(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 특허공보(B1)

(51) Int. Cl.[6]
C01B 31/34
C01B 31/30
C01B 31/36

(45) 공고일자 1997년06월03일
(11) 공고번호 97-008981

(21) 출원번호	특1990-0015310	(65) 공개번호	특1991-0007801
(22) 출원일자	1990년09월26일	(43) 공개일자	1991년05월30일
(30) 우선권주장	7/416,078 1989년10월02일 미국(US)		

휘립프스 피트로오리암 캄파니 제이 이이 휘립프스
미합중국 오크라호우마주 바아틀즈빌시

(72) 발명자 브루스 윌리엄 거호 울드
미합중국 오크라호우마주 바아틀즈비시 루우트 3함 8190
조오지 프랜시스 슈엣트
미합중국 오크라호우마주 바아틀즈빌시 브룩사이드 파아크웨이 1400
케니스 이이 잉크롯트
미합중국 텍사스주 휴스턴시 라아크휘일드 15802
(74) 대리인 차윤근, 차순영

심사관 : 임창수 (책자공보 제5044호)

(54) 탄화 화합물을 제조하기 위한 방법 및 장치

요약

내용 없음.

대표도

도1

명세서

[발명의 명칭]

탄화 화합물을 제조하기 위한 방법 및 장치

[도면의 간단한 설명]

제1도는 본 발명의 바람직한 실시양태에 따른 반응기의 횡단면도이다.

제2도 및 제3도는 제1도에서 보여진 노즐의 확대된 횡단면도이다.

제4도는 실시예 1에서 생성된 샘플에 대한 X-선 회절 패턴을 보여준다.

제5도는 실시예 1에서 생성된 샘플에 대한 적외선 스펙트럼 패턴을 보여준다.

제6도는 규소-함유 반응물로서 실란을 사용하는 실시예 2에서 생성된 샘플에 대한 X-선 회절 패턴이다.

제7도는 결정질 β-탄화 규소의 순수한 샘플에 의해 생성된 참조 X-선 회전 패턴이다.

제8도는 실시예 VI에서 반응기로부터 직접 수집된 것과 같은 원(原) 생성물의 분말도 분포의 도시이다.

제9도는 실시예 6에서 생성된 정제된 생성물의 분말도 분포의 도시이다. 제10도는 실시예 8에서 생성된 샘플에 대한 NMR 스펙트럼 패턴이다.

* 도면의 주요부분에 대한 부호의 설명

10 : 반응기	12 : 챔버
12a : 반응 존	12b : 연소존
14 : 세로축	16 : 상류 말단
18 : 하류 말단	20 : 경계

22,24,58 : 내화성 관　　26a,26b,26c : 삽입물

28,30,32 : 층　　34,36 : 내화성 실린더

42 : 직물 재료　　44 : 금속판

46,54 : 노즐　　48,56 : 유출구 말단

52 : 내화성 삽입물　　60 : 도관

62 : 부재　　62a,76a : 내부측벽

62b,76b : 외부측벽　　64 : 공간

66,74,76,82 : 관형 부재　　78,80 : 환형 공간

84 : 입구 흐름 통로　　86 : 출구 흐름 통로

68,70,72,79,88 : 화살표

[발명의 상세한 설명]

본 발명은 탄화 규소같은 탄화 생성물을 생성시키기 위한 방법 및 기구에 관한 것이다. 다른 양식에서, 본 발명은 상기 탄화 생성물의 조성물에 관한 것이다.

탄화 규소같은 다양한 탄화물 분말은 열기관, 터보-충전기 로우터 및 열교환기에 적용된 것과 같은 매우 응력이 가해진, 내마모성 세라믹 부품의 이차 가공에서 진보된 세라믹 재료로서 유용한다. 상기 부품을 제조하는 데 사용된 분말은 어격한 분말도(즉, 서브미크론) 및 순서 요구를 충족해야만 한다. 예컨대, 기체성 반응물의 플라스마 및 레이저 가열과 관련된는, 현재 연구중인 새로운 합성 방법은 초미세한, 고순도 탄화물 분말 생성에 효과적이지만, 고에너지를 요구하는 값비싼 장치가 사용된다. 그러므로, 이들 방법들은 경제적인, 대규모 합성을 위해서는 실직적이지 못하다. 더욱 통상적인 방법은 고체 탄소 및 이산화 규소의 혼합물을 전기적으로 가열시키는 것과 관련된다. 기계적 분쇄로 크기를 감소시켜야만 탄화규소의 큰 덩어리가 생성된다.

상기 분쇄는 바람직하지 못한 금속 불순물을 첨가시키고, 상당한 양의 부가적인 에너지를 요한다.

그러므로, 초미세 입자로 특징지워진 매우 순수한 탄화 생성물을 생성시키는데 경제적인 방법과 기구를 제공하는 것이 본 발명의 목적이다.

연소존이 상류 말단으로부터 연소존과 반응 존들 사이의 경계로 확장되고, 반응 존이 경계로부터 하류 말단으로 확장되도록 연소존과 반응 존으로 구성되고, 세로로 분리된 상류 및 하류 말단을 가진 한정된 챔버를 가진 반응기를 제공하고; 반응 존을 향한 방향으로 대개 흐르게 하기 위해, 연소존내에 연료와 상화제의 혼합물로 구성되는 연소성 환儼물에 흐르게 하고; 연소존에서 연소성 혼합물을 연소시켜 뜨거운 연소 생성물을 생성시키고; 뜨거운 연소 생성물이 상기 하류 말단을 향해 반응물을 운반하도록, 존들 사이의 경계에서 적어도 하나의 반응물을 주입(여기서, 반응 존의 적어도 일부의 온도는 적어도 약 1400℃이고, 연소성 혼합물 및 반응물의 조합물에 대한 탄소 대 산소의 원소 몰비는 적어도 약 0.8:1이고, 반응물(들)은 반응 존에서 반응시킬 수 있다)시키고; 이로써, 탄화 화합물로 구성되는 생성물 분말을 반응 존 내에 생성시키는 것으로 구성되는 방법으로 상기 목적은 이해된다.

본 발명의 다른 양상에 따라, 상류 말단 및 하류 말단을 갖는 한정한 챔버를 갖는 반응기; 상류 및 하류 말단 중간 위치에서 챔버와 소통하는 유출구 말단을 갖고, 두 번째 관형 부재의 내부 표면 및 첫 번째 관형 부재의 외부 표면 사이에 일반적으로 환형 공간이 한정되도록 두 번째 관형 부재내에 일반적으로 동축으로 위치된 첫 번째 관형 부재 및 두 번째 관형 부재로 구성되는 첫 번째 노즐; 첫 번째 관형 부재를 챔버로 내보내기 위해 반응기 챔버에서 반응시켜 탄화 생성물을 생성시킬 수 있는 적어도 하나의 반응물을 첫 번째 관형 부재를 통해 통과시키기 위한 수단; 첫 번째 노즐을 내보내고 첫 번째 노즐의 유출구 말단으로부터 흐르는 반응물을 에워싸기 위해 대체로 환형 공간을 통해 가스를 통과시킥 위한 수단; 상류에 매우 인접한 위치에서 챔버와 소통하는 유입구 말단을 갖는 두 번째 노즐; 및 유출물 말단을 챔버로 내보내기 위해 두 번째 노즐을 통해 연소성 혼합물을 통과시키기 위한 수단으로 구성되는 기구가 제공된다.

본 발명의 또 다른 양상에 따라, 탄화 규소로 구성되고, 하기 중량% : 약 30-약 75중량% 양으로의 규소 ; 약 15-약 50중량% 양으로의 탄소 ; 및 약1-약 30중량%양으로의 산소로 특징지워지는, 상기된 반응기(여기서, 반응물은 규소 성분을 포함한다)로부터 직접 수집된 것과 같은 원 생성물이 제공된다. 약 3중량%-약 10중량%의 비교적 높은 산소 함량을 가진 상기 원 생성물은 약 2.8g/cc의 고밀도를 가진 세라믹 부품으로 소결될 수 있다. 후속 처리에 의한 원 생성물의 정제는 상당히 순수한 탄화 규소 생성물을 생성시킨다. 본 발명에 따른 생성물은 상세한 설명란에서 더 상세히 논의된 바와 같이, 매우 낮은 수준의 불순물을 함유하는 초미세 입자로 구성된다.

본 발명의 방법 및 기구는 열원으로서 값싼 연소성 연료의 사용을 요구하고, 반응기 구성을 위해 최소 투자를 요한다는 점에서 경제적이다. 그러므로, 본 발명은 양질 탄화 생성물의 대규모 합성에 특히 꽤 적합하다. 본 발명의 바람직한 실시양태는 도면과 관련하여 이제 기술된다.

제1도에서, 각각, 세로축(14) 및 세로로 분리된 상류 및 하류 말단(16) 및 (18)을 갖는 한정된 챔버(12)를 갖는 반응기(12)의 횡단면도가 보여진다. 챔버(12)는, 연소존(12a)이 상류 말단(16)으로부터 존 사이의 가상적인 경계(20)로 확장되고, 반응 존(12b)이 경계(20)로부터 하류 말단(18)으로 확장되도록 위치된 연소 존(12a) 및 반응 존(12b)를 포함한다.

챔버(12)는 내화성 관(22) 및 (24)로 한정되고, 또한 삽입물(26a),(26b) 및 (26c)로 한정된다. 상기 관 및 삽입물은 오하이오주 솔론의 Zircoa Products로부터 통상적으로 구입가능한 지르코니아 같은,

적어도 2000℃에 저항하는 내화 재료로 바람직하게 구성된다.

보여지듯이, 층을 수측 및 확장시키는, Zircar Producra of Floeida, NY로부터 구입가능한, 지르코니아 분말 단열재로 바람직하게 구성되는 층(28); Carborundum of Niagara Falls, NY로부터 상표 Fiberfrax® 하에 통상적으로 구입가능한, 알루미나-실리카 블랭켓 단열재로 바람직하게 구성되는 층(30); 및 츨(30)과 동일한 조성물인 층(32)를 포함하는, 대개 원형이고 관(22) 및 (24)로 둘러싸인 여러 부가적인 동축으로 위치된 내화성 재료의 충돌이 제공된다. 내화성 실린더(34), 바람직하게 Zircar Products df Florida, NY로부터 구입가능한 저밀도 단열 알루미나는 층(28) 및 (30)을 분리시키도록 예증되고, 가장 바람직하게 스테인레스강으로 구성된 금속 실린더(36)은 층(30) 및 (32)를 분리한다. 실린더(34) 및 (36)은 반응기에 대한 구조용 지지재를 제공하는 것을 돕는다.

가장 바깥쪽의 내화성 층(32)의 외부 표면 주위를 둘러싸는 섬유 유리같은 직물 재료(42)에 의해 그 자리에 유지된다. 다양한 층의 바닥 말단은 금속판(44)에 의해 지지된다. 반응기는 작동의 편의를 위해 보여진 바와 같이 바람직하게 수직으로 배향된다.

임의의 내향성 재료가 깨지거나 쪼개진다면, 다양한 층 및 관이 수직으로 위치되는한 적소에 머무는 경향이 있다. 그러므로, 상기 구조적 결점에도 불구하고 종종 작동은 계속될 수 있다. 다른 반응기 배항은 본 발명의 범위내이다.

노즐(46)은 연료 및 산화제 원에 연결되고, 챔버(12)의 상류 말단(16)에 매우 인접하게 위치한 챔버(12)의 연소존(12a)와 소통하는 유출구 말단(48)을 가진다. 보여지듯이, 노즐(46)은 상류 말단(16) 근처에 위치한 내화성 삽입물(52)에 의해 둘러싸인다. 노즐(54)은 이후에 상세히 논의되듯이, 반응물 원에 연결되고, 다양한 내화성 층을 통해 상류 및 하류 말단(16) 및 (18)의 중간인 경계(2)에서 챔버(12)와 소통하는 유출구 말단(56)으로 확장된다. 노즐(54)은 내화성 관(58)에 의해 둘러싸인다.

서로에 대한 노즐의 적절한 위치 결정은 작동 효율 및 생성물의 질을 최적화시키는데 중요한 고려가 된다. 예컨대, 유리 산소 실질적으로 모두가 연료와 반응하여 연소 생성물을 형성시키기에 충분한 하류에, 노즐(54)을 위치시키는 것이 바람직하다. 노즐의 상기 위치 결정은, 장치의 작동와 관련해 더 논의되었듯이, 경계(20)에 실질적으로 유리 산소(유리 기체 상태로의 0_2, 임의 다른 성분과 결합되지 않음)가 없어서, 반응물중 하나의 바람직하지 못한 산화가 피해짐을 의미한다. 노즐(46)로부터 흐르는 가스상 제트 펌프 효과를 피하기 위해 노즐(46)으로부터 충분히 하류에 노즐(54)을 위치시키는 것이 보다 더 바람직하다. 상기 효과는 의도된 하류 흐름보다 오히려 상류에 반응물을 당기는 경향이 있다. 그러나, 상기 고려 이외에, 노즐(54)은 노출된 반응물의 온도가 탄화 생성물 형성에 도움이 되도록 충분히 상류에 위치해야만 한다.

챔버(12)의 하류 말단(18)과 소통시키기 위해 한 말단에서 반응기(10)에 연결된 도관(60)이 제1도에 또한 보여진다. 이후에 더 논의되듯이, 도관(60)은 그를 통해 탄화 생성물 분말을 받고나서 적절한 수집기로 통과시킨다. 예증된 실시양태에서 도관(60)은 생성물이 수집기로 운반되도록 작용할 뿐 아니라 열교환기로서도 작용한다. 도관(60)의 외부는 자연 대류 및 복사 둘다를 거쳐 열을 이동시키는 주변 공기와 같은 냉각 수단으로 노출된다. 상기 열이동은 도관(60)을 통해 흐름에 따라 생성물 분말을 냉각시키고, 이는 예컨대, 원하지 않는 산화물을 형성시키는 탄화 생성물의 산화가 관련되는 바람직하지 못한 반응을 방지하는데 매우 바람직하다. 이외에, 생성물 분말을 상기 냉각은 수집기에 대한 손상이 생성물을 과도하게 뜨겁게 하는 것을 방지하는데 바람직하다. 예컨대, 직물 필터 백이 수집기로서 사용되는 경우, 도관(60)은 생성물 분말이 수집의 수집기는 냉각을 덜 요구한다. 원한다면, 냉각 효과는 그를 통해 흐르는 냉각액 유체를 갖는 냉각 코일 또는 자켓으로 도관(60)을 둘러싸 더 향상시킬 수 있다.

도관(60)을 위한 재료에 대해, 임의 바람직하지 못한 금속 오염물이 생성물에 첨가되지 않을 비-금속성 재료가 사용되는 것이 바람직하다. 예컨대, 바람직한 생성물이 탄화규소라면, 부가적인 오염물이 생성물 스트림에 근본적으로 들어가지 않을 정도로 규소-산소 결합에 의해 특징지워진 분자구소가 이미 반응기 생성물에 존재하기 때문에, 석영(이산화규소)이 바람직하다. 석영은 또한, 그의 높은 복사율 및 탁월한 내열충격성 때문에 특히 바람직한 재료이다. 그러나, 금속을 포함하는 다른 열교환 재료로 본 발명 특정 양상의 범위내이다.

수집기는 생성물 분말 수집의 임의 적절한 수단일 수 있다. 상기한 바와 같이, 한 개의 적절한 수집기는 도관(60)의 하류 말단에 연결된 직물 필터 백으로 구성된다. 다른 적절한 수집기는 금속 충전제, 정전 집진기 및 시클론 분리기를 포함한다. 물론, 사용된 수집기의 형에는 상관없이,
차압(差壓)은 수집기를 가로질러 도관(60)을 통해 수집기로 생성물 분말을 끌어들이는 적절한 펌프에 의해 바람직하게 제공되어야만 한다.

제2도에서, 유출구 말단(48)을 갖는 노즐(46) 일부의 횡단면도가 보여진다. 노즐(46)은 내부 측벽(62a) 및 외부 측벽(62b)를 갖는, 스테인레스강 같은 금속으로 바람직하게 구성된 관형 부재(62)로 구성된다. 상기 측벽은 물 또는 에틸렌 글리콜 또는 그의 종합물 같은 냉각액 유체 원에 연결된, 그들 사이에 대개 환형 공갖(64)으로 한정되고, 이는 또한, 원한다면, 부식 저해제같은 미량의 첨가제를 포함할 수 있다. 관형 부재(66)는 냉각액 유체를 위한 입구 및 출구통로로 공간을 대개 나누기 위해 환형 공간(64)내에 위치한다. 보여지듯이, 냉각액 유체는 (68)에서 지시했듯이, 노즐(46)의 선단을 향해 흐르고, (70)에서 지시했듯이 반대방향으로 선단으로부터 떨어져 흐른다. 원한다면, 냉각액 유체 흐름 방향은 반대가 될 수 있다. 공간(64)을 통한 냉각액 유체 흐름은 금속 관형 부재의 용융 방지를 돕고, 또한, 연로/산화제 혼합물의 자연 발화온도 이하로 노즐(46) 내부를 유지시켜 버닝 백(역화)으로부터 노즐(46)으로의 화염 방지를 돕는다. 노즐(46)의 내부는, 연료/산화제 혼합물의 흐름이 (72)에서 지시되었듯이 노즐(46)을 통해 확실히 되도록 연료 및 산화제 원에 연결된다.

제3도에서, 유출구 말단(56)을 갖는 노즐(54)의 횡단면도가 보여진다. 노즐(54)은 노즐(46)에 대해 사용된 것과 동일하거나 유사한 금속 재료로 바람직하게 구성되고, 관형 부재(74) 및(76)을 포함한다. 보여지듯이, 관형 부재(76)는, 대개 환형 공간(78)이 부재(76)의 내부표면 및 부재(74)의 외부

표면 사이에 한정되도록 관형 부재(76)내에 대개 동축으로 위치된다. 관형 부재(74) 내부는 반응물 원에 결합되어 (79)에서 지시되었듯이, 그를 통해 반응물 원에 결합되어 (79)에서 지시되었듯이, 그를 통해 반응물이 흐르도록 한다. 관형 부재(76)는 대개, 제2도에서 부재(62)와 동일한 다지인이고, 개별적인 내부 및 외부 측벽(76a) 및 (76b)를 포함하고, 그들 사이에 대해 환형 공간(80)을 입구 및 출구 통로로 나누기 위해 상기 환형 공간(80)내에 위치된다. 공간(80)은 개별적인 입구 및 출구 흐름 통로(84) 및 (86)을 확실히하기 위해 냉각액 유체 원에 연결된다. 원한다면, 냉각액 유체 흐름의 역방향도 적용될 수 있다. 냉각액 유체 흐름은 금속 관형 부재의 용융 방지를 도울 뿐 아니라, 탄화물 형성에 도움이 되는 제한 온도 이하로 노즐의 온도를 유지시켜 노즐(54)내 탄화물 침착물 형성 방지를 돕는다. 이는 노즐 표면으로부터 주기적으로 탄화물 침착물을 깨끗이 할 필요를 없앤다.

환형 공간(78)은 (88)에서 지시되었듯이, 유출구 말단(56) 방향으로, 환형 공간(78)을 통한 퍼어지 가스의 흐름을 확실히 하기 위해 퍼어지 가스 원에 연결된다. 그러므로, 퍼아지가스의 상기 흐름은, 그들이 노즐을 나감에 따라 반응물을 둘러싸도록 하기 위해 대개 환형 스트림으로 유출구 말단956)을 나간다. 상기 환형 가스 스트림은, 그들이 노즐(54)로부터 나간 후 곧, 챔버(12)(제1도 참고)내 뜨거운 연소 가스의 반응물과의 접촉을 방지하여 노즐(54)의 선단상 탄화물 침착물 형성을 막기 위해, 반응물 주위에 외장으로 형성한다. 상기 침착물은 방지되지 않는다면, 결국은, 노즐(54)로부터의 반응물 흐름이 봉쇄되고, 이어 반응기 운전정지가 야기될 수 있다. 물론, 단지 몇 천분의 1초 후에 퍼어지 가스의 단열성 외장이 분산되지만, 이는, 노즐 선단으로부터 반응물이 멀어져 바람직하지 못한 침착물의 형성을 방지하기에는 충분한 시간이다. 퍼어지 가스의 선택은 결정적이지 않고, 예컨대, 불활성 가스(즉, 헬륨 또는 아르곤), 반응기로부터 배출된 것과 같은 냉각 폐가스 또는 탄화물 형성을 위해 탄소를 반응성 스트림에 제공할 수 있는 반응성 탄소-함유 가스(즉, 탄화수소)일 수 있다. 탄소-함유 탄화수소가 반응성 스트림에 제공할 수 있는 반응성 탄소-함유 가스(즉, 탄화수소)일 수 있다. 탄소-함유 탄화수소가 퍼어지 가스로서 사용된다면, 노즐(54)의 선단상에 임의 바람직하지 못한 탄소 침착물을 야기시키기에 충분히 빨리 분해되지는 않을 것이다.

다양한 가스 흐름은 바람직하게 확실시되고, 도면으로 보여지지 않은 통상적인 장치에 의해 조절된다. 가스는 예컨대, 가입된 가스 비틀로 제공될 수 있다. 가스는 가압된 용기로부터, 오리피스의 크기라 옴 속의 가스를 얻을 정도인 오리피스 판을 통해 통과될 수 있다. 상기 음속은 압력 방해가 상류로 이동하는 것을 막아서, 반응기 근처 하류에서 무슨 일이 발생하든지 가스의 바람직한 유량에는 영향을 미치지 않을 것이다. 가스의 유량을 제어하기 위해 압력 조정기가 사용될 수 있다.

본 발명의 다른 양상에 따라, 상기된 기구를 사용하는 탄화 화합물 제조 방법이 제공된다. 본 방법의 바람직한 실시양태를 기술하는데 도면이 참고가 될 것이다.

청구범위와 여기에서 사용된 탄화 화합물은 첫 번째 원소 성분 및 두 번째, 탄소 성분의 화합물로서 정의된다. 일반적으로, 탄소 화합물은 두 개의 반응물을 반응시켜 예층된 실시양태에 따라 생성시킨다. 첫 번째 반응물은 첫 번째 성분을 포함하고, 반면에 두 번째 반응물은 두 번째, 탄소 성분을 포함한다.

본 발명의 특정한 광범위한 양상에 따라, 첫 번째 반응물에 포함된 첫 번째 성분은 탄화 화합물을 형성시키기 위해 탄소와 결합시킬 수 있는 임의 원소일 수 있다. 상기 금속의 할로겐화물이 특히 첫 번째 성분은 텅스텐, 크롬, 티타늄, 지르코늄, 몰리브덴 또는 철같은 금속일 수 있다. 상기 금속의 할로겐화물이 특히 첫 번째 반응물로서 적합하다. 또는, 첫 번째 성분은 붕소 또는 규소같은 비금속일 수 있다. 앞서 언급했듯이, 탄화 규소는 매우 유용한 탄화 화합물이다. 탁원한 기계적 강도와 내열성을 갖는 탄화 규소 분말로부터 세라믹 부품을 만들 수 있다. 그러므로, 첫 번째 성분으로서 규소를 갖는 반응물은 본 발명과 함께 특히 관심을 끈다.

규소의 화합물들이 바람직한 규소-함유 반응물은 실란(SiH_4) 및 치환 실란을 포함한다. 첨부된 청구범위와 여기에 사용되었듯이, 치환 실란은 대개, 일반식 SiABCD 표현될 수 있고, 식에서, A,B,C 및 D중 적어도 하나가 수소가 아닌 한 A,B,C 및 D 각각은 임의 원소 또는 원소의 조합일 수 있고, A,B,C 및 D는 동일하거나 다를 수 있다. 예컨대, A,B,C 및 D중 임의의 하나는 수소, 할로겐, 산소-함유기(즉, $OSi(CH_3)_3$, 질소-함유기($NHSi(CH_3)_3$, 알킬기, 아릴기, 실릴기 또는 다수의 규소 원자 함유기로부터 선택될 수 있다. 상기 치환 실란의 예는 : 알킬기란 예컨대, 메틸실란($(CH_3)SiH_3$), 디메틸실란($(CH_3)_3SiH$) 및 테트라메틸실란($Si(CH_3)_4$) ; 할로겐화 실란 예컨대, 디클로실란(H_2SiCl_2) ; 실록산 예컨대, 핵사메틸디실록산($(CH_3)_3SiOSi(CH_3)_3$) ; 실라잔 예컨대, 핵사메틸디실라잔 ($(CH_3)_3SiNHSi(CH_3)_3$) ; 및 할로겐화규소 예컨대, 사염화규소($SiCl_4$)을 포함한다. 시클릭 및 중합체 규소 화합물도 또한 본 발명의 범위 내이다. 원한다면, 임의의 전술한 규소-함유 화합물의 혼합물이 사용될 수 있다. 실란은 생성물의 질 관점에서 현재 바람직한 규소-함유 반응물이다.

두 번째, 탄소-함유 반응물로 바람직하게, 알콜 또는 탄화수소 같은 C_1-C_9 탄소 화합물이다. 적절한 알콜은 에탄올 및 프로판올을 포함한다. 탄화수소가 현재 가장 바람직하고, 예로 하기 군으로부터 선택될 수 있다 : 메탄, 에탄, 프로판, 부탄, 펜탄, 헥산, 헵탄, 옥탄, 노난, 에틸렌, 프로필렌, 아세틸렌, 벤젠, 톨루엔, 시클로프로판, 시클로부탄, 시클로펜탄, 시클로헥산 및 그의 혼합물. 비록 상기 C_1-C_9 탄소 화합물이 바람직할지라도, 탄화물 생성물을 형성시키기 위해 첫 번째 반응물과 반응시킬 수 있는 임의 탄소-함유 생성물은 본 발명 특정 양상의 범위내이다.

노즐(46)을 통해 주입된 연료는 바람직하게, 예컨대, 에틸렌, 프로필렌, 부텐, 프로파디엔, 부타디엔, 아세틸렌, 프로핀, 부틴 및 그의 혼합물 같은 불포화 탄화수소(탄소 원자 사이에 적어도 하나의 이중 또는 삼중 결합을 갖는)이고, 탄화 수소 두 번째 반응물과 동일하거나 다를 수 있다. 탄화수소 연료의 다른 바람직한 기는 시클로프로판, 시클로부탄 및 그의 혼합물 같은 시클릭 탄화수소이다. 이후 논의된, 바람직한 온도 조건 및 탄소 대 산소비가 반응기에 형성되는 한 본 발명의 특정 양상의 범위내에서 순수한 탄소로 실질적으로 구성되는 고체 연료와 같은 다른 형태의 연료 및 연료 블

렌드가 사용될 수 있다.

사용된 산화제는 연료로부터 전자를 받아들일 수 있어야만 하고, 바람직하게 산소-함유 가스, 가장 바람직하게 순수한 산소이다. 공기와 같이, 단일 성분으로서 산소를 포함하는 가스성 혼합물은 본 발명의 범위내이다.

예증된 기구를 작동시키기 위한 바람직한 방법에 따라, 냉각액 유체의 흐름은 노즐(46) 및 (54)에 관해 출발하고 나서 반응기를 표준 작동 온도로 점점 가열시킨다. 이는 다양한 내화 재료에 대한 열 충격 및 가능한 파손이 피해지도록 행해진다. 상기 예비가열 단계를 위한 한가지 방법은 내화성층의 전기 로드 가열기(보여지지 않음)로의 초기 전기 가열 및 챔버(12)의 챔버(12)로 삽입된 코일 와이어 전기 가열기(보여지지 않음)로의 가열 후, 연소존(12a)내 연소 화염의 확립과 관련된다.

임의 경우에, 연소 화염은 노즐(46)을 통한 가스성 연료 흐름의 개시로 연소존(12a)내에 확실시된다. 반응기가 전기적으로 예비 가열되었다면, 연료는, 챔버(12)의 하류 말단(18)에서 주변 공기와의 반응으로 자발적으로 화염을 확립해야만 한다. 연소 화염이 형성되지 않는다면, 연료는 적절한 점화 장치로 점화될 수 있다. 화염이 생긴 후, 공기의 흐름은, 연료/공기 혼합물을 생성시키기 위해 노즐(46)을 통해 개시된다. 이는 화염이 상류로 전해져서, 화염 스스로가 연소존(12a)내에 생기도록 한다. 상기 방식으로의 화염 증식은, 적절한 안정 예방책이 취해지도록 방법을 수행하는 오퍼레이터에게 위험할 수 있다. 반응기는 통상적으로, 예결된 기간 대개 1/2시간-1시간 동안 상기 연료/공기 혼합물로 작동된다. 산화제로서 공기로의 반응기 작동은 반응기를 점차로 가열시키기 위한 반응기의 예비 개시의 일부이다.

순수 산소의 흐름은 이제 노즐(46)을 통해 개시되어 공기를 대신한다. 연료/산소 연소성 혼합물이 얻어질때까지 상기 산소의 흐름은 점차로 증가되고, 공기의 흐름은 점차로 감소된다. 화염이 노즐(46)로 들어가도록 하기 위해 상류로 역화시키지 않고, 잠재적으로 위험한 조건을 야기시키지 않도록 확인하기 위해, 하류 /말단(18)을 통해 연소 화염을 가시적으로 모니터해야만 한다. 노즐(46)을 나오는 충분하게 높은 속도의 연료 및 산소를 제공하여 역화를 방지할 수 있다.

연료/산소 화합물의 흐름은(89)에서 지시된 바와 같이 축(14)에 대개 평행한 방향으로 그렇게 제공되고, 연료 및 산소 유량은 탄화물 생성을 위한 제조에서 비교적 연료가 풍부하도록 맞춰진다. 연소/산소 혼합물에 대한 탄소 대 산소의 원소 몰비는 바람직하게 적어도 약 0.7:1이고, 보다 바람직하게 약0.8-1-약 1.2:1이고, 가장 바람직하게 약0.9:1-약 1.1:1이다. 여기서 사용된 바와 같이, 탄소 대 산소의 원소 몰비는 탄소 원자 대 산소 원자의 몰비를 의미한다. 연소성 혼합물 및 연소존(12a) 내 그로부터 형성된 뜨거운 연소 생성물 잔류 시간은 통상적으로 약5-약 20milliseconds이고, 이는 경계(20)에 도달하기 전에 산소 모두가 실질적으로 소비되기에 충분한 시간이다. 앞서 논의되었듯이, 탄화물보다 오히려 원치 않는 산화물의 생성을 피하는 것이 바람직하다. 연소존(12a)내 온도 조건은 통상적으로 약1700℃-약2000℃이다.

실직적으로 가스성 반응물은, 연료의 연소로부터 형성된 뜨거운 연소 생성물이 하류 말단(18)을 향해 반응물을 운반하도록, 챔버 축(14)에 대해 직각 방향으로, (90)에서 지시했듯이 경계(20)에서 챔버(12)로 이제 주입된다.

예시된 실싱양태에서 첫 번째 및 두 번째 반응물은 예비혼합되어 통상적으로 약 1:1-약 1:4인 반응물내 규소 대 탄소의 바람직한 몰비를 제공하고, 챔버(12)로 유출구 말단(56)을 나가도록 하기 위해 노즐(54)을 통해 혼합물로 통과된다. 사용된 첫 번째 반응물이 대개 액체라면, 상기 첫 번째 반응물은 온도제어된 버블러에 놓이고, 그를 통한 퍼어지 가스의 통과로 가장 편리하게 증기 형태로 놓인다. 노즐(54)을 통해 흐르는 냉각액 유체의 온도는 필요한 정도로 증가되어 노즐(54)를 통해 통과함에 따라 첫 번째 반응이 축합되는 것을 막도록 돕는다.

유량은, 반응물 및 연료/산소 혼합물의 조합에 대한 탄소 대 산소의 원소 몰비가 적어도 약 0.8:1이지만, 바람직하게 약0.9:1-약 1.5:1이고, 가장 바람직하게 약1:1-약1.3:1이도록 조절된다. 반응 존(12b)에서 일어나는 반응이 다양하고, 완전하게 이해되지 않는다 할지라도, 상기 인용된 탄소 대 산소비가 이산화탄소 및 물같은 바람직하지 못한 산화 종의 생성을 최소화시키고, 탄화물의 생성에 유리한 수소 및 일산화탄소 같은 가스를 감소시키는 부분압을 생성시킨다고 여겨진다. 앞서 논의된 연료/산소 혼합물에 대한 바람직한 산소비에 다소 의존하고, 탄화물 형성에 도움이 되는 온도는 앞서 논의된 탄소 대 산소비의 사용으로 얻어질 수 있다.

원한다면, 본 발명의 범위 내에서, 반응 존(12b)으로부터 수집된 생성물 내 붕소를 제공할 붕소-함유 화합물인 반응물과 혼합물로 챔버(12)로 주입시킨다. 적절한 붕소-함유 화합물은 디보란(B_2H_6)같은 보란, 다른 붕화수소 및 붕소 알킬을 포함한다. 실시예에서 보다 상세히 논의되듯이, 붕소는 소결 보조제이다.

반응 존(12b) 적어도 일부에 대한 온도 조건은 적어도 약 1400℃, 바람직하게 약 1400℃-약 1700℃, 가장 바람직하게 약 1500℃-약 1600℃의 범위이다. 이들 범위의 상부 끝에서의 온도가 바람직하다면, 바람직한 연료는 아세틸렌 또는 아세틸렌과 에틸렌의 혼합물이다. 예컨대, 첫 번째 반응물이 다클로로디메틸실린같은 염화 실란인 경우가 특히 바람직하고, 이는 탄화규소 및 다른 생성물을 형성시키는 바람직한 반응 속도를 얻기 위해 약간의 다른 반응물보다 더 높은 온도를 요한다. 반응기내 온도 조건은 내화층중 하나에 위치한 열전쌍(보여지지 않음)으로 가장 편리하게 모니터링 될 수 있다. 열전쌍에 의해 검출된 온도는 반응기내 실제 온도 조건과 관련될 수 있다. 물론, 열전쌍은 챔버(12)에 직접 위치될 수 있지만, 이는 챔버(12)내 고온에서 기인하는 질 저하의 다른 원인인 백금 및/또는 로듐같은 값비싼 재료의 사용을 요한다.

반응 존(12b)내 압력 조건은 바람직하게 대기압 또는 그 근처이다. 다른 작동 온도는 본 발명의 범위내이다.

반응 존(12b)에서, 생성물 분말은 이후에 또한 논의된 것과 같은 바람직한 탄화 화합물 및 다른 성

분을 포함하는 반응물로부터 형성된다. 생성물 분말은 하류 말단(18)을 통해 반응기를 나가고, 도관(60)으로 보내어져 도관(60)을 통해 수집기로 통과된다. 바람직한 양의 생성물 분말이 수집된 후, 산화제와 같은 공기로 먼저 스위칭되어 반응기가 폐쇄되고 나서, 점차로 연료/산화제 흐름 속도가 감소되어 반응기가 점차로 냉각기를 작동시키는 것이 때때로 바람직하다. 폐쇄시킨 후, 반응기는 여로 시간동안 통상적으로 냉각되고 나서, 냉각액 유체의 노즐로의 공급은 종결된다.

본 발명과 거기에 첨부된 청구범위에 따라 생성된 생성물의 하기 설명에서 조성물의 성분에 사용된 것과 같은 용어 중량%는 조성물 총 중량을 기준으로 한다.

원 분말로서 이후에 인용된, 반응기로부터 직접 수집된 것과 같은 생성물 분말은 대개 외관이 검고, 첫 번째 원소 성분으로서 규소의 경우에 탄화 규소, 탄화 수소에서의 탄소 및 규소 이외의 탄소 및 규소 및 산소를 포함한다. 상기 원 생성물 분말은 하기 중량%에 의해 특징지워진다 : 약 30중량%-약 75중량%, 바람직하게 약 50중량%-약 70중량% 및 가장 바람직하게 약 55중량%-약 70중량%로의 규소 ; 약 15중량%-약50중량%, 바람직하게 약 20중량%-약 45중량% 및 가장 바람직하게 약 30중량%-약 40중량%로의 탄소 ; 약 1중량%-약 30중량%, 바람직하게 약 1중량%-약 20중량% 및 가장 바람직하게 약 1중량%-약 10중량%로의 산소, 수소도 또한 원 생성물로 소량 존재할 수 있지만, 약 0중량%-약 1중량%의 검출 가능한 양으로 존재한다. 하기 실시예에서 더 논의 되듯이, NMR 분석은 또한, 원 생성물을 분말내 규소 원자 적어도 약간이 탄소와 산소 원자에 결합됨을 지시한다. 다시 말해, 생성물내 규소 적어도 약간이 동시에 탄소와 산소 둘다에 결합된다.

본 발명에 따르는 원 생성물 분말은, 약 3-약 10중량% 범위의 비교적 높은 상기 분말의 샘플이 순수한 결정질 탄화규소 밀도의 약 85% 또는 적어도 약 2.8g/cc의 밀도를 갖는 소결된 부분으로 소결시킬 수 있는 한 약 100 이하에서 원 생성물을 약 1g/cc 이하의 밀도를 갖는 프레싱 부분으로 가압시키고; 압축력을 적용하지 않고 약 1700℃-약2400℃로 가압 부분을 가열하여 적어도 약 2.8g/cc의 밀도를 갖는 소결 부분을 생성시키는데 이때 원 생성물 또는 이로부터 생성된 가압된 부분으로부터 감지할 만한 임의 양의 산소를 제거하기 위해 가열 단계 전에 어떠한 단계로 실시하지 않는 것으로 구성되는 방법에 의해 특징지워질 수 있다. 첨부된 청구범위 및 여기에서 사용된 용어 가압은 세라믹 입자로부터 자립형을 제조하기 위한 임의 기술을 일컫는다. 또한, 첨부된 청구범위와 여기에서 사용된, 세라믹 부분으로의 압축력의 적용은 기계적으로 상기 부분이 압축되어 그로써 그의 밀도가 증가되는 상기 부분과 접촉한 고체 부재에 의한 부분에 대한 힘의 적용을 의미한다.

분말도에 있어, 원 생성물 분말은 약 0.01-약 0.3미크론 범위로의 지름을 갖는 입자로 구성된다.

원 생성물 분말은 부가적인 처리로 더 정제되어 정제된 생성물이 생성될 수 있다. 상기 정제 처리는 통상적인 노에서 행해진 두 단계와 통상적으로 관련된다. 먼저, 원 분말은 적어도 약 15분, 가장 바람직하게 약 1시간-약 2시간 동안, 약 1300℃-약2400℃, 가장 바람직하게 약 1400℃-약1800℃에서 불활성 가스(즉, 아르곤) 대기에서 가열된다. 이는 규소-산소 결합을 갖는 분자 구조를 탄소와 반응시켜 일산화탄소로서 산소를 제거시키고, 유리 탄소와 반응시키기에 적합한 규소를 제조하여 부가적인 탄화규소를 형성시킨다. 특정한 경우에, 원 분말은 산소의 실질적인 부분을 제거시키기에 불충분한 탄소를 가져서, 불활성 대기에서 가열하기 전에 원 분말로의 탄소의 첨가를 필요로 할 것이다. 두 번째로, 첫 번째 정제 단계로부터 결과되는 분말은 적어도 약 1분동안, 가장 바람직하게 약 30분-약 2시간 동안 산소 -함유 대기에서 약 600℃-약900℃ 가장 바람직하게 약600℃-약700℃로 가열된다. 상기 단계는 잔류 탄소를 산화탄소 형태로 태워 정제된 생성물을 생성시킨다.

정제된 생성물의 X-선 형광분석은, 생성물이 약 1000ppm 이하의 원소불순물을 갖는다는 것을 보여주는데, 여기서 상기 원소 불순물은 알루미늄 및 우라늄 이하로 높은 원자 번호를 갖는 규소를 제외한 원소들을 포함한다. 가장 바람직하게, 생성물은 상기 불순물 약 600ppm 이하를 갖는다. 앞서 논의되었듯이, 많은 불순물들은 생성물 분말로부터 제조된 소결된 탄화물 부분의 강도를 바람직하지 못하게 감소시킨다.

분말 형태로의 정제된 생성물의 개별 입자는 상당히 균일하고, 약 0.05-약 0.50미크론 범위의 지름을 갖는다. 앞서 논의 했듯이, 초미세, 균일 입자는 탄화물 분말로부터 미세한, 고강도 부분의 생성에서 중요한 특성이다. 결정 크기(개별 결정의 크기)는 약 30-약 100Å로 거열될 수 있다.

원 또는 정제 생성물은 통상적인 방식으로 내열성, 고강도 부분으로 소결될 수 있다. 예컨대, 붕소 및 탄소 또는 산화이트륨 및 산화알루미늄 같은 첨가제 적당량은 상기 생성물에 첨가되어, 바람직한 형으로 가압되고, 약1700℃-약2400℃로 가열될 수 있다.

상기 설명이 본 발명의 바람직한 실시양태에서 속하지만, 많은 변경 및 개질이 본 발명 특정 양상의 범위 내임이 이해될 것이다. 예컨대, 탄화화합물 생성을 위한 탄소원으로서 첫 번째 반응물 및/또는 연로로부터 과량의 탄소를 사용하는 것이 가능하고, 상기 경우엔, 두 번째, 탄소-함유 반응물은 생략될 수 있다. 상기 실시양태에서, 첫 번째 반응물을 반응기 챔버로 이동시키기 위해 첫 번째 반응물과의 혼합으로 질소, 헬륨, 아르곤, 수소, 일산화탄소 또는 그의 혼합물같은 캐리어 가스를 이용하는 것이 바람직하다. 일산화탄소 및 수소의 혼합물이 반응기에 의해 폐가스로서 생성되기 때문에, 반응기는 상기 캐리어 가스의 편안한 원으로서 제공될 수 있다. 바람직한 불포화탄화수소와 같은 다른 탄화수소형 얼마간을 포함하는 연료를 사용하는 하는 다른 가능한 변경도 포함될 수 있다. 그러나, 이는 가능하게 보충 열원(즉, 전기, 플라즈마, 마이크로웨이브, 챔버(12)의 외부 그러나, 챔버(12)와 열교환 관계에 있는 연소존 등)을 요구하기 위해 연소 반응에 의해 생성된 열을 대개 감소시켜 반응 존 내에 원하는 온도 조건이 얻어진다. 임의의 경우에, 연소존내 연소에 의해 생성된 것과 같은 뜨거운 연소 생성물은 반응 존재 적어도 약 1400℃의 바람직한 온도 조건을 유지하는데 필요한 에너지 적어도 약 15%를 제공한다.

[실시예들]

특이 실시예들은 본 발명을 더욱 예증하기 위해 이제 기술될 것이다. 이들 실시예들은 임의 방법으로 본 발명을 제안하지 않아야 한다.

하기 실시예들 각각에서, 다양한 가스성 유량은 gmoles/분(gmol/분으로 이후에 약어회됨)으로 주어진다. 흐름 속도의 실제측정은 ℓ/분의 단위로 실온 및 대기압에서체적 측정으로 취해졌다. 이들 체적 측정은 대기압 및 25℃(실온)에서 임의 가스에 대해 24.45l/몰로 가정되어져 gmol/분으로 전환되었다.

이후 가스에 대한 모든 흐름 속도는 특기되지 않으면 임의 다른 가스(즉, 캐리어 가스)로 희석되지 않는다.

다양한 표에 주어진 원소분석 결과에 대해, CHNS연소 분석에 의해 탄소 및 수소 중량%가 얻어졌다. 중성자 방사화 분석을 사용하여 대부분의 경우에서 Si%을 얻었다. 이후 각 실시예에서, 규소 %은 다른 지시가 없는 한중성자 방사화 사용으로 얻어졌다고 가정될 것이다. 지시되었듯이 여러 실시예에서, 규소 중량%을 결정하기 위해 X-선 형광 분석이 적용되었다. 단지 중성자 방사화만을 사용하여 산소 %를 얻었다. 이러한 관점에서 제공된 중량%결과는 다르게 특기되지 않는한 100%로 표준화되지 않는다.

여러 실시예에서, 원소 분석으로부터 얻어진 중량%는 터무니없이 높은 값이라 여겨지는 100%이상이 총백분율로 총계된다. 상기 관점에서, 상기 오류의 적어도 일부는 규소 및 산소에 대한 중성자 방사화 분석의 려과에 의한 것임이 밝혀졌다. 중성자 방사화 기구는 이산화규소(Puratronic grade, Johnson Matthey Chemical Ltd., Herts, England)의 분석 표준 샘플로 보장되었다. 상기 분석 결과는 표준 샘플로 규소 및 산소의 실제 중량%와 유리하게 비교되었다. 그래서, 규소 및 산소에 대한 정확한 중성자 방사화 분석 결과를 생성시키기 위해 모든 가능한 노력이 행해졌다. 주목되는 지속적으로 높은(즉, 100% 이상) 총 중량%로 본 발명의 생성물의 분석한 후, 중성자 방사화 및 X-선 형광으로 일련의 샘플을 규소에 대해 분석했다. 중성자 방사화 분석은 동일 샘플의 X-선 형광 분석에 의해 얻어진 중량%보다 약간 더 높은 규소의 중량%를 생성시켰다.

원소 분속이 행해진 각 실시예의 CHNS분석에서 검출가능한 양의 수소가 나타났다. 그러나, 1중량%이하의 수소 중량%는 하기 실시예에서 보고되지 않았다.

이후에 사용된 용어 및 기호에 대해, X-선 회절에 의해 얻어진 모든 각도는 20각도에 대한 것으로 이해될 것이다. 이외에, 기호 Si-O는 산소에 결합된 규소를 의미하지만, 특별한 분자 구조를 제공하지는 않았다.

[실시예 I]

적어도 부분으로, 본 실시예의 목적은 온도 및 탄소 대 산소 비율의 범위에 걸친 탄화규소의 형성을 보여주는 것이다.

본 실시예에 사용된 장치는 제1도에 보여진 장치와 실질적으로 유사했다. 그러나, 반응물의 사이드 스트림 주입을 위해 사용된 노즐은 제2도에 보여진 노즐과 구조가 유사했고, 그를 통해 퍼어지 가스를 받기에 적합하지 않았다. 각 노즐과 함께 물의 흐름을 사용해 냉각액 유체로서 제공했다. 비교적 평면인 Teflon® 필터를 사용하여 반응기로부터 나오는 분말 샘플을 수집했다. 조작시, 필터를 가로질러 차압을 제공하여 분말이 필터 한면상에 수집되어 필터 케이크가 형성되도록 했다. 각 장구에 대한 중요한 치수는 표 1a에 주어진다.

[표 1a]

항목	치수
챔버(12)의 지름	2.54cm
챔버(12)의 총 길이	44.4cm
연소존(12a)의 길이	12.0cm
반응 존(12b)의 길이	32.4cm
반응기(10)의 총 지름	22.0cm
연료 노즐의 내부 지름	0.26cm
반응물 노즐의 내부 지름	0.22cm

상기된 장치를 사용하여, 연료로서 에틸렌(CH), 산화제로서 순수한 산소, 첫 번째, 규소-함유 반응물로서 테트라메틸실란(Si(CH)), 및 두 번째, 탄소-함유 반응물로서 에틸렌을 사용하여 시험을 5회 행했다. 각 시험에서, 산소 유량은 0.51gmol/분이었고, 분말은 3분동안 수집되었다.

챔버의 하류 말단으로부터 20cm상류 및 반응기 챔버 축을 따른 위치에서 각 시험에 대한 반응 존 온도를 측정했다. 서로 다른 조성의 껍질 벗긴 와이어로 구성되는 열전쌍을 사용하여 이들 온도를 측정했다. 와이어를 B형 합금으로 이루어졌다 ; 즉, 한 와이어에 대해 94% 백금 및 6% 로듐 및 다른 와이어에 대해 70% 백금 및 30%로듐, 99.8% 알루미나로 이루어진 두 개의 구멍 전기 절연체를 통해 두 개의 와이어를 시험했고, 절연체 및 와이어를 외부 지름 0.64cm인 닫힌 말단 99.8% 알루미나곤으로 쌓아 규소 반응물에 의한 공격으로부터 와이어를 보호했다. 와이어를 아루미나 관을 넘어 약 0.5cm 확장시켜 열전쌍 접점을 형성하고, 와이어를 함께 점용접시켰다. 상기 접점은 반응기 챔버의 세로축상에 위치했다. 반응기 벽이 절연되어서, 챔버내 가스와 동일 온도에 가깝게 작동되기

때문에, 열전쌍 리딩은 복사 오류에 대해 보정되지 않았다.

표 1b는 다섯개 시험에 대한 다양한 작동 조건을 요약한다. 하기 매개 변수는 각 시험에 대해 제시된다 : 산소와 연료로서 주입된 에틸렌, 연소 및 반응 존 사이 경계에서 주입된 에틸렌 반응물 및 테트라메틸 실란 가스 반응물에 대한 유량 : 단지 연소성 혼합물에 대해 탄소 대한 산소의 원소 몰비(연소 C:O비) ; 챔버로 주입된 반응물 및 연소성 혼합물의 연소를 위한 탄소 대 산소의 원소몰비(총 C:O비) ; 및 각 시험에 대해 측정된 반응 존 온도.

[표 1b]

시험 번호	C_2H_4 연료 (gmol/분)	C_2H_4 연료 (gmol/분)	$Si(CH_3)_4$ (gmlo/분)	연소 C : O비	총 C : O비	온도(℃)
1	0.47	0.044	0.025	0.77	0.93	1587
2	0.52	0.048	0.027	0.85	1.02	1547
3	056	0.052	0.029	0.92	1.10	1509
4	0.62	0.058	0.032	1.02	1.22	1492
5	0.67	0.062	0.034	1.10	1.31	1490

각 시험에 대해, 작은 샘플(0.1-0.2g)이 수집된 분말로부터 취해졌다. 각각 시험 1-5에 상응하는 샘플 1-5로서 이후에 명명된 각 샘플을 분말 X-선 회절 분석 및 적외선 분석에 놓았다.

각 샘플 1,2,3,4 및 5에 대한 결과 분말 X-선 회절 패턴은 참고기호 1X, 2X, 3X, 4X 및 5X로 각각 제4도에 보여진다. 탄화규소 피이크는 35.6° 이고, C/Si-O피이크는 15° -30° 이다. 가장 높은 반응 존 온도 그러나 가장 낮은 C:O 비율에 상응하는 패턴 1X는 90에서 지시된 바와 같이 매우 우세한 C/Si-O를 가진다. 가장 낮은 반응 존 온도 그러나 가장 높은 C:O비율에 상응하는 패턴 5X는 패턴 1X와 매우 유사하다. 대조적으로, 패턴 2X, 3X 및 4X는 중간 온도 및 C:O 비율로 생성된 그러한 샘플에 대응한다.

샘플 1-5를 또한 적외선 분석에 놓았다. 이제 제5도에서, 각 샘플의 투과도 분석에 의해 생성된 적외선 분광 패턴이 보여진다. 패턴 1I, 2I, 3I, 4I 및 5I 는 각각 샘플 1,2,3,4 및 5에 상응한다. 패턴 1I는 참고 기호(94) 및 (96)에 의해 지시되었듯이, 약 1100의 파수(cm) 및 파수 400-500의 매우 우세한 규소-산소 결합 흡광도를 가진다. 패턴 5I는 유사하지만 약간 덜 우세한 규소-산소 결합 흡광도를 가진다. 패턴 2I, 3I 및 4I는 패턴 3I에 대해 예컨대, 참고 기호(98)에서 보여지듯이, 800-900의 파수에서 보다 우세한 탄화규소 흡광도를 가짐을 볼 수 있다.

[실시예 2]

본 실시예의 목적은 탄화수소 반응물로서 에틸렌(CH), 규소-함유 반응물로서 실란(SiH), 및 두 개의 서로 다른 연료를 사용하여 탄화 규소의 형성을 보여주는 것이다. 두 개의 시험은 에틸렌 연료를 사용했고, 나머지 두 개의 시험은 연료로서 에틸렌/아세틸렌(CH/CH) 혼합물을 사용했다. 에틸렌/아세틸렌 혼합물은 67부피%/33부피% 혼합물이었다. 실시예 I에 기술된 기구를 사용하여 4개의 시험 각각을 행했다. 표 2a는 각 시험에 대한 작동 조건을 요약하고, 또한 수집된 생성물상 데이터를 요약했다. 0.6gmol/분의 흐름속도에서 산화제로서 순수한 산소를 사용했다.

[표 2a]

시험 번호	C_2H_4연료 (gmol/분)	$C_2H_4+C_2H_2$ 연료 (gmol/분)	C_2H_4 반응물 (gmol/분)	SiH_4 (gmol/분)	연소 C : O비	총 C : O비	시험시간 (분)	생성물 (g)
6	0.56	–	0.052	0.026	0.92	1.00	4	1.4
7	0.59	–	0.055	0.027	0.97	1.06	4	1.2
8	–	0.59	0.056	0.027	0.97	1.06	3	1.4
9	–	0.62	0.060	0.026	1.03	1.11	ND*	1.6

* ND 는 데이터가 기록되었음을 의미한다.

시험7 및 9 둘다는 푸른-회색 조각으로서 가시적으로 특징지워지는 생성물을 생성시켰고, 반면 시험 6은 회색 조각을 생성시켰고, 시험 8은 회색입자를 생성시켰다.

각 시험에 상응하는 생성물 분석 결과는 표 2b에 제시된다.

[표 2b]

시 험	C(wt.%)	Si(wt.%)	O(wt.%)
6	22.8	61.6	22.3
7	22.3	60.9	24.3
8	31.0	57.5	15.6
9	36.6	58.0	9.9

대표적인 원 반응기 생성물의 X-선 분말 회절 패턴은 시험 9의 조건하에 생성된 제6도에 지시된다. 제7도에서 β결정질 탄화규소의 참고 X-선 분말 회절 패턴의 비교로, 참고 회절 패턴과 합성된 생성물의 패턴 사이의 일치가 생성물인 β결정질 탄화규소를 포함한다는 것을 알 수 있다. 그러나, 원 생성물내 β결정질 탄화규소의 α상 및/또는 비결정 탄화규소의 존재를 제외하지 않는다.

[실시예 3]

본 실시예의 목적은 실란 및 테트리에틸실란 이외에 규소원을 사용하는 탄화수소-함유 생성물의 형성을 보여주는 것이다. 이들 실시는 연료로서 에틸렌/아세틸렌 혼합물(67부피%/33부피%) 및 규소-함유 반응물로서 디클로디메틸실란(SiCl(CH)) 또는 헥사메틸실라잔(CH)SiNH Si(CH))를 사용했다. 본 실시예의 실험에 사용된 반응기는 실시예 I에 기술된 반응기였다. 디클로로디메틸실란을 사용하는 시험에 대한 시험 조건 및 생성물 특성은 표 3a에 제시되고, 헥사메틸실라잔에 대한 것을 표 3b에 제시된다. 표 3a 및 3b의 각 시험에서 산소 유량은 0.61gmol/분이었다.

[표 3a]

디클로로디메틸실란으로부터 합성된 탄화규소

시험	연소 C : O비	총 C : O비	$C_2H_4+C_2H_2$ 연료 (gmol/분)	$SiCl_2(CH_3)_2$ gmol/분	C_2H_4반응물 gmol/분	생성물 분석 wt. % 조성			
						C	H	Si	O
10	0.97	1.08	0.59	0.012	0.056	26.8	1.1	47.7	25.6
11	1.02	1.14	0.62	0.016	0.060	27.6	1.1	56.2	15.0

[표 3b]

헥사메틸디실라잔으로부터 합성된 탄화규소

시험	연소 C : O비	총 C : O비	$C_2H_4+C_2H_2$연료 (gmol/분)	$(CH_3)_3SiNHSi(CH_3)_3$ gmol/분	C_2H_4반응물 gmol/분	생성물 분석 wt.% 조성물
12	0.97	1.16	0.59	0.019	0.056	실행되지 않음

디클로로디메틸실란으로 시험 10에 의해 생성된 생성물에 대해, 상기 생성물의 X-선 분말 회절 패턴은 매우 우세한 C/Si-O피이크는 15°-30°, 강한 탄화규소 피이크는 35°이고 덜 우세한 탄화규소 피이크는 60° 및 72° 였다. 시험11에 대한 X-선 분말 회절 패턴은 유사한 탄화규소 피이크를 나타내지만, 시험 10생성물에 대한 것보다 꽤 덜 우세한 C/Si-O피이클 나타낸다.

헥사메틸실라잔을 사용하는 시험 12로부터 결과되는 생성물에 대해 X-선 분말 회절 패턴을 부가적으로 얻었다. 넓은 피이크는 35°에 중심이 오고, 60°-70°의 넓은 피이크는 β탄화규소의 존재를 지시한다. 35° 피이크는 β탄화규소에 대한 가장 강력한 피이크이고, 반면에 가장 높은 각도에서의 응답은 대략 60° 및 72° 에서 두 개의 강한 β탄화규소의 조합으로부터 결과된다.

[실시예 4]

본 실시에의 목적은 규소-함유 반응물로서 테트라메틸실란(TMS)를 사용하고 연료로서 실시예 I에서처럼 단지 에틸렌 대신에 에틸렌/아세틸렌 혼합물(67부피% CH, 33부피% CH)을 사용하는 탄화규소 생성물의 생성을 입증하는 것이다. 본 증명에서 사용한 장치는 실시예 I에 대한 것과 동일했다. 각 시험에서 산소 흐름 속도는 0.61gmol/분이었다.

표 4는 다른 처리 조건 및 생성물 분석 결과를 제시한다.

[표 4]

탄화규소합성에서 TMS 및 에틸렌/아세틸렌 연료 혼합물

시험	연소 C : O비	총 C : O비	$C_2H_4+C_2H_2$ 연료 (gmol/분)	TMS $(Si(CH_3)_4)$ gmol/분	C_2H_4반응물 gmol/분	생성물 분석 중량 % 조성		
						C	Si	O
13	0.97	1.17	0.59	0.033	0.056	38.1	60.8	1.7
14	1.02	1.23	0.62	0.035	0.060	38.0	53.1	1.2

시험 13 및 13각각으로부터의 생성물에 대한 X-선 분말 회절 패턴은 약35° 에서 강하고 날카로운 피이크를 나타내지만, 약 60° 및 70° 에서 약하지만 여전히 잘 정의된 피이크를 나타내어 탄화규소를 지시한다. C/Si-O에 대해, 각 패턴은 60° 및 72° 의 탄화규소 피이크중 하나 보다 훨씬 더 약한 15°-30° 의 넓은 피이크를 나타낸다.

[실시예 V]

본 실시예의 목적은 바람직한 탄화규소 화합물을 형성시키기 위해 필요한 탄소가 불충분한 사이드트림이 탄소 성분을 제공하기 위해 연료 및/또는 규소-함유 반응물로부터 탄소에 의존하여 이용될 수 있음을 입증한다. 본 실시예는 1.0 이하인 낮은 총 C/O 비율을 사용하는 탄화규소의 형성을 보여준다. 그러므로, 앞서 설명되었듯이, 사이드트림 조성물은 단지 규소-함유 반응물 및 하나 이상의 다양한 캐리어 가스를 포함할 수 있다.

표 5a는 캐리어 가스로서 수소 및 헬륨이 사용된 시험에 대한 처리 조건을 제시한다. 각 시험에서 산소 유량은 0.61gmol/분이었다. 실시예 I의 기구가 사용되어 이들 시험에 행해졌다.

[표 5a]

탄화규소의 캐리어 가스 사이드스트림 합성

시험	연소 C : O비	총 C : O비	C_2H_4연료 gmol/분	캐리어 가스 gmol/분	캐리어 가스 조성물	$Si(CH_3)_4$ gmol/분
15	0.85	0.94	0.52	0.048	H_2	0.027
16	0.92	1.02	0.56	0.052	H_2	0.029
17	0.85	0.94	0.52	0.048	He	0.027
18	0.92	1.02	0.56	0.052	He	0.029

X-선 분말 회절 분석이 시험 15-18 각각으로부터 결과되는 생성물상에서 수행되었다. 각 패턴은 약 35° 에서 우세한 피이크를 나타내어 탄화규소의 존재를 지시했다.

캐리어 가스로서의 수소 및 질소로 그러나, 표 5a에서의 시험을 위해 사용된 반응기 이외에 다르고 더 큰 반응기를 사용하여 여러 부가적인 시험, 19-22를 행했다. 시험 19-22를 위해 사용된 반응기는 실시예 I에서 노즐을 포함했다. 반응물 노즐은 반응기 챔버의 반대면상에 위치하고, 각각의 상기 노즐은 제3도에 보여진 노즐(54)과 실질적으로 유사했다. 반응기의 하류 말단과 소통하는 한 개의 말단을 갖는 석여유 도관으로부터 나오는 생성물 분말을 수집하기 위해 Dacron ® 백 필터를 이용했다. 노즐(54)의 관형 부재(74) 및 (76)의 치수를 포함하는 반응기의 중요한 치수는 표 5b에 주어진다.

[표 5b]

항 목	치 수
챔버(12)의 지름	5.08cm
챔버(12)의 총 길이	53.3cm
연소 존(12a)의 길이	27.9cm
반응 존(12b)의 길이	25.4cm
반응기(10)의 총 외부 지름	33.0cm
관형 부재(76)의 외부 지름	0.952cm
관형 부재(76)의 내부 지름	0.394cm
관형 부재(74)의 외부 지름	0.317cm
관형 부재(74)의 내부 지름	0.175cm

연료 노즐의 구조는 제2도에 보여진 것과 유사하고, 상기 노즐은 노즐(46)로서 지칭된다. 노즐(46)의 치수는 관형 부재(74)에 관한 것을 제외하고는 노즐(54)와 동일하다. 물론, 노즐(46)은 상기 내부 관형 부재를 가지지 않는다.

표 5c는 시험 19-22에 대한 처리조건 및 생성물 분석을 제시한다. 이들 각 시험에서, 개별 노즐(46) 및 (54)내에 형성된 환형 공간(64) 및 (80)으로, 그리고 상기 공간을 통해 냉각액 유체로서의 물을 주입했다(제2도 및 제3도 참고). 시험 19-21에서, 퍼어지 가스는 사이드스트림 반응물 노즐로 주입되지 않았다. 그러나, 시험22에서, 노즐당 0.15gmol/분의 유향으로 노즐(54)의 환형 공간(78)을 통해 흐르도록 하기 위해 상기 각 노즐내에 퍼어지가스로서 헬륨을 이용했다. 각 시험에서 산소 흐름은 1.09gmol/분이었다. 연료로서 에틸렌 및 아세틸렌을 사용했고, 두 개의 서로 다른 규소-함유 반응물(표 VC에서 Rct.로 약어화됨)을 사용했다. 규소 반응물 및 캐리어 가스에 대해 지시된 유량은 사이드스트림 반응물 노즐 둘다로부터 챔버로의 총 흐름속도이다. 반대 사이드스트림 반응물 노즐을 통해 흐르는 퍼어지 가스는 이외에 가스에 대해 후속 실시예에서 주어진 흐름 속도는 상기 노즐 둘다로부터의 총 유량임이 유사하게 이해될 것이다.

[표 5c]

탄화규소의 캐리어 가스 사이드 스트림 합성

시험	연소 C : O비	총 C : O비	C_2H_4 gmol/분	C_2H_2 gmol/분	캐리어 가스 gmol/분	캐리어 가스 조성물	규소 반응물 gmol/분	규소 반응물 조성물	생성물 분석 wt.% 조성물		
									C	Si	O
19	0.83	0.94	0.72	0.180	0.124	H_2	0.0634	$Si(CH_3)_4$	수행되지 않음		
20	0.79	0.91	0.69	0.172	0.124	H_2	0.0634	$Si(CH_3)_4$	수행되지 않음		
21	0.77	0.89	0.67	0.168	0.124	H_2	0.0634	$Si(CH_3)_4$	수행되지 않음		
22	1.04	1.04	0.84	0.280	0.077	N_2	0.0600	SiH_4	19.0	65.8	16.8

시험 19-21로부터 결과되는 생성물에 대해 얻어진 분말 X-선 회절패턴은 탄소 및 규소-산소 결합을 지시하는 15°-30°의 우세한, 넓은 피이크를 가진다. 각각의 패턴은 약 35°에서 C/Si-O 피이크상에 쇼울더를 가진다고 해석될 수 있다. 그러나, 패턴은 결정질 탄화규소의 존재를 강하게 지시하지는 않는다. X-선 회절 분석이 결정질 재료에만 민감해서, 시험19-21에 상응하는 X-선 회절 패턴이 비정질 또는 열등하게 결정화된 탄화규소의 존재를 필수적으로 방해하지 않음을 주목해야만 한다. 적외선 분석은 또한 시험 19-21의 생성물상에서 수행되었다. 각각의 결과되는 스펙트럼 패턴은 약 800-900파수(cm)에서 명백하게 정의된 흡수를 보이고, 이는 탄화규소의 존재를 지시한다. 우세한 흡수는 또한 약 1100 및 450파수에 위치한다. 이들 흡수는 또한 약 1100 및 450파수에 위치한다. 이들 흡수는 탄소-산소 결합의 존재를 지시한다.

상기 데이터에서, 시험 19-21로부터 얻어진 생성물이 비정질이 아니라면 열등하게 결정화된 탄화규소를 포함한다고 결론지을 수 있다.

시험 22로부터의 생성물에서, X-선 분말 회절 패턴은 β 탄화규소의 존재를 지시하는 약 35°,60° 및 56°에서 날카롭고, 매우 우세한 피이크를 나타내고, 또한, 규소의 원소의 존재를 나타내는 약 28°,47° 및 56°에서 피이크를 나타내었다. 패턴은 C/Si-O가 거의 나타나지 않았다.

[실시예 VI]

본 실시예의 목적은 본 발명에 의해 생성된 생성물로부터 얻을 수 있는 대표적인 분말도분포를 입증하는 것이다. 본 실시예는 또한, 탄소-함유 반응물로서 아세틸렌을 사용하고, 또한 규소-함유 반응

물의 혼합물을 사용하는 탄화규소 생성물의 생성을 입증한다.

실시예 V에 기술된 것과 같은 반응기를 본 실시예의 생성물을 생성시키기 위해 이용했다. 본 실시예에 대해, 산소 흐름속도는 1.09gmol/분이었다. 퍼어지 가스는 사용하지 않았다. 연료는 각각 0.84gmol/분 및 0.28gmol/분의 속도는 흐르는 에틸렌 및 아세틸렌의 혼합물이었다. 연소 탄소 대 산소비는 1.03이었다. 세라믹 형성 반응물은 아세틸렌(0.099gmol/분), 실란(0.059gmol/분) 및 테트라메틸실란(0.058gmol/분)이었다. 상기 과정은 탄소 42.8중량%, 규소 48.9중량% 및 산소 3.7중량%를 포함하는 미세한 검은 생성물 분말을 상출한다. X-선 분말 회절패턴은 β-탄화수소의 존재를 지시하는, 약 35°,60° 및 72°에서 우세한, 잘 정의된 피이크를 나타낸다.

샘플이 탈이온수내 Triton® ×100(Rohm Haas Company)의 0.07중량% 용액 및 탈이온수내 나트륨 피로포스페이트의 0.02중량% 용액 동일부로 구성되는 분산액내에 초음파적으로 분산된 후, 원 생성물 분말의 샘플을 Horiba CAPA-700입자 분석기에서 분석했다. 결과 분말도 분포는 하기와 같고, 여기서, 각 백분율 값은 지시된 입자 지름 범위와 관련되어 조사된 입자의 중량 백분율이다 : 0.00-0.04미크론 -10.5%; 0.04-0.05미크론 -6.8%; 0.05-0.06미크론 -8.5%; 0.06-0.07미크론 -8.6%; 0.07-0.08미크론 -9.1%; 0.10-0.20미크론 -36.9%; 8-9미크론 -0.7%. 8-9미크론 범위로서 마지막 숫자는 데이터에서 예외적인 것으로 여겨진다. 이들 결과는, 각 막대가 상기된 입자 지름 범위중 하나를 나타내는 제8도의 막대 그래프에 예증된다. 각각의 막대는 특이 범위의 상부 한 개인 입자 지름값에 위치한다. 예컨대, 0.1미크론에서의 막대는 0.09-0.1미크론 범위를 나타낸다.

열린 흑연 도가니에 분말 1.81g 샘플을 놓고, 25℃/분의 속도에서 실온 -1600℃로 승온시키면서, 아르곤 대기하에 1600℃에서 30분동안 가열하여 원 생성물 분말을 정제했다. 온도를 1610℃로 증가시키고, 20분동안 유지하고 나서, 아르곤 대기에서 실온으로 냉각시켰다. 이어서, 600℃에서 공기중 산화 알루미늄 도자기에서 샘플을 가열했다. 유출가스가 150ppm 이하의 일산화탄소 수준을 보일 때, 산화를 종결했다. 상기 정제 단계는 규소-산소 결합에 의해 특정지워진 분자 및 원 생성물로부터의 탄소를 제거시키는 작용을 한다. 결과 정제 생성물 분말은 밝은 초록색이었다.

전자현미경과 사진상에 놓여진 크기 표준막대로 찍힌 사진을 자세히 조사해 상기 생성물 분말 샘플을 보았다. 그리고 나서, 사진상에 놓인 표준화 크기 바아와 사진찍힌 입자의 분말도를 비교하여 사진을 수동으로 분석했다. 제9도에 제시된 분말도 데이터는 218조사된 입자에 대한 입자 수 대 입자 지름의 플롯이다.

[실시예 7]

본 실시예의 목적은 선행 실시예를 따라 생성시킨 원 반응기 생성물내 탄소, 규소 및 산소의 중량% 범위를 입증한다.

[표 7a]

생성물내 탄소 범위

시 험	wt.% 탄소	표
22	19.0	VC
7	22.3	IIB
6	22.8	IIB
11	26.7	IIIA
10	26.8	IIIA
8	31.0	IIB
14	38.0	IV
13	38.1	IV

[표 7b]

생성물내 규소 범위

시 험	wt.% 규소	표
11	47.4	ⅢA
10	56.2	ⅢA
	- 154 -	
8	57.5	ⅡB
9	58.0	ⅡB
13	60.8	Ⅳ
7	60.9	ⅡB
7	61.9	ⅡB
14	63.1	Ⅳ
22	65.8	VC

[표 7c]

생성물내 산소 범위

시 험	wt.% 산소	표
14	1.2	Ⅳ
13	1.7	Ⅳ
9	9.9	ⅡB
8	15.6	ⅡB
11	15.0	ⅢA
22	16.8	VC
5	22.3	ⅡB
7	24.3	ⅡB
10	25.6	ⅢA

[실시예 8]

본 실시예의 목적은, 본 발명에 따라 생성된 생성물 분말내 적어도 약간의 규소가 동시에 탄소 및 산소에 결합됨을 입증한다.

실시예 1에 기술된 반응기를 이용하여 본 실시예의 생성물을 생성시켰다. 산소 유량은 0.61gmol/분이고, 연료는 0.56gmol/분의 속도로 흐른 CH였다. 연소 탄소 대 산소의 비는 0.92였다. 사용된 반응물은 테트라 메틸실란(0.033gmol/분) 및 에틸렌(0.052gmol/분)이었다. 결과 원 생성물 분말은 하기 조성을 가졌다 : 탄소 21.2중량% ; 규소 56.6중량% ; 및 산소 25.8중량%.

규소-29핵 자기 공명으로 결과 생성물의 샘플을 분석했다. 사용한 핵 자기 공명 분광계는 Bruker Instruments로부터 구입가능한 모델 WPSY-200이었다. 조사된 재료가 고형물이기 때문에, 실험 측정은 크로스 편광 매직 앵글 스피닝을 이용했다. 제10도에서 보여진 결과 스펙트럼 패턴은 -110ppm 주위를 중심으로 한 큰 Si-O 신호 및 -15ppm 근처의 탄화규소 신호를 나타낸다. 탄화규소의 완화시간을 측정했고, 대략 300초임이 측정되었다. 이는 스펙트럼 스캔이 매 15분에 약 한번 행해질 수 있음을 의미하면서, 대략 1000초의 펄스 지연을 요한다. 스펙트럼 패턴이 시간 평균되어지기 때문에, 신호를 노이즈 비율로 개선시키기 위해 24시간 간격으로 시간 평균 되어지기를 요하는 스캔의 수는 100스캔을 초과하지 않는다. 이는 낮은 신호 대노이즈 비율을 초래한다.

제10도는 패턴이 보다높은 장 강도로의 탄화규소 신호의 테일링을 나타냄이 특히 주목되어야만 한다. 이는 단순한 규소-탄소 결합, 즉 탄소 및 산소에 대한 개별적인 규소 약간의 동시 결합 이외에 구조를 지시한다.

[실시예 10]

본 실시예의 목적은 통상적으로 구입가능한 재료와 비교해 본 발명에 의해 생성된 탄화규소-함유 생

성물에 존재하는 낮은 수준의 불순물을 입증하는 것이다.

실시예 4 시험 3으로부터의 생성물 분말 샘플을 실시예 6에 기술된 과정과 실질적으로 유사한 두 단계 정제 과정에 놓았다. 결과 정제된 생성물의 샘플을 X-선 형광을 사용하여 분석했다. 상기 샘플 및 통상적으로 구입가능한 탄화규소 위스키 샘플을 원소 불순물에 대해 조사했고, 여기서, 상기 불순물은 알루미늄 및, 우라늄까지의 높은 원자번호의 원소들을 포함한다. 표 8에서의 비교는 본 발명에 따른 정제된 생성물 및 상업적으로 유용한 탄화규소 위스키에 대한 것이다. 상업적 위스키 또는 정제된 생성물에 대해 검출된 단지 그러한 오염물질 원소가 표 8에 보여진다. 모든 다른 원소는 검출가능한계 이하이고, 총 불순물 계산에 대해 0이 될 것이라 추측된다. 앞서 논의되었듯이, 소결된 세라믹 부품의 강도는 불순물 존재로 해로운 영향을 받는다. 그러므로, 낮은 불순물 수준은 보다 순수한 생성물로부터 생성된 보다 큰 강도의 부품을 이끌 수 있다.

[표 8]

정제된 최종 생성물 및 상업적인 위스키내 불순물의 X-선 형광 측정

원소(in ppm)	상업적인 위스키	정제된 최종 생성물
Al	1300	300
P	50	25
Cl	ND*	50
Ca	2300	20
K	50	ND
Ba	10	ND
Ti	5	2
Mn	1500	ND
Cr	70	ND
Fe	1000	100
Zn	50	30
Pb	20	50

* ND는 검출되지 않았음을 의미한다.

상업적 생성물내 원소 불순물 총 수준이 본 발명의 저제된 생성물을 초과함이 표 8로부터 보여질 수 있다.

[실시예 11]

본 발명의 목적은, 본 발명에 따라 생성된 생성물이 적어도 90%의 이론적 밀도로 소결되고, 상기 생성물이 불순물로서 산소를 포함할 때조차도 상기 소결이 행해질 수 있음을 입증하는 것이다. 상기 실시예는 또한 탄소-함유 반응물로서 프로필렌(CH)의 사용 및 탄소-함유 반응물의 혼합물(CH,CH)의 사용을 입증한다.

이후에 논의된 다양한 가압되고 소결된 부품에 대해 얻어진 밀도는 무품의 부피를 측정하고 무게재거나, Archimedes 원리와 물을 사용하는 ASTM 과정 C373-72를 사용하여 측정했다.

A. 원 생성물의 소결 : YO및 AlO소결 보조제

다른 처리 및 소결 연구를 위해 이후에 제시된 조건하에 많은 반응기 생성물을 제조하기 위해 실시예 V에 기술된 반응기를 사용했다. 각 사이드스트림 반응물 노즐을 통해 흐름 속도 0.15gmol/분에서 퍼어지 가스로서 헬륨을 통과시켰다.

[표 9]

원소 C : O비	연료 흐름 80부피% C_3H_6 20부피% C_2H_4 gmol/분	산소 흐름 gmol/분	사이드스트림 흐름		생성물 분석 wt.% 조성물		
			SiH_4 gmol/분	C_3H_6 gmol/분	C	Si	O
1.04	1.12	1.09	0.06	0.11	33.6	59.5	7.8

시험은 생성물 218gms 생성시켰다. 규소에 대한 중량%는 x-선 형광 분석에 의해 얻어졌다. 생성물의 X-선 분말 회절 분석은 β-탄화규소를 명확하게 지시하는 약 35° ,60° 및 72° 에서의 피이크를 나

타내었다.

전술한 조건하에 생성된 원 반응기 생성물 15.47g을, 나일론 코우팅 처리된 강철 분쇄 요소를 갖춘 고 밀도 폴리에틸렌 단지에서 4시간동안 에탄올 200ml 및 폴리에틸렌 글리콜 2ml(Carbowax ® PEG 400, Union Carbide, Danbury, CT) 존재하에 산화이튬(Y_2O_3) 0.46g 및 산화알루미늄(Al_2O_3) 0.16g으로 분쇄시켰다. 슬러리를 밤새도록 건조시켜 에탄올을 제거하고, 부수고, 40번 체를 통해 스크리닝 시키고, Carver 실험용 프레스 및 70,000lb 힘을 사용하여, 지름 3.34cm, 두께 0.155cm 및 무게 1.25gm인 디스크로 실온에서 가압시켰다. 이때, 디스크는 이론 밀도로서 이후에 일컬어진, 순수한 결정질 탄화규소 밀도의 29% 또는 0.92g/cc의 밀도를 갖는다. 그리고나서, 먼저 200밀리토르 이하로 노를 비우고, 빨리, 샘플을 실온 -1000℃로 15분간 가열하여 제어된 대기 노에서 디스크를 소결시켰다. 1000℃에서 20℃/분의 가열속도를 사용하여 온도를 1500℃로 증가시키고, 30분동안 1500℃에서 유지했다. 아르곤을 사용하여 노를 대기압에 놓고, 10℃/분의 가열 속도를 사용하여 온도를 1800℃로 올리고, 이어서 2℃/분의 가열 속도를 사용하여 2150℃로 올렸다. 샘플을 2150℃에서 1시간동안 유지하고나서, 실온으로 냉각시켰다. 디스크의 밀도는 2.92g/cc 또는 이론 밀도의 91%임이 측정되었다. 소결시키기 전에 임의 산소 제거 단계없이 그리고, 소결시키는 동안 임의 압출력의 적용없이 산소 7.8중량%와 원 반응기 생성물을 사용하여 상기 고밀도 디스크를 성공적으로 소결시킬 수 있음을 주목하는 것이 중요하다.

상기 고 밀도 디스크가 이론 밀도의 단지 29%의 밀도를 갖는 가압된 디스크로부터 소결됨이 또한 주목되어야만 한다.

B. 정제된 생성물의 소결 : Y_2O_3 및 Al_2O_3 소결 보조제

본 실시예 파트 A에서 생성된 것과 같은 원 반응기 생성물 110g을 카존 블랙 1g과 혼합했다. 결과 혼합물 114.9g을 흑연 박스에 놓고, 박스를 아르곤으로 퍼어징된 제어된 대기 노에 놓았다. 노를 25℃/분에서 1550℃로 가열하고, 2시간동안 1550℃에서 유지했다. 결과 분말은 C 367.중량%, Si 60.8중량% 및 O 1.38중량%를 포함했다. X-선 형광 분석으로 규소 중량%를 얻었다. 분말을 600℃에서 공기중에 가열하여, 유리 탄소를 제거해 정제된 생성물 분말을 생성시켰다.

상기 정제된 생성물 14.90g 샘플을 산화이튬 0.33g, 산화 알루미늄 0.33g, 에탄올 60ml 및 폴리에틸렌글리콜(Carbowax ® PEG 400) 2ml를 사용하여 본 실시예 파트 A에서와 같이 분쇄시켰다. 분쇄, 건조, 부수고 체질한 후, 지름 1.245cm, 두께 0.137cm인 디스크를 밀도 1.23g/cc로 가압시켰다. 노에 디스크를 놓은 후, 노 온도를 실온 -1000℃로 15분간 올리고, 10℃/분의 속도로 온도를 1800℃로 증가시키고 나서, 2℃/분의 속도로 2200℃ 이하로 가열시켜 디스크를 소결시켰다. 2200℃에 도달하면, 온도를 90분간 2200℃에서 유지하고, 실온으로 냉각시켰다. 상기 과정은 밀도 3.08g/cc, 이론 밀도의 90%를 갖는 디스크를 생성시켰다.

C. 원 생성물의 소결 : B 소결 보조제

본 실시예 파트 A에서 사용된 바와 같은 장치 및 과정을 사용하여 원 생성물의 다른 배치(198g)를 생성시켰다. 원 생성물 분석은 하기 중량%를 제공했다 : 탄소 34.8중량% ; X-선 형광에 의해 얻어진, 규소 57.0중량% ; 및 산소 9.0중량% X-선 분말 회절 분석은 탄화규소 존재를 지시하는 35°, 60° 및 72°에서 피이크를 나타내었다.

상기 생성물 10.55g을 에탄올 48중량% 및 헵탄52중량%로 구성되는 혼합물 200ml에 첨가했다. C생성물 분말이 젖고, 슬러리가 형성될 때까지, 상기 혼합물을 분쇄시켰다. allery Chemical Co., Callery, PA로부터 구입 가능한 붕소 원소(B) 0.12355g을 슬러리에 첨가하고, 결과 혼합물은 나일론 코우팅 처리된 강철 분쇄 소자를 갖춘 폴리에틸렌 단지에서 4시간 동안 분쇄시켰다. 에탄올 및 헵탄으로 구성되는 용매를 증발시키고, 결과 건조 케이크를 부수고, 40메쉬 스크린을 통해 스크리닝시켰다. 디스크를 탄소원소 노에 놓고, 하기 과정을 사용하여 소결시켰다. 노를 먼저 200밀리토르 이하로 비우고나서, 15분간 실온에서 1000℃로 가열했다. 그후, 온도를 15분간 1000℃에서 1500℃로 올렸다. 그후, 노에 대한 힘을 타단하고, 실온으로 냉각시켰다. 결과 디스크는, 소결전에 산소 제기 단계 없이 그리고, 소결시키는 동안 압축력의 적응 없이 원 생성물을 산소 9.0중량%와 함께 사용하여 얻어진, 밀도 2.84g/cc, 이론 밀도의 88%를 가졌다. 고 밀도 디스크가 이론 밀도의 단지 28%만을 가지는 가압된 디스크로부터 소결됨이 또한 주목되어야만 한다.

D. 정제 생성물의 소결 : B 소결 보조제

실시예 V에 기술된 반응기를 이용하여 하기된 조건하에 원 생성물 분말 275g을 생성시켰다. 반응물 노즐당 0.15gmol/분액 흐름 속도로의 헬륨 퍼어지 가스 흐름을 본 시험에 또한 사용했다.

[표 10]

원소 C : O비	연료 흐름 80부피% C_2H_4 20부피% C_2H_4 gmol/분	산소 흐름 gmol/분	사이드스트림 흐름 gmol/분			생성물 분석 wt.% 조성물		
			SiH_4	C_2H_4	C_2H_2	C	Si	O
1.04	1.12	1.09	0.059	0.052	0.072	32.8	69.4	10.1

생성물을 X-선 분말 회절로 분석했고, 그 결과 β-탄화규소의 존재를 지시하는 약 35°, 60° 및 72°에서의 피이크를 나타내었다. 전술한 합성에서 얻어진 분말 73g을 아르곤으로 퍼이징시킨 흑연 박

스에 놓고, 박스를 퍼이징시킨 제어된 대기 노에 놓았다. 노를 1550℃로 가열하고, 2시간 동안 1550℃에서 유지했다. 결과 분말은 Si 68.4중량%, O 1.2중량% 및 N 1.1중량%를 포함했다. 엷은 초록색으로 변할 때까지, 600℃에서 공기중에 분말을 가열시켰다.

분말을 12중량% 수성 플루오르소산으로 세척하고, 물 및 알콜로 여러번 세정하고, 진공 건조시켰다.

세척되고 진공 건조된 생성물 분말 23.8g을 붕소 원소 0.31g(Callery Chemical), 페놀계수지 1.59g(Plyophon 23-169, BLT Corp., Warren, NJ), 폴리에틸렌 글리콜 1.27g(Carbowax ® PEG 4000) 및 아세톤 100ml와 혼합하고, 15시간 동안 분쇄시켰다. 분쇄, 건조, 부수고 체질한후, 지름 1.30cm, 두께 0.48cm인 디스크를 1.97g/cc 또는 이론 밀도의 61%로 가압시켰다. 제어된 대기노에 디스크를 놓은후, 노를 200밀리토르이하로 비우고, 실온에서 1000℃로 15분간 가열하여 디스크를 소결시켰다. 40℃/분의 속도로 1000℃의 온도를 1550℃로 증가시켰다. 그후 노를 아르곤을 사용하여 대기압을 만들었다. 이어서, 40℃/분의 속도로 노를 2200℃로 가열하고, 30분간 2200℃에서 유지하고나서, 실온으로 냉각시켰다. 이는 3.10g/cc의 밀도, 이론 밀도의 97%를 갖는 디스크를 생성시켰다.

E. 원 생성물의 소결 : 합성에서 B 소결 보조제의 도입

실시예 5에 기술된 반응기를 이용하여 이후에 제시된 조건하에 원 생성물 분말 60.2g을 생성시켰다. 합성 반응으로 붕소 소결 보조제를 원 생성물로 도입시키기 위해 순수한 실란보다 오히려 디보란(B_2H_6)1.9부피% 및 실란의 혼합물(Alphagaz, Inc., Walnut Creck, CA로부터 구입 가능함)을 사용함을 주목하라. 흐름속도 0.15gmol/분에서 각 반응물 노즐을 통해 퍼어지 가스로 헬륨을 사용했다.

[표 11]

연소 C : O비	연료 흐름 80부피% C_2H_4 20부피% C_3H_6 gmol/분	산소 흐름 gmol/분	사이드스트림 흐름 gmol/분		생성물 분석 wt.% 조성물		
			$SiH_4+C_2H_6$	C_3H_6	C	Si	O
1.04	1.12	1.09	0.06	0.11	31.3	59.6	8.23

상기 생성물 분석 결과에서, X-선 형광으로 규소 중량%를 얻었다. 유도적으로 커플링된 플라즈마 시스템을 거쳐 붕소 함량에 대해 생성물을 또한 분석했다. 생성물의 X-선 회절 패턴은 β-탄화규소의 존재를 명확하게 지시하는 35°,60° 및 72°에서 피이크를 보인다.

상기 합성된 원 생성물 2.47g을 이소프로판올로 혼합하고나서, Farmingdale, NY의 Heat Systems Ulrasonecs, Inc.에 의해 제조된 모델 W-380 Sonicator를 사용하여 5분간 초음파 에너지 약 100Watts에 놓았다. 이소프로판올 및 카본 블랙(Degussa Corp., Teterboro, NJ로부터의 FW 18형)의 다른 혼합물을 동일 초음파 과정을 사용해서 제조했다. 그후, 두 개의 혼합물을 결합시키고, 다시 초음파 처리하고나서, 알루미늄 호일상 공기 건조시켜 이소프로판올을 제거했다. 결과 건조된 제려 2.50g을 더많은 이소프로판올에 첨가하고,올레산 0.27g을 또한 첨가했다. 그후, 혼합물을 상기된 초음파 과정에 놓아 알루미늄 호일상 건조시키고, 40메쉬 스크린을 통해 부수고, 실온에서 디스크로 가압시킨 슬러리를 생성시켰다. 유기 프레싱 산, 즉 올레선을 하기 과정에 따라 태웠다. 디스크를 흑연 트레이상에 놓고 ℃/부의 속도로 500℃ 온도로 가열시킨다. 제어된 대기노에 삽입시켰다. 그후, 5℃/분의 속도로 1000℃로 증가시키고, 1000℃ 온도를 60분간 유지했다. 이론밀도의 27%인 예비소결된 밀도를 제공하는 산출된 디스크는 지름 3.21cm, 두께 0.343cm 및 무게 0.85g이엇다.

하기와 같이 고온 노를 사용하여, 디스크에 대한 압축역의 적용없이, 디스크를 소결시켰다. ; 노를 200밀리 토르로 배기시키고 ; 15분간 1000℃로 가열하고 ; 20℃/분의 속도로 1450℃로 온도를 증가시키고 ; 정제된 아르곤으로 1기압까지 가압시키고 ; 60℃/분으로 1450℃에서 2100℃로 가열하고 ; 25분간 2100℃에서 유지하고 ; 최종적으로 실온으로 냉각시켰다. 결과 디스크는 무게 1.99g, 지름 2.08cm, 두께 0.08cm이었다. 밀도는 약 2.8g/cc 또는 이론 밀도의 88%였다.

(57) 청구의 범위

청구항 1

세로축 및 세로로 분리된 상류 및 하류 말단을 가지며, 상류 말단으로부터 존 사이의 경계로 세로로 연장되는 연소존과, 상기 경계로부터 하류 말단으로 세로로 연장되는 반응존을 포함하여 구성되는 챔버가 형성된 반응기를 제공하고 ; 연료 및 산소를 함유한 산화제의 혼합물로 구성되는 연소성 혼합물을 연소존 내에서 반응존을 향한 방향으로 흐르도록 하고 ; 연소존 내에서 연소성 혼합물을 연소시켜 고온의 연소 생성물을 생성시키고 ; 상기 경계에서 제1 및 제2 반응물을 상기 챔버내로 주입시키므로써, 상기 고온의 연소 생성물이 반응존 내에서 상기 반응물들을 상기 하류 말단을 향해 운반하도록 하는데, 이때 반응존 부분의 온도 조건은 1400 내지 1700℃이고, 연소성 혼합물 및 상기 반응물들의 조합물에 대한 탄소 대 산소의 원소 몰비가 0.8 : 1 내지 1.5 : 1이며, 상기 반응물들이 반응존 내에서 탄화 화합물을 생성할 수 있고 ; 이로 인하여, 탄화 화합물을 포함하는 생성물 분말을 반응존에서 생성시키는 것을 포함하여 구성되는 탄화 화합물의 제조 방법.

청구항 2

제1항에 있어서, 상기 연소성 혼합물 및 반응물의 혼합물에 대한 상기 원소 몰비가 0.9 : 1내지

1.5: 1의 범위 내에 있고, 연소성 혼합물에 대한 원소 몰비가 0.7: 1 내지 1.2 : 1인 방법.

청구항 3

제1항 또는 제2하에 있어서, 상기 연료 및 산화제가 특정 유량으로 주입되고, 연소존은, 상기 경계에서 유리 산소가 실질적으로 존재하지 않도록 치수가 정해지는 방법.

청구항 4

제1항 또는 제2항에 있어서, 연료가 시클릭 탄화수소, 불포화 탄화수소 또는 이들의 혼합물인 탄화수소를 포함하는 방법.

청구항 5

제1항에 있어서, 상기 제1반응물은 제1성분을 포함하고, 상기 제2반응물은 탄소 성분인 제2성분을 포함하며, 상기 제1 및 제2반응물은 반응하여 상기 탄화 화합물을 형성하고, 상기 탄화 화합믈은 제1 성분 및 탄소 성분인 제2 성분으,로 된 화합물인 방법.

청구항 6

제5항에 있어서, 상기 제2 반응물이 C_1-C_9 탄소 화합물을 포함하여 구성되는 방법.

청구항 7

제5항에 있어서, 상기 제1 및 제2 반응물이 상기 챔버로 주입될 때 실질적으로 기체상인 방법.

청구항 8

제5항, 제6항 또는 제7항에 있어서, 상기 제1 성분이 규소, 붕소, 텅스텐, 크롬, 티타늄, 지르코늄, 몰리브덴 또는 철인 방법.

청구항 9

제8항에 있어서, 상기 제1 성분이 규소이고, 제1 성분으로서 규소를 함유하는 상기 제1 반응물이 실란, 치환된 실란 또는 이들의 혼합물인 방법.

청구항 10

제1항 또는 제2항에 있어서, 분말을 불활성 기체내 1300℃ 내지 2400℃의 온도 범위에서 15분 내지 2시간 동안 가열하고, 그 후, 상기 분말을 산소를 함유한 대기 내 600℃ 내지 900℃의 온도 범위에서 15분 내지 2시간 동안 가열하는 것을 더욱 포함하여 구성되는 방법.

청구항 11

제1항 또는 제2항에 있어서, 결과 생성물이 탄화규소를 포함하며, 규소 30 내지 75중량%, 탄소 15 내지 50중량%, 및 탄소 1 내지 30중량 %로서 구성되고, 상기 생성물은 수소를 더욱 포함하는 방법.

청구항 12

제11항에 있어서, 상기 규소가 55 내지 70중량%의 양으로 존재하고, 탄소가 30 내지 40중량%의 양으로 존재하며, 산소가 1 내지 10중량%의 양으로 존재하는 방법.

청구항 13

제11항에 있어서, 일부 또는 전부의 규소가 탄소 및 산소 둘다에 동시에 결합되는 방법.

청구항 14

제11항에 있어서, 상기 생성물이 0.01 내지 0.3미크론 범위의 지름을 가지는 입자들을 포함하여 구성되는 방법.

청구항 15

제11항에 있어서, 3 내지 10중량%의 산소를 함유하는 결과 생성물이, 상기 생성물을 압축시켜 압축 세라믹 부재를 제조하고 ; 상기 압축 세라믹 주재를 1700℃ 내지 2400℃의 온도로 가열하여 순수 결정질 탄화규소 밀도의 85%에 해당하는 밀도를 가지는 소결된 부재를 제조하는 것을 포함하는 방법에 따라, 순수 결정질 탄화규소 밀도의 85%에 해당하는 밀도를 가지는 세라믹 부재로 소결될 수 있으며, 이때, 상기 생성물 또는 그로부터 제조된 압축 세라믹 부재로부터 산소를 제거하기 위하여, 상기 가열 단계 이전에 다른 어떠한 단계도 수행되지 않는 방법.

청구항 16

제15항에 있어서, 상기 생성물은, 상기 가열 단계 동안 상기 세라믹 부재에 압축력을 가하지 않고서, 순수 결정질 탄화규소 밀도의 85%에 해당하는 밀도를 가지는 소결된 세라믹 부재로서 소결될 수 있고, 또한 상기 생성물은, 100℃ 미만의 온도에서 1g/cc 이하의 밀도로 압축된 후, 순수 결정질 탄화규소 밀도의 85%에 해당하는 밀도를 가지는 소결된 세라믹 부재로서 소결될 수 있는 방법.

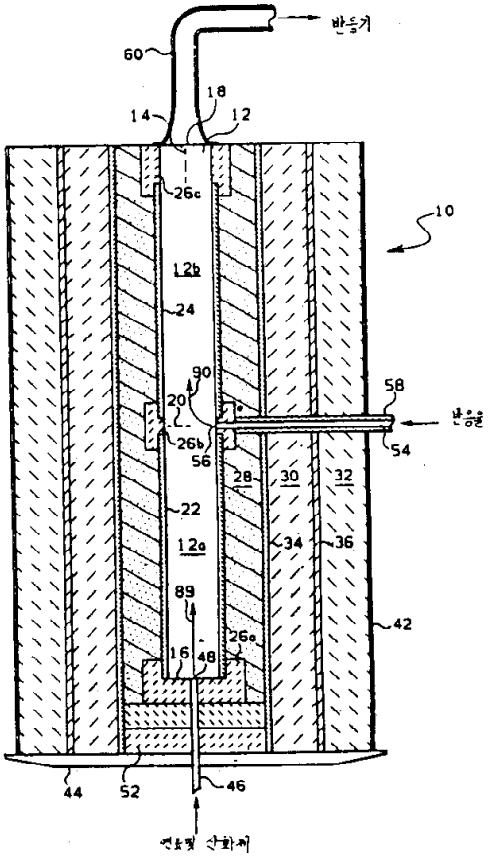
청구항 17

상류 말단 및 하류 말단을 가지는 챔버가 내부에 형성된 반응기와 ; 상기 상류 말단 및 하류 말단의 중간 위치에서 상기 챔버와 소통하는 유출구 말단을 가지며, 각각 내부 및 외부 표면을 가지고 첫

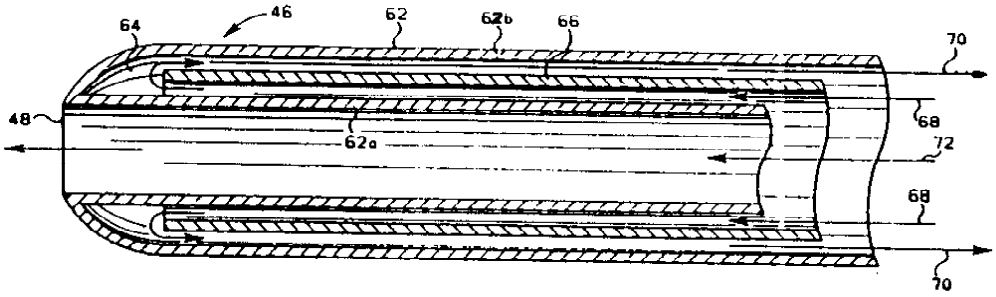
번째 환형 공간이 제1관형 부재의 외부 표면 및 제2관형 부재의 내부 표면 사이에 형성되도록 상기 제2관형 부재내에 동축적으로 위치한 제1관형 부재 및 제2고나형 부재를 포함하여 구성되는 제1노즐과 ; 챔버내에서 반응하여 탄화 생성물을 형성할 수 있는 제1 및 제2 반응물을, 상기 제1관형 부재를 통하여 통과시켜 상기 유출구 말단에서 제1관형 부재를 빠져 나가 챔버내로 들어갈 수 있도록 하기 위한 수단과 ; 상기 첫 번째 환형 공간을 통하여 가스를 통과시키므로써, 상기 제1노즐을 빠져나가 상기 유출구 말단으로부터 흐르는 상기 반응물들을 에워싸도록 하기 위한 수단과 ; 상기 상류 말단에 근접한 위치에서 챔버와 소통하는 유출구 말단을 가지는 제2노즐 ; 및 상기 제2노즐을 통하여 연소성 혼합물을 통과시키므로써, 그 유출구 말단을 빠져 나가 상기 챔버 내로 들어가도록 하는 수단을 포함하여 구성되는, 제1항 또는 제2항의 방법에 의한 탄화 생성물을 제조하기 위하여 사용되는 장치.

도면

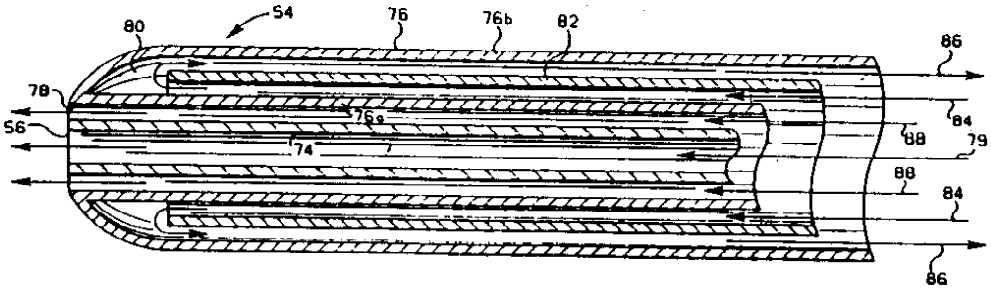
도면1



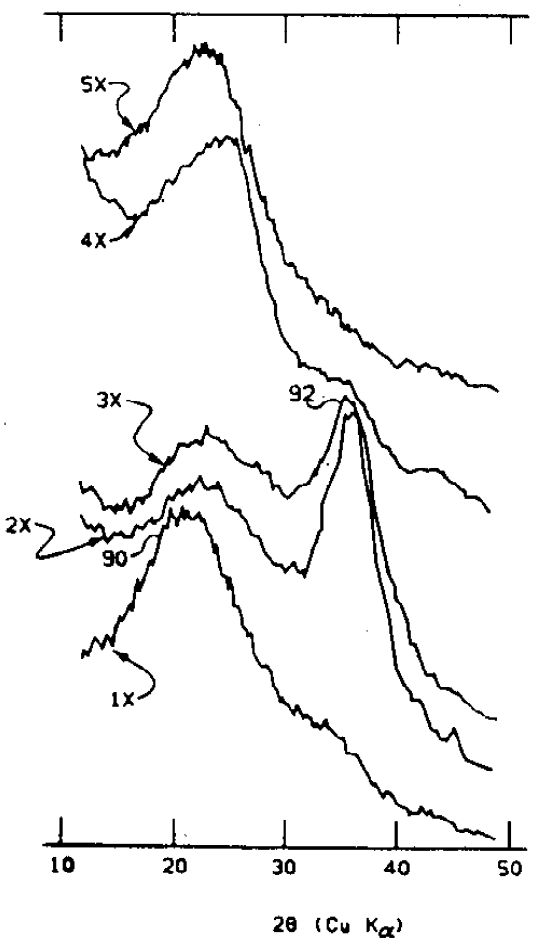
도면2



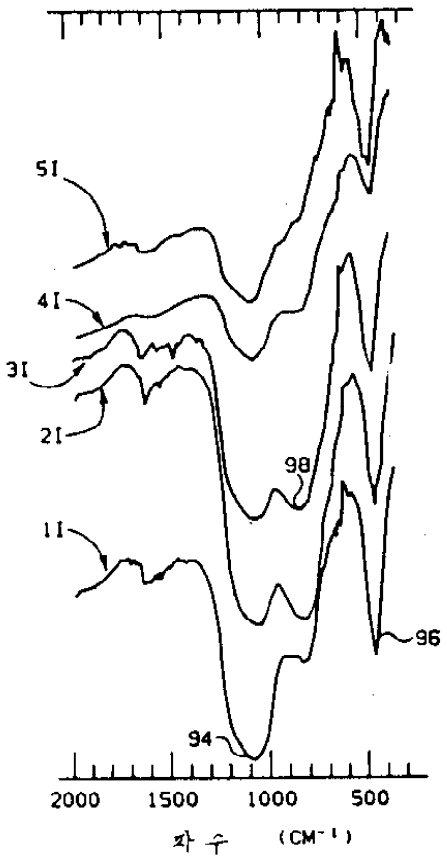
도면3


80
54
76
76b
82
86
78
56
76a
74
88
84
79
88
84
86

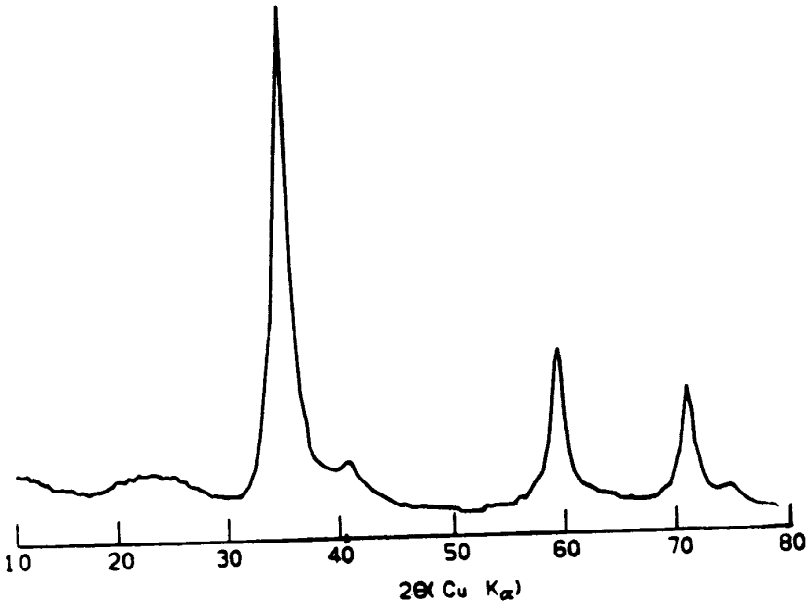
도면4


5X
4X
3X
92
2X
90
1X
10
20
30
40
50
2θ (Cu Kα)

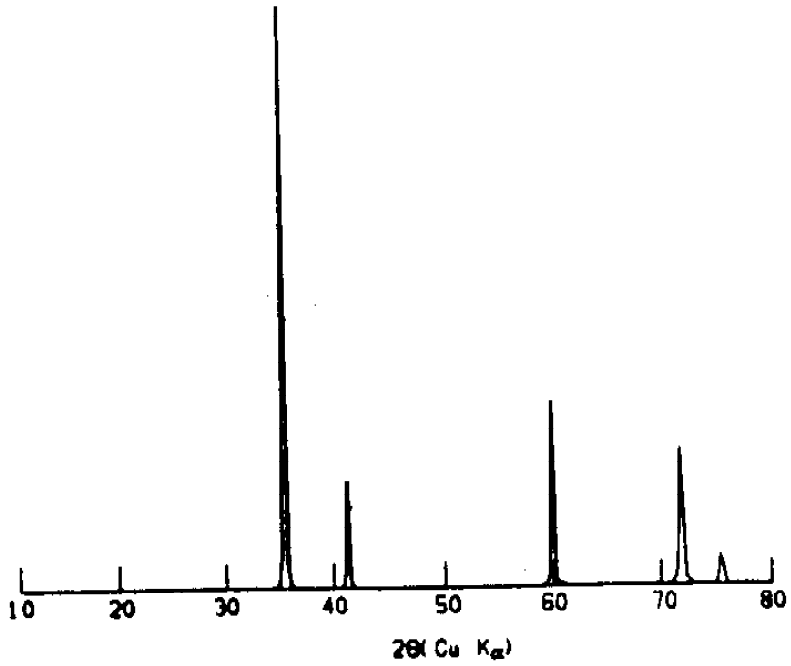
도면5


5I
4I
3I
2I
1I
98
96
94
2000
1500
1000
500
파 수 (CM⁻¹)

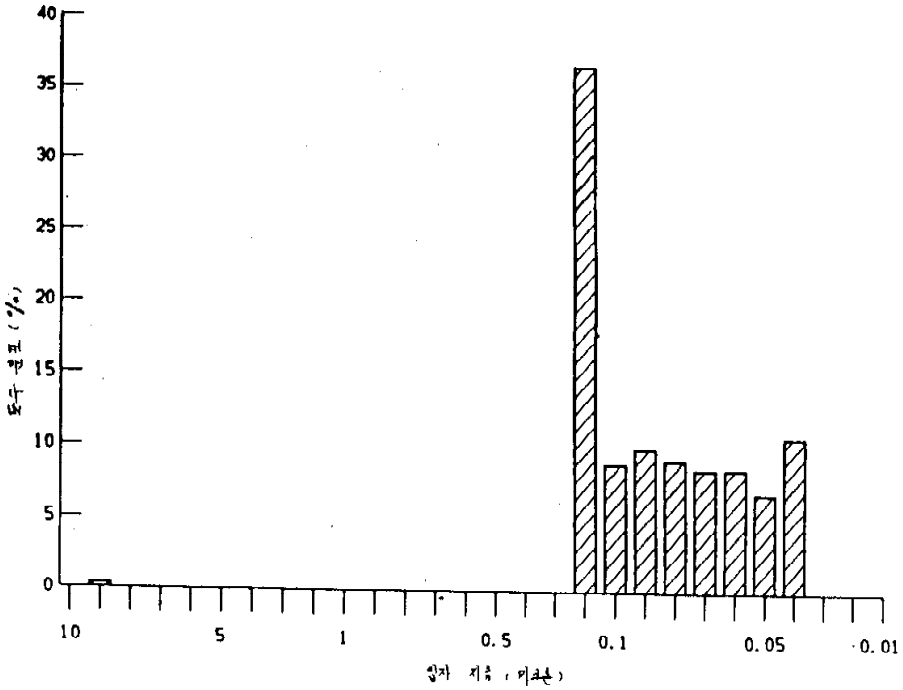
도면6


10
20
30
40
50
60
70
80
2θ(Cu Kα)

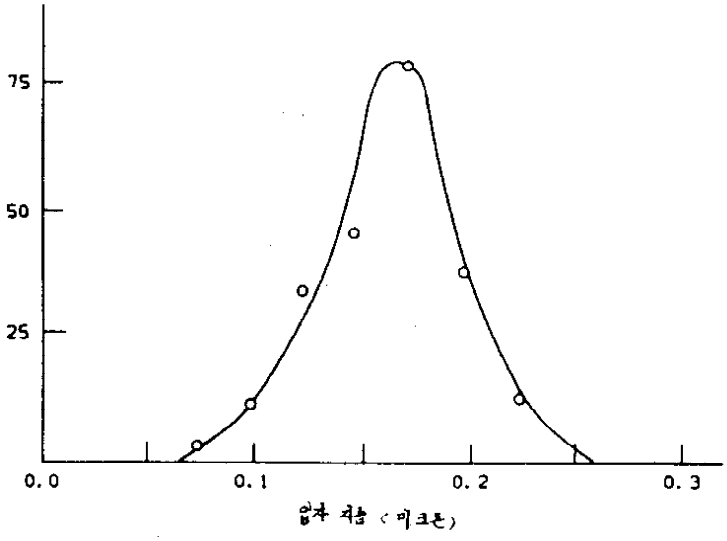
도면7


10
20
30
40
50
60
70
80
2θ(Cu Kα)

도면8


40
35
30
25
20
15
10
5
0
10
5
1
0.5
0.1
0.05
0.01

도면9



도면10

