

炭化珪素セラミックスの高周波誘電特性

竹内 保直¹、影山 達也
高エネルギー加速器研究機構
〒305-0801 茨城県つくば市大穂 1-1

概要

炭化珪素セラミックスは、その誘電特性を利用して、ダミーロードや、加速空洞の高次モード減衰器等に幅広く応用されている。本論文では、KEKB 加速器の ARES 空洞用高次モード減衰器に採用された 2 種類の炭化珪素セラミックスの高周波誘電特性を報告する。さらに、その特性を説明するために、低抵抗の結晶粒内と高抵抗の結晶粒界を持つ誘電体モデルを提示して、議論を展開する。

1. はじめに

炭化珪素セラミックスには、マイクロ波領域で比較的大きな誘電率及び誘電正接の値を有するものが存在する。また、緻密で、真空中でのガス放出率が小さく、熱伝導に優れる等の性質を合わせ持つため、真空中で使用されるダミーロードや、加速空洞の高次モード (HOM) 減衰器等に幅広く応用されている^[1]。

KEKB 加速器の ARES 空洞では、砲弾形炭化珪素セラミックス (外径 55mm、有効長 400mm) を使用した矩形導波管型 HOM 減衰器と、タイル状の炭化珪素セラミックス (48mm × 48mm、厚さ 9 ~ 20mm) を使用した溝付ビームパイプ型 HOM 減衰器が組み込まれている^[2]。砲弾型炭化珪素セラミックス (砲弾形 SiC)、及び、タイル状の炭化珪素セラミックス (SiC タイル) は、それぞれの仕様に合わせて、異なった特性を持つ 2 種類の常圧焼成型 SiC セラミックスの製品が採用された。ARES 空洞 36 台に、砲弾形 SiC 288 本、SiC タイル 1152 個が使用されている。

これら 2 つの型の HOM 減衰器の場合、電波吸収特性は、伝搬モードである表面波の特性に大きく依存することが分かっている^[3]。例えば、砲弾形 SiC の場合、伝搬モードである HE₁₁ モードの性質から、誘電率の実数部 ϵ' と SiC の直径で決まる特定の周波数 (40mm、 $\epsilon' = 22$ では、約 0.95GHz) より低い周波数では、大部分の電磁波が SiC 表面の外側を伝搬するため、吸収特性が大きく低下する。このようなことから、誘電率の実数部 ϵ' は、電波吸収に直接影響する虚数部 ϵ'' と共に、マイクロ波吸収体を設計する上で極めて重要なパラメータである。

ARES 空洞の場合のように、大量の SiC を使用した HOM 減衰器が設計通りに機能するためには、SiC セラミックスの高周波誘電特性がばらつかないこと

が必要である。そこで、SiC セラミックスの量産においては、焼結ロットごとに誘電率測定用サンプルを作成して測定し、誘電率の再現性を確認した。

このような過程で、多くのサンプルの誘電率のデータが得られ、使用した 2 種類の SiC セラミックスの特徴が見いだされた (今後、砲弾形 SiC と SiC タイルの 2 種類の SiC セラミックスをそれぞれ SiC-A、SiC-B と略す)。

これらの SiC セラミックスの電気的な性質のメカニズムを考察する上で、構造がよく分かっている BeO (酸化ベリリウム) 添加のホットプレス SiC セラミックス (BeO 添加 SiC と略す) の特性を参考にした^[4]。BeO 添加 SiC は、 10^{13} cm 以上の高い抵抗率を持ち、その構造は、比較的電気抵抗が小さい半導体からなる結晶粒内 (10 μm 以下と見積もられている) と、粒界近傍のキャリア空乏層からなる抵抗の大きい部分から構成されていることが確認されている^[5]。このような構造から、誘電率特性は、2 層コンデンサモデルの等価回路で表した解析が行われている^{[6], [7]}。また、類似の電気的な構造を持ち、同じ等価回路で表される BL (Boundary Layer) コンデンサの解析方法も参考にした^[8]。

2. 誘電率の測定と結果

誘電率は、HP85070M 誘電体測定システムと HP8510C ネットワークアナライザを使用して、200MHz~10GHz の周波数で 0.1GHz ステップで測定した。また、測定前後でサンプルの温度も測定した。誘電率は、 $\epsilon = \epsilon' - j\epsilon''$ 、比誘電率は、 $\epsilon_r = \epsilon' / \epsilon_0 - j\epsilon'' / \epsilon_0$ とする。HOM 減衰器の目的周波数から、主として 1GHz の比誘電率の値を標準にして誘電率を比較した。図 1 に SiC-A と SiC-B の代表的な比誘電率の周波数特性を示す。

SiC-A の製造では、焼結ロット毎に 50mm × 50mm の円柱形サンプルを同時に焼結して測定した。円柱端面を約 1mm 程度研削して、測定面とした。砲弾型 SiC 288 本分の製造で、45 個のサンプルを測定した。その結果、42 個のサンプルで $\epsilon_r(1\text{GHz}) = 17 \sim 25$ 、残り 3 個のサンプルで $\epsilon_r(1\text{GHz}) = 26 \sim 30$ であった。43 個のサンプルで $\epsilon_r(1\text{GHz}) = 3 \sim 7$ 、残り 2 個のサンプルで $\epsilon_r(1\text{GHz}) = 8 \sim 9$ であった。温度特性は、量産以前のサンプルのデータであるが、30 ~ 60 °C に温度を変化させたとき、1GHz での ϵ_r の値は、14.4 から 15.1 変化し、 ϵ'' の値は、4.4 から 6.8 に変化した。

¹ E-mail: ytake@post.kek.jp

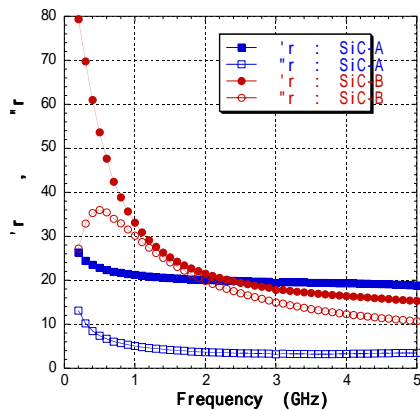


図1：SiC-A、SiC-Bの比誘電率の周波数特性

SiC-Bでは、焼地面から1mm~11mmの面で誘電率を測定したところ、3mm以上の深さで誘電率の値がほぼ一定になった。この結果から、焼結ロット毎に56mm×56mm×24tのサンプルを同時に焼結し、中心付近の誘電率を測定できるように、約12tまで研削して測定面とした。さらに、原料ロットによって誘電率が異なることがわかったため、原料をあらかじめ多めに確保して、少ない原料ロット（実際には2つ）で量産を行った。実際には、896個分の焼結が一つの原料ロットで製造され（SiC-B1と表す）、残り256個分がもう一つの原料ロットで製造された（SiC-B2と表す）。SiC-B1は5回の焼結ロットで製造され、焼結ロット毎の誘電率のばらつきは、 $\epsilon_r(1\text{GHz})=25.5\sim 30$ であった。SiC-B2は2回の焼結ロットで製造され、焼結ロット毎の誘電率のばらつきは、 $\epsilon_r(1\text{GHz})=19\sim 21$ であった。温度特性は、量産以前のサンプルのデータであるが、28.5~80に温度を変化させたとき、1GHzでの ϵ_r の値は、21.3から59.8変化し、 τ_r の値は、19.5から46.8に変化した。SiC-Aと比較すると変化量は大きい。抵抗

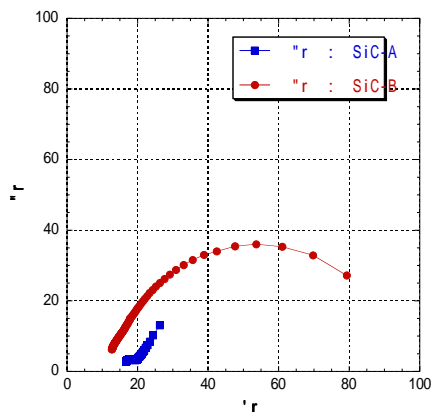


図2：SiC-A、SiC-BのCole-Coleプロット

率は、製造会社で測定したサンプルでは、約 2×10^5 cmであった。

外部から与えられた電場に対して、誘起された分極が一次遅れで応答するような誘電特性をDebye型の分散特性といい、次式で定義される^[9]。

$$\epsilon_r(\omega) = \epsilon_r + (\epsilon_{r0} - \epsilon_r) / (1 + j\omega\tau_r) \quad (2-1)$$
X軸とY軸にとの値をとってグラフに表したものがCole-Coleプロット^[10]と呼ばれる。(2-1)式の場合、その軌跡は半円になる。これは、Cole-Coleの半円と呼ばれて、Debye型の分散特性を示す指標となっている。

図2は、SiC-AとSiC-BのCole-Coleプロットである。SiC-Bの誘電率の軌跡は、ほぼ半円に近い形状であり、Debye型の分散特性を示している。この結果については、文献^[11]においてすでに確認されている。

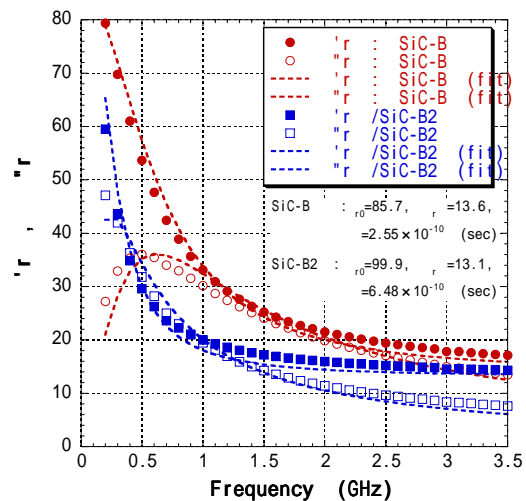


図3：原料ロットの異なるSiC-Bの比誘電率

図3に原料ロットの異なるSiC-Bの比誘電率の周波数特性を示す。破線は(2-1)式でフィッティングしたものである。原料ロットの違いによる1GHz付近の誘電率の変化は、主として緩和時間 τ_r の変化に対応していることがわかる。

3. 考察

SiC-Bは、約 2×10^5 cmと比較的大きい抵抗率をもち、200MHz付近では、約80の大きな ϵ_r を示している。さらに、Debyeの誘電特性によく一致する。このような性質は、BeO添加SiCで確認された、「低い抵抗を持つ結晶粒内と、高い抵抗を持った結晶粒界」という構造を持つと仮定すると、他の性質とともにうまく説明できる。SiC-BはB(ホウ素)系焼結助材を使用しているが、文献^[12]によると、SiC焼結体の抵抗率は結晶粒中で電気的に活性なキャリア濃度に依存し、Be(ベリリウム)系添加のSiCと比較して、B(ホウ素)系焼結助材を使用したSiCの抵抗率は小さくなる。このことから、SiC-Bの粒内の抵抗率は、BeO添加SiCの粒内抵抗率(10 cm以下)より小さいことが予想される。それにも関わらずSiC-B(焼結体)の抵抗率が比較的大きいことから、BeO添加SiCと同じような構造を持つことが考えられる。

図4にBeO添加SiCの結晶粒内と粒界部分を表すモデルと、2層モデルの等価回路を示す^[7]。ここで、 C_g 、 R_g は、結晶粒内の容量及び抵抗を表し、 C_d 、 R_d はキャリア空乏層からなる粒界部分の容量および抵抗を表す。この等価回路のアドミタンスから等価的な誘電率を計算すると、(3-1)、(3-2)式のように表すことができる。

$$\epsilon_r = \epsilon_0 + (\epsilon_{\infty} - \epsilon_0) / (1 + \omega^2 \tau^2) \quad (3-1)$$

$$\epsilon_r = \epsilon_0 + (\epsilon_{\infty} - \epsilon_0) / (1 + \omega^2 \tau^2) + \epsilon_0 / \omega^2 \tau^2 \quad (3-2)$$

ここで、 $\tau = R_g R_d (C_g + C_d) / (R_g + R_d)$ とする。 τ は R_g と R_d を直列に接続したときの電気伝導度に対応する。 $R_g \ll R_d$ 、 $C_g \ll C_d$ の場合は、 $\tau = R_g C_d$ となり、 R_g と C_d で決まる時定数で表される。

SiC-Bの場合にあてはめて、抵抗率から τ を求め、(3-2)式第2項を計算すると、200MHz以上の周波数では0.05より小となり、無視できる。(3-1)式と、(3-2)式から第2項を除いた式は、(2-1)式に示すDebyeの式にほかならない。

また、このような「低い抵抗を持つ結晶粒内と、高い抵抗を持った結晶粒界」の構造は、BLコンデンサと同じ電気的な構造であり、見かけ上高い誘電率を示す^[8]。低い抵抗の粒内に注目すれば、導体球を配列した人工誘電体という見方も可能である。

原料ロットによる誘電特性の違いは、Debyeの特性の緩和時間が異なることを示しているが、結晶粒内のキャリア濃度の変化に伴う粒内抵抗率の変化が原因の一つと考えられる。尚、ロット毎の原料の詳細な分析はすでに製造会社で実施されている^[13]。

このように、SiC-Bの持つ特性は、「低い抵抗を持つ結晶粒内と、高い抵抗を持った結晶粒界」という構造で説明できる。

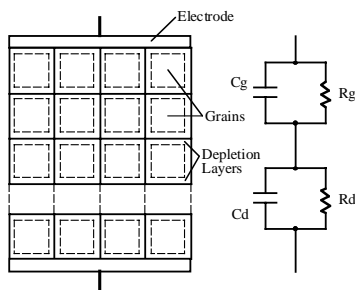


図4：BeO添加SiCの構造モデルと等価回路

SiC-Aについては、200MHz~10GHzの周波数ではDebye型の分散特性は現れなかったが、抵抗率が比較的大きく、200MHz付近の誘電率が大きい等、SiC-Bと共通する性質がある。SiC-Bで考察した結晶粒内と粒界部分の構造と同じ構造を持ち、SiC-Bに比べて大きな緩和時間を持っているというモデルも可能ではないかと考えられる。

これらの考察で述べたことがらについて、今後、さらに深く検証を進めたい。

4. 結論

KEKB加速器のARES空洞用HOM減衰器に採用された2種類の炭化珪素セラミックスの高周波誘電特性の具体例を示した。このうち1種類のSiCは、Debye型の分散特性を示した。このSiCの誘電特性はBeO添加のSiCセラミックスで確認された、「低い抵抗を持つ結晶粒内と、高い抵抗を持った結晶粒界」という構造を持つと仮定すると、他の性質とともにうまく説明できることがわかった。このような構造についてさらに検証を進めたい。

5. 謝辞

日立化成工業(株)の岩井明仁氏、東芝セラミックス(株)の福岡聖一氏には、SiCの誘電率の安定化と製造でお世話になりました。前田邦裕氏には、BeO添加のSiCに関する貴重な資料を提供していただき、また、有益な助言をいただきました。小林鉄也氏にはフィッティングプログラムを提供していただきました。深く感謝致します。

参考文献

- [1] H.Matsumoto, et al., "Application of SiC Ceramics for Microwave Absorber", Proceedings of the 9th Linear Accelerator Meeting in Japan, Kyoto, 1984, pp. 124-126.
- [2] T.Kagayama, et al., "HOM-Damped Structure of the ARES Cavity", Proceedings of the 13th Symposium on Accelerator Science and Technology, Osaka, Japan, Oct., 2001, pp.226-228.
- [3] Y.Takeuchi, et al., "The SiC Absorber for the KEKB ARES Cavity", Proceedings of the 15th European Particle Accelerator Conference, Spain, June, 1996.
- [4] 宗宮 重行, 他 編, 「新素材シリーズ 炭化珪素セラミックス 基礎・応用・製品紹介」pp.327~343, 中村 浩介, 他, 「ホットプレス炭化珪素セラミックス」内田老鶴園.
- [5] K.Maeda, et al., "Grain-boundary Effect in Highly Resistive SiC Ceramics with High Thermal Conductivity", pp. 260-268 in Advances in Ceramics, Vol. 7, Additives and Interfaces in Electronic Ceramics, ed. M.F.Yan and A.H.Heuer, American Ceramics Society, Columbus, OH., 1984.
- [6] K.Maeda, et al., "Dielectric Behavior of SiC Ceramics with BeO Addition", Extended Abstract of Electronics Div. 21-E-85, Annual Meeting, Am. Ceram. Soc., 1985.
- [7] 前田 邦裕, 私信.
- [8] R.M.Glaister, et al., "Barrier-Layer Dielectrics", Proc. I. E.E., 109, Part B, Suppl. No. 22, Paper No. 3634, 1961, pp. 423-431.
- [9] 中島 達二, 「誘電体現象論 第2章」, 電気学会.
- [10] K.S.Cole and R.H.Cole, "Dispersion and Absorption in Dielectric", Journal of Chemical Physics, Vol.9, April, 1941, pp. 341-351.
- [11] T.Kobayashi, "Frequency Dependent Effects of Lossy Dielectric and Magnetic Materials on Beam-Induced Wakefields", Ph. D. thesis, Institute of Applied Physics, University of Tsukuba, March, 1999, pp. 66-70.
- [12] 竹田 幸男, 他, 「SiC焼結体の熱伝導率及び電気抵抗に及ぼす焼結助材の影響」, 窯業協会誌, 95 [9], 1987, pp.860-863.
- [13] 福岡 聖一, 東芝セラミックス(株), 私信.