

膜乳化法による低融点金属インジウム微粒子の調製

山本 建次*¹・児玉 浩子*²・清水 正高*¹・黒木 泰至*¹

Preparation of Low-melting Metal Indium Particle by Membrane Emulsification

Kenji YAMAMOTO, Hiroko KODAMA, Masataka SHIMIZU and Hiroyuki KUROKI

低融点金属インジウムは、近年その微粒子の持つ性質が注目されており、さまざまな応用展開が図られている。そこで本報では、筆者らが開発した膜乳化法を用いて、単分散かつ微小なインジウム微粒子調製の可能性について検討した。その結果、膜乳化法が持つ特徴どおりに、インジウム微粒子の粒子径を多孔質ガラス膜細孔径の約3倍に均一に制御できること、および最小 $3.8\mu\text{m}$ の粒子径まで調製可能であることを確認した。

キーワード：膜乳化法，低融点金属，インジウム，微粒子，多孔質ガラス膜

1 はじめに

インジウムは、レアメタルの一つとして近年注目を集めている。例えば、インジウムを含む酸化物ITO（酸化インジウムにスズを添加した化合物）は、導電性と透明度の両方を兼ね備えているため、フラットパネルディスプレイの透明導電膜として使用されている。それ以外にも、太陽電池や有機EL等への応用がある。いずれの場合も、ITOナノ粒子が使用されており、ナノ粒子の合成法に関する研究開発事例が数多く見られるようになってきた。

一方、インジウム単体についても、酸化物と同様、機能性材料として注目され始めている。例えば、インジウムは融点が約 156°C と低いため、インジウムを微粒子化することによって、一般的なSn-Ag-Cu（スズ-銀-銅）系鉛フリーはんだ（融点 219°C ）よりも低温での接合が可能なはんだ粒子としての応用が期待されている。酸化物、単体のいずれの場合にも、インジウムを数 μm あるいはそれ以下の非常に小さなサイズの微粒子にすることが重要と考えられる。

筆者らはこれまでに、膜乳化法による鉛フリーはんだSn-Ag-Cu微粒子の製造技術を確認してお

り¹⁾、現在では最小 $3\mu\text{m}$ の粒子径まで生成可能なレベルに達している。

膜乳化法は、図1に示すとおり、使用した多孔質ガラス膜細孔径の約3倍に揃った微粒子を生成できる方法である。すなわち、狙ったサイズの単分散微粒子を歩留まりよく得ることができる。従って、膜乳化法が、稀少で高価なインジウムを、原料のロスを最小限に抑えながら微粒子化する方法として期待できるため、本報ではその適用可能性について検討した。

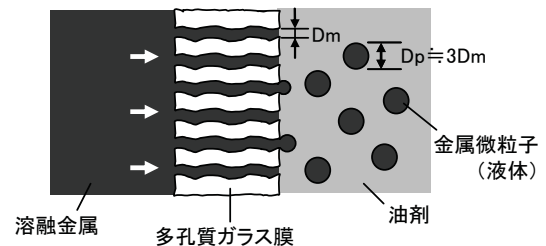


図1 膜乳化法の原理

2 実験方法

2-1 使用物質

原料としてインジウム（純度99.99%）、分散媒に複数の脂肪酸エステルを混合した油剤、微粒子化用分散素子として均一で多数の細孔を有する細孔径が異なる $9.9\mu\text{m}$ 、 $5.0\mu\text{m}$ 、 $3.0\mu\text{m}$ 、 $1.1\mu\text{m}$

*1 材料開発部

*2 材料開発部（現 財団法人宮崎県産業支援財団）

の多孔質ガラス膜 (エス・ピー・ジーテクノ(株)製) 4 種を用意した. 調製後の微粒子の洗浄剤にはトルエンおよびエタノールを使用した.

2-2 インジウム微粒子の調製実験

図 2 に示す装置を使用して, まず, 装置内に油剤を充填し, ヒーターで 175°C に加熱した. 次に, 175°C に加熱・溶融したインジウムを溶融金属タンクに投入した後, ポンプを用いて多孔質ガラス膜の細孔に一定の透過速度で圧入した. 細孔を通過して生成したインジウム微粒子が冷却・固化して回収容器内に溜まった後, インジウム微粒子と油剤を遠心分離機 (株式会社久保田製作所製, 6500 型) で分離・回収した. さらに, 回収したインジウム微

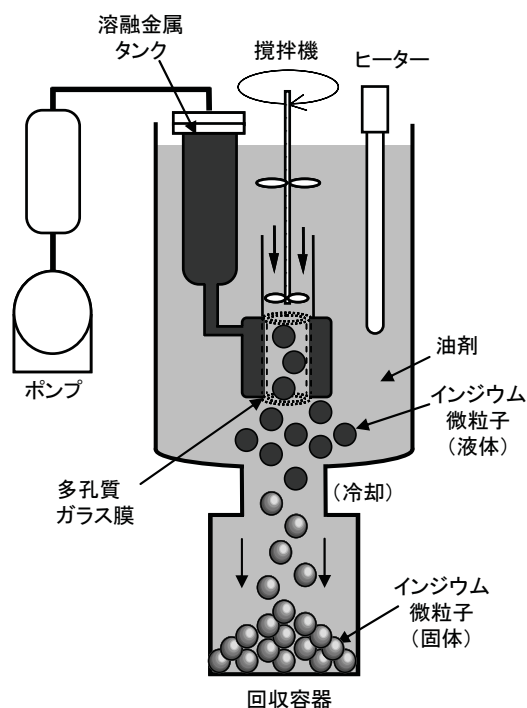


図 2 膜乳化実験装置の概念図

粒子をトルエンで 3 回, エタノールで 1 回洗浄した後, 真空乾燥機 (ヤマト科学(株)製, DP33) を用いて 70°C で 1 時間乾燥した.

2-3 得られた微粒子の評価方法

得られたインジウム微粒子の粒子径をレーザー回折散乱式粒度分布測定装置 (日機装(株)製, マイクロトラック 9320HRA) により測定し, 粒子径をメディアン径 (体積積算粒子径分布における 50% 径) D_p , 単分散性を粒子径分散係数 δ (体積積算粒子径分布における 90% 径と 10% 径の差を 50% 径で除した値)²⁾ で評価した. また, 必要に応じて, 得られたインジウム微粒子を光学顕微鏡 (オリンパス光学工業(株)製, BHS-323) 及び電界放出形走査電子顕微鏡 (日立ハイテクノロジーズ(株)製, S-4800) で観察した.

3 結果および考察

多孔質ガラス膜の細孔径 9.9 μm , 5.0 μm , 3.0 μm , 1.1 μm , それぞれを用いた膜乳化実験の結果を表 1 に, インジウム微粒子の光学顕微鏡写真を図 3, 粒子径分布データを図 4 に, 多孔質ガラス膜細孔径 D_m と生成したインジウム微粒子の粒子径 D_p の関係を図 5 に示す.

いずれの場合も, 使用した多孔質ガラス膜の約 3 倍の粒子径のインジウム微粒子が得られた. δ の値も 0.50~0.55 と高い単分散性を示しており, これは図 4 に示す粒子径分布データからも明らかである.

以上のことから, 今回実験した多孔質ガラス膜細孔径の範囲においては, インジウム微粒子の調製に膜乳化法を適用できると考えられる.

表 1 膜乳化実験条件と生成したインジウム微粒子の粒子径

	膜細孔径 D_m (μm)	透過速度 ($\text{cm}^3 \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$)	透過圧力 (MPa)	体積積算粒子径分布 (μm)			δ
				10%径	D_p (50%径)	90%径	
(a)	9.9	1.2×10^{-3}	0.16	22.5	28.1	37.4	0.53
(b)	5.0	1.2×10^{-3}	0.31	12.9	16.1	21.0	0.50
(c)	3.0	1.2×10^{-3}	0.49	7.9	9.9	13.0	0.52
(d)	1.1	1.2×10^{-3}	1.4	3.0	3.8	5.1	0.55

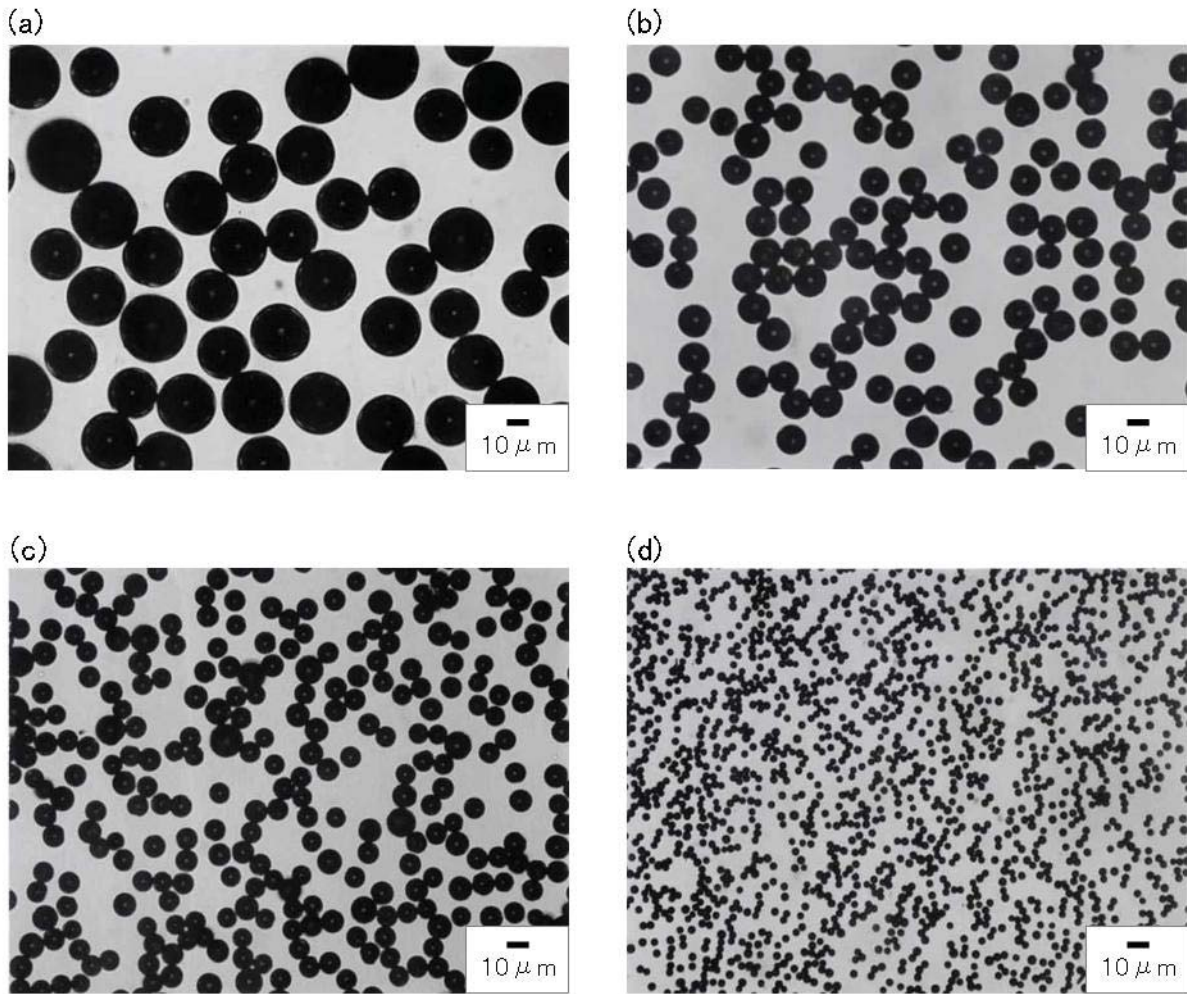


図3 インジウム微粒子の光学顕微鏡写真

(a)多孔質ガラス膜細孔径 $9.9 \mu\text{m}$,
 (b) $5.0 \mu\text{m}$, (c) $3.0 \mu\text{m}$, (d) $1.1 \mu\text{m}$

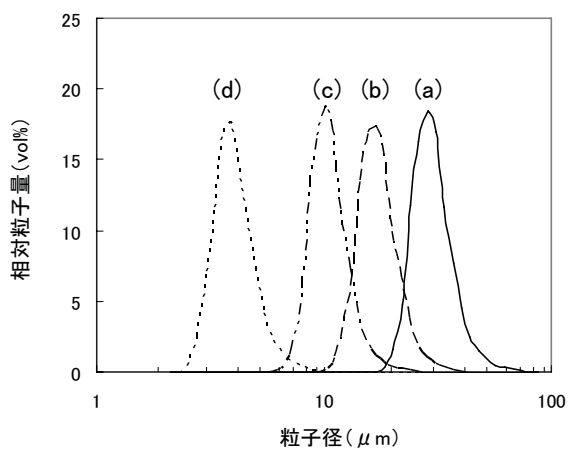


図4 インジウム微粒子の粒子径分布

(a)多孔質ガラス膜細孔径 $9.9 \mu\text{m}$,
 (b) $5.0 \mu\text{m}$, (c) $3.0 \mu\text{m}$, (d) $1.1 \mu\text{m}$

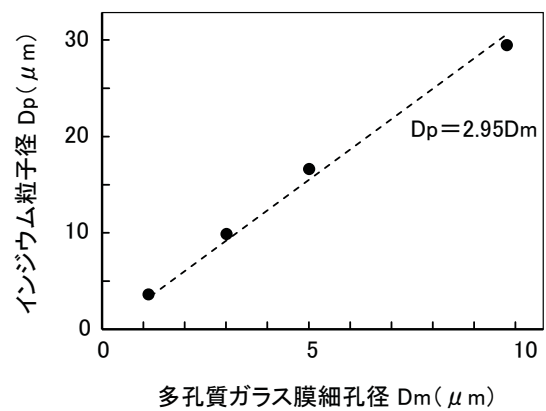


図5 多孔質ガラス膜細孔径と
 インジウム粒子径の関係

また、今回の実験で得られた最小のインジウム微粒子は、表 1 に示すとおり粒子径 $3.8\mu\text{m}$ であった。その電子顕微鏡写真を図 6 に示す。この最小の微粒子は、過去に膜乳化法で得られた Sn-Ag-Cu 微粒子の最小粒子径とほぼ同等であった。

これよりもさらに微小な粒子の生成可能性については、今後検討する。

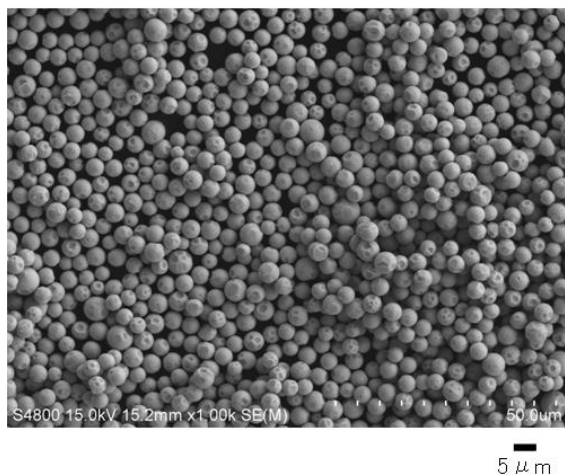


図 6 インジウム微粒子 (粒子径 $3.8\mu\text{m}$) の電子顕微鏡写真

4 まとめ

低融点金属インジウムについて、4 種の多孔質ガラス膜 (細孔径: $9.9\mu\text{m}$, $5.0\mu\text{m}$, $3.0\mu\text{m}$, $1.1\mu\text{m}$) を使用して、膜乳化法による微粒子調製の可能性を検討したところ、以下の結果が得られた。

- 1) 多孔質ガラス膜細孔径の約 3 倍の粒子径のインジウム微粒子が生成した。
- 2) 得られたインジウム微粒子は、どの細孔径においても δ が $0.50\sim 0.55$ と高い単分散性を示した。
- 3) 過去に膜乳化法で得られた最小の鉛フリーはんだ Sn-Ag-Cu 微粒子とほぼ同等の粒子径 $3.8\mu\text{m}$ のインジウム微粒子が得られた。

以上のことから、膜乳化法によるインジウム微粒子の調製が可能であり、かつ、Sn-Ag-Cu 微粒子とほぼ同等の微小なインジウム微粒子を生成できることがわかった。

すなわち、金属の種類を問わず、あらゆる金属の微粒子調製に膜乳化法を適用できる可能性が示された。

5 参考文献

- 1) 清水正高, 鳥越清, 赤崎いずみ: 化学工学会第 40 回秋季大会, O113(2008)
- 2) 中島忠夫, 清水正高, 久木崎雅人: 化学工学論文集, **19**, 991-997(1993)