



(51) МПК
C04B 35/581 (2006.01)
C01B 21/072 (2006.01)
B82Y 30/00 (2011.01)
B22F 9/16 (2006.01)

ФЕДЕРАЛЬНАЯ СЛУЖБА
 ПО ИНТЕЛЛЕКТУАЛЬНОЙ СОБСТВЕННОСТИ

(12) ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ПАТЕНТУ

(52) СПК

C04B 35/581 (2006.01); *B22F 9/14* (2006.01); *C01B 21/072* (2006.01); *B82Y 30/00* (2006.01)

(21)(22) Заявка: 2016121845, 02.06.2016

(24) Дата начала отсчета срока действия патента:
 02.06.2016

Дата регистрации:
 13.03.2018

Приоритет(ы):

(22) Дата подачи заявки: 02.06.2016

(45) Опубликовано: 13.03.2018 Бюл. № 8

Адрес для переписки:

119334, Москва, Ленинский пр-кт, 49, ФГБУН
 Институт металлургии и материаловедения им.
 А.А. Байкова Российской академии наук (ИМЕТ
 РАН)

(72) Автор(ы):

Самохин Андрей Владимирович (RU),
 Асташов Алексей Григорьевич (RU),
 Алексеев Николай Васильевич (RU),
 Цветков Юрий Владимирович (RU)

(73) Патентообладатель(и):

Федеральное государственное бюджетное
 учреждение науки Институт металлургии и
 материаловедения им. А.А. Байкова
 Российской академии наук (ИМЕТ РАН)
 (RU)

(56) Список документов, цитированных в отчете
 о поиске: JP 11268910 A, 05.10.1999. CN
 103553628 A, 05.02.2014. US 5688730 A1,
 18.11.1997. US 8211356 B1, 03.07.2012. RU
 2171793 C2, 10.08.2001. RU 2370472 C1,
 20.10.2009.

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ НАНОПОРОШКА ОКСИНИТРИДА АЛЮМИНИЯ

(57) Реферат:

Изобретение относится к получению
 нанопорошка оксинитрида алюминия.
 Тонкодисперсный порошок алюминия вводят в
 поток термической плазмы, в котором
 осуществляют взаимодействие паров алюминия

с аммиаком в присутствии кислорода в
 количестве, отвечающем атомному соотношению
 элементов $1,16 < O/Al < 1,24$. Обеспечивается
 получение порошка с размером частиц менее 100
 нм. 1 ил., 1 пр.



FEDERAL SERVICE
FOR INTELLECTUAL PROPERTY

(51) Int. Cl.
C04B 35/581 (2006.01)
C01B 21/072 (2006.01)
B82Y 30/00 (2011.01)
B22F 9/16 (2006.01)

(12) **ABSTRACT OF INVENTION**

(52) CPC

C04B 35/581 (2006.01); *B22F 9/14* (2006.01); *C01B 21/072* (2006.01); *B82Y 30/00* (2006.01)(21)(22) Application: **2016121845, 02.06.2016**(24) Effective date for property rights:
02.06.2016Registration date:
13.03.2018

Priority:

(22) Date of filing: **02.06.2016**(45) Date of publication: **13.03.2018** Bull. № 8

Mail address:

**119334, Moskva, Leninskij pr-kt, 49, FGBUN
Institut metallurgii i materialovedeniya im. A.A.
Bajkova Rossijskoj akademii nauk (IMET RAN)**

(72) Inventor(s):

**Samokhin Andrej Vladimirovich (RU),
Astashov Aleksej Grigorevich (RU),
Alekseev Nikolaj Vasilevich (RU),
Tsvetkov Yuriy Vladimirovich (RU)**

(73) Proprietor(s):

**Federalnoe gosudarstvennoe byudzhetnoe
uchrezhdenie nauki Institut metallurgii i
materialovedeniya im. A.A. Bajkova Rossijskoj
akademii nauk (IMET RAN) (RU)**(54) **METHOD OF OBTAINING NANOPOWDER OF ALUMINUM OXINITRIDE**

(57) Abstract:

FIELD: nanotechnologies.

SUBSTANCE: invention relates to the production of nanopowder of aluminum oxynitride. Fine aluminum powder is introduced into a thermal plasma stream, where the interaction of aluminum vapors with ammonia in the presence of oxygen in an amount corresponding

to the atomic ratio of the elements is $1.16 < O/Al < 1.24$ is carried out.

EFFECT: powder production, with a particle size of less than 100 nm, is provided.

1 cl, 1 dwg, 1 ex

Изобретение относится к области порошковой металлургии, в частности получению порошков для создания высокопрочной прозрачной керамики на основе оксинитрида алюминия (ОНА). Уникальное сочетание оптических, диэлектрических и механических свойств такой керамики представляет значительный интерес к ее использованию в различных технических приложениях.

К настоящему времени для получения порошков ОНА используются преимущественно два подхода - твердофазная реакция оксида алюминия с нитридом алюминия и карботермическое восстановление-азотирование оксида алюминия [Corbin N.D. "Aluminum Oxynitride Spinel: A Review." Journal of the European Ceramic Society, vol. 5, pp. 143-154, 1989; Xidong W., Fuming W., Wenchao L. Synthesis, microstructures and properties of γ -aluminum oxynitride. Materials Science and Engineering: A. 2003. v. 342. №1-2. pp. 245-250; Грибченкова Н.А., Береснев Э.Н., Сморгчов К.Г. и др. Синтез и термические свойства "АЛОНА". Журнал неорганической химии. 2015. т. 60. №9. с. 1247]. Указанные подходы реализуются с использованием различных методов нагрева, условий проведения процессов и подготовки используемых реагентов.

Твердофазная реакция взаимодействия нитрида и оксида алюминия проводится при температуре выше 1700°C в течение нескольких часов, что определяет основные недостатки этого подхода - большое время процесса, высокие затраты энергии и использование дорогостоящего сырья - нитрида алюминия [например, патент США №5688730, 1997 г.].

Процесс карботермического восстановления-азотирования оксида алюминия также проводится при высоких температурах 1650-1850°C [например, патент США №8211356, 2012 г]. К недостаткам этого подхода также относятся большое время процесса и высокие затраты энергии, кроме того, имеются технические трудности получения целевого продукта заданного состава, не содержащего примесей.

Наиболее близким к заявляемому изобретению является процесс получения порошка ОНА, представленный в патенте [Patent US 6955798 B2, 2005]. Способ предусматривает использование исходных порошков алюминия и гамма-формы оксида алюминия, которые подвергаются размолу в течение времени, обеспечивающего образование смеси твердого раствора азота в алюминии и оксида алюминия. Далее проводится нагрев смеси в азотсодержащем газе в течение времени и при температуре, достаточных для образования ОНА.

Недостатком процесса является низкая скорость - время размолки составляет от 9 часов, кроме того, способ не позволяет получать порошки с высокой дисперсностью (ультра- и нанодисперсные).

Задача, на решение которой направлено настоящее изобретение, заключается в создании высокоинтенсивного способа получения порошка оксинитрида алюминия в виде нанодисперсного порошка.

Техническим результатом изобретения является получение целевого продукта - ОНА - в потоке термической плазмы в виде нанопорошка, состоящего из частиц с размерами менее 100 нм.

Технический результат достигается тем, что в способе получения нанопорошка оксинитрида алюминия тонкодисперсный порошок алюминия вводится в поток термической плазмы, в котором осуществляется взаимодействие паров алюминия с аммиаком в присутствии кислорода в количестве, отвечающем атомному соотношению элементов $1,16 < O/Al < 1,24$.

Применение плазменного нагрева обеспечивает проведение синтеза ОНА в газовой фазе, что на порядки снижает характерное время процесса по сравнению с

существующими способами получения ОНА в результате твердофазных реакций, а также обеспечивает получение целевого продукта в виде нанопорошка при конденсации из газовой фазы. Плазмообразующим газом может быть азот и его смеси с инертными газами, а также водородом. В составе плазмообразующего газа не допускается присутствие свободного или химически связанного кислорода. Алюминий используется в виде тонкодисперсного порошка для обеспечения его полного испарения в потоке плазмы. Аммиак вводится в высокотемпературный поток в количестве, значительно превышающем стехиометрически необходимое для образования ОНА, в то время как количество вводимого кислорода должно удовлетворять атомному соотношению элементов $1,16 < O/Al < 1,24$. Граничные значения этого соотношения соответствуют области гомогенности $ОНА(AlN)_x(Al_2O_3)_{1-x}$, где $0,3 < x < 0,37$. Наряду с аммиаком и кислородом в газовой смеси могут присутствовать азот, что позволяет использовать воздух как кислородсодержащий газ. Вводимая в высокотемпературный поток, содержащий пары алюминия, смесь газов должна обеспечивать не только протекание химических реакций формирования частиц ОНА при конденсации из газовой фазы, но и определять скорость снижения температуры потока и ее конечное значение и тем самым управлять размером получаемых частиц. Это может быть достигнуто изменением расхода вводимых газов при соблюдении указанных выше требуемых условий - избыток аммиака и диапазон допустимых значений соотношения O/Al . Выполненные к настоящему времени обширные исследования синтеза большого числа неорганических соединений по схеме ввода в плазменный поток холодных газов свидетельствуют о том, что при этом обеспечивается получение целевого продукта в виде нанопорошков с размером частиц менее 100 нм.

Отличительной особенностью и преимуществом предложенного способа является проведение синтеза ОНА из газовой фазы при взаимодействии паров алюминия, присутствующих в потоке термической плазмы, со смесью, в которой присутствуют аммиак и кислород, при соблюдении атомного соотношения элементов $1,16 < O/Al < 1,24$. Способ обеспечивает протекание синтеза целевого продукта за времена порядка долей секунды и получение нанопорошка ОНА.

Предлагаемый способ реализуется следующим образом. В электроразрядном генераторе термической плазмы происходит нагрев подаваемых газов при их прохождении через дуговой, высокочастотный, сверхвысокочастотный или комбинированный разряд. В полученный поток термической плазмы вводится порошок алюминия с размером частиц не более 30 мкм, чтобы обеспечить полное испарение алюминия. Для подачи порошка используется транспортирующий газ, в качестве которого могут быть использованы азот, инертные газы или смеси указанных газов. На расстоянии от сечения ввода алюминия, обеспечивающем полное испарение частиц, в высокотемпературный поток вводится смесь аммиака и кислорода, причем количество аммиака значительно превышает стехиометрически необходимое по реакции образования ОНА, в то время как количество кислорода удовлетворяет атомному соотношению элементов $1,16 < O/Al < 1,24$. Наряду с аммиаком и кислородом в газовой смеси могут присутствовать азот, что позволяет использовать воздух как кислородсодержащий газ, также в составе смеси могут присутствовать инертные газы. В результате химических реакций взаимодействия продуктов диссоциации аммиака, кислорода и паров алюминия при снижении температуры потока за счет вдува холодных газов происходит формирование наноразмерных частиц ОНА. Далее газодисперсный поток охлаждается в теплообменном устройстве и поступает на фильтр, где происходит выделение порошка из газового потока.

Реализация способа представлена следующим примером.

Пример

В поток термической плазмы, получаемой при нагреве в электродуговом плазменном генераторе смеси азота (97 объемных %) и водорода (3 объемных %) с суммарным
5 расходом $1.5 \text{ м}^3/\text{ч}$ (норм. условия), вводится порошок алюминия с расходом $0.12 \text{ кг}/\text{ч}$ с использованием в качестве транспортирующего газа азота с расходом $0.5 \text{ м}^3/\text{ч}$ (норм. условия). Среднемассовая энтальпия плазменной струи на выходе из плазменного генератора составляет $7.4 \text{ кВтч}/\text{м}^3$.

10 Ниже по потоку вводится смесь аммиака (25 объемных %), кислорода (1 объемный %) и азота (74 объемных %) с расходом $6 \text{ м}^3/\text{ч}$ (норм. условия). Атомное соотношение элементов O/Al для указанных расходов составляет 1,21, а соотношение $N_{\text{аммиак}}/\text{Al}$ составляет 15,7.

15 Полученный нанопорошок по результатам рентгенофазового анализа является γ -оксинитридом алюминия (рис. 1), удельная поверхность порошка составляет $71 \text{ м}^2/\text{г}$, что соответствует нанодиапазону размеров частиц.

(57) Формула изобретения

20 Способ получения нанопорошка оксинитрида алюминия, отличающийся тем, что тонкодисперсный порошок алюминия вводят в поток термической плазмы, в котором осуществляют взаимодействие паров алюминия с аммиаком в присутствии кислорода в количестве, отвечающем атомному соотношению элементов $1,16 < \text{O}/\text{Al} < 1,24$.

25

30

35

40

45

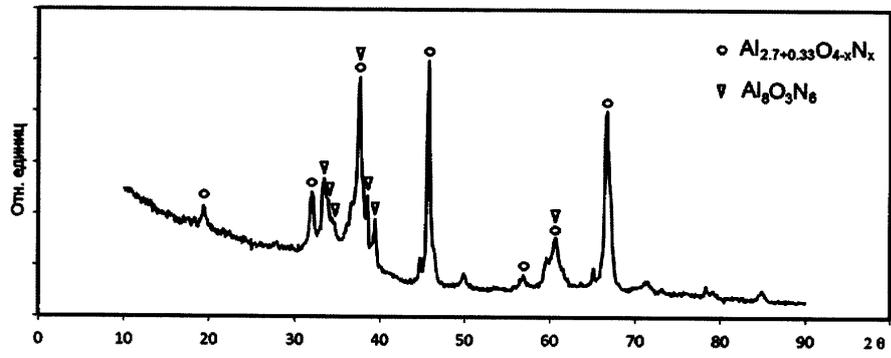


Рисунок 1