

超高輝度を実現するベアチップ LED の高密度実装技術開発(第 4 報)

反応焼結法による AlN/Al ヒートシンク材料の開発 (第 2 報)

坂村 勝, 花房 龍男, 水成 重順, 廣川 勝久*1

Densely Direct Mounting of LED Bare Chips on Surface Nitrided Heat-Sink Realizing Super High Brightness IV

AlN/Al Heat-Sink by Direct Nitriding Sintering Method II

SAKAMURA Masaru, HANAFUSA Tatsuo, MIZUNARI Shigeyuki and HIROKAWA Katsuhisa

To increase the relative density and the thickness of the surface layer containing AlN for the Al-based heat-sink material, which was sintered under a nitrogen atmosphere, Mg and Cu were added, and the sintering heat-pattern was improved. Consequently, the amount of AlN has been increased successfully with sustaining the relative density, when 2 wt% Mg and 1 wt% Cu were added. Further, through lowering the temperature rise rate from 200 to 25 K/hr during heating from 673 to 823K, the relative density, the thickness of the surface layer, and the thermal conductivity have reached 95.2 %, about 20 μ m, and about 140 W/m \cdot K, respectively.

Al 粉末成形体の窒素雰囲気中での焼結において、焼結体密度の向上と窒化アルミニウム (AlN) を含む膜生成の両立を図るため、Al 粉末に Mg 及び Cu を複合添加し、ヒートパターンを改良して得られた焼結体の評価を実施した。その結果、Mg を 2wt% と Cu を 1wt% 複合添加することで、焼結体密度を維持した状態で AlN の生成量を増加させることができた。さらに、673K から 823K までの昇温速度を 200K/hr から 25K/hr に下げることで、焼結体密度 95.2%、表面膜厚約 20 μ m、熱伝導率約 140 W/m \cdot K を達成することができた。

キーワード：ヒートシンク、反応焼結法、窒化アルミニウム、銅、マグネシウム

1. 緒 言

エネルギー密度の高い電池や LED 照明等では放熱技術が鍵とされており、高放熱特性を有する AlN、Si₃N₄等のセラミックス系ヒートシンクが注目されつつある。しかし、セラミックスは①1800°C程度の高温での焼結が必要、②硬質であるため、焼結後の加工が困難、③高価という問題がある。そこで、本研究では、安価な Al 粉末を 600°C程度の低温・雰囲気制御中で、かつ、ヒートパターンを改良して焼結することにより、表面に高熱伝導・高放熱特性を有する AlN、内部には機械加工が可能で、かつ、熱伝導性に優れる Al を有する AlN/Al 複合材料系のヒートシンクの開発に取り組んでいる。

前報¹⁾の結果から、①Al に Mg を添加することで AlN を含む膜は形成されるが、焼結体密度は 93%程度に留まる、②Al に Cu を添加することで焼結体密度は 98%以上に達するが AlN を含む膜は形成されないことが分かっている。

そこで、焼結体密度の向上と AlN を含む膜生成の両立のため、Mg、Cu 複合添加の効果、及び焼結時のヒートパターン改良の効果について検討したので、その結果を報告する。

2. 実験方法

2.1 原材料

原材料として(株)高純度化学研究所製 Al 粉末(平均粒径 3 μ m, 純度 99.9%)、Mg 粉末(粒径 180 μ m 以下, 純度 99.5%)及び Cu 粉末(平均粒径 1 μ m, 純度 99.99%)を用いた。

2.2 混合及び成形

前報¹⁾により、Mg 添加量を 1~5wt%として窒素雰囲気中で焼結を行った結果、Mg 添加量 2wt%の際に、焼結体密度が 92~93%で、AlN 形成に起因する重量増加率が 2~3%と、焼結体密度と重量増加率がともに比較的高くなる事が分かっている。また、Cu 添加量を 1~4wt%として、窒素雰囲気中で焼結を行うと、Cu 添加量の増加とともに焼結体密度は向上するものの、AlN 形成に起因する重量増加率は低減することが分かっている。そこで本研究では、Mg の添加量を 2wt%とし、Cu の添加量は、AlN の形成を優先し 1wt%とした。

Al 粉末、Mg 粉末及び Cu 粉末を出発原料とし、表 1 に示す条件で混合を行った。得られた混合粉末 3g を 30mm \times 10mm のモールドに入れ、流動パラフィン及びエタノールを少量滴下した後に、引張圧縮試験機で 50, 100, 150,

200MPa の加圧力で成形体とした。

表 1 混合条件

混合装置	フリッチュ(株)製遊星型ボールミル
容器	ステンレス製250ml
ボール	窒化珪素製10φ 材料:ボール=1:3 (重量比)
雰囲気	大気
回転数	100rpm(約1G)
処理時間	7.2ks
処理量	20g

2.3 脱脂及び焼結

2.2 で得られた成形体を真空乾燥炉で 473K, 172.8ks で脱脂した。

焼結について、前報¹⁾では、図 1 中の (a) に示すように、室温から 923K までの昇温速度を 200K/hr としていた。しかし、Al 焼結の際に液相が生成されると、窒化が抑制されるという報告が近藤らによってなされている²⁾。そこで、窒化が起り始めるとされている 673K^{3),4)} から Al-Al₂Cu 共晶により液相が生成される 823K⁵⁾ までの昇温速度を低減し、その間に Al 表面の窒化を進行させ、823K 以上で液相を生成させることで焼結体密度の向上を目指した。図 1 中の (b) に改良ヒートパターンを示す。このような観点から、焼結条件は、真空度 1~2×10⁻³Pa とした後、673~823K の昇温速度 200K/hr 及び 25K/hr、それ以外の温度領域での昇温速度 200K/hr で 923K まで昇温し、その後 923K に 7.2ks 保持した後炉冷することとした。窒素は窒化の起り始める前の 623K から焼結体取り出しまで流した。純度は 99.9% のものを用い、流量は 1L/min とした。なお、焼結炉は(株)東京真空製真空処理炉 Mini-Vac90 を用いた。

2.4 焼結体の評価

脱脂後の成形体及び焼結体の重量はメトラー・トレード(株)製天びん AX205 で測定し、焼結時の重量増加量から AlN 生成量を推測した。これは、AlN は化学反応式(1)で生成し、その際に重量が Al の 1.52 倍になることから、焼結

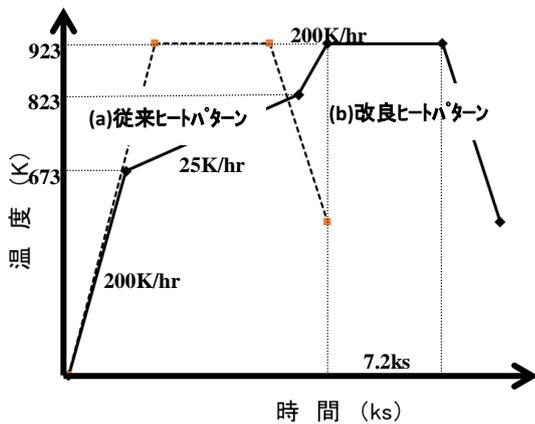


図 1 従来及び改良ヒートパターン (概念図)

後の重量増加量により AlN 生成量を概ね評価できることによる。



本手法による評価の妥当性については前報¹⁾に記載している。

焼結体の密度は JIS-Z2501 (焼結金属材料の密度測定方法) に準じて、水中での重量測定によって行い、焼結体の相の同定には(株)島津製作所製 X 線回折装置 XRD-7000 を用いて行った。また、一部の焼結体については、断面を研磨した後、20%NaOH 水溶液で腐食し、光学顕微鏡観察を行った。さらに、焼結体の熱伝導率を定常法による熱伝導率測定装置を用いて行った。

3. 結果及び考察

図 2 に焼結体密度と重量増加率の相関を示す。純 Al や純 Al に Mg や Cu をそれぞれ単独で添加したものと比較して、Mg と Cu を複合添加したものは焼結体の重量増加率が向上しており、さらに、改良したヒートパターンでは、焼結体の重量増加率が大幅に向上し、窒化が促進されることが分かった。しかし、窒化量の増加には密度を低下させる必要があるというトレードオフのラインから逸脱しないことが分かった。図 3 及び図 4 には、673~823K における昇温速度 25K/hr の焼結体(焼結体密度 95.2%、重量増加率 2.4%) の表面 X 線回折スペクトルおよび断面写真を示す。図 3 より、Al の他に AlN のピークが認められ、AlN が生成されていることが分かる。また、図 4 より、AlN を含む膜の膜厚は約 20μm であり、気孔は閉気孔となっており開気孔にはなっていないことが分かった。そして、本焼結体の熱伝導率を測定した結果、約 140W/m・K であることが分かった。

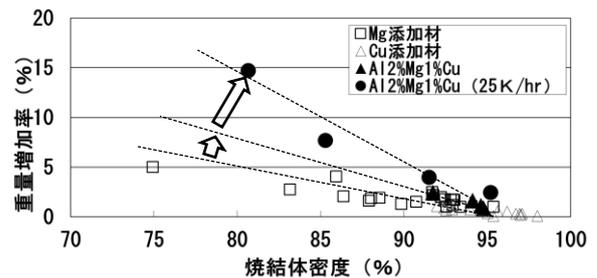


図 2 焼結体密度と重量増加率の相関

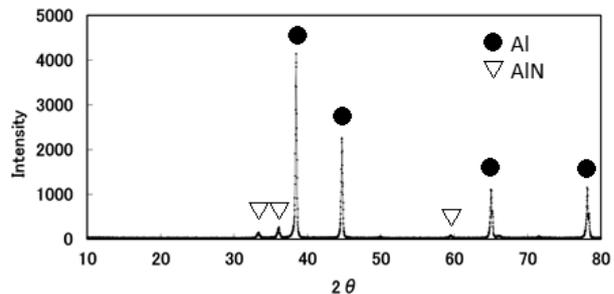


図 3 Al-2wt%Mg-1wt%Cu 焼結体 X 線回折スペクトル (昇温速度 25K/hr)

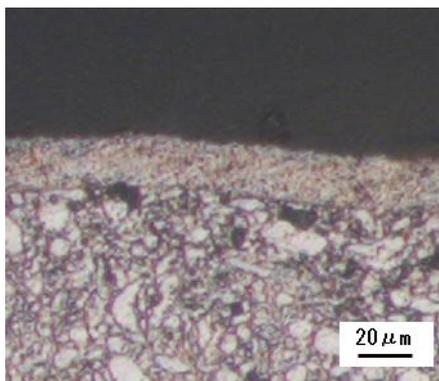


図4 Al-2wt%Mg-1wt%Cu 焼結体断面写真
(昇温速度 25K/hr)

4. 結 言

Al 粉末成形体の窒素雰囲気中での焼結において、焼結体密度の向上と AlN を含む膜生成の両立を目指し、Al 粉末に Mg 及び Cu を複合添加し、ヒートパターンを改良して得られた焼結体の評価を実施した。得られた成果を以下に示す。

- 1) 純 Al に 2wt%Mg と 1wt%Cu を複合添加することで、焼結体密度を維持した状態で AlN の生成量を増加させることができた。
- 2) さらに、窒化が起り始める 673K から Al-Al₂Cu 共晶により液相が生成される 823K までの昇温速度を 200K/hr から 25K/hr に低減することで、焼結体密度 95.2%、AlN を含む膜厚約 20 μm の焼結体を作製することができた。本焼結体の熱伝導率は約 140W/m・K に達した。

文 献

- 1) 坂村勝, 廣川勝久, 花房龍男, 和田雅行: 東部工業技術センター研究報告, **25**, 1(2012).
- 2) 近藤勝義, 木村淳, 渡辺龍三: 粉体及び粉末冶金, **47**, 36(2002).
- 3) 木村淳, 近藤勝義, 渡辺龍三: 粉体及び粉末冶金, **49**, 1042(2002).
- 4) D. Kent, J. Drennan, G. B. Schaffer: Acta Mater., **59**, 2469(2011).
- 5) Binary Alloy Phase DIAGRAMS Second Edition, Plus Update Ver. 1. 0, ASM INTERNATIONAL, (1996).