

(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2019-100645

(P2019-100645A)

(43) 公開日 令和1年6月24日(2019.6.24)

(51) Int.Cl.			F I			テーマコード (参考)		
F 2 7 D	7/06	(2006.01)	F 2 7 D	7/06	A	4 K 0 5 5		
F 2 7 B	5/05	(2006.01)	F 2 7 B	5/05		4 K 0 6 1		
F 2 7 D	5/00	(2006.01)	F 2 7 D	5/00		4 K 0 6 3		

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全 16 頁)

(21) 出願番号 特願2017-233216 (P2017-233216)
 (22) 出願日 平成29年12月5日 (2017.12.5)

(71) 出願人 000231464
 株式会社アルバック
 神奈川県茅ヶ崎市萩園2500番地
 (74) 代理人 100104215
 弁理士 大森 純一
 (74) 代理人 100196575
 弁理士 高橋 満
 (74) 代理人 100168181
 弁理士 中村 哲平
 (74) 代理人 100144211
 弁理士 日比野 幸信
 (72) 発明者 平川 正明
 神奈川県茅ヶ崎市萩園2500番地 株式会社アルバック内

最終頁に続く

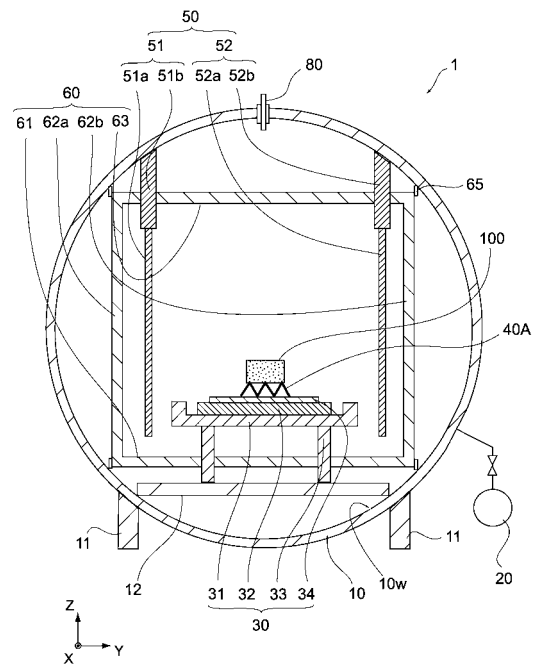
(54) 【発明の名称】 真空加熱装置及び高融点金属体の製造方法

(57) 【要約】

【課題】より高純度の高融点金属体を製造する。

【解決手段】真空加熱装置は、真空容器と、排気機構と、ステージと、台座と、加熱機構とを具備する。上記排気機構は、上記真空容器内のガスを排気する。上記ステージは、上記真空容器内に設けられる。上記台座は、上記ステージに載置される。上記台座は、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体を支持可能である。上記台座は、上記成形体と接触する上端部と、上記ステージと接触する下端部とを有する。上記台座は、上記上端部が上記成形体と接触することで上記成形体との間に第1空間部が形成され、上記下端部が上記ステージと接触することで上記ステージとの間に第2空間部が形成される。上記加熱機構は、上記成形体を加熱する。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

真空容器と、
前記真空容器内のガスを排気する排気機構と、
前記真空容器内に設けられたステージと、
前記ステージに載置され、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体を支持可能であり、
前記成形体と接触する上端部と、前記ステージと接触する下端部とを有し、前記上端部が
前記成形体と接触することで前記成形体との間に第 1 空間部が形成され、前記下端部が前
記ステージと接触することで前記ステージとの間に第 2 空間部が形成される台座と、
前記成形体を加熱する加熱機構と
を具備する真空加熱装置。

10

【請求項 2】

請求項 1 に記載の真空加熱装置であって、
前記加熱機構は、前記ステージを挟み、互いに対向する一対のヒータ板を有する
真空加熱装置。

【請求項 3】

請求項 1 または 2 に記載の真空加熱装置であって、
前記台座は、水平方向に伸縮可能であり、前記水平方向における伸縮に応じて高さが変
わる
真空加熱装置。

20

【請求項 4】

請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 つに記載の真空加熱装置であって、
前記台座の水平方向における断面形状は、ストライプ状に構成されている
真空加熱装置。

【請求項 5】

請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 つに記載の真空加熱装置であって、
前記台座は、4 mm 以上の高さを有する
真空加熱装置。

【請求項 6】

請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 つに記載の真空加熱装置であって、
前記台座は、前記高融点金属酸化物に含まれる高融点金属と同じ材料で構成される
真空加熱装置。

30

【請求項 7】

請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 つに記載の真空加熱装置であって、
前記台座の前記上端部は、前記高融点金属酸化物に含まれる高融点金属と同じ材料で構
成される
真空加熱装置。

【請求項 8】

請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 つに記載の真空加熱装置であって、
前記ステージは、前記台座と接する炭素シートを含む
真空加熱装置。

40

【請求項 9】

真空容器と、
前記真空容器内のガスを排気する排気機構と、
前記真空容器内に設けられたステージと、
前記ステージに載置され、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体を支持可能であり、
前記成形体と接触する上端部と、前記ステージと接触する下端部とを有し、前記上端部が
前記成形体と接触し、前記下端部が前記ステージと接触することで、前記成形体と前記ス
テージとの間を連通する空間部が形成される台座と、
前記成形体を加熱する加熱機構と

50

を具備する真空加熱装置。

【請求項 10】

請求項 9 に記載の真空加熱装置であって、
前記台座の水平方向における断面形状は、ハニカム状、格子状及び円形状のいずれか1
つに構成されている

真空加熱装置。

【請求項 11】

真空容器内に設けられたステージ上に、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体を支持
可能であり、前記成形体と接触する上端部と、前記ステージと接触する下端部とを有し、
前記上端部が前記成形体と接触することで前記成形体との間に第 1 空間部が形成され、前
記下端部が前記ステージと接触することで前記ステージとの間に第 2 空間部が形成される
台座を載置し、

10

前記台座に前記成形体を支持させ、

前記真空容器内を排気機構により排気しつつ前記成形体を加熱機構によって加熱し、

前記高融点金属酸化物を炭素還元して、高融点金属体を形成する

高融点金属体の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、真空加熱装置及び高融点金属体の製造方法に関する。

20

【背景技術】

【0002】

タンタル等の高融点金属を含む金属酸化物から、高融点金属を抽出する方法として、炭
素還元法が知られている（例えば、非特許文献 1 参照）。例えば、タンタル酸化物及び黒
鉛を含む成形体をプラズマアーク炉に入れ、この成形体に数千度以上のプラズマトーチに
晒し、成形体から高融点金属体を得る手法である。しかしながら、プラズマアーク法は、
プラズマトーチに晒される成形体の面積に限られることから量産性には優れない。

【0003】

これに対して、成形体を数千度以上に加熱処理する別の手法として、真空加熱処理があ
る（例えば、特許文献 1 参照）。真空加熱処理は、比較的大きな成形体を真空容器内に設
置できることから、一度に炭素還元できる成形体の量が増し、量産性に優れる。そして、
このような真空加熱処理では、成形体の炭素還元をいかにして効率よく促進させ、高純度
の高融点金属体を得るかが重要になる。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0004】

【特許文献 1】特許第 4 0 2 3 7 7 4 号公報

【非特許文献】

【0005】

【非特許文献 1】日本鉱業会誌 / 9 6 1 1 0 5 (' 8 0 - 3) 1 6 5 < 4 5 > - 1 7 0
< 5 4 >

40

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

以上のような事情に鑑み、本発明の目的は、炭素還元によって、より高純度の高融点金
属体を製造する真空加熱装置及び高融点金属体の製造方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

上記目的を達成するため、本発明の一形態に係る真空加熱装置は、真空容器と、排気機
構と、ステージと、台座と、加熱機構とを具備する。上記排気機構は、上記真空容器内の

50

ガスを排気する。上記ステージは、上記真空容器内に設けられる。上記台座は、上記ステージに載置される。上記台座は、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体を支持可能である。上記台座は、上記成形体と接触する上端部と、上記ステージと接触する下端部とを有する。上記台座は、上記上端部が上記成形体と接触することで上記成形体との間に第1空間部が形成され、上記下端部が上記ステージと接触することで上記ステージとの間に第2空間部が形成される。上記加熱機構は、上記成形体を加熱する。

このような真空加熱装置であれば、台座によって、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体が支持され、加熱機構によって成形体が加熱されたときに、成形体からステージへの熱拡散が抑えられて、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【0008】

上記の真空加熱装置においては、上記加熱機構は、上記ステージを挟み、互いに対向する一対のヒータ板を有してもよい。

このような真空加熱装置であれば、成形体が一対のヒータ板によって左右から均等に加熱され、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【0009】

上記の真空加熱装置においては、上記台座は、水平方向に伸縮可能であり、上記水平方向における伸縮に応じて高さが変わってもよい。

このような真空加熱装置であれば、台座の高さに応じて、成形体から台座を介してのステージへの熱伝導の程度が調整できるので、成形体からステージへの熱拡散を抑制することができ、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【0010】

上記の真空加熱装置においては、上記台座の水平方向における断面形状は、ストライプ状に構成されてもよい。

このような真空加熱装置であれば、成形体から台座を介してのステージへの熱拡散が抑制されるので、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【0011】

上記の真空加熱装置においては、上記台座は、4mm以上の高さを有してもよい。

このような真空加熱装置であれば、成形体から台座を介してのステージへの熱拡散が抑制されるので、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【0012】

上記台座は、上記高融点金属酸化物に含まれる高融点金属と同じ材料で構成されてもよい。

このような真空加熱装置であれば、高融点金属と台座とが同じ材料で構成されているので、台座から炭素還元により形成される高融点金属体に不純物が入りにくくなる。

【0013】

上記台座の上記上端部は、上記高融点金属酸化物に含まれる高融点金属と同じ材料で構成されてもよい。

このような真空加熱装置であれば、高融点金属と台座の上端部とが同じ材料で構成されているので、炭素還元により形成される高融点金属体に台座からの不純物が入りにくくなる。

【0014】

上記の真空加熱装置においては、上記ステージは、上記台座と接する炭素シートを含んでもよい。

このような真空加熱装置であれば、台座とステージとの間に、炭素シートが介在しているので、台座とステージとの直接的な反応が抑えられる。

【0015】

上記目的を達成するため、本発明の一形態に係る真空加熱装置は、真空容器と、排気機構と、ステージと、台座と、加熱機構とを具備する。上記排気機構は、上記真空容器内のガスを排気する。上記ステージは、上記真空容器内に設けられる。上記台座は、上記ステージに載置される。上記台座は、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体を支持可能であ

10

20

30

40

50

る。上記台座は、上記成形体と接触する上端部と、上記ステージと接触する下端部とを有する。上記台座は、上記上端部が上記成形体と接触し、上記下端部が上記ステージと接触することで、上記成形体と上記ステージとの間を連通する空間部が形成される。上記加熱機構は、上記成形体を加熱する。

このような真空加熱装置であれば、台座によって、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体が支持され、加熱機構によって成形体が加熱されたときに、成形体からステージへの熱拡散が抑えられて、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【0016】

上記台座の水平方向における断面形状は、ハニカム状、格子状及び円形状のいずれか1つに構成されてもよい。

このような真空加熱装置であれば、成形体から台座を介してのステージへの熱拡散が抑制されるので、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【0017】

上記目的を達成するため、本発明の一形態に係る高融点金属体の製造方法は、真空容器内に設けられたステージ上に、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体を支持可能であり、上記成形体と接触する上端部と、上記ステージと接触する下端部とを有し、上記上端部が上記成形体と接触することで上記成形体との間に第1空間部が形成され、上記下端部が上記ステージと接触することで上記ステージとの間に第2空間部が形成される台座を載置することを含む。上記成形体は、上記台座に支持される。上記真空容器内は、排気機構により排気されつつ上記成形体は加熱機構によって加熱される。上記高融点金属酸化物は炭素還元されて、高融点金属体が形成される。

このような方法であれば、台座によって、高融点金属酸化物及び炭素を含む成形体が支持され、加熱機構によって成形体が加熱されたときに、成形体からステージへの熱拡散が抑えられて、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【発明の効果】

【0018】

以上述べたように、本発明によれば、炭素還元によって、より高純度の高融点金属体が製造される。

【図面の簡単な説明】

【0019】

【図1】本実施形態に係る真空加熱装置の概略断面図である。

【図2】図(a)は、台座の概略断面図である。図(b)は、台座の概略上面図である。

【図3】成形体から台座を介してステージへ移動する熱の流れの一例を示す概略断面図である。

【図4】本実施形態に係る真空加熱装置の動作の一例を示す概略グラフ図である。

【図5】図(a)は、比較例に係る真空加熱処理で形成されたタンタル金属体のX線回折結果である。図(b)は、本実施形態に係る真空加熱処理で形成されたタンタル金属体のX線回折結果である。図(c)は、炭素還元が図られたタンタル金属体の概略下面図である。図(d)は、図(c)の破線における概略断面図である。

【図6】図(a)及び図(b)は、台座の変形例の概略断面図である。

【図7】図(a)及び図(b)は、台座の別の変形例の概略断面図である。

【図8】図(a)～図(c)は、台座の別の変形例の概略斜視図である。

【発明を実施するための形態】

【0020】

以下、図面を参照しながら、本発明の実施形態を説明する。各図面には、XYZ軸座標が導入される場合がある。

【0021】

図1は、本実施形態に係る真空加熱装置の概略断面図である。図1に示される真空加熱装置1は、一例であり、この例に限らない。

【0022】

真空加熱装置 1 は、真空容器 10 と、脚部 11 と、基体 12 と、排気機構 20 と、ステージ 30 と、台座 40 A と、加熱機構 50 と、断熱部材 60 と、ガス供給機構 80 とを具備する。図 1 の例では、台座 40 A 上に成形体 100 が載置された状態が示されている。この状態では、成形体 100 は、加熱される前の状態にある。

【0023】

真空容器 10 は、基体 12、ステージ 30、台座 40 A、加熱機構 50、断熱部材 60、及び成形体 100 を囲む。真空容器 10 は、例えば、円筒状の真空容器で、X 軸方向に延在する。真空加熱装置 1 においては、図 1 の手前と奥にも真空容器 10 の一部である扉部（不図示）が配置され、真空容器 10 内のガスが排気機構 20 によって排気される。これにより、真空容器 10 内は、減圧状態に維持される。排気機構 20 は、例えば、ロータリーポンプ、メカニカルブースターポンプ等の真空ポンプを有する。真空容器 10 は、脚部 11 により支持されている。基体 12 は、真空容器 10 内に固定され、断熱部材 60 下に配置されている。なお、基体 12 も断熱材として機能する。

10

【0024】

真空容器 10 内には、断熱部材 60 が設けられている。断熱部材 60 は、固定治具 65 により真空容器 10 の内壁 10w に固定されている。断熱部材 60 は、ステージ 30 の一部、台座 40 A、加熱機構 50 の一部、及び成形体 100 を囲む。断熱部材 60 の内側は、断熱部材 60 の外側から密閉されてなく、真空容器 10 内では、断熱部材 60 の内側と外側とでガスの行き来が可能である。

【0025】

断熱部材 60 は、下部断熱部材 61 と、側部断熱部材 62 a、62 b と、上部断熱部材 63 とを有する。下部断熱部材 61 は、X - Y 平面に対して平行に配置されている。下部断熱部材 61 は、Z 軸方向において上部断熱部材 63 に対向する。側部断熱部材 62 a と側部断熱部材 62 b とは、Y 軸方向において互いに対向する。下部断熱部材 61、側部断熱部材 62 a、62 b、及び上部断熱部材 63 のそれぞれは、X 軸方向に延在する。真空容器 10 内には、成形体 100 の手前及び奥にも断熱部材が配置されてもよい。

20

【0026】

ステージ 30 の一部は、断熱部材 60 内に設けられている。ステージ 30 は、ステージ本体 31 と、複数の支柱 33 と、炭素板 32 と、炭素シート 34 とを有する。ステージ本体 31 及び支柱 33 は、例えば、炭素製材料で構成されている。炭素板 32 と、炭素シート 34 とは、ステージ 30 から適宜取り除いてもよい。

30

【0027】

複数の支柱 33 のそれぞれは、例えば、下部断熱部材 61 を貫通し、基体 12 に対して垂直に立設されている。ステージ本体 31 は、複数の支柱 33（例えば、4 点支持）により支えられている。これにより、ステージ本体 31 は、X - Y 平面に対して平行に配置される。さらに、ステージ 30 は、ステージ本体 31 が下部断熱部材 61 に直接接しない構成になる。

【0028】

炭素板 32 は、ステージ本体 31 上に載置されている。ステージ本体 31 及び炭素板 32 は、断熱部材 60 内において X 軸方向に延在する。例えば、Z 軸方向からステージ本体 31 及び炭素板 32 を見た場合、ステージ本体 31 及び炭素板 32 の平面形状は、例えば、長方形である。

40

【0029】

ステージ本体 31 の下に下部断熱部材 61 が配置されていることにより、成形体 100 が加熱機構 50 によって加熱された場合、成形体 100 に与えられた熱が真空容器 10 に逃げにくい構成になる。また、炭素板 32 は、線膨張係数が小さく、耐熱特性に優れる。このような炭素板 32 をステージ本体 31 上に配置することにより、ステージ本体 31 は、成形体 100 及び台座 40 A から直接的な損傷を受けにくく、成形体 100 及び台座 40 A を広い面積にわたり安定して支持することができる。

【0030】

50

また、台座 40 A と炭素板 32 との間に炭素シート 34 を配置することにより、台座 40 A が数千度以上の高温になったとしても、台座 40 A と炭素板 32 との直接的な反応が抑えられる。この場合、台座 40 A が炭素シート 34 と反応しても、炭素シート 34 を定期的に交換することにより、炭素板 32 においては、金属反応による腐食が回避される。

【0031】

ステージ 30 上には、台座 40 A が載置されている。台座 40 A の詳細については、後述する。

【0032】

台座 40 A 上には、成形体 100 が載置される。成形体 100 は、高融点金属酸化物及び炭素を含む。成形体 100 は、高融点金属酸化物の粉末と、炭素の粉末とが混合されて、高圧プレスにより成形されたペレット体またはブロック体である。高融点金属は、例えば、Ta (タンタル)、W (タングステン)、Mo (モリブデン)、Nb (ニオブ)、チタン (Ti) 等のいずれかである。本実施形態では、高融点金属として、以下に Ta を例示する。

10

【0033】

例えば、成形体 100 は、タンタル酸化物 (例えば、 Ta_2O_5) と炭素 (C) とを含む。成形体 100 は、例えば、平均粒径が $25 \mu m$ のタンタル酸化物の粉末と、平均粒径が $15 \mu m$ の炭素の粉末とが圧力 40 MPa で加圧成形されたものである。

【0034】

成形体 100 中の炭素のモル濃度 (mol/m^3) は、タンタル酸化物のモル濃度の約 5 倍である。平均粒径は、例えば、レーザ散乱法により測定される。成形体 100 の形状は、一例として、厚さ 10 mm、径 30 mm のペレット体とする。成形体 100 の形状は、ペレット体に限らず、例えば、一辺が 10 mm 以上 100 mm 以下のブロック体であってもよい。

20

【0035】

なお、図 1 には、1 個の成形体 100 が台座 40 A によって支持されているが、X 軸方向または Y 軸方向に複数の台座 40 A を配置し、これらの台座 40 A 上に成形体 100 を載置してもよく、成形体 100 上に台座 40 A を載置し、この台座 40 A 上に別の成形体 100 が載置されてもよい。

【0036】

加熱機構 50 は、成形体 100 を輻射熱によって加熱する。加熱機構 50 は、第 1 加熱機構 51 と、第 2 加熱機構 52 とを有する。

30

【0037】

第 1 加熱機構 51 は、ヒータ板 51 a と、絶縁性の支持治具 51 b とを有する。支持治具 51 b は、真空容器 10 の内壁 10 w に固定され、上部断熱部材 63 を貫通する。支持治具 51 b は、ヒータ板 51 a を支持するとともに、真空容器 10 外からヒータ板 51 a に電力を供給する配線が設けられている。ヒータ板 51 a は、X 軸方向に延在するとともに、上部断熱部材 63 から下部断熱部材 61 に向かう方向に延在する。ヒータ板 51 a は、側部断熱部材 62 a と接触せず、側部断熱部材 62 a と平行に配置されている。

【0038】

第 2 加熱機構 52 は、ヒータ板 52 a と、絶縁性の支持治具 52 b とを有する。支持治具 52 b は、真空容器 10 の内壁 10 w に固定され、上部断熱部材 63 を貫通する。支持治具 52 b は、ヒータ板 52 a を支持するとともに、真空容器 10 外からヒータ板 52 a に電力を供給する配線が設けられている。ヒータ板 52 a は、X 軸方向に延在するとともに、上部断熱部材 63 から下部断熱部材 61 に向かう方向に延在する。ヒータ板 52 a は、側部断熱部材 62 b と接触せず、側部断熱部材 62 b と平行に配置されている。

40

【0039】

互いに対向する一对のヒータ板 51 a、52 a は、炭素製ヒータである。ヒータ板 51 a、52 a のそれぞれの下端は、ステージ本体 31 よりも下に位置する。これにより、成形体 100 は、ヒータ板 51 a、52 a からの輻射熱によって左右から均等に加熱される

50

。例えば、成形体 100 は、1900 以上に加熱され得る。

【0040】

ヒータ板は、成形体 100 の上方に配置されてもよく、成形体 100 の手前または奥にも配置されてもよい。これにより、横と上方から成形体 100 により均一に熱を与えることができる。

【0041】

一方、真空加熱装置 1 では、炭素還元を利用した高融点金属体の量産を想定していることから、成形体 100 は 1 個とは限らず複数になり、ステージ 30 上の成形体の重量が嵩む場合もある。このため、真空加熱装置 1 では、成形体 100 を支持する頑丈なステージ 30 が必須になる。

10

【0042】

従って、成形体 100 の下にはステージ 30 が配置され、ヒータ板は、配置されない。ここで、ステージ本体 31 の下にヒータ板を配置する手法もある。しかし、この構成では、ステージ本体 31 によってヒータ板からの輻射熱が遮られてしまう。さらに、ステージ本体 31 の下方にヒータ板を配置する場合、支柱 33 を避けてヒータ板を配置する必要があり、ステージ本体 31 下に配置するヒータ板の構造が複雑になってしまう。

【0043】

成形体 100 の温度は、例えば、ヒータ板 51a、52a に投入する電力と、成形体 100 の温度との関係、ヒータ板 51a、52a の温度と、成形体 100 の温度との関係等を予め求めることにより算出される。ヒータ板 51a、52a の温度は、熱電対によって測定してもよく、または、放射温度計によって、直接、成形体 100 の温度を測定してもよい。また、成形体 100 の温度を間接的に測定する温度測定用の試料を成形体 100 の近傍に設置してもよい。

20

【0044】

ガス供給機構 80 は、真空容器 10 内に、 N_2 、Ar 等のガスを供給することができる。例えば、成形体 100 に対する加熱が終了し、成形体 100 が所定の温度にまで冷却した後、ガス供給機構 80 によって真空容器 10 内にパージ用のガス（例えば、 N_2 ）が供給される。

【0045】

図 2 (a) は、台座の概略断面図である。図 2 (b) は、台座の概略上面図である。

30

【0046】

台座 40A は、一例として、その断面が三角波形になるように構成されている。台座 40A は、第 1 方向（例えば、Y 軸方向と Z 軸方向との間の方向）に平行な第 1 板状部 41 と、第 1 方向に交差する第 2 方向（第 1 方向と線対称になる方向）に平行な第 2 板状部 42 とが交互に連結されている。第 1 板状部 41 及び第 2 板状部 42 の厚みは、典型的には、0.5mm 以上である。

【0047】

台座 40A において、上端部 40u は、成形体 100 に対向し、上端部 40u とは反対側の下端部 40d は、ステージ 30 に対向する。例えば、上端部 40u は、成形体 100 に接し、下端部 40d は、ステージ 30 に接する。

40

【0048】

このような板状部で構成された台座 40A においては、上端部 40u から下端部 40d までの熱伝導経路が狭くなり、成形体 100 に与えられる熱が台座 40A を介してステージ 30 に逃げにくくなる。

【0049】

図 3 は、成形体から台座を介してステージへ移動する熱の流れの一例を示す概略断面図である。

【0050】

台座 40A を X - Y 平面で切断したときの断面形状は、ストライプ状に構成される。これにより、台座 40A は、成形体 100 及びステージ 30 と、面接触でなく線接触で接触

50

する。仮に、台座 40A を設けず、成形体 100 を直接、炭素シート 34 に載置した場合は、成形体 100 から炭素シート 34 に熱が伝熱され、成形体 100 の底部の温度が下がってしまう。また、反応により発生する CO ガスが成形体 100 から抜けにくくなる。このような不具合を本実施形態は解決する。

【0051】

例えば、成形体 100 に与えられた熱がステージ 30 に伝導する様子を中央に位置する上端部 40u を例に説明する。成形体 100 から上端部 40u に伝導した熱は、第 1 板状部 41 と第 2 板状部 42 との二股に分かれる。上端部 40u から第 1 板状部 41 を伝導する熱は、下端部 40d を介して一部がステージ 30 に逃げていくものの、第 2 板状部 42 に伝導し、成形体 100 側に戻る熱もある。同様に、上端部 40u から第 2 板状部 42 を伝導する熱は、下端部 40d を介して一部がステージ 30 に逃げていくものの、第 1 板状部 41 に伝導し、成形体 100 側に戻る熱もある。

10

【0052】

従って、台座 40A を用いることにより、成形体 100 からステージ 30 への熱伝導が極力抑えられ、成形体 100 が充分に加熱され得る。これにより、成形体 100 は、加熱機構 50 によって効率よく加熱される。

【0053】

また、成形体 100 を台座 40A に載置すると、上端部 40u が成形体 100 と接触し、成形体 100 との間に空間部 410 (第 1 空間部) が形成される。台座 40A をステージ 30 上に載置すると、下端部 40d がステージ 30 と接触し、ステージ 30 との間に空間部 420 (第 2 空間部) が形成される。ここで、台座 40A の高さ h は、成形体 100 内で炭素還元が起きているときの真空容器 10 内のガスの平均自由行程以上に設定される。

20

【0054】

例えば、台座 40A の高さ h は、4 mm 以上に設定される。台座 40A の高さ h は、Y 軸方向における上端部 40u 及び下端部 40d のピッチを変えることで調製できる。これにより、空間部 410 の深さが約 4 mm 以上になり、成形体 100 とステージ 30 との間におけるガスによる熱伝導が抑制され、成形体 100 が加熱機構 50 によって効率よく加熱される。例えば、成形体 100 温度を T_1 、ステージ 30 (炭素シート 34) の温度を T_2 ($T_1 > T_2$) とした場合、成形体 100 とステージ 30 との間隔 h が平均自由行程よりも長くなると ($d < h$)、定常状態における熱流束 q は、例えば、 $q = k(T_1 - T_2) / d$ で表わすことができ (k : 気体の熱伝導率)、間隔 h が大きくなるほど、熱流束 q が低減すると考えられる。

30

【0055】

また、台座 40A は、成形体 100 の高融点金属酸化物に含まれる高融点金属と同じ材料で構成される。これにより、成形体 100 中の高融点金属酸化物が炭素還元により高融点金属体になったとしても、台座 40A から高融点金属体に高融点金属以外の不純物が入りにくくなる。

【0056】

次に、台座 40A を例にして、本実施形態に係る高融点金属体の製造方法の一例を説明する。

40

図 4 は、本実施形態に係る真空加熱装置の動作の一例を示す概略グラフ図である。

図 4 の横軸は、時間であり、右縦軸は、真空容器 10 内の圧力であり、左縦軸は、成形体 100 の温度である。

【0057】

本実施形態に係る真空加熱処理では、予め、真空容器 10 内に設けられたステージ 30 上に台座 40A を載置する。続いて、成形体 100 を台座 40A 上に支持させる。

【0058】

次に、真空容器 10 内を排気機構 20 によって、数 Pa (例えば、2 Pa) まで排気し、真空排気をしながら成形体 100 を加熱機構 50 により、例えば、10 / 分の速度で

50

加熱する。これにより、成形体 100 の温度は、徐々に上昇する。

【0059】

真空容器 10 内の圧力は、成形体 100 の温度が室温から 600 になるまでは、真空容器 10 の内壁 10w、ステージ 30、断熱部材 60、成形体 100 等に物理吸着していたガスの脱ガスが起きて、一旦、2 Pa 以上にまで上昇する。脱ガスが緩和すると、真空容器 10 内の圧力が再び減少する。

【0060】

成形体 100 への昇温加熱を続け、成形体 100 の温度が 1935 になった後、昇温加熱を停止して 60 分間、成形体 100 の温度を 1935 のまま保持する。成形体 100 では、約 1800 以上になると、炭素還元が起こり、例えば、タンタル酸化物が炭素によって還元されて、タンタル (Ta) と一酸化炭素 (CO) とが生成する。これにより、真空容器 10 内の圧力が再び上昇する。炭素還元中、真空容器 10 内の圧力は、例えば、2 Pa 以上 10 Pa 以下になる。一酸化炭素は、排気機構 20 のよって真空容器 10 外に排気される。

10

【0061】

炭素還元によって成形体 100 中の炭素が消費されると、成形体 100 中の炭素の量が減少し、成形体 100 からの一酸化炭素の放出が徐々に緩和する。これに応じて真空容器 10 内の圧力は減少し、真空容器 10 内の圧力減少が飽和したときに、成形体 100 への加熱を停止する。

【0062】

成形体 100 の温度が 25 以下になった後に、真空容器 10 内を例えば N_2 ガスで数回パージする。この後、真空容器 10 を大気開放して、タンタル酸化物が炭素還元されたタンタル金属体を真空容器 10 から取り出す。取り出したタンタル金属体は、例えば、別の真空容器に移されて、EB (Electron Beam) 照射により溶解され、タンタル金属インゴットが形成される。タンタル金属インゴットは、例えば、タンタル膜をスパッタリグ成膜するタンタルターゲットとして切り出される。

20

【0063】

本実施形態の効果について説明する。

【0064】

図 5 (a) は、比較例に係る真空加熱処理で形成されたタンタル金属体の X 線回折結果である。図 5 (b) は、本実施形態に係る真空加熱処理で形成されたタンタル金属体の X 線回折結果である。図 5 (c) は、炭素還元が図られたタンタル金属体の概略下面図である。図 5 (d) は、図 5 (c) の破線における概略断面図である。

30

【0065】

X 線回折は、 θ -2 θ 法による。グラフの横軸は、2 θ (°) であり、縦軸は、光強度 (任意値) である。被測定体は、炭素還元が図られたタンタル金属体 (厚さ 10 mm、径 30 mm のペレット体) である。実線 A は、図 5 (c)、(d) に示すタンタル金属体の端部 Pa の X 線回折結果である。破線 B は、図 5 (c)、(d) に示すタンタル金属体の下側中央部 Pb の X 線回折結果である。

【0066】

図 5 (a) に示す比較例では、台座として、2 本のタンタル細線を並列に並べたものが用いられている。タンタル細線の径は、2 mm である。すなわち、タンタル平行細線の高さは、2 mm であり、成形体 100 とステージ 30 との間の距離は、2 mm である。

40

【0067】

比較例において、タンタル金属体の端部 Pa では、 Ta_2O_5 、 Ta_2C のピークは観測されず、Ta のピークが観測されている。しかし、タンタル金属体の下側中央部 Pb では、Ta のピークが観測されたが、 Ta_2O_5 、 Ta_2C のピークも観測されている。この理由として、以下のことが考えられる。

【0068】

例えば、台座の高さが 4 mm より小さくなると、成形体 100 とステージ 30 との間に

50

真空容器 10 内に残留するガスが溜りやすい。この結果、タンタル細線のほか、成形体 100 とステージ 30 との間に存在するガスが熱媒体になりやすい。

【0069】

従って、加熱機構 50 により成形体 100 に熱を与えても、この熱は、タンタル細線のほか、成形体 100 とステージ 30 との間に存在するガスを介してステージ 30 に逃げていく。これにより、比較例では、成形体 100 の下部中央部の加熱が不十分になり、タンタル金属体の下側中央部 P b における炭素還元が不十分になる、と推測される。なお、径の異なるタンタル細線を用いて、成形体 100 とステージ 30 との間の距離を変えたところ、成形体 100 とステージ 30 との間の距離が 3 mm 以下では、 Ta_2O_5 、 Ta_2C のピークが観測されている。

10

【0070】

これに対して、本実施形態では、図 5 (b) に示すように、タンタル金属体の端部 P a 及び下側中央部 P b で、 Ta_2O_5 、 Ta_2C のピークが観測されず、 Ta のピークが観測されている。

【0071】

すなわち、本実施形態では、台座 40 A の高さが 4 mm 以上であり、成形体 100 とステージ 30 との間で、ガスが熱媒体となりにくく、成形体 100 全体が加熱機構 50 によって十分に加熱される。この結果、成形体 100 全体で炭素還元が十分に進行する。

【0072】

例えば、台座 40 A を用いることにより、成形体 100 の温度を 1935 から 1875 に下げても、タンタル金属体の端部 P a 及び下側中央部 P b では Ta_2O_5 、 Ta_2C に関するピークは観測されず、温度が 1875 でもタンタル金属体の端部 P a 及び下側中央部 P b で炭素還元が十分に進行することがわかっている。

20

【0073】

このように、本実施形態に係る真空加熱装置 1 によれば、成形体 100 から台座 40 A を介してのステージ 30 への熱拡散が抑制され、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。これにより、高融点金属酸化物から高純度の高融点金属体が形成される。

【0074】

例えば、タンタル金属体における、C (炭素)、Al (アルミニウム)、Co (コバルト)、Cr (Cr)、Cu (銅)、Fe (鉄)、Mg (マグネシウム)、Mo (モリブデン)、Nb (ニオブ)、及び Ni (ニッケル) の濃度の総和は、50 ppm 以下である。

30

【0075】

図 6 (a) 及び図 6 (b) は、台座の変形例の概略断面図である。

【0076】

台座 40 B は、水平方向に伸縮可能であり、水平方向における伸縮に応じて高さが変わる。水平方向とは、X - Y 平面に対して平行な方向である。台座 40 B は、第 1 板状部 41 と、第 2 板状部 42 と、基軸部 43 と、締付治具 44 a、44 b とを有する。基軸部 43 は、第 1 板状部 41 及び第 2 板状部 42 を貫通する。基軸部 43 の外周には、例えば、ねじ山が設けられ、締付治具 44 a、44 b の内周には、基軸部 43 のねじ山に対応したねじ溝が設けられている。第 1 板状部 41 と第 2 板状部 42 とは、ヒンジ機構により接続してもよい。

40

【0077】

例えば、図 6 (a) には、基軸部 43 の両端に締付治具 44 a、44 b のそれぞれを嵌め込んだ後の状態が示されている。この状態では、台座 40 B は、 h_1 の高さを有している。図 6 (b) に示すように、締付治具 44 a、44 b を締めて、締付治具 44 a、44 b の互いの距離を狭めることにより、第 1 板状部 41 と第 2 板状部 42 との成す角が小さくなる。これにより、台座 40 B は、Y 軸方向に縮んで、台座 40 B の高さが高さ h_1 よりも高い h_2 になる。

【0078】

50

このような台座 40B であれば、台座 40B の高さに応じて、成形体 100 から台座 40B を介してのステージ 30 へ伝導する熱量が調整できる。これにより、成形体 100 からステージ 30 への熱拡散が抑制される。

【0079】

また、台座 40B においては、最外の第 1 板状部 41 が締付治具 44a に接し、最外の第 2 板状部 42 と締付治具 44b に接している。これにより、上端部 40u に重い成形体が載せられたとしても、最外の第 1 板状部 41 は、締付治具 44a によって止められ、最外の第 2 板状部 42 は、締付治具 44b によって止められる。すなわち、成形体 100 の重量が嵩んだとしても、台座 40B は、潰れにくくなる。

【0080】

また、台座 40B においては、隣り合う上端部 40u のピッチが可変に構成される。これにより、成形体 100 の横幅に応じて上端部 40u のピッチを変えることで、成形体 100 を台座 40B で安定して支持することができる。

【0081】

図 7 (a) 及び図 7 (b) は、台座の別の変形例の概略断面図である。

【0082】

図 7 (a) に示す台座 40C においては、上端部 40u が高融点金属酸化物に含まれる高融点金属と同じ材料で構成される。例えば、台座 40C においては、第 1 板状部 41 と第 2 板状部 42 とが交わる部分に凹部 45 が形成され、凹部 45 内に Ta 小片 46 が担持されている。また、図 7 (b) に示す台座 40D においては、凹部 45 内に Ta 細線 47 が載置されている。

【0083】

このような台座 40C、40D であれば、高融点金属体と、台座の上端部 40u とが同じ材料で構成されているので、高融点金属体に台座 40C、40D からの不純物が入りにくくなる。

【0084】

図 8 (a) ~ 図 8 (c) は、台座の別の変形例の概略斜視図である。以下に示す台座は、台座 40A と同じ高さを有する。

【0085】

図 8 (a) に示す台座 40E においては、上端部 40u が成形体 100 と接触し、下端部 40d がステージ 30 と接触することで、成形体 100 とステージ 30 との間を連通する空間部 430 が形成されている。台座 40E の X - Y 平面における断面形状は、円状である。

【0086】

図 8 (b) に示す台座 40F においては、上端部 40u が成形体 100 と接触し、下端部 40d がステージ 30 と接触することで、成形体 100 とステージ 30 との間を連通する空間部 440 が形成されている。台座 40F の X - Y 平面における断面形状は、格子状である。

【0087】

図 8 (c) に示す台座 40G においては、上端部 40u が成形体 100 と接触し、下端部 40d がステージ 30 と接触することで、成形体 100 とステージ 30 との間を連通する空間部 450 が形成されている。台座 40G の X - Y 平面における断面形状は、ハニカム状である。

【0088】

これらの台座を用いても、成形体 100 から台座を介してステージ 30 への熱拡散が抑制され、高融点金属酸化物が効率よく高融点金属に炭素還元される。

【0089】

以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明は上述の実施形態にのみ限定されるものではなく種々変更を加え得ることは勿論である。

【符号の説明】

10

20

30

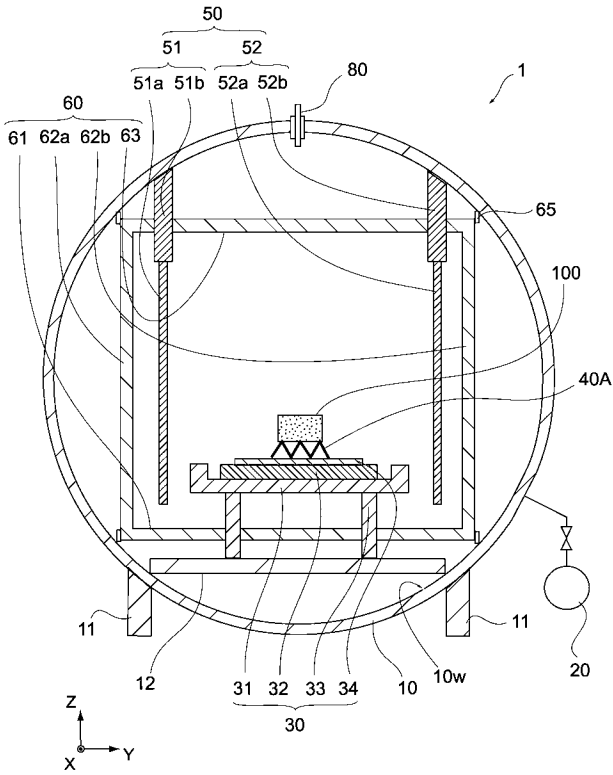
40

50

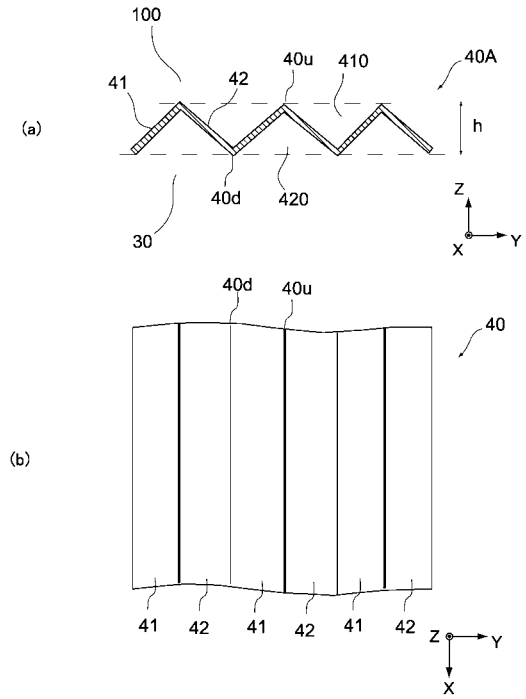
【 0 0 9 0 】

1 ... 真空加熱装置	
1 0 ... 真空容器	
1 0 w ... 内壁	
1 1 ... 脚部	
1 2 ... 基体	
2 0 ... 排気機構	
3 0 ... ステージ	
3 1 ... ステージ本体	
3 2 ... 炭素板	10
3 3 ... 支柱	
3 4 ... 炭素シート	
4 0 A、4 0 B、4 0 C、4 0 D、4 0 E、4 0 F、4 0 G ... 台座	
4 0 d ... 下端部	
4 0 u ... 上端部	
4 1 ... 第 1 板状部	
4 2 ... 第 2 板状部	
4 1 0、4 2 0、4 3 0、4 4 0、4 5 0 ... 空間部	
4 3 ... 基軸部	
4 4 a、4 4 b ... 締付冶具	20
4 5 ... 凹部	
4 6 ... T a 小片	
4 7 ... T a 細線	
5 0 ... 加熱機構	
5 1 ... 第 1 加熱機構	
5 2 ... 第 2 加熱機構	
5 1 a、5 2 a ... ヒータ板	
5 1 b、5 2 b ... 支持冶具	
6 0 ... 断熱部材	
6 1 ... 下部断熱部材	30
6 2 a、6 2 b ... 側部断熱部材	
6 3 ... 上部断熱部材	
6 5 ... 固定冶具	
8 0 ... ガス供給機構	
1 0 0 ... 成形体	

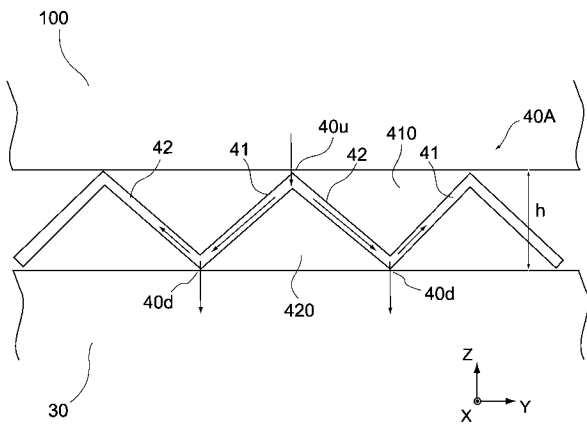
【 図 1 】



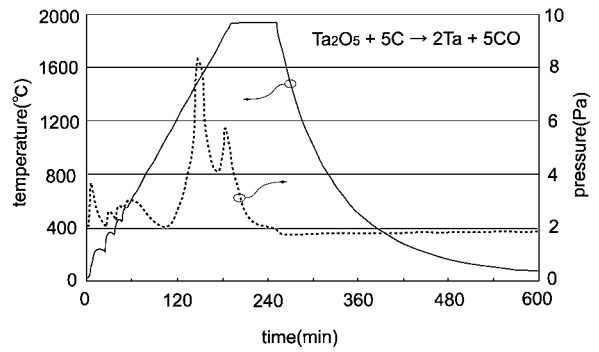
【 図 2 】



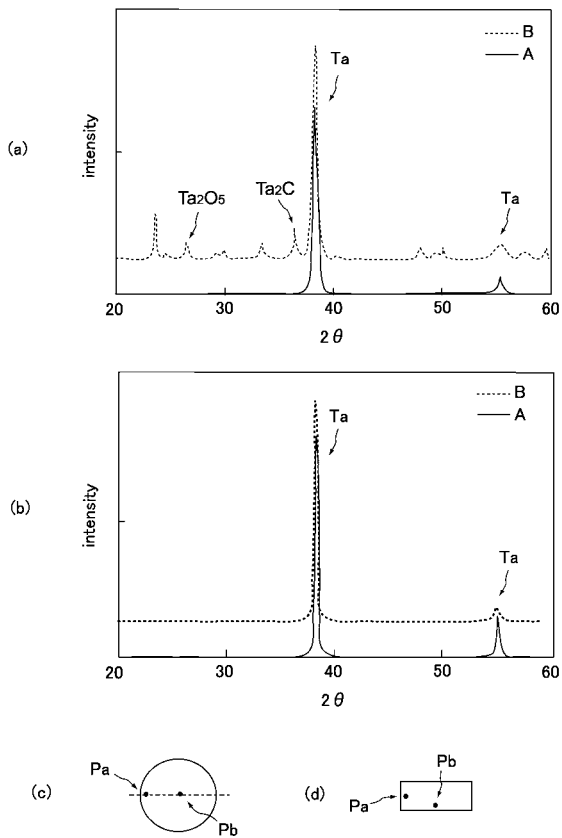
【 図 3 】



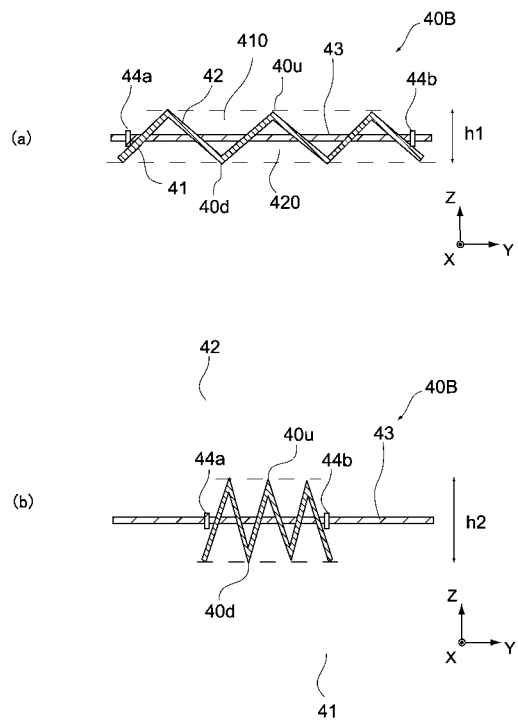
【 図 4 】



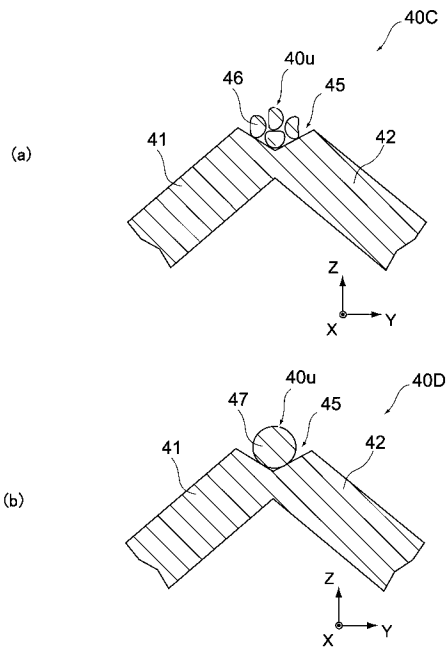
【 図 5 】



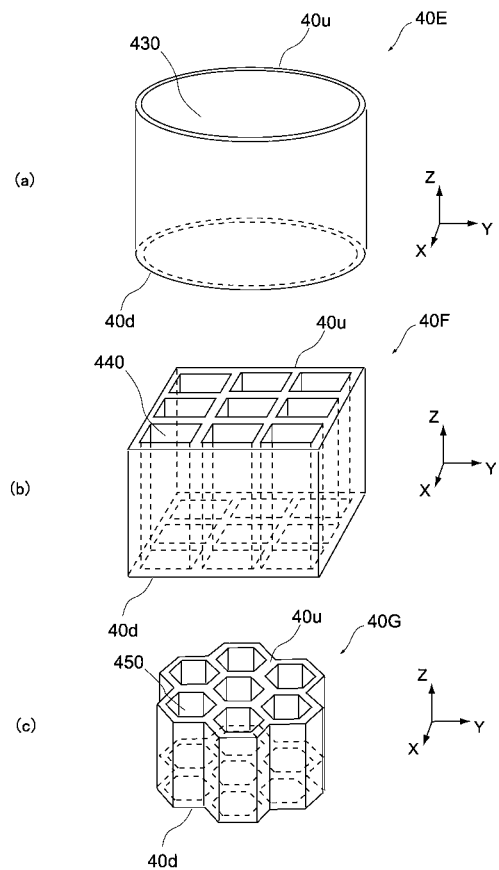
【 図 6 】



【 図 7 】



【 図 8 】



フロントページの続き

(72)発明者 永田 智啓

神奈川県茅ヶ崎市萩園 2 5 0 0 番地 株式会社アルバック内

Fターム(参考) 4K055 AA03 NA04

4K061 AA05 BA02 DA05 FA12

4K063 AA03 AA12 AA16 BA03 CA03 DA19