

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2014-156365

(P2014-156365A)

(43) 公開日 平成26年8月28日(2014.8.28)

(51) Int.Cl.
C O 1 B 33/025 (2006.01)F I
C O 1 B 33/025テーマコード (参考)
4 G O 7 2

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 15 頁)

(21) 出願番号 特願2013-26898 (P2013-26898)
(22) 出願日 平成25年2月14日(2013.2.14)(71) 出願人 000005278
株式会社ブリヂストン
東京都中央区京橋三丁目1番1号
(74) 代理人 100083806
弁理士 三好 秀和
(74) 代理人 100100712
弁理士 岩▲崎▼ 幸邦
(74) 代理人 100101247
弁理士 高橋 俊一
(74) 代理人 100095500
弁理士 伊藤 正和
(74) 代理人 100098327
弁理士 高松 俊雄

最終頁に続く

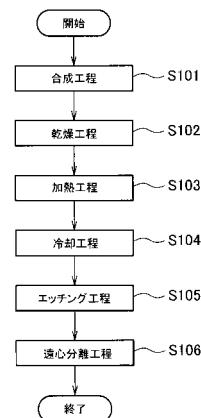
(54) 【発明の名称】 ケイ素微粒子の製造方法

(57) 【要約】

【課題】本発明によれば、収率の高いケイ素微粒子の製造方法を提供することができる。

【解決手段】本発明に係るケイ素微粒子の製造方法は、非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下において、加熱手段によって、ケイ素源及び炭素源を含む混合物を乾燥することによって得られた前駆体を加熱する工程Aと、非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下において、前記前駆体を加熱することによって生成されたガスを急冷して、ケイ素微粒子と酸化ケイ素微粒子と炭化ケイ素微粒子とを含む混合粉体を得る工程Bと、フッ酸を含むエッチング溶液に前記混合粉体を浸漬させて、エッチングする工程Cと、前記エッチング溶液に前記混合粉体を浸漬させることによって得られた生成溶液に遠心分離処理を行って、前記生成溶液に含まれる前記ケイ素微粒子を抽出する工程Dとを有する。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ケイ素微粒子の製造方法であって、
非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下において、加熱手段によって、ケイ素源及び炭素源を含む混合物を乾燥することによって得られた前駆体を加熱する工程 A と、

非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下において、前記前駆体を加熱することによって生成されたガスを急冷して、ケイ素微粒子と酸化ケイ素微粒子と炭化ケイ素微粒子とを含む混合粉体を得る工程 B と、

フッ酸を含むエッチング溶液に前記混合粉体を浸漬させて、エッチングする工程 C と、
前記エッチング溶液に前記混合粉体を浸漬させることによって得られた生成溶液に遠心分離処理を行って、前記生成溶液に含まれる前記ケイ素微粒子を抽出する工程 D とを有する

ことを特徴とするケイ素微粒子の製造方法。

【請求項 2】

前記工程 D において、前記生成溶液に含まれる前記ケイ素微粒子に終端処理を行った後に、前記生成溶液に前記遠心分離処理を行う

ことを特徴とする請求項 1 に記載のケイ素微粒子の製造方法。

【請求項 3】

前記混合物において、前記ケイ素源及び前記炭素源の少なくとも一方は、液状であることを特徴とする請求項 1 又は 2 に記載のケイ素微粒子の製造方法。

【請求項 4】

前記工程 A において、非炭素物質の内壁を有するチャンパー内で、前記加熱手段として、熱プラズマ、抵抗加熱装置、レーザ加熱装置或いはアークプラズマを用いて、前記前駆体を加熱する

ことを特徴とする請求項 1 乃至 3 のいずれか一項に記載のケイ素微粒子の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ケイ素微粒子の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

近年のナノテクノロジーの進歩と共に、その原料としての粉体に要求されるサイズは微小化している。研究開発のターゲットは、サブミクロン粒子からナノ粒子に移行しつつある。

【0003】

特に、20nm以下のナノ粒子においては、電子状態の変化に伴う特異な電磁的効果の発現や表面原子が占める割合の増大等によって、バルク素材にない優れた特性を持つことが知られている。そのため、例えば、ケイ素微粒子は、発光素子としての応用等が期待されている。

【0004】

また、例えば、医療分野では、ケイ素微粒子は、可視領域で発光するという特性に加えて、元来より、無毒で材料的にも安く豊富であるという利点を有することから、生体に入れることのできる発光材料としての期待が高まっている。

【0005】

かかるケイ素微粒子の製造方法として、特許文献 1 に開示されている製造方法が知られている。

【0006】

特許文献 1 には、不活性雰囲気下において、ケイ素源と炭素源を含む混合物を焼成し、かかる不活性雰囲気から生成ガスを抜き出し、急冷してケイ素微粒子を含む混合粉体を製

10

20

30

40

50

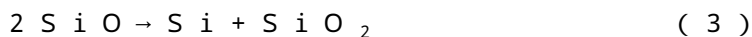
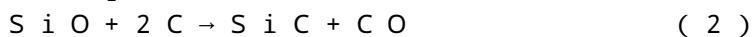
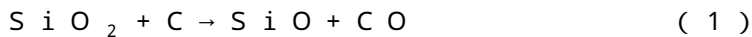
造する方法が開示されている。

【0007】

具体的に、特許文献1に記載されたケイ素微粒子の製造方法では、第1に、(1)式に示す化学反応によって、中間生成物として、一酸化ケイ素(SiO)を含むガス(以下、生成ガス)が生成されること、第2に、生成された一酸化ケイ素を含む生成ガスを、そのまま1600以上の温度で加熱し続けると、(2)式に示す化学反応によって、炭化ケイ素粉末が生成されること、が記載されている。そして、第3に、生成された一酸化ケイ素ガスを含む生成ガスを収集するとともに、速やかに1600未満の温度にて冷却すると、(3)式に示す化学反応によって、ケイ素(Si)微粒子を含む混合粉体を得られることが記載されている。

10

【0008】



【先行技術文献】

【特許文献】

【0009】

【特許文献1】特開2010-195637号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

20

【0010】

しかしながら、上述の製造方法において、第3の工程によって生成された生成粉体には、(3)式に示す化学反応によって得られたケイ素微粒子だけでなく、(1)式によって生成された酸化ケイ素微粒子と、(2)式によって生成された炭化ケイ素微粒子とが含まれている。

【0011】

つまり、上述の製造方法では、収集した生成ガスを冷却することによって、ケイ素微粒子を得られるものの、生成ガスには酸化ケイ素微粒子と炭化ケイ素微粒子とが含まれているため、ケイ素微粒子の収率をより向上させることが困難であるという問題があった。

【0012】

そこで、本発明は、上述の課題に鑑みてなされたものであり、収率の高いケイ素微粒子の製造方法を提供することを目的とする。

30

【課題を解決するための手段】

【0013】

本発明の一態様に係る第1の特徴は、ケイ素微粒子の製造方法であって、非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下において、加熱手段によって、ケイ素源及び炭素源を含む混合物を乾燥することによって得られた前駆体を加熱する工程A(ステップS103)と、非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下において、前記前駆体を加熱することによって生成されたガスを急冷して、ケイ素微粒子と酸化ケイ素微粒子と炭化ケイ素微粒子とを含む混合粉体を得る工程B(ステップS104)と、フッ酸を含むエッチング溶液に前記混合粉体を浸漬させて、エッチングする工程C(ステップS105)と、前記エッチング溶液に前記混合粉体を浸漬させることによって得られた生成溶液に遠心分離処理を行って、前記生成溶液に含まれる前記ケイ素微粒子を抽出する工程D(ステップS106)とを有することを要旨とする。

40

【0014】

本発明の他の特徴は、第1の特徴に係り、前記工程Dにおいて、前記生成溶液に含まれる前記ケイ素微粒子に終端処理を行った後に、前記生成溶液を濾過してもよい。

【0015】

本発明の他の特徴は、第1の特徴に係り、前記混合物において、前記ケイ素源及び前記炭素源の少なくとも一方は、液状であってもよい。

50

【 0 0 1 6 】

本発明の他の特徴は、第 1 の特徴に係り、前記工程 A において、非炭素物質の内壁を有するチャンバー内で、前記加熱手段として、熱プラズマ、抵抗加熱装置、レーザ加熱装置或いはアークプラズマを用いて、前記前駆体を加熱してもよい。

【 発明の効果 】

【 0 0 1 7 】

以上説明したように、本発明によれば、収率の高いケイ素微粒子の製造方法を提供することができる。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 8 】

【 図 1 】 第 1 の実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法について示すフローチャートである。

【 図 2 】 第 1 の実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法において行われるステップ S 1 0 3 及び S 1 0 4 の一例を示す図である。

【 図 3 】 第 1 の実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法において行われるステップ S 1 0 3 及び S 1 0 4 の一例を示す図である。

【 図 4 】 第 1 の実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法において行われるステップ S 1 0 3 及び S 1 0 4 の一例を示す図である。

【 図 5 】 第 1 の実施形態に係るケイ素微粒子の製造装置の一例を示す図である。

【 図 6 】 図 6 (a) は、エッチング溶液に浸漬させる前の混合粉体の写真画像である。図 6 (b) は、エッチング溶液に混合粉体を浸漬させた後に、遠心分離処理を行うことによって沈殿した沈殿物の写真画像である。図 6 (c) は、エッチング溶液に混合粉体を浸漬させた後に、遠心分離処理を行うことによって得られた上澄み液の写真画像である。

【 図 7 】 図 7 は、本発明の第 1 の実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法によって製造された上澄み液に含まれるケイ素微粒子を対象に、波長と発光強度とを測定したグラフである。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 9 】

(本発明の第 1 の実施形態)

図 1 乃至図 4 を参照して、本発明の一態様に係る第 1 の実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法及び製造装置について説明する。

【 0 0 2 0 】

図 1 に示すように、ステップ S 1 0 1 において、少なくとも 1 種以上のケイ素化合物を含むケイ素源、及び、少なくとも 1 種以上の加熱により炭素を生成する有機化合物を含む炭素源を合成することによって、ケイ素源及び炭素源の混合物を生成する。

【 0 0 2 1 】

例えば、硬化剤として、酸水溶液を用いて、ケイ素源及び炭素源を合成する。ここで、ケイ素源としては、液状のケイ素源と固体状のケイ素源とを併用することができるが、少なくとも 1 種の液状のケイ素源が用いられなければならない。

【 0 0 2 2 】

例えば、液状のケイ素源としては、アルコキシシラン (モノ - 、ジ - 、トリ - 、テトラ -) 、及び、テトラアルコキシシランの重合体が用いられ得る。

【 0 0 2 3 】

液状のケイ素源として、アルコキシシランの中では、テトラアルコキシシランが好適に用いられ、具体的には、メトキシシラン、エトキシシラン、プロポキシシラン、ブトキシシラン等が好適に用いられ得る。なお、ハンドリングの点からは、液状のケイ素源として、エトキシシランが用いられることが好ましい。

【 0 0 2 4 】

また、液状のケイ素源として、テトラアルコキシシランの重合体の中では、重合度が 2 ~ 1 5 程度の低分子量重合体 (オリゴマー) 、及び、さらに重合度が高いケイ酸ポリマー

10

20

30

40

50

で液状のものが用いられ得る。

【0025】

これらの液状のケイ素源と併用可能な固体状のケイ素源としては、酸化ケイ素が用いられ得る。

【0026】

本実施形態において、酸化ケイ素には、 SiO_2 の他、シリカゲル（コロイド状超微細シリカ含有液、内部にOH基やアルコキシル基を含む）、二酸化ケイ素（シリカゲル、微細シリカ、石英粉末）等を含む。

【0027】

これらのケイ素源は、単独で用いられてもよいし、2種以上併用されてもよい。これらのケイ素源の中でも、均質性やハンドリング性が良好という観点から、テトラエトキシシランのオリゴマー及びテトラエトキシシランのオリゴマーと微粉末シリカとの混合物等が用いられることが好ましい。

【0028】

ここで、炭素源として用いられる物質は、酸素を分子内に含有し、加熱により炭素を残留する有機化合物であることが好ましい。

【0029】

具体的には、フェノール樹脂やフラン樹脂やエポキシ樹脂やフェノキシ樹脂やグルコース等の単糖類、蔗糖等の少糖類、セルロースやデンプン等の多糖類等の各種糖類が挙げられる。

【0030】

これらの炭素源は、ケイ素源と均質に混合するという目的から、主に、常温で液状のもの、溶媒に溶解するもの、熱可塑性或いは熱融解性のように加熱することにより軟化するもの或いは液状となるものが用いられる。

【0031】

これらの中で、レゾール型フェノール樹脂やノボラック型フェノール樹脂が好適である。特に、レゾール型フェノール樹脂が好適に使用される。

【0032】

ここで、硬化剤は、炭素源に応じて適宜選択することができる。例えば、炭素源が、フェノール樹脂やフラン樹脂の場合、硬化剤として、トルエンスルホン酸水溶液、トルエンカルボン酸水溶液、酢酸水溶液、しゅう酸水溶液、硫酸水溶液等の弱い酸水溶液を用いることができる。かかる場合、硬化剤として、トルエンスルホン酸、マレイン酸、塩酸等を用いることが好ましい。

【0033】

なお、上述の混合物の生成に用いられるケイ素源及び炭素源の少なくとも一方は、液状であるものとする。

【0034】

ステップS102において、ステップS101によって得られた混合物を、100～300の温度で乾燥することによって、固体状の前駆体（プリカーサー）を生成する。

【0035】

ここで、上述のように、かかる前駆体の生成に用いられる混合物に含まれるケイ素源及び炭素源の少なくとも一方が、液状であるため、かかる前駆体の内部では、 SiO_2 及びCが、分子レベルで均一に分散しているものとする。

【0036】

また、かかる前駆体には、有機成分が多く含まれているため、非酸化雰囲気下において、500～1300で、かかる前駆体を炭化してもよい。

【0037】

例えば、かかる前駆体における炭素とケイ素との配合比（以下、C/Si比と略記）は、0.5～3.0が好ましく、0.75～1.5がより好ましい。

【0038】

10

20

30

40

50

ステップ S 1 0 3 において、非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下において、ケイ素源及び炭素源を含む混合物を乾燥することによって得られた前駆体 1 を加熱する。なお、このとき、炭化させた前駆体 1 を加熱してもよい。

【 0 0 3 9 】

ここで、非炭素物質は、炭素が表面に染み出していない物質であれば炭素を含む物質でもよく、例えば、SiC といった炭素の結合の強い物質や、昇華温度が十分高温であり C が昇華しない物質であってもよい。なお、非炭素物質によって形成された領域とは、例えば、非炭素物質によって内壁が形成されたチャンバー内の領域などが挙げられる。

【 0 0 4 0 】

また、不活性雰囲気は、Ar や N₂ や H₂ 等の不活性ガスで満たされている状態を示す。なお、不活性雰囲気としての性質に影響を与えない程度の微量であれば、かかる不活性雰囲気内に、O₂ 等の活性ガスが含まれていてもよい。

【 0 0 4 1 】

具体的には、ステップ S 1 0 3 において、加熱手段として、熱プラズマ、抵抗加熱装置、レーザ加熱装置或いはアークプラズマ等を用いて、前駆体を加熱してもよい。

【 0 0 4 2 】

例えば、図 2 に示すように、かかる前駆体 1 を細かく粉砕した後、テーブルフィーダー或いはスクリーフィーダー等の粉体供給装置を用いて、かかる前駆体を含むガス（気体）を、チャンバー 1 0 内で発生している熱プラズマによる加熱領域 2 0 A に対して噴霧する。

【 0 0 4 3 】

或いは、図 3 に示すように、かかる前駆体 1 を細かく粉砕した後、テーブルフィーダー或いはスクリーフィーダー等の粉体供給装置を用いて、かかる前駆体を含むガス（気体）を、チャンバー 1 0 内で発生している抵抗加熱装置による加熱領域 2 0 B に対して噴霧してもよい。

【 0 0 4 4 】

又は、図 4 (a) 及び図 4 (b) に示すように、かかる前駆体 1 を細かく粉砕した後、テーブルフィーダー或いはスクリーフィーダー等の粉体供給装置を用いて、かかる前駆体 1 を含むガス（気体）を、チャンバー 1 0 内で発生しているレーザ加熱装置による加熱領域 2 0 C に対して噴霧してもよい。

【 0 0 4 5 】

図 4 (a) 及び図 4 (b) に示すように、加熱領域 2 0 C は、ガラス窓 1 0 B を介して 2 方向からチャンバー 1 0 内に入射された CO₂ レーザ又は YAG レーザの交差する領域である。

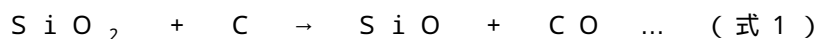
【 0 0 4 6 】

かかるチャンバー 1 0 内は、プラズマ用ガスによって不活性雰囲気下となっている。また、かかるチャンバー 1 0 は、非炭素物質の内壁（例えば、ステンレス製の内壁）を有している。

【 0 0 4 7 】

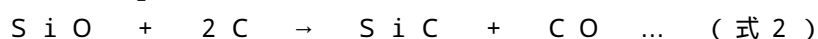
かかる場合、かかる熱プラズマや抵抗加熱装置やレーザ加熱装置が、加熱手段として働き、加熱領域 2 0 A ~ 2 0 C 内で、1300 以上に、より好ましくは、1500 以上に、かかる前駆体を加熱することができる。この結果、（式 1）に示す化学反応によって、一酸化ケイ素（SiO）ガスが生成される。

【 0 0 4 8 】



さらに、一酸化ケイ素ガスを、そのまま 1600 以上の温度で加熱し続けると、（2）式に示す化学反応によって、炭化ケイ素粉末が生成される。

【 0 0 4 9 】



ステップ S 1 0 4 において、非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下

10

20

30

40

50

において、前駆体 1 を加熱することによって生成された生成ガスを急冷して、ケイ素 (Si) 微粒子と酸化ケイ素 (SiO_x : x = 1 又は 2) 微粒子と炭化ケイ素 (SiC) 微粒子とを含む混合粉体 2 を得る。

【 0 0 5 0 】

具体的には、例えば、図 2 乃至図 4 に示すように、加熱領域 20 A ~ 20 C 内で生成された一酸化ケイ素ガスを、そのままの気流に乗せて、チャンバー 10 内の加熱領域 20 A ~ 20 C の外に放出する。

【 0 0 5 1 】

かかる場合、加熱領域 20 A ~ 20 C の外は、1300 未満となっているため、かかる一酸化ケイ素ガスを、1300 度未満に急冷される。また、チャンバー 20 の外部は、室温に保たれているため、かかる一酸化ケイ素ガスは、その後、室温まで急冷される。この結果、(式 3) に示す化学反応によって、ケイ素 (Si) 微粒子が生成される。

【 0 0 5 2 】



チャンバー 20 から放出されて生成された混合粉体 2 についてサイクロン或いは集塵機等で回収する。なお、この混合粉体 2 には、ケイ素 (Si) 微粒子と、酸化ケイ素 (SiO_x : x = 1 又は 2) 微粒子と、炭化ケイ素 (SiC) 微粒子とが含まれている。

【 0 0 5 3 】

ステップ S 105 において、集塵機に集塵された混合粉体を、フッ酸を含むエッチング溶液に浸漬させて、エッチングする。このとき、エッチング溶液の濃度及びエッチング時間を調節して、酸化ケイ素 (SiO_x : x = 1 又は 2) 微粒子を完全に溶解させることが好ましい。

【 0 0 5 4 】

ここで、ケイ素微粒子をエッチングして粒径を調整するようにしてもよい。この場合、エッチング溶液には、酸化剤が含まれていてもよい。具体的に、酸化剤としては、例えば、硝酸 (HNO₃) 及び過酸化水素 (H₂O₂) を用いてもよい。また、エッチング溶液に、ケイ素微粒子の回収を容易にするために、微極性溶媒 (例えば、2-プロパノール) を混ぜても構わない。

【 0 0 5 5 】

ステップ S 106 において、エッチング溶液に混合粉体を浸漬させることによって得られた生成溶液に遠心分離処理を行って、生成溶液に含まれる前記ケイ素微粒子を抽出する。

【 0 0 5 6 】

ここで、かかる生成溶液において、炭化ケイ素微粒子については、溶解せずに粒径が保たれたまま残る。また、この時、炭化ケイ素微粒子の粒径は、200 nm ~ 30 nm であり、ケイ素微粒子の粒径は、20 nm 以下である。

【 0 0 5 7 】

従って、かかる生成溶液に遠心分離処理を行うことによって、ケイ素微粒子と、炭化ケイ素微粒子とを分離することができる。具体的に、ケイ素微粒子の密度は、炭化ケイ素微粒子の密度に比べて非常に小さいため、遠心分離処理を行うことによって、ケイ素微粒子と炭化ケイ素微粒子とを確実に分離することができる。

【 0 0 5 8 】

この後、分離された炭化ケイ素微粒子を抽出することによって、純度の高い炭化ケイ素微粒子を得ることができる。

【 0 0 5 9 】

なお、ステップ S 106 において、生成溶液に含まれるケイ素微粒子に終端処理を行った後に、生成溶液に遠心分離処理を行うことが好ましい。具体的に、ケイ素微粒子の表面に付加された水素原子を、不飽和炭化水素基などの有機分子によって置換してもよい。不飽和炭化水素基は、親水基を有する不飽和炭化水素基を有するものであればよい。例えば、1-デセン、テトラデセン、1-オクテン、スチレンなどが挙げられる。また、親水基

10

20

30

40

50

を有するイソプレノイド化合物から生成される基であってもよい。例えば、リナロール等のモノテルペノイドが適用可能である。

【0060】

このようにケイ素微粒子の表面に終端処理を行うことによって、ケイ素微粒子が凝集してしまうことを抑制できる。すなわち、生成溶液において、ケイ素微粒子が分散した状態を保つことが可能になるため、生成溶液に遠心分離処理を行うことによって、炭化ケイ素微粒子をより確実に分離できる。

【0061】

(ケイ素微粒子の製造装置)

以下、図5を参照して、本発明の一態様に係る第1の実施形態のケイ素微粒子の製造装置の一例について説明する。

10

【0062】

本実施形態に係るケイ素微粒子の製造装置としては、図5に示すような高周波誘導熱プラズマ装置100を用いることができる。なお、本実施形態に係るケイ素微粒子の製造装置としては、図5に示す高周波誘導熱プラズマ装置100以外にも、局所加熱を実現できる装置であれば、レーザ焼成装置や抵抗加熱焼成装置等の任意の装置を用いることができる。

【0063】

図5に示すように、かかる高周波誘導熱プラズマ装置100は、プラズマ発生用のトーチ100Aを具備しており、かかるトーチ100Aは、円筒部材100Bや、円筒部材100Bの上部に取り付けられているガスリング100Cや、円筒部材100Bの外側に配置されている誘導コイル100D等から形成されている。

20

【0064】

また、円筒部材100Bは、内側管及び外側管からなる二重管構造として形成されており、内側管は、非炭素物質で形成されている。

【0065】

また、円筒部材100Bは、上部フランジ100Eと下部フランジ100Fとの間に取り付けられており、上部フランジ100E及び下部フランジ100Fは、ネジ100Gによって支持棒100Hに固定されている。

【0066】

上部フランジ100Eと下部フランジ100Fの間には、イグニションコイル等の高電圧発生装置100Iが接続されている。

30

【0067】

上部フランジ100Eには、冷却水の出口通路100Jが設けられ、下部フランジ100Fには、冷却水の入口通路100Kが設けられている。

【0068】

冷却水は、入口通路100Kを介して、円筒部材100Bの二重管構造の内部に供給され、出口通路100Jを介して、円筒部材100Bの二重管構造の内部から排出されるように構成されている。

【0069】

ガスリング100Cの中央部分には、ブローブ100Lが設けられている。かかるブローブ100Lの中心部には、ブローブ100Lの長手方向に沿ってブローブ中心孔Hが形成されており、かかるブローブ中心孔H内にパイプQが挿入されている。

40

【0070】

かかるパイプQを介して、粉体供給装置から円筒部材100Bの内部に、上述の前駆体を含むガス(例えば、アルゴンガス)が供給されるように構成されている。

【0071】

また、ガスリング100Cの内部の供給通路100Mを介して、プラズマガス源(図示せず)から円筒部材100Bの内部に、プラズマガス(例えば、アルゴンガス)が供給されるように構成されている。

50

【 0 0 7 2 】

また、プローブ 1 0 0 L の内部には、冷却水の通路（図示せず）が設けられており、冷却水は、入口 1 0 0 N から供給され、出口 1 0 0 O から排出されるように構成されている。

【 0 0 7 3 】

さらに、ガスリング 1 0 0 C の内部にも、冷却水の通路 1 0 0 P が設けられており、冷却水は、かかる通路 1 0 0 P 内に供給されるように構成されている。

【 0 0 7 4 】

なお、誘導コイル 1 0 0 D には、高周波電源（図示せず）からの高周波電力が供給されるように構成されている。

10

【 0 0 7 5 】

また、トーチ 1 0 0 A の下部には、チャンバー 1 0 0 Q が配置されている。

【 0 0 7 6 】

以下、かかる高周波誘導熱プラズマ装置 1 0 0 の動作を簡単に説明する。

【 0 0 7 7 】

第 1 に、ガスリング 1 0 0 C の内部の供給通路 1 0 0 M を介して、プラズマガス源から円筒部材 1 0 0 B の内部に、プラズマガスを供給すると共に、高周波電源から誘導コイル 1 0 0 D に対して高周波電力を供給する。

【 0 0 7 8 】

第 2 に、かかる状態で、高圧発生装置 1 0 0 I から、上部フランジ 1 0 0 E と下部フランジ 1 0 0 F との間に高電圧を印加すると、部フランジ 1 0 0 E と下部フランジ 1 0 0 F との間でコロナ放電が生起し、かかるコロナ放電が引き金となって、トーチ 1 0 0 A の内部に熱プラズマ P が発生（着火）する。

20

【 0 0 7 9 】

第 4 に、粉体供給装置から、ガスリング 1 0 0 C の中心に位置するプローブ中心孔 H 内のパイプ Q を介して、上述の前駆体を含むガスを、熱プラズマ P による加熱領域に供給する。

【 0 0 8 0 】

第 5 に、かかる前駆体は、1 0 0 0 0 程度の熱プラズマ P による加熱領域内で、蒸発したり溶解されたりして、上述の（式 1 ）に示す化学反応によって、一酸化ケイ素（S i O ）ガスが生成される。

30

【 0 0 8 1 】

第 6 に、熱プラズマ P による加熱領域内で生成された一酸化ケイ素ガスを、引き続き熱プラズマ P による加熱領域内において加熱することで、上述の（式 2 ）に示す化学反応によって、炭化ケイ素（S i C ）微粒子が生成される。

【 0 0 8 2 】

第 7 に、熱プラズマ P による加熱領域内で生成された一酸化ケイ素ガスを、そのままの気流に乗せて、かかる熱プラズマ P による加熱領域からチャンバー 1 0 0 Q 内に放出する。

【 0 0 8 3 】

40

ここで、チャンバー 1 0 0 Q 内において、かかる一酸化ケイ素ガスが急冷された結果、上述の（式 3 ）に示す化学反応によって、ケイ素（S i ）微粒子が生成される。その結果、ケイ素（S i ）微粒子と、酸化ケイ素（S i O x : x = 1 又は 2 ）微粒子と、炭化ケイ素（S i C ）微粒子とを含む混合粉体が生成される。

【 0 0 8 4 】

第 8 に、生成された混合粉体については、チャンバー 1 0 0 Q に接続されている集塵機によって回収される。

【 0 0 8 5 】

なお、この後、集塵機によって集塵された混合粉体を、フッ酸を含むエッチング溶液に浸漬させて、酸化ケイ素（S i O x : x = 1 又は 2 ）微粒子をエッチングする。また、エ

50

ツチング後の生成溶液に遠心分離処理を行うことによって、ケイ素微粒子と炭化ケイ素微粒子を分離して、当該ケイ素微粒子を抽出できる。

【0086】

(作用及び効果)

本発明の一態様に係る第1の実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法によれば、非炭素物質によって形成された領域内で、不活性雰囲気下において、熱プラズマや抵抗加熱装置やレーザ加熱装置やアークプラズマ等の加熱手段によって前駆体を瞬時に加熱することによって生成された一酸化ケイ素ガスを、かかる加熱手段による加熱領域20A~20Cの外にそのまま放出することによって1300未満(その後、室温)にまで急冷するように構成されているため、上述の(式2)によって、炭化ケイ素微粒子が生成されることを可及的に回避することができる。

10

【0087】

すなわち、一酸化ケイ素ガスを、かかる加熱手段による加熱領域20A~20Cの外にそのまま放出することによって1300未満(その後、室温)にまで急冷するように構成されているため、上述の(式3)に示す化学反応によってケイ素微粒子が促進されるので、ケイ素微粒子の収率を向上させることができる。

【0088】

また、かかる加熱手段による加熱領域20A~20Cの外において、集塵機を用いて集塵した混合粉体には、ケイ素(Si)微粒子と、酸化ケイ素(SiO_x: x=1又は2)微粒子と、炭化ケイ素(SiC)微粒子とが含まれている。

20

【0089】

なお、当該混合粉体では、炭化ケイ素微粒子の密度は、ケイ素微粒子の密度に比べて大きい。一方、炭化ケイ素微粒子の密度は、酸化ケイ素微粒子の密度に近い。

【0090】

本実施形態では、フッ酸を含むエッチング溶液に混合粉体を浸漬することによって、酸化ケイ素微粒子をエッチングする。具体的に、酸化ケイ素微粒子を溶解させて除去する。このとき、ケイ素微粒子と炭化ケイ素微粒子は、溶解されることなく残る。

【0091】

また、混合粉体をエッチング溶液に浸漬した生成溶液に含まれるケイ素微粒子の密度は、炭化ケイ素微粒子の密度に比べて小さい。すなわち、生成溶液には、密度差の大きい2種類のケイ素微粒子と炭化ケイ素微粒子と含まれる。

30

【0092】

従って、かかる生成溶液に遠心分離処理を行うことによって、ケイ素微粒子と、炭化ケイ素微粒子とをより確実に分離することができる。具体的に、生成溶液に遠心分離処理を行うことによって得られる上澄み液には、純度の高いケイ素微粒子が含まれている。

【0093】

この上澄み液に含まれるケイ素微粒子を抽出することによって、純度の高いケイ素微粒子を得ることができる。このようにして、ケイ素(Si)微粒子の収率を高めることが可能になる。

【0094】

ここで、図6(a)には、エッチング溶液に浸漬させる前の混合粉体の写真画像が示されている。図6(b)には、エッチング溶液に混合粉体を浸漬させた後に、遠心分離処理を行うことによって沈殿した沈殿物の写真画像が示されている。図6(c)には、エッチング溶液に混合粉体を浸漬させた後に、遠心分離処理を行うことによって得られた上澄み液の写真画像が示されている。なお、図6(a)乃至(c)に示される写真画像は、透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて撮像した写真画像である。

40

【0095】

図6(a)乃至(c)に示すように、混合粉体をエッチング溶液に浸漬した生成溶液に遠心分離処理を行うことによって得られた上澄み液には、高純度のケイ素微粒子が分離されることが確認された。

50

【 0 0 9 6 】

このように、本実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法によれば、ステップ S 1 0 5 のエッチング工程において、酸化ケイ素微粒子を除去し、ステップ S 1 0 6 の遠心分離工程において、炭化ケイ素微粒子を除去するため、従来技術に比べて、ケイ素微粒子の収率を高めることが可能になる。

【 0 0 9 7 】

また、図 7 には、本実施形態に係る製造方法によって製造された上澄み液に含まれるケイ素微粒子を対象に、波長と発光強度とを測定したグラフが示されている。なお、図 7 のグラフにおいて、発光強度は、測定結果が 1 0 0 以下となるように規格化された値が示されている。

10

【 0 0 9 8 】

図 7 に示すように、生成溶液に遠心分離処理を行って得られた上澄み液には、7 0 0 n m ~ 7 5 0 n m の範囲内における発光強度が高いケイ素微粒子が多量に含まれていることが確認された。なお、かかる範囲内における発光強度が高いケイ素微粒子の粒径は、1 0 n m 以下であるため、図 7 のグラフは、上澄み液に 1 0 n m 以下の高純度のケイ素 (S i) 微粒子が含まれていることを示している。すなわち、1 0 n m 以下の高純度のケイ素微粒子が分離されていることが確認された。つまり、本実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法によれば、ケイ素微粒子の収率を高めることが可能になることが確認された。

【 0 0 9 9 】

また、本発明の第 1 の実施形態に係るケイ素微粒子の製造方法によれば、内部で S i O₂ 及び C が分子レベルで均一に分散している前駆体を用いるため、かかる前駆体が加熱領域 2 0 A ~ 2 0 C を抜け出る間に、上述の (式 1) に示す化学反応が十分に行われ、ケイ素微粒子の収率を一層向上させることもできる。

20

【 0 1 0 0 】

以上、上述の実施形態を用いて本発明について詳細に説明したが、当業者にとっては、本発明が本明細書中に説明した実施形態に限定されるものではないということは明らかである。本発明は、特許請求の範囲の記載により定まる本発明の趣旨及び範囲を逸脱することなく修正及び変更態様として実施することができる。従って、本明細書の記載は、例示説明を目的とするものであり、本発明に対して何ら制限的な意味を有するものではない。

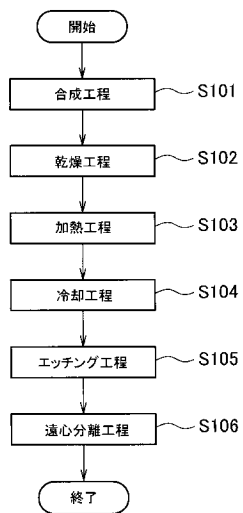
【 符号の説明 】

30

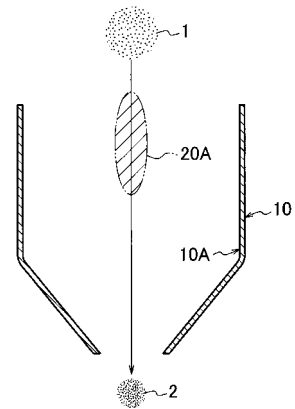
【 0 1 0 1 】

1 ... 前駆体、1 0 ... チャンバー、1 0 A ... 内壁、2 0 A、2 0 B、2 0 C ... 加熱領域、2 ... 混合粉体、1 0 0 ... 高周波誘導熱プラズマ装置、1 0 0 A ... トーチ、1 0 0 B ... 円筒部材、1 0 0 C ... ガスリング、1 0 0 D ... 誘導コイル、1 0 0 E ... 上部フランジ、1 0 0 F ... 下部フランジ、1 0 0 G ... ネジ、1 0 0 H ... 支持棒、1 0 0 I ... 高電圧発生装置、1 0 0 J ... 出口通路、1 0 0 K ... 入口通路、1 0 0 L ... プロープ、H ... プロープ中心孔、Q ... パイプ、1 0 0 M ... 供給通路、1 0 0 N ... 入口、1 0 0 O ... 出口、1 0 0 P ... 通路、1 0 0 Q ... チャンバー

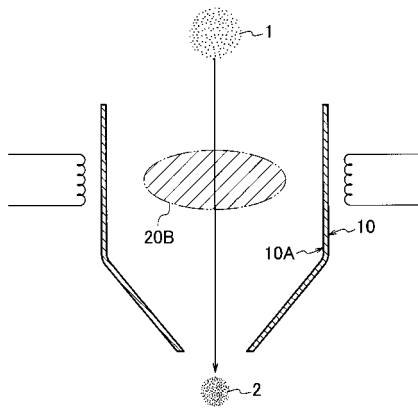
【 図 1 】



【 図 2 】

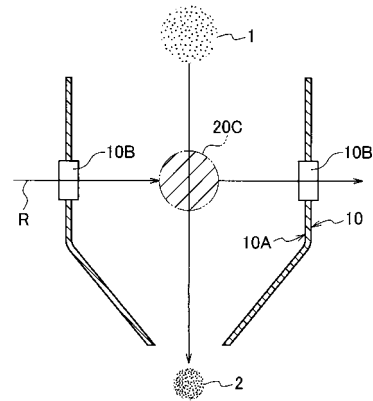


【 図 3 】

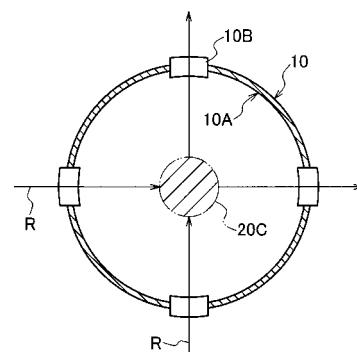


【 図 4 】

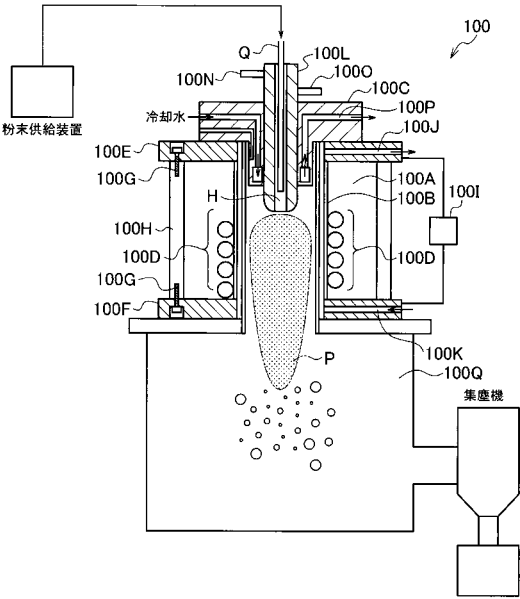
(a)



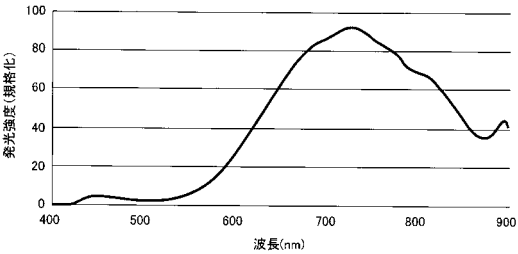
(b)



【 図 5 】

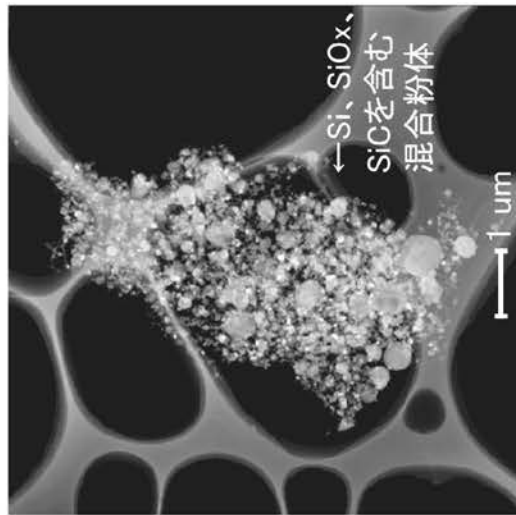


【 図 7 】

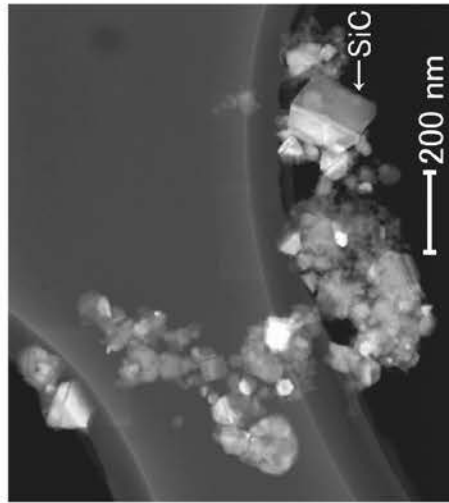


【図 6】

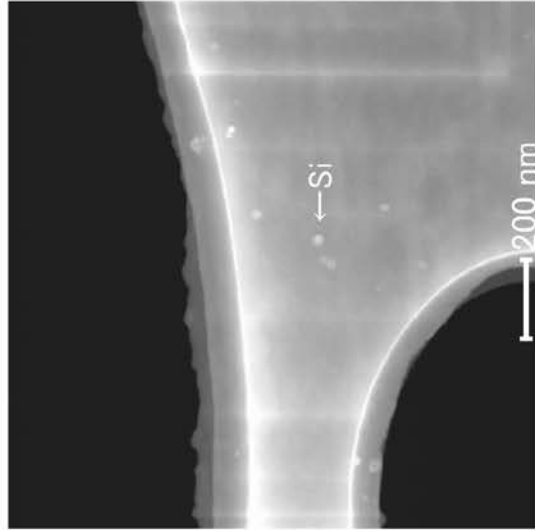
(a)



(b)



(c)



フロントページの続き

(72)発明者 中村 智
東京都小平市小川東町 3 - 1 - 1 株式会社ブリヂストン技術センター内

(72)発明者 宮野 真理
東京都小平市小川東町 3 - 1 - 1 株式会社ブリヂストン技術センター内

(72)発明者 椎野 修
東京都小平市小川東町 3 - 1 - 1 株式会社ブリヂストン技術センター内

(72)発明者 吉川 雅人
東京都小平市小川東町 3 - 1 - 1 株式会社ブリヂストン技術センター内

F ターム(参考) 4G072 AA25 BB05 GG03 HH14 JJ02 JJ18 LL03 LL07 MM03 MM24
MM28 RR21 RR22 RR25 RR26