

1.-4.皆為德國/Germany

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

德國 DE;西元 2003 年 9 月 12 日;10342600.0

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

1.-4.皆為德國/Germany

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

德國 DE;西元 2003 年 9 月 12 日;10342600.0

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明關於一種製造閥用金屬氧化物粉末，尤其 Nb_2O_5 粉末或 Ta_2O_5 粉末之方法，以及藉此方法製得之閥用金屬氧化物粉末，該閥用金屬氧化物粉末係具球形形態、平均粒度為 10 至 80 微米以及具高 BET 表面積。

【先前技術】

閥用金屬，尤其屬於週期系統第 4-6 過渡族者(尤其鈮及鉭以及其合金)，具有許多用途。閥用金屬通常係藉適合的閥用金屬化合物之還原作用(尤其閥用金屬氧化物之還原作用)而製得。

然而，閥用金屬氧化物粉末令人感興趣之處不僅在於作為用於製造對應的金屬粉末之起始材料，並且在於供許多進一步應用。經由實例，具有高比表面積之鉭及鈮氧化物係用於製造例如用作觸媒及/或功能性陶瓷之混合的金屬氧化物材料。

當製造此類型金屬氧化物材料時，為了獲致密切混合氧化鈮及/或氧化鉭與額外的反應物(例如碳酸鉀或三氧化鉀)以及在最低可能溫度下出現之反應順序二者，使用閥用金屬氧化物的球形形態結合高比表面積是有利的。Ziolek 於 "Catalysis Today 78 (2003) 47-64" 中揭示含鉭觸媒之概述。必要時應具有高比表面積之氧化鉭被提到為最重要的化合物種類。

文獻中已揭示用於製造具有高比表面積之鉭及鈮氧化物

的方法。然而，使用此等方法所製得之氧化物通常不具球形形態或為毫微米級閥用金屬氧化物粉末。

舉例來說，德國專利 DE 4 214 724 C2 揭示於氣相反應中製造具狹窄粒度分布之陶瓷粉末。五氯化鈮或五氯化鉭與氧之反應使得製造五氧化鈮及五氧化鉭(根據實施例係具比表面積 42 平方公尺/克)成為可能。然而，就氣相反應程序及氣態氯之釋放而言，此方法非常複雜。再者，根據實施例所生成的 Nb_2O_5 含有合計 700 ppm 之金屬不純物。

於 "Materials Transaction, 第 42 卷, 第 8 號(2001), 1623-1628" 中, T. Tsuzuki 及 P.G. McCormick 揭示一種五氧化鈮的機械化學合成。固體五氯化鈮與固體氧化鎂或碳酸鈉一起用來製造具比表面積 43.3 至 196 平方公尺/克之 Nb_2O_5 。然而，固態反應僅極緩慢地進行。反應時間經描述為若干小時。此方法之另一缺點為所製得的產物(基於所用的方法)係高度被鈉污染。當受到熱處理時($T > 550^\circ\text{C}$)，受污染的此類型五氧化鈮有形成 $\text{Na}_2\text{Nb}_4\text{O}_{11}$ 相之趨向。

J.N. Kondo, Y. Takahara, B. Lee, D. Lu 及 K. Domen 於 "Topics in Catalysis, 第 19 卷, 第 2 號, 2002, 171-177" 中揭示製造中孔性氧化鉭之方法。使用已知為 NST(中性表面活性劑模板)法，藉添加螯合配基聚(伸烷基氧)團塊共聚物 Pluronic P-123 (BASF)，使氯化鉭(V)透過存在於大氣空氣中之水分而水解。依此方式所製得之 Ta_2O_5 具有極高的比表面積。此方法的缺點首先為至少 6 日之長反應時間，以及放出 HCl 氣體。使用已知為 LAT(配基輔助模板)法，亦製得具高比表面

積 330 至 410 平方公尺/克之 Ta_2O_5 。根據此方法，乙氧化鈮(V)係伴隨著添加十八烷基胺而水解。然而，依此方式所製得之產物是熱或機械上皆不穩定的，因而無法用於大規模工業應用或進一步處理。再者，所用之乙氧化鈮(V)是非常昂貴的。

根據 C. Feldmann 及 H.-O. Jungk (Angew. Chem. 2001, 113, 第 2 號, 372-374)，藉著於一縮二乙二醇中水解乙氧化鈮，亦可製造具高比表面積之毫微米級 Nb_2O_5 粉末。依此方式製得之五氧化鈮具 Brunauer-Emmett-Teller(BET)表面積為約 100 平方公尺/克。此方法之另一缺點為所用的乙氧化鈮(V)非常昂貴，並且只可能製得毫微米級氧化物顆粒。

根據 H. Koninami, K. Oki, M. Kohno, S. Onoue, Y. Kera 及 B. Ohtani(Journal of Materials Chemistry 2002, 11(2), 604-609)，藉著於甲苯中水解丁氧化鈮，亦可製得具高比表面積 232 平方公尺/克之五氧化鈮。此方法之缺點為來自使用甲苯作為溶劑之可能的環境污染，以及所用的丁氧化鈮之高材料成本二者。

自德國專利 DE 103 07 716 A1 已知，藉著透過鹼(尤其氨(NH_3))自氫氟酸溶液沉澱七氟鈮酸(H_2TaF_7)或七氟鈮酸(H_2NbF_7)或其混合物，可製得球形鈮及鈮氧化物。於此例中，鈮酸 $\text{Ta}(\text{OH})_5$ 或鈮酸 $\text{Nb}(\text{OH})_5$ 或其混合物經沉澱，接著透過熱處理(已知為煅燒)而轉化為對應的氧化物。然而，此等氧化物具 0.41 至 0.58 平方公分/克之低比表面積。

WO 97/13724 A1 亦揭示一種藉由透過氨沉澱 H_2TaF_7 或 H_2NbOF_5 而製備閥用金屬氧化物之方法。沉澱作用係於至少二

個以串級排列之反應器中進行，其中溫度、pH 及滯留時間係於每一反應容器中分開地調整，使得可以系統性地調整所製得的閥用金屬氧化物的比表面積及密度。已揭示具高比表面積和低密度之閥用金屬氧化物以及具低表面積和高密度之閥用金屬氧化物。然而，根據 WO 97/13724 A1，已瞭解具高表面積之閥用金屬氧化物係為具 BET 表面積大於 2 平方公尺/克(Nb_2O_5)或大於 3 平方公尺/克(Ta_2O_5)之閥用金屬氧化物。就五氧化鉬顆粒而言，BET 表面積 11 平方公尺/克被提到為最大值。於此等實例中，可得到最大 BET 表面積 6.7 平方公尺/克(請參照實施例 6)。具高表面積之閥用金屬氧化物的掃描電子顯微照相顯示此等產物具有不規則形態(請參照圖 3A 至 3D 及圖 5A 至 5D)。因此，根據 WO 97/13724 A1，無法得到具高 BET 表面積之球形閥用金屬氧化物粉末。根據 WO 97/13724 A1 之方法的其他缺點為使用至少二個反應容器來進行反應，在每一容器中，必須分開地調整主要的製程參數，需要更複雜的控制程序。

【發明內容】

本發明之目的係提供一種製造閥用金屬氧化物粉末，尤其 Nb_2O_5 及 Ta_2O_5 粉末之方法，其係特別適用於固態反應，例如用作觸媒或用於製造觸媒及作為電子陶瓷或用於製造電子陶瓷，以及提供一種用於製造此類閥用金屬氧化物粉末之簡單方法。

此目的得藉具球形形態、 D_{50} 值為 10 至 80 微米以及高 BET

表面積之閥用金屬氧化物粉末，以及一種藉著在高溫下沉澱含氟化物之閥用金屬化合物與鹼之方法而達成。

因此，本發明之主題係為一種製造閥用金屬氧化物粉末之方法，其係藉著於水存在下連續地使含氟化物之閥用金屬化合物與鹼反應，以及煅燒所形成的產物而進行，該反應係於唯一反應容器中且於溫度 45°C 至反應混合物的沸點(約 105°C)下進行。

含氟化物之閥用金屬化合物與鹼於水存在下之反應通常造成閥用金屬氫氧化物(例如鉭酸 $\text{Ta}(\text{OH})_5$ 或鈮酸 $\text{Nb}(\text{OH})_5$)之形成。此類閥用金屬氫氧化物不溶於水性系統，因而從反應混合物沉澱出來。因此，此反應通常稱為沉澱作用或沉澱反應。

根據本發明，沉澱反應係於高溫下進行，其中溫度較佳為 50 至 75°C ，特佳為 55 至 70°C 。

雖然含氟化物之閥用金屬化合物與鹼之反應理論上亦可依逐批或半連續方式進行，但此沉澱反應根據本發明係連續地進行。根據本發明，程序係針對連續地投入反應空間中之含氟化物之閥用金屬化合物與鹼以及針對反應期間連續地取出之形成的產物二者。

反應係於唯一的單一反應容器中進行。此具優點為所需的裝置及控制程序可保持最少。反應容器可為例如攪拌式、管狀或環路反應器。較佳係使用攪拌式反應器。

反應所需之水首先可置於反應空間中，並且視情況加蓋。然而，最有利的是使所用的含氟化物之閥用金屬化合物與鹼每一者呈水溶液或懸浮液使用。此代表水與反應物一起加入，此

容許連續的反應程序，同時確保固定濃度的反應搭配物。

閥用金屬較佳為鈮及/或鉭。因此，所用的含氟化物之閥用金屬化合物較佳為七氟鈮酸(H_2NbF_7)或七氟鉭酸(H_2TaF_7)。

視閥用金屬粉末之所需純度而定，純化含氟化物之閥用金屬化合物或鹼可能是必要的，必要時於反應前純化超過一次。依此方式，必要時，降低不純物含量至十億份率(ppb)範圍是可能的。

含氟化物之閥用金屬化合物較佳用作水溶液，其中以閥用金屬為基準，含氟化物之閥用金屬化合物的濃度較佳為 0.3 至 1.2 莫耳/升，特佳為 0.6 至 0.9 莫耳/升。

所用之鹼較佳為氨、鹼金屬氫氧化物或鹼土金屬氫氧化物，特佳為氨。極特佳係使所用的鹼為具氨濃度 3 至 15% 重量，較佳為 5 至 10% 重量，特佳為 6 至 10% 重量之水性氨溶液。

含氟化物之閥用金屬化合物與鹼之反應較佳係於 pH(於反應溫度下測得)7 至 14，特佳係於 pH(於反應溫度下測得)7.0 至 8.0 下進行。

於根據本發明之反應程序期間，較佳係依照含氟化物之閥用金屬化合物的水溶液之體積流量對鹼的水溶液之體積流量的比例為 1：0.9 至 1：2(較佳為 1：1.0 至 1：1.5)之方式設定體積流量。適當選擇體積流量及所用溶液的濃度設定了含氟化物之閥用金屬化合物(以閥金屬計算而得)對鹼的莫耳濃度比例至數值較佳為 1：5.6 至 1：8.5。

含氟化物之閥用金屬化合物之水溶液的絕對體積流量較佳為 1 至 1000 升/小時，特佳為 200 至 600 升/小時。

沉澱產物於反應空間中之滯留時間為例如介於 0.25 與 24 小時之間，但較佳係介於 30 分鐘與 3 小時之間。

依此方式製得之球形沉澱產物(一種閥用金屬氧化物)通常經由過濾而分離，經清洗以及乾燥，並且接著經煅燒而形成閥用金屬氧化物。於必要時，此可接著機械處理操作，例如篩分、壓碎、研磨或附聚。倘若此機械處理涉及使用對應的高能量，則球形形態可能被破壞，並且可能出現閥體金屬氧化物的形態變化。

較佳係使用去離子水進行沉澱產物之清洗。使清洗操作於一些階段中進行為特佳，其中首先使用鹼(較佳為亦用於沉澱作用之鹼)的水溶液進行清洗一或多次，並且接著以去離子水清洗一或多次。

清洗之後通常接著乾燥步驟。較佳係於溫度 50-150°C，特佳為 70-110°C 下進行乾燥。乾燥時間較佳為 1 至 100 小時，特佳為 10 至 30 小時。

為了將沉澱產物轉化為所需的閥用金屬氧化物，在高溫下之熱處理(已知為煅燒)是必要的。較佳係在溫度 250-1400°C，特佳為 300-600°C 下，進行煅燒。煅燒時間較佳為 0.1 至 100 小時，特佳為 1 至 50 小時，最佳為 1 至 5 小時。較佳係於非還原條件下，例如於惰性氣體或大氣空氣存在下，較佳係於大氣氧氣存在下進行煅燒。

較佳係於溫度範圍 >1000°C，特佳係接近氧化物之熔點中，藉高溫熱處理，可穩定閥用金屬氧化物的結構。此使得增強初級顆粒間之燒結的架橋以及謹慎地改變孔隙結構成為可

能。

已發生任一高溫處理後，再度可能進行機械處理操作，例如篩分、壓碎或研磨。較佳係於溫度介於 800-1200°C 間，藉著接續於空氣中煅燒，可除去任一種可引入之不純物(例如碳)。

根據本發明之方法使得製造具平均粒徑 D_{50} (根據 ASTM B 822 透過 MasterSizer 測得)為 10 至 80 微米(較佳為介於 15 與 40 微米之間)，以及具至少 10 平方公尺/克之高 BET 表面積(根據 ASTM D 3663 透過 N_2 三點法測定)之球形閥用金屬氧化物粉末成為可能。

再者，所製得之閥用金屬氧化物粉末之差異處在於球形附聚物之極狹窄的粒度分布。藉還原作用，可將根據本發明之閥用金屬氧化物轉化為具有與已知高電容粉末類似的表面積和電容之閥用金屬粉末或閥用金屬低氧化物。因此，此類粉末極適用於製造電容器陽極及電容器。就均勻的粒度分布及相當低附聚物尺寸而論，使用者可獲致陽極之均勻的包裝密度以及因而之品質及良率改良。再者，亦可能依照甚至以極細的初級結構保留附聚物的良好堅固性之方式設定二級結構。

因此，本發明的主題亦為具平均粒徑 D_{50} (根據 ASTM B 822 透過 MasterSizer 測得)為 10 至 80 微米，以及具至少 10 平方公尺/克之 BET 表面積(根據 ASTM D 3663 透過 N_2 三點法測定)之球形閥用金屬氧化物粉末。

此類閥用金屬氧化物粉末係根據本發明之方法製得。

使用成像方法測定閥用金屬氧化物粉末的形態。使用具 200×放大倍率之掃描電子顯微鏡得到粉末樣品的二維影像。為

了此目的，粉末施於具有黏性表面之方形樣品平滑體。檢視其中至少可看到 200 個顆粒之視野區。分析在此影像中可看到的粉末顆粒。為了此目的，於成像的粉末顆粒附近繪出一個圓，其係接觸到顆粒週邊上以最大距離分開之二點。繪出另一個圓，其係具有相同的中心，並且於此例中接觸到顆粒週邊上以最小距離分開之二點。使用此二圓的直徑作為描述閥用金屬氧化物粉末的形態之準則。理想的球形粉末顆粒具比例 1，因為粉末顆粒表面上的所有點係離顆粒中央相同距離。

應瞭解球型的閥用金屬氧化物粉末(即粉末顆粒約呈球形之閥用金屬氧化物粉末)係代表其中至少 95%之粉末顆粒具較大圓的直徑對較小圓的直徑之比例為 1.0 至 1.4。

平均粒徑 D_{50} (根據 ASTM B 822 透過 MasterSizer 測得)較佳為 15 至 40 微米。

BET 表面積(根據 ASTM D 3663 透過 N_2 三點法測定)較佳為至少 15 平方公尺/克，特佳為至少 20 平方公尺/克，特佳為至少 40 平方公尺/克，且極特佳為至少 60 平方公尺/克。最大的 BET 表面積較佳為 225 平方公尺/克。

根據本發明之閥用金屬氧化物粉末較佳為鈮或鉭氧化物粉末(例如 NbO_2 、 NbO 、 Nb_2O_5 、 TaO_2 、 TaO 、 Ta_2O_5 粉末)或鈮或鉭低氧化物(特佳為 Nb_2O_5 或 Ta_2O_5 粉末)。

【實施方式】

本發明得更詳細地以實施例為基礎而闡明；此等實施例係用以較容易地瞭解本發明的原理，並且應瞭解不欲用來對於本

發明之範圍有任一限制。

實施例

針對實施例中所示之許多化學及物理性質，分析於以下實施例中所製得之金屬氧化物粉末或金屬粉末。除非另外指出，否則程序如下。

使用 MALVERN 製之 MasterSizer S μ ，透過雷射繞射測定粒度分布(D₁₀、D₅₀ 及 D₉₀ 數值)(ASTM B 822)，並且使用已知的 Brunauer、Emmett 及 Teller 法(BET 法)，根據 ASTM D 3663 透過 N₂ 三點法，測定比表面積。除非另外指出，否則百分率係以重量百分率計。

比較例 1

具高比表面積之 Nb₂O₅

伴隨攪拌，將 80 毫升去離子水添加於 200 毫升乙氧化鈮(V)中。透過抽吸式濾器過濾依此方式得到之氫氧化鈮(V)(鈮酸)，並且以去離子水清洗。接著，使氫氧化鈮(V)於 100°C 下乾燥 17 小時，並且在 500°C 下之空氣中煅燒 4 小時。因而製得 280 克具比表面積 80 平方公尺/克之 Nb₂O₅。

圖 1 顯示依此方式製得之 Nb₂O₅ 於 100×放大率下的掃描電子顯微影像。當可清楚地明白，個別粉末顆粒係為不規則狀，並且在某些例子中係呈平板形。

比較例 2

具低比表面積之球形 Nb_2O_5

最初裝填 200 升去離子水，以 7500 升 9%強度之水性 NH_3 溶液連續地沉澱 7490 升水性 H_2NbF_7 溶液(Nb 濃度:80 克/升)。溶液的溫度為約 32°C ，並且將 pH 設定為 7.6 ± 0.4 。強迫使依此方式製得的懸浮液通過壓力努奇(nutsche)濾器，接著以 3%強度水性 NH_3 及接著以去離子水清洗。於 100°C 乾燥箱中乾燥潮濕的氫氧化鈮(V)24 小時。藉著於溫度 400°C 下之空氣中煅燒乾燥的氫氧化鈮(V)2 小時，製得具比表面積 1.6 平方公尺/克之 Nb_2O_5 粉末。

比較例 3

具高比表面積之 Ta_2O_5

伴隨攪拌，將化學計量上過量的去離子水添加於 1000 毫升乙氧化鈮(V)中。透過抽吸式濾器濾出依此方式得到之氫氧化鈮(V)，並且以去離子水清洗。接著，使氫氧化鈮(V)於 75°C 下乾燥 17 小時。可製得 872.1 克具殘餘水含量 9.78%之氫氧化鈮(V)。在 500°C 下之空氣中煅燒 55 克之此材料 2 小時。依此方式製得之 Ta_2O_5 具比表面積為 76 平方公尺/克。

比較例 4

具高比表面積之球形 Ta_2O_5

最初裝填 300 升去離子水，以 5655 升 6%強度之水性 NH_3 溶液連續地沉澱 6360 升水性 H_2TaF_7 溶液(具濃度為約 82 克/升之 Ta)，使得 pH 為 7.6 ± 0.4 。溶液的溫度為約 35°C 。加壓使依此方式製得的懸浮液通過壓力努奇濾器，接著首先以 3%強度水性 NH_3 及接著以去離子水清洗。使潮濕的氫氧化鉭(V)於 100°C 乾燥箱中乾燥 24 小時，接著於溫度 400°C 下之空氣中煅燒 2 小時。依此方式製得之 Ta_2O_5 具比表面積為 1 平方公尺/克。

實施例 1

最初裝填 300 升去離子水，於攪拌反應器中，以 5500 升 6%強度之水性 NH_3 溶液連續地沉澱 3700 升水性 H_2NbF_7 溶液(具 Nb 濃度為 84 克/升)。以體積流量 300 升/小時添加水性 H_2NbF_7 溶液，並且以體積流量 450 升/小時添加 6%強度之水性 NH_3 溶液。將 pH 設定為 7.6 ± 0.4 。溶液的溫度為 56°C 。透過壓力努奇濾器過濾依此方式製得的懸浮液，以 3%強度水性 NH_3 溶液及接著以去離子水清洗。於 100°C 乾燥箱中乾燥潮濕的氫氧化鉭(V)24 小時。於溫度 500°C 下煅燒乾燥的氫氧化鉭(V)2 小時，生成具比表面積 94 平方公尺/克及球形形態之 Nb_2O_5 粉末。

MasterSizer-分析數值[微米]：D10 1.77

D50 17.26

D90 33.27

實施例 2

最初裝填 400 升去離子水，以 4600 升 9%強度之水性 NH_3 溶液連續地沉澱 4662 升水性 H_2NbF_7 溶液(具 Nb 濃度為 81 克/升)。以體積流量 300 升/小時添加水性 H_2NbF_7 溶液，並且以體積流量 300 升/小時添加 9%強度之水性 NH_3 溶液。將 pH 設定為 7.6 ± 0.4 。溶液的溫度為 63°C 。透過壓力努奇濾器過濾依此方式製得的懸浮液，以 3%強度水性 NH_3 溶液及接著以去離子水清洗。於 100°C 乾燥箱中乾燥潮濕的氫氧化鈮(V)24 小時。氫氧化鈮(V)具比表面積 201 平方公尺/克及主要為球形形態。於溫度 500°C 下煅燒 2 小時，生成具比表面積 116 平方公尺/克及球形形態之 Nb_2O_5 粉末。

MasterSizer-分析數值[微米]： D10 2.10

D50 20.21

D90 37.28

圖 2 顯示所製得之 Nb_2O_5 粉末的掃描電子顯微(SEM)影像(100×放大率)。球形形態是相當明顯的。

實施例 3

最初裝填 400 升去離子水，以 10000 升 9%強度之水性 NH_3 溶液連續地沉澱 9020 升水性 H_2NbF_7 溶液(具 Nb 濃度為 80 克/

升)。以體積流量 300 升/小時添加水性 H_2NbF_7 溶液，並且以體積流量 300 升/小時添加 9%強度之水性 NH_3 溶液。將 pH 設定為 7.6 ± 0.4 。溶液的溫度為 69°C 。透過壓力努奇濾器過濾依此方式製得的懸浮液，以 3%強度水性 NH_3 溶液及接著以去離子水清洗。於 100°C 乾燥箱中乾燥潮濕的氫氧化鈮(V)24 小時。於溫度 400°C 下煅燒乾燥的氫氧化鈮(V)2 小時，生成具比表面積 140 平方公尺/克及球形形態之 Nb_2O_5 粉末。

MasterSizer-分析數值[微米]： D10 2.60
D50 20.97
D90 38.12

圖 3 顯示所製得之 Nb_2O_5 粉末的掃描電子顯微(SEM)影像(200×放大率)。球形形態是相當明顯的。

【圖式簡單說明】

圖 1 顯示依此方式製得之 Nb_2O_5 於 100×放大率下的掃描電子顯微影像。

圖 2 顯示所製得之 Nb_2O_5 粉末的掃描電子顯微(SEM)影像(100×放大率)。

圖 3 顯示所製得之 Nb_2O_5 粉末的掃描電子顯微(SEM)影像(200×放大率)。

五、中文發明摘要：

一種製造閥用金屬氧化物粉末，尤其 Nb_2O_5 粉末或 Ta_2O_5 粉末之方法，其係藉著於水存在下連續地使含氟化物之閥用金屬化合物與鹼反應，以及煅燒所形成的產物而進行，該反應係於唯一反應容器中且於溫度至少 45°C 下進行。藉此方法製得之閥用金屬氧化物粉末具球形形態、 D_{50} 值為 10 至 80 微米以及具高 BET 表面積。

六、英文發明摘要：

Process for producing a valve metal oxide powder, in particular an Nb_2O_5 powder or Ta_2O_5 powder, by continuously reacting a fluoride-containing valve metal compound with a base in the presence of water and calcining the product which is formed, the reaction being carried out in only one reaction vessel and at a temperature of at least 45°C . The valve metal oxide powders obtained by this process have a spherical morphology, a D_{50} value of from 10 to 80 μm and a high BET surface area.

圖 1

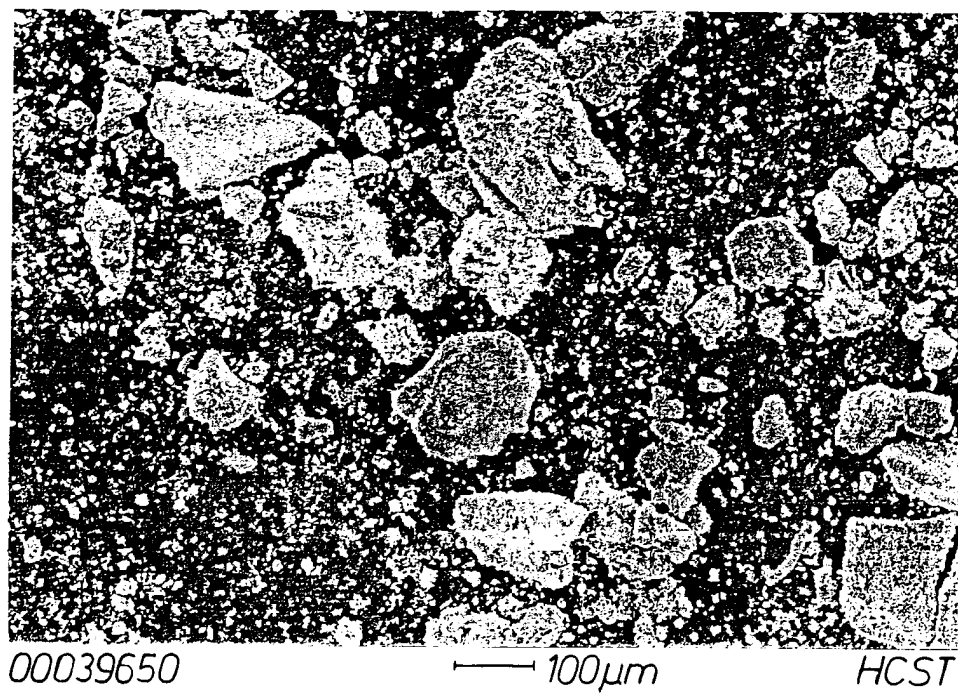


圖 2

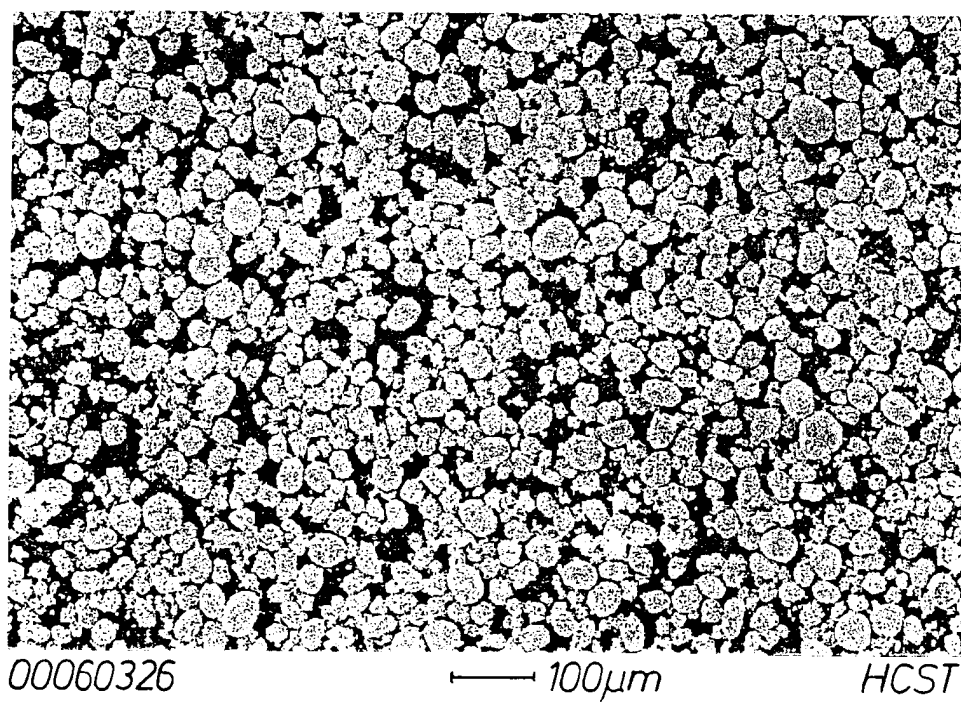
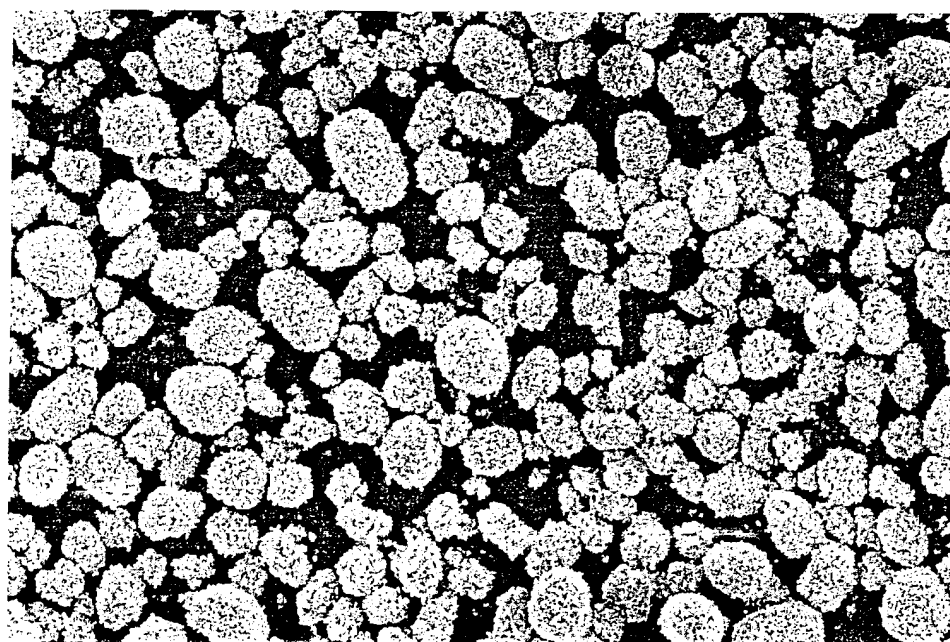


圖 3



00056866

— 50 μ m

HCST

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(2)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

無、

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

無

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號：93127351

※ 申請日期：93. 9. 10

※IPC 分類：C 01G 33/00(2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

閥用金屬氧化物粉末及其製法

VALVE METAL OXIDE POWDERS AND PROCESS FOR PRODUCING THEM

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

H.C.史達克有限公司

H.C. STARCK GMBH

代表人：(中文/英文)

1. 克勞斯維茲/CLAUSWITZ, KAI-UWE

2. 普絲德涵/PRIESTERJAHN, CHRISTINE

住居所或營業所地址：(中文/英文)

德國古斯樂區史力克街 78-91 號

IM SCHLEEKE 78-91, 38642 GOSLAR, GERMANY

國 籍：(中文/英文)

德國/GERMANY

三、發明人：(共 4 人)

姓 名：(中文/英文)

1. 貝卡登/BECK, KARSTEN

2. 賽哈帝/SEYEDA, HADY

3. 利克勞/LERCH, KLAUS

4. 巴比卡/BALAN, BIANCA AGNES

國 籍：(中文/英文)

100年8月4日修正本

專利申請案第 93127351 號
ROC Patent Application No. 93127351
修正之申請專利範圍中文本 - 附件 (二)
Amended Claims in Chinese-Encl. (II)
(民國 100 年 8 月 4 日送呈)
(Submitted on August 4, 2011)

十、申請專利範圍：

1. 一種製造閥用金屬氧化物粉末之方法，其係藉著於水存在下於至少 45°C 的溫度使含氟化物之閥用金屬化合物與鹼反應，以及煅燒所形成的產物而進行，其特徵在於該含氟化物之閥用金屬化合物係用作水溶液，以閥用金屬為基準，其濃度為 0.3 莫耳/升至 1.2 莫耳/升，所用之鹼為係為具氮濃度為 3 至 15% 重量之水性氮溶液，且該反應為連續式進行，含氟化物之閥用金屬化合物的水溶液之體積流量對鹼的水溶液之體積流量的比例為 1:0.9 至 1:2，以閥用金屬計算而得的含氟化物之閥用金屬化合物對鹼的莫耳濃度比例被設定至從 1:5.6 至 1:8.5 的數值，而該反應係於單一反應容器中進行。
2. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其特徵在於含氟化物之閥用金屬化合物係為 H_2NbF_7 或 H_2TaF_7 。
3. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其特徵在於含氟化物之閥用金屬化合物與鹼之反應係於在反應溫度下測得之 pH 7 至 14 下進行。
4. 一種具平均粒徑 D_{50} 為 10 至 80 微米之球形閥用金屬氧化物粉末，該平均粒徑係根據 ASTM B 822 透過 MasterSizer 測得，其特徵在於根據 ASTM D 3663 透過 N_2 三點法測定之 BET 表面積為至少 10 平方公尺/克，且其中該閥用金屬氧化物係為 Nb_2O_5 或 Ta_2O_5 。
5. 一種如申請專利範圍第 4 項之閥用金屬氧化物粉末用於藉由還原作用製造閥用金屬粉末或閥用金屬低氧化物的用途。