

## 学位論文題名

マイクロ波によるセラミックス加熱装置の開発と  
焼結・接合への応用に関する研究

## 学位論文内容の要旨

マイクロ波加熱は、マイクロ波電力を誘電体に吸収させて誘電体内部より自己発熱させる方法である。このため、熱伝導による外部加熱に比べて熱効率がよく、急速加熱、選択的加熱等の利点がある。このような利点がセラミックスの焼結、接合に利用できれば、セラミックスの利用範囲も拡大するものと思われる。セラミックスのマイクロ波焼結や接合は、最近各方面で研究されつつあるが、得られた焼結または接合体の特性は、未だ従来の電気炉加熱の域を出ておらず、マイクロ波加熱の特徴を見いだせていないのが現状である。また、マイクロ波加熱に重要な因子である高温域でのセラミックスの誘電特性についても、セラミックスの焼結や接合温度付近で測定した例は報告されていない。さらに、マイクロ波加熱に用いる加熱室には、多くの場合マルチモード型の電子レンジが用いられており、セラミックスのような誘電損率 $\epsilon''$ の極めて小さい(マイクロ波加熱しにくい)材料の加熱には適しているとはいえない。

本研究は、セラミックスの焼結、接合技術として、セラミックスを急速に加熱できるマイクロ波加熱装置を開発し、マイクロ波加熱をセラミックスへ適用することを目的として実施したものである。本研究の概要は以下の通りである。

本研究では、マイクロ波加熱の予備検討として、比較的誘電加熱しやすいガラス材料を市販の共振型アプリケーション内で加熱し、熱損失を含めた誘電加熱のモデル計算と実験結果から、セラミックスのマイクロ波加熱の可能性について検討した。次いで、加熱室として用いられる空洞共振器(キャビティ)の最適設計を行うために、シングルモード(直方体型、円筒型)とマルチモード(電子レンジ)のキャビティについて、その特性について調査した。これらの結果をもとに、可変アイリス(結合窓)とプランジャ(短絡板)を最適に制御できる直方体キャビティを試作し、クライストロン型(6GHz)とマグネトロン型(2.45GHz)のマイクロ波加熱制御システムを開発し、このシステムを用いて、 $\epsilon''$ の小さいセラミックスを高温まで急速に加熱(室温から1800℃まで約90秒で昇温)でき、加熱中でも電力反射率を0に近い状態(電力効率90%以上)にすることができた。

一方、マイクロ波を用いてセラミックスを焼結または接合するには、高温におけるセラミックスの誘電損率 $\epsilon''$ ( $=\epsilon_r \tan \delta$ )を正確に知っておく必要がある。マイクロ波で加熱しながら $\epsilon''$ を測定する方法を考案し、実際にセラミックスの焼結や接合を行う高温域での測定を可能にした。本測定法を用いることにより、1800℃までの誘電特性

を測定することができ、1800℃におけるアルミナ（純度 92%）の  $\epsilon''$  は常温の 100 倍、また、1700℃における窒化ケイ素の  $\epsilon''$  は常温の 60 倍以上に増大することを明らかにした。

次に、各種セラミックスのマイクロ波焼結の可能性を検討した。機能性セラミックスとして、ZnO バリスタ、アクチュエータ用 PZT、およびコンデンサ内蔵多層基板の焼結を行い、得られた焼結体の特性と微構造を調べた。ZnO バリスタでは、短時間（焼結時間 5分）の加熱であるにもかかわらず電気炉焼結と同等の焼結体密度が得られ、電気炉焼結よりも電圧非直線係数  $\alpha$  値が大きく、優れた電気特性を示した。マイクロ波焼結では、 $\epsilon''$  の違いにより蒸気圧の低い添加剤が優先的に加熱され、蒸気圧の高い添加剤の蒸発が抑制されるため、バリスタ特性が向上したと考えられる。PZT セラミックスでは、大型キャビティ（2.45GHz）と加熱むら防止にSiC 板を用いることにより、直径  $\phi$  16mm の均質な焼結体を得られた。低温・短時間焼結で高密度かつ微細組織の焼結体を得られ、電気炉焼結に比べて、同一変位での強度は約 15%向上し、圧電特性で比較すると約 30%の強度向上がみられた。マイクロ波焼結では、結晶粒径が小さくても正方歪 ( $c/a$ ) の大きな焼結体を得られた。焼結反応が促進されるために、低温・短時間焼結でも電気特性の優れた焼結体となったと考えられる。さらに、コンデンサ内蔵多層基板を焼成し、高誘電率 ( $\epsilon_r \cong 6000$ ) かつ変形の小さい基板を得ることができた。マイクロ波焼成では、基板ガラス成分の誘電体層への拡散が抑制され、電極成分中のCs 添加による電極緻密化と Ag の拡散抑制が見られた。その結果、高誘電率かつ平滑な多層基板が得られたと考えられる。

アルミナ及び窒化ケイ素同士のマイクロ波接合の可能性を検討した。アルミナの直接接合では、接合時間 3 分間で母材と同等の接合強度 ( $>400\text{MPa}$ ) が得られ、高温強度試験の結果、800℃までは接合強度の低下がほとんどなかった。マイクロ波接合の場合、接合部の境界は判別できず、アルミナ粒子を熔融せずに粒界相成分のみを選択的に熔融して接合が行われていると推察された。また、直接接合が困難な窒化ケイ素のでも、低純度で  $\epsilon''$  の大きな中間材を用いることにより最大390MPa（母材の約7割）の接合強度が得られた。

以上のように、マイクロ波加熱をセラミックスの焼結や接合に適用すると、粒界部分が選択的（優先的）に加熱されるために、粒界の液相がマイクロ波加熱の駆動力となり、反応が促進すると思われる。そのため、低温・短時間加熱による焼結や接合が可能となり、機械的、電気的特性に優れた焼結及び接合体が得られたと考えられる。

本研究では、マイクロ波焼結及び接合で得られた部材の機械的、電気的特性を評価し、微構造を解析することによって、マイクロ波加熱法の特徴を明らかにし、従来の電気炉加熱に対するマイクロ波加熱の優位性を示すことができた。この技術をさらに発展させ実用化するためには、マイクロ波加熱の安定性（信頼性）を高め、従来の電気炉加熱に対抗できるような量産化技術の開発が重要であると思われる。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 池 田 正 幸  
副 査 教 授 成 田 敏 夫  
副 査 教 授 岡 田 亜 紀 良  
副 査 教 授 武 笠 幸 一

## 学 位 論 文 題 名

### マイクロ波によるセラミックス加熱装置の開発と 焼結・接合への応用に関する研究

近年、セラミックス材料の重要性が改めて認識されている。しかし、セラミックスは焼結に高温が必要であり、電気炉加熱などの熱効率が問題でその用途が限定されていた。

本論文はこのような現況にあるセラミックスの焼結に関して、マイクロ波加熱法の内部加熱による効率の良さと、急速加熱の特性に着目し、マイクロ波加熱制御システムの設計と試作を行い、各種セラミックスの焼結と接合の可能性を実験的に明らかにしたものである。

可変アイリス（結合窓）とプランジャ（短絡板）の位置を最適に制御できる直方体キャビティを設計試作し、クライストロン型（6 GHz）とマグネトロン型（2.45GHz）のマイクロ波加熱制御システムを開発した。また、加熱条件設定に重要なセラミックスの高温における誘電損率 $\epsilon''$ をマイクロ波で直接加熱しながら測定する方法を考案し、1800°Cまでの値の測定が可能となり新しい知見を得ている。この測定結果を基に、新開発の装置を用いて ZnO バリスタ、アクチュエータ用 PZT、アルミナのコンデンサ内蔵多層基板の焼結を行った。その結果、バリスタでは焼結時間5分の短時間加熱にもかかわらず、電気炉加熱と同等の焼結体密度で電圧非直線係数 $\alpha$ 値の大きい電気特性の優れた結果が得られている。PZT セラミックスは強度 15%、圧電特性 30%改善された直径 16mm  $\phi$  の均質な焼結体が得られた。アルミナ多層基板では内蔵コンデンサの誘電率約 6000 で変形がなく焼結可能である。

また、アルミナの接合では3分間の加熱で母材と同程度の 400MPa 以上の接合強度が得られ、直接接合が困難な窒化ケイ素も誘電損率の大きな中間材を採用することで母材強度の約 70%390MPa 以上の強度が得られている。これらのマイクロ波加熱による焼結・接合特性はセラミックス粒界層の誘電損失が大きいいため選択的に加熱され、粒界近傍の先に熔融された液相がマイクロ波加熱を更に加速し、焼結あるいは接合反応を促進するために機械的、電気的特性に優れたセラミックスの焼結、接合が短時間で可能であると考察している。

これを要するに、著者はセラミックスのマイクロ波加熱装置と加熱機構について新知見を得たものであり、マイクロ波電力の応用、セラミックス材料工学に貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。