

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5584397号
(P5584397)

(45) 発行日 平成26年9月3日(2014.9.3)

(24) 登録日 平成26年7月25日(2014.7.25)

(51) Int.Cl. F 1
C 2 3 C 8/24 (2006.01) C 2 3 C 8/24

請求項の数 9 (全 8 頁)

(21) 出願番号	特願2008-83732 (P2008-83732)	(73) 特許権者	800000080 タマティールオー株式会社 東京都八王子市旭町9番1号 八王子スク エアビル11階
(22) 出願日	平成20年3月27日(2008.3.27)	(74) 代理人	100110928 弁理士 速水 進治
(65) 公開番号	特開2009-235498 (P2009-235498A)	(74) 代理人	100127236 弁理士 天城 聡
(43) 公開日	平成21年10月15日(2009.10.15)	(72) 発明者	清宮 義博 東京都日野市程久保2-1-1 明星大学 理工学部内
審査請求日	平成23年3月17日(2011.3.17)	(72) 発明者	大塚 寛治 東京都東大和市湖畔2-1074-38

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

容器内に挿入されたアルミニウム粉末及びアルミニウム片を、前記容器の外部に設けられたヒータを熱源として、窒素雰囲気下でアルミニウムの融点以上に加熱することにより、窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物を製造する第1熱処理工程を有し、

前記アルミニウム粉末は、表面がアルミン酸アンモニウムで被覆されている、窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

【請求項2】

請求項1に記載の窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法において、前記アルミニウム粉末の表面には酸化膜が形成されている窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

【請求項3】

請求項1に記載の窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法において、前記アルミニウム片に対する前記アルミニウム粉末の重量比率は、0.1以下である窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

【請求項4】

請求項1～3のいずれか一項に記載の窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法において、

前記第1熱処理工程の後に、加熱された前記塊状混合物を型で成形する加工工程を備える窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

10

20

【請求項 5】

請求項 4 に記載の窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法において、前記加工工程は、半凝固鍛造又は半溶融鍛造である窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

【請求項 6】

請求項 4 に記載の窒化アルミニウムとアルミニウム塊状の混合物の製造方法において、前記加工工程は、前記塊状混合物を加熱して一部の成分を溶解させて流動性を持たせ、その後、射出成形又は加圧成形により成形する工程である窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

【請求項 7】

請求項 6 に記載の窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法において、前記加工工程は鋳造又は溶湯鍛造である窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

【請求項 8】

請求項 4 ~ 7 のいずれか一つに記載の窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法において、

前記加工工程の前において、前記塊状混合物はアルミニウムを 70 重量%以上 95 重量%以下含有する窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

【請求項 9】

請求項 4 ~ 8 のいずれか一つに記載の窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法において、

前記加工工程の後又は前に、前記塊状混合物を窒素雰囲気下で加熱することにより、前記塊状混合物の中でアルミニウムの窒化反応を生じさせる第 2 熱処理工程を備える窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

窒化アルミニウムは、熱伝導率が高く、熱膨張係数が低く、化学的にも安定である等、優れた性質を有する材料である。このため、近年、半導体デバイス等やエンジン部材等、様々な分野へ応用されることが期待されている。

【0003】

従来、窒化アルミニウムを製造する方法としては、非常に高い気圧（例えば 100 気圧）の窒素雰囲気中でアルミニウムを高温（例えば 1600 °）に加熱する方法がある。この方法によれば、窒化アルミニウムの粉末を得ることができる。非特許文献 1 には、窒化アルミニウムの製造に関する研究が開示されている。

【非特許文献 1】小橋眞、斎木健蔵ら、日本軽金属学会第 104 回講演概要集（2003）2 .

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

アルミニウムの中に窒化アルミニウムを混合した複合材料は、優れた特性を示すと考えられる。しかし、上記した方法では、窒化アルミニウムを得るためには非常に高い気圧かつ高温にする必要がある。従って、アルミニウムと窒化アルミニウムの塊状混合物の製造コストが高くなっていた。

【0005】

本発明は上記のような事情を考慮してなされたものであり、その目的は、製造コストが低いアルミニウムと窒化アルミニウムの塊状混合物の製造方法を提供することにある。

10

20

30

40

50

【課題を解決するための手段】

【0006】

本発明によれば、容器内に挿入されたアルミニウム粉末及びアルミニウム片を窒素雰囲気下でアルミニウムの融点以上に加熱することにより、窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物を製造する第1熱処理工程を有する、窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法が提供される。

【発明の効果】

【0007】

本発明によれば、アルミニウムと窒化アルミニウムの製造コストが低くなる。

【発明を実施するための最良の形態】

10

【0008】

図1は、第1の実施形態に係る窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法に用いられる抵抗炉の構成図である。この抵抗炉は、反応チャンバー10を有している。反応チャンバー10には排気口16及びガス導入口11が設けられている。反応チャンバー10内には、容器13を加熱するための抵抗ヒータ14（例えばシリコンカーバイドヒータ）が設けられている。容器13には熱電対が取り付けられているため、熱電対のモニター線15を通じて容器13の温度を反応チャンバー10の外部でモニターすることができる。また抵抗ヒータ14と容器13の間には、容器13を均一に加熱するための均熱さや12が設けられている。ガス導入口11から導入されるガスは、均熱さや12の内側から反応チャンバー10の内部に供給される。容器13は例えばアルミナ製であり、窒素などの気体を外側から内側に浸透させることができる。

20

【0009】

次に、上記の抵抗炉を用いた窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物の製造方法について説明する。まず、アルミニウム片20及びアルミニウム粉末21を容器13の内部に配置する。アルミニウム粉末21は、例えば容器13の底部に配置され、複数のアルミニウム片20は、アルミニウム粉末21の上に配置される。アルミニウム片20は、長辺が例えば10mm～500mmであり、厚さが例えば5μm～1mmである。

【0010】

アルミニウム粉末21は粒状であってもよいし、鱗片状であってもよい。アルミニウム粉末21が粒状である場合、その粒径は例えば100μm以上1000μm以下である。アルミニウム粉末21が鱗片状である場合、その大きさは、長辺が1μm以上5μm以下である。アルミニウム粉末21は、表面に酸化膜が形成されている。この酸化膜は、例えば自然酸化膜である。アルミニウム片20に対するアルミニウム粉末21の重量比率は、例えば0.1以下である。

30

【0011】

なお、アルミニウム粉末21には、前処理として、10気圧以上の高圧窒素雰囲気中でアルミニウムの融点以下の温度で熱処理してもよい。また、機械的加圧プレス機を用いてアルミニウム粉末21を気孔の多い塊にしてもよい。このときの気孔率は、例えば30%以上である。

【0012】

40

また、アルミニウム粉末21をアルミン酸アンモニウム溶液に浸した後、乾燥することにより、アルミニウム粉末21の表面をアルミン酸アンモニウムで被覆してもよい。

【0013】

ついで、容器13を均熱さや12の内側に配置する。次いで、ガス導入口11から窒素ガス又は窒素ガスと不活性ガスの混合ガスを導入しながら排気口16から排気を続ける。これにより、反応チャンバー10の内部が空気から窒素雰囲気に置換される。反応チャンバー10の内部における窒素ガスの圧力は、例えば排気口16よりオーバーフローする常圧雰囲気が好ましいが、50気圧以下の加圧雰囲気であってもよい。またガス導入口11から導入する窒素ガスにアンモニウムガスを導入してもよい。ガス導入口11から導入されるガスにおけるアンモニウムガスの含有量は、例えば5%以上30%以下である。

50

【 0 0 1 4 】

次に、シリコンカーバイドヒータ 1 4 で容器 1 3 を、アルミニウムの融点以上（例えば 6 5 0 以上 1 4 0 0 以下）まで、例えば 2 /分以上の昇温速度で加熱する。この第 1 熱処理工程により、容器 1 3 内でアルミニウム 2 0 およびアルミニウム粉末 2 1 が溶融して、アルミニウムの窒化反応が生じ、アルミニウムと窒化アルミニウムの塊状混合物が形成される。処理時間は、例えば 5 分～ 2 0 分である。

【 0 0 1 5 】

このアルミニウムの窒化反応は、以下のように進むと考えられる。まずアルミニウムが溶融した状態において、アルミニウム粉末 2 1 の表面に位置していた酸化膜は、その内側に溶融アルミニウムを保持した状態でしばらくの間維持される。すなわち溶融したアルミニウム粉末 2 1 と溶融したアルミニウム片 2 0 は、アルミニウム粉末 2 1 の表面に位置していた酸化膜によってしばらく隔離されている。この間に、溶融したアルミニウム粉末 2 1 の中に雰囲気中の窒素が取り込まれ、溶融状態のアルミニウム粉末 2 1 の窒化反応が進む。そしてあるタイミングで酸化膜が破れ、溶融したアルミニウム粉末 2 1 と溶融したアルミニウム片 2 0 が接触する。アルミニウムの窒化反応は発熱反応であるため、この接触面においてアルミニウムの窒化反応が急激に進行する。

【 0 0 1 6 】

なお、アルミニウム粉末 2 1 の表面がアルミン酸アンモニウムで被覆されている場合、アルミン酸アンモニウムからも窒素が供給されるため、アルミニウムの窒化反応が発生しやすくなる。また窒素雰囲気にアンモニウムが含まれる場合、アンモニアから分解発生する発生基の水素により、アルミニウム粉末 2 1 の表面の酸化膜の還元作用が促進されるため、酸化膜が比較的厚い場合でも窒化アルミニウムの生成反応が生じる。また、窒素雰囲気中のアンモニアの濃度を制御することで反応速度を速めることができる。この場合、塊状混合物の量産に好適である。

【 0 0 1 7 】

第 1 熱処理工程におけるアルミニウムの窒化反応において、窒化反応が進行する速度は、処理温度及び雰囲気窒素の圧力によって制御することができる。また、第 1 熱処理の処理条件、例えば処理温度、雰囲気窒素の圧力、処理時間、及びアルミニウム片 2 0 に対するアルミニウム粉末 2 1 の割合等を調節することによって、塊状混合物の状態（例えば窒化アルミニウムの含有率）を作り分けることができる。

【 0 0 1 8 】

例えば所定の処理条件では、複数の窒化アルミニウム粒子がアルミニウムによって接合した窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物が得られる。得られた塊状混合物は、複数の窒化アルミニウム粒子の相互間にアルミニウムが位置しているか、又はネットワーク状すなわち網目状に成長した窒化アルミニウムの相互間にアルミニウムが位置した状態になっている。そして、塊状混合物の空隙率を 1 % 以下にすることができる。なお、アルミニウムの含有率が 5 0 % 以上 7 0 % 以下の場合、得られた塊状混合物の加工性が高くなる。また、アルミニウム粉末 2 1 の粒子径を大きくして、かつアルミニウム片 2 0 に対するアルミニウム粉末 2 1 の重量比率を 0 . 2 5 以上にすると、塊状混合物の中にアルミニウム粉末 2 1 が一部残り、上記ネットワーク内に純アルミニウムの粒子が均質に分散する状態を作ることにもできる。この様な状態にすると、塊状混合物は熱間強度が強いにもかかわらず、伸びがアルミニウムのように 15 % も保持できる。

【 0 0 1 9 】

後述する加工工程で混合物の塊状成型体を得るには、窒化アルミニウムがネットワーク状になるまで成長させることなく、窒化アルミニウムが分散状態にあるのが望ましい。すなわち反応の初期状態で第 1 熱処理をとどめるのが望ましい。例えば塊状混合物の窒化アルミニウム含有率が 5 重量 % 以上 3 0 重量 % 以下となるように、すなわちアルミニウム含有率が 7 0 重量 % 以上 9 5 重量 % 以下となるように、第 1 熱処理工程を行う。後述する第 2 熱処理工程の制御因子としては、第 1 熱処理工程後の塊状混合物の窒化アルミニウム含有率、並びに窒化アルミニウム粒子の形状及びその分散状態などの制御要因があるが、こ

10

20

30

40

50

れらは第1熱処理工程で制御が可能である。

【0020】

塊状混合物に含まれる窒化アルミニウムの粒子の平均粒径は一般に細かく、例えば μm オーダーとなる。しかもその粒度分布を急峻にすることができる。第1熱処理の条件によりこれを調整することは可能であり、例えば $10\ \mu\text{m}$ オーダーや $0.1\ \mu\text{m}$ オーダーも可能である。

【0021】

容器13が大きい場合、内部に窒素が供給できにくく反応が不均質になる。このため、容器13を浅くて広くするのが好ましい。この場合、アルミニウム粉末21を複数個所に分散してもよい。また反応チャンバー10も、浅くて広い平型炉とするのが望ましい。このとき、反応チャンバー10としてプッシャー式連続炉を用いてもよい。

10

【0022】

また、第1熱処理の温度を従来と比較して低くすることができるため、炉材の蒸発による不純物の混入が抑制され、アルミニウム片20及びアルミニウム粉末21の純度を高くするほど、純度の高い塊状混合物が得られる。

【0023】

次いで、塊状混合物を加熱し、その後、所望する形状に対応した上型及び下型の間に挟むことにより、加圧成形する(加工工程)。これにより、塊状混合物が所望の形状に成形される。

【0024】

20

この加工工程は、例えば半凝固鍛造又は半溶融鍛造である。半凝固鍛造である場合、まず、塊状混合物のうち溶解可能な成分を溶解させ、その後所定の温度まで冷却してその温度に保持することにより、溶解した成分の一部が固化した状態にする。そしてこの状態で、塊状混合物を上型及び下型の間に配置し、加圧成形する。半凝固鍛造の具体的な手法は、例えば特開2003-136223又は特開2004-322176に記載の方法がある。

【0025】

また半溶融鍛造である場合、まず加熱処理により塊状混合物のうち溶解可能な成分を全溶解させ、その後鑄型で鑄込むことにより、規格化された形状を有するピレットに加工する。次いで、ピレットを加熱処理して所定の温度に保持することにより成分の一部を溶融した状態にして、その状態でピレットを上型及び下型の間に挟む。

30

【0026】

半溶融鍛造又は半凝固鍛造のいずれの場合においても、上型及び下型の間に挟む段階で、塊状混合物(又はピレット)の固相率は、例えば30%~90%であるのが好ましい。塊状混合物を所定の固相率とするためには、例えば熱処理時間及び温度を調節すればよい。

【0027】

また、第1熱処理工程の後、加工工程の前に、上型及び下型それぞれを予備加熱し、その後、所定の固相率を有する混合物を上型及び下型の間に挟むのが好ましい。

【0028】

40

この加工工程は窒素雰囲気で行われても良い。この場合、加工工程は第2熱処理工程となり、塊状混合物の中でアルミニウムの窒化反応が生じ、塊状混合物の窒化アルミニウム含有率が上昇する。窒素雰囲気の圧力は、常圧でも良いし加圧でも良い。加圧である場合、 10 気圧以下であるのが好ましい。

【0029】

半凝固鍛造により加工処理を行う場合の一例を図2に示す。まず図2(A)に示すように、適切に予備加熱されて半凝固状態になった塊状混合物6を、塊状混合物6より低い温度に加熱されている下型8の中央に設置する。ついで、図2(B)に示すように、上型7を下型8に接近させることで半凝固状態にある塊状混合物6を圧縮変形させ、さらに図2(C)に示すように、上型7と下型8で構成される空間部に充填することで、成形体9を

50

完成させる。

【 0 0 3 0 】

塊状混合物 6 の圧縮変形中の型締め速度は、例えば 0 . 0 1 から 1 . 0 m / s が望ましい。また塊状混合物 6 の型内での移動が動的に変化するため、型締め速度は成形体の形に従って可変とすることが望ましい。また、半凝固状態の組成比やモルフォロジーでこの速度はいろいろ変化させることができる。また、塊状混合物 6 の余剰部分を排出するように、型の成形体空間より外にその集積部を設けるのが好ましい。また、型にエジェクタピンを設け、型離れを円滑にすることもできる。また型離れを容易にするため、成形体 9 の温度に対して上型 7、下型 8 の温度を変化させてもよい。

【 0 0 3 1 】

なお、得られた塊状混合物又は成形体 9 は、窒化アルミニウムの割合によって特性が様々に変化する。例えばアルミニウムの割合が高い場合、塊状混合物又は成形体 9 のその後の加工性が良くなり、アルミニウムの割合が低い場合、塊状混合物又は成形体 9 の特性が窒化アルミニウムの特性に近くなる。また、窒化アルミニウムの粒子の表面がアルミニウムによって被覆されているため、良好な耐湿性を得ることができる。

【 0 0 3 2 】

以上、本実施形態によれば、窒化アルミニウムとアルミニウムの塊状混合物及びその成形体 9 を容易に得ることができる。そして、混合物を得る従来方法と比較して製造条件は低温かつ低圧である。従って、製造コストも従来と比較して低くなる。また、得られた塊状混合物の成形体 9 は、金属アルミニウム合金に比べて優れた機械的強度、耐摩耗性、靱性を有し、高熱伝導で軽量である。また、アルミニウム粉末 2 1 及びアルミニウム片 2 0 を出発原料としているため、塊状混合物が含有する不純物を少なくすることができる。

【 0 0 3 3 】

尚、本発明は上述した実施形態に限定されるものではなく、本発明の主旨を逸脱しない範囲内で種々変更して実施することが可能である。

【 0 0 3 4 】

例えば、加工工程を、溶湯鍛造又は鑄造で行っても良い。この場合、混合物を加熱して一部の成分を溶解させて流動性を持たせ、その後、型に溶湯を流し込んで加圧成形し、又は溶湯を射出成形する。

【 0 0 3 5 】

また、成形体 9 の窒化アルミニウム含有率を向上させるため、加工工程の前又は後に、塊状混合物又は成形体 9 を窒素雰囲気下で熱処理してもよい（第 2 熱処理工程）。このときの熱処理条件の範囲及び窒素雰囲気の圧力範囲は、例えば上記した加工工程と同様であり、塊状混合物又は成形体 9 の中でアルミニウムの窒化反応が進行する。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 3 6 】

【 図 1 】 第 1 熱処理工程で用いられる抵抗炉の構成図である。

【 図 2 】 各図は、加工工程における型の動作を示す断面図である。

【 符号の説明 】

【 0 0 3 7 】

- 6 混合物
- 7 上型
- 8 下型
- 9 成形体
- 1 0 反応チャンバー
- 1 1 ガス導入口
- 1 2 均熱さや
- 1 3 容器
- 1 4 抵抗ヒータ
- 1 5 モニター線

10

20

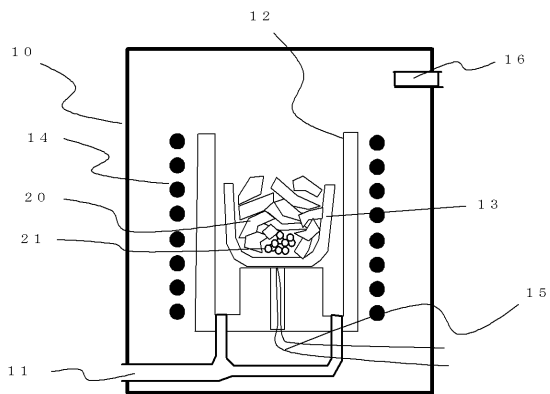
30

40

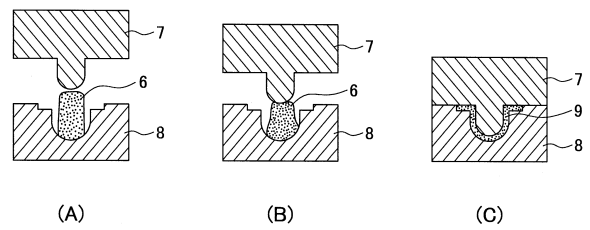
50

- 16 排気口
- 20 アルミニウム片
- 21 アルミニウム粉末

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 水野 愛

東京都日野市程久保2-1-1 明星大学理工学部内

審査官 祢屋 健太郎

(56)参考文献 特開2006-118952(JP,A)
特開平10-219369(JP,A)
国際公開第95/028505(WO,A1)
特開平11-117034(JP,A)
特開2003-136223(JP,A)
特開2004-322176(JP,A)
国際公開第2006/103931(WO,A1)
特開2008-266680(JP,A)
特開昭63-153285(JP,A)
特開平08-003601(JP,A)
特開昭55-038907(JP,A)
特開2000-192185(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C23C 8/00-12/02