

Title	Development of Energy-saving Process for Synthesis of Aluminum Nitride
Author(s)	櫻井, 利隆
Citation	大阪大学, 2006, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/46948
rights	
Note	著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 〈a href="https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed"〉 大阪大学の博士論文について 〈/a〉 をご参照ください。

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

氏名	さくら い とし たか 櫻 井 利 隆
博士の専攻分野の名称	博 士 (工 学)
学位記番号	第 20380 号
学位授与年月日	平成 18 年 3 月 24 日
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当 工学研究科環境工学専攻
学位論文名	Development of Energy-saving Process for Synthesis of Aluminum Nitride (窒化アルミニウム合成における省エネルギープロセスの開発)
論文審査委員	(主査) 教授 宮本 欽生 (副査) 教授 竹本 正 教授 西嶋 茂宏 教授 盛岡 通 教授 加賀 昭和 教授 澤木 昌典 教授 桑野 園子 教授 水野 稔

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、環境負荷が小さく、電子部品の小型化を通じて省資源に貢献する窒化アルミニウム粉末を、省エネルギー・低コストの粉末製造技術である燃焼合成法を用いて製造するプロセスにおいて、その反応を制御し、より焼結性、焼結体特性の優れた窒化アルミニウム粉末の製造方法を確立することを目的として行った研究をまとめたものであり、以下の5章より成り立っている。

第1章は本研究の意義、既往の研究の動向と成果、本研究が目指すべき目標、等について述べた。

第2章では、フッ化物、塩化物を原料中に添加・混合することによる SHS 反応制御の検討を行った。その結果、原料粉に NH_4F を添加・混合することによって合成時の反応温度を下げることができ、微細な一次粒子径をもつ生成物が得られた。しかしながら、過剰 ($>2 \text{ mass}\%$) な NH_4F の添加は生成物中に多量のウイスカの生成をもたらし、焼結用としては問題があることもわかった。

第3章では第2章の結果をうけて、 H_2 ガスを反応ガス (N_2) 中に混合することで、ウイスカの発生を伴わない SHS の反応制御を行うことを検討した。その結果、10%の H_2 ガス添加によって SHS 反応が、ウイスカの発生を伴わずに、制御・抑制できることがわかったが、一方で未反応 Al の増加をもたらした。これは焼結体特性にとって好ましくない結果であり、第4章においてその対策も含めて検討をおこなった。

第4章では第2章、第3章の結果を総合して、 NH_4F と H_2 ガスの同時添加を行うことにより、微細で、ウイスカの発生が少なく、未反応 Al が少ない生成物を得ることを検討した。その結果、原料中に NH_4F を 1.0 mass% 添加し、10% H_2 /90% N_2 ガス中で燃焼合成を行うことによって、平均粒径: $1.3 \mu\text{m}$ 、比表面積: $4.2 \text{ m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$ の AlN 粉末を、多量のウイスカの発生や未反応 Al の増加を伴わずに作成できた。また、 NH_4F 添加による粉末酸素量の低減の効果もみられた。さらにこの粉末を用いた焼結体では 1810°C 焼結で $3.31 \text{ g} \cdot \text{cm}^{-3}$ の密度と $160 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ の熱伝導率が得られた。これらの特性値は、電子部品等の高熱伝導材料として利用できる値であり、実用的な AlN 粉末の低コスト合成に新たな指針を示した。ただし生成粉を微粉碎し、稀釈材として原料に返し、再び SHS を行う、という繰り返し合成のプロセスで、生成粉の酸素量が増加する傾向が見られた。これを解決するには、生成粉を微粉碎する際の

酸素増加量が、新規 Al 原料粉の投入による酸素減少量以下になるよう、工程を改善する必要があることがわかった。

第 5 章では以上の総括と今後の研究課題について述べた。

今後の研究課題として 1) 微粉碎時の酸素増加を抑えるための技術の開発 2) SHS の特長 (高温・急速冷却) の応用として AlN と希土類、遷移金属との固溶体の作製、3) 反応制御技術の応用として安価で高品質の SiAlON セラミックの原料粉末の製造、等を提案した。

論文審査の結果の要旨

本論文は、環境負荷が小さく、電子部品の小型化を通じて省資源に貢献する窒化アルミニウム粉末を、省エネルギー・低コストの粉末合成技術である燃焼合成法 (SHS) を用いて製造するプロセスにおいて、その反応を制御し、より焼結性、焼結体特性の優れた窒化アルミニウム粉末の製造方法を確立することを目的として行われた研究をまとめたものであり、主な成果は以下の通りである。

- 1) 熱力学的/速度論的考察から窒化アルミニウム (AlN) の燃焼合成における稀釈剤比率、および反応ガス圧と生成物の特性の関係を明らかにし、焼結用 AlN 粉末を SHS で合成する際の稀釈剤比率と反応ガス圧の最適条件を示している。
- 2) 生産性を下げずに、さらに生成物の特性を改善するために種々の塩化物、フッ化物を原料粉末に混合して SHS を行うことにより反応を制御し、反応温度を下げることを検討している。その結果、フッ化アンモニウムがこの目的に適しており、フッ化アンモニウム添加によって生成物の一次粒子径は微細化し、しかも生成物中の未反応アルミおよび酸素量が低減することを示している。さらにこのフッ化アンモニウムがどのような理由で反応を制御し、微細な生成物をもたらすのか、について考察を行っている。
- 3) 焼結性を損なうウイスキーの発生を抑え、環境にも配慮した反応制御方法として、少量の水素を反応ガス (窒素ガス) に添加することを検討している。その結果、水素ガスも反応制御の効果を有し、水素添加によって微細な AlN 粉末が得られることを示している。ただし、水素添加によって未反応アルミが増加するという欠点も示し、この点の改善の必要性を指摘している。
- 4) 2) の結果と 3) の結果を総合し、フッ化アンモニウムと水素を同時に添加することにより、少ないフッ化アンモニウム添加で、焼結性・焼結体特性に優れた窒化アルミニウム粉末を得ることを検討している。その結果フッ化アンモニウム、水素の添加量を最適化することにより微細で焼結性に優れた窒化アルミニウム粉末が得られることを示している。また、この粉末を 1810°C で焼成した焼結体で、 $3.31 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$ の密度と $160 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ の熱伝導率が得られることを示し、この技術が、電子部品等の高熱伝導材料として要求される特性を有する AlN 粉末を低コストで合成するための実用的な技術であることを示している。

以上のように、本論文は従来焼結性に優れた粉末の作製には不適とされていた燃焼合成法 (SHS) に対して、添加剤による反応制御という技術を適用することにより、焼結性・焼結体特性に優れた窒化アルミニウム粉末が得られることを示したものであり、その技術的な寄与は大きい。

よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。