

平成 27 年度
革新的ものづくり産業創出連携促進事業
戦略的基盤技術高度化支援事業

「低コスト・球状窒化アルミニウム粉末並びに
回転バレル式窒化アルミニウム粉末製造装置の開発」

研究開発成果等報告書概要版

平成 28 年 3 月

委託者 中部経済産業局

委託先 一般財団法人ファインセラミックスセンター

目 次

第1章	研究開発の概要	
1 - 1	研究開発の背景・研究目的及び目標	1
1 - 2	研究体制	2
1 - 3	成果概要	5
1 - 4	当該研究開発の連絡窓口	7
第2章	本論	
2 - 1	原料粉末に関する課題への対応	8
2 - 2	窒化アルミニウム製造装置に関する課題への対応	15
2 - 3	開発した窒化アルミニウム粉末の材料特性と放熱特性の検証	21
2 - 4	プロジェクトの管理運営	25
第3章	全体総括	
3 - 1	複数年の研究開発成果	26
3 - 2	研究開発後の課題	28
3 - 3	事業化展開	29

1章 研究開発の概要

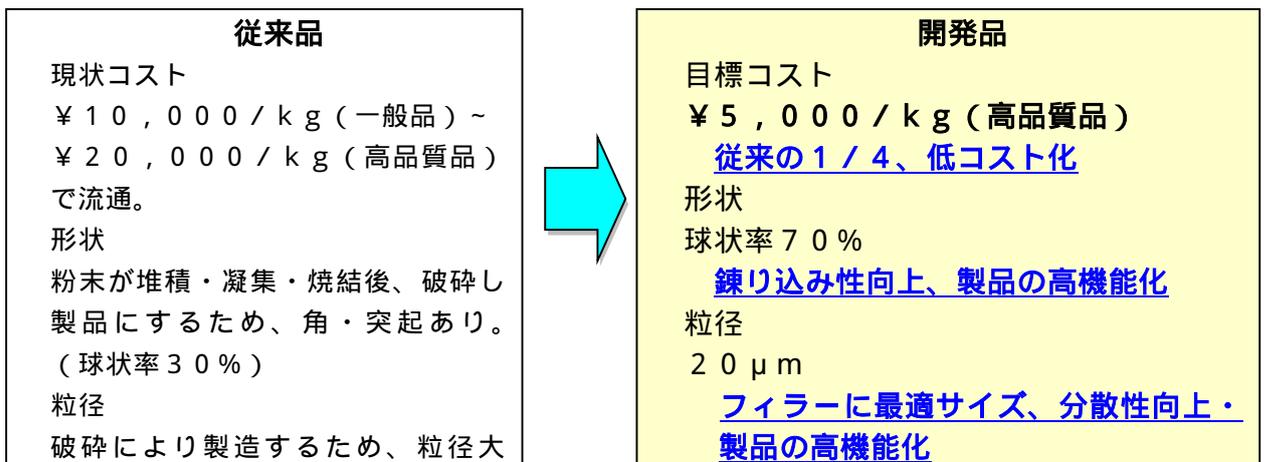
1 - 1 研究開発の背景・研究目的および目標

自動車制御回路の高性能化、LEDヘッドランプの量産化、情報家電電子機器の小型化等に伴って、そのデバイスにおける発熱量の増加が解決課題となっている。電子機器等から発する熱を放熱させ、かつ絶縁性のある材料として、これまでアルミナや窒化アルミニウムなどが検討されてきた。アルミナに比べ窒化アルミニウムは、熱伝導率が約10倍と高いため冷却効率が良く、より放熱材料として適していることがわかっているが、アルミナに比べて約10倍と高コストであるため市場ではあまり普及していない。近年、中国製の安価な窒化アルミニウムが流通しているものの品質面で問題があるため使用用途が限られており、国内で良質・安価な窒化アルミニウムの製造が急務となっている。

さらには、従来の製法において製造される窒化アルミニウム粉末は、窒化反応中に炉底に堆積し焼結するため、固まり状になり後工程で破砕が必要になる。そのため、製品の形状は角や突起が生じ、球状になっていない。樹脂へのフィラー材として適用するにあたって粉末の角・突起は、樹脂を放熱部材の形状に成形するにあたって、金型や成形機の摩耗に著しく影響を与える。そのため、球状率の向上と微細化が課題となっている。

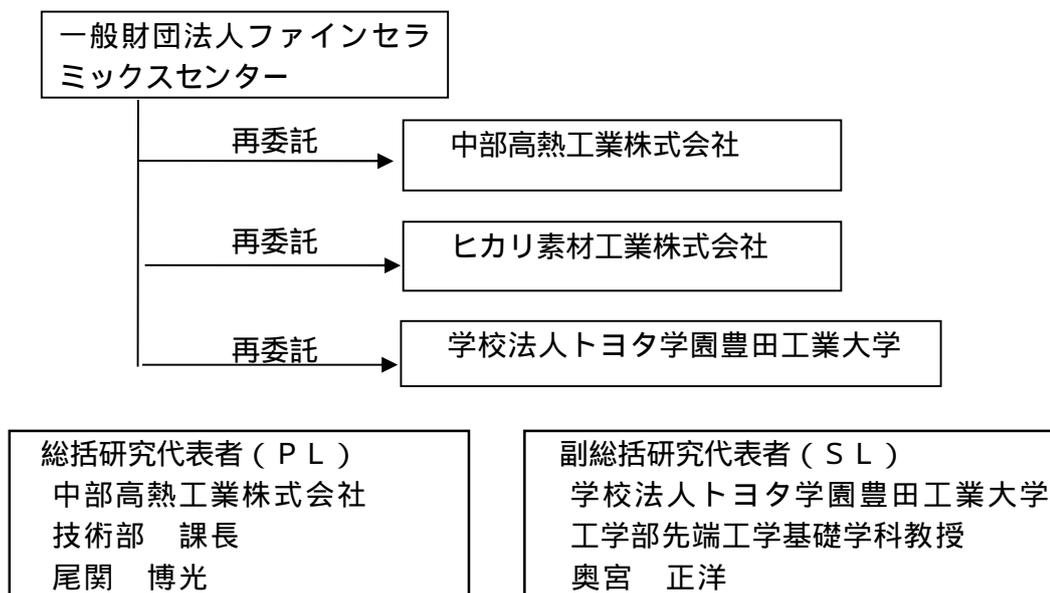
これらの課題に対応するため、回転バレル式窒化アルミニウム粉末製造装置を新たに開発し安価で高性能な窒化アルミニウム粉末の量産化を目指す。

最終目標値



1 - 2 研究体制

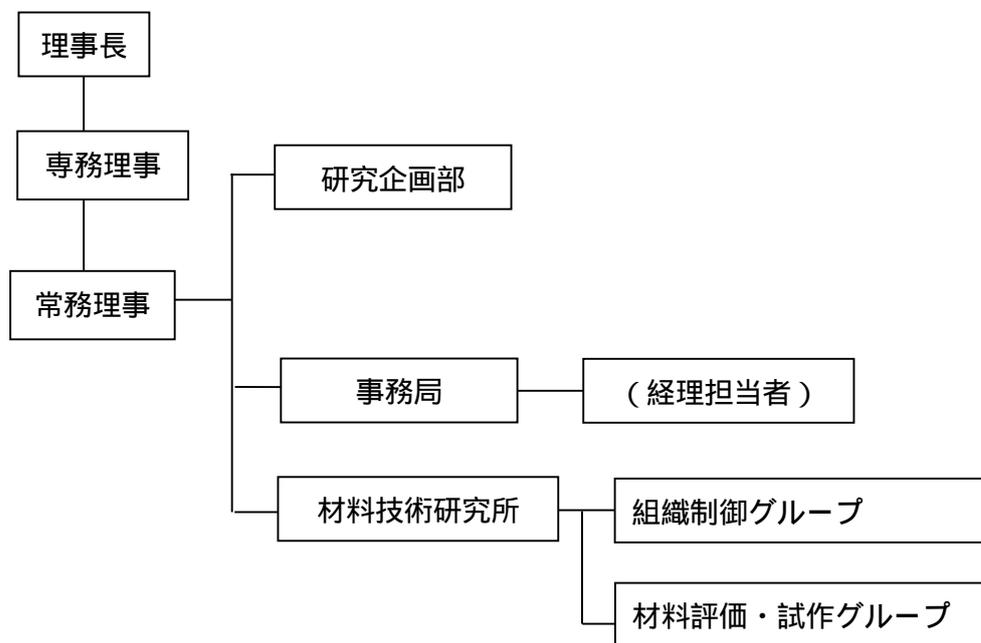
1-2-1 研究組織



1-2-2 管理体制

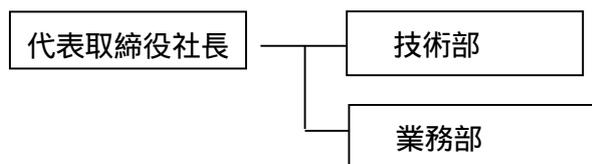
(1) 事業管理機関

一般財団法人ファインセラミックスセンター

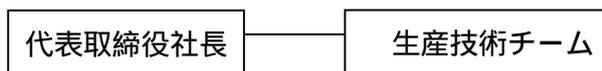


(2) 再委託先

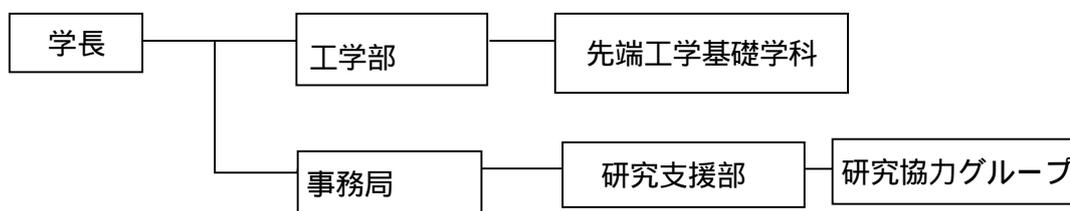
中部高熱工業株式会社



ヒカリ素材工業株式会社



学校法人トヨタ学園豊田工業大学



1-2-3 研究者氏名

(1) 事業管理機関

一般財団法人ファインセラミックスセンター

管理員

氏名	所属・役職	備考
山本 義明	研究企画部 課長	
松田 典子	事務局 課長補佐	

研究員

氏名	所属・役職	備考
松田 哲志	材料技術研究所 組織制御グループ 主任研究員	
小川 光恵	材料技術研究所 材料評価・試作グループ 上級技師	
鈴木 佐知子	材料技術研究所 材料評価・試作グループ 上級技師補	
早川 一幸	材料技術研究所 材料評価・試作グループ 上級技師補	

(2) 再委託

中部高熱工業株式会社

氏名	所属・役職	備考
尾関 博光 和田 知己 河澄 英樹	技術部 課長 技術部 主任 技術部	総括研究代表者

ヒカリ素材工業株式会社

氏名	所属・役職	備考
坂口 晋一 原 憲一 立木 登美男	代表取締役 生産技術チーム リーダー 生産技術チーム	

学校法人トヨタ学園豊田工業大学

氏名	所属・役職	備考
奥宮 正洋	工学部先端工学基礎学科 教授	副総括研究代表者

1 - 3 成果概要

原料粉末に関する課題への対応

アルミニウム (Al) 原料粉末の微細化として、 $20\mu\text{m}$ 以下粉末歩留り向上の条件が見出せた。溶湯温度の影響度を検討し、 $20\mu\text{m}$ 以下粉末の歩留まりが最適となる溶湯温度の管理幅を特定した。

また、釣合い試験機によるディスク回転バランス調整の結果、ディスク外径を大きくした場合における高周波スピンドルモータの高回転域でのフレ、振動の発生を抑制した。さらにディスク外径と回転数の関係については、ディスク径が同サイズの場合、材質、形状の見直しにより従来型に対して造粒条件が大幅に改善された。これにより、ディスク回転数限界値は開発初年度の 1.5 倍 (遠心力で 2.4 倍) となった。これらの結果により $20\mu\text{m}$ 以下粉末歩留りが初年度の 4% から 34% 以上へと大幅に改善した。

また、 $20\mu\text{m}$ 以下粉末の分級については、スピンエアーシーブ設備における問題点と最適条件の調査を行い、微細粉末、及び凝集粉末が大幅に増加したことにより、分級条件に大きな影響を与え、分級効率が悪化する原因を見出せた。

原料粉末球状化の向上として、粉末の球状化に最適な雰囲気ガスと雰囲気ガスの酸素濃度管理値を確立し、粉末球状化の最適条件を見出した。

窒化アルミニウム製造装置に関する課題への対応

- 1 . 凝集、堆積しない回転バレル式窒化装置の設計

バレルにより揺動運動をさせながら純アルミニウム粉末を窒素雰囲気中で窒化させた。活性剤として用いた Al-50wt%Mg 粉末の量をかえて実験を行い、以下の結論を得た。

- ・ Al-50wt%Mg 粉末を 5g 加えた実験では、純アルミニウム粉末の内部にまで窒素が拡散し窒化アルミニウム (AlN) を形成した。
- ・ Al-50wt%Mg 粉末を加えない実験では、窒化アルミニウムは形成されなかった。
- ・ Al-50wt%Mg 粉末の量が増えるにつれて焼結をする割合も増す。

- 2 . 試作装置による製造条件の確立

回転バレル式窒化試作装置での検討においては、ヒーターを高温用ヒーターに変更し、昇温時間の短縮等を可能し揺動角度および速度、窒化温度、反応抑制材、窒素ガスの噴入量等のファクターを可変させて、窒化アルミニウム粉末を生成した。

小規模回転バレル式窒化装置での検討においては、回転バレル式窒化試作装置で得られたデータを基に設計・製作を行った。製作した小規模回転バレル式窒化装置にて、真空排気時の真空度および排気時間、揺動角度および速度、窒化反応温度、反応抑制材、窒素ガスの噴入量等のファクターを可変させて、窒化アルミニウム粉末を生成した。粒度分布測定装置・X 線回折装置を用い分析した結果、窒化アルミニウムであることが確認できた。しかし、粒径 $20\mu\text{m}$ ・球状率約 70% の粉末も確認されているが、球状率の向上、粒径のバラツキの減少凝集の低下が今後の課題となった。

開発した窒化アルミニウム粉末の材料特性と放熱特性の検証

- 1 . 開発した窒化アルミニウム粉末の材料特性の把握

小規模回転バレル式窒化装置にて試作した窒化アルミニウム粉末を粒度分布測定装置・球状窒化アルミニウム粉末観察装置を用いてその粒径、球状率を観察した。観察した結果、粒径 $20\mu\text{m}$ ・球状率約 70% の窒化アルミニウム粉末が出来ていることを確認した。

- 2 . 放熱部材を想定した樹脂への練り込み性の確認

生成された窒化アルミニウム粉末をポリプロピレン(PP)樹脂に窒化アルミニウム添加量 0 wt%, 10 wt%, 20 wt%, 30 wt% の 4 水準を射出成形機にてフィラー材を作製した。4 水準のフィラー材の表面観察、熱伝導率測定を行い、樹脂への練り込み性、分散性、熱伝導率の確認を行った。窒化アルミニウム添加量 30 wt% までは、練り込み性、分散性に問題ないことが確認できた。フィラー材の熱伝導率については、窒化アルミニウム添加量の増加による熱伝導率の向上が確認できた。

1 - 4 当該研究開発の連絡窓口

事業管理機関

一般財団法人ファインセラミックスセンター

研究企画部 課長 山本 義明 E-mail : yamamoto@jfcc.or.jp

TEL : 0 5 2 - 8 7 1 - 3 5 0 0 FAX : 0 5 2 - 8 7 1 - 3 5 9 9

第2章 本論

2-1 原料粉末に関する課題への対応

2-1-1 原料粉末粒径の微細化

試験方法

遠心カアトマイズガス造粒法にて、ディスク外径、及びディスク回転速度を変化させてアルミニウム原料粉末を製造し、粉末粒度分布への影響度合いを調査する。以下に試験に供した設備の概略についての説明を記す。

・遠心カアトマイズガス造粒法

まず、造粒タンクと呼ばれる密閉された容器の中を還元ガス雰囲気を保つ。次に造粒タンク上部の保持炉内で温度調整された溶湯を、造粒タンク内で回転しているディスクと呼ばれる円盤の上に落とし、円盤上から周囲に溶湯を飛散させて粉末を造るという構造となる。なお溶湯は別の溶解炉にて溶解、温度管理しているものを造粒タンク上部の保持炉にすくい移し、保持炉内溶湯温度は熱電対により直接測定の上、温調により自動制御されている。

また、 $20\mu\text{m}$ 以下の粉末を分級するにあたり風力分級という方法があるが、こちらの分級機は分級精度にやや問題があり、今回の分級には適していない。そのため平成25年度に導入したスピンエアーシーブ設備にて原料粉末から $20\mu\text{m}$ 以下の粉末を分級し、実際に分級した際の問題点を洗い出し、 $20\mu\text{m}$ 以下粉末の取得率が上がる最適条件を調査する。以下に試験に供した設備の概略について説明をする。

・スピンエアーシーブ設備

$20\mu\text{m}$ の金属ふるい網と、対流を利用した構造の分級機となっており、ブローにて管路内のガスを吸引することにより、テーブルフィーダーから金網下側に供給された粉末が舞い上がる。その際円を描くような対流により $20\mu\text{m}$ 以下の粉末は金網で分級され、その先のサイクロン部分にて回収されるという構造になっている。金網を使用することによりオーバーサイズの粉末の通過を防ぐことができるため、通常風力分級よりも分級精度が高くなる。また金網の上からではなく、下側から粉末を通過させることにより金網の目詰まりがしにくくなり、 $20\mu\text{m}$ 以下の粉末分級が可能となった。

試験条件

材料インゴットを溶解炉にて溶解後、溶湯温度を一定の温度範囲で調整し、造粒機の保持炉に溶湯を移す。その際、温調で溶湯温度を自動調整しながら粉末を製造する。平成26年度導入の高周波スピンドルモータに取り付けるディスクは、平成27年度に導入した釣合い試験機を使用し、ディスクの回転バランスを調整したものを取り付け。また使用するディスクは、強度の高い物を2種類選定の上、従来のもものと合わせて3種類の材質とし、粉末粒径とディスク条件の関係式(図1)より、粉末粒径に影響のある外径、及び回転数の限界について比較、検証の上、外径と回転数をそれぞれ調整した状態で粉末を製造する。それら各種条件で製造した粉末を採取し、原料粉末のままの粒度分布測定を行い、各条件での粒度分布、 $20\mu\text{m}$ 以下の粉末への影響度を調査する。なお粒度分布測定は、乾式音波ふるい測定機、レーザ回折式粒度分布測定装置を使用した。また走査電子顕微鏡にて形状観察を行い、実際の粉末粒径、凝集状態を確認の上、粒度分布への影響度評価を行うこととする。またスピンエアーシーブ設備による粉末回収重量からの取得率も加味し、総合的な評価を行った。

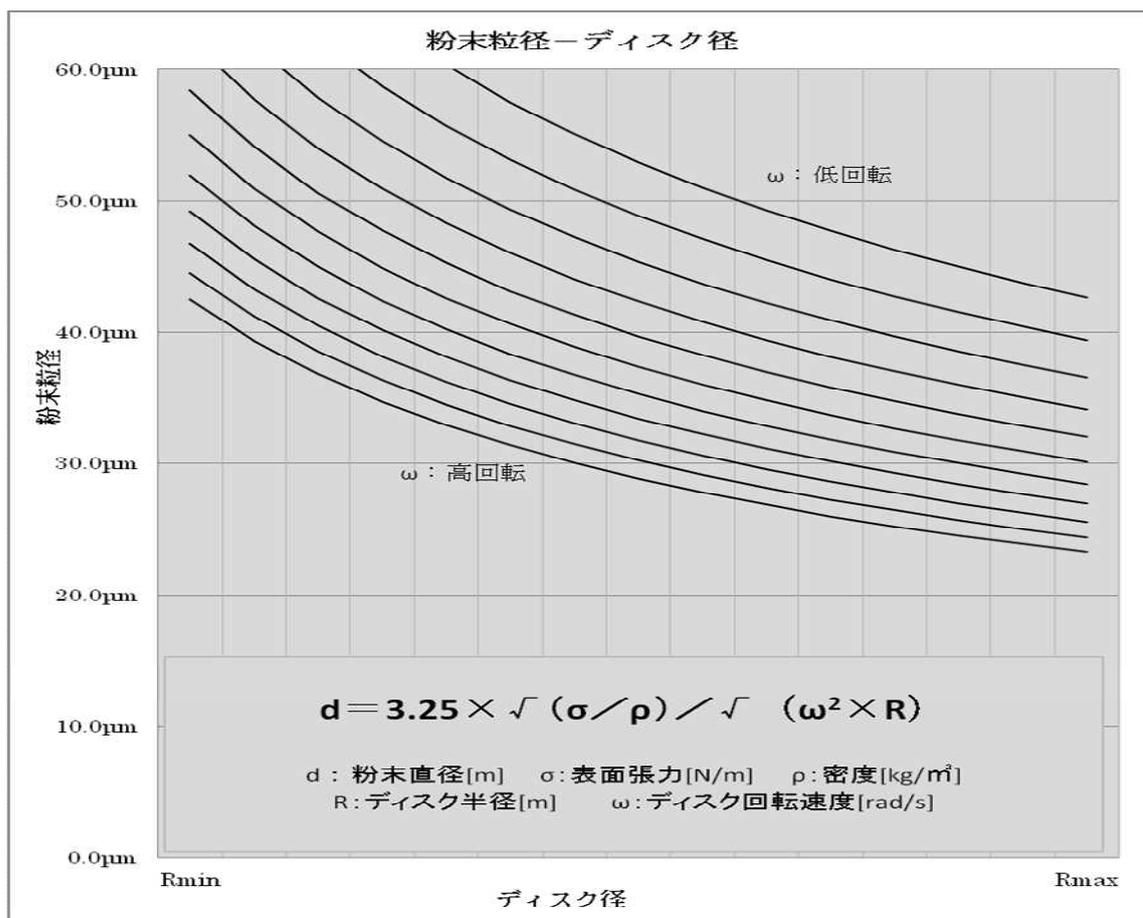


図 1.粉末粒径とディスク条件の関係式

結果

(1)溶湯温度の影響度

溶湯温度による粉末粒度分布への影響度合いについては、中温度より少し低めの溶湯温度において、20 μm 以下粉末の取得率が最大となるが、高温側付近でも取得率が上昇するポイントが観察される。但し、高温側、低温側ともにディスクの状態はあまり良くない。

(2)ディスク外径と回転数の関係調査

ディスク材質、形状変更によるスピンドルが可能な回転数の限界値調査を行った（表 1）。ディスクの回転バランスを取らない場合、外径 DS【mm】、回転数 N5【r.p.m.】が限界であった。（平成 26 年度実績）。

釣合い試験機により回転バランスを取った場合、フレ、振動の発生は無くなったが、従来の材質 A については回転数上昇に伴い、突然ディスクが破損し、平成 26 年度実績からの改善は見られない。材質 B、及び材質 C に関してはディスク外径を DM【mm】より大きくしても、ディスク回転数 N4【r.p.m.】で安定した動作確認がとれた。

なお、それぞれの材質でのディスク外径、回転数限界の違いは、材質ごとによる強度の違いが原因である。

（ディスク外径 ：小---DS < DM < DL---大）

（ディスク回転数：低---Nmin < N1 ~ N6 < Nmax---高）

（破壊強度 ：低---材質 A < 材質 B < 材質 C---高）

表 1.ディスク外径 - 回転数特性調査表

	回転テスト条件		限界値状況	スピンドル種類	ディスク形状	ディスク材質	粉末粒径d50 計算値	備考
	ディスク外径	ディスク回転数						
1	DL	Nmin	-	旧型	標準型		54.0 μm	旧型実績
2	DS	N5	-	新型	軽量型		39.7 μm	H26年度実績
3	DL	N1	突然ディスク破損		材質A		43.1 μm	釣合い試験機 によるディスク バランス調整
4	DM	N3	突然ディスク破損				38.7 μm	
5	DS	N6	突然ディスク破損				37.5 μm	
6	DL	N2	突然ディスク破損		材質B		38.7 μm	
7	DM	N4	1時間問題なく回転				38.2 μm	
8	DM	N5	スムーズな回転確認				37.4 μm	
9	DL	Nmax	3分で突然ディスク破損		材質C		33.2 μm	
10	DL	N4	1時間問題なく回転			36.2 μm		

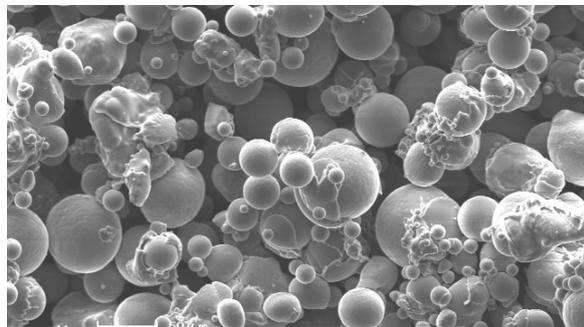
(3)ディスク遠心力の影響度

ディスク回転速度による粉末粒度分布への影響度合いの試験結果を表 2 に示す。従来の造粒した原料粉末に対して、遠心力が大きくなる（回転数・ディスク外径拡大）に伴い、粉末が微細化されていることが見て取れる。

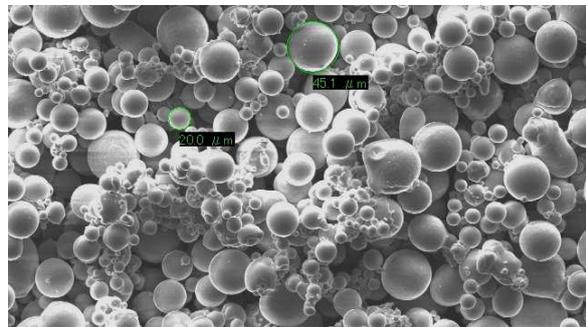
表 2.原粉粒度分布-ディスク回転速度特性調査表

	ディスク外径	ディスク回転数	粉末粒径				原粉粒度分布		備考
			計算値	実測値d50 (音波)	実測値d50 (レーザ)	実測値d10 (レーザ)	-20 μm	+20/-38 μm	
1	DL	Nmin	54.0 μm	45.2 μm	48.7 μm	30.0 μm	4.17%	23.49%	旧型実績
2	DS	N5	39.7 μm	38.7 μm	37.1 μm	20.3 μm	11.12%	36.66%	H26年度実績
3	DM	N4	38.2 μm	33.9 μm	33.6 μm	19.7 μm	15.82%	44.18%	釣合い試験機 によるディスク バランス調整
4	DL	N4	36.2 μm	31.9 μm	32.0 μm	16.8 μm	19.50%	45.91%	

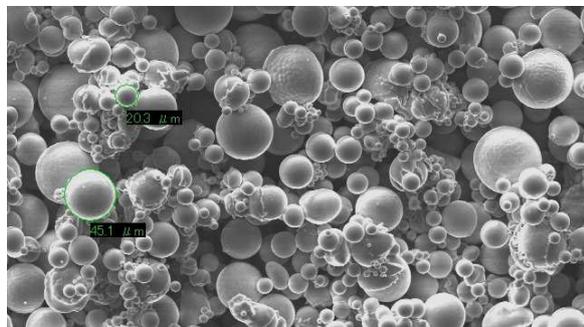
図 2.粉末形状写真（ディスク回転速度特性）より、遠心力がより大きくなれば粉末形状が細かくなっている事が確認できる。さらに微細粉末量の増加により、微細粉末同士の凝集状態が観察できる。



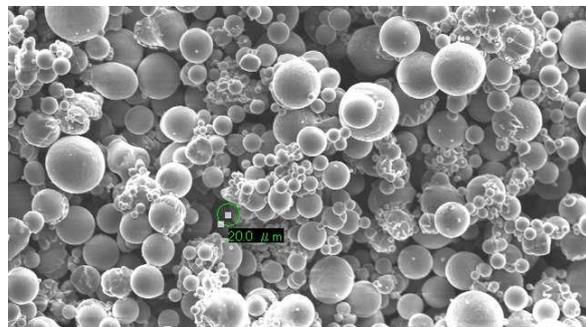
条件： DL【mm】/Nmin【r.p.m.】



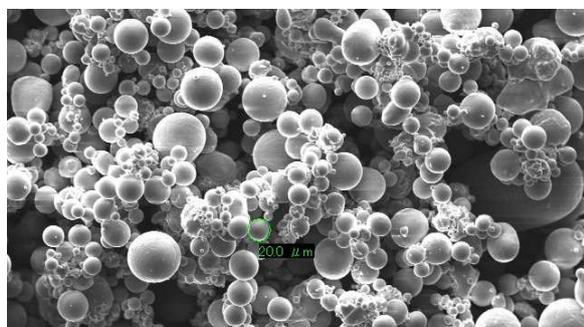
条件： DS【mm】/N5【r.p.m.】



条件： DS【mm】/N4【r.p.m.】



条件： DM【mm】/N4【r.p.m.】



条件： DL【mm】/N4【r.p.m.】

図 2.粉末形状写真（ディスク回転速度特性）

(4) スピンエアースリーブ設備による原料粉末のふるい分け、及び凝集粉末分散への影響

微細化した原料粉末をスピンエアースリーブ設備で分級した粉末の 20 μm 網上の粒度分布測定結果は、図 3 に示す通りである。分級後の網上粉末粒度分布が原料粉末の粒度分布とほとんど変わらない結果となった。

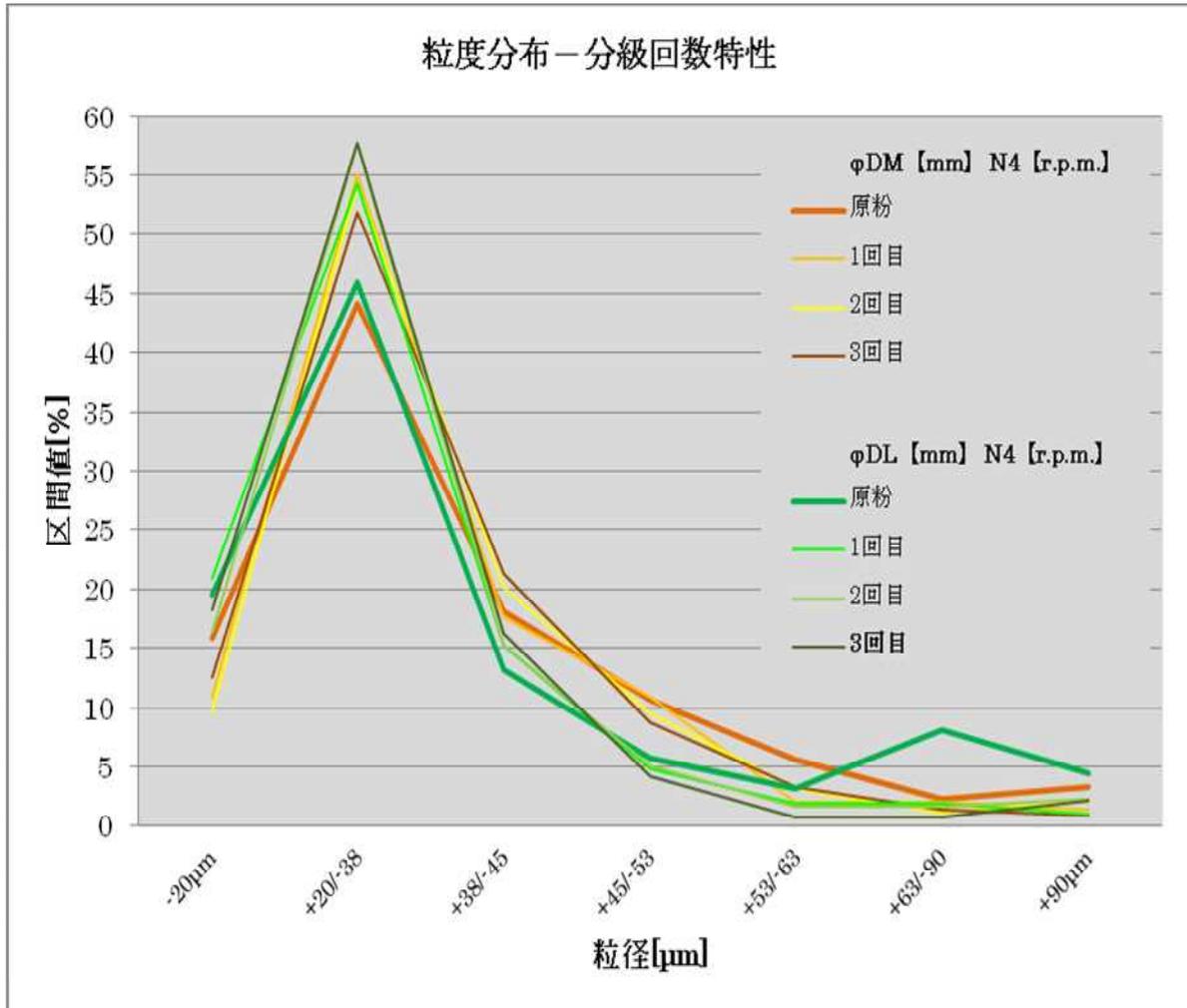


図 3.粒度分布 - 分級回数特性

結論（考察・課題）

(1) 溶湯温度の影響度

- 安定して 20 μm 以下粉末の歩留まりが良い溶湯温度は、中温度より少し低目で良いことが確認できた。

(2) ディスク外径と回転数の関係

- 釣合い試験機導入により、ディスク外径が DM【mm】以上における高周波スピンドルモータの高回転域での、フレ、振動の発生をなくした。
- 高周波スピンドルモータを高回転まで回転した場合、回転バランス調整済ディスクを使用しても、ディスクが破損するため、ディスク強度 up 対策が必要となった。
- 原粉粒度分布における 20 μm 以下の分布は、分級作業前の粉末が約 20%（目標値 40%を下回る）だが、凝集状態が分散された状態では 34%以上となった。

(3) 粉末微細化の影響

- 20 μm 以下の微細粉末が大幅に増えたことにより、微細粉末の凝集状態が更に悪化した。設備内部品への微細粉末付着による凝集、及び稼働率の悪化が考えられるため、微細粉末の付着防止対策の実施が必要となった。

(4) スピンエアースリーブ設備による原料粉末のふるい分け、及び凝集粉末分散への影響

・20 μm のふるい網で分級後、20 μm 以下の粉末が原粉粒度分布の測定値から予測される重量が採取されているにも関わらず、網上粉末に 20 μm 以下の粉末が原粉粒度分布測定時と同量の割合で残っている。また分級後の網上粉末粒度分布で、45 μm 以上の粉末量が 10% 以上も減少している。これは分級機を使用することで、凝集されていた粉末が分散された結果と考えられる。そのため、凝集粉末の分散が必要となった。また、粉末供給部での詰まりが発生し、安定した条件での分級ができず、分級効率が悪化しているため、粉末供給システムの見直しも課題となった。

2-1-2 原料粉末球状化の向上

試験方法

上述の遠心カアトマイズガス造粒法にて、雰囲気ガスの種類、及び酸素濃度を変化させてアルミニウム原料粉末を製造し、粉末形状に及ぼす影響度合いを調査した。

試験条件

(1) 雰囲気ガスの種類による原料粉末球状率への影響度

遠心カアトマイズガス造粒機の造粒タンク内雰囲気を不活性ガス状態とし、材料インゴットを溶解炉にて溶解後、溶湯温度を一定の温度範囲で調整し、造粒機の保持炉に溶湯を移す。その際、温調で溶湯温度を自動調整しながら、ディスク回転数を一定に調整した状態で粉末を製造する。一定条件で製造した粉末を採取し、原料粉末のままの形状観察を行い、雰囲気ガスの種類の違いによる粉末形状への影響度を調査した。なお、走査電子顕微鏡にて形状観察を行い、粒子解析ソフトにて形状判定を行った。球状率については、粒子解析ソフトによる丸さの度合いで形状判定を行った。

(2) 酸素濃度による原料粉末球状率への影響度

遠心カアトマイズ造粒機の造粒タンク内雰囲気の不活性ガス状態とし、酸素濃度を、それぞれ低濃度、中濃度、高濃度の 3 種類に調整する。材料インゴットを溶解炉にて溶解後、溶湯温度を一定の温度範囲で調整し、造粒機の保持炉に溶湯を移す。その際、温調で溶湯温度を自動調整しながら、ディスク回転数を一定に調整した状態で粉末を製造する。一定条件で製造した粉末を採取し、原料粉末のままの形状観察を行い、各酸素濃度での粉末形状への影響度を調査する。なお、走査電子顕微鏡にて形状観察を行い、粒子解析ソフトにて形状判定を行った。球状率については、粒子解析ソフトによる丸さの度合いで形状判定を行った。

(3) 丸さの度合いとは（形状判定、図 4）

$$\text{丸さの度合い} = \frac{\sqrt{3}}{2} \times (\text{絶対最大径})^2 \div 4 \div S$$

... 1 より大きいほど丸くない（1.07 で正十角形、1.16 で正七角形）

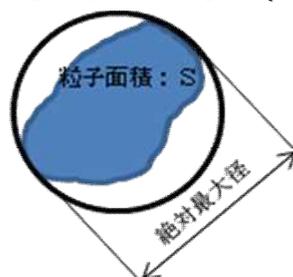
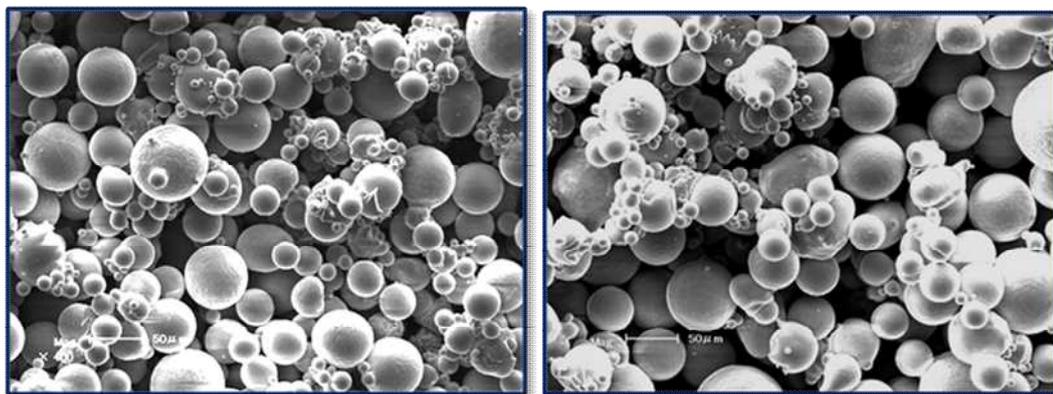


図 4.丸さの度合い

結果

(1) 雰囲気ガスの種類による原料粉末球状率への影響度

雰囲気ガスの種類による粉末形状の影響度について、2種のガス（A、B）を用いて試験を行った。顕微鏡観察をした結果（図5）、及び粒度分布においても両者に大きな差異は見られなかった。また丸さの度合いも、ガスAが1.07、ガスBが1.06となり、ほぼ完全な球体であると判断しても良いと考えられる。



ガスA 雰囲気

ガスB 雰囲気

図5. 雰囲気ガスによる粉末球状化率への影響

(2) 酸素濃度による原料粉末球状率への影響度

酸素濃度による粉末形状への影響度について、低濃度、中濃度、高濃度の3条件で試験を実施した。酸素濃度が中濃度以上になると、特に粒径の大きな粉末に異形状のものが散見され、高濃度以上になると球状を維持することもできない結果が見てとれる。また丸さの度合いも、低濃度が1.10、中濃度が1.15、高濃度が1.17となり、中濃度以上は球状率70%以上を満足しているとは言えない（図6）。



酸素濃度：低濃度

酸素濃度：中濃度

酸素濃度：高濃度

図6. 酸素濃度による粉末球状化率への影響

結論（考察・課題）

雰囲気ガスの種類に関して、ガス種で粉末形状への影響度に大きな差異は見られなかった。また、酸素濃度に関しては、一定の酸素濃度以下にコントロールしていれば、粉末球状化率が良好な状態を維持できることが確認できた。

2 - 2 窒化アルミニウム製造装置に関する課題への対応

2-2-1 凝集、堆積しない回転バレル式窒化装置の設計

実験方法

本研究で用いた実験装置の概略を図7に示す。炉をヒーターで温め制御装置でモーターを動かし、バレルを揺動させる。バレル内に正八角形状チャンバーを入れ、真空引きと窒素充填を繰り返す。窒素は、処理中はマスフローコントローラで流入させながら行った。チャンバー内の試料には窒化させるための純アルミニウム (Al) 粉末、研削材・焼結防止材としてアルミナ (Al_2O_3)、粉末性剤としてアルミニウム - マグネシウム (Al-Mg) 粉末を、焼結防止材として SUS プレートを入れ、それぞれの粉末の粒径や比率を変えて実験を行った。

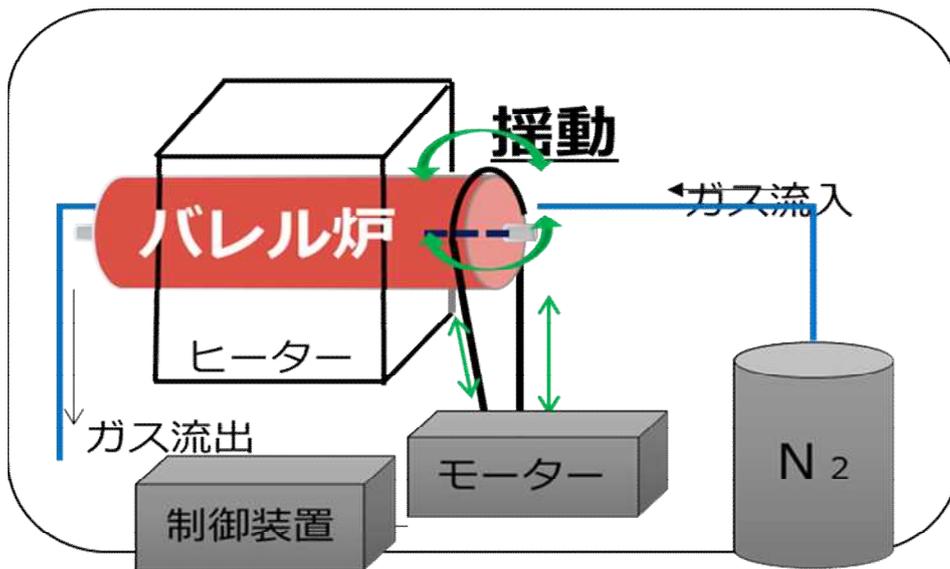


図7 . 実験装置概略

実験結果

試料を純 Al 粉末(50g)、 Al_2O_3 粉末(300g)、Al-Mg 粉末の量を 0g,2g,3g,5g と変化させて実験を行い、焼結と窒化アルミニウムの生成について XRD や EPMA で観察を行った。Al-Mg 合金 5g で処理をした場合の純 Al 試料の XRD と EPMA 結果を図8、図9に示す。

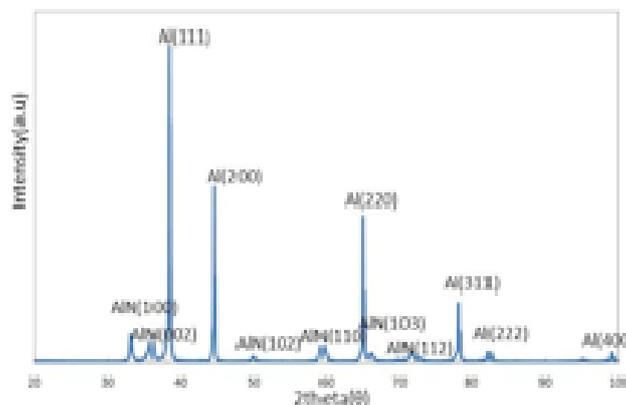
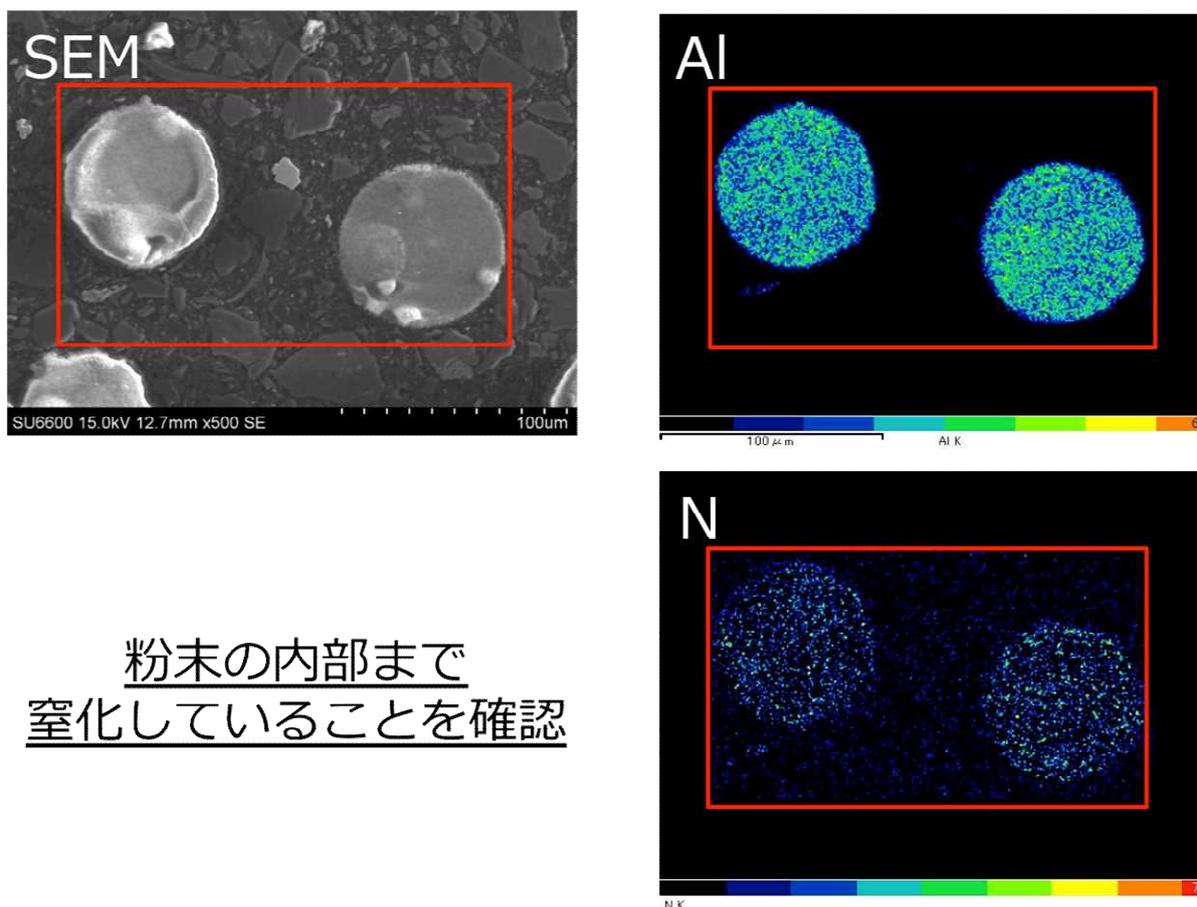


図8 . Al-Mg 合金 5g の XRD 結果



粉末の内部まで窒化していることを確認

図9 . Al、N の EPMA 面分析結果

XRD の結果より窒化アルミニウムのピークが確認された。また、図9より粉末の内部にまで窒素が拡散していることが分かる。よって窒化アルミニウムは表面のみでなく内部にまで形成されていると考えられる。

次に、Al-Mg 合金 0g で処理をした場合の純 Al 試料の XRD 結果を図10に示す。

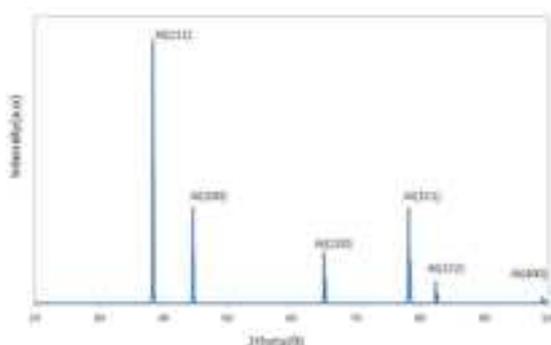


図10 . Al-Mg 合金 0g の XRD 結果

図10より Al-Mg 合金を全く使用しない場合は、窒化アルミニウムのピークを確認することができなかつたため、Al-Mg 合金が必要となり、活性剤の作用を示していることが分かる。

次に、図 1 1 に活性剤として使用した Al-Mg 合金量と試料全体中で焼結した重量の割合を示す。

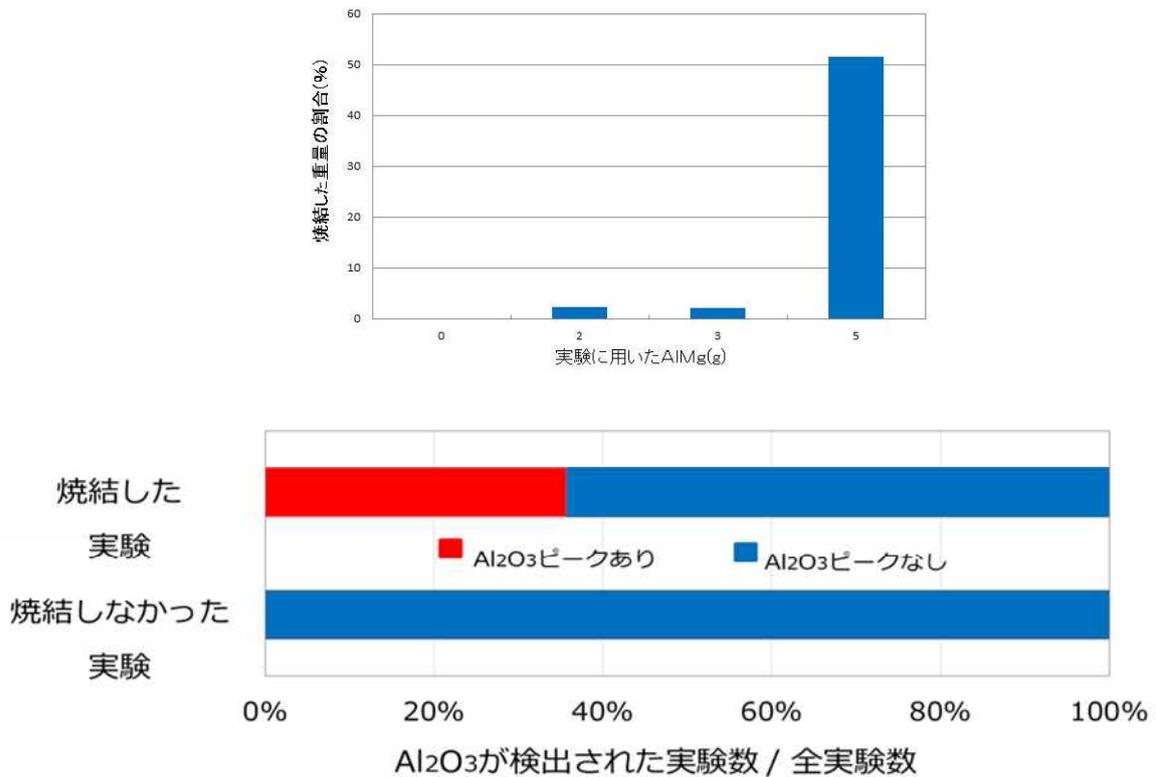


図 1 1 . Al-Mg 合金量と焼結した割合および窒化との関係

Al-Mg 合金 0g では焼結は起こらず、5 g では全体の 50% が焼結するという結果となった。この結果から、焼結の原因は Al-Mg 合金にあると考えられる。よって、Al-Mg 合金の使用量はなるべく少なくすることが望ましい。

窒化粉末を用いて熱伝導率の測定を行った。表 3 に示す通りほぼ目標値を達成できた。

表 3 . 窒化粉末の熱伝導率測定結果

複合材料における 実験後試料の 配合割合	熱伝導率 試料	熱伝導率 試料
	[W/(m·K)]	[W/(m·K)]
0 wt%	1.5	1.5
10wt%	1.7	1.6
20wt%	2.4	2.1
30wt%	2.9	1.9

2-2-2 試作装置による製造条件の確立

2-2-2-1 回転バレル式窒化試作装置での検討

回転バレル式窒化試作装置の製作と改造

平成26年度に回転バレル式試作装置を製作し、平成27年度にヒーターを高温用ヒーターに変更し、昇温時間の短縮等を可能とした。

改造した装置の昇温実験を実施し、各部分の温度測定（ヒーター温度・炉体温度・炉内温度・駆動部部品温度）を実施した。その後、揺動角度および速度、窒化反応温度、反応抑制材、窒素ガスの噴入量等のファクターを可変させて、窒化アルミニウム粉末を生成した。

改造した回転バレル式窒化試作装置を従来よりも短時間で高温まで昇温し、その後一定時間保持という温度パターンにて昇温した。その結果、内部温度の上昇も確認できた。

回転バレル式窒化試作装置での実験

回転バレル式窒化試作装置を用いて窒化处理実験を行った。原料粉末は Al powder (under 20 μm) (ヒカリ素材開発品)、Al powder と AlN を用いた。

これら 3 種類の粉末を用い、真空排気時の真空度および排気時間、揺動角度および速度、窒化反応温度および粉末の実態温度、反応抑制材、窒素ガスの噴入量等のファクターを可変させて、窒化アルミニウム粉末を生成した。生成した粉末を図 1 2、粒径別の割合を図 1 3 に示す。



図 1 2 生成した粉末

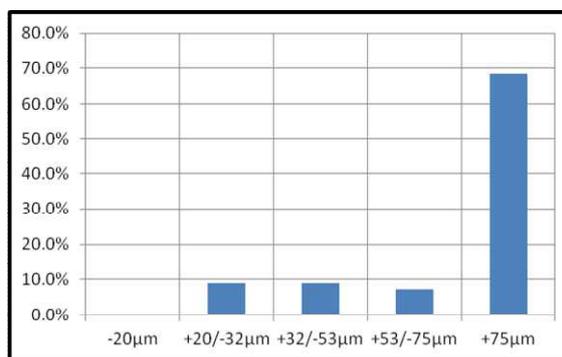
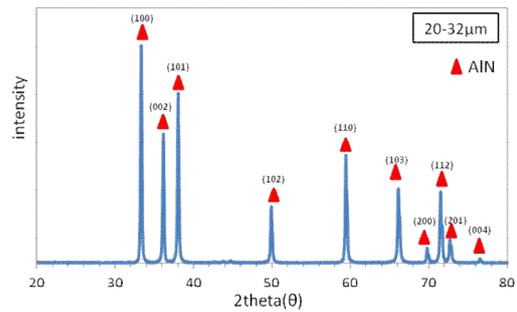
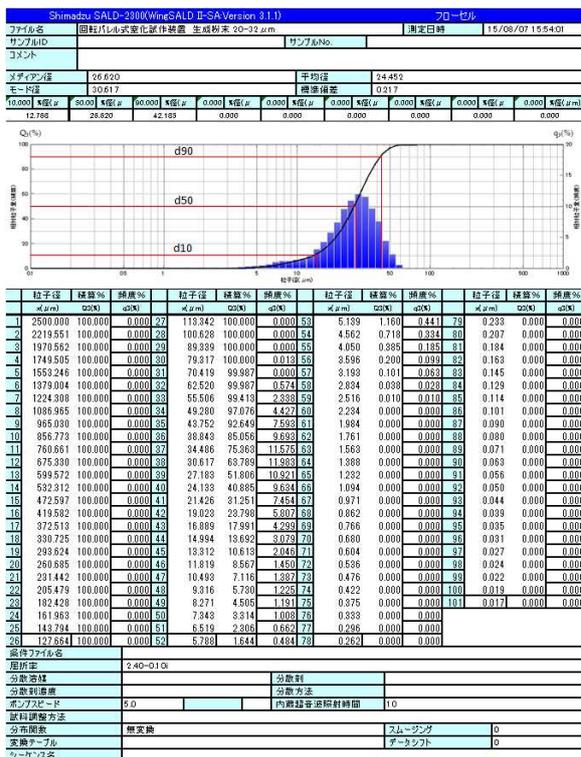


図 1 3 生成した粉末の粒径別の割合

生成した粉末の測定結果を図 1 4 に示す。X 線回折測定の結果から AlN のピークが検出されており、また、粉末を取り出すときにアンモニア臭がすることからも AlN の生成が確認できた。粉末の粒度分布を観察すると、20 μm 以下の粉末は検出されず凝集していることが確認できた。



粒度分布測定結果

d10 : 12.768 μm
d50 : 26.620 μm
d90 : 42.185 μm
平均径 : 24.452 μm
比表面積 : 0.286 m²/cm³
標準偏差 : 0.106

図 1 4 回転バレル式窒化試作装置 生成粉末の測定結果

2-2-2-2 小規模回転バレル式窒化装置での検討

小規模回転バレル式窒化装置の製作

回転バレル式窒化試作装置の実験で得られたデータ及び実験中に発生した問題を基に、小規模回転バレル式窒化装置の設計・製作を行った。

製作した小規模回転バレル式窒化装置の無負荷時の動作確認（到達真空度の確認・リーク量の確認・軸シール部のリーク確認）・酸素濃度測定・昇温確認（ヒーター温度・炉体温度・炉内温度・駆動部部品温度の確認）を実施した。実負荷(窒化アルミニウム粉末の生成)で揺動角度および速度、窒化反応温度および粉末の実態温度、反応抑制材、窒素ガスの噴入量等のファクターを可変させて窒化アルミニウム粉末を生成した。

また、この装置の酸素濃度測定し、外からの酸素分の混入はほとんどないことを確認した。

小規模回転バレル式窒化装置での実験

小規模回転バレル式窒化装置を用いて窒化処理実験を実施した。原料粉末は回転バレル式窒化試作装置での実験で用いた Al powder(under 20 μm) (ヒカリ素材開発品) Al powder、AlN を用いた。

3 種類の粉末を用い、真空排気時の真空度および排気時間、揺動角度および速度、窒化反応温度、反応抑制材、窒素ガスの噴入量等のファクターを可変させて、窒化アルミニウム粉末を生成した。生成した粉末を図 1 5、粒径別の割合を図 1 6 に示す。



図 15 生成した粉末

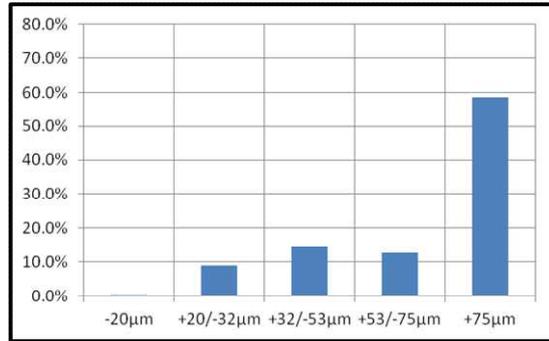
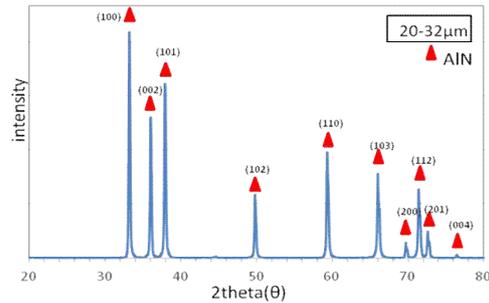
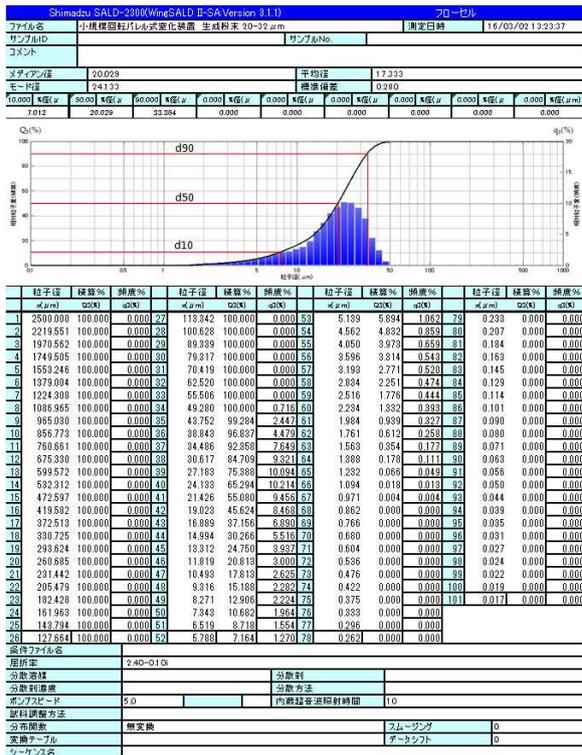


図 16 生成した粉末の粒径別の割合

生成した粉末の測定結果を図 17 に示す。X 線回折測定の結果から窒化アルミニウムのピークが検出されており、また、粉末を取り出すときにアンモニア臭がすることからも窒化アルミニウムの生成が確認できた。粉末の粒度分布を観察すると、20 μm 以下の粉末は検出されず凝集していることが確認できた。



粒度分布測定結果

d10 : 7.012 μm

d50 : 20.029 μm

d90 : 33.364 μm

平均径 : 17.333 μm

比表面積 : 0.457 m²/cm³

標準偏差 : 0.280

図 17 小規模回転パレル式窒化装置 生成粉末の測定結果

2-3 開発した窒化アルミニウム粉末の材料特性と放熱特性の検証

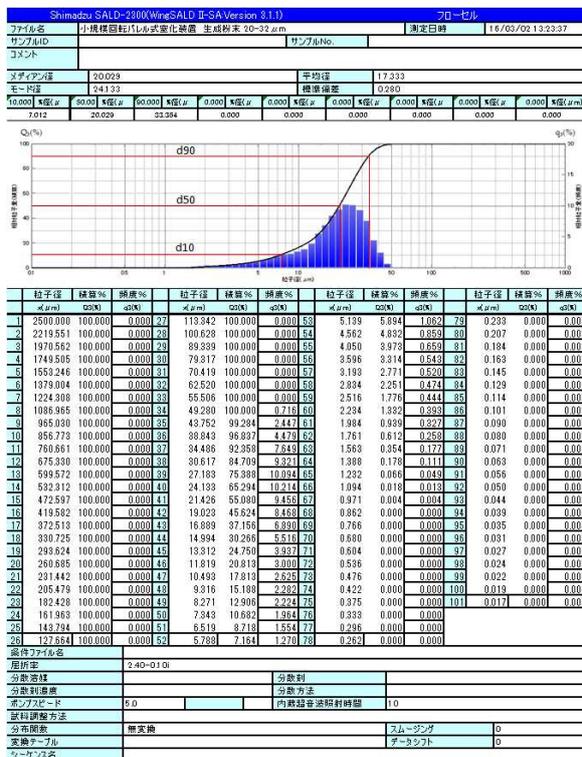
2-3-1 開発した窒化アルミニウム粉末の材料特性の把握

小規模回転バレル式窒化装置にて生成した粉末を用いて、窒化アルミニウム粉末の材料特性の測定を行った。

成分の分析は X 線回折装置を、粒径・球状率の観察は粒度分布測定器および走査型電子顕微鏡を用いて測定した。

成分の分析・粒径・球状率の測定結果を図 1 8 に示す。X 線回折の結果からは窒化アルミニウムのピークが検出されている。酸化物や未窒化のアルミニウムが検出されていないため、窒化アルミニウムの生成が確認できた。

粒度分布の結果から、処理後の粉末は 3 ~ 40 μm の分布となっており、平均粒径としては、17.333 μm となっていることが確認できた。また、走査型電子顕微鏡で粉末を観察した結果、球状の粉末が多く確認できた。球状率を測定し相対円にて計算すると、約 70% であった。今後、粒径のバラツキの減少・球状率の向上、凝集の低下を図るため、窒化温度、原料粉末比、揺動角度・速度等のファクターを変化させることにより、最適条件を確立する。



粒度分布測定結果
 d10 : 7.012 μm
 d50 : 20.029 μm
 d90 : 33.364 μm
 平均径 : 17.333 μm
 比表面積 : 0.457 m²/cm³
 標準偏差 : 0.280

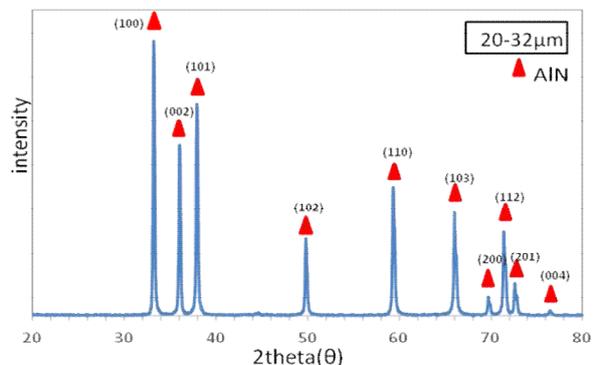
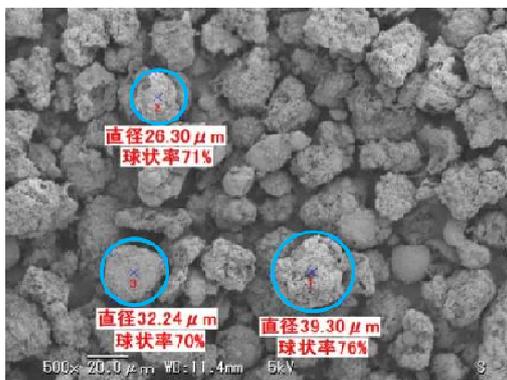


図 1 8 小規模回転バレル式窒化装置 生成粉末の測定結果

2-3-2 放熱部材を想定した樹脂への練り込み性の確認

試作した窒化アルミニウム粉末をポリプロピレン(PP)樹脂に窒化アルミニウム添加量 0wt%,10wt%,20wt%,30wt%の4水準をペレット化した。

作製したペレットを用いて射出成形機でフィラー材を作製した。作製したフィラー材を図19に示す。樹脂への練り込み性は、AINの添加量30wt%まで増加しても問題がないことが確認できた

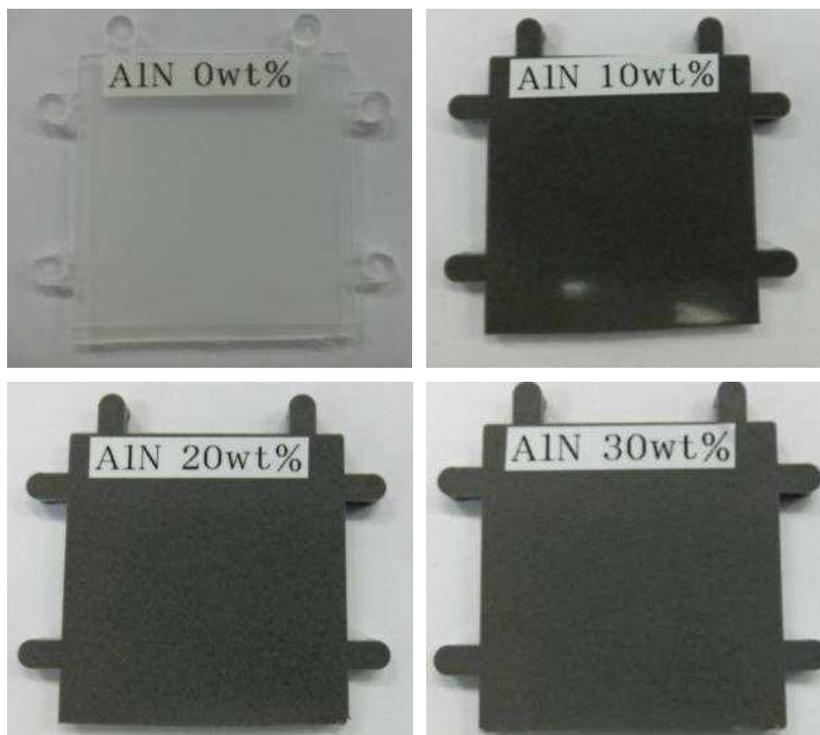


図19 ALN 0~30wt%のフィラー材

金属顕微鏡にてフィラー材の表面観察を行い、粉末の分散性を確認した。表面観察の結果を図20、21に示す。

AIN添加量に比例して、フィラー材の中に分散していることが確認できた。

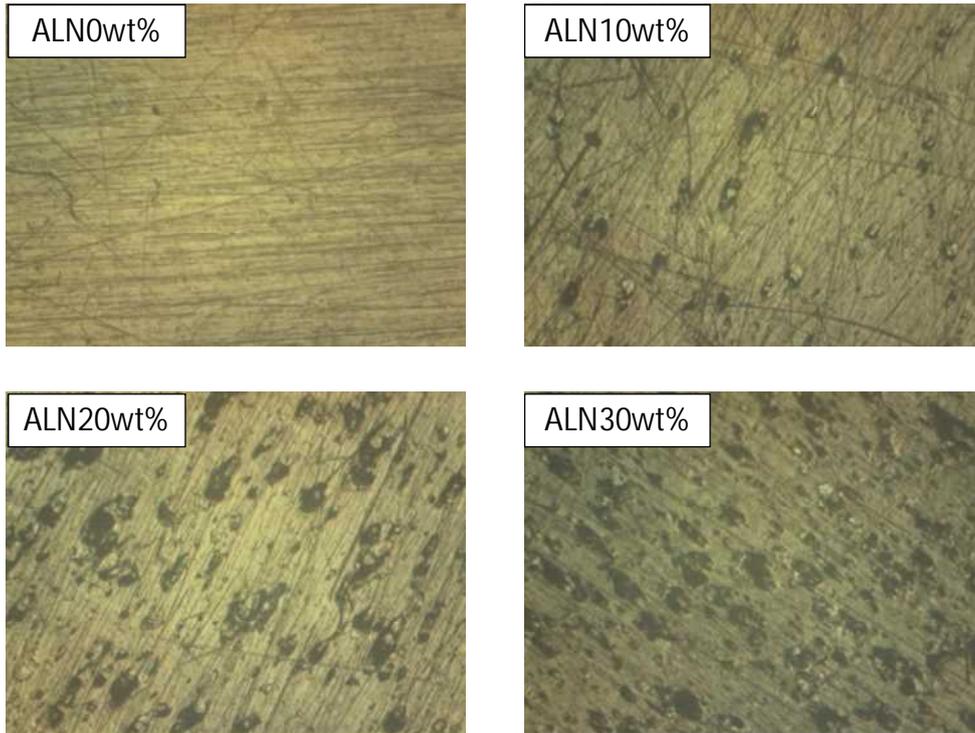


図 2 0 射出成形面の表面観察（低倍率）

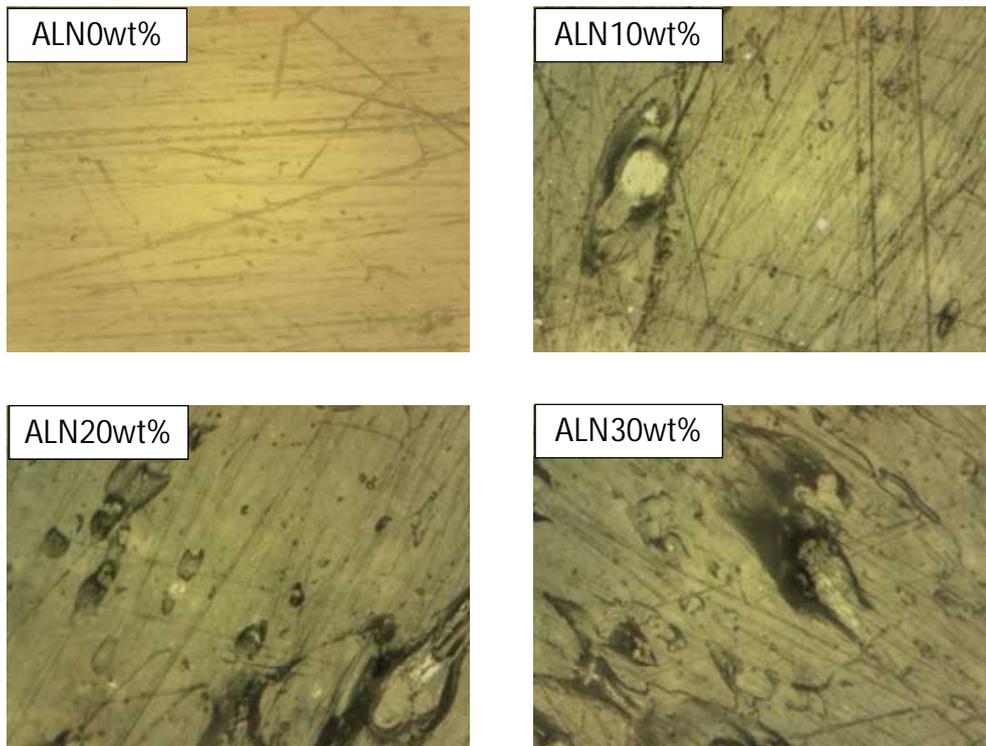


図 2 1 射出成形面の表面観察（高倍率）

フィラー材の熱伝導率測定結果を図 2 2 に示す。

今回作製したフィラー材の測定結果（図中の□）は vol%に換算すると 10vol%となり、熱伝導率としては、1W/mK を下回る結果となった。2-2-1 で作製した試料（図中の△、○）と比較すると熱伝導率は大きく下回っているが、これは使用する樹脂が異なる為である。これを相対的な熱伝導率で比較すると、AIN の添加による上昇は両試料ともにほぼ同等であり、窒化アルミニウム添加量の増加により熱伝導率が比例して増加していることが確認できた。

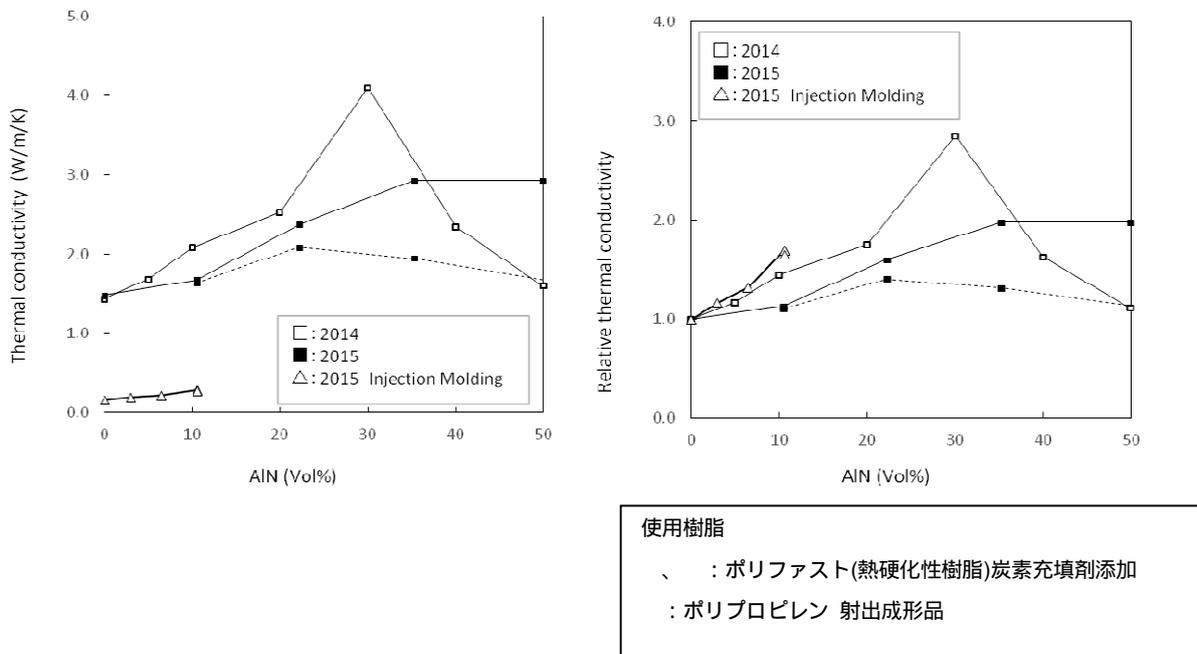


図 2 2 熱伝導率測定結果（左：通常の熱伝導率、右：相対的な熱伝導率）

2 - 4 プロジェクトの管理運営

2-4-1 進捗管理・物品管理

各研究において研究開発が計画通りに進められるように進捗状況を把握するとともに、導入装置の発注および検収管理を実施した。

2-4-2 研究開発委員会の開催

研究開発委員会を2回開催した。

- ・第1回研究開発委員会 日時 平成27年8月21日
- ・第2回研究開発委員会 日時 平成28年3月11日

第3章 全体総括

3 - 1 複数年の研究開発成果

3年間の研究開発の結果として、当初の目的である窒化アルミニウムの生成に成功した。各テーマにおける成果は以下のとおりである。

原料粉末に関する課題への対応

原料粉末球状化の向上については、良好な粉末形状（球状度）を達成するための雰囲気ガスの酸素濃度管理値を確立した。また、粉末形状への雰囲気ガスの種類による差異はないことを見出し、本課題の目的を達成した。

原料粉末粒径の微細化については、高周波スピンドルモータによる回転数の向上と、回転バランス調整によるフレ、振動の抑制を行った。同時に強度対策ディスクを適用し、20 μm 以下粉末取得率 19%（含有率：34%以上）を達成した。また、スピンエアーシーブ設備による、凝集粉末の分散、及び微細粉末粒度分布に適した分級条件の検討を行った。

窒化アルミニウム製造装置に関する課題への対応

豊田工業大学にて、アルミニウム粉末、アルミナ粉末、アルミニウム - マグネシウム合金粉末等の混合割合・粉末粒径・反応温度を変化させて、窒化反応を確認した。生成した粉末を XRD・EPMA にて回析・分析し、窒化されていることを確認した。

中部高熱工業においては、まず可視化モデルで粉末の挙動を確認し、内部容器の形状、真空排気・窒素ガス噴入口を決定し、この結果をもとに回転バレル式窒化試作装置を製作した。

回転バレル式窒化試作装置にて、ファクターを可変させて窒化アルミニウム粉末の製造実験を実施した。高温用ヒーターに改造して再度ファクターを可変させて窒化アルミニウム粉末の製造実験を実施し、窒化アルミニウムの生成を確認した。さらにこの結果を反映し小規模回転バレル式窒化装置を設計・製作した。

小規模回転バレル式窒化装置にて、ファクターを可変させて窒化アルミニウム粉末の製造実験を実施し、窒化アルミニウム粉末の生成を確認した。回転バレル式窒化試作装置より粉末の窒化処理量が増加した。なお、窒化アルミニウム粉末の生成時の凝集を確認した。がボールミルを使用して、手で破碎できる程度の凝集であるため、短時間で破碎可能であった。また、20 μm 、球状率 70%の窒化アルミニウム粉末を確認し当初の目標を達成した。

開発した窒化アルミニウム粉末の材料特性と放熱特性の検証

開発した窒化アルミニウム粉末の基本的な材料特性を測定した。粉末の成分・窒化分析については XRD を用いて窒化アルミニウム以外のピークが無いことを確認し、窒化アルミニウムの生成を実証した。また、粉末の粒径を粒度分布測定器にて確認し、20 μm の窒化アルミニウム粉末の生成を確認した。さらに球状率については SEM を用いて、球状

率 70%の窒化アルミニウム粉末の生成を確認した。

また、放熱部材を想定した樹脂への練り込み性の確認として、小規模回転バレル式窒化装置にて、ファクターを可変させて生成した窒化アルミニウム粉末を用いて、ポリプロピレン(PP)樹脂に混練してフィラー材を作製して練り込み性、分散性を確認した。窒化アルミニウム粉末の樹脂への添加量を 4 水準(0wt%,10wt%,20wt%,30wt%)のフィラー材を作製し、練り込み性については粉末の添加量が 30wt%でも問題はないことを確認した。また、窒化アルミニウム粉末を練り込んだ樹脂の熱伝導率測定を行った。

3 - 2 研究開発後の課題

原料粉末に関する課題への対応

事業化展開のために原料粉末粒径の微細化について以下の課題が残った。

- ・歩留まりの向上：高周波スピンドルモータの能力を使い切るためのディスクの検討
- ・設備稼働率の向上：微細粉末付着対策、微細粉末凝集対策、設備構造の見直し

なお、球状率 70%以上の目標については、原料粉末では達成（丸さの度合い：1.06...ほぼ球状）した。

窒化アルミニウム製造装置に関する課題への対応

窒化アルミニウム製造装置に関しての課題は、下記のとおりである。

- ・凝集粉末の低減
- ・球状率の向上
- ・粒径のバラツキの低減

上記の課題を解決するために、ファクターを可変させて窒化アルミニウム粉末の製造実験を実施して、安定した窒化アルミニウム粉末の製造条件を構築する。また、ファクターを可変させて多種の用途に応じた窒化アルミニウム粉末の製造条件を模索していく。

開発した窒化アルミニウム粉末の材料特性と放熱特性の検証

材料特性と放熱特性に関しての課題は、下記のとおりである。

- ・練り込み性の向上
- ・熱伝導率の向上

今後は上記の課題の解決と事業化のために、窒化アルミニウム粉末の添加量 40wt%以上でフィラー材を作製し、練り込み性、分散性を確認する。また、JIS 規格のテストピース(ダンベル型)を作製して材料強度を測定するとともに、熱伝導率測定も行っていく。

3 - 3 事業化展開

ヒカリ素材工業株式会社

現状の歩留り、及び設備稼働率ではコスト的にまだ不十分である。しかし、20 μ m より大きいサイズの粉末については現状でもニーズがあり、更なる拡販も可能であると考えられる。よって、20 μ m 以下の粉末は窒化アルミ用として使用し、20 μ m 以上のものは他用途として販売することにより、採算が取れる状態で事業展開を行う。

さらに今回の微細化技術を用いることにより、他の金属材料などへも応用ができる為、20 μ m 以下の粉末は様々なフィラー材として展開していく予定である。

中部高熱工業株式会社

アドバイザー企業へはサンプルを提供して評価・アドバイスを依頼し、部品としての優位性をPRする。ある程度の成果が出たらその他取引関係企業にも評価依頼する。また、中部高熱工業株式会社の事業開発部のみならず、商社にも依頼してグローバルな販売ネットワークを検討する。

窒化アルミニウム粉末の粒径・形状に関してもコスト面、品質面(中品質、高品質)の観点から検討して、用途に応じて対応できるような体制を構築する。

自動車業界以外にも、市場調査を実施しながら販路を拡大していく。放熱が必須となっているLEDの放熱部材への展開などを検討していく。