

移行形アークプラズマを用いた窒化アルミニウム 球状複合粒子の新しい合成法

背景

当所では、環境性や防災性の観点から全固体変圧器の開発研究を推進しており^[1]、この絶縁材料にはエポキシ樹脂よりも高い熱伝導率、エポキシ樹脂と同等の絶縁破壊強度が必要である。熱伝導性に優れた窒化アルミニウム(AIN)の異種サイズの球状粒子を混合しエポキシ樹脂に高充填することによりその実現が期待できる。このためには、球状のミクロンオーダーの粒子の表面に100nm以下の超微粒子が付着した複合粒子を利用することが考えられるが、より簡易な合成プロセスの開発が望まれている^[2]。また、その合成プロセスでは、複合粒子の形状、ミクロンオーダーの粒子と超微粒子との体積比および粒径比などの粒子寸法条件を制御する必要がある^[3]。これらの課題を解決するためには、当所が超微粒子の大量合成ツールとして着目^[4]している移行形アークプラズマを利用し、プラズマ中の原材料粒子の蒸発挙動および原材料蒸気の凝縮挙動を制御する合成法が有望と考えられる。

目的

絶縁材料用充填材として適切な粒子寸法条件を明らかにするための第1段階として、移行形アークプラズマを用いて球状のミクロンオーダーの粒子と超微粒子の複合粒子の合成を試み、その合成粒子の円形度^[5]、ミクロンオーダーの粒子と超微粒子の体積比および粒径比を制御する操作条件を明らかにする。

主な成果

減圧下チャンパー内の窒素プラズマに原材料としてAIN破砕粒子を注入し、プラズマ中の滞留時間およびプラズマ下流部の反応・急冷ガスの流量を変化させて^[6]、以下の結果を得た。

- 合成粒子の円形度
円形度が0.75程度の原材料粒子をプラズマ中に2ms以上滞留させることにより、その円形度を0.9程度まで向上でき、ほぼ円形の粒子の表面に超微粒子が付着した複合粒子が得られることが判明した(図1, 図2)。
- ミクロンオーダーの粒子と超微粒子の体積比
プラズマ中の原材料粒子の滞留時間を2~5msとすることにより、ミクロンオーダーの粒子と超微粒子の体積比を8:2から5:5程度まで制御できた(図3, 印)。また、プラズマ中の粒子の直径減少を考慮した蒸発挙動計算を行った結果、実験結果と概略一致し(図3, 破線)、プラズマ温度、原材料粒子の直径およびプラズマ中の滞留時間を用いて、ミクロンオーダーの粒子と超微粒子の体積比を予測できることが明らかになった。
- ミクロンオーダーの粒子と超微粒子の粒径比
プラズマ中に原材料粒子を2~5ms程度滞留させ、反応・急冷ガス流量を5~20 L/minと変化させることにより、ミクロンオーダーの粒子と超微粒子の粒径比を30:1から250:1程度まで制御できた。

以上から、原材料粒子のプラズマ中の滞留時間および反応・急冷ガス流量という操作条件を変化させることにより、球状のミクロンオーダーの粒子と超微粒子の複合粒子を一つのプロセスで合成でき、合成粒子の円形度、ミクロンオーダーの粒子と超微粒子の体積比および粒径比を制御できる見通しを得た。

今後の展開

合成したAIN複合粒子の絶縁材料用充填材としての性能評価を行い、ミクロンオーダーの粒子と超微粒子の適切な体積比を明らかにする。

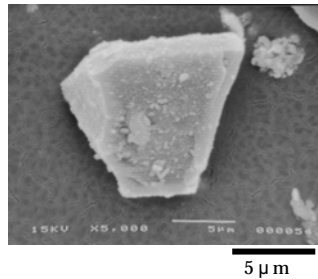
[1] 水谷, 他: 電力中央研究所研究報告 W01024, W02024

[2] 超微粒子同士の凝集を抑制するため、超微粒子をミクロンオーダーの粒子の表面に付着させた複合粒子を利用する。また、この複合粒子を合成するためには、それぞれの粒子の合成プロセスおよび混合プロセスなど複数のプロセスが必要となる。

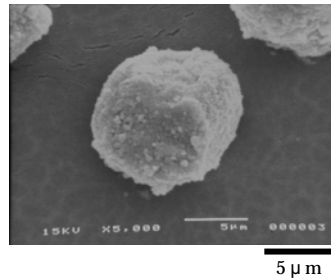
[3] 粒径の異なるSiO₂粒子(大粒子: 30 μm, 小粒子: 3 μm以下)をエポキシ樹脂に充填した結果、大粒子と

小粒子の体積比が6:4~7:3の時に粘性が最小になった。[K. Sawai : SEMI TECHNOLOGY SYMPOSIUM, pp.473-483 (1989)]

- [4] 岩田, 他: 電力中央研究所研究報告 W02012, 古川, 他: 電力中央研究所研究報告 W02022
 [5] 合成粒子の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真を画像解析し, 円形度および円相当径を評価。円形度 $C = 4 S / L^2$, 円相当径 $d = 2 (S / \pi)^{0.5}$ 。ここで, Sは粒子の面積, Lは粒子の周囲長。
 [6] 主な実験条件は次の通り。チャンパー内圧力: 20~50kPa, アーク電流: 140A, 原材料粒子の円相当径: 9 μm (平均値)。また, プラズマ長およびプラズマガス流量を変えることにより, プラズマ中の原材料粒子の滞留時間を変化させた。



(a) 原材料粒子
[円形度 : 0.70]



(b) 合成粒子
[円形度 : 0.82]

図 1 . 粒子の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真

(b) の合成条件 : アーク電流 140A, プラズマ長 50mm, プラズマガス N_2 , 10 L/min (プラズマ中の原材料粒子の滞留時間 2.5ms), 反応・急冷ガス NH_3 5 L/min

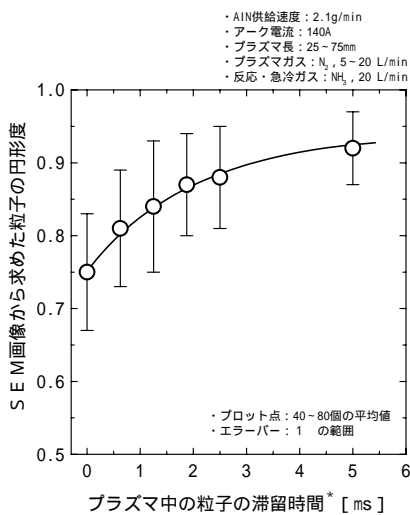


図 2 . プラズマ中の原材料粒子の滞留時間が合成粒子の円形度に及ぼす影響

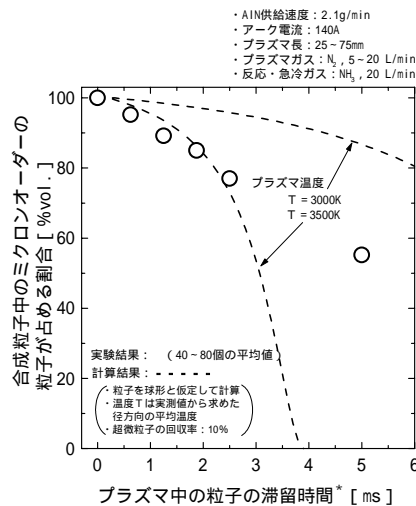


図 3 . 合成粒子中のマイクロオーダーの粒子が占める割合

研究報告 W03031	キーワード : 移行形アークプラズマ、窒化アルミニウム、複合粒子、球状マイクロ粒子、分散超微粒子
関連研究報告書	「移行形アークプラズマを用いた高純度窒化アルミニウム超微粒子の生成特性」 W02012 (2003. 7) 「移行形アークプラズマを用いた窒化アルミニウム超微粒子の合成 - 原材料アルミニウム粒子の注入条件 - 」 W02022 (2003. 4)
担当者	岩田 幹正 (横須賀研究所・電力部)
連絡先	(財) 電力中央研究所 横須賀研究所 事務部 研究管理担当 Tel. 046-856-2121(代) E-mail : yo-rr-ml@criepi.denken.or.jp