184MPa、1360℃で2.84g/cm<sup>3</sup>、186MPa、1380℃で2.82g/cm<sup>3</sup>、167MPaと物性や機械的特性に差が生じることから、粒成長が起き結晶粒径が大きくなると考えられ、このことが研削結果に現われたものと思われる。また、研削条痕が残るため、研削方向に直角方向のRaは平行方向よりも若干大きくなる。

いずれにしても、W A 砥石研削ではRaが最低でも1.2μmにしかならず、さらに平滑な面を得るため最小のRa値を示した1340℃焼成のものについて、レジノイドボンドダイヤモンド砥石の砥粒径をかえて研削した。砥粒径と表

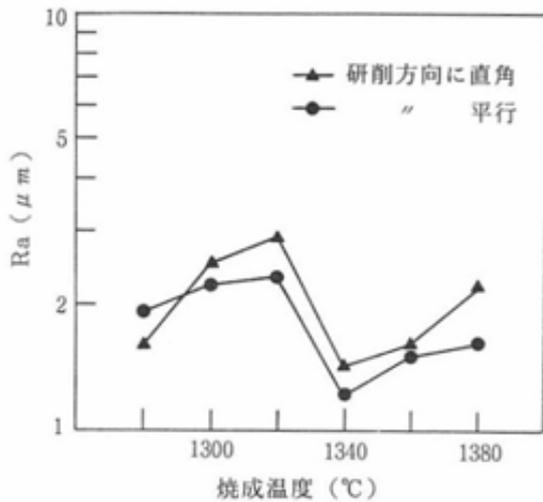


図1 焼成温度と表面粗さの関係(WA砥石)

面粗さRaの関係を図2に示す。また、電子顕微鏡観察による砥粒径#200での研削面を写真2に、#1500でのそれを写真3に、6 $\mu\text{m}$ のダイヤモンドスラリーによる研磨面を写真4に示す。研削砥粒径を細かくするほど平滑になり、#1500研削でRa0.35 $\mu\text{m}$ が得られた。研磨面のRaを測定した結果は0.20 $\mu\text{m}$ とさらに平滑になる。安井ら<sup>3)</sup>はフォルステライトで研磨砥粒径による表面粗さの関係を調べ、3 $\mu\text{m}$ のダイヤモンドスラリーにより、Ra0.1 $\mu\text{m}$ を得ている。研削面にはやはり研削条痕が観察され、#1500研削の条痕は#200研削のものより幅が狭いように見受けられる。研磨面では研削条痕が完全に除去されており、その結果Ra0.20 $\mu\text{m}$ が得られたものと思われる。したがって、表面粗さに対する加工方法の影響は研削加工においては、砥粒径が最も大きく関与し、それに伴う研削条痕の形状も寄与しており、それが研磨加工により研削条痕も除去され更に平滑になる。

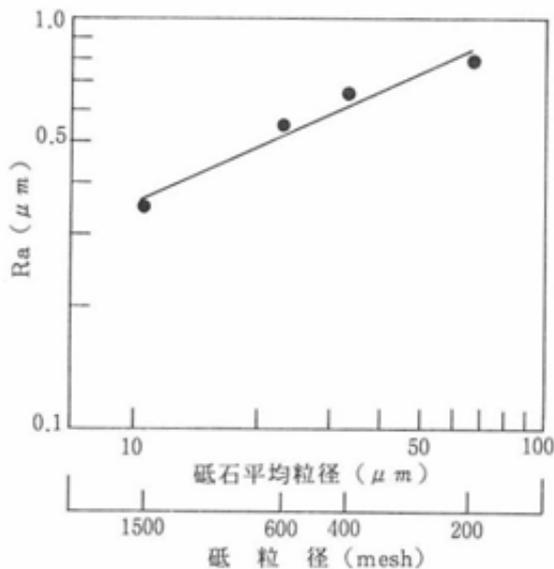


図2 砥石種類による表面粗さ変化(研削方向に平行)

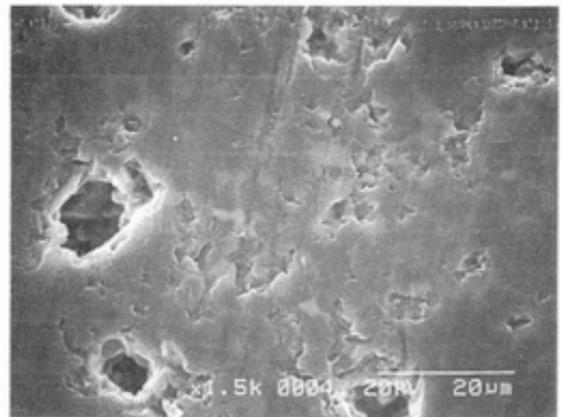


写真2 砥粒径#200での研削面

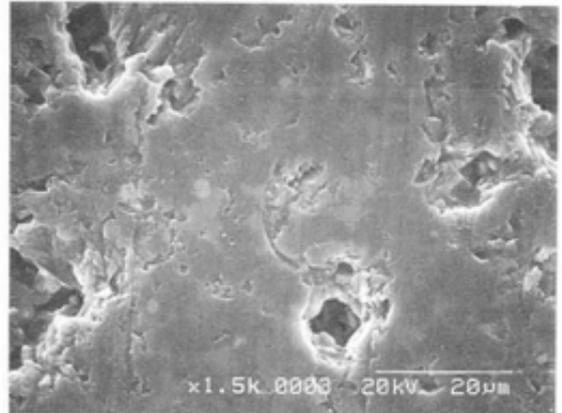


写真3 砥粒径#1500での研削面

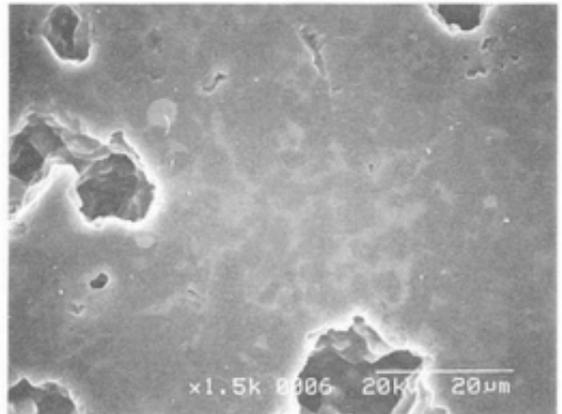


写真4 砥粒径6 $\mu\text{m}$ での研磨面

### 3. 2 表面加工と曲げ強さ

成形法の相違および研削、研磨加工が曲げ強さに及ぼす影響を調べた。1軸金型プレス成形(成形圧98MPa)した焼結体を砥粒径#400で研削したものの曲げ強さを図3に、CIP成形(成形圧98MPa)した焼結体を同様に研削したものを図4に、CIP成形(成形圧98MPa)した焼結体を6 $\mu\text{m}$ のダイヤモンドスラリーを用い研磨したものを図5に示す。いずれの場合も曲げ強さの平均値は180MPa前後で大きな相違は見られない。成形法の相違は成形密度(プレス成形:1.75g/cm<sup>3</sup>、CIP成形:1.82g/cm<sup>3</sup>)の違いとして現れるが、焼結体の密度は前者が2.80g/cm<sup>3</sup>、後者が2.82g/cm<sup>3</sup>とほぼ一定になることから、アルミナや炭化けい素と異なり易焼結素材であるステアタイトは成形法の相違が曲げ強さに影響を及ぼすことは少ないと言える。また、同じ成形法(CIP成形:98MPa)の砥粒径

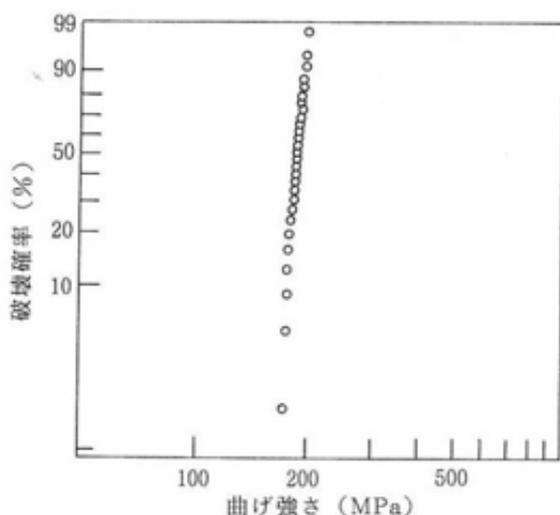


図3 SDC400砥石で研削したステアタイト焼結体の曲げ強さ（1軸プレス）

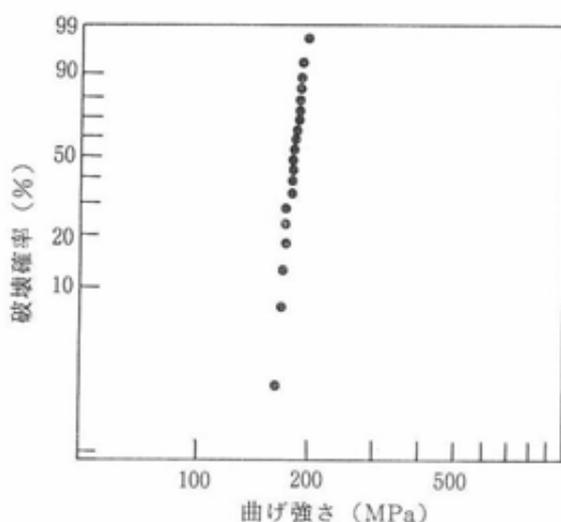


図4 SDC400砥石で研削したステアタイト焼結体の曲げ強さ（CIP成形）

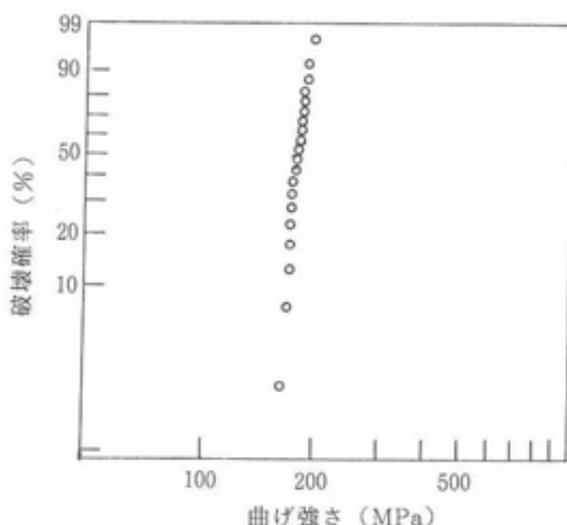


図5 6 μmダイヤモンド砥粒で研磨したステアタイト焼結体の曲げ強さ（CIP成形）

#400研削と6 μmのダイヤモンドスラリーによる研磨でも、Raとしては0.64 μmと0.20 μmの差があるにも拘らず、

曲げ強さに顕著な差が現れない。安井ら<sup>2)</sup>はフォルステライトで研削砥粒径による影響を調べ、砥粒径が細くなると曲げ強さはわずかではあるが大きくなる傾向にあると報告している。一般に、研削、研磨により曲げ強さの向上を図る意図は、焼きばなし面の平滑化（研削）や研削傷の除去（研磨）による破壊起点の減少、研削による残留圧縮応力の効果<sup>3)</sup>などを期待するものであるが、液相焼結性が強いステアタイトでは磁器の表面にもみられるように写真2~4のような気孔が多く存在し、これが破壊起点となり、研磨加工により研削傷を除去しても曲げ強さの向上にはつながらないと考えられる。また、X線応力測定法<sup>4)</sup>により砥粒径#200研削後の表面近傍の残留応力を測定した結果、86MPaの圧縮応力の存在が認められたが、この値もジルコニアや窒化けい素の199MPa、192MPa<sup>5)</sup>に比べ半分以下と小さく、圧縮応力が曲げ強さの増強に作用するほどの値ではないことが判った。

### 3.3 真空蒸着膜及びスパッタ膜

電気的特性測定のため、真空蒸着法によりアルミニウムの、スパッタリング法により銀の電極作成を試みた。また、附着状態を調べるため、各々の砥粒径での研削面上のアル

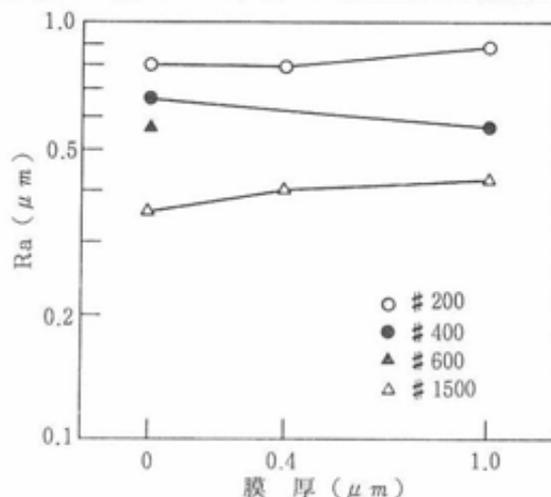


図6 Al蒸着後の表面粗さ

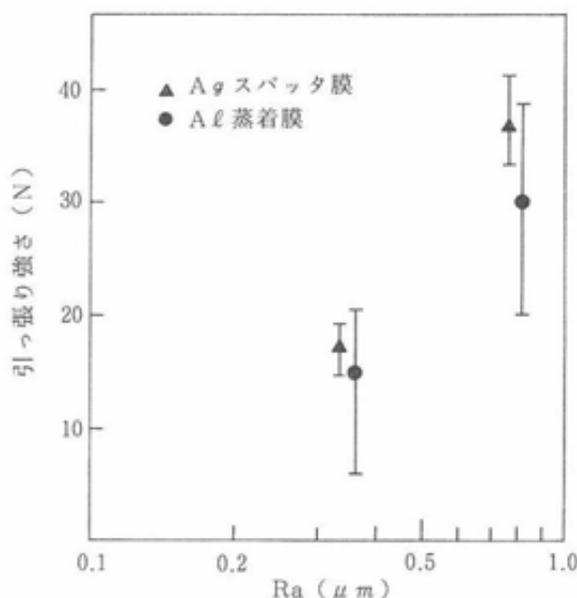


図7 基板表面粗さと蒸着膜の付着力の関係

ミニウム蒸着膜の表面粗さを測定した。その結果を図6に示す。膜厚1 $\mu$ mまでの範囲ではRaの顕著な変化はなく、研削面の凹凸に沿って付着していることが判る。また、付着力を調べるため、砥粒径#1500および#200研削面上のアルミニウム蒸着膜、銀スパッタ膜の引っ張り強さを測定した。その結果を図7に示す。両方の膜とも表面粗さが粗いと付着力は大きくなった。研削面の凹凸に沿って付着するので実際の付着面積が大きくなることとアンカー効果が働いていると思われる。銀スパッタ膜はアルミニウム蒸着膜よりばらつきが小さく、付着力の平均値は約20%大きい。スパッタ膜は金属原子が電圧により加速されて衝突エネルギーを持って付着することとそれに伴う基板温度の上昇が、

より強い結合を生むと考えられる。

### 3.4 誘電特性

まず、焼結密度と比誘電率、誘電正接との関係を調べた。研削液の浸透による誤測定を避けるため焼きっぱなしの試験体に、銀ペースト焼き付け電極(3端子法、主電極径:14mm)を作成し、インピーダンスアナライザにより1MHzの周波数で測定した。その結果を図8の下段のグラフに示す。かさ密度が大きくなるにしたがって比誘電率は増加し、吸水がなくなりかさ密度が2.80g/cm<sup>3</sup>前後になると比誘電率も6.5とほぼ一定になる。これは角岡ら<sup>1)</sup>もフォルステライトで述べているように、気孔が多く存在する未焼結の状態では、空気層(空気の比誘電率は1)とステア

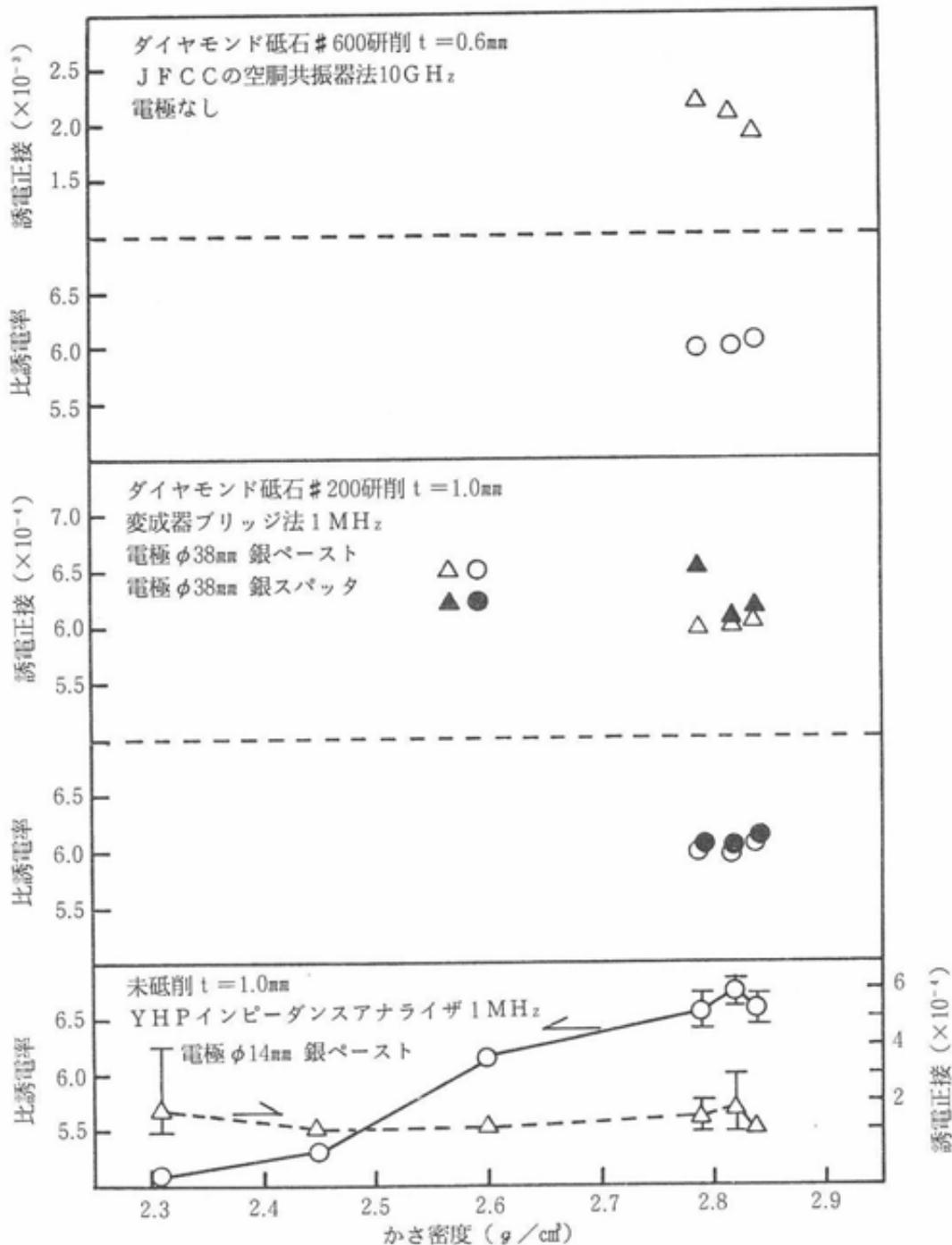


図8 ステアタイト焼結体の誘電特性

タイトの混合物の比誘電率を測定することになり、気孔率が小さくなるにしたがってステアタイトの値に近づいていくと考えられる。しかし、そのステアタイトの値であると思われる比誘電率6.5は共立窯業のカタログ値(5.8~6.0)や文献値<sup>9)</sup>(6.0)に比べ大きく、逆に誘電正接 $2 \times 10^{-4}$ はカタログ値( $6 \times 10^{-4}$ )、文献値<sup>9)</sup>( $5 \times 10^{-4}$ )に比べ小さく、しかも測定の度毎にばらつきを生じた。この原因は

(1) 試験体が焼きっぱなしで未研削であるため、表面の凹凸にそのまま電極が付着して実効面積が大きくなることから比誘電率に計算誤差(計算に用いる面積値は電極の直径から求める。)が生じた。

(2) 主電極径が14mmと小さいため、電流値が機器の測定範囲以下になり誘電正接の誤表示(測定器の内部プログラムが計算する。)がおきた。

(3) 試験体に反りや曲りがあるために、装着の度毎に電極間距離が変わり、その結果、試料の実効厚さが変わるため測定にばらつきがでる。

と考え、(1)、(3)は研削を行うことで、(2)は主電極径を大きくすることと誘電正接計算に必要なコンダクタンスを実際に測定できる測定器を使用することで対処しようと、吸水のない焼成温度1340°C以上の試験体について、砥粒径#200のダイヤモンド砥石による研削加工を行い、JIS C 2141「電気絶縁用セラミックス材料試験方法」の形状(主電極径:38mm)の銀電極をペースト焼付け法とスパッタリング法で作成して、1MHzの周波数で変成器ブリッジ法により測定した。その結果を図8の中段のグラフに示す。比誘電率は銀ペースト、銀スパッタ電極ともかさ密度2.80~2.84g/cm<sup>3</sup>の範囲で6.0と一定になった。誘電正接は $5.9 \sim 6.5 \times 10^{-4}$ の範囲に入るようになり、未研削の場合の測定ように $10^{-4}$ の桁そのものがばらつくことはなくなった。JIS C 2141では有効数字は $10^{-4}$ の桁までであり、表面粗さの規定値はないが、平行度として厚さの1%以下を要求している。これは厚さ1mmの場合、10 $\mu$ m以下の変動に押さえることになり、プラスチックと異なり焼成工程が必要なセラミックスについては、反りや曲りを除去するための研削加工が必要であろう。市販のステアタイトとして高周波領域での誘電正接の増加程度を見るため、砥粒径のさらに細かい#600による研削加工を行い、周波数を10GHzとしてJFCCの開発した空洞共振器法により測定した。その結果を図8の上段のグラフに示す。比誘電率は周波数が変わっても6.0と変化はないが、誘電正接は $2 \times 10^{-3}$ と一桁大きくなり周波数の影響を受ける。比誘電率( $\epsilon$ )と誘電正接( $\tan \delta$ )の積( $\epsilon \cdot \tan \delta$ )を損失係数といい、この値の大小が高周波数領域での絶縁特性の良否の目安となる。比誘電率は物質により決定され周波数には依存しないので、損失係数を少なくするには誘電正接を小さくすることが必要となるが、アルミナは10MHz位から、フォスファイト<sup>9)</sup>は100MHz位からやはり誘電正接は増加しており、高周波絶縁材料として優れた性能を持つステアタイトでもさらに誘電正接を小さくするには、組成の検討や不純物の除去を考える必要がある。

#### 4. 結 論

(1) ホワイトアラシウム砥石(砥粒サイズ#46)研削では中心線平均粗さが、最小でも1.2 $\mu$ mにしかならず、表面粗さの小さい平滑な面を得るためには、砥粒径の小さい砥石の使用が必要で、砥粒サイズ#1500のレジノイドボンドダイヤモンド砥石の使用により、中心線平均粗さが0.35 $\mu$ mの面が得られた。

(2) ダイヤモンド砥石(砥粒サイズ#400)研削及び6 $\mu$ mダイヤモンド砥粒での研削後の曲げ強さは、1軸金型プレス及び等方静水圧成形の焼結体にかかわらず、180MPa前後と曲げ強さの変化は見られなかった。

気孔等の内部欠陥による影響のほうが大きいことと、残留圧縮応力の効果が期待できないことに起因する。

(3) アルミニウムの真空蒸着による1 $\mu$ mまでの付着面の中心線平均粗さは、ダイヤモンド砥石の各砥粒径による研削面のそれとほぼ同じであった。また、表面粗さと付着力の関係は表面粗さが粗いと付着力も大きく、スパッタ蒸着の方が真空蒸着より約20%大きい。

(4) 電気的特性については未研削のものは比誘電率がばらつき、大きめに測定される。研削したものは、銀ペースト、銀スパッタ電極とも1MHzの周波数で比誘電率が6.0、誘電正接は $6 \times 10^{-4}$ であった。研削加工により平面度を確保することが重要である。10GHzの周波数では比誘電率は6.0で変わらないが、誘電正接は $2 \times 10^{-3}$ となり、周波数が上がると損失が増す。

#### 付 記

本研究は、平成4年度愛知県先端技術共同研究推進事業(実施機関:愛知県瀬戸窯業技術センター、財団法人ファインセラミックスセンター)の分担研究として実施したものである。JFCCの原田首席研究員に残留応力の測定を、同じく東田主任研究員に高周波領域での誘電特性の測定をご指導いただきました。厚くお礼申し上げます。

#### 文 献

- 1) 角岡 勉、東田 豊、大川 元、杉浦裕胤、安井克幸、田中正洋、服部金司、電子情報通信学会技術研究報告、92、293、1-6(1992)
- 2) 安井克幸、伊藤賢次、服部金司、愛知県瀬戸窯業技術センター報告、21、1-7(1992)
- 3) 田中啓介、中川平三郎、鈴木賢治、JFCCレビュー、1、54-64(1989)
- 4) 三好良夫、精密工学会誌、55、8、25-29(1989)
- 5) 浜野健也編、「ファインセラミックスハンドブック」、朝倉書店(1984)p.651
- 6) 佐野資郎、昭和63年度愛知県瀬戸窯業技術センター客員研究員指導事業テキスト「セラミックスの電気的性質の試験方法(測定法)」(1988)pp.1-6