

發明專利說明書

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：96114842

※申請日期：96 年 04 月 26 日

※IPC 分類：B27F 9/00, (2006-01)

1/02, 2006-01

C22 33/00, 2006-01

一、發明名稱：

(中) 芯／殼複合奈米粒之製造方法
(英)

二、申請人：(共 2 人)

1. 姓 名：(中) 豐田自動車股份有限公司

(英) TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA

代表人：(中) 1. 岡本一雄

(英) 1. OKAMOTO, KAZUO

地 址：(中) 日本國愛知縣豐田市豐田町一番地

(英) 1, Toyota-cho, Toyota-shi, Aichi-ken, 471-8571 Japan

國籍：(中英) 日本 JAPAN

2. 姓 名：(中) 國立大學法人京都大學

(英) KYOTO UNIVERSITY

代表人：(中) 1. 尾池和夫

(英) 1. OIKE, KAZUO

● 地 址：(中) 日本國京都府京都市左京區吉田本町

(英) Yoshidahonmachi, Sakyo-ku, Kyoto-shi, Kyoto 606-8501, Japan

國籍：(中英) 日本 JAPAN

三、發明人：(共 6 人)

1. 姓 名：(中) 庄司哲也

(英) SHOJI, TETSUYA

國 籍：(中) 日本

(英) JAPAN

2. 姓 名：(中) 中村直樹

(英) NAKAMURA, NAOKI

國 籍：(中) 日本

(英) JAPAN

3.姓 名：(中) 加藤晃
(英) KATO, AKIRA
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

4.姓 名：(中) 山本真平
(英) YAMAMOTO, SHINPEI
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

5.姓 名：(中) 高野幹夫
(英) TAKANO, MIKIO
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

●.姓 名：(中) 小野輝男
(英) ONO, TERUO
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家（地區）申請專利 ☐ 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1.日本 ; 2005/10/28 ; 2005-315132 ☒ 無主張優先權

3.姓 名：(中) 加藤晃
(英) KATO, AKIRA
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

4.姓 名：(中) 山本真平
(英) YAMAMOTO, SHINPEI
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

5.姓 名：(中) 高野幹夫
(英) TAKANO, MIKIO
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

●.姓 名：(中) 小野輝男
(英) ONO, TERUO
國 籍：(中) 日本
(英) JAPAN

四、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家（地區）申請專利 ☐ 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家（地區）；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2005/10/28 ; 2005-315132 ☒ 無主張優先權

(1)

九、發明說明

【發明所屬之技術領域】

本發明是有關一種製造芯/殼複合奈米粒子的方法，其為在奈米尺寸的芯粒子上包覆殼。

最近，奈米複合材料為讓有不同特性的 2 相，於奈米尺度（數十 nm 以下）下，使之微細地混合存在，可以發揮塊狀的複合材料以及單相材料所得不到的優異的特性，漸漸地獲得矚目。

【先前技術】

舉奈米複合材料的一種代表性的形態，有人提案一種芯/殼複合奈米粒子：以具有有用的特性的奈米粒子（所謂的機能性奈米粒子）做為芯，在其表面包覆具有與芯不同特性的殼。

在做為芯的機能性奈米粒子之中，持有結晶構造為規則構造和不規則構造之兩種狀態，很多情形只有處於規則構造才可以發揮有用的特性。像這樣的機能性奈米粒子，一般是可以藉由化學的溶液合成法來生成，但是剛合成時的奈米粒子處於不規則構造的狀態。以此狀態來說，無法顯出其原來的機能特性。

因此，即使在剛合成的奈米粒子上包覆殼後，也無法發揮其做為芯/殼複合粒子所被期待的特性。

在此，一般認為在芯/殼複合狀態下，於超過芯粒子的規則・不規則變態點的溫度下對芯粒子進行熱處理，將

芯粒子變換為規則構造便可。但是在現實中，規則・不規則變態點多半是高溫，其將使芯以及殼的原子活潑地擴散，在芯/殼之間，成分元素容易發生相互擴散，原本純然地呈 2 相分離的芯/殼複合構造於是崩壞。

為了回避此現象的發生，有必要在殼形成以前，便事先對奈米粒子施行熱處理，使之成為規則構造。但是奈米尺寸的微粒子非常容易凝集，在熱處理溫度下，容易燒結起來，有無法維持奈米尺寸並規則化的問題存在。

在此，本申請人們的一部分的人，於日本專利申請案之特願 2005-261617 申請案中，提案了一種方法：先在奈米粒子上包覆燒結防止用的障壁層之後，再施行熱處理。障壁層則在熱處理之後除去。藉此，便變得可以維持奈米尺寸並規則化。

但是，通常障壁層的除去是藉由在水溶液之中的處理來進行，但是由於表面已露出的奈米粒子很容易被溶劑的水所氧化，因此便使之向沒有氧化的危險的有機溶劑中移動。此時之際，從水中向有機溶劑的奈米粒子的移動是使用相間移動觸媒來進行。

但是，在上述提案的方法中，分散於有機溶劑的奈米粒子的表面有做為相間移動觸媒堅固地密接在其上而包覆著，因此如此狀態，會有奈米粒子的表面上無法進行形成殼的反應的問題存在。

在此，現在要求一種製造芯/殼複合奈米粒子的方法，其係將藉由障壁層防止燒結的狀態下，經過事先的熱處

理而使之成為特定結晶構造的奈米粒子做為芯，在其表面形成殼的方法，排除因相間移動觸媒等的強密接性的分散劑妨礙到殼的形成反應，而發揮優越的特性。

以往，有人提案種種方法，為有關具有芯/殼複合構造之機能性奈米粒子的生成。

在日本專利公報的特開平 6-69017 號公報以及特開平 6-69018 號公報之中，記載著使做為芯的肥粒體（Ferrite）微粒子懸濁於水中，在其中再加上分散劑和金屬離子的水溶液，再藉著將所得到的混合懸濁液予以加熱處理，在肥粒體微粒子表面上形由尖晶石肥粒體（Spinel Ferrite）所組成的殼之複合肥粒體磁性粉的製造方法。在殼的形成步驟中所使用的分散劑必需是不會阻礙殼的形成反應的，但是於芯粒子形成步驟中所使用的分散劑並不一定適用於殼的生成反應。在日本專利公報的特開平 6-69017 號公報以及特開平 6-69018 號公報之中，從此觀點來看，以芯和殼來說並沒有考慮到靈活運用形成時的分散劑無法確實製造芯/殼複合奈米粒子。還有，其中也沒有暗示任何有關有必要用以將芯變成規則構造的特定的結晶構造的熱處理的情形。

在日本專利公報特開 2005-103746 號公報之中，開示著在做為芯的半導體奈米粒子上包覆做為殼的有機物之際，在界面活性劑或是兩親媒性有機化合物的存在下，使奈米粒子從水性溶劑中移行到油性溶劑中。但是其中並未暗示有關是否有必要用以使芯成為規則構造等的特定的結晶

構造之熱處理。

在日本專利公報特開 2005-48250 號公報之中，開示了藉由在 FePt 奈米粒子的表面上附著上界面活性劑，使得奈米粒子以既定的間隔單一地分散，但是其中沒有任何暗示是有關芯/殼複合構造，因此其中沒有暗示有關有必要用以使芯成為規則構造等的特定結晶構造的熱處理的狀況。

在日本公開公報 2004-528550 號公報之中，開示著在對可磁化的微粒子施行包覆之際，使用界面活性劑，但是其中沒有針對有必要用到使芯成為規則構造等的特定結晶構造的熱處理的狀況。

【發明內容】

本發明的目的在於提供一種製造芯/殼複合奈米粒子的方法，其為以藉著障壁層防止燒結的狀態下，事先對其進行熱處理使成為特定的結晶構造之奈米粒子做為芯，在其表面形成殼的方法，其排除了因相間移動觸媒等之強密接性的分散劑所導致之對殼形成的妨礙，而發揮了優異的特性。

為了達成上述目的，若根據本發明，可提供一種芯/殼複合奈米粒子的製造方法，其為在奈米尺寸的芯粒子上包覆殼的芯/殼複合奈米粒子之製造方法，其特徵為包含：

準備第 1 溶液的步驟：藉由第 1 分散劑將芯粒子分散

(5)

於第 1 有機溶劑之中，成為第 1 溶液，該芯粒子成為可展現必要的特性之結晶構造而事先施行熱處理；

回收步驟：藉著在該第 1 溶液之中添加極性溶劑，從該芯粒子剝離去除該第 1 分散劑，使該奈米粒子凝集而回收；

形成第 2 溶液的步驟：利用第 2 分散劑分散該回收的芯粒子於第 2 有機溶劑之中，成為第 2 溶液；以及，

形成殼之步驟：在該第 2 溶液之中添加該殼的前驅體，在該芯粒子的表面形成該殼。

若根據本發明的方法的話，即使使完成熱處理的芯粒子分散的第 1 分散劑為會阻礙對芯粒子表面形成殼的反應的相間移動觸媒等之分散劑的情形，先添加極性溶劑，從芯粒子剝離除去第 1 分散劑，使芯粒子凝集，藉著選擇不會阻礙殼形成反應的分散劑，做為賦與已凝集的芯粒子的第 2 分散劑，便可以形成殼，所以可以在奈米尺寸的已完成熱處理的芯粒子上，包覆上既定的殼，得到具有優異特性的芯/殼複合奈米粒子。

【實施方式】

（用以實施發明之最佳形態）

做為本發明之製造方法的一實施形態。其以 $L1_0$ -FePt 的奈米粒子做為芯，以 Fe 做為殼包覆 $L1_0$ -FePt 芯/Fe 殼複合奈米粒子為例作說明。

在此， $L1_0$ -FePt 芯/Fe 殼複合奈米粒子，其中 $L1_0$ 具

有規則結晶構造之 $L1_0$ -FePt 為具有極大的矯頑磁力（超硬磁性，super hard magnetic），藉由在此上包覆磁化很大的 Fe（軟磁性，soft magnetic），可以期待得到具有半硬磁性（semi-hard magnetic）的磁性奈米粒子，其適用於例如硬碟之類的磁氣記錄媒體以及馬達用高性能永久磁石。

在此參考圖 1，說明本發明的製造方法以及其前過程。

前過程是由用以規則化芯粒子之熱處理（P2）和其前處理（P1）以及後處理（P3、P4）所組成。

FePt 奈米粒子是典型地利用 $Fe(CO)_5$ 和 $Pt(acac)_2$ 所有機合成的。 $FePt$ 合金的規則・不規則變態點處於 $900^\circ C$ 左右，一般而言，整塊材料的情形在常溫下是取規則構造。可是在奈米粒子的情形，即使於常溫下，也是取不規則構造，要使之成為規則構造的話，有必要在 $550^\circ C$ 的高溫下，更期待的是在超過變態點（transition point）的高溫之下進行熱處理。但是，奈米尺度的微粒子非常地容易凝集，就此加以熱處理的話，粒子彼此間會燒結在一起，無法確保奈米粒子的狀態。

在此，做為前處理，於步驟 P1 中，在 $FePt$ 奈米粒子的表面例如形成 SiO_2 被膜做成防止燒結的障壁層。此時，藉由利用水溶液之處理來進行。

接著，於步驟 P2 中，藉著在 $550^\circ C$ 以上或是變態點（約 $900^\circ C$ ）以上的高溫下，施行熱處理，可得到具有 $L1_0$ 規則結晶構造之 $L1_0$ -FePt 奈米粒子。但是 SiO_2 對於此

熱處理是很安定的，所得到的 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子的表面為 SiO_2 被膜所覆蓋的狀態，以此狀況下，無法在 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子的表面形成殼。

在此，於做為後處理的步驟 P3 中，藉由在鹼性水溶液中處理，將此 SiO_2 被膜溶解除去，露出新的 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子表面。但是，於奈米粒子表面形成殼之 Fe 等純金屬，由於很容易被水氧化，所以無法在水溶液中進行殼形成。

在此，更且在做為後處理於步驟 P4 中，使 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子由水溶液中移動到有機溶劑中。要達成此目的，必須使用相間移動觸媒。相間移動觸媒會密接並包覆於 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子的表面，極為有效地使 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子分散於有機溶劑中。此有機溶劑由於不會氧化屬於殼材料的 Fe 等之純金屬，所以可以提供一個合適的反應環境，用以安全地進行 Fe 殼的形成。

但是，相間移動觸媒，一般而言都是分子量很大，也是具有很多分歧的構造，其將會強力地密接於 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子的表面，妨礙物質從外部到達粒子表面。因此，為了要進行在 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子形成殼的處理，必須從 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子表面除去相間移動觸媒。

在此，如以下所說明般地，適用本發明的步驟。

本發明的步驟為除去相間移動觸媒，再利用別的分散劑分散奈米粒子於別有機溶劑之中，在此狀態之下，進行殼的形成。

首先在步驟 1 之中，準備在前工程中的最終步驟中 P4 中所得到的溶液做為第 1 溶液。也就是說，第 1 溶液是做為第 1 分散劑的相間移動觸媒所強力地密合包覆著的 $L1_0\text{-FePt}$ 芯粒子，係分散於做為第 1 有機溶劑的上述有機溶劑之中。

接著，於步驟 2 中，使用極性溶劑，從 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子表面剝離除去第 1 分散劑（相間移動觸媒）。由於相間移動觸媒是做為使 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子分散於有機溶劑中之分散劑而作用，所以除去掉相間移動觸媒的 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子會在有機溶劑中發生凝集。將此回收，使用在下一個步驟。

舉極性溶劑而言，屬於極性比較弱的甲醇、乙醇、丙醇程度的低級醇是較為合適的。舉其他的極性溶劑而言，例如丙酮的極性過於強大，經剝離除去了相間移動觸媒的奈米粒子會強力地凝集，在下一步驟裏，要藉由添加的第 2 分散劑來分散奈米粒子會變得很困難。還有水也是極性溶劑，但是如前過程中所說明般地，因為其氧化性很強，會氧化屬於殼的形成材料的純金屬，所以理所當然地不能使用。筆者認為做為極性溶劑的性質所被期待的是：黏性不能過大，具有兩親媒性等。

接著，於步驟 3 中，將在步驟 2 之中所回收的 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子凝集物，分散於包含有第 2 分散劑的第 2 有機溶劑中，將之做為第 2 溶液。舉此第 2 分散劑的例子，可選擇不會阻礙下一步驟的殼形成反應，而且在殼形成溫

度下為安定（不會沸騰或是熱分解）者。

接著，於步驟 4 中，在於步驟 3 之中所作成的第 2 溶液裏，添加殼前驅體，藉著保持殼形成溫度，於 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子的表面形成殼（例如： Fe 被膜）。舉殼前驅體而言，典型的例子可以使用含有殼的構成元素的有機錯體，舉 Fe 殼的前驅體而言，例如像 $\text{Fe}(\text{CO})_5$ 或是 $\text{Fe}(\text{acac})_3$ 都是合適的。於殼形成溫度中， $\text{Fe}(\text{CO})_5$ 藉著熱分解反應， $\text{Fe}(\text{acac})_3$ 藉著還原反應，可在殼表面析出 Fe 形成殼。

藉著以上的過程，可以得到 $L1_0\text{-FePt}$ 芯/ Fe 殼複合奈米粒子，其以 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子為芯，在其表面上包覆 Fe 殼。

（實施例）

藉著本發明的方法，以下面的順序，製作 $L1_0\text{-FePt}$ 芯/ Fe 殼複合奈米粒子。

[步驟 1：準備第 1 溶液…藉著前步驟完成]

藉由圖 1 所示的前過程，（步驟 P1） SiO_2 被膜形成、（步驟 P2）熱處理、（步驟 P3） SiO_2 被膜剝離。（步驟 P4）進行向有機溶劑的移動，得到溶液，將之做為第 1 溶液使用。以此前過程而言，將於步驟 P1 之中經有機合成的 FePt 奈米粒子在 TEOS 水溶液中處理，形成 SiO_2 被膜，就步驟 P2 而言，於 $5\%\text{H}_2+\text{Ar}$ 的混合氣體環境氣體中，進行 $900^\circ\text{C} \times 1$ 小時的熱處理，做成 $L1_0\text{-FePt}$ 奈米粒子，

在步驟 P3 之時，將之於 $N(\text{Me})_4\text{OH}$ 鹼水溶液中處理，溶解除去 SiO_2 被膜，在步驟 P4 之中，則是使用溴化十六烷基三甲基銨（boromo-hexadecyl tri-methyl ammonium）做為相間移動觸媒，使 $\text{L1}_0\text{-FePt}$ 奈米粒子從水溶液移動到有機溶劑的氯仿之中，做成第 1 溶液。

也就是說：第 1 溶液是藉由相間移動觸媒之溴化十六烷基三甲基銨將經熱處理而規則化的 $\text{L1}_0\text{-FePt}$ 奈米粒子分散於第 1 有機溶劑之氯仿之中。

[步驟 2：添加極性溶劑]

在第 1 溶液（15g）之中，添加極性溶劑之乙醇（40g），於 1000rpm 進行 10 分鐘的離心分離，藉此回收 $\text{L1}_0\text{-FePt}$ 奈米粒子的凝集物。

[步驟 3：第 2 溶液的製作]

使回收的 $\text{L1}_0\text{-FePt}$ 奈米粒子分散於含有油酸（0.1g）以及十八烯胺（0.1g）做為第 2 分散劑之有 2 有機溶劑之 n-癸醚（7.71g）之中，將之做為第 2 溶液。

[步驟 4：殼的形成]

於氬氣體環境氣體之下，於殼形成溫度的 170°C 之下保持第 2 溶液，每隔 1 小時，就添加 0.2ml 的 Fe 殼前驅體的 $\text{Fe}(\text{CO})_5$ ，反應時間設為 4 小時，合計進行四次的添加。

在此做為第 2 分散劑而使用的油酸以及十八烯胺在至 350℃ 為止的溫度中，是安定的，於殼形成溫度的 170℃ 中，不會沸騰也不會發生熱分解，而且不會阻礙殼形成反應。

藉著以上的處理，得到 L1₀-FePt 芯/Fe 殼複合奈米粒子，其為將粒徑 5~10nm 的 L1₀-FePt 奈米粒子做為芯，在其表面包覆厚度約 2nm 的 Fe 殼。

在圖 2 之中，顯示所得到的複合奈米粒子的穿透式電子顯微鏡照片。於觀察視野內之中，黑色圓粒為做為芯之 L1₀-FePt 奈米粒子，環繞在其周圍的灰色環狀部分則是由 Fe 所形成的殼。複合奈米粒子之間的明亮的區域則是做為第 2 分散劑而使用的油酸以及十八烯胺。

得到的 L1₀-FePt 芯/Fe 殼複合奈米粒子，其中具有 L1₀ 規則結晶構造的 L1₀-FePt 是擁有極為強大矯頑磁力（超硬磁性），在這之上，藉著包覆上磁化大的 Fe（軟磁性），是做為具半硬磁性之磁性奈米粒子為有用的，其適用於例如像是硬碟之類的磁氣記錄媒體或是馬達用的高性能永久磁石。為了將半硬磁性因應期望調整，於步驟 4 的殼形成處理中，可增減殼前驅體的總添加量（各次的添加量×添加次數），來增減相對於芯直徑的殼厚度的比例。

以上，針對在 FePt 芯上形成 Fe 殼之情形的具體例，來說明本發明的方法，但是可以適用於本發明的芯/殼的組合則沒有必要限定於此。例如只在磁性範疇的情形，也可針對以下般地多種多樣的組合，來適用本發明。

[芯：磁性奈米粒子的例子]

FePt 磁性奈米粒子…（藉由實施例說明）

FePd 磁性奈米粒子

Nd₂Fe₁₄B 磁性奈米粒子

Sm₂Co₁₇ 磁性奈米粒子

MnBi 磁性奈米粒子

[殼：磁性殼的例子]

Fe…（藉由實施例說明）

FeCo 合金

FeNi 合金

FeMn 合金

Co

CoNi 合金

CoMn 合金

Ni

NiMn 合金

Mn

Fe、Co、Ni、Mn 的三元合金或是四元合金（以種種的組成比）

以上是針對磁性範疇例示本發明的適用對象，但是即使其他的範疇，也可以製造奈米粒子，只要是可以在其表面形成殼的組合的話，都可以適用本發明。

(產業上利用的可能性)

若是根據本發明的話，可提供一種製造芯/殼複合奈米粒子的方法，其為以奈米粒子為芯，其藉由障壁層防止燒結，並事先經過熱處理，形成特定的結晶構造，而後在該表面上形成殼的方法，其可排除因為相間移動觸媒等之強力密接性的分散劑造成對殼形成反應的妨礙，而發揮優異的特性。

【圖式簡單說明】

圖 1 是將根據本發明之步驟包含其和之前的步驟之連結一起顯示的流程圖。

圖 2 是藉由本發明的方法所製造的 $L1_0$ -FePt 芯/Fe 殼複合奈米粒子的穿透式電子顯微鏡的照片。

【主要元件符號說明】

P1：前步驟之步驟 P1

P2：前步驟之步驟 P2

P3：前步驟之步驟 P3

P4：前步驟之步驟 P4

1：依照前步驟所成之步驟 1(準備第 1 溶液)

2：步驟 2(添加極性溶劑)

3：步驟 3(製作第 2 溶液)

4：步驟 4(形成殼)

五、中文發明摘要

發明之名稱：芯/殼複合奈米粒之製造方法

本發明為提供一種製造芯/殼複合奈米粒子的方法，其係以防止燒結並事先經過熱處理，使成為特定的結晶構造的奈米粒子為芯，在其表面形成殼的方法，其可避免相間移動觸媒等之強密接性的分散劑妨礙殼形成反應，並發揮優越的特性。本發明之芯/殼複合奈米粒子的製造方法為在奈米尺寸的芯粒子上包覆上殼之芯/殼複合奈米粒子的製造方法，其特徵為將為展現必要的特性，使其形成結晶構造而事先施行熱處理的芯粒子，藉由第 1 分散劑分散芯粒子於第 1 有機溶劑之中，形成第 1 溶液。再藉著添加極性溶劑於第 1 溶液之中，從該芯粒子剝離去除該第 1 分散劑，使該奈米粒子凝集後回收之，並藉著第 2 分散劑將該回收之芯粒子分散於第 2 有機溶劑之中，形成第 2 溶液。最後添加該殼的前驅體於第 2 溶液之中，在該芯粒子的表面形成該殼。

六、英文發明摘要

發明之名稱：

十、申請專利範圍

1.一種芯/殼複合奈米粒子的製造方法，其係於奈米尺寸的芯粒子上包覆殼的芯/殼複合奈米粒子的製造方法，其特徵為包含：

準備第 1 溶液的步驟：芯粒子係藉由第 1 分散劑分散於第 1 有機溶劑中而成為第 1 溶液，該芯粒子預先施予為展現必要特性之結晶構造之熱處理；

回收的步驟：藉著添加極性溶劑於該第 1 溶液之中，從該芯粒子剝離去除該第 1 分散劑，而使該奈米粒子凝集後回收之；

形成第 2 溶液的步驟：藉著第 2 分散劑，分散該回收之芯粒子於第 2 有機溶劑之中，成為第 2 溶液，以及，

形成殼的步驟：添加該殼之前驅體於第 2 溶液之中，在該芯粒子的表面形成殼。

2.如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該極性溶劑為醇類。

3.如申請專利範圍第 1 項或第 2 項之方法，其中該第 2 分散劑於該殼之形成溫度中為安定。

4.如申請專利範圍第 1 項至第 3 項中任一項之方法，其中該第 1 分散劑為相間移動觸媒。

圖 1

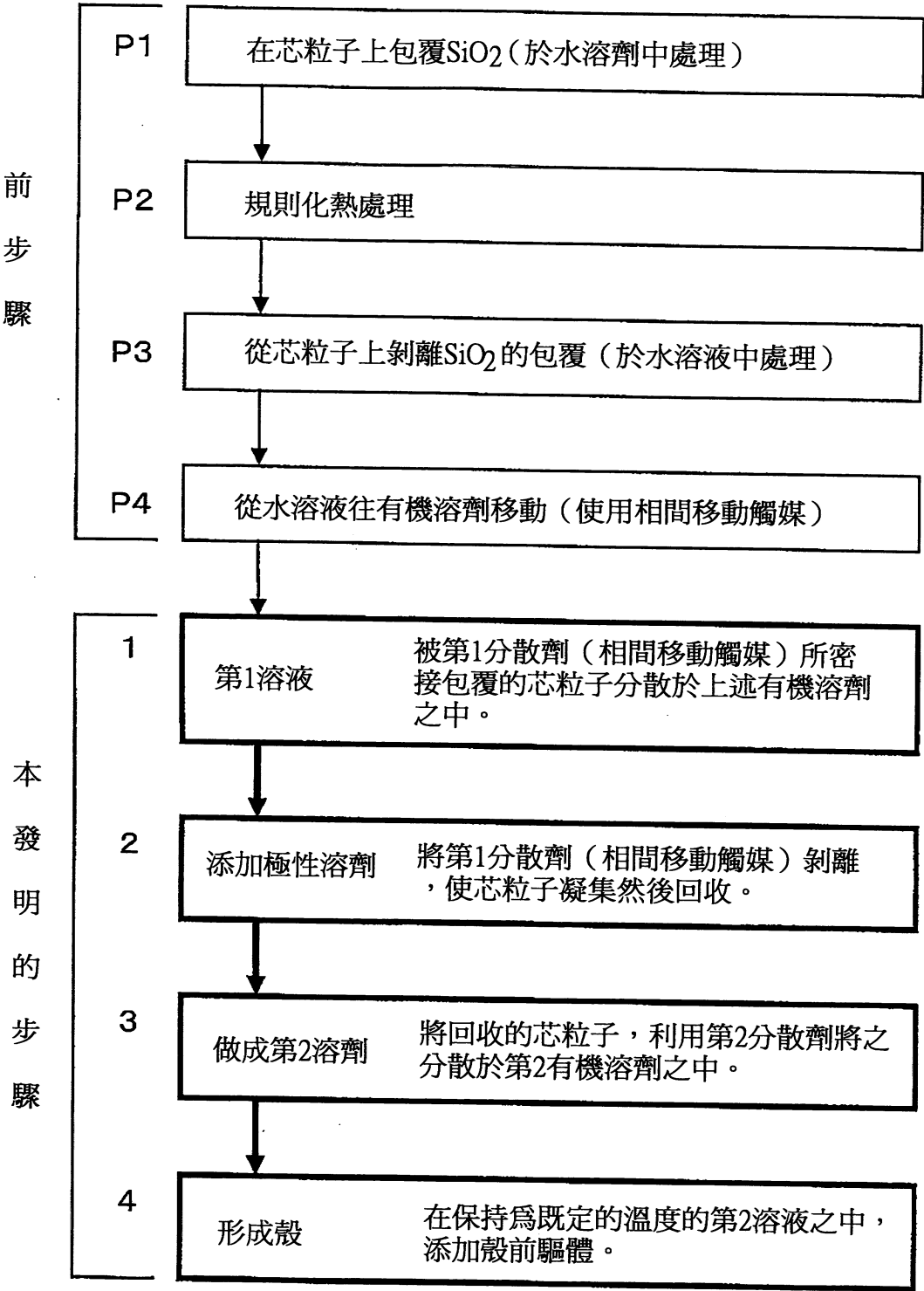
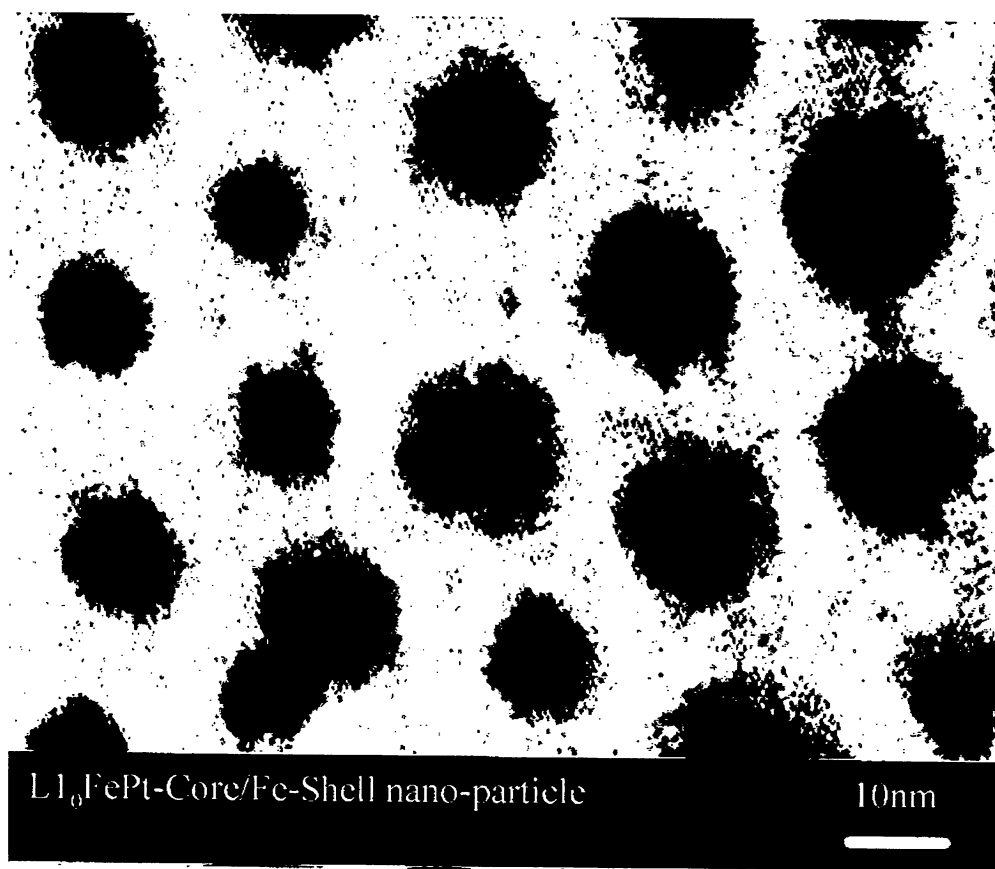


圖2



七、指定代表圖：

(一)、本案指定代表圖為：第 (1) 圖

(二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明：

P1：前步驟之步驟 P1

P2：前步驟之步驟 P2

P3：前步驟之步驟 P3

P4：前步驟之步驟 P4

1：依照前步驟所成之步驟 1(準備第 1 溶液)

2：步驟 2 (添加極性溶劑)

3：步驟 3 (製作第 2 溶液)

4：步驟 4 (形成殼)

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：