

一、本案已向

國家(地區)申請專利	申請日期	案號	主張專利法第二十四條第一項優先權
日本 JP	2002/11/08	2002-325655	有

二、主張專利法第二十五條之一第一項優先權：

申請案號：

無

日期：

三、主張本案係符合專利法第二十條第一項第一款但書或第二款但書規定之期間

日期：

四、有關微生物已寄存於國外：

寄存國家：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

無

有關微生物已寄存於國內(本局所指定之寄存機構)：

寄存機構：

寄存日期：

寄存號碼：

無

熟習該項技術者易於獲得,不須寄存。

五、發明說明(1)

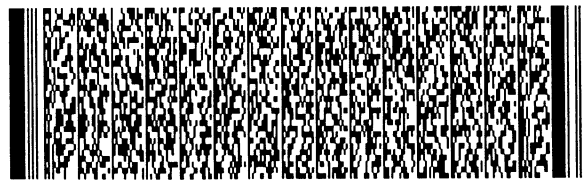
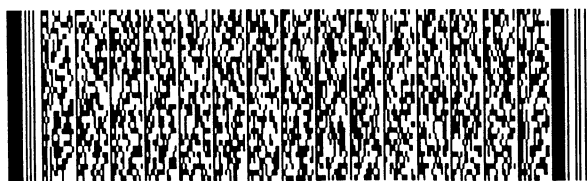
【發明所屬之技術領域】

本發明係有關於無機微粒子、無機原料粉末以及無機微粒子與無機原料粉末之製造方法。無機微粒子之製造方法係有關於例如氧化鋯水合物微粒子等之製造方法，無機原料粉末之製造方法係有關於例如從氧化鋯水合物微粒子製造氧化鋯原料粉末之方法。且，係有關於用這些方法所製造的無機微粒子及無機原料粉末。

【先前技術】

陶瓷的粉末，至今係從金屬鹽的中和氫氧化物、中和共沉澱氫氧化物、加水分解物或這些的複合物析出水合物，通過靜置乾燥、噴霧乾燥等的乾燥方法將其析出物粉末化後，加以鍛燒、粉碎而製成的。

特開2000-327416號公報中，作為氧化鋯系微粉末之製造方法，公開著將釷或鈾的鹽形成的水溶液等作為第2成分溶解於鋯鹽之水溶液中，將該水溶液急速乾燥後，在氧氣下焙燒，並濕式粉碎該焙燒體，然後將其乾燥來得到原料粉末之方法。且，特開平5-246720號公報中公開著對於用水溶性鋯鹽的加水分解法或中和沉澱法所得的漿體進行噴霧乾燥、將其鍛燒來得到原料粉末之方法。但是，根據特開2000-327416號公報所記載的方法取得氧化鋯系微粉末時，將鋯鹽水溶液急速乾燥並鍛燒之故，鍛燒時產生的鹽酸氣體會引起裝置的腐蝕，對此需要採取抗腐蝕對策，而且，必須在鍛燒後增加濕式粉碎步驟。一方面，在

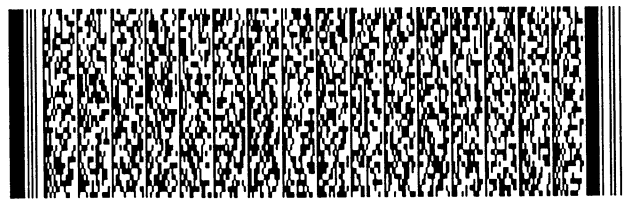
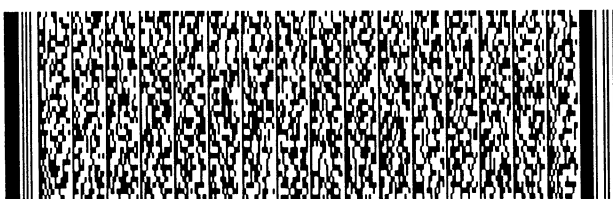


五、發明說明 (2)

使用特開平5-246720號公報記載的方法時，主成分的鋳化合物與第2成分的鈮化合物等之間，由於兩者在加水分解或中和沉澱操作時的析出舉動通常有差異，難以保持組成的均質性。且，水溶液中生成的微細粒子因乾燥時的水分表面張力之影響而凝聚之故，很難製造微細粒子。因此，將所得的乾燥物焙燒來取得氧化鋳原料粉末時，需要將焙燒後的粉末粉碎，來完成細粒化及均一化。

這樣，通過噴霧乾燥所製造的乾燥物，進一步通過機械粉碎可變成微細粒，但是步驟變成2階段，從製造成本面考慮也不一定理想。這情形對於靜置乾燥所製造的乾燥物也是同樣的。而且，即使在粉碎步驟前，例如實施噴霧乾燥之乾燥時，為了得到微細的粒子粉末，需要使用高壓噴嘴或高速旋轉的霧化器(atomizer)，需要盡可能將含有無機金屬水合物微粒子之液滴微細化並加以乾燥。然而，該情形，很難避免噴嘴的阻塞、霧化器的高速旋轉引起的裝置磨損、水的表面張力造成的粒子之間的凝聚。且，為了抑制水的表面張力作用，需要添加表面活性劑等的添加物，這樣難以得到高純度的無機金屬水合物。

特開平9-175812號公報中，公開著用脈衝衝擊波將矽酸化合物水溶液乾燥來製造矽酸化合物之方法。然而，方法在將無定形含水矽酸化合物粉末加熱焙燒時，以縮短加熱焙燒步驟之加熱脫水時間、減輕焙燒步驟的熱負荷為目的作了研究討論，但未討論如何來得到粒子徑分布尖峭的粒子。



五、發明說明 (3)

【發明內容】

本發明的目的係提供為了得到粒子徑分布尖峭的無機原料粉末，在氧化鋯水合物微粒子漿體等原料液體之粉末化時，能夠抑制粒子之間因熱引起的凝聚或黏附等，嶄新的無機微粒子、無機原料粉末以及無機微粒子與無機原料粉末之製造方法。另外，提供對多成分體系的情形，化學組成在生成的粒子間、粒子內部也能均質的無機微粒子、無機原料粉末以及無機微粒子與無機原料粉末之製造方法。

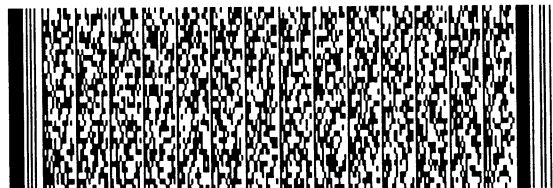
解決前述課題的努力研究之結果，發現藉由加熱原料液體、且賦予衝擊波可以得到解決為得到由粒子之間的凝聚而引起的、粒子徑分布尖峭的無機原料粉末之各種問題，或在多成分體系時、為得到具有均質的化學組成之微粒子中的各種問題點。特別發現，將利用了脈衝燃燒乾燥機所代表的衝擊波之乾燥方式用於原料液體，無須添加表面活性劑等的添加物就可以解決以上這些問題。

即是，本發明係有關於將原料液體加熱、且賦予衝擊波的無機微粒子之製造方法。

前述衝擊波最好係超聲波振動。

最好藉由使原料液體與脈衝燃燒氣體接觸來完成前述原料液體之加熱及衝擊波之賦予。

最好前述脈衝燃燒氣體，頻率範圍50~1,000Hz、壓力振幅 $\pm 0.2\text{kg/cm}^2$ 以上、聲壓100~200分貝及接觸氣體溫度



五、發明說明 (4)

100~1,000 °C。

前述原料液體最好係無機金屬化合物與溶劑之混合物、及/或無機金屬化合物之溶液。

前述無機金屬化合物與溶劑之混合物只要是不溶於溶劑的無機金屬化合物即可，並無特別的限制，最好係無機金屬水合物與溶劑之混合物、所得的無機粒子係無機金屬水合物微粒子。

前述不溶於溶劑的無機金屬化合物與溶劑之混合物最好包含氧化鋯水合物微粒子漿體、氧化鈾水合物微粒子漿體、氧化鈦水合物微粒子漿體、含水矽酸化合物微粒子漿體或氧化鋁水合物微粒子漿體的至少一種。

前述不溶於溶劑的無機金屬化合物與溶劑之混合物最好係中和氫氧化物、中和共沉澱氫氧化物、加水分解物或這些的複合物。

前述不溶於溶劑的無機金屬化合物與溶劑之混合物中的無機金屬水合物微粒子最好係0.01~50 μm 。

前述無機金屬化合物之溶液係可溶於水的無機金屬鹽之水溶液，最好所得的無機粒子係無機金屬鹽微粒子或其變性物。

前述可溶於水的無機金屬鹽之水溶液最好包含氯化鋯水溶液、硫酸氧鋯水溶液、硝酸氧鋯水溶液、氯化鈾水溶液、四氯化鈦水溶液、三氯化鈦水溶液、氯化鋁水溶液、氯化鎂水溶液、氯化鈣水溶液、或矽酸化合物水溶液的至少一種。



五、發明說明 (5)

而且，本發明係有關於將前述製造方法所得的無機微粒子鍛燒及粉碎的無機原料粉末之製造方法。

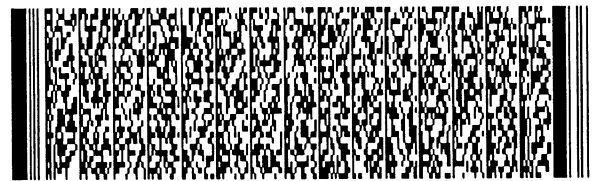
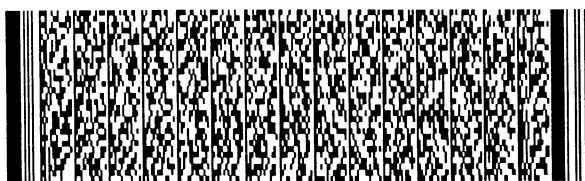
另外，本發明係有關於相對於從光學測量所得的粒子分布求得的算術平均徑之算術標準偏差之比例在0.8以下之無機微粒子及無機原料粉末。

根據本發明，水的表面張力之影響造成的凝聚作用不需要使用表面活性劑等的添加物，與用習知的乾燥方法所得的無機金屬水合物具有相同程度的體積密度，可以得到粒子徑小、具有非常尖峭的粒子徑分布之無機微粒子。且，多成分體系的情形，可以得到從微觀來看組成也很均質的無機微粒子。另外，無機原料粉末的製造中，無機微粒子的焙燒後實施的粉碎步驟，可以用極少的時間來完成。

【實施方式】

本發明的無機微粒子之製造方法係將原料液體加熱並賦予衝擊波。這裡，原料液體指的是包含所欲得到的無機微粒子的無機金屬化合物，或通過變性等可轉換成所欲得到的無機微粒子之液狀物即可，無特別的限制，可以使用例如四乙基正硅酸鹽或異丙氧基鈦等的各種烷氧基金屬四氯化鈦等的常溫中呈現液體狀態之無機金屬化合物與溶劑之混合物、或溶解了無機金屬化合物之溶液。

這裡，無機金屬化合物與溶劑之混合物指的是所欲得到的無機金屬化合物作為水合物、氧化物、碳酸鹽、硫酸



五、發明說明 (6)

鹽等的化合物混合於溶劑所得。具體的，作為水合物可以列舉出氧化鋯水合物、氧化鈾水合物、氧化鈦水合物、含水矽酸化合物、氧化鋁水合物等。作為氧化物可列舉出氧化鋯、氧化鈾、氧化鈦等，作為碳酸鹽可列舉出碳酸鋯、碳酸鈾、碳酸鈣等。而且，硫酸鹽可列舉出硫酸鈾、硫酸鋁、硫酸鎂等。

這裡，水、乙醇、甲基乙基甲酮、甲苯等適用作溶劑。

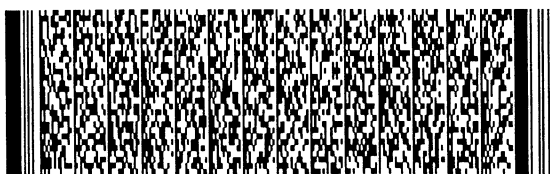
其中，使用無機金屬水合物作為無機金屬化合物、水作為溶劑的氧化鋯水合物微粒子漿體、氧化鈾水合物微粒子漿體、氧化鈦水合物微粒子漿體、含水矽酸化合物微粒子漿體、氧化鋁水合物微粒子漿體由於排水處理容易、不需要防爆等的特別設備，所以很適用。特別係氧化鋯水合物微粒子漿體因具化學安定性而更理想。

上述無機金屬水合物既可以單獨使用，也可以混合不同種類來使用。

例如，所謂的氧化鋯水合物，可以係單獨的氧化鋯、氫氧化鋯或兩者的混合物、或含有氧化鈾、氫氧化鈾、氧化鋁、氫氧化鋁、氧化鈾及/或氫氧化鈾之水合物(以下稱之為「複合氧化鋯水合物」)。

氧化鋯或氫氧化鋯、氧化鈾或氫氧化鈾、氧化鋁或氫氧化鋁、氧化鈾或氫氧化鈾係鋯鹽、鈾鹽、鋁鹽或鈾鹽的水溶液藉由加水分解或添加鹼、氨水來生成的。

作為鋯鹽可以列舉出氫氧化鋯、硝酸氧鋯、硫酸氧鋯



五、發明說明 (7)

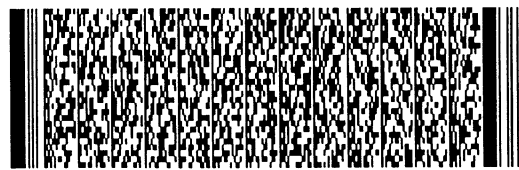
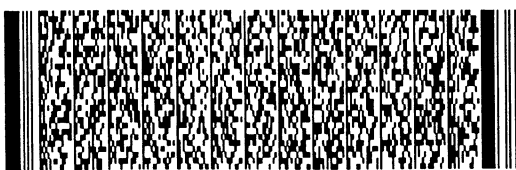
等。其他的也可以使用氫氧化鋯與酸(硫酸、鹽酸、硝酸等)之混合物。其中，從經濟性、操作的簡單性、後處理的容易性出發，最好使用氟氧化鋯、硝酸氧鋯或氫氧化鋯與鹽酸、硝酸之混合物。

作為鈮鹽可以列舉出氯化鈮、硝酸鈮、硫酸鈮等。其他的也可以使用氫氧化鈮與酸(硫酸、鹽酸、硝酸等)的混合物。其中，從經濟性、操作的簡單性、後處理的容易性出發，最好使用氯化鈮、硝酸鈮或氫氧化鈮與鹽酸、硝酸之混合物。

作為鈾鹽可以列舉出氯化鈾、硝酸鈾、硫酸鈾等。其他的也可以使用氫氧化鈾與酸(硫酸、鹽酸、硝酸等)的混合物。其中，從經濟性、操作的簡單性、後處理的容易性出發，最好使用氯化鈾、硝酸鈾或氫氧化鈾與鹽酸、硝酸之混合物。

氧化鈮的含有量，在取得所謂的高強度氧化鋯時，相對於氧化鋯較好的係1.0~10重量%、更好的係2~6重量%、最理想為4.5~5.5重量%。若該含有量未滿1.0重量%，正方晶氧化鋯粒子之安定性有降低的傾向。且若超過10重量%，則立方晶氧化鋯粒子的比例增加，以此為原料的燒結體之韌性等會有下降的傾向。

氧化鈾的含有量，相對於氧化鋯較好的係1.0~77重量%、更好的係13~68重量%、最理想為26~68重量%。若該含有量未滿1.0重量%，正方晶氧化鋯之安定性有降低的傾向。且若超過77重量%，則硬度或熱安定性會有下降的傾向。



五、發明說明 (8)

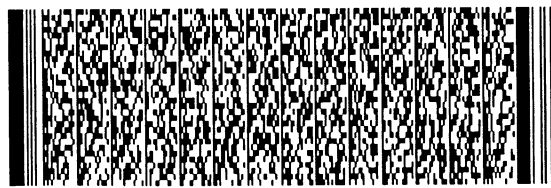
向。

另外，氧化鋇水合物中也可以含有氧化鋁、氫氧化鋁、氯化鋁、硫酸鋁等的鋁化合物。

將這些混合後的漿體中，複合無機金屬水合物微粒子之粒子徑較好的係 $0.01\sim 50\ \mu\text{m}$ ，更好的係 $0.05\sim 50\ \mu\text{m}$ ，最好係 $0.1\sim 20\ \mu\text{m}$ ，特別理想的係 $0.3\sim 15\ \mu\text{m}$ 。若該粒子徑未滿 $0.01\ \mu\text{m}$ ，即使實施脈衝燃燒乾燥，因凝聚粒子徑有增大的傾向。且若超過 $50\ \mu\text{m}$ ，使脈衝燃燒乾燥對於粒子之粉碎效果減小，乾燥後的粒子徑會有增大的傾向。

漿體中的複合無機金屬水合物微粒子之中和氫氧化物、中和共沉澱氫氧化物、加水分解物或這些的複合物之濃度，用乾燥物換算，較好的係5~50重量%、更好的係5~45重量%、最好的係10~40重量%、特別理想為10~30重量%。濃度若未滿5重量%，乾燥後的粒子徑會變得太細，捕集會有變難的傾向。且若濃度超過50重量%，使漿體的輸送等之操作困難，且乾燥後的粒子徑會變大，並使粒子徑分布變平坦。

複合無機金屬水合物微粒子，例如氧化鋇粒子的複合物之混合方法，可以列舉出將可溶性鋇鹽類及可溶性第2成分的鹽類(及可溶性鋁鹽類)溶解於水，製作混合溶液後，加水分解，將鋇鹽類製成水合氧化鋇之方法、將鋇鹽類製成水合氧化鋇後，得到中和處理後的複合氧化鋇水合物之方法、將上述混合溶液中和共沉澱，作為複合氫氧化物來得到複合氧化鋇水合物之方法、將氧化鋇粒子與氧化



五、發明說明 (9)

鈮粒子及/或氧化鈮粒子分別單獨懸浮於溶劑中，將這些混合之方法、及將氧化鋯粒子與氧化鈮粒子及/或氧化鈮粒子混合後懸浮於溶劑之方法，但並不限於上述這些方法。

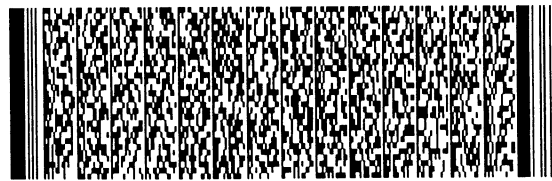
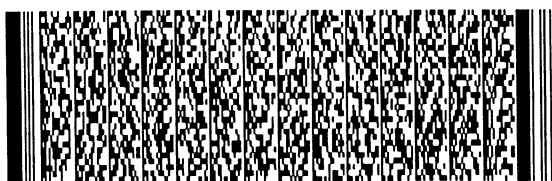
漿體調製時所使用的溶劑可以舉出水、醇、水/醇混合溶液、甲基乙基甲酮/水混合溶液、甲苯等。其中，從經濟性、安定性出發，最好使用水或水/醇混合溶液。

複合氧化鋯水合物微粒子可以通過加熱複合氧化鋯水合物微粒子漿體，使之與衝擊波接觸來製造。

且，本發明的無機金屬水合物微粒子之製造方法中可以使用無機金屬化合物之溶液作為原料液體。該溶液中所使用的溶劑可舉出水、醇、水/醇混合溶液等。其中，從經濟性、安定性出發，最好使用水或水/醇混合溶液。

該無機金屬化合物之溶液中所使用的無機金屬化合物可以列舉出氫氧化物、氯化物、硫酸鹽、硝酸鹽、醇鹽化合物等。這其中，從經濟性、安全性考量，最好係可溶於水的無機金屬鹽。作為可溶於水的無機金屬鹽有氯化物、硫酸鹽、硝酸鹽。該無機金屬鹽的水溶液具體可列舉出氯化氧化鋯水溶液、硫酸氧化鋯水溶液、硝酸氧化鋯水溶液、氯化鈮水溶液、四氯化鈮水溶液、三氯化鈮水溶液、氯化鋁溶液、氯化鎂水溶液、氯化鈣水溶液等。其中氯化物水溶液從經濟性、操作的容易性出發更合適。

本發明的無機微粒子之製造方法中，所謂的衝擊波指的是壓縮性流體中，壓力、密度、溫度等重複著急劇上



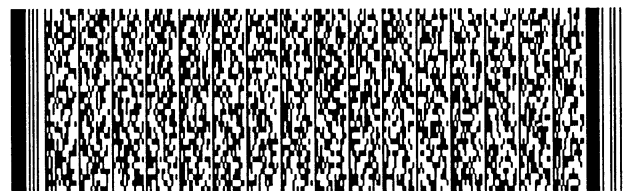
五、發明說明 (10)

升、下降之狀態，可以使用超聲波、爆發伴隨的壓縮波、物體的高速移動等。其中，超聲波振動在經濟性、安全性之點較合適。對於原料液體之加熱方法無特別的限制。可以採取使用電阻加熱元件之電加熱、可燃氣體的燃燒之氣體加熱、通過夾套等的間接加熱方法。

作為前述賦予衝擊波及加熱的方法，與脈衝燃燒氣體接觸係可以同時達成衝擊波之賦予與加熱兩者的簡單方法，所以特別理想。

產生脈衝燃燒氣體的脈衝燃燒系統可舉出例如特開平8-40720號公報中記載的乾燥裝置。該系統包含脈衝燃燒器、乾燥室、旋風器、袋濾器。

脈衝燃燒氣體指的是通常每秒以50~1000周脈動的燃燒氣體。該燃燒氣體係通過脈衝燃燒器產生的。被輸送到該燃燒氣體周圍氣體中的原料液體，藉由脈衝作用(包含熱風乾燥效果及聲壓或壓力)之物理衝擊特性，被分割成微細且粒子徑分布尖峭的液滴，一瞬間就被乾燥了。其作用機構雖未明確，推測為衝擊波對於原料液體之液柱(由通常的噴嘴尖端或旋轉圓盤噴射出)或液柱分裂後的液滴之表面發生作用，藉由液柱或液滴的表面發生的複數個波之間的衝突，液柱會分裂成均等大小的液滴，或液滴再分裂成均等大小的液滴，所以生成僅使用噴嘴或旋轉圓盤等的噴射方法無法得到的微細且粒子徑分布尖峭的液滴。這樣得到的無機微粒子雖然根據物質的種類不同，可能受到一部分變性作用，但通常不會產生成分之化學變化等，多



五、發明說明 (11)

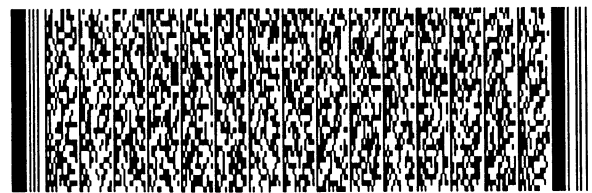
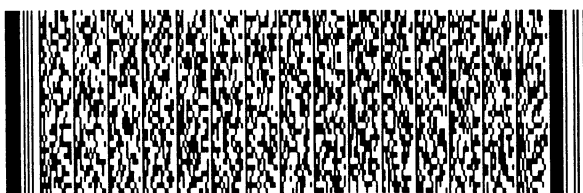
成分體系的情形，由於在原料液體階段可以保持化學組成之均質性，脈衝燃燒系統係很有效的衝擊波之賦予及加熱之方法。保持化學的均質性之機構雖未明確，通過上述理由，所得的液滴直徑很微細之故，液滴內部的溶質成分等的移動距離會變小，而且由於加熱溫度低，液滴內部的溶質成分之移動速度被控制於低速，也是保持均質性的原因之一，但僅靠這一點無法充分加以說明，推測衝擊波的急速脈衝作用(包括聲波力)之物理性衝擊作用對於從液滴除去溶劑等有很大幫助。

脈衝燃燒氣體的頻率範圍較好的係50~1,000Hz，更好的係100~900Hz，更理想的係125~550Hz。若頻率未滿50Hz，則有可能產生低頻率的振動障礙。且若頻率超過1,000Hz，有無法得到充分的乾燥效果之傾向。

脈衝燃燒氣體的壓力振幅較好的係 $\pm 0.2\text{kg/cm}^2$ 以上，更好的係 $\pm 0.4\text{kg/cm}^2$ 以上，更理想的係 $\pm 0.6\text{kg/cm}^2$ 以上。若壓力振幅未滿 $\pm 0.2\text{kg/cm}^2$ ，無法充分分割成微細的液滴，無法充分得到生成粒子之分散效果。

脈衝燃燒氣體的聲壓較好的係100~200分貝，更好的係120~160分貝，更理想的係140~150分貝。若聲壓未滿100分貝，在分散的粒子附近，由於聲波對空氣之反覆減壓作用，造成無法得到充分的攪拌作用或乾燥作用。且若聲壓超過200分貝，則在防聲對策上需要花費龐大的費用。

脈衝燃燒氣體的接觸氣體溫度較好的係100~1,000



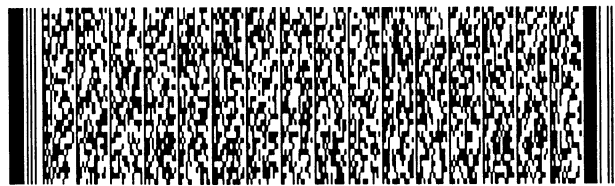
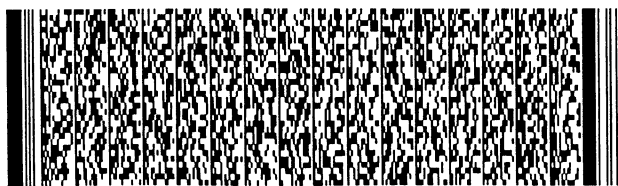
五、發明說明 (12)

°C，更好的係150~700°C，更理想的係200~500°C。若接觸氣體溫度未滿100°C，粒子有無法充分得到乾燥的傾向。且若接觸氣體溫度超過1,000°C，則粒子因過熱容易而產生變性。

作為脈衝燃燒系統的裝置材料，從經濟性、保守性出發，不銹鋼很適用，但對伴隨著液體原料的乾燥而產生腐蝕性氣體之情形，特氟隆(登錄商標)等的樹脂、耐腐蝕性的陶瓷可能將乾燥室內面覆蓋住。用樹脂覆蓋的情形，能夠通過設定脈衝燃燒氣體的流量與溫度、液體原料的流量與溶劑等揮發成分之濃度，來設法使乾燥室溫度保持在特氟隆(登錄商標)等的樹脂之耐熱溫度以下。

將無機微粒子(加熱前述原料液體並賦予衝擊波所得)通過鍛燒、粉碎及造粒(根據需要)，可以製造無機原料粉末。例如，通過鍛燒、粉碎及造粒複合氧化鋁水合物微粒子(用加熱前述的氧化鋁水合物微粒子漿體並賦予衝擊波所得)，可以製造氧化鋁原料粉末。鍛燒裝置可以列舉出能夠控制焙燒周圍氣體的電爐(在昇溫速度、溫度及特別以非氧化物或金屬系的無機原料粉末為目的之情形中)、真空焙燒爐、周圍氣體焙燒爐、氣體爐以及電磁誘導加熱爐等，但並不限於這些。

鍛燒的溫度必須係通過化學反應或固溶等能夠達成向所要的化合物之轉換的溫度，而且要適當選擇使生成的粒子之粒徑、凝集之程度等在合適範圍內。例如從複合氧化鋁水合物得到複合氧化鋁氧化物微粒子時，較好的係

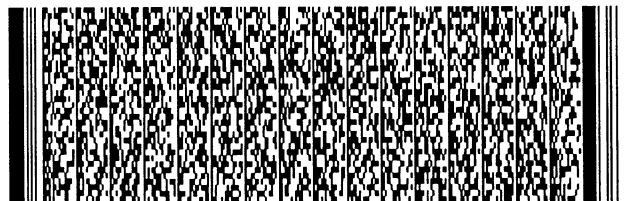
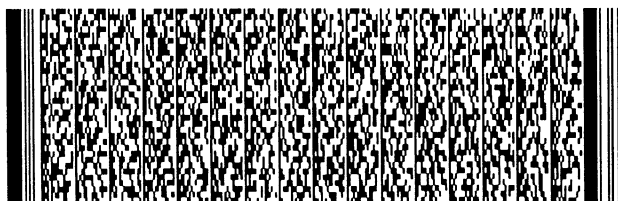


五、發明說明 (13)

600~1,100 °C，更理想的係800~1,000 °C。若鍛燒溫度未滿600 °C，由複合氧化鋁水合物之氧化所得的氧化鋁與第2成分之間的固溶不夠充分，且水分吸附量變多，使成形品的燒結時，其灼熱減量會有變大的傾向。若超過1,100 °C，則生成的粒子會成長過度，有燒結性變差的傾向。

作為鍛燒時的周圍氣體，在以氧化系的原料粉末為目的時，通常的大氣壓周圍氣體、加熱用的燃燒氣體之周圍氣體可以適用，但在以非氧化系或金屬系的原料粉末為目的時，根據目的可以選用氮氣周圍氣體或真空周圍氣體、氬氣等的情性氣體周圍氣體。該情形中，例如以碳化物系原料粉末為目的時，有可能在焙燒爐中與碳源共存的狀態下完成焙燒，但要在原料液體中預先使碳或苯酚樹脂等的碳源溶解或分散當然亦係可能的。

本發明的無機微粒子，其相對於算術平均徑(從用光學方法測量所得的二次粒子之粒度分布求得)之算術標準偏差之比例(以下稱之為「變動係數」)較好的係在0.8以下，更好的係在0.7以下，最理想的係在0.5以下。若該比例超過0.8，近年來，特別在精度要求提高的領域，成為無機原料粉末或最終製品產生偏差之原因，或者，對要求所要的無機微粒子在特定的粒徑範圍之情形，需要排除大粒子或微細粒子，這時收率會有下降的可能。且因製造原料粉末之目的等而實施粉碎處理時，由於粗大粒子與微細粒子混合存在，例如需要前處理或粗粉碎與微粉碎這樣二段粉碎，操作會變複雜。該變動係數係越小越好，實



五、發明說明 (14)

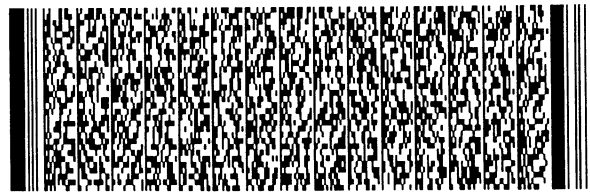
質最好係0，但若在0.2左右，對達成本發明的目的就足夠了。而且，本發明的無機微粒子，可以根據目的設定其大小，但從加工原料粉末之容易度考量，其二次粒子的算術平均徑較好的係0.1~20 μm ，更好的係0.2~5 μm ，最理想的係0.3~1 μm 。

本發明的無機原料粉末，由用光學方法測量所得的二次粒子之粒度分布求得的變動係數較好的係在0.6以下，更好的係在0.5以下，最理想的係在0.4以下。若該比例超過0.6，成為最終製品(以此為原料)的偏差之原因，或為了平均粒度需要增加別的步驟，使收率降低，操作變複雜。該變動係數係越小越好，實質最好係0，但若在0.2左右，對達成本發明的目的就足夠了。而且，本發明的無機原料粉末的二次粒子之算術平均徑雖無特別的限定，可以根據目的通過粉碎等來控制粒子徑，較好的係0.01~1 μm ，更好的係0.03~0.8 μm ，最理想的係0.05~0.5 μm 。

且，上述的光學方法指的是雷射衍射法，雷射衍射式粒度分布測量裝置可以列舉出島津製作所社製SALD-2000等。

用本發明的製造方法得到的無機原料粉末，其粒子徑分布尖峭之故，可以適用於要求均一性的各種用途。

例如，氧化鋯原料粉末，藉由其後的焙燒及加工，可以用作具有高強度・高韌性的刀具、冶金具、粉碎球、摺動零件、機械元件、光通信用零件等各種構造材料。且未經過焙燒，可以添加於研磨劑、化妝品等來使用。



五、發明說明 (16)

鋁水合物微粒子，用電爐在800~1,000℃焙燒。焙燒後的粉末用愛梅克斯社製連續式雷迪磨粉機(型號SLG-03)進行一定時間的粉碎。

(粉末物性測量)

1) 粒子測量方法

測量裝置：雷射衍射式粒度分布測量裝置(島津製作所社製SALD-2000)

測量試料之調製：對於0.3%六偏磷酸鈉溶液添加試料，使乾燥物濃度為0.2%，在100W的超聲波發生裝置中放置2分鐘來使試料分散。其後，測量粒子徑。從所得的各粒子徑各區間的頻度數據，用下述公式求得變形係數。

$$Da = \sum i(Q_i \times X_i) / \sum i Q_i$$

$$\sigma = \sqrt{[\sum i \{X_i - Da\}^2 \times Q_i / 100]}$$

$$R = \sigma / Da$$

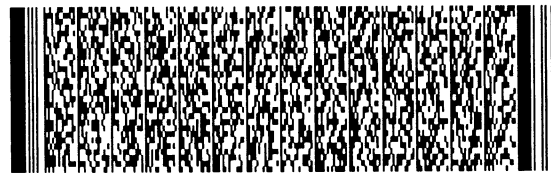
這裡，Da係算術平均徑(μm)，Qi係區間i中的頻率分布值(%)，Xi係區間i中代表粒子徑(μm)，Σi係區間i之總和，σ係算術標準偏差(μm)，R係變動係數。

2) BET比表面積

測量裝置：Gemini2360(島津製作所社製)

測量氣體：氮氣

測量試料之調製及測量方法：將一定量的試料放入樣品槽中，通入氮氣，在200℃加熱30分鐘，進行脫氣，對於樣



五、發明說明 (17)

品槽與平衡槽同時通入吸附氣體(氮氣)，檢測出兩邊的槽之間的壓力差，來計算樣品的表面積。

3) 粉末之表觀比重測量

測量裝置：粉末測試器(細川微米社製)

測量試料之調製及測量方法：先測量一定容量的空杯之重量，其上加入樣品(用振動的方式通過250 μm 的篩)，從加在杯中的樣品重量計算出比重。

4) 結晶相之鑑定

測量裝置：X射線衍射計RAD-C系統(理學電機社製)

通過粉末X射線衍射法由各結晶相的衍射高峰求得面積強度，用下式來求得各結晶相。

$$M = \left[\frac{\{I_m(111) + I_m(11-1)\}}{\{I_m(111) + I_m(11-1) + I_c + t(111)\}} \right] \times 100$$

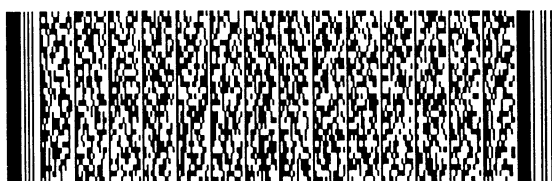
$$C = \left[\frac{I_c + t(111)}{\{I_m(111) + I_m(11-1) + I_c + t(111)\}} \right] \times \left[\frac{I_c(400)}{\{I_c(400) + I_t(400) + I_t(004)\}} \right] \times 100$$

$$T = 100 - M - C$$

這裡，M係單斜晶系氧化鋯mol%，C係立方晶系氧化鋯mol%，T係正方晶系氧化鋯mol%，小字m代表單斜晶系氧化鋯，c代表立方晶系氧化鋯，t代表正方晶系氧化鋯及c+t代表立方晶系氧化鋯與正方晶系氧化鋯之兩者，且()中各面之指數，帶有小字的I代表各結晶相在各面指數時的面積強度。

實施例1

對前述所得的加水分解漿體實施脈衝燃燒乾燥。脈衝



五、發明說明 (18)

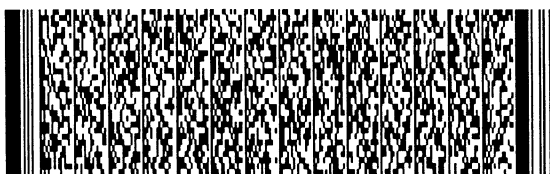
燃燒乾燥的裝置使用巴魯得克社製的海巴魯空(登錄商標) 25 型。藉由脈衝燃燒乾燥裝置產生的脈衝燃燒氣體，頻率為 550Hz、壓力振幅 $\pm 0.8 \text{ kg/cm}^2$ 、聲壓 145 分貝、接觸氣體溫度為 280°C 。在入口溫度 $190\sim 200^\circ\text{C}$ 、出口溫度 80°C 的條件下乾燥漿體，對所得乾燥物用 200 網眼不銹鋼金屬絲網篩選。測量該篩選後的微粒子之粒子徑。該粒子的粒子徑分布之變動係數為 0.45。然後，在 800°C 及 $1,000^\circ\text{C}$ 下焙燒該粉末。測量該焙燒體的粒子徑及 BET 比表面積。接著，對該焙燒體實施一定時間的粉碎，得到粉碎物。測量該粉碎物之粒子徑。其結果如表 1、表 2 及第 1 圖所示。

實施例 2

對前述所得的中和共沉澱漿體實施脈衝燃燒乾燥。所使用的脈衝燃燒乾燥裝置及由該裝置產生的脈衝燃燒氣體，與實施例 1 相同。對所得乾燥物與前述同樣地，用 200 網眼不銹鋼金屬絲網篩選。測量該篩選後的微粒子之粒子徑。變動係數為 0.63。然後，在 800°C 及 $1,000^\circ\text{C}$ 下焙燒該粉末。測量該焙燒體的粒子徑及 BET 比表面積。接著，對該焙燒體實施一定時間的粉碎，得到粉碎物。測量該粉碎物之粒子徑。其結果如表 1、表 2 所示。

實施例 3

將加水分解漿體中的沉澱物之濃度改為用乾燥物換算的 40 重量% 以外，其他與實施例 1 相同。所得的微粒子的粒



五、發明說明 (19)

子徑之變動係數為0.77。

比較例1

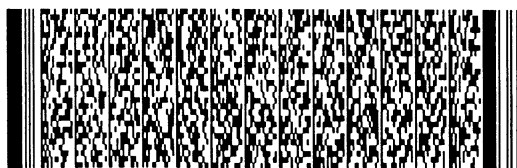
將前述所得的加水分解漿體放在不銹鋼製的棧板上，用105℃的熱風乾燥機來蒸發水分，實施靜置乾燥。乾燥後，用研鉢粉碎乾燥物，再用200網眼不銹鋼金屬絲網篩選。測量該篩選後粉末之粒子徑。所得的粉末之變動係數為0.91。然後，在800℃及1,000℃下焙燒該粉末。測量該焙燒體的粒子徑及BET比表面積。接著，對該焙燒體實施一定時間的粉碎，得到粉碎物。測量該粉碎物之粒子徑。其結果如表1、表2及第1圖所示。

比較例2

對前述所得的加水分解漿體實施噴霧乾燥。噴霧乾燥裝置使用大川原製作所社製L-12型。對漿體使用二流體噴嘴，在入口溫度180℃、出口溫度80℃的條件下乾燥，對乾燥物用290網眼不銹鋼金屬絲網篩選。測量該篩選後粉末之粒子徑。變動係數為1.01。然後，在800℃及1,000℃下焙燒該粉末。測量該焙燒體的粒子徑及BET比表面積。接著，對該焙燒體實施一定時間的粉碎，得到粉碎物。測量該粉碎物之粒子徑。其結果如表1、表2及第1圖所示。

比較例3

對前述所得的中和共沉澱漿體實施靜置乾燥。乾燥方



五、發明說明 (20)

法與比較例1相同。所得的微粒子的粒徑之變動係數為0.95。

比較例4

對前述所得的中和共沉澱漿體實施噴霧乾燥。乾燥裝置及乾燥方法與比較例2相同。所得的微粒子的粒徑之變動係數為0.98。

作為其他實施例，以氯化鋨水溶液為例來說明。

實施例4

(氯化鋨水溶液之調製)

純度95%的氧代氯化鋨8水鹽6252.8g與氯化鈮6水鹽(含有用氧化鈮換算的18.35%的鈮)的水溶液702g及試藥特級的氯化鋁6水鹽34.2g，用12.135kg的離子交換水邊攪拌邊使之溶解。

對上述方法所得的鋨鹽水溶液用脈衝燃燒氣體衝擊波系統處理。脈衝燃燒氣體衝擊波系統使用巴魯得克社製的海巴魯空HP-2型。藉由脈衝燃燒氣體衝擊波系統產生的脈衝燃燒氣體，頻率為900Hz、壓力振幅 $\pm 0.25\text{kg/cm}^2$ 、聲壓120分貝、接觸氣體溫度為150°C。在處理室及出口溫度均為70°C的條件下處理水溶液，對所得的粉末狀固形物粒在550°C及1,000°C下加熱處理1小時，得到所謂的高強度氧化鋨粉末。如習知技術這樣，各金屬原子分布不均一的情形，若著眼於鈮的分布，從鈮的量少或不存在鈮的部分粉末中，可以得到單斜晶系氧化鋨的衍射高峰，但本實施



五、發明說明 (21)

例所得的粉末之結晶相，無論在何溫度的加熱處理下均為正方晶單相，未發現單斜晶系氧化鋇的衍射高峰，所得的粉末即使從微觀看，其化學組成也被確認係均質的。

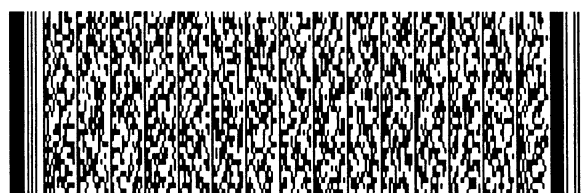
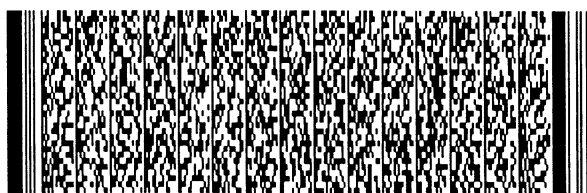
比較例5

將與實施例4相同的鋇鹽水溶液，使用東京理化機械社製噴霧乾燥器SD-2，在乾燥溫度110°C下噴霧乾燥。對所得的乾燥物粒子在550°C下加熱處理1小時，得到高強度氧化鋇粉末。所得的粉末之結晶相顯示著正方晶及單斜晶系，單斜晶系氧化鋇之量為21.8mol%。因此，所得的粉末在微觀上，化學組成有差異的部分，其均質性差。

實施例5

(氯化鋇水溶液的調製)

將氧代氯化鋇8水鹽(含游離氯化氫5重量%)溶解於蒸餾水中，調製出1.5 mol%/升的水溶液。該水溶液用巴魯得克社製的小型脈衝燃燒氣體衝擊波系統、海巴魯空HP-2型機乾燥。藉由脈衝燃燒乾燥裝置產生的脈衝燃燒氣體，頻率為125Hz、壓力振幅 $\pm 0.5 \text{ kg/cm}^2$ 、聲壓160分貝、接觸氣體溫度為500°C，平均處理量1.5升/小時，在乾燥室溫度60°C下處理。分析所得的粉末之水分及氯之量，水分濃度為16.9%、氯濃度為32.8%。即是，即使乾燥溫度在100°C以下，確認到從原料的 $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ 除去了結晶水及非游離的氯之一部分，可以得到化學組成為 $\text{ZrO}_{1.01}\text{Cl}_{1.98}$ 。



五、發明說明 (23)

表2

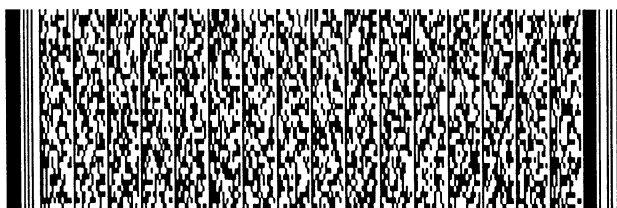
焙燒溫度	800°C				1,000°C			
粉碎時間	0分	5分	30分	60分	0分	5分	30分	60分
實施例1	4.5	0.6	0.2	0.2	4.2	0.4	0.2	0.2
實施例2	18.6	0.7	0.5	0.4	21.0	0.4	0.3	0.3
實施例3	13.0	0.9	0.5	0.5	12.8	0.6	0.4	0.4
比較例1	20.3	3.5	0.9	0.6	25.0	2.5	0.4	0.3
比較例2	10.8	0.7	0.5	0.5	9.3	1.5	0.3	0.2
比較例3	38.3	15.0	1.2	0.4	31.9	13.2	0.6	0.4
比較例4	22.1	8.6	0.5	0.4	25.0	9.5	0.5	0.3

從第1圖可知，藉由本發明的脈衝燃燒氣體來乾燥漿體中的複合氧化鋁水合物微粒子，無須添加表面活性劑等的添加物，就可以抑制因水的表面張力之影響而產生的凝聚作用等，可以減小乾燥物之粒子徑。而且，該粒子具有極尖峭的粒子徑分布。

從表1可知，由本發明所得的氧化鋁水合物微粉末之填充體積密度，與靜置乾燥或噴霧乾燥所得的氧化鋁水合物粉末之粒子具有相同程度。另外，由本發明所得的氧化鋁水合物微粉末之粒子徑，使用加水分解漿體時，可以達到約5 μm 以下，使用中和共沉澱漿體時，可以達到約20 μm 以下。

而且，在脈衝燃燒乾燥中，未產生噴嘴的阻塞或高速旋轉引起的裝置磨損等。

從表2可了解到，在將本發明所得的氧化鋁水合物微粒子焙燒後進行的粉碎步驟中，用於使粒子徑均一化之粉



五、發明說明 (24)

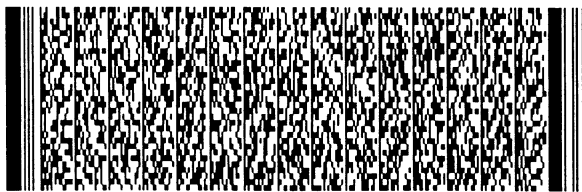
碎時間非常短。

從實施例4與比較例5之比較可以得知，由本發明所得的高強度氧化鋇粉末，無論從宏觀或微觀看，氧化釷相對於氧化鋇之比例控制在一定範圍內，為化學均質性很高的粉末。

從實施例5與比較例6之比較可以得知，由本發明所得的氧代氯化鋇微粒子，即使在低於比較例之低溫下處理時，能夠除去通常在更高溫時才能除去的結晶水及非游離的氧之一部分。這意味著結合力比結晶水弱的自由水，已經在比實施例更低的溫度除去了。推測係因為衝擊波的急速脈動作用對液滴表面之攪拌效果，或壓力變動中低壓部分對自由水之蒸發促進效果等，但真正原因尚未明確。藉由本發明的製造方法，與通常的方法相比較，能夠在更低的溫度下進行粉末合成。使用本發明的方法，即使在操作如實施例4、5所示的強酸性物質等之高腐蝕性物質時，較低的加熱溫度下就可以完成，因此可能使用特氟隆(登錄商標)等的樹脂，使裝置材料的選擇範圍擴大，很經濟實惠。

產業上的可利性

本發明可以應用於鈦酸鋇等的電子陶瓷原料之合成、氧化鈦光催化劑或汽車排氣用的三元催化劑載體、氮化物、碳化物或硼化物等的非氧化物陶瓷原料之合成、粉末冶金等使用的金屬材料、樹脂或纖維之填充劑等，且其應



五、發明說明 (25)

用範圍並不限於這些。



圖式簡單說明

第1圖係對於氧化鋁水合物微粒子的加水分解漿體，實施脈衝燃燒乾燥、靜置乾燥或噴霧乾燥所得的氧化鋁水合物粉末之粒子徑分布。



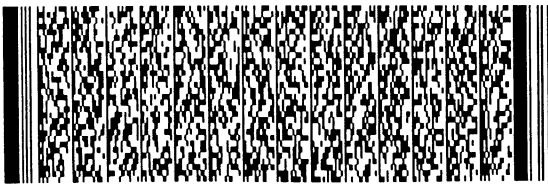
四、中文發明摘要 (發明名稱：無機微粒子、無機原料粉末、以及無機微粒子與無機原料粉末之製造方法)

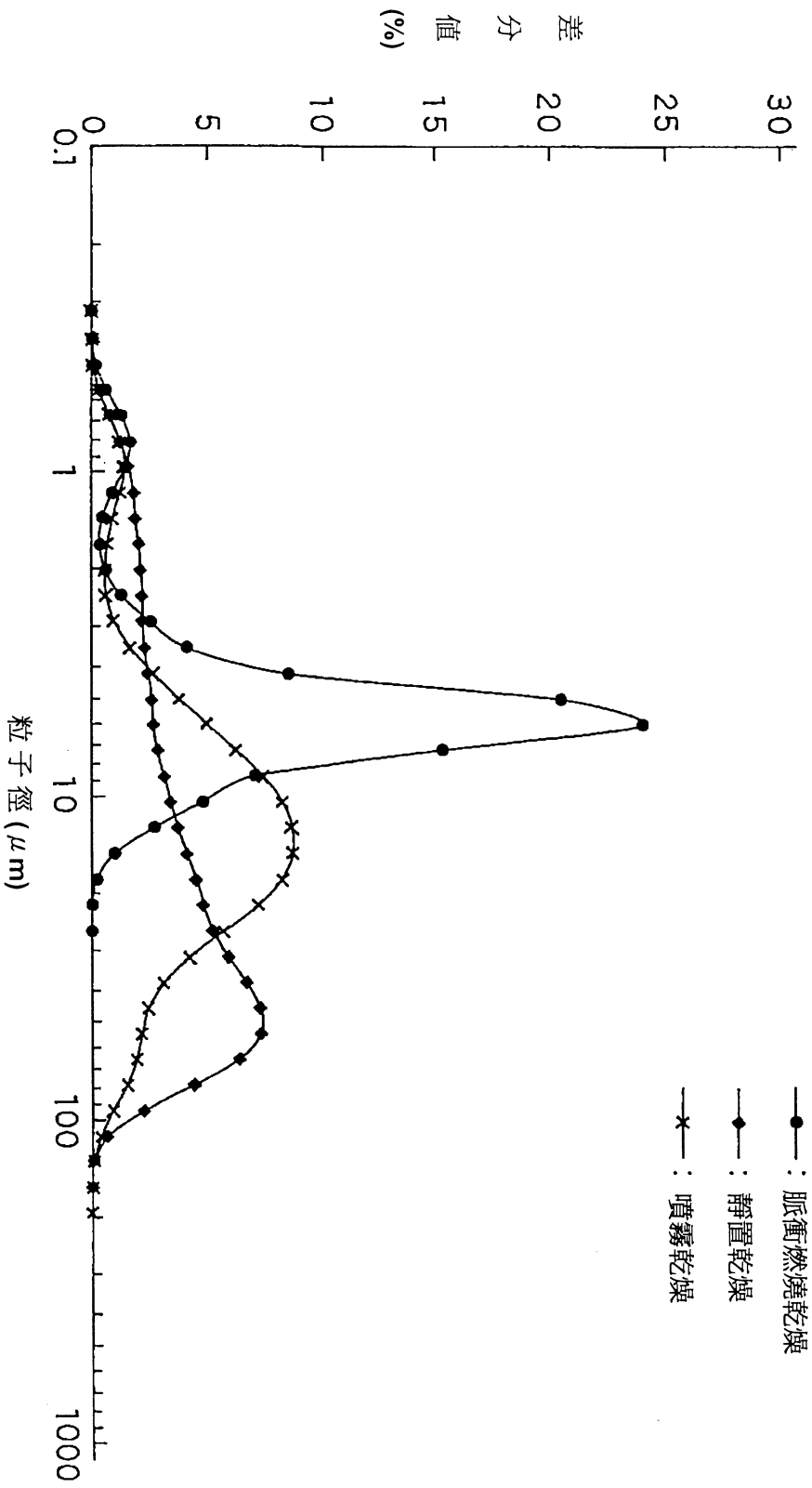
提供為了得到粒子徑分布尖峭的無機原料粉末，在氧化鋁水合物微粒子漿體等原料液體之粉末化時，能夠抑制粒子之間因熱引起的凝聚或黏附等、一種嶄新的無機微粒子之製造方法。另外，提供對多成分體系的情形，化學組成在生成的粒子間、粒子內部能夠均質的、嶄新的無機微粒子之製造方法。將原料液體加熱，且賦予衝擊波之無機微粒子之製造方法。

五、(一)、本案代表圖為：第___1___圖

(二)、本案代表圖之元件代表符號簡單說明：無

六、英文發明摘要 (發明名稱：)





第1圖

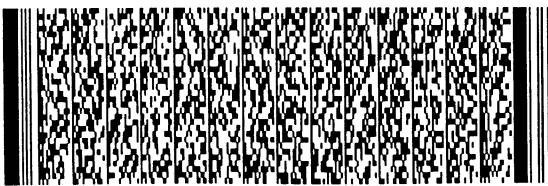
四、中文發明摘要 (發明名稱：無機微粒子、無機原料粉末、以及無機微粒子與無機原料粉末之製造方法)

提供為了得到粒子徑分布尖峭的無機原料粉末，在氧化鋁水合物微粒子漿體等原料液體之粉末化時，能夠抑制粒子之間因熱引起的凝聚或黏附等、一種嶄新的無機微粒子之製造方法。另外，提供對多成分體系的情形，化學組成在生成的粒子間、粒子內部能夠均質的、嶄新的無機微粒子之製造方法。將原料液體加熱，且賦予衝擊波之無機微粒子之製造方法。

五、(一)、本案代表圖為：第___1___圖

(二)、本案代表圖之元件代表符號簡單說明：無

六、英文發明摘要 (發明名稱：)

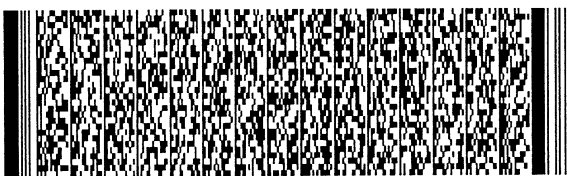


申請日期：92.11.7	IPC分類 C01G ²⁵ / ₀₂ ; B01J ¹⁹ / _{0, 3/8} ; F26B ³ / _{0, 5/02}
申請案號：92131204	

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、 發明名稱	中文	無機微粒子、無機原料粉末、以及無機微粒子與無機原料粉末之製造方法
	英文	
二、 發明人 (共8人)	姓名 (中文)	1. 鶴見徹 2. 吉野正樹 3. 佐飛峰雄
	姓名 (英文)	1. 2. 3.
	國籍 (中英文)	1. 日本 JP 2. 日本 JP 3. 日本 JP
	住居所 (中文)	1. 日本國京都府京都市左京區岩倉東宮田町21番地6號 2. 日本國滋賀縣大津市園山二丁目13番1號 3. 日本國滋賀縣近江八幡市篠原町一丁目10番9號
	住居所 (英文)	1. 2. 3.
三、 申請人 (共3人)	名稱或姓名 (中文)	1. 第一工業製藥股份有限公司
	名稱或姓名 (英文)	1.
	國籍 (中英文)	1. 日本 JP
	住居所 (營業所) (中文)	1. 日本國京都府京都市下京區西七條東久保町55番地 (本地址與前向貴局申請者相同)
	住居所 (營業所) (英文)	1.
	代表人 (中文)	1. 津田章裕
代表人 (英文)	1.	

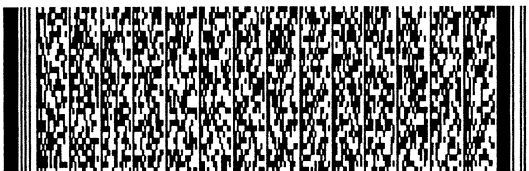


申請日期：	IPC分類
申請案號： 92131204	

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、 發明名稱	中文	
	英文	
二、 發明人 (共8人)	姓名 (中文)	4. 吉田文男 5. 石田聰 6. 米原稔
	姓名 (英文)	4. 5. 6.
	國籍 (中英文)	4. 日本 JP 5. 日本 JP 6. 日本 JP
	住居所 (中文)	4. 日本國滋賀縣大津市北大路三丁目2番3號 5. 日本國三重縣四日市市常盤四丁目6番11號106室 6. 日本國大阪府寢屋川市國守町1205番地33號
	住居所 (英文)	4. 5. 6.
三、 申請人 (共3人)	名稱或 姓名 (中文)	2. 巴爾鐵克股份有限公司
	名稱或 姓名 (英文)	2.
	國籍 (中英文)	2. 日本 JP
	住居所 (營業所) (中文)	2. 日本國京都府京都市下京區西七條東久保町55番地 (本地址與前向貴局申請者相同)
	住居所 (營業所) (英文)	2.
	代表人 (中文)	2. 大谷隆允
	代表人 (英文)	2.



申請日期：	IPC分類
申請案號： 92131204	

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、 發明名稱	中文	
	英文	
二、 發明人 (共8人)	姓名 (中文)	7. 木村敏昭 8. 窪谷篤芳
	姓名 (英文)	7. 8.
	國籍 (中英文)	7. 日本 JP 8. 日本 JP
	住居所 (中文)	7. 日本國大阪府吹田市五月丘東6番C-401室 8. 日本國兵庫縣西宮市名鹽南台3丁目17番2號
	住居所 (英文)	7. 8.
三、 申請人 (共3人)	名稱或 姓名 (中文)	3. 東雷股份有限公司
	名稱或 姓名 (英文)	3.
	國籍 (中英文)	3. 日本 JP
	住居所 (營業所) (中文)	3. 日本國東京都中央區日本橋室町二丁目2番1號 (本地址與前向貴局申請者相同)
	住居所 (營業所) (英文)	3.
	代表人 (中文)	3. 榊原定征
	代表人 (英文)	3.



五、發明說明 (15)

且，氧化鈦原料粉末可以用作光催化劑。

另外，氧化鋯或氧化鈾之固溶體及該固溶體與氧化鋁之混合粉末，可以用作汽車的排氣用三元催化劑之載體。

以下，通過實施例更詳細地說明本發明，但本發明並不限於這些實施例。

實施例

(氧化鋯水合物之調製)

加水分解漿體

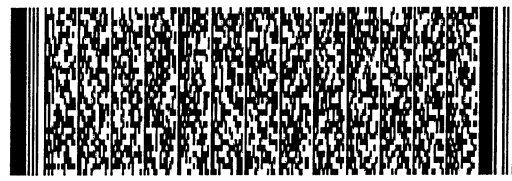
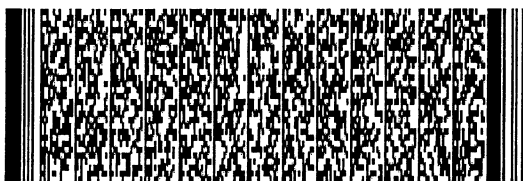
將含有氧代氯化鋯94.2重量%與氯化鈦5.8重量%的水溶液煮沸，加水分解後，用28%的氨水中和，得到沉澱物。所得的沉澱物用離子交換水進行水洗，直至清洗液中因硝酸銀水溶液而產生的白濁消失。調整水洗後的沉澱物至用乾燥物換算的重量為20重量%，得到加水分解漿體。該漿體中的複合氧化鋯水合物微粒子為 $0.1 \mu\text{m}$ 。

中和共沉澱漿體

對於含有氧代氯化鋯94.2重量%與氯化鈦5.8重量%的水溶液添加28%的氨水，中和以得到沉澱物。所得的沉澱物用離子交換水進行水洗，直至清洗液中因硝酸銀水溶液而產生的白濁消失。調整水洗後的沉澱物至用乾燥物換算的重量為10重量%，得到中和共沉澱漿體。該漿體中的複合氧化鋯水合物微粒子為 $19.2 \mu\text{m}$ 。

(氧化鋯水合物微粒子之焙燒及粉碎)

將乾燥複合氧化鋯水合物微粒子漿體所得的複合氧化



五、發明說明 (22)

$2\text{H}_2\text{O}$ 之粉末。

比較例6

將與實施例3相同的水溶液，使用東京理化機械社製噴霧乾燥器SD-2，在乾燥溫度 110°C 下噴霧乾燥。所得的粉末之水分及氯之量分別為44.7%及22.0%。即是，即使在 100°C 以上的溫度乾燥，也無法除去自由水、游離氯化氫以外之物，所得的乾燥粉末與原料粉末相同，化學組成為 $\text{ZrOCl}_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ 。

表1

	焙燒前氧化鋯水合物粒子的粒子徑 (μm)		焙燒後的氧化鋯的粒子徑及 BET 比表面積(粉碎前)				表觀比重
			焙燒溫度				
	粒子徑 (μm)	變動係數 (-)	800 $^\circ\text{C}$		1,000 $^\circ\text{C}$		
粒子徑 (μm)			BET 比表面積 (m^2/g)	粒子徑 (μm)	BET 比表面積 (m^2/g)		
實施例 1	5.3	0.45	4.5	25.6	4.2	14.9	0.796
實施例 2	15.4	0.63	18.6	13.6	21.0	5.6	0.753
實施例 3	11.7	0.77	13.0	21.3	12.8	14.0	0.793
比較例 1	19.1	0.91	20.3	31.7	25.0	15.6	0.592
比較例 2	11.8	1.01	10.8	30.6	9.3	15.6	0.820
比較例 3	38.2	0.95	38.3	21.8	31.9	7.5	0.777
比較例 4	21.7	0.98	22.1	19.0	25.0	5.6	0.773



六、申請專利範圍

1. 一種無機微粒子之製造方法，其特徵在於，藉由使原料液體與脈衝燃燒氣體接觸，來完成該原料液體之加熱及衝擊波之賦予，其中，前述脈衝燃燒氣體之頻率範圍50~1,000Hz、壓力振幅 $\pm 0.2\text{kg/cm}^2$ 以上、聲壓100~200分貝及接觸氣體溫度100~1,000 $^{\circ}\text{C}$ 。

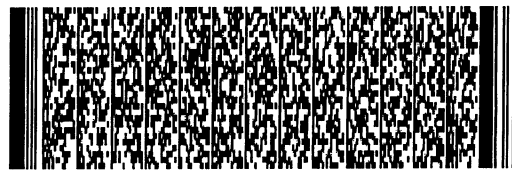
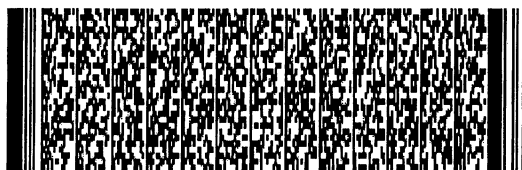
2. 如申請專利範圍第1項所述的無機微粒子之製造方法，其中，前述原料液體係無機過渡金屬化合物與溶劑之混合物、及/或無機金屬化合物之溶液。

3. 如申請專利範圍第2項所述的無機微粒子之製造方法，其中，前述無機金屬化合物與溶劑之混合物係不溶於溶劑的無機金屬水合物與溶劑之混合物，所得的無機粒子係無機金屬水合物微粒子。

4. 如申請專利範圍第3項所述的無機微粒子之製造方法，其中，前述不溶於溶劑的無機金屬化合物與溶劑之混合物包含氧化鋯水合物微粒子漿體、氧化鈾水合物微粒子漿體、氧化鈦水合物微粒子漿體、含水硅酸化合物微粒子漿體或氧化鋁水合物微粒子漿體的至少一種。

5. 如申請專利範圍第3項所述的無機微粒子之製造方法，其中，前述不溶於溶劑的無機金屬化合物與溶劑之混合物係中和氫氧化物、中和共沉澱氫氧化物、加水分解物或這些的複合物。

6. 如申請專利範圍第3項所述的無機微粒子之製造方法，其中，前述不溶於溶劑的無機金屬化合物與溶劑之混合物中，無機金屬水合物微粒子係0.01~50 μm 。



六、申請專利範圍

7. 如申請專利範圍第2項所述的無機微粒子之製造方法，其中，前述無機過渡金屬化合物之溶液係可溶於水的無機過渡金屬鹽之水溶液，所得的無機粒子係無機過渡金屬鹽微粒子或其變性物。

8. 如申請專利範圍第7項所述的無機微粒子之製造方法，其中，前述可溶於水的無機過渡金屬鹽之水溶液包含氯化氧鋯水溶液、硫酸氧鋯水溶液、硝酸氧鋯水溶液、氯化鈾水溶液、四氯化鈦水溶液、三氯化鈦水溶液、氯化鋁水溶液、氯化鎂水溶液、氯化鈣水溶液或硅酸化合物水溶液的至少一種。

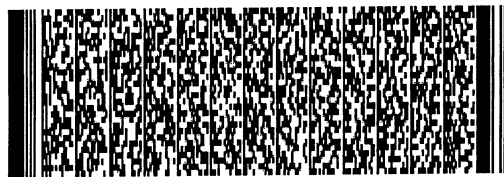
9. 一種無機原料粉末之製造方法，其特徵在於，對用申請專利範圍第1、2、3、4、5、6、7或8項所述的製造方法得到的無機微粒子實施鍛燒及粉碎。

10. 一種無機微粒子，其係以申請專利範圍第1項所述的無機微粒子之製造方法所製造，其特徵在於，相對於從光學方法測量所得的二次粒子徑之粒度分布求得的算術平均徑，其算術標準偏差之比例在0.8以下。

11. 一種無機原料粉末，其係以申請專利範圍第9項所述的無機原料粉末之製造方法所製造，其特徵在於，相對於從光學方法測量所得的二次粒子徑之粒度分布求得的算術平均徑，其算術標準偏差之比例在0.6以下。

12. 如申請專利範圍第10項所述的無機微粒子，其中，二次粒子之算術平均徑係 $0.1\sim 20\ \mu\text{m}$ 。

13. 如申請專利範圍第11項所述的無機原料粉末，其



六、申請專利範圍

中，二次粒子之算術平均徑係 $0.01\sim 1\ \mu\text{m}$ 。

