

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第3725686号
(P3725686)

(45) 発行日 平成17年12月14日(2005.12.14)

(24) 登録日 平成17年9月30日(2005.9.30)

(51) Int.Cl.⁷

C O 1 B 21/072

F I

C O 1 B 21/072

B

請求項の数 1 (全 6 頁)

(21) 出願番号	特願平9-323845	(73) 特許権者	000003296
(22) 出願日	平成9年11月10日(1997.11.10)		電気化学工業株式会社
(65) 公開番号	特開平11-139814		東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号
(43) 公開日	平成11年5月25日(1999.5.25)		日本橋三井タワー
審査請求日	平成9年11月10日(1997.11.10)	(74) 代理人	100102004
審査番号	不服2001-21473(P2001-21473/J1)		弁理士 須藤 政彦
審査請求日	平成13年11月30日(2001.11.30)	(73) 特許権者	301021533
			独立行政法人産業技術総合研究所
			東京都千代田区霞が関1-3-1
		(74) 復代理人	100102004
			弁理士 須藤 政彦
		(72) 発明者	小畑 正明
			東京都港区虎ノ門三丁目7番10号 ファ
			インセラミックス技術研究組合内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 窒化アルミニウムウイスカーの製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

金属アルミニウム粉末及び/又はその成形体を5.0 Torr以下の真空雰囲気中で540～650℃まで昇温し、その温度を保持した状態で酸素フィルターを通して酸素濃度を0.1ppm以下としたN₂ガスを用いてN₂加圧(10～100kg/cm²)雰囲気とし、10～60分保持することを特徴とする窒化アルミニウムウイスカーの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、優れた特性を有する窒化アルミニウムウイスカーを簡便かつ低コストで製造することが可能な新しい窒化アルミニウムウイスカーの製造方法に関するものであり、さらに詳しくは、半導体電子回路で使用される樹脂封止材に充填される高熱伝導フィラー等の材料として好適に使用される窒化アルミニウムウイスカーの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

従来、窒化アルミニウムウイスカーの製造方法としては、昇華再結晶法が広く知られている(例えば、電気化学 vol.10, P743(1972))。また、AlCl₃等の気相種を用いた気相合成法及び表面微酸化Al粉による直接窒化によるウイスカーの製造も報告されている(日本セラミックス協会学術論文誌 vol.97, No.8, P864

(1989))。

【0003】

しかしながら、昇華再結晶法では一旦昇華させるため操作温度が1800～2000 と非常に高くなり、工業的ではない。また気相合成法も量産には不向きであり、また、表面微酸化Al粉の使用も、原料粉に特殊な前処理が必要であることから、コストの点に問題がある。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】

このような状況の中で、上記従来技術に鑑みて、従来の昇華再結晶法、気相合成法及び表面微酸化Al粉による直接窒化における上記のような問題点がなく、しかも、簡便かつ低コストで窒化アルミニウムウイスカーを製造することができる新しい方法を開発することを目的として鋭意研究を積み重ねた結果、金属アルミニウム粉末を1.0 Torr以下の真空雰囲気中で540～650 まで昇温し、その温度を維持した状態でN₂加圧雰囲気として一定時間保持して焼成することにより初期の目的を達成しうることを見出し、本発明を完成するに至った。

10

【0005】

本発明によれば、上記のような問題点無く、窒化アルミニウムウイスカーを簡便かつ経済的に、ごく一般的な市販の金属アルミニウム粉末から直接製造することができる。

【0006】

すなわち、本発明は、窒化アルミニウムウイスカーを簡便かつ低コストで製造する方法を提供することを目的とするものである。

20

【0007】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するための本発明は、(1)金属アルミニウム粉末及び/又はその成形体を1.0 Torr以下の真空雰囲気中で540～650 まで昇温し、その温度を維持した状態でN₂加圧(10～100 kg/cm²)雰囲気として10～60分保持する方法、に係るものである。

また、本発明は、(2)金属アルミニウム粉末及び/又はその成形体を5.0 Torr以下の真空雰囲気中で540～650 まで昇温し、その温度を維持した状態で酸素フィルターを通して酸素濃度を0.1 ppm以下としたN₂ガスを用いてN₂加圧(10～100 kg/cm²)雰囲気とし、10～60分保持する方法、に係るものである。

30

尚、本明細書では、上記(1)の方法を参考例として記載する。

【0008】

【発明の実施の形態】

次に、本発明についてさらに詳細に説明する。

本発明の製造方法は、上記のように、金属アルミニウム粉末及び/又はその成形体を1.0 Torr以下の真空雰囲気中で所定温度(540～650)まで昇温し、その後、N₂加圧(10～100 kg/cm²)雰囲気下で所定時間保持し、窒化アルミニウムウイスカーを製造する方法である。また、金属アルミニウム粉末及び/又はその成形体を5.0 Torr以下の真空雰囲気中で所定温度(540～650)まで昇温し、その後、酸素濃度が0.1 ppm以下であるN₂ガスを用い、N₂加圧(10～100 kg/cm²)雰囲気下で所定時間保持し、窒化アルミニウムウイスカーを製造する方法である。

40

本発明の製造方法は、金属アルミニウム粉末から直接窒化アルミニウムウイスカーを得るものであり、従来の昇華再結晶法、気相合成法とは異なる新しい方法であり、生産効率及び経済性に優れている。

【0009】

本発明にかかる製造工程について具体的に説明すると、原料として金属アルミニウム粉末を使用する。この場合、通常市販されている粒径が数～数十μmのアトマイズド粉、等がそのまま使用でき、特殊な粉末を用いたり、前処理を施す必要はない。また、金属アルミニウム粉末をプレス成形して、薄板状のアルミニウム成形体の形態をとるものも使用する

50

ことができる。

【0010】

尚、成形方法はプレス成形、シート成形、押し出し成形等特に制限するものではなく、適宜の方法を用いればよい。

次に、この粉末もしくは成形体を 1.0 Torr 以下の真空雰囲気中で $540 \sim 650$ まで昇温する。本発明において $540 \sim 650$ まで昇温するとは、この範囲内の温度に昇温することを意味する。この温度を維持した状態で N_2 加圧 ($10 \sim 100 \text{ kg/cm}^2$) 雰囲気として保持すると、 $10 \sim 60$ 分の間に窒化反応が急激に進行し、ウィスカーが生成する。この窒化反応速度を増大させることで、ウィスカーの生成は促進される。この場合、昇温時の圧力が 1.0 Torr より高いと、昇温中に Al 粉末の表面に生成する酸化皮膜の影響で窒化反応が抑制され、ウィスカーは生成しない。ただし、酸素濃度が 0.1 ppm 以下の N_2 ガスを用いた N_2 加圧雰囲気中では、窒化反応が促進されるので、その場合は昇温時の圧力が 5.0 Torr 以下であればウィスカーを生成させることができる。また、保持温度が 540 以下だと窒化反応の駆動力が小さくなり、やはりウィスカーが生成しない。また 650 以上ではアルミニウムの溶融が起こり窒化が進まなくなる。さらに N_2 圧力、反応時間は成形体の厚さや密度により調整する必要があるが、 N_2 圧力が低いと反応が進まず、 N_2 圧力が高いと加圧初期の段階で反応が急激に進みすぎ、成形体表面部に緻密な窒化層ができて成形体内部までは窒化が進まなくなる。従って、昇温時の真空度、反応時の保持温度、 N_2 圧力、反応時間は、上記条件を採用することが必要とされる。ウィスカー生成手段としては、例えば、真空、及び加圧雰囲気下での加熱が可能な、抵抗加熱方式炉、あるいは高周波加熱方式炉等による方法が好適なものとして例示される。

本発明は、上記構成を採用することにより、窒化アルミニウムウィスカーを得ることを可能とするものであり、上記条件以外では同様の効果を得ることができない。

【0011】

本発明によって得られる窒化アルミニウムウィスカーは、その組成を XRD (理学電機社製、RAD-RB型) にて調べた結果、 AlN であり、SEM 観察からそのアスペクト比は少なくとも 10 以上であった。これらの結果から、得られた窒化アルミニウムウィスカーは、例えば、半導体電子回路で使用される樹脂封止材に充填される高熱伝導フィラー材料として好適に使用することができる。

【0012】

【実施例】

次に、実施例に基づいて本発明を具体的に説明するが、本発明は以下の実施例によって何ら限定されるものではない。

参考例 1

金属アルミニウム粉末 (東洋アルミニウム社製 AH-2505) を 300 kg/cm^2 でプレス成形し、厚さ 0.8 mm のアルミニウム成形体を作成した。この成形体を 1.0 Torr の真空雰囲気下 $10 / \text{min}$ で 580 まで昇温し、続いて 99.999% 高純度 N_2 ガスを用いて N_2 加圧 70 kg/cm^2 雰囲気とし、 30 分保持した。

得られた反応生成物を SEM で観察したところ、図 1 に示すようなウィスカーが確認された。この反応生成物の結晶構造を XRD で調べたところ AlN であった。生成物の特性としては、 (002) 面への著しい配向性を有し、短径 $0.05 \mu\text{m}$ から $1 \mu\text{m}$ 、アスペクト比 $5 \sim 500$ の単結晶であった。

尚、 1.0 Torr 以下の真空雰囲気下で昇温し、所定の温度 ($540 \sim 650$) 条件下で同様の方法で金属アルミニウム成形体を反応させたところ、ほぼ同様の結果が得られた。

【0013】

比較例 1

昇温を圧力 5.0 Torr の真空雰囲気下で行った以外は参考例 1 と同様の方法で金属アルミニウム成形体を反応させたところ、得られた反応生成物からはウィスカーはみられな

10

20

30

40

50

かった。

【0014】

比較例2

保持温度を540とした以外は参考例1と同様の方法で金属アルミニウム成形体を反応させたところ、得られた反応生成物からはウィスカーはみられなかった。

【0015】

比較例3

保持温度を650とした以外は参考例1と同様の方法で金属アルミニウム成形体を反応させたところ、得られた反応生成物からはウィスカーはみられなかった。

【0016】

実施例1

金属アルミニウム粉末（東洋アルミニウム社製AH-2505）を 300 kg/cm^2 でプレス成形し、厚さ0.8mmのアルミニウム成形体を作成した。この成形体を圧力5.0 Torrの真空雰囲気下10/minで580まで昇温し、酸素フィルターを通して酸素濃度を0.1 ppmとした N_2 ガスを用いて N_2 加圧雰囲気とし、30分保持した。

得られた反応生成物をSEMで観察したところ、図2に示すようなウィスカーが確認された。この反応生成物の結晶構造をXRDで調べたところAlNであった。生成物の特性としては、(002)面への著しい配向性を有し、短径0.05 μm から1 μm 、アスペクト比5から500の単結晶であった。

尚、5.0 Torr以下の真空雰囲気下で昇温し、酸素濃度0.1 ppmとした N_2 ガスを用いて N_2 加圧雰囲気とし、所定の温度(540～650)条件下で同様の方法で金属アルミニウム成形体を反応させたところ、ほぼ同様の結果が得られた。

【0017】

比較例4

昇温を圧力7.0 Torrの真空雰囲気下で行った以外は実施例1と同様の方法で金属アルミニウム成形体を反応させたところ、得られた反応生成物にウィスカーは見られなかった。

【0018】

【発明の効果】

以上詳述したように、本発明は、金属アルミニウム粉末及び/又はその成形体を圧力1.0 Torr以下の真空雰囲気下で540～650まで昇温し、その温度を維持した状態で N_2 加圧雰囲気として10～60分保持し、反応させてウィスカーを生成することを特徴とする、及び金属アルミニウム粉末を圧力5.0 Torr以下の真空雰囲気下で540～650まで昇温して、その温度を維持した状態で酸素濃度0.1 ppm以下の N_2 ガスを用いて N_2 加圧雰囲気として10～60分保持し、反応させてウィスカーを生成することを特徴とする、金属アルミニウム粉末から直接窒化による窒化アルミニウムウィスカーの製造に係るものであり、本発明によれば、次のような効果が奏される。

(1)従来の昇華再結晶法、気相合成法での問題点がなく、窒化アルミニウムウィスカーを簡便かつ低コストで製造することができる。

(2)半導体電子回路で使用される樹脂封止材に充填される高熱伝導フィラー等の材料として有用な窒化アルミニウムウィスカーを製造することができる。

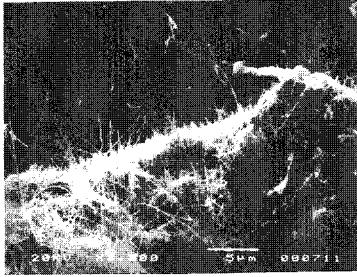
【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の実施例1で得られた窒化アルミニウムウィスカーの写真(SEM)を示す。

【図2】本発明の実施例2で得られた窒化アルミニウムウィスカーの写真(SEM)を示す。

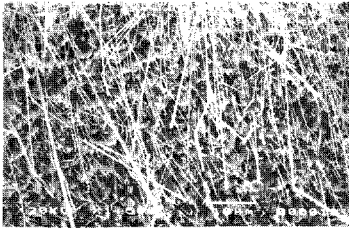
【図 1】

菌苗代用芽



【図 2】

菌苗代用芽



フロントページの続き

- (72)発明者 岡田 拓也
東京都港区虎ノ門三丁目7番10号 ファインセラミックス技術研究組合内
- (72)発明者 鳥山 素弘
愛知県春日井市中央台6丁目3番地の1
- (72)発明者 平尾 喜代司
愛知県名古屋市北区名城2丁目2番地6-36号
- (72)発明者 神崎 修三
愛知県春日井市藤山台8丁目12番地の4

合議体

審判長 松本 貢
審判官 板橋 一隆
審判官 野田 直人

- (56)参考文献 特開平9-183662号公報
特開平9-12308号公報

- (58)調査した分野(Int.Cl.⁷, D B名)
C30B1/00-35/00
C01B21/072