(19)国家知识产权局

(12)发明专利申请

(10)申请公布号 CN 116589284 A
(43)申请公布日 2023.08.15

(21)申请号 202310571053.8

(22)申请日 2023.05.20

(71)申请人 西北工业大学
地址 710072 陕西省西安市友谊西路127号

(72)发明人 张青 叶昉 成来飞 周杰 赵凯

(74)专利代理机构 丽水创智果专利代理事务所（普通合伙） 33278
专利代理师 李洁

(51)Int.Cl.
C04B 35/584(2006.01)
C23C 16/34(2006.01)
C04B 35/622(2006.01)
C04B 35/64(2006.01)
C04B 41/87(2006.01)

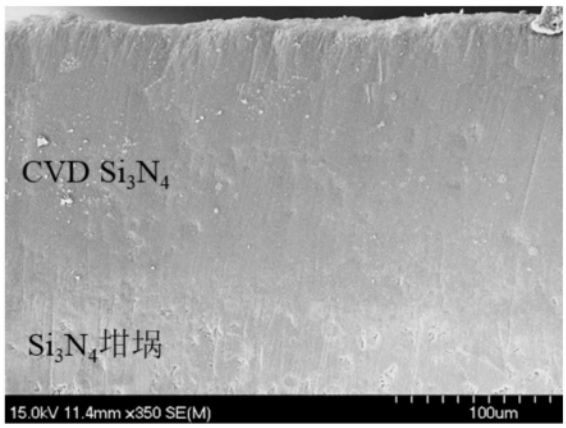
权利要求书1页 说明书10页 附图4页

(54)发明名称

一种高强高纯氮化硅坩埚及其制备方法和应用

(57)摘要

本发明涉及多晶硅铸锭技术领域，具体涉及一种高强高纯氮化硅坩埚及其制备方法和应用。本发明采用气压烧结结合化学气相沉积法，制备一种氮化硅陶瓷基体与Si_3N_4涂层紧密结合的氮化硅坩埚。该氮化硅坩埚具有高强度、耐高温、可保证产物纯净、可长期重复使用的优点，在使用过程中可不再匹配传统石英坩埚，降低生产成本，同时克服了现有技术坩埚的涂层与基体结合性差的问题。



CN 116589284 A

1.一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法,其特征在于,包括以下步骤:

步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备:

S1、将α-Si_3N_4粉、烧结助剂与无水乙醇混合得到浆料,将浆料进行造粒得到粉体;

S2、将步骤S1的粉体采用模压成型结合冷等静压成型方法,制备氮化硅坩埚坯体;

S3、将步骤S2的氮化硅坩埚坯体于氮气气氛中进行致密烧结后,打磨至坩埚表面粗糙度为0.2～0.6mm,得到氮化硅陶瓷基体;

步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备:

以四氯化硅、氨气为反应源,以H_2为载气,以氩气为稀释气体,采用化学气相沉积法在步骤S1的氮化硅陶瓷基体表面制备高纯Si_3N_4涂层,得到高强高纯氮化硅坩埚。

2.根据权利要求1所述的一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法,其特征在于,所述步骤S1中烧结助剂选自Al_2O_3、Y_2O_3中一种或两种的混合。

3.根据权利要求1所述的一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法,其特征在于,所述步骤S1中α-Si_3N_4粉为90-95wt.%、烧结助剂为5-10wt.%,二者的质量百分比之和为100%;所述α-Si_3N_4粉的粒径为0.4～0.8μm。

4.根据权利要求1所述的一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法,其特征在于,所述步骤S1中造粒参数为:设备离心转速为40～80r/min,造粒温度为150～180℃,出料温度为40～80℃。

5.根据权利要求1所述的一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法,其特征在于,所述步骤S2中模压成型结合冷等静压成型方法具体操作为:将步骤S1的粉体倒入模具中,外加载荷50～100MPa形成坩埚坯体,然后将坩埚坯体密封并进行冷等静压成型,冷等静压成型的压力为150～200MPa,得到氮化硅坩埚坯体。

6.根据权利要求1所述的一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法,其特征在于,所述步骤S3中致密烧结的条件为:于温度1500-2000℃条件下,先在压力为1-5MPa的气氛中烧结2-5h,然后在压力为5-10MPa的气氛中烧结1-3h。

7.根据权利要求1所述的一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法,其特征在于,所述步骤2中化学气相沉积法的具体操作为:先在沉积温度为800～1000℃下沉积1～3h,然后在900～1200℃下沉积2～3h。

8.根据权利要求1所述的一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法,其特征在于,所述步骤2中四氯化硅流量为15～60mL/min,氨气流量为20～90mL/min,氢气流量为60～200mL/min,氩气流量为20～300mL/min。

9.一种权利要求1-8任一项所述制备方法制得的高强高纯氮化硅坩埚,其特征在于,所述高强高纯氮化硅坩埚的氮化硅陶瓷基体厚度为3～40mm,所述高纯Si_3N_4涂层的厚度为50～200μm。

10.一种权利要求9所述的一种高强高纯氮化硅坩埚在制备单晶硅生产坩埚中的应用。

一种高强高纯氮化硅坩埚及其制备方法和应用

技术领域

[0001] 本发明涉及多晶硅铸锭技术领域，具体来说是一种高强高纯氮化硅坩埚及其制备方法和应用。

背景技术

[0002] 以太阳能利用为目的的光伏能源具有清洁、环保、可再生等特点，成为国际大力发展的新能源和战略性新兴产业之一。光伏产业的主导产品有晶体硅太阳能电池等，其中单晶硅电池更是凭借比其他晶体硅太阳能电池更高的转换效率和稳定性，占据重要地位。

[0003] 在单晶硅生产中，坩埚是熔硅和晶体生长的关键材料，对单晶硅的生产成本和产品产量、质量都有直接的重要影响，尤其是与单晶硅直接接触的坩埚内壁，其化学组成对所制得的单晶硅纯度影响颇大。传统上一般会采用石英内坩埚或者在氮化硅坩埚内壁再喷涂一层高纯度氮化硅涂层的方式来避免坩埚内杂质带来的纯度影响，但是以上方式仍存在很多的不足，如：熔融石英高温性能不足，易导致坩埚破裂；喷涂涂层与坩埚内壁结合力不足易脱落，需反复喷涂从而增加生产成本等问题。

[0004] 氮化硅陶瓷是一种高温结构特种陶瓷材料，具有强度高、耐高温、抗氧化、抗腐蚀、耐磨损、化学稳定性好、导热系数大和热膨胀系数低等优点，以及与熔融硅不润湿的特性，作为可重复使用的硅晶体冶炼用坩埚材料得到了各国的大力研发。卢建华在“氮化硅坩埚涂层及其制备方法”(CN103183478A)提到采用喷涂或浸涂的方法将氮化硅粉、粘结剂、分散剂和去离子水的混合浆料制备在坩埚表面，然后在惰性气氛下煅烧和退火过程中粉体的收缩将会影响涂层与坩埚基体的结合性以及涂层的致密度，这将严重影响涂层的使用性能。

[0005] 因此，亟需发展一种新型的高纯高强氮化硅坩埚，在提高氮化硅坩埚强韧性以及高温稳定性的同时，提升涂层与坩埚基体的结合性以及涂层的致密度。

发明内容

[0006] 针对上述现有技术存在的不足，本发明提供了一种高强高纯氮化硅坩埚及其制备方法和应用，本发明采用气压烧结(GPS)结合化学气相沉积法(CVD)制备氮化硅坩埚，在提高氮化硅坩埚强韧性的基础上，解决现有氮化硅坩埚涂层与坩埚基体的结合性以及涂层的致密度问题。

[0007] 为实现上述目的，本发明的技术方案如下：

[0008] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括以下步骤：

[0009] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0010] S1、将α-Si_3N_4粉、烧结助剂与无水乙醇混合得到浆料，采用喷雾造粒机将浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过50-70目筛，得到粒径均匀的粉体；

[0011] S2、将步骤S1的粉体采用模压成型结合冷等静压成型方法，制备氮化硅坩埚坯体；

[0012] S3、将步骤S2的氮化硅坩埚坯体于氮气气氛中进行致密烧结，烧结方法为两步法，得到氮化硅陶瓷基体；

[0013] 采用200～800目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的氮化硅陶瓷基体打磨光滑并清洗、烘干，使坩埚表面粗糙度控制在0.2～0.6mm，表面粗糙度指表面粗糙的程度，表面略粗糙有利于氮化硅涂层的结合；

[0014] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备，于步骤S3的氮化硅陶瓷基体表内壁面沉积氮化硅涂层：

[0015] 以四氯化硅、氨气为反应源，以H_2为载气，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)带出$SiCl_4$，以氩气为稀释气体，采用化学气相沉积法在步骤S1的氮化硅陶瓷基体表面制备高纯Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0016] 优选的，所述步骤S1中烧结助剂选自Al_2O_3、Y_2O_3中一种或两种的混合。

[0017] 优选的，所述步骤S1中α-Si_3N_4粉为90-95wt.％、烧结助剂为5-10wt.％，二者的质量百分比之和为100％；所述α-Si_3N_4粉的粒径为0.4～0.8μm。

[0018] 优选的，所述步骤S1中造粒参数为：设备离心转速为40～80r/min，造粒温度为150～180℃，出料温度为40～80℃。

[0019] 优选的，所述步骤S2中模压成型结合冷等静压成型方法具体操作为：将步骤S1的粉体倒入模具中，外加载荷50～100MPa形成具有一定强度的坩埚坯体，然后将坩埚坯体密封并进行冷等静压成型，冷等静压成型的压力为150～200MPa，得到氮化硅坩埚坯体。

[0020] 优选的，所述步骤S3中致密烧结的条件为：于温度1500-2000℃条件下，先在压力为1-5MPa的气氛中烧结2-5h，然后在压力为5-10MPa的气氛中烧结1-3h，最终获得氮化硅陶瓷基体。

[0021] 优选的，所述步骤2中化学气相沉积法的具体操作为：先在沉积温度为800～1000℃下沉积1～3h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在900～1200℃下沉积2～3h，提高氮化硅涂层的厚度至50～200μm。

[0022] 优选的，所述步骤2中四氯化硅流量为15～60mL/min，氨气流量为20～90mL/min，氢气流量为60～200mL/min，氩气流量为20～300mL/min。

[0023] 本发明还保护了上述制备方法制得的高强高纯氮化硅坩埚，所述高强高纯氮化硅坩埚的氮化硅陶瓷基体厚度为3～40mm，所述高纯Si_3N_4涂层的厚度为50～200μm。

[0024] 本发明还保护了高强高纯氮化硅坩埚在制备单晶硅生产坩埚中的应用。

[0025] 与现有技术相比，本发明的有益效果：

[0026] 1、本发明提出一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，通过气压烧结(GPS)结合化学气相沉积法(CVD)，制备一种氮化硅陶瓷基体与Si_3N_4涂层紧密结合的氮化硅坩埚。该氮化硅坩埚具有高强度、耐高温、可保证产物纯净、可长期重复使用的优点，在使用过程中可不再匹配传统石英坩埚，降低生产成本，同时克服了现有技术坩埚的涂层与基体结合性差的问题。

[0027] 2、本发明的技术难点主要是CVD氮化硅涂层与坩埚坯体之间的结合性，通过将烧结氮化硅陶瓷基体的密度、表面粗糙度与CVD Si_3N_4涂层的沉积温度、沉积时间等参数相结合，氮化硅陶瓷基体的密度为3.0-3.2g/cm^3，表面粗糙度为0.2～0.6mm，进而控制涂层的厚度以及涂层与坩埚之间的结合性，获得涂层与基体紧密结合的氮化硅坩埚，且制得的氮化硅涂层致密度高。

附图说明

[0028] 图1为本发明实施例1-9高强高纯氮化硅坩埚的制备流程图；

[0029] 图2为本发明实施例1气压烧结结合化学气相沉积工艺制得的高强高纯氮化硅坩埚的横截面形貌的扫描电镜图；

[0030] 图3为本发明实施例1气压烧结制得的氮化硅陶瓷基体形貌的扫描电镜图；

[0031] 图4为本发明本发明实施例1化学气相沉积工艺后于氮化硅陶瓷基体表面沉积的氮化硅涂层表面形貌的扫描电镜图。

具体实施方式

[0032] 下面对本发明的具体实施方式进行详细描述，但应当理解本发明的保护范围并不受具体实施方式的限制。基于本发明中的实施例，本领域普通技术人员在没有做出创造性劳动的前提下所获得的所有其他实施例，都属于本发明保护的范围。本发明各实施例中所述实验方法，如无特殊说明，均为常规方法。

[0033] 下述实验方法和检测方法，如没有特殊说明，均为常规方法；下述试剂和原料，如没有特殊说明，均为市售。

[0034] 实施例1

[0035] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0036] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0037] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为90wt.％、粒径为0.8μm的α-Si_3N_4粉与5wt.％的Al_2O_3、5wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为2:1；

[0038] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过50目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0039] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为40r/min，造粒温度为180℃，出料温度为40℃；

[0040] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷50MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密封，进行冷等静压成型，所用压力为200MPa，得到坩埚坯体；

[0041] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为1500℃，首先在压力为3MPa的气氛中烧结2h，然后在压力为8MPa的气氛中烧结1h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0042] S15、采用200目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.6mm；

[0043] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0044] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0045] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气

相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为900℃下沉积1h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在900℃下沉积3h，最终制得厚度为100μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0046] 实施例2

[0047] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0048] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0049] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为93wt.％、粒径为0.6μm的α-Si_3N_4粉与2wt.％的Al_2O_3、5wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为100:55；

[0050] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过60目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0051] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为60r/min，造粒温度为160℃，出料温度为60℃；

[0052] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷80MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密封，进行冷等静压成型，所用压力为180MPa，得到坩埚坯体；

[0053] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为1700℃，首先在压力为2MPa的气氛中烧结2.5h，然后在压力为6MPa的气氛中烧结2h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0054] S15、采用300目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.5mm；

[0055] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0056] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0057] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为850℃下沉积2h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在1000℃下沉积2.5h，最终制得厚度为160μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0058] 实施例3

[0059] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0060] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0061] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为95wt.％、粒径为0.4μm的α-Si_3N_4粉与3wt.％的Al_2O_3、2wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为100:60；

[0062] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过

70目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0063] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为80r/min，造粒温度为150℃，出料温度为80℃；

[0064] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷100MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密封，进行冷等静压成型，所用压力为150MPa，得到坩埚坯体；

[0065] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为1800℃，首先在压力为1MPa的气氛中烧结3h，然后在压力为5MPa的气氛中烧结3h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0066] S15、采用400目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.4mm；

[0067] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0068] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0069] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为800℃下沉积3h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在1100℃下沉积2h，最终制得厚度为200μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0070] 实施例4

[0071] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0072] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0073] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为90wt.％、粒径为0.8μm的α-Si_3N_4粉与5wt.％的Al_2O_3、5wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为100:60；

[0074] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过70目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0075] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为80r/min，造粒温度为150℃，出料温度为40℃；

[0076] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷100MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密封，进行冷等静压成型，所用压力为150MPa，得到坩埚坯体；

[0077] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为1800℃，首先在压力为5MPa的气氛中烧结3h，然后在压力为5MPa的气氛中烧结3h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0078] S15、采用200目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.6mm；

[0079] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0080] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0081] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为800℃下沉积3h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在1200℃下沉积2h，最终制得厚度为100μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0082] 实施例5

[0083] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0084] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0085] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为93wt.％、粒径为0.5μm的α-Si_3N_4粉与2wt.％的Al_2O_3、5wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为100:65；

[0086] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过60目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0087] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为50r/min，造粒温度为170℃，出料温度为50℃；

[0088] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷60MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密封，进行冷等静压成型，所用压力为170MPa，得到坩埚坯体；

[0089] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为1900℃，首先在压力为4MPa的气氛中烧结2.5h，然后在压力为7MPa的气氛中烧结2.5h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0090] S15、采用300目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.5mm；

[0091] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0092] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0093] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为900℃下沉积2.5h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在1100℃下沉积2.5h，最终制得厚度为150μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0094] 实施例6

[0095] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0096] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0097] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为95wt.％、粒径为0.4μm的α-Si_3N_4粉与3wt.％的Al_2O_3、2wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为100:70；

[0098] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过50目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0099] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为40r/min，造粒温度为180℃，出料温度为80℃；

[0100] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷50MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密封，进行冷等静压成型，所用压力为200MPa，得到坩埚坯体；

[0101] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为2000℃，首先在压力为2MPa的气氛中烧结2h，然后在压力为10MPa的气氛中烧结2h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0102] S15、采用400目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.4mm；

[0103] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0104] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0105] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为1000℃下沉积2h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在1000℃下沉积3h，最终制得厚度为200μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0106] 实施例7

[0107] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0108] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0109] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为90wt.％、粒径为0.4μm的α-Si_3N_4粉与5wt.％的Al_2O_3、5wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为100:50；

[0110] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过50目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0111] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为80r/min，造粒温度为150℃，出料温度为80℃；

[0112] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷50MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密

封，进行冷等静压成型，所用压力为200MPa，得到坩埚坯体；

[0113] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为1500℃，首先在压力为5MPa的气氛中烧结5h，然后在压力为5MPa的气氛中烧结3h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0114] S15、采用400目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.4mm；

[0115] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0116] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0117] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为900℃下沉积1h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在1200℃下沉积2h，最终制得厚度为50μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0118] 实施例8

[0119] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0120] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0121] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为93wt.％、粒径为0.7μm的α-Si_3N_4粉与2wt.％的Al_2O_3、5wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为100:55；

[0122] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过60目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0123] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为50r/min，造粒温度为170℃，出料温度为70℃；

[0124] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷80MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密封，进行冷等静压成型，所用压力为190MPa，得到坩埚坯体；

[0125] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为1600℃，首先在压力为4MPa的气氛中烧结4h，然后在压力为9MPa的气氛中烧结2.5h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0126] S15、采用600目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.3mm；

[0127] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0128] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0129] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)

为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为850℃下沉积1.5h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在1100℃下沉积2.5h，最终制得厚度为80μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0130] 实施例9

[0131] 一种高强高纯氮化硅坩埚的制备方法，包括如下步骤：

[0132] 步骤1、氮化硅陶瓷基体的制备：

[0133] S11、采用无水乙醇为溶剂，将固相分别为95wt.％、粒径为0.8μm的α-Si_3N_4粉与3wt.％的Al_2O_3、2wt.％的Y_2O_3(烧结助剂)粉均匀混合，制得稳定浆料，α-Si_3N_4粉、Al_2O_3、Y_2O_3的总量与无水乙醇的质量比为100:60；

[0134] S12、采用喷雾造粒机将步骤S11制得的浆料进行造粒，然后将造粒得到的粉体过70目筛，获得粒径均匀的粉体；

[0135] 其中，所述造粒参数为：设备离心转速为40r/min，造粒温度为180℃，出料温度为40℃；

[0136] S13、采用模压成型结合冷等静压成型方法制备氮化硅坩埚坯体，首先将步骤S12的粉体倒入模具中，外加载荷100MPa使其形成具有一定强度的模压坯体，然后将模压坯体密封，进行冷等静压成型，所用压力为150MPa，得到坩埚坯体；

[0137] S14、将步骤S13的坩埚坯体置于气压烧结炉中进行烧结，烧结方法为两步法、烧结气氛选择氮气、温度为1800℃，首先在压力为2MPa的气氛中烧结3h，然后在压力为10MPa的气氛中烧结2h，最终获得氮化硅陶瓷基体；

[0138] S15、采用800目的砂轮对氮化硅陶瓷基体表面进行平整度调整，将烧结致密的坩埚打磨光滑并清洗、烘干，使氮化硅陶瓷基体表面的粗糙度控制在0.2mm；

[0139] 步骤2、高强高纯氮化硅坩埚的制备：

[0140] 于氮化硅陶瓷基体内壁表面沉积氮化硅涂层，具体为：将步骤1的氮化硅陶瓷基体于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，沉积工艺如下：

[0141] 将表面打磨后的步骤1的氮化硅陶瓷基体置于沉积炉中进行氮化硅涂层的沉积，具体沉积工艺如下：以四氯化硅($SiCl_4$)、氨气(NH_3)为反应源，采用鼓泡法、即采用氢气(H_2)为载气带出$SiCl_4$，氩气(Ar)为稀释气体，四氯化硅流量与氨气流量之比为3:4，采用化学气相沉积法在氮化硅坩埚表面制备高纯Si_3N_4涂层，先在沉积温度为800℃下沉积2h，使CVD Si_3N_4能渗透进入氮化硅表面，渗透至烧结工艺造成的未致密孔洞并修饰加工粗糙度，同时与氮化硅坩埚形成良好的结合；然后在1000℃下沉积3h，最终制得厚度为100μm的CVD Si_3N_4涂层，得到高强高纯氮化硅坩埚。

[0142] 本发明实施例1-9均制得具有强度高、耐高温、可保证产物纯净、可长期重复使用的氮化硅坩埚，下面以实施例1的氮化硅坩埚为例，对氮化硅坩埚的性能进行研究，具体研究方法和结果如下所示：

[0143] 图2为氮化硅陶瓷基体表面沉积氮化硅涂层后的横截面形貌，图2的测试方法为扫描电子显微镜，结果表明，基体和涂层均致密，且基体和涂层结合紧密，完全没有分界，保证了涂层与基体的紧密结合。

[0144] 图3为气压烧结制备的氮化硅陶瓷基体形貌,图3的测试方法为扫描电子显微镜,结果表明,本发明采用的气压烧结制备的氮化硅陶瓷基体具有很高的致密化程度。

[0145] 图4为采用化学气相沉积工艺在氮化硅陶瓷基体表面沉积的氮化硅涂层表面形貌,图4的测试方法为扫描电子显微镜,结果表明,CVD工艺制备的氮化硅涂层表面平整且完全致密。

[0146] 显然,本领域的技术人员可以对本发明进行各种改动和变型而不脱离本发明的精神和范围。这样,倘若本发明的这些修改和变型属于本发明权利要求及其等同技术的范围之内,则本发明也意图包含这些改动和变型在内。

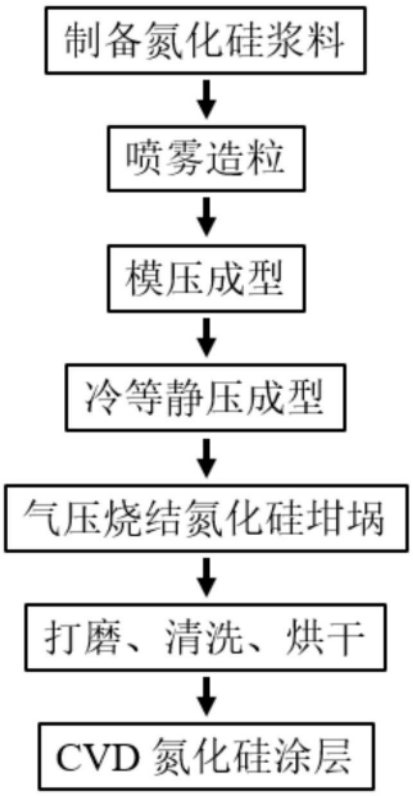


图1

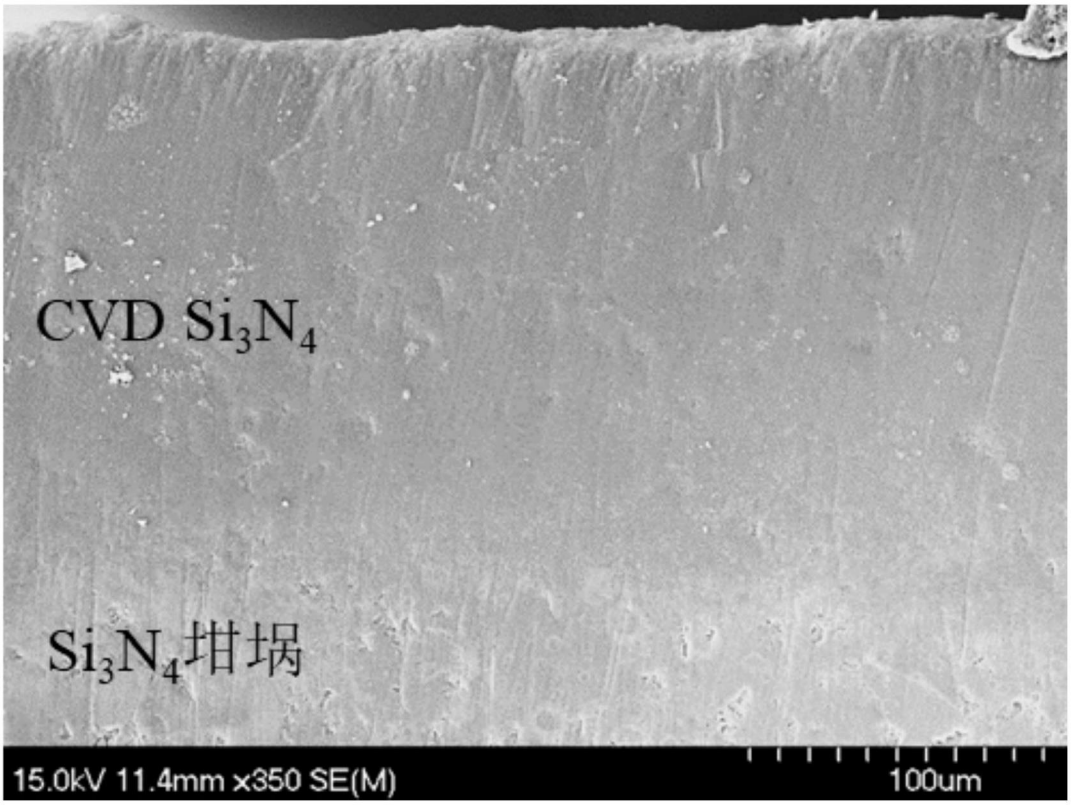


图2

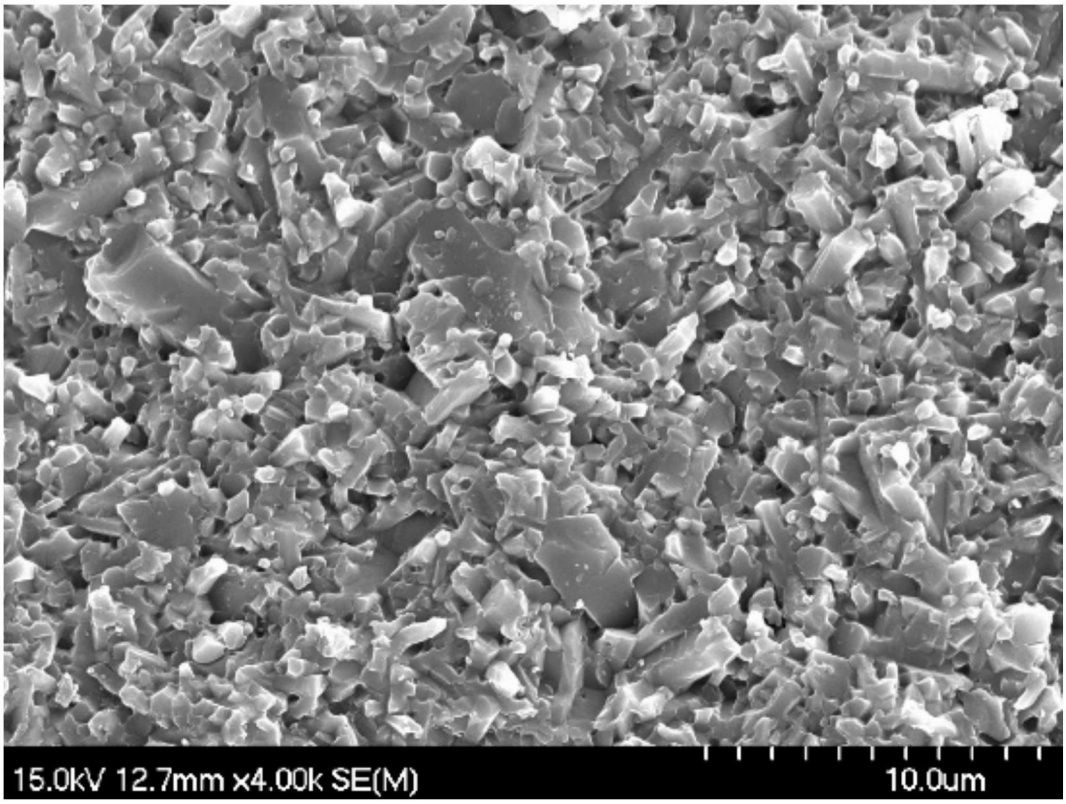


图3

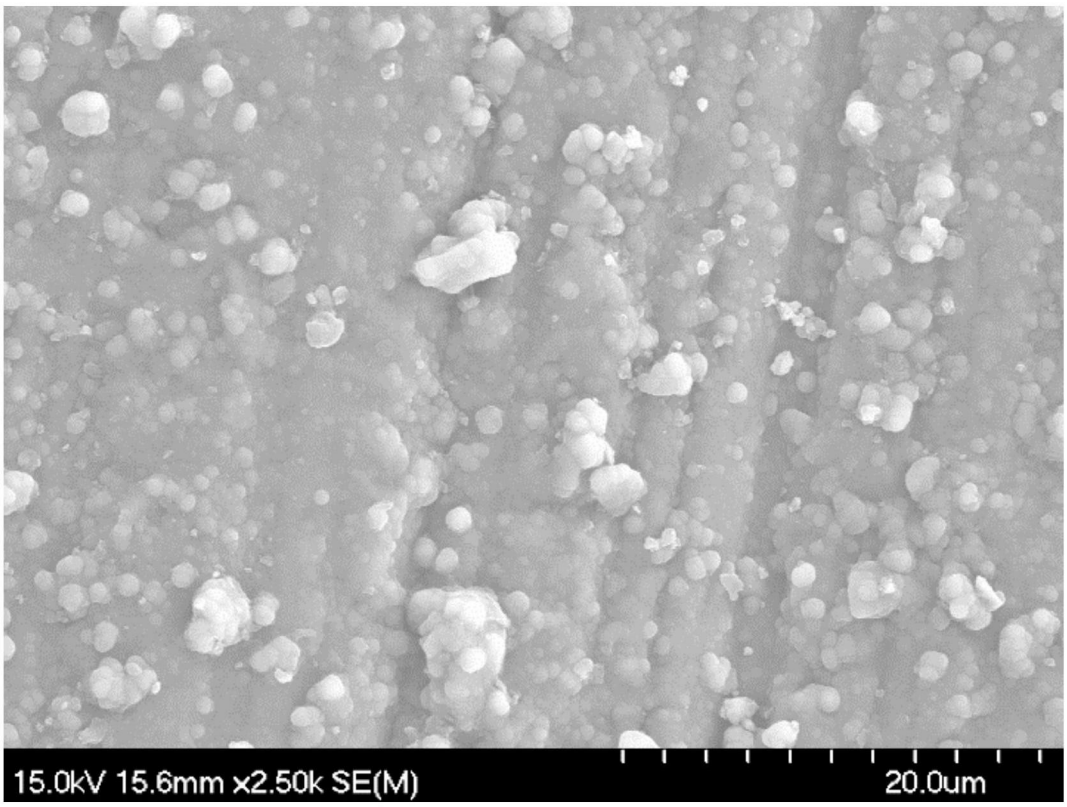


图4