



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公告本

(11) 證書號數：TW I548591 B

(45) 公告日：中華民國 105 (2016) 年 09 月 11 日

(21) 申請案號：104107111

(22) 申請日：中華民國 104 (2015) 年 03 月 06 日

(51) Int. Cl. : C01F7/00 (2006.01)

(71) 申請人：國家中山科學研究院 (中華民國) NATIONAL CHUNG-SHAN INSTITUTE OF SCIENCE AND TECHNOLOGY (TW)

桃園市龍潭區中正路佳安段 481 號

(72) 發明人：賴冠廷 LAI, KUAN TING (TW)；許志維 HSI, CHI-SHIUNG (TW)；楊旻諭 YANG, MIN YU (TW)

(56) 參考文獻：

TW 201348125A

CN 101973534A

JP 3-62643B2

審查人員：廖學章

申請專利範圍項數：10 項 圖式數：4 共 13 頁

(54) 名稱

一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法

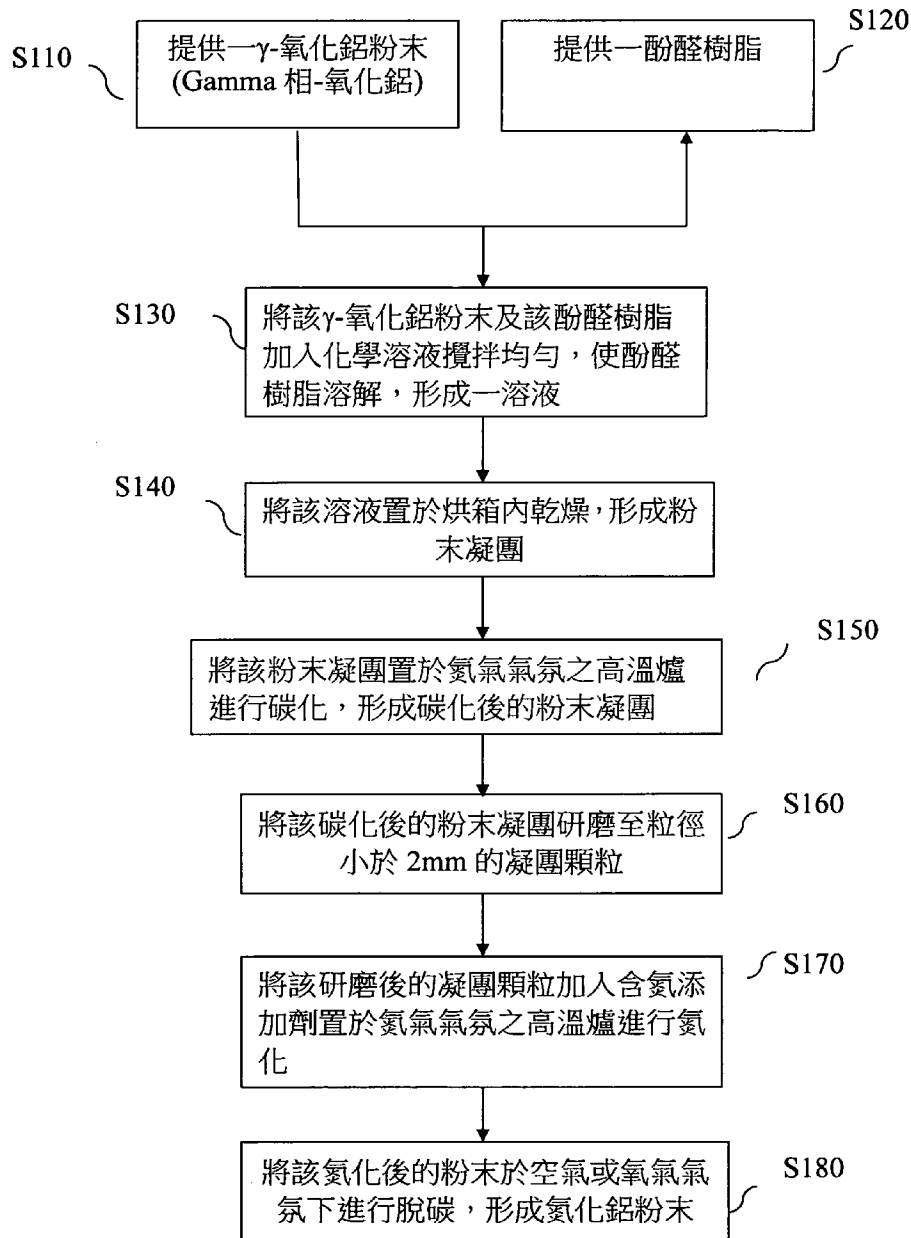
(57) 摘要

本發明係一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法，一種以化學溶液法將碳材料均勻包覆於  $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)表面，過程包含原料混合、碳化、碳熱還原、脫碳，將酚醛樹脂與  $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)混合形成溶液，溶液乾燥後，再於高溫氮氣氛條件下碳化，碳化後經過 1400°C~1700°C 溫度條件下進行碳熱還原，再於空氣中進行脫碳作業，碳熱還原進行過程中加入氨氣或氫氣以調整反應氣氛，並加入尿素增加鋁的氮化反應，本方法可將碳與氧化鋁粉末均勻混合且減少碳的使用量，經由氣氛的控制可降低氮化反應的生成溫度，並獲得次微米的氮化鋁粉末。

指定代表圖：

符號簡單說明：

S110~S180 . . . 一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末之步驟



第 1 圖

## 發明摘要

公告本

※ 申請案號：104107111

※ 申請日：104.3.6

※ IPC 分類：C01F 7/00

## 【發明名稱】(中文/英文)

一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法

## 【中文】

本發明係一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法，一種以化學溶液法將碳材料均勻包覆於 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma相-氧化鋁)表面，過程包含原料混合、碳化、碳熱還原、脫碳，將酚醛樹脂與 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma相-氧化鋁)混合形成溶液，溶液乾燥後，再於高溫氮氣氣氛條件下碳化，碳化後經過 $1400^{\circ}\text{C}\sim 1700^{\circ}\text{C}$ 溫度條件下進行碳熱還原，再於空氣中進行脫碳作業，碳熱還原進行過程中加入氨氣或氫氣以調整反應氣氛，並加入尿素增加鋁的氮化反應，本方法可將碳與氧化鋁粉末均勻混合且減少碳的使用量，經由氣氛的控制可降低氮化反應的生成溫度，並獲得次微米的氮化鋁粉末。

## 【英文】

**【代表圖】**

**【本案指定代表圖】**：第1圖。

**【本代表圖之符號簡單說明】**：

S110 ~ S180 一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末之步驟

**【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，請勿任意更動)

## 【發明名稱】(中文/英文)

一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法

## 【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種製備氮化鋁粉末的方法，特別是一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法。

## 【先前技術】

【0002】 常見氮化鋁合成方式有：化學氣相沉積法、有機金屬前驅物法、直接氮化法、碳熱還原法、燃燒合成法等。相較而言，碳熱還原法可以簡單的製程，製得高純度、粒徑細、性能穩定的氮化鋁粉末，為最常被使用的氮化鋁粉末製備方法。傳統上以碳黑與氧化鋁粉末混合，再以碳熱還原法製備氮化鋁粉末。碳黑與氧化鋁粉末混合均勻度不易控制，需在大於 1600°C 的較高溫度下合成氮化鋁粉末，且其具有較高的碳黑混合比率(氧化鋁及碳黑重量比為 1:0.36)，造成脫碳過程需較長時間達成。

## 【發明內容】

【0003】 本發明以化學溶液法將碳材料均勻包覆於 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)表面，經由氣氛控制的碳熱還原法製備氮化鋁粉末可用較少的碳含量，在較低的溫度下合成氮化鋁。

【0004】 先將 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma相-氧化鋁)及酚醛樹脂以重量比為1:0.4~0.8的比率均勻混合，混合後加入40%~60%的乙醇水溶液，將酚醛樹脂溶解，形成均勻混合的溶液，再將溶液置於烘箱中加熱烘乾成粉末凝團。

【0005】 烘乾後的粉末凝團於 $500^{\circ}\text{C}\sim 700^{\circ}\text{C}$ 的溫度條件下進行碳化，酚醛樹脂即轉換為碳黑，並在氧化鋁表面形成均勻鍍層。

【0006】 碳化後的粉末聚集成團，先經初碎過程將粉末研磨至粒徑小於 $2\text{mm}$ 的凝團顆粒。

【0007】 研磨後的凝團顆粒，再進行氮化形成氮化鋁粉末，氮化時於碳化後的凝團顆粒添加尿素，於溫度約為 $1400^{\circ}\text{C}\sim 1700^{\circ}\text{C}$ 下進行氮化反應，該氮化氣氛可為純氮氣、氮氣加氨氣或氮氣加氫氣。

【0008】 氮化後的粉末於溫度  $600^{\circ}\text{C}\sim 700^{\circ}\text{C}$  的條件下進行脫碳工作，脫碳後的粉末即為氮化鋁粉末。

### 【圖式簡單說明】

#### 【0009】

第1圖係為本發明製備方法之流程圖

第2圖係為使用本發明之方法，氮化氣氛為50%氮氣加50%氨氣，碳化凝團顆粒與尿素重量比為1:0.1產生之氮化鋁粉末的X光繞射圖譜

第3圖為使用本發明之方法，氮化氣氛分別為50%氮氣加50%氨氣、50%氮氣加50%氨氣、95%氮氣:5%氫氣，碳化凝團顆粒未加添加劑產生之氮化鋁粉末的X光繞射圖譜

第4圖為使用本發明之方法，氮化氣氛分別為50%氮氣加50%氨氣、純氮氣，碳化凝團顆粒未加添加劑產生之氮化鋁粉末的X光繞射圖譜

### 【實施方式】

【0010】 本發明主要提供一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法，以下詳細說明本發明之實施方式，熟悉此技藝之人士可由本說明書所揭示內容輕易地瞭解本發明之其它優點與功效。其製備方法如下：

【0011】 (1)如第 1 圖，步驟 S110，提供一 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)，其中該 $\gamma$ -氧化鋁粒徑為 0.08~2 $\mu\text{m}$ 。

【0012】 (2) 如第 1 圖，步驟 S120，提供一酚醛樹脂。

【0013】 (3)如第 1 圖，步驟 S130，將該 $\gamma$ -氧化鋁粉末及該酚醛樹脂混合後，加入化學溶液攪拌均勻，使酚醛樹脂溶解，形成一溶液，其中該化學溶液為濃度 40wt%~60wt%的甲醇、乙醇、異丙醇、或正丁醇水溶液，該 $\gamma$ -氧化鋁粉末與該酚醛樹脂混合之重量比例為 1:0.4~0.8。

【0014】 (4)如第 1 圖，步驟 S140，將經步驟 S130 形成的該溶液置於烘箱內乾燥，形成粉末凝團。

【0015】 (5)如第 1 圖，步驟 S150，將步驟 S140 乾燥後的粉末凝團置於氮氣氣氛，爐內溫度為 500°C~700°C 之高溫爐進行碳化，形成碳化後的粉末凝團。

【0016】 (6)如第 1 圖，步驟 S160，將經過步驟 S150 碳化後的粉末凝團研磨至粒徑小於 2mm 的凝團顆粒。

【0017】 (7)如第 1 圖，步驟 S170，將經步驟 S160 研磨後的凝團顆粒加入添加劑，置於氮氣氣氛，爐內溫度為 1400°C~1700°C 之高溫爐進行氮化，形成粉末，其中該研磨後的凝團顆粒與添加劑的重量比為 1:0.1~1，該添加劑為尿素或疊氮化合物，該氮氣氣氛為純氮氣、氮氣與氫氣之混合氣、氮氣與氨氣之混合氣或純氨氣。

【0018】 (8)如第 1 圖，步驟 S180，將經步驟 S170 氮化後的粉末於空氣或氧氣氣氛下進行脫碳，形成氮化鋁粉末，其中該脫碳時間約為 6 小時～12 小時。

【0019】 以下為描述應用本發明所提方法之具體實施例，並以 X 光繞射圖譜檢驗以本發明所提方法產生之氮化鋁粉末。

#### 【0020】 實施例一

將 80 克的 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)與 32 克的酚醛樹脂均勻混合，再加入 50 克乙醇水溶液混合成均勻的溶液，溶液於溫度約 80°C 的烘箱內烘 1 小時，形成粉末凝團。粉末凝團置於 700°C 的氮氣氣氛高溫爐內進行碳化，碳化時間為 2 小時。碳化後的凝團顆粒添加尿素(碳化粉末與尿素重量比為 1:0.1)，並以升溫速率為 5°C/min，1450°C 持溫 10 小時、1500°C 持溫 10 小時及 1600°C 持溫 7 小時的條件於高溫爐下進行碳熱還原工作，碳熱還原時的氣氛為 50%氮氣加 50%氨氣。碳熱還原後之粉末於空氣中 600°C 進行脫碳工作，持溫 10 小時，除碳後粉末的 X 光繞射圖譜如第 2 圖所示，由繞射結果顯示，粉末皆呈現氮化鋁的單一純相。

#### 【0021】 實施例二

將 80 克的 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)與 32 克的酚醛樹脂均勻混合，再加入 50 克乙醇水溶液混合成均勻的溶液，溶液於約 80°C 的烘箱內烘 1 小時，形成粉末凝團。粉末凝團置於 700°C 的氮氣氣氛高溫爐內進行碳化，碳化的時間為 2 小時。碳化後的粉末以升溫速率為 5°C/min，1500°C 持溫 10 小時、1600°C 持溫 10 小時及 1600°C 持溫 7 小時的條件於高溫爐下進行碳熱還原工作，碳熱還原時的氣氛分別為 50%氮氣加 50%氨氣、95%氮氣加 5%

氫氣，其碳化後之凝團顆粒皆未添加尿素。碳熱還原後之粉末於空氣中 600 °C 進行脫碳工作，持溫 10 小時，除碳後粉末的 X 光繞射圖譜如第 3 圖所示，由繞射結果顯示，粉末皆呈現氮化鋁的單一純相。

### 【0022】 實施例三

將 80 克的  $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)與 32 克的酚醛樹脂均勻混合，再加入 50 克乙醇水溶液混合成均勻的溶液，溶液於約 80 °C 的烘箱內烘 1 小時，形成粉末凝團。粉末凝團置於 700 °C 的氮氣氣氛高溫爐內進行碳化，碳化的時間為 2 小時。碳化後的粉末以升溫速率為 5 °C/min，1500 °C 持溫 10 小時的條件於高溫爐下進行碳熱還原工作，碳熱還原時的氣氛分別為純氮氣、50%氮氣加 50%氫氣，其碳化後之凝團顆粒皆未添加尿素。碳熱還原後之粉末於空氣中 600 °C 進行脫碳工作，持溫 10 小時，除碳後粉末的 X 光繞射圖譜如第 4 圖所示，由繞射的結果顯示，粉末經 50%氮氣加 50%氫氣氣氛下氮化後，呈現氮化鋁的單一純相，粉末於純氮氣下氮化則有  $\alpha$ -氧化鋁(Alfa 相-氧化鋁)的出現。

### 【符號說明】

#### 【0023】

S110 ~ S180 一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末之步驟

### 【生物材料寄存】

國內寄存資訊【請依寄存機構、日期、號碼順序註記】

國外寄存資訊【請依寄存國家、機構、日期、號碼順序註記】

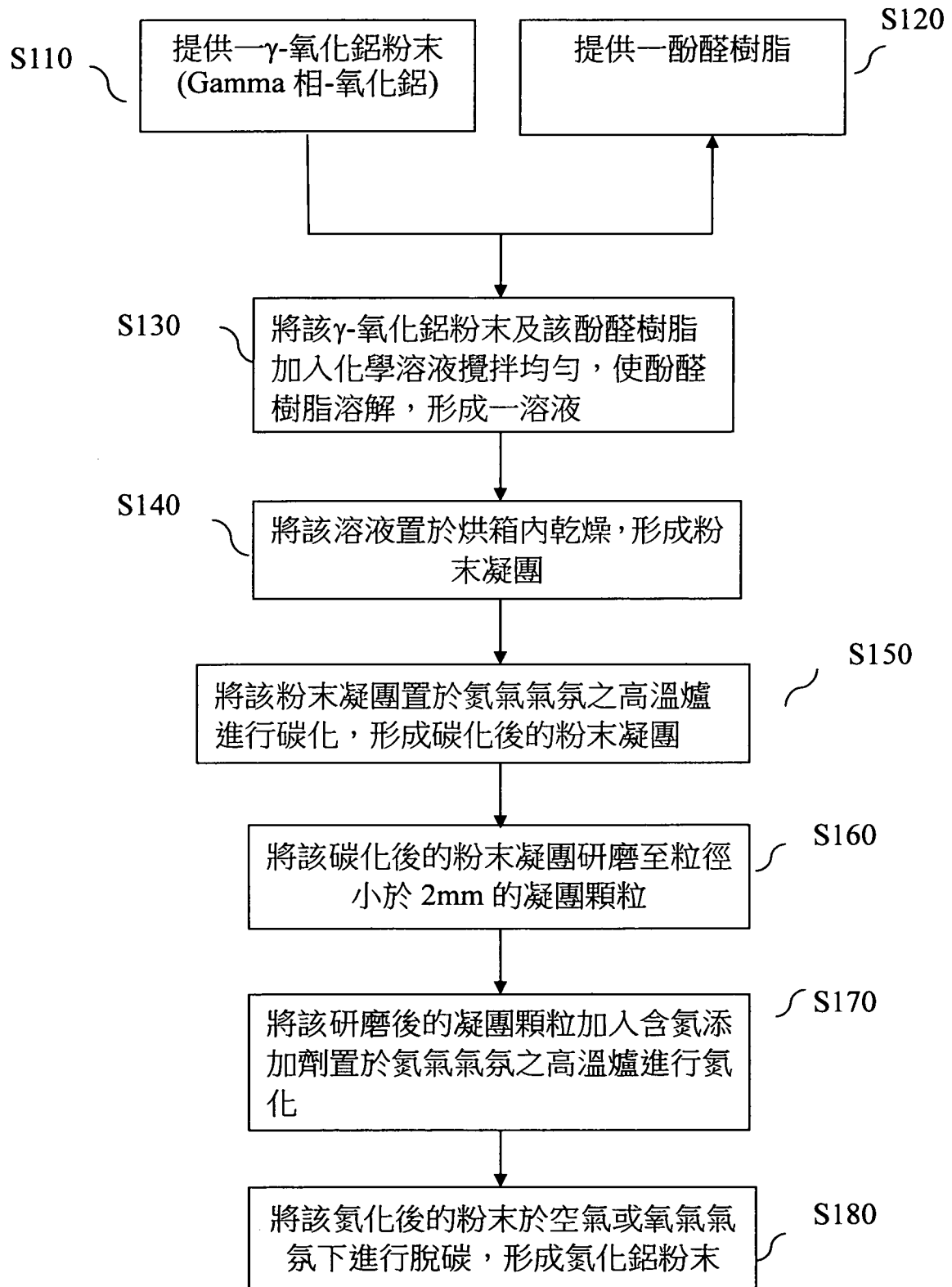
**【序列表】**(請換頁單獨記載)

## 申請專利範圍

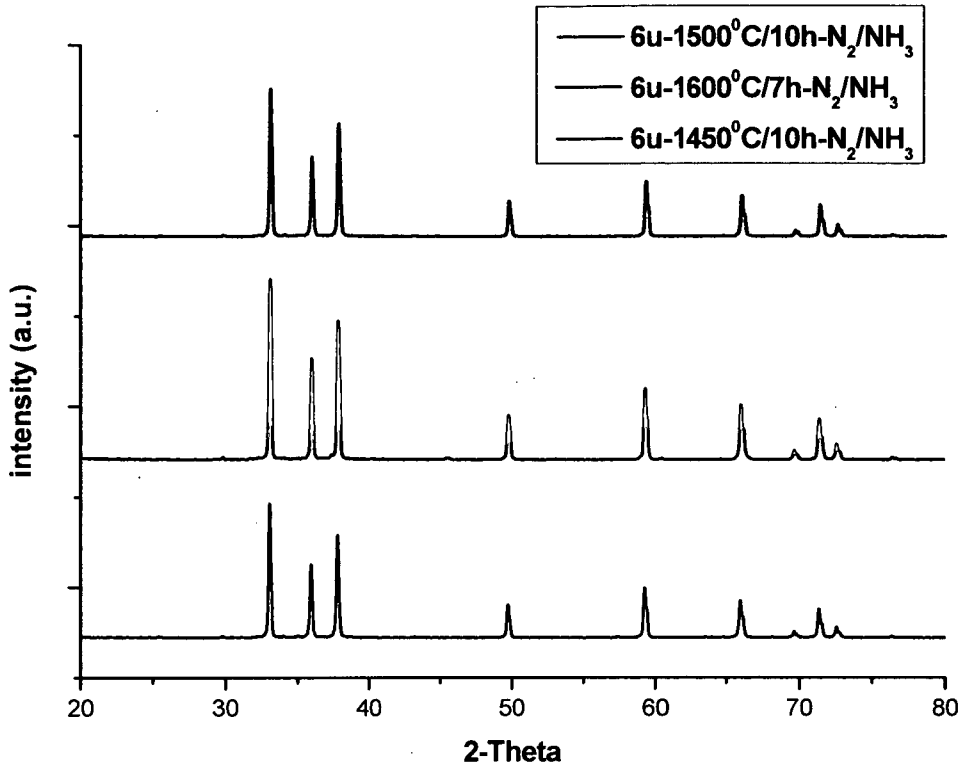
1. 一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法，其包括：
  - (A)提供一 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)；
  - (B)提供一酚醛樹脂；
  - (C)將該 $\gamma$ -氧化鋁粉末及該酚醛樹脂加入化學溶液攪拌均勻，使酚醛樹脂溶解，形成一溶液；
  - (D)將該(C)步驟形成的溶液置於烘箱內乾燥，形成粉末凝團；
  - (E)將該粉末凝團置於氮氣氣氛之高溫爐進行碳化，形成碳化後的粉末凝團；
  - (F)將該碳化後的粉末凝團研磨至粒徑小於 2mm 的凝團顆粒；
  - (G)將該研磨後的凝團顆粒加入含氮添加劑置於氮氣氣氛之高溫爐進行氮化；
  - (H)將該氮化後的粉末於空氣或氧氣氣氛下進行脫碳，形成氮化鋁粉末。
2. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中該 $\gamma$ -氧化鋁粉末之粒徑為 0.08~2 $\mu\text{m}$ 。
3. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中該化學溶液為濃度 40wt%~60wt%的甲醇、乙醇、異丙醇、或正丁醇水溶液。
4. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中該 $\gamma$ -氧化鋁粉末與該酚醛樹脂混合之重量比例為 1:0.4~0.8。
5. 如申請專利範圍第 1 項之方法，其中該步驟(E)之高溫爐的爐內溫度為 500 $^{\circ}\text{C}$ ~700 $^{\circ}\text{C}$ 。
6. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中該步驟(G)之高溫爐的爐內溫度為 1400 $^{\circ}\text{C}$ ~1700 $^{\circ}\text{C}$ 。
7. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中該添加劑為尿素或疊氮化合物。

8. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中研磨後的凝團顆粒與添加劑的重量比例範圍為 1:0.1~1。
9. 如申請專利範圍第 1 項所述之方法，其中該(G)步驟之氮氣氣氛為純氮氣、氮氣與氫氣之混合氣、氮氣與氨氣之混合氣或純氨氣。
10. 一種氣氛控制碳熱還原製備氮化鋁粉末的方法，其包括：
  - (A)提供一 $\gamma$ -氧化鋁粉末(Gamma 相-氧化鋁)，其中該 $\gamma$ -氧化鋁之粒徑為 0.08~2 $\mu\text{m}$ ；
  - (B)提供一酚醛樹脂；
  - (C)將該 $\gamma$ -氧化鋁粉末及該酚醛樹脂加入化學溶液攪拌均勻，使酚醛樹脂溶解，形成一溶液，其中該 $\gamma$ -氧化鋁與該酚醛樹脂混合之重量比例為 1:0.4~0.8，該化學溶液為濃度 40wt%~60wt%的甲醇、乙醇、異丙醇、或正丁醇水溶液；
  - (D)將該(C)步驟形成的溶液置於烘箱內乾燥，形成粉末凝團；
  - (E)將該粉末凝團置於氮氣氣氛，爐內溫度為 500°C~700°C 之高溫爐進行碳化，形成碳化後的粉末凝團；
  - (F)將該碳化後的粉末凝團研磨至粒徑小於 2mm 的凝團顆粒；
  - (G)將該研磨後的凝團顆粒加入含氮添加劑置於氮氣氣氛，爐內溫度為 1400°C~1700°C 之高溫爐進行氮化，其中該研磨後的凝團顆粒與添加劑的重量比例範圍為 1:0.1~1，該添加劑為尿素或疊氮化合物，該氮氣氣氛為純氮氣、氮氣與氫氣之混合氣、氮氣與氨氣之混合氣或純氨氣；
  - (H)將該氮化後的粉末於空氣或氧氣氣氛下進行脫碳，形成氮化鋁粉末。

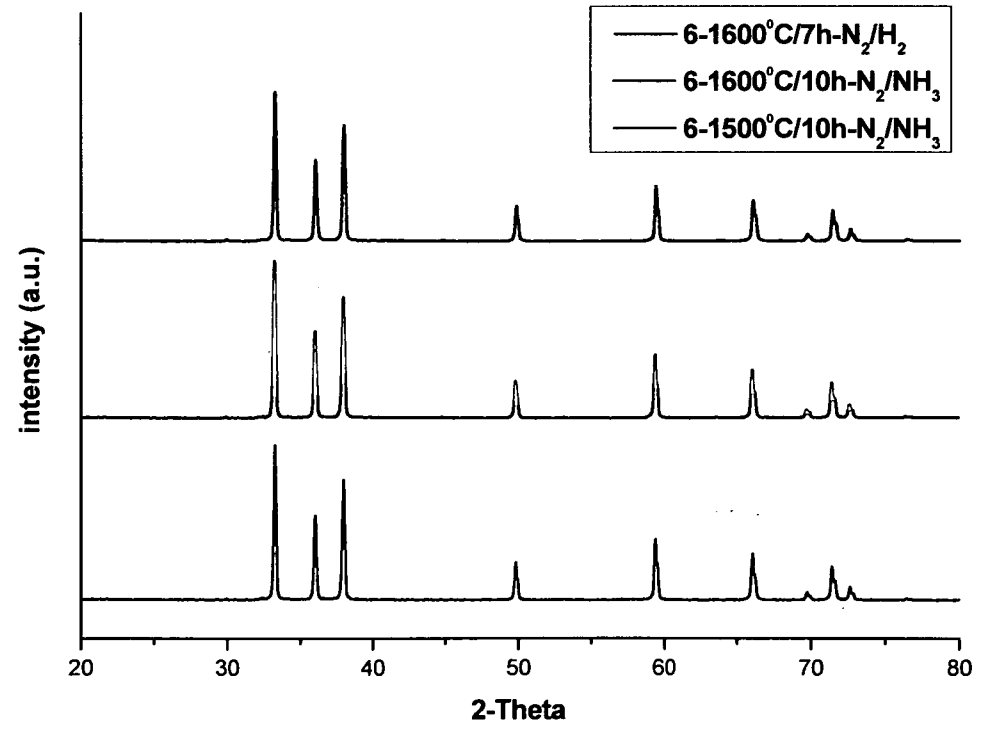
## 圖式



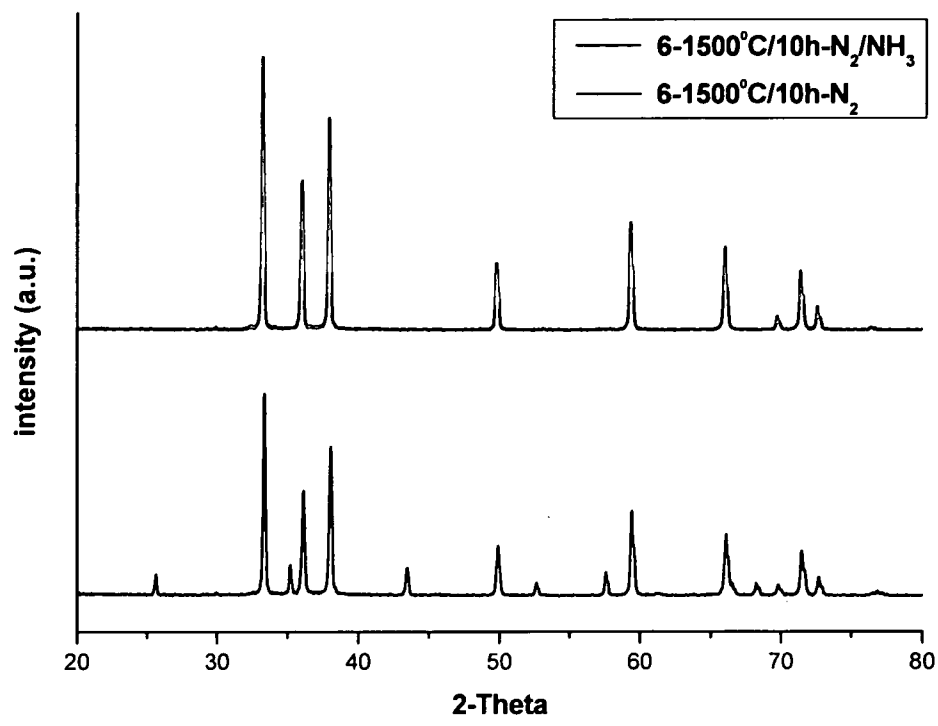
第 1 圖



第 2 圖



第 3 圖



第 4 圖