

氏 名	なか お しゅう や 中 尾 修 也
学位(専攻分野)	博 士 (工 学)
学 位 記 番 号	論 工 博 第 3910 号
学位授与の日付	平 成 18 年 7 月 24 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 4 条 第 2 項 該 当
学 位 論 文 題 目	アルミナ粉体層を挿入したガラスーアルミナ基板の拘束焼結

論文調査委員	(主 査) 教 授 増 田 弘 昭	教 授 東 谷 公	教 授 宮 原 稔
--------	----------------------	-----------	-----------

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、LTCC (LOW Temperature Co-fired Ceramics) 基板について従来の方法にない、新発想の平面方向の焼成収縮抑制方法として、LTCC 材料のガラスーアルミナ混合物の内部にアルミナ粉体層を有するサンドイッチ構造とすることを考案し、焼成収縮抑制に影響をおよぼす因子について実験的な検討をするとともに、この方法の実用性についての検討も行い、これらの得られた成果をまとめたものであり、8章からなっている。

第1章では、本研究の背景、これまでの研究からみた本研究の位置付けおよび本論文の構成について述べている。

第2章では、本研究で使用した出発原料の諸特性と試料の作製方法および測定方法について述べている。

第3章では、従来の方法と異なる新発想の焼成収縮抑制方法としてガラスーアルミナ混合物層の内部にアルミナ粉体層を有するサンドイッチ構造とすることを考案し、本方法の可能性を実験的に検証している。また、ガラスーアルミナ混合物層およびアルミナ粉体層の厚さが平面方向の焼成収縮に与える影響について検討し、さらに焼結体の機械的強度についてアルミナ粉体層の厚さとの関係を明らかにしている。ガラスーアルミナ混合物層に挟まれたアルミナ粉体層はガラスーアルミナ混合物層中の溶融したガラスが浸透して緻密になることを示し、焼成収縮の抑制については、アルミナ粉体層中のアルミナ粒子を再配列させないことが重要であることを示している。アルミナ粉体層の厚さを増加し、ガラスーアルミナ混合物層の厚さを減少すると平面方向の焼成収縮率は1%以下に抑制でき、いわゆる無収縮焼結ができること、ならびに、焼結体の機械的強度はアルミナ粉体層の厚さが増加するに従い増加することを明らかにした。

第4章では、アルミナ粉体層に用いるアルミナ粉末の粒度が平面方向の焼成収縮、およびガラスーアルミナ混合物層中のガラスの浸透に与える影響を検討している。アルミナ粉体層には粉碎したアルミナ粉末と粒度配合したアルミナ粉末の2種類を用いてアルミナ粉体層内の気孔径分布およびアルミナ粉体層の曲げ強度を調べ、平面方向の焼成収縮率、およびガラスーアルミナ混合物層からのガラスの浸透距離との関係を検討している。粉碎したアルミナ粉末を用いたアルミナ粉体層の場合、粉碎条件に関わらずアルミナ粉体層の空隙率が一定となるが、アルミナ粉体層の曲げ強度は比表面積に比例した。一方、粒度配合したアルミナ粉末を用いたアルミナ粉体層の場合、気孔径分布は双峰ピークが得られ、アルミナ粉体層の曲げ強度は粉碎したアルミナ粉末の場合より低い値を示した。いずれのアルミナ粉末を用いても曲げ強度の増加にともない基板の水平方向収縮率は減少し、曲げ強度と基板の水平方向収縮率の関係は、粉碎したアルミナ粉末および粒度配合したアルミナ粉末のいずれの場合も同一曲線上にプロットできることがわかった。また、粉碎したアルミナ粉末を用いた場合、アルミナ粉体層へのガラスの浸透距離はKozeny-Carmanの式に従うが、粒度配合したアルミナ粉末を用いた粉体層では粉碎したアルミナ粉末よりも浸透しやすくなった。粒度配合したアルミナ粉末の粉体層では、粗粒粒子を含有すると気孔径分布は双峰ピークとなり、ガラスの浸透距離は双峰ピークのうちの大きい気孔径に依存することを示した。

第5章では、ガラスーアルミナ混合物中のガラス粉末の粒径ならびにアルミナ粉末の粒径が焼成収縮挙動に与える影響を検討し、さらにガラスーアルミナ混合物層の内部にアルミナ粉体層を有するサンドイッチ構造に積層した場合について、平面方向の焼成収縮、およびガラスーアルミナ混合物層中のガラスの浸透に与える影響を検討している。ガラス粉末の粒径が

増加すると、焼成収縮は高温側にシフトし、焼結体密度が低下する。また、アルミナ粉末の粒径が増加すると、焼成収縮は低温側にシフトし、焼結体密度が増加する。これらの焼結挙動の違いをガラス—アルミナ混合物層中のアルミナ粉末がガラス粉末を被覆したモデルで説明している。さらにガラス—アルミナ混合物層の内部にアルミナ粉体層を有するサンドイッチ構造に積層した場合についても、ガラス粉末表面のアルミナ粉末の被覆率が平面方向の焼成収縮率および浸透距離との関係をよく説明できることを示した。

第6章では、ガラス—アルミナ混合物シート間に複数のアルミナ粉体シートを積層した場合のアルミナ粉体層の厚さおよび層数が焼成収縮の抑制に与える影響を検討している。ガラス—アルミナ混合物層の各層の合計厚さが一定の場合、アルミナ粉体層の層数に関係なくアルミナ粉体層の各層の合計厚さを同一とすると焼成収縮は一定となることを明らかにした。

第7章では、前章までの結果を踏まえて、新しく提案した無収縮基板製造プロセスによるガラス—アルミナ基板の応用展開の検討を行った。ガラスを浸透させたアルミナ粉体層の誘電特性を調べ、アルミナ粉体層はアルミナ粒子が密に充填しており比誘電率はガラス—アルミナ混合物層より大きな値となることを示した。また、従来の表面拘束技術を用いて基板を製作するとキャビティー付き基板は基板全面を収縮抑制できず、基板が変形しやすくなることを明らかにした。さらに、内部拘束技術をキャビティー付き基板の製造へ応用し、その変形量の抑制を検討している。キャビティー付き基板についてはガラス—アルミナ混合物シート間に複数のアルミナ粉体シートを積層した構造で従来の方法より基板の変形において有利であることを示した。さらに、実用電子部材への本技術の応用展開について検討し、本技術の有用性を検証している。0.1 mm 厚の容量内蔵基板を製作し、その基板の特性と従来の基板との比較を行い、本技術の有用性を示している。

第8章では、本研究で得られた成果をまとめている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、ガラス—アルミナ複合材料における LTCC (Low Temperature Co-fired Ceramics) 基板について従来の方法にない、新発想の平面方向の焼成収縮抑制方法として、LTCC 材料のガラス—アルミナ混合物の内部にアルミナ粉体層を有するサンドイッチ構造とすることを考案し、焼成収縮抑制に影響をおよぼす因子について実験的に検討をするとともに、この方法の実用性についての検討を行ったものであり、得られた主な成果は以下の通りである。

1. 新発想の焼成収縮抑制方法としてガラス—アルミナ混合物層の内部にアルミナ粉体層を有するサンドイッチ構造とすることを考案し、焼成収縮の抑制については、アルミナ粉体層の厚さを増加し、ガラス—アルミナ混合物層の厚さを減少すると平面方向の焼成収縮率は1%以下に抑制でき、いわゆる無収縮焼結ができることを明らかにした。また、ガラス—アルミナ混合物層に挟まれたアルミナ粉体層はガラス—アルミナ混合物層中の溶融したガラスが浸透して緻密になり、焼結体の機械強度はアルミナ粉体層の厚さが増加するに従い増加することを見出した。
2. アルミナ粉体層として、粉碎したアルミナ粉末と粒度配合したアルミナ粉末の2種類を用いてアルミナ粉体層内の気孔径分布およびアルミナ粉体層の曲げ強度を調べ、平面方向の焼成収縮率、およびガラス—アルミナ混合物層からのガラスの浸透距離との関係を検討し、アルミナ粉末を用いても曲げ強度の増加にともない基板の水平方向収縮率は減少すること示した。さらに、アルミナ粉体層へのガラスの浸透距離は、粉碎したアルミナ粉末を用いた場合、Kozeny-Carman の式に従うが、粒度配合したアルミナ粉末の粉体層では、粗粒粒子を含有すると気孔径分布は双峰ピークとなり、ガラスの浸透距離は双峰ピークのうちの大きい気孔径に依存することを示した。
3. ガラス—アルミナ混合物中のガラス粉末の粒径、アルミナ粉末の粒径が焼成収縮挙動に与える影響を検討し、ガラス—アルミナ混合物層中のアルミナ粉末がガラス粉末を被覆したモデルを用いて、ガラス粉末表面のアルミナ粉末の被覆率で平面方向の焼成収縮率および浸透距離との関係を説明できることを示した。
4. ガラス—アルミナ混合物シート間に複数のアルミナ粉体シートを積層した場合のアルミナ粉体層の厚さおよび層数が焼成収縮の抑制に与える影響を検討し、ガラス—アルミナ混合物層の各層の合計厚さが一定の場合、アルミナ粉体層の層数に関係なくアルミナ粉体層の各層の合計厚さを同一とすると焼成収縮は一定となることを明らかにした。
5. 新しく提案した無収縮製造プロセスによるガラス—アルミナ基板の応用展開としてキャビティー基板についての検討を行い、ガラス—アルミナ混合物シート間に複数のアルミナ粉体シートを積層した構造で基板の変形を抑制できることを明ら

かにした。実用電子部材への本技術の応用展開について検討し、本技術の有用性を検証している。

以上要するに本論文は、ガラス—アルミナ複合材料における LTCC 基板における新しい X-Y 方向の焼結収縮の抑制方法を提案し、焼結収縮を抑制するための主な因子およびその機構を明らかにしており、学術上、実際上寄与するところが少ない。よって、本論文は博士（工学）の学位論文として価値あるものと認める。また、平成18年6月26日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。