



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本

(11)證書號數：TW I670251 B

(45)公告日：中華民國 108 (2019) 年 09 月 01 日

(21)申請案號：104138425

(22)申請日：中華民國 104 (2015) 年 11 月 20 日

(51)Int. Cl. : C04B35/645 (2006.01)

C04B35/115 (2006.01)

(30)優先權：2014/11/28 日本

2014-241685

2015/05/13 日本

2015-098524

(71)申請人：日商日本碍子股份有限公司 (日本) NGK INSULATORS, LTD. (JP)
日本

(72)發明人：松島潔 (JP)；渡邊守道 (JP)；佐藤圭 (JP)；七瀨努 (JP)

(74)代理人：洪澄文

(56)參考文獻：

JP 51-30209A

JP 1-286956A

JP 2004-359495A

審查人員：馮俊璋

申請專利範圍項數：5 項 圖式數：5 共 34 頁

(54)名稱

透明氧化鋁燒結體的製法

(57)摘要

本發明之透明氧化鋁的製法包括以下步驟：(a)製備含有縱橫比(aspect ratio)為 3 以上之板狀氧化鋁粉末的氧化鋁原料粉末，使該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1 成為 5ppm 以上，並將前述含有氧化鋁原料粉末之成形用原料進行成形為成形體；(b)將前述成形體於 F 會揮發之溫度進行加壓煅燒以獲得透明氧化鋁燒結體。

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

透明氧化鋁燒結體的製法

【技術領域】

【0001】本發明係關於透明氧化鋁燒結體的製法。

【先前技術】

【0002】已知高密度、高純度的多結晶氧化鋁有透光性，能使用在高壓鈉燈用發光管、高耐熱窗材、半導體裝置用構件、光學零件用基板等。另一方面，氧化鋁在結晶結構上帶有光學異向性，燒結體中之氧化鋁粒子之結晶方位若為無規，則結晶粒子間之折射率不同，光會散射且透射率減少。所以，有高直線透射率之透明氧化鋁中之結晶粒子宜單軸配向。例如：非專利文獻 1 揭示透明氧化鋁的製法。具體而言，係藉由利用高磁場而製造高純度且高配向、高密度之透明氧化鋁。

【0003】又，製造氧化鋁燒結體時，為了提高燒結性，已知有在氧化鋁原料粉末添加氟化物並煅燒之方法。例如：專利文獻 1、2 中，係混合氧化鋁粉末與氟化物粉末，成形後於 1300°C 以下之低溫進行煅燒而獲得緻密的氧化鋁燒結體。專利文獻 3，係於氧化鋁原料粉末添加氟化合物，進行粉碎混合成平均粒徑 2 μm 以下並成形，在大氣中於 1600~1800°C 進行煅燒，獲得耐蝕性、耐衝擊抵抗性及耐久性優異之氧化鋁燒結體。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0004】

[專利文獻 1]日本專利第 5396176 號

[專利文獻 2]日本專利第 5501040 號

[專利文獻 3]日本專利第 4357584 號

[非專利文獻]

【0005】

[非專利文獻 1]Ceramics International 38 (2012)
5557-5561

【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0006】 但是非專利文獻 1 記載之製法雖可獲得透明氧化鋁，但係因利用高磁場，製造成本增高，大型化困難，不適合大量生產。

【0007】 專利文獻 1、2 記載之製法中，氧化鋁粒子未考慮配向，故係無規排列。所以，據認為獲得之氧化鋁燒結體之透明性低。

【0008】 依專利文獻 3 記載之製法，係獲得結晶幾乎未配向，氧化鋁粒子無規分布之氧化鋁燒結體。所以據認為此氧化鋁燒結體之透明性低。如此，至今為止尚不知有能低廉且輕易地製造透明氧化鋁燒結體之方法。

【0009】 本發明係為了解決如此的課題而生，主要目的為低廉且輕易地製造透明氧化鋁燒結體。

[解決課題之方式]

【0010】 本發明之第 1 透明氧化鋁燒結體的製法包括以下

度高、緻密且為高純度，有高透明性。又，此製法無須如以往利用高磁場，能壓抑透明氧化鋁燒結體之製造成本為低。又，能輕易地製造透明氧化鋁燒結體，適合大量生產。

【圖式簡單說明】

【0015】

第 1 圖顯示板狀氧化鋁粒子之示意圖，(a)為俯視圖，(b)為前視圖。

第 2 圖顯示以 TGG 法製作氧化鋁燒結體之步驟之示意圖。

第 3 圖顯示氧化鋁燒結體之樣本之外觀照片。

第 4 圖顯示氧化鋁燒結體之研磨剖面之高倍率照片。

第 5 圖顯示將高倍率照片排列成連續照片的狀態之說明圖。

【實施方式】

【0016】本發明之透明氧化鋁燒結體的製法包括以下步驟：(a)製備含有縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末的氧化鋁原料粉末，使該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1 成為 5ppm 以上(或質量比 R2 為 15ppm 以上)，並將前述含有氧化鋁原料粉末之成形用原料進行成形為成形體；(b)將前述成形體於 1700°C 以上進行加壓煅燒以獲得透明氧化鋁燒結體。

【0017】步驟(a)使用板狀氧化鋁粉末。此板狀氧化鋁粉末的縱橫比為 3 以上。縱橫比為平均粒徑/平均厚度。在此，平均粒徑為粒子板面之長軸長之平均值，平均厚度為粒子之短軸長之平均值。該等值係以掃描型電子顯微鏡(SEM)觀察板狀氧化鋁粉末中之任意 100 個粒子而決定。第 1 圖係板狀氧化鋁粒⁵

子之示意圖，(a)為俯視圖，(b)為前視圖。板狀氧化鋁粒子於俯視時的形狀約為六角形狀，其粒徑如第 1 圖(a)所示，厚度如第 1 圖(b)所示。藉由使用包括縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末之氧化鋁原料粉末，最終獲得之氧化鋁燒結體之配向度提高。考量高配向化之觀點，板狀氧化鋁粉末之平均粒徑宜大較理想， $1.5\mu\text{m}$ 以上更理想， $5\mu\text{m}$ 以上更佳， $10\mu\text{m}$ 以上又更佳， $15\mu\text{m}$ 以上尤佳。惟考量緻密化之觀點，宜小為佳， $30\mu\text{m}$ 以下為較佳。如此，為了兼顧高配向與緻密化，平均粒徑為 $1.5\mu\text{m}\sim 20\mu\text{m}$ 較佳。

【0018】板狀氧化鋁粉末使用高純度品較佳。板狀氧化鋁粉末之純度宜為 99 質量%以上，99.9 質量%以上更佳，99.99 質量%以上更理想。惟也可含有煅燒中會揮發消失、或會揮發減量之雜質，例如也可以含有氟、硫等元素。高純度之板狀氧化鋁粉末例如可依以下程序製造。亦即，首先混合選自由三水鋁石(gibbsite)、軟水鋁石及 γ -氧化鋁構成之群組中之至少 1 種過渡氧化鋁粉末與氟化鋁粉末，使氟化鋁之含有率成為 0.25 質量%以上，獲得 F、H、C、S 以外之雜質元素之質量比例之合計為 1000ppm 以下之混合粉末。在此混合粉末中宜添加作為種晶之 α -氧化鋁粒子較佳。然後，準備使混合粉末所含之氟化鋁之質量除以容器體積而得之值(= 氟化鋁質量/容器體積)為 $1\times 10^{-4}\text{g}/\text{cm}^3$ 以上之容器。容器中，Al、O、Mg、N、Re(Re：稀土類元素)以外之元素之合計為 1 質量%以下較佳。容器材質宜為純度 99.5 質量%以上之 Al_2O_3 較佳。然後，將混合粉末放入容器並加蓋，或將混合粉末裝入容器並密閉，或將混合粉末

氟多時，晶粒成長容易過度，故添加氧化鎂的意義高。氧化鋁原料粉末添加氧化鎂粉末時，宜對於氧化鋁原料粉末 100 質量份添加氧化鎂粉末 100~5000 質量 ppm 較佳。又，氧化鎂添加形態，可添加如在煅燒等過程會變化為氧化鎂之碳酸鹽、硫酸鹽、硝酸鹽、氫氧化物等鎂化合物。如此的鎂化合物的情形，添加量只要是按氧化鎂換算為 100~5000 質量 ppm 即可，可為粉末也可為液體。

【0022】步驟(a)中，將成形用原料成形為成形體。成型方法無特殊限定，例如可利用捲帶成形(tape mold)、擠壓成形、鑄塑成形、射出成形、單軸壓製成形等製成成形體。

【0023】於步驟(b)，將成形體於氟會揮發之溫度進行加壓煅燒，以獲得透明氧化鋁燒結體。氟係作為燒結助劑，但若於 1700℃ 以上煅燒，在燒結體的表面不會殘留氟。加壓煅燒，例如有熱壓製煅燒、HIP 煅燒、電漿放電煅燒(SPS)等。熱壓製煅燒時之煅燒氣體環境無特殊限定，宜為氮氣、氬氣等鈍性氣體、或真空氣體環境為較佳。真空氣體環境之壓力宜低為佳，1Pa 以下較理想，0.1Pa 以下更佳，0.01Pa 以下尤佳，無下限。又，加壓煅燒前也可進行常壓預備煅燒。常壓預備煅燒時之氣體環境無特殊限定，宜為真空氣體環境、氮氣、氬氣等鈍性氣體、氬氣、或大氣，真空氣體環境、或氬氣更佳，真空氣體環境最理想。真空氣體環境之壓力宜低較佳，1Pa 以下較理想，0.1Pa 以下更佳，0.01Pa 以下特別理想，無下限。進行 HIP 煅燒時，也可使用膠囊法。煅燒溫度(最高到達溫度)宜為 1700~2050℃，1750~2000℃ 更理想。熱壓製煅燒時，壓力宜為⁵

50kgf/cm² 以上，200kgf/cm² 以上更理想。HIP 煅燒時，壓力宜為 1000kgf/cm² 以上，2000kgf/cm² 以上更理想。

【0024】於步驟 (b)，於從最高到達溫度降溫時，宜施加 50kgf/cm² 以上之壓製壓力直到成為在規定溫度 (1000~1400℃ (較佳為 1100~1300℃) 之範圍設定之溫度) 較佳。藉此，能夠提高獲得之燒結體之透明性。在最高到達溫度之保溫結束後，即使立即降壓仍能獲得某程度之透明性，但維持施加壓製壓力而降溫直到成為規定溫度較能提高透明性。其理由不詳，但據認為：若於最高到達溫度降壓，燒結體中可能產生氣孔而有礙透明性。又，步驟 (b) 中，在未達規定溫度之溫度範圍，宜於未達 50kgf/cm² 之壓力進行降壓較佳。藉由以此方式進行，可以抑制在燒結體中出現龜裂。尤其，燒結體之尺寸大時，燒結體中容易出現龜裂，故宜進行如此的降壓較佳。又，採用熱壓製煅燒、SPS 煅燒時，宜進行如此的降壓較佳。如上，壓製壓力之降壓時點，從透明性之觀點與龜裂抑制之觀點，係極重要。就兼顧此兩點的降壓時點，宜為降溫中之 1200℃ 尤佳。

【0025】依本發明之製法獲得之氧化鋁燒結體，成為配向度高、緻密且高純度者，有高透明性。若就配向度而言，可獲得照射 X 射線在 $2\theta = 20^\circ \sim 70^\circ$ 之範圍之 X 射線時使用繞射輪廓 Lotgering 法求得之 c 面配向度為 5% 以上 (較佳為 80% 以上，更佳為 90% 以上) 者。若針對緻密度，可獲得將任意剖面以離子研磨進行研磨後，以掃描型電子顯微鏡於倍率 5000 倍檢查時之氣孔數為零至 5 個以下者。若針對純度，可獲得 Mg、C 以外之雜質元素之合計質量比例為 100ppm 以下 (較佳為 50ppm

W、Ir、Pt、Au、Hg、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu)：ICP 發光分析

【0028】 (2)捲帶成形

將於上述(1)製得之板狀氧化鋁粉末 5 質量份與微細的氧化鋁粉末(TM-DAR，平均粒徑 $0.1\mu\text{m}$ ，大明化學製)95 質量份混合，製成混合氧化鋁粉末。相對於此混合氧化鋁粉末 100 質量份，加入氧化鎂(500A，宇部材料製)0.025 質量份(250 質量 ppm)、石墨粉末(UF-G5、昭和電工製)0.01 質量份、作為黏結劑之聚乙炔基丁縮醛(品號 BM-2，積水化學工業製)7.8 質量份、作為塑化劑之鄰苯二甲酸二(2-乙基己酯)(黑金化成製)3.9 質量份、作為分散劑之三油酸山梨糖醇酐(Rheodol SP-O30，花王製)2 質量份、作為分散介質之 2-乙基己醇並混合。分散介質之量調整成漿體黏度為 20000cP 。將以此方式製備的漿體以刮刀塗佈法在 PET 薄膜上成形為片狀使乾燥後之厚度成為 $20\mu\text{m}$ 。將獲得之捲帶切成口徑 50.8mm (2 吋)之圓形後疊層 150 片，載置於厚度 10mm 之鋁板上，之後放入包裝體內，使內部成為真空，製成真空包。將此真空包於 85°C 的溫水中以 100kgf/cm^2 的壓力進行靜水壓壓製，獲得圓板狀成形體。

【0029】 混合氧化鋁粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1、R2(ppm)各以上式(1)、2)求出。實驗例 1，混合氧化鋁粉末之質量比 R1、R2 各為 24ppm、529ppm。

【0030】 (3)煅燒

將獲得之成形體配置在脫脂爐中，於 600°C 以 10 小時的條件進行脫脂。將獲得之脫脂體使用石墨製模具，以熱壓製在氬⁵

氣中於 1800℃ 以面壓 200kgf/cm² 的條件煅燒 4 小時，獲得氧化鋁燒結體。獲得之氧化鋁燒結體樣本之外觀照片示於第 3 圖。第 3 圖繪製的有 NGK 標誌的記號係 Nippon gaishi (股) 之註冊商標。

【0031】又，上述 1.(1)、(2)相當於本發明之步驟(a)，上述 1.(3)相當於本發明之步驟(b)。

【0032】 2.氧化鋁燒結體之特性

(1)c 面配向度

為了確認獲得之氧化鋁燒結體之配向度，對於圓板狀氧化鋁燒結體之頂面進行研磨加工成為平行後，對於此研磨面照射 X 射線，測定 c 面配向度。使用 XRD 裝置(Rigaku 製 RINT-TTR III)，於 $2\theta = 20\sim 70^\circ$ 之範圍測定 XRD 輪廓。具體而言，使用 CuK α 線，以電壓 50kV、電流 300mA 的條件測定。c 面配向度係以 Lotgering 法算出。具體而言，依下式求算。c 面係氧化鋁之(006)面。式中，P 代表從製得之氧化鋁燒結體之 XRD 得出之值，P0 為從標準 α -氧化鋁(JCPDS 卡 No.46-1212)算得之值。實驗例 1 之氧化鋁燒結體之 c 面配向度為 99.7%。

【0033】 【數 1】

$$c \text{ 面配向度}[\%] = \frac{P - P_0}{1 - P_0} \times 100$$

$$P_0 = \frac{I_0(006)}{\sum I_0(hkl)}$$

$$P = \frac{I_s(006)}{\sum I_s(hkl)}$$

【0034】 (2)氣孔數(密度)

【0038】 實驗例 1 之氧化鋁燒結體之製造條件及特性彙整
於表 1。

【0039】

【表 1】

實 驗 例	氧化鋁燒結體之製造條件						氧化鋁燒結體之特性											
	板狀氧化鋁粉末之製作			摺帶成形			煨燒		c 面配 向度 (%)		氣孔 數 ^{*5} (個)	氣孔 數 ^{*6} (個)	雜質量 ^{*7} (質量 ppm)	Mg 含量 (質量 ppm)	C 含量 (質量 ppm)	Al ₂ O ₃ 含量 ^{*8} (質量%)	直線 透射率 (%) ^{*9}	直線 透射率 (%) ^{*10}
	γ -Al ₂ O ₃ (質量%)	AlF ₃ (質量 %)	回火 溫度 (°C)	混合 比 ^{*1}	AlF ₃ 添 加量 (質量%)	R1	R2 (質量 ppm)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)	熱壓製 ^{*3} (1800°C×4h)
1	96	4	1150	5:95	無	24	529	250	99.7	0	2	不含	114	40	99.98	80.3	66.0	
2	96	4	1180	5:95	無	11	491	250	98.2	0	1	不含	113	40	99.98	79.4	64.2	
3	96	4	1150	1.5: 98.5	無	7	159	250	90.1	0	0	不含	111	40	99.98	71.5	67.4	
4	96	4	1150	5:95	無	24	529	2500	99.5	0	1	不含	1132	30	99.88	70.2	56.3	
5	96	4	1150	5:95	無	24	529	0	96.3	0	0	不含	不含	40	100.00	74.7	52.5	
6	96	4	1200	5:95	0.025	-	652	250	99.0	0	0	不含	112	40	99.98	76.2	62.3	
7	96	4	1150	5:95	無	24	529	250	92.2	0	0	不含	113	40	99.98	76.2	62.4	
8	96	4	-	5:95	無	143 9	227 1	250	55.5	0	0	23	112	40	99.98	69.9	67.5	
9	96	4	1200	5:95	無	5	331	250	98.0	0	0	不含	115	40	99.98	75.4	61.9	
10	96	4	900	5:95	無	343	747	250	79.2	125	161	182	118	40	99.97	0.4	0.2	
11	-	-	-	0:10 0	0.004	-	51	250	0.3	0	0	不含	113	40	99.98	58.1	41.6	
12	96	4	1150	5:95	無	24	529	250	30.7	172	211	不含	114	不含	99.99	0.0	0.0	

*1 混合比係板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之質量比

*2 MgO 量係對於混合氧化鋁粉末 100 質量份添加之 MgO 之質量比

*3 熱壓製煨燒時之壓力為 200kgf/cm²

*4 常壓大氣煨燒為 1350°C×4h, HIP 煨燒時為 185MPa、1800°C×2h

*5 觀察視野 114×127 μm 之範圍

*6 觀察視野縱 1340.4 μm×橫 1670.0 μm 之範圍

*7 F 含量係使用以熱水解-離子層析法求出的值求算

*8 Al₂O₃ 係反映以熱水解-離子層析法測得之 F 含量測定結果

*9 以試樣厚 0.2mm、波長 350nm~1000nm 測得之直線透射率的最低值

*10 以試樣厚 0.5mm、波長 300nm~1000nm 測得之直線透射率的最低值

【0040】 [實驗例 2]

設定製作板狀氧化鋁粉末時之回火溫度為 1180℃，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製成氧化鋁燒結體。熱處理溫度高，氟之揮發量增加，故混合氧化鋁粉末之質量比 R1、R2 各為 11、491。針對獲得之氧化鋁燒結體求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0041】 [實驗例 3]

捲帶成形時之板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之混合比，按質量比各設為 1.5：98.5，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。因含有氟之板狀氧化鋁粉末之混合比例減少，混合氧化鋁粉末之質量比 R1、R2 各為 7、159。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0042】 [實驗例 4]

將捲帶成形時之氧化鎂之添加量改為 2500 質量 ppm，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0043】 [實驗例 5]

煅燒時未添加氧化鎂，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0044】 [實驗例 6]

製作板狀氧化鋁粉末時之回火溫度改為 1200℃、捲帶成形時添加 0.025 質量份之氟化鋁(外部配置)，除此以外和實驗例⁵

1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。混合氧化鋁粉末之質量比 R2 為 652。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0045】 [實驗例 7]

煅燒時進行常壓大氣煅燒後進行 HIP 煅燒，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。氧化鋁原料粉末之質量比 R1、R2 各為 24、529。常壓大氣煅燒之條件，設為於 1350℃ 保持 4 小時。又，HIP 煅燒條件，係以氫氣作為壓力介質，於壓力 185MPa 於 1800℃ 保持 2 小時。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0046】 [實驗例 8]

於製作板狀氧化鋁粉末時不實施板狀氧化鋁粉末之回火處理，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。板狀氧化鋁粉末有許多氟殘留，故氧化鋁原料粉末之質量比 R1、R2 各為 1439、2271。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0047】 [實驗例 9]

製作板狀氧化鋁粉末時之回火溫度改為 1200℃，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。熱處理溫度高，氟之揮發量增加，故混合氧化鋁粉末之質量比 R1、R2 各為 5、331。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0048】 [實驗例 10]

製作板狀氧化鋁粉末時之回火溫度改為 900℃，並且熱壓

製煨燒溫度改為 1650°C，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製作氧化鋁燒結體。混合氧化鋁粉末之質量比 R1、R2 各為 343、747。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0049】 [實驗例 11]

捲帶成形時氧化鋁原料粉末只使用微細氧化鋁粉末 TM-DAR，並於混合時添加氟化鋁粉末 0.004 質量份(外部配置)，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。氧化鋁原料粉末之質量比 R2 為 51。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0050】 [實驗例 12]

煨燒方法改為常壓大氣 1700°C，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。混合氧化鋁粉末之質量比 R1、R2 各為 24、529。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 1 所示。

【0051】 [評價]

實驗例 1~7、9 中，製備含有板狀氧化鋁粉末之氧化鋁原料粉末使得該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1 成為 5ppm 以上、質量比 R2 成為 15ppm 以上，將此含有氧化鋁原料粉末之成形用原料進行捲帶成形後，於 1700°C 以上進行加壓煨燒(熱壓製煨燒或 HIP 煨燒)。如此，實驗例 1~7、9 之氧化鋁燒結體成為 c 面配向度為 90%以上，氣孔數為在視野 114×127μm 之範圍為 0 個，在視野 1340.4×1607.0μm 之範圍為 0~2 個，Mg、C 以外之雜質元素合計為 100ppm 以下，氧化鋁⁵

含量為 99.8 質量%以上，且為高配向、高緻密性及高純度之氧化鋁燒結體。又，0.2mm 厚時之 350~1000nm 之直線透射率為 60%以上，0.5mm 厚時於 300~1000nm 之直線透射率為 50%以上，顯示高透光性。實驗例 8 中，混合氧化鋁粉末中之 R1、R2 高，故獲得之氧化鋁燒結體之晶粒成長稍過度，而 c 面配向度、直線透射率稍降低，但為高配向、高緻密性及高純度。

【0052】另一方面，實驗例 10 中，煅燒溫度過低，故獲得之氧化鋁燒結體之 c 面配向度低，殘留許多氣孔，直線透射率非常低。實驗例 11 中，未使用板狀氧化鋁粉末，故獲得之氧化鋁燒結體的 c 面配向度極低，未獲得充分的直線透射率。實驗例 12 中，未進行加壓煅燒而是採用常壓大氣煅燒，故獲得之氧化鋁燒結體的 c 面配向度低，也殘留許多氣孔，直線透射率非常低。

【0053】 [實驗例 13~22]

捲帶成形時之板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之混合比、氧化鎂量、煅燒時之煅燒溫度如表 2，從煅燒溫度降溫時，維持壓製壓力直到 1200℃，在未達 1200℃ 之溫度範圍則將壓製壓力開放為零，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 2 所示。

【0054】

【表 2】

實驗例 ⁴	氧化鋁燒結體之製造條件						氧化鋁燒結體之特性										
	板狀氧化鋁粉末之製作			捲帶成形			煅燒	c 面配向度 (%)	氣孔數 ⁵ (個)	氣孔數 ⁵ (個)	雜質量 (ppm)	Mg 含量 (ppm)	C 含量 (ppm)	Al ₂ O ₃ 含量 (質量%)	直線透射率 (%) ⁹	直線透射率 (%) ¹⁰	
	γ-Al ₂ O ₃ (質量%)	AlF ₃ 添加量 (質量%)	混合比 ¹	R1	R2	MgO 量 ² (ppm)											
13	96	4	1.5:98.5	無	7	159	250	熱壓製 ³ (1975°C×4h)	96.1	0	0	不 ⁶	112	40	99.98	83.0	79.1
14	96	4	1.5:98.5	無	7	159	250	熱壓製 ³ (1900°C×4h)	67.7	0	8	不 ⁶	113	40	99.98	80.6	73.8
15	96	4	0.75:99.25	無	5	79	250	熱壓製 ³ (1900°C×4h)	93.4	0	2	不 ⁶	113	40	99.98	81.0	74.0
16	96	4	1.5:98.5	無	7	159	350	熱壓製 ³ (1900°C×4h)	95.1	0	4	不 ⁶	224	40	99.97	79.6	71.1
17	96	4	1.5:98.5	無	7	159	500	熱壓製 ³ (1900°C×4h)	96.0	0	0	不 ⁶	320	40	99.96	75.9	62.0
18	96	4	2:98	無	10	212	350	熱壓製 ³ (1900°C×4h)	99.9	0	6	不 ⁶	157	40	99.98	81.5	76.1
19	96	4	2.5:97.5	無	12	265	250	熱壓製 ³ (1900°C×4h)	99.9	2	13	不 ⁶	113	40	99.98	80.9	71.6
20	96	4	2.5:97.5	無	12	265	350	熱壓製 ³ (1950°C×4h)	97.5	1	11	不 ⁶	158	40	99.98	82.2	77.7
21	96	4	2:98	無	10	212	350	熱壓製 ³ (1850°C×4h)	71.0	2	12	不 ⁶	157	40	99.98	76.1	61.1
22	96	4	2.5:97.5	無	12	265	250	熱壓製 ³ (1850°C×4h)	99.7	0	5	不 ⁶	112	40	99.98	79.0	68.4
23	96	4	5:95	無	1439	2271	2500	熱壓製 ³ (1800°C×4h)	76.0	0	2	22	1119	40	99.88	82.8	79.1
24	96	4	5:95	無	1439	2271	1000	熱壓製 ³ (1800°C×4h)	55.5	0	3	24	447	40	99.95	82.0	76.5
25	96	4	10:90	無	2879	4548	2500	熱壓製 ³ (1800°C×4h)	5.9	0	2	41	1214	40	99.87	79.9	69.1
26	96	4	2.5:97.5	無	17	425	250	熱壓製 ³ (1950°C×4h)	100.0	0	0	不 ⁶	111	40	99.98	82.6	78.8
27	96	4	2.5:97.5	無	17	425	250	熱壓製 ³ (1900°C×4h)	99.9	4	17	不 ⁶	112	40	99.98	80.6	73.3
28	-	-	0:100	無	0	0	250	熱壓製 ³ (1975°C×4h)	0.0	1	5	不 ⁶	112	40	99.98	55.0	41.6

*1 混合比係板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之質量比

*2 MgO 量係對於混合氧化鋁粉末 100 質量份添加之 MgO 之質量比

*3 熱壓製燒結時之壓力為 200kgf/cm²

*4 實驗例 13-30 中，在降溫至 1200°C 的時點將壓製除壓成 0 kgf/cm²

*5 觀察視野 114×127 μm 之範圍

*6 觀察視野縱 1340.4 μm×橫 1670.0 μm 之範圍

*7 F 含量係使用以熱水解離子層析法求出的值

*8 Al₂O₃ 係反映以熱水解離子層析法測得之 F 含量測定結果

*9 以試樣厚 0.2mm、波長 350nm~1000nm 測得之直線透射率的最低值

*10 以試樣厚 0.5mm、波長 300nm~1000nm 測得之直線透射率的最低值

【0055】 [實驗例 23~25]

捲帶成形時之板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之混合比、氧化鎂量、煅燒時之煅燒溫度如表 2 所示，從煅燒溫度降溫時維持壓製壓力直到 1200℃，於未達 1200℃ 之溫度範圍則開放壓製壓力為零，除此以外和實驗例 8 同樣進行，製作氧化鋁燒結體。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 2 所示。

【0056】 [實驗例 26、27]

製作板狀氧化鋁粉末時之回火條件設為 900℃、3 小時空氣流(空氣流量為 25000cc/min)，並且捲帶成形時板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之混合比、煅燒時之煅燒溫度設為如表 2，從煅燒溫度降溫時維持壓製壓力直到 1200℃，於未達 1200℃ 之溫度範圍則開放壓製壓力為零，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 2 所示。

【0057】 [實驗例 28]

捲帶成形時氧化鋁原料粉末只使用微細氧化鋁粉末，且 F 含量改為零，煅燒時之煅燒溫度設為如表 2，從煅燒溫度降溫時維持壓製壓力直到 1200℃，於未達 1200℃ 之溫度範圍則開放壓製壓力為零，除此以外和實驗例 1 同樣進行，製得氧化鋁燒結體。針對獲得之氧化鋁燒結體，求出上述 2.(1)~(5)之特性。其結果如表 2 所示。

【0058】 [評價]

實驗例 13~27 中，製備含有板狀氧化鋁粉末之氧化鋁原料

粉末使得該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1 成為 5ppm 以上、質量比 R2 成為 15ppm 以上，將此含有氧化鋁原料粉末之成形用原料進行捲帶成形後，於 1700℃ 以上進行加壓煅燒(熱壓製煅燒)。如此，實驗例 13~27 之氧化鋁燒結體成為 c 面配向度為 5%以上、氣孔數在視野 114×127 μm 之範圍為 0~4 個、在視野 1340.4×1607.0 μm 之範圍為 0~17 個，Mg、C 以外之雜質元素合計為 100ppm 以下，氧化鋁含量為 99.8 質量%以上，且為高配向、高緻密性且高純度之氧化鋁燒結體。又，0.2mm 厚時之 350~1000nm 之直線透射率為 70%以上，於 0.5mm 厚時 300~1000nm 之直線透射率為 60%以上，且呈高透光性。

【0059】另一方面，實驗例 28 中，未使用板狀氧化鋁粉末，故獲得之氧化鋁燒結體的 c 面配向度極低，未獲得充分的直線透射率。

【0060】又，實驗例 1~28 之中，相當於本發明之實施例者為實驗例 1~9、13~27。本發明不限於該等實施例，只要是屬於本發明之技術範圍內，能以各種態樣實施。

【0061】本申請案係基於 2014 年 11 月 28 日提申的日本專利申請案第 2014-241685 號及 2015 年 5 月 13 日提申的日本專利申請案第 2015-98524 號主張優先權，依引用此等內容皆包括在本說明書內。

[產業利用性]

【0062】本發明例如可利用於高壓鈉燈用發光管、高耐熱窗材、半導體裝置用構件、光學零件用基板等。

【符號說明】

無。

發明摘要

※ 申請案號：

※ 申請日：

※IPC 分類：

【發明名稱】(中文/英文)

透明氧化鋁燒結體的製法

【中文】

本發明之透明氧化鋁的製法包括以下步驟：(a)製備含有縱橫比(aspect ratio)為 3 以上之板狀氧化鋁粉末的氧化鋁原料粉末，使該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1 成為 5ppm 以上，並將前述含有氧化鋁原料粉末之成形用原料進行成形為成形體；(b)將前述成形體於 F 會揮發之溫度進行加壓煅燒以獲得透明氧化鋁燒結體。

【英文】

無。

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無。

【本代表圖之符號簡單說明】：無。

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無。

步驟：(a)製備含有縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末的氧化鋁原料粉末，使該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1 成為 5ppm 以上，並將前述含有氧化鋁原料粉末之成形用原料進行成形為成形體；(b)將前述成形體於 1700°C 以上進行加壓煅燒以獲得透明氧化鋁燒結體。

【0011】 惟，質量比 R1 係依下式(1)算出之值，單位為質量 ppm。式(1)中，X 係板狀氧化鋁粉末中之 F 相對於 Al 之質量比(質量 ppm)。板狀氧化鋁粉末之 F 含量係以熱水解-離子層析法求得。板狀氧化鋁粉末之鋁含量，係求出為板狀氧化鋁粉末之氧化鋁純度為 100-(鋁、氧以外之雜質元素之質量%之和)再乘以 0.529 之值算出。雜質元素之質量%依以下方式定量。亦即，S 依燃燒(高頻加熱)-紅外線吸收法、N 依鈍性氣體融解-熱傳導度法、H 依鈍性氣體融解-非分散型紅外線吸收法、F 依熱水解-離子層析法、其他元素依 ICP(感應耦合電漿)發光分析定量。

$$R1 = X \times (\text{板狀氧化鋁之質量} / \text{氧化鋁原料粉末之質量}) \dots (1)$$

【0012】 本發明之第 2 透明氧化鋁燒結體的製法係透明氧化鋁燒結體的製法，包括以下步驟：

(a)製備含有縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末的氧化鋁原料粉末，使該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R2 成為 15ppm 以上，並將含有該氧化鋁原料粉末之成形用原料成形成為成形體；(b)將前述成形體於 1700°C 以上進行加壓煅燒以獲得透明氧化鋁燒結體。

【0013】 惟，質量比 R2 係依下式(2)算出之值，單位為質量

ppm。氧化鋁原料粉末中，板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之混合比例，按質量比計，為 T：(100-T)。對於氧化鋁原料粉末從外部配置添加物時，添加物相對於氧化鋁原料粉末之比例為 Z(質量%)。x1 為板狀氧化鋁粉末中之氟含有率(質量 ppm)，x2 為微細氧化鋁粉末中之氟含有率(質量 ppm)，x3 為添加物中之氟含有率(質量 ppm)。氟含量係以鹼熔解-離子層析法求出。y1 係板狀氧化鋁粉末中之鋁含有率(質量%)，y2 係微細氧化鋁粉末中之鋁含有率(質量%)。Al 含有率，係求出各氧化鋁粉末之氧化鋁純度為 100-(Al、O 以外之雜質元素之質量%之和)再乘以 0.529 而得之值(質量%)。雜質元素之質量%依以下方式定量。亦即，S 以燃燒(高頻加熱)-紅外線吸收法、N 以鈍性氣體熔解-熱傳導度法、H 以鈍性氣體熔解-非分散型紅外線吸收法、F 以鹼熔解-離子層析法、其他元素以 ICP 發光分析定量。y3 為添加物中之 Al 含有率(質量%)，以 ICP 發光分析定量。

$$R2=100 \times [x1 \times T + x2 \times (100-T) + x3 \times Z] / [y1 \times T + y2 \times (100-T) + y3 \times Z] \dots (2)$$

[發明效果]

【0014】依本發明之第 1 及第 2 透明氧化鋁燒結體的製法，係將含有縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末的成形用原料予以成形並加壓煅燒，故獲得之氧化鋁燒結體之配向度高。又，氧化鋁原料粉末含有適量的氟，氧化鋁原料粉末之燒結性提升，且氧化鋁燒結體能充分地緻密化。又，係於氟會從粉末及/或成形體之表面揮發之溫度煅燒，故得到之氧化鋁燒結體之氟含量能為零或壓抑為低。因此獲得之氧化鋁燒結體的配向

密閉在由多孔質材料構成的容器內，於 750~1650℃ 進行熱處理，以獲得由板狀之 α -氧化鋁粒子構成的板狀氧化鋁粉末。可將如此獲得之板狀氧化鋁粉末作為步驟(a)之板狀氧化鋁粉末使用。又，可將此板狀氧化鋁粉末於大氣、鈍性或真空氣體環境下於 600~1350℃，較佳為 900~1350℃ 回火處理後，作為步驟(a)之板狀氧化鋁粉末使用。以此獲得之板狀氧化鋁粉末取決於回火處理等的條件，會含有來自氟化鋁之少量之 F。又，板狀氧化鋁粉末於使用前可粉碎。

【0019】 步驟(a)使用氧化鋁原料粉末。此氧化鋁原料粉末係製備成使該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1 成為 5ppm 以上或質量比 R2 成為 15ppm 以上。氟作用為促進氧化鋁粉末燒結之燒結助劑。質量比 R1 若未達 5ppm 或質量比 R2 未達 15ppm，煅燒時不能充分緻密化，氧化鋁燒結體中殘留氣孔，直線透射率減低，並不理想。質量比 R1、R2 之上限無特殊限制，若太多，晶粒成長過多，配向度減低，或生成帶有氣孔之異常粒子，透光性減低。從如此的觀點，質量比 R1 為 6300ppm 以下較佳，3000ppm 以下更佳，1500ppm 以下更佳，1000ppm 以下更佳，100ppm 以下又更佳，50ppm 以下更佳，25ppm 以下再更佳。質量比 R2 宜為 10000ppm 以下較佳，5000ppm 以下更佳，2500ppm 以下又更佳，1000ppm 以下尤佳。質量比 R1，R2 可依上述式(1)、(2)求得。

【0020】 氧化鋁原料粉末可為縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末本身，但宜為將此板狀氧化鋁粉末與平均粒徑比板狀氧化鋁粉末還小的微細氧化鋁粉末混合而得的混合氧化鋁粉末

較佳。直接使用縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末作為氧化鋁原料粉末使用時，宜使用平均粒徑小者，例如平均粒徑為 $1\mu\text{m}$ 以下者較佳。使用板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末混合而得之混合氧化鋁粉末作為氧化鋁原料粉末時，成形時板狀氧化鋁粒子易配向。又，煨燒時，板狀氧化鋁粉末成為種晶(模板)，微細氧化鋁粉末成為基質，模板邊納入基質邊成長出同質磊晶(homoepitaxial)。如此的製法稱為 TGG(Templated Grain Growth)法。板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之混合比例，按質量比計，宜為 $T:(100-T)$ (T 為 $0.001\sim 50$)較佳。原因為： T 若未達 0.001 ，獲得之氧化鋁燒結體之配向度不易提高，若超過 50 ，氧化鋁有不易燒結之虞。考量配向度之觀點， T 宜為 0.1 以上， 0.5 以上更佳， 1.5 以上又更理想。另一方面，考量燒結性之觀點， T 宜為 15 以下， 10 以下更佳， 5 以下又更佳， 2.5 以下尤佳。考量配向度與燒結性兼顧之觀點， T 宜為 $0.001\sim 15$ ， $0.1\sim 15$ 更佳， $0.5\sim 10$ 又更佳， $0.5\sim 5$ 再更佳， $1.5\sim 5$ 更佳、 $1.5\sim 2.5$ 尤佳。利用 TGG 法製作氧化鋁燒結體之步驟之示意圖如第 2 圖。於 TGG 法，可藉由板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之粒徑、混合比控制獲得之氧化鋁燒結體之微細結構，比起將板狀氧化鋁粉末單體煨燒時的情形，更易緻密化，配向度容易提高。

【0021】 於步驟(a)，製備含有氧化鋁原料粉末之成形用原料。成形用原料可以為氧化鋁原料粉末本身，也可為在氧化鋁原料粉末適當添加燒結助劑、石墨、黏結劑、塑化劑、分散劑、分散介質等者。燒結助劑宜為氧化鎂較佳。原因為氧化鎂會抑制過度的晶粒成長且促進緻密化。尤其氧化鋁原料粉末含有的

以下，更佳為 10ppm 以下)者。氧化鋁燒結體所含之 Mg、C、F 以外之各雜質元素宜成為 10 質量 ppm 以下較佳。氧化鋁含量，為求簡便，可獲得若令從 100 扣減雜質元素之合計之質量 (%)之值作為氧化鋁含量，為 99.8 質量%以上，較佳為 99.9 質量%以上者。若針對透光性，可獲得從氧化鋁燒結體取出之厚度 0.2mm 之試樣在波長 350~1000nm 之直線透射率為 60%以上(較佳為 70%以上)者。又，可獲得厚度 0.5mm 之試樣在波長 300~1000nm 之直線透射率為 50%以上者。

【實施例】

【0026】 [實驗例 1]

1. 氧化鋁燒結體之製作

(1) 板狀氧化鋁粉末之製作

將高純度 γ -氧化鋁(TM-300D，大明化學製)96 質量份、高純度氟化鋁(關東化學製，鹿特級)4 質量份、作為種晶之高純度 α -氧化鋁(TM-DAR、大明化學製，D50 = 1 μ m)0.17 質量份、作為溶劑之 IPA(異丙醇)，使用 ϕ 2mm 之氧化鋁球以 5 小時熱研磨進行混合。獲得之混合粉末中之 F、H、C、S 以外之雜質元素之質量比例之合計為 1000ppm 以下。將獲得之混合原料粉末 300g 裝入到純度 99.5 質量%之高純度氧化鋁製莢(容積 750cm³)，蓋上純度 99.5 質量%之高純度氧化鋁製蓋，於電爐內在空氣流中於 900℃ 進行 3 小時熱處理。空氣流量設為 25000cc/min。將熱處理後之粉末於大氣中於 1150℃ 進行 40 小時回火處理後，使用 ϕ 2mm 之氧化鋁球進行 4 小時粉碎，獲得平均粒徑 2 μ m、平均厚度 0.2 μ m、縱橫比 10 之板狀氧化鋁

粉末。粒子之平均粒徑、平均厚度以掃描型電子顯微鏡(SEM)觀察板狀氧化鋁粉末中之任意 100 個粒子而決定。平均粒徑為粒子長軸長之平均值，平均厚度為粒子短軸長之平均值，縱橫比為平均粒徑/平均厚度。獲得之板狀氧化鋁粉末為 α -氧化鋁。

【0027】 針對依上述方式獲得之板狀氧化鋁粉末中之雜質元素，依下列方法進行定量分析。然後，求出板狀氧化鋁粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 X(質量 ppm)及板狀氧化鋁粉末中之 F 含有率 x1(質量 ppm)。質量比 X 係使用以熱水解-離子層析法求得之 F 之質量算出之值，F 含有率 x1 係使用以鹼熔解-離子層析法求得之 F 之質量算出之值。熱水解-離子層析法中，主要係測定試樣表面之 F，鹼熔解-離子層析法中，因為係將試樣熔融並測定 F，係測定試樣全體之 F。實驗例 1 之板狀氧化鋁粉末之質量比 X、F 含有率 x1 各為 490ppm、5600ppm。又，為 Al 以外之雜質元素且檢測到的只有 F，其他分析元素皆在檢測極限以下。就板狀氧化鋁粉末之純度以(100-氟質量(%))求得之結果為 99.97%。

C、S：燃燒(高頻加熱)-紅外線吸收法

N：鈍性氣體熔解-熱傳導度法

H：鈍性氣體熔解-非分散型紅外線吸收法

F：熱水解-離子層析法、鹼熔解-離子層析法

上述以外之雜質元素(主要為 Si、Fe、Ti、Na、Ca、Mg、K、P、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、Y、Zr、Pb、Bi、Li、Be、B、Cl、Sc、Ga、Ge、As、Se、Br、Rb、Sr、Nb、Mo、Ru、Rh、Pd、Ag、Cd、In、Sn、Sb、Te、Cs、Ba、Hf、Ta、

將獲得之氧化鋁燒結體之任意剖面以剖面拋光儀(cross section polisher)(CP)(日本電子製，IB-09010CP)進行研磨。CP 屬於離子研磨的範疇。使用 CP 的原因是研磨面不發生脫粒。以掃描型電子顯微鏡(日本電子製 JSM-6390)拍攝獲得之剖面。具體而言，將如第 4 圖之於縱 $19.0\mu\text{m}$ ×橫 $25.4\mu\text{m}$ 之視野以倍率 5000 倍拍攝的照片，如第 5 圖排成縱 6 張、橫 5 張的連續照片(縱 $114\mu\text{m}$ ×橫 $127\mu\text{m}$)，以目視計數氣孔數目。氣孔及非氣孔的部分的明暗明顯，能以目視輕易區別。實驗例 1 之氧化鋁燒結體確認到的氣孔數為 0 個。又，將於縱 $223.4\mu\text{m}$ ×橫 $321.4\mu\text{m}$ 之視野以倍率 500 倍拍攝的照片排成縱 6 張、橫 5 張的連續照片(縱 $1340.4\mu\text{m}$ ×橫 $1607.0\mu\text{m}$)，以目視計數直徑 $1\mu\text{m}$ 以上之氣孔之數目。於此情形，實驗例 1 之氧化鋁燒結體確認到的氣孔數為 2 個。

【0035】(3)雜質量

將氧化鋁燒結體以純度 99.9%的氧化鋁研鉢粉碎後，依下列方法定量分析雜質元素。然後，求出氧化鋁燒結體中之 Mg、C 以外之雜質元素之合計質量比例(ppm)、氧化鋁燒結體所含之 Mg、C 之質量比例(ppm)。實驗例 1 之氧化鋁燒結體之 Mg、C 以外之雜質元素皆為檢測極限以下，檢測到 Mg 為 114ppm，C 為 40ppm。

C、S：燃燒(高頻加熱)-紅外線吸收法

N：鈍性氣體溶解-熱傳導度法

H：鈍性氣體溶解-非分散型紅外線吸收法

F：熱水解-離子層析法

上述以外之雜質元素(主為 Si、Fe、Ti、Na、Ca、Mg、K、P、V、Cr、Mn、Co、Ni、Cu、Zn、Y、Zr、Pb、Bi、Li、Be、B、Cl、Sc、Ga、Ge、As、Se、Br、Rb、Sr、Nb、Mo、Ru、Rh、Pd、Ag、Cd、In、Sn、Sb、Te、Cs、Ba、Hf、Ta、W、Ir、Pt、Au、Hg、La、Ce、Pr、Nd、Sm、Eu、Gd、Tb、Dy、Ho、Er、Tm、Yb、Lu)：ICP 發光分析

【0036】 (4)Al₂O₃ 含量

氧化鋁燒結體之 Al₂O₃ 含量(質量%)係算出上述定量分析獲得之氧化鋁燒結體中之鋁、氧以外之元素之質量%之和 S，再利用 100-S 而簡便地求出。實驗例 1 之氧化鋁燒結體之 Al₂O₃ 含量為 99.98 質量%。

【0037】 (5)直線透射率

將獲得之氧化鋁燒結體切成 10mm×10mm 的大小，在 ϕ 68mm 之金屬製平板的最外周部以 90°的間隔固定，固定 4 個，在 SiC 研磨紙上，以只施加金屬製平板與研磨治具之負荷(合計 1314g)之狀態，以 # 800 進行 10 分鐘，以 # 1200 進行 5 分鐘磨光(預備研磨)。之後，在陶瓷平板上使用鑽石研磨粒進行磨光。磨光係以研磨粒尺寸 1 μ m 進行 30 分鐘，之後以研磨粒尺寸 0.5 μ m 進行 2 小時。將研磨後之 10mm×10mm×0.2mm 厚之試樣按順序以丙酮、乙醇、離子交換水各洗滌 3 分鐘後，使用分光光度計(Perkin Elmer 製，Lambda900)測定於波長 350~1000nm 之直線透射率。實驗例 1 之氧化鋁燒結體之於波長 350~1000nm 之直線透射率為 80.3%以上。又，0.5mm 厚之試樣之於波長 300~1000nm 之直線透射率為 66.0%以上。

申請專利範圍

1. 一種透明氧化鋁燒結體的製法，包括以下步驟：

(a)製備含有縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末的氧化鋁原料粉末，使得該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R1 成為 5ppm 以上，並將含有該氧化鋁原料粉末之成形用原料成形成為成形體；

(b)將該成形體於 1700℃ 以上且 50kgf/cm² 以上進行加壓煅燒，藉此獲得透明氧化鋁燒結體；

於該步驟(a)，製備含有該板狀氧化鋁粉末與平均粒徑比起該板狀氧化鋁粉末更小的微細氧化鋁粉末之該氧化鋁原料粉末，使該板狀氧化鋁粉末與該微細氧化鋁粉末之混合比例，按質量比計，成為 0.1：99.9~15：85，

惟質量比 R1 係依下式(1)算出之值，單位為質量 ppm；

式(1)中，X 為板狀氧化鋁粉末中之 F 相對於 Al 之質量比(質量 ppm)；

板狀氧化鋁粉末之 F 含量以熱水解-離子層析法求得；

板狀氧化鋁粉末之 Al 含量，係使用求出 100-(Al, O 以外之雜質元素之質量%之和)作為板狀氧化鋁粉末之氧化鋁純度再乘以 0.529 而得之值而算出；

雜質元素之質量%依以下方式定量；

亦即，S 依燃燒(高頻加熱)-紅外線吸收法、N 依鈍性氣體熔解-熱傳導度法、H 依鈍性氣體熔解-非分散型紅外線吸收法、F 依熱水解-離子層析法、其他元素依 ICP(感應耦合電漿)發光分析定量；

$R1 = X \times (\text{板狀氧化鋁之質量} / \text{氧化鋁原料粉末之質量}) \dots (1)$ 。

2. 一種透明氧化鋁燒結體的製法，包括以下步驟：

(a) 製備含有縱橫比為 3 以上之板狀氧化鋁粉末的氧化鋁原料粉末，使得該氧化鋁原料粉末中之 F 相對於 Al 之質量比 R2 成為 15ppm 以上，並將含有該氧化鋁原料粉末之成形用原料成形成為成形體；

(b) 將該成形體於 1700°C 以上且 50kgf/cm² 以上進行加壓煅燒，藉此獲得透明氧化鋁燒結體；

於該步驟 (a)，製備含有該板狀氧化鋁粉末與平均粒徑比起該板狀氧化鋁粉末更小的微細氧化鋁粉末之該氧化鋁原料粉末，使該板狀氧化鋁粉末與該微細氧化鋁粉末之混合比例，按質量比計，成為 0.1 : 99.9 ~ 15 : 85，

惟質量比 R2 係依下式 (2) 算出之值，單位為質量 ppm；

氧化鋁原料粉末中，板狀氧化鋁粉末與微細氧化鋁粉末之混合比例，按質量比計，為 T : (100-T)；

於氧化鋁原料粉末以外部配置方式添加添加物時，添加物對於氧化鋁原料粉末之比例為 Z(質量%)；

x1 係板狀氧化鋁粉末中之 F 含有率(質量 ppm)，x2 係微細氧化鋁粉末中之 F 含有率(質量 ppm)，x3 係添加物中之 F 含有率(質量 ppm)；

F 含量係依鹼溶解-離子層析法求得；

y1 係板狀氧化鋁粉末中之 Al 含有率(質量%)，y2 係微細氧化鋁粉末中之 Al 含有率(質量%)；

A1 含有率，係求出 100-(A1, O 以外之雜質元素之質量%之和)作為各氧化鋁粉末之氧化鋁純度再乘以 0.529 而得之值(質量%)；

雜質元素之質量%依以下方式定量；

亦即，S 依燃燒(高頻加熱)-紅外線吸收法、N 依鈍性氣體熔解-熱傳導度法、H 依鈍性氣體熔解-非分散型紅外線吸收法、F 依鹼熔解-離子層析法、其他元素依 ICP 發光分析定量；

y3 係添加物中之 A1 含有率(質量%)，以 ICP 發光分析定量；

$$R2 = 100 \times [x1 \times T + x2 \times (100 - T) + x3 \times Z] / [y1 \times T + y2 \times (100 - T) + y3 \times Z] \dots (2)。$$

3. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之透明氧化鋁燒結體的製法，其中，於該步驟(a)，對於該氧化鋁原料粉末 100 質量份添加氧化鎂 100~5000 質量 ppm 並混合以製成混合原料粉末。
4. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之透明氧化鋁燒結體的製法，其中，於該步驟(b)，進行煨燒使該透明氧化鋁燒結體含有之 Mg、C 以外之各雜質元素成為 10 質量 ppm 以下。
5. 如申請專利範圍第 1 或 2 項之透明氧化鋁燒結體的製法，其中，於該步驟(b)，在降溫時繼續施加 50kgf/cm² 以上之壓力直到成為在 1000~1400℃ 之範圍設定之規定溫度，在該規定溫度以下之溫度範圍則降壓直到未達 50kgf/cm²。