

(720) CO₂ レーザー加熱気相反応法によるセラミック粉末の合成

マサチューセッツ工科大学

J. S. Haggerty, H. K. Bowen

新日本製鐵(株) 素材第一研究センター

○ 澤野 清志

1. 緒 言

セラミック出発原料としての粉末は、その最終製品の性能を決定するうえで重要であり、一般的には 1)サブミクロン 2)高純度 3)非凝集 4)等方形(球形)の性質を満たす必要があると考えられている。酸化物セラミックスでは、溶液からの調製により上記性質を満たす理想的粉末の合成が行なわれるようになったが、非酸化物では様々な製造上の問題から、これら粉末を合成することは困難である。気相反応法は高純度、サブミクロンのセラミック粉末を合成する方法として有力であり、とくに CO₂ レーザー加熱による方法は、反応ガスのみを加熱するため、壁面等からの汚染の原因がないなどの利点がある。本報告では、この方法により Si, SiC 粉末を合成し、その生成メカニズムの検討により、理想的な粉末を合成するための条件について考察した。

2. 実 験

CO₂ レーザー(波長 10.6 μm)を反応ガス流に直交照射し、加熱、反応を起こさせ、空中に粉末を生成させる。10.6 μm の位置に赤外吸収を持ち自己発熱する易反応性ガスとして SiH₄, C₂H₄ などがあるが、少なくとも 1 種類を反応ガス中に含む必要がある。粉末の生成部分には He-Ne レーザーを照射し、その透過、散乱から生成物を推定した。生成粉末は捕集後キャラクタリゼーションを行なった。

3. 実験結果および考察

赤外吸収では結合の振動による発熱が起こり、光による反応の直接励起は起こらないと考えられるので、本反応は基本的に熱による反応と同一と考えて良い。SiH₄ からの Si の生成は、極く初期段階においては均一核生成により起こるが、最終的に観察される粒子径を律速するものは、粒子(核)同士の衝突であると考えられる。これは、化学的に SiH₄ の分解速度抑制のために H₂ を加え、予想される核生成速度を低下させて最終粒子径をあげるという試みが、単に H₂ による希釈効果としての最終粒子径の減少という結果を示すということで間接的に説明できる(Table 1)。SiH₄ と炭化水素を混合して SiC を合成する場合、各々のガスの熱分解速度の違いが、生成 SiC 粒子の性質に大きく影響を与える。SiH₄ はその不安定性から、選択的に分解して Si を生成するが、炭化水素が C₂H₄ のように不安定だと、Si が初期に反応して、粒径の小さい SiC になる。一方炭化水素が CH₄ のように安定なものは、SiC を生成するためには高温が必要だが、生成する SiC は C₂H₄ 系に比べて大きく、炭化以前に Si が溶融するため、球形に近い非凝集の粒子が得られる(Table 2, Fig 1)。従って、理想的 SiC 粒子の合成には、Si の溶融後の炭化が望ましく、安定な C 源の使用あるいは、2 段反応ガス供給などの方法が有効と考えられる。

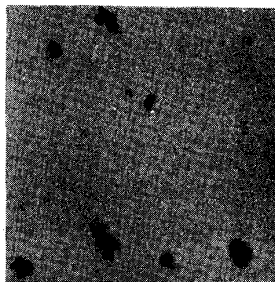


Fig. 1 SiC powder synthesized from SiH₄-CH₄ gas mixture at 1550°C

Table. 1 Particle size of silicon with different H₂ mixing ratios

H ₂ /SiH ₄ ratio	Particle Radius(nm)	
	BET	TEM
0	27	24
0.1	26	22
0.2	20	—

Table. 2 Particle size difference between methane-derived and ethylene-derived SiC powder

Hydrocarbon	Temp	Particle Radius(nm)	
		BET	TEM
CH ₄	1620°C	51	56
C ₂ H ₄	1650°C	38	31