

[19] 中华人民共和国国家知识产权局

[51] Int. Cl⁷

C01B 21/068

C04B 35/622 C04B 35/584



[12] 发明专利申请公开说明书

[21] 申请号 200410023753.0

[43] 公开日 2005 年 1 月 12 日

[11] 公开号 CN 1562735A

[22] 申请日 2004.3.19

[21] 申请号 200410023753.0

[71] 申请人 山东大学

地址 250061 山东省济南市历下区经十路 73 号

[72] 发明人 白玉俊 王成国 李木森 王正博
亓永新 朱 波 王延相

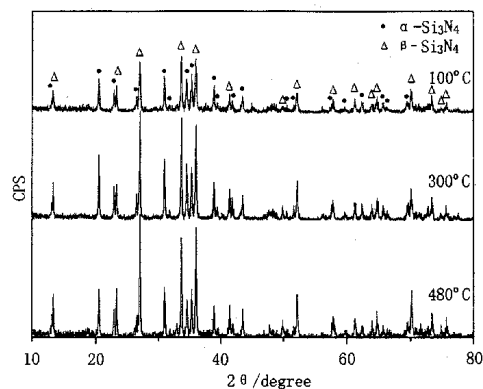
[74] 专利代理机构 济南三达专利事务所
代理人 王绪银

权利要求书 1 页 说明书 2 页 附图 1 页

[54] 发明名称 一种低温制备氮化硅粉体材料的方法

[57] 摘要

氮化硅(Si_3N_4)粉体材料的制备方法,属于无机非金属粉体材料制备方法技术领域。通过反应、清洗、抽滤、烘干等工艺,制备 Si_3N_4 粉体,使用的设备简单而且安全性好,温度只有 100°C ,反应物的转化率为90%以上,反应产物处理简单,制备工艺稳定,生产效率高。产品高温强度高,耐热、耐磨,化学稳定性好;粉体的尺寸在五十纳米到二百纳米之间。



1、一种氮化硅粉体材料的制备方法，其特征在于，以四氯化硅（ SiCl_4 ）作硅源、以叠氮钠（ NaN_3 ）作氮源，在不锈钢反应釜中进行化学交换反应，对反应产物经过清洗、抽滤、烘干；化学反应式为：



制备工艺如下：

（1）、在无水无氧手套箱中，将四氯化硅（ SiCl_4 ）和叠氮钠（ NaN_3 ）装入高温高压不锈钢反应釜中，封釜后，将反应釜在加热炉中加热到 $100^\circ\text{C} \sim 480^\circ\text{C}$ ，使两种反应物之间发生化学交换反应。加热炉到温后立即停止加热，使反应釜在炉中自然冷却到室温；

（2）、反应产物经无水酒精清洗、抽滤，除去残余反应物，直到滤液无色为止；

（3）、用沸腾的氢氧化钠溶液清洗，以除去可能出现的单质硅；

（4）、再用去离子水清洗，以除去反应副产物 NaCl ；

（5）、所得产物在 60°C 温度下烘干 3 小时后，得到灰白色氮化硅粉末。

一种低温制备氮化硅粉体材料的方法

(一) 技术领域

本发明涉及一种低温制备氮化硅(Si_3N_4)粉体的方法,属于无机非金属粉体材料制备方法技术领域。

(二) 背景技术

氮化硅具有良好的力学性能、高的化学稳定性、较低的密度以及良好的高温性能,抗热冲击,抗蠕变,广泛应用于高接触应力条件下的滑动、滚动轴承及磨球,高温、化学腐蚀条件下工作的结构陶瓷,高效研磨材料,冶金领域的耐火材料等。

目前,制备 Si_3N_4 粉体材料的方法包括:硅的高温氮化、二氧化硅在氨气或氮气中进行碳热还原、 CS_2 与氨气反应、气相反应、有机物高温热分解、高温自蔓延合成、溶剂热合成。但是这些方法一般都需要在 1000°C 以上的高温进行,有的甚至需要 1500°C 以上的高温,而且反应时间长,纯度低、成本高,直接影响了 Si_3N_4 的应用。

(三) 发明内容

为克服现有技术的不足,本发明提供一种低温制备 Si_3N_4 粉体材料的方法。该方法的特点是:反应时间短,粉体纯度高,能耗低,产率高,产品化学稳定性好、高温强度高、耐热、耐磨,是一种理想的低温制备氮化硅粉体材料的方法。

一种低温制备氮化硅粉体材料的方法,以四氯化硅(SiCl_4)作硅源、以叠氮钠(NaN_3)作氮源,在 100°C 的低温下制备 Si_3N_4 粉体材料的有效方法。

通过 SiCl_4 与 NaN_3 之间的反应制备 Si_3N_4 的反应式为:



制备工艺如下:

(1) 在无水无氧手套箱中,用天平称取叠氮钠(NaN_3),用移液管量取液态四氯化硅(SiCl_4)、装入高温高压不锈钢反应釜中,封釜后,将反应釜在加热炉中加热到 $100^\circ\text{C} \sim 480^\circ\text{C}$,使两种反应物之间发生化学交换反应。加热炉到温后立即停止加热,使反应釜在炉中自然冷却到室温。

(2) 反应产物经无水酒精清洗、抽滤,除去残余反应物,直到滤液无色为止;

(3) 用沸腾的氢氧化钠溶液清洗,以除去可能出现的单质硅;

(4) 再用去离子水清洗,以除去反应副产物 NaCl ;

(5) 所得产物在 60°C 温度下烘干 3 小时后,得到灰白色粉末。

本发明制备的 Si_3N_4 粉体，化学稳定性好、高温强度高，耐热、耐磨，产率不低于 90%；粉体的尺寸在五十纳米到二百纳米之间。

（四）附图说明

图 1 是通过 3.0ml SiCl_4 和 7.5g NaN_3 分别在 100℃、300℃、480℃ 反应后制得的 Si_3N_4 粉体的 X-射线粉末衍射图。粉体都是由 $\beta\text{-Si}_3\text{N}_4$ 和 $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ 组成，二者之间的相对量随温度升高而增大。

（五）具体实施方式

实施例 1：

通过 SiCl_4 与 NaN_3 之间的化学交换反应制备 Si_3N_4 粉体。在无水无氧手套箱中，用天平称取 7.5g NaN_3 ，用移液管量取 3.0ml SiCl_4 ，移入 50ml 反应釜中。封釜后，将反应釜在加热炉中加热到 100℃，到 100℃ 后停止加热。反应产物经无水酒精清洗至滤液无色，再用沸腾的氢氧化钠清洗，最后用去离子水清洗至滤液呈中性，然后将产物在 60℃ 烘干 3 小时后，得到灰白色粉末 1.36 g。

实施例 2：

通过 SiCl_4 与 NaN_3 之间的化学交换反应制备 Si_3N_4 粉体。在无水无氧手套箱中，用天平称取 7.5g NaN_3 ，用移液管量取 3.0ml SiCl_4 ，移入 50ml 反应釜中。封釜后，将反应釜在加热炉中加热到 300℃，到 300℃ 后停止加热。反应产物经无水酒精清洗至滤液无色，再用沸腾的氢氧化钠清洗，最后用去离子水清洗至滤液呈中性，然后将产物在 60℃ 烘干 3 小时后，得到灰白色粉末 1.44 g。

实施例 3：

通过 SiCl_4 与 NaN_3 之间的化学交换反应制备 Si_3N_4 粉体。在无水无氧手套箱中，用天平称取 7.5g NaN_3 ，用移液管量取 3.0ml SiCl_4 ，移入 50ml 反应釜中。封釜后，将反应釜在加热炉中加热到 480℃，到 480℃ 后停止加热。反应产物经无水酒精清洗至滤液无色，再用沸腾的氢氧化钠清洗，最后用去离子水清洗至滤液呈中性，然后将产物在 60℃ 烘干 3 小时后，得到灰白色粉末 1.44 g。

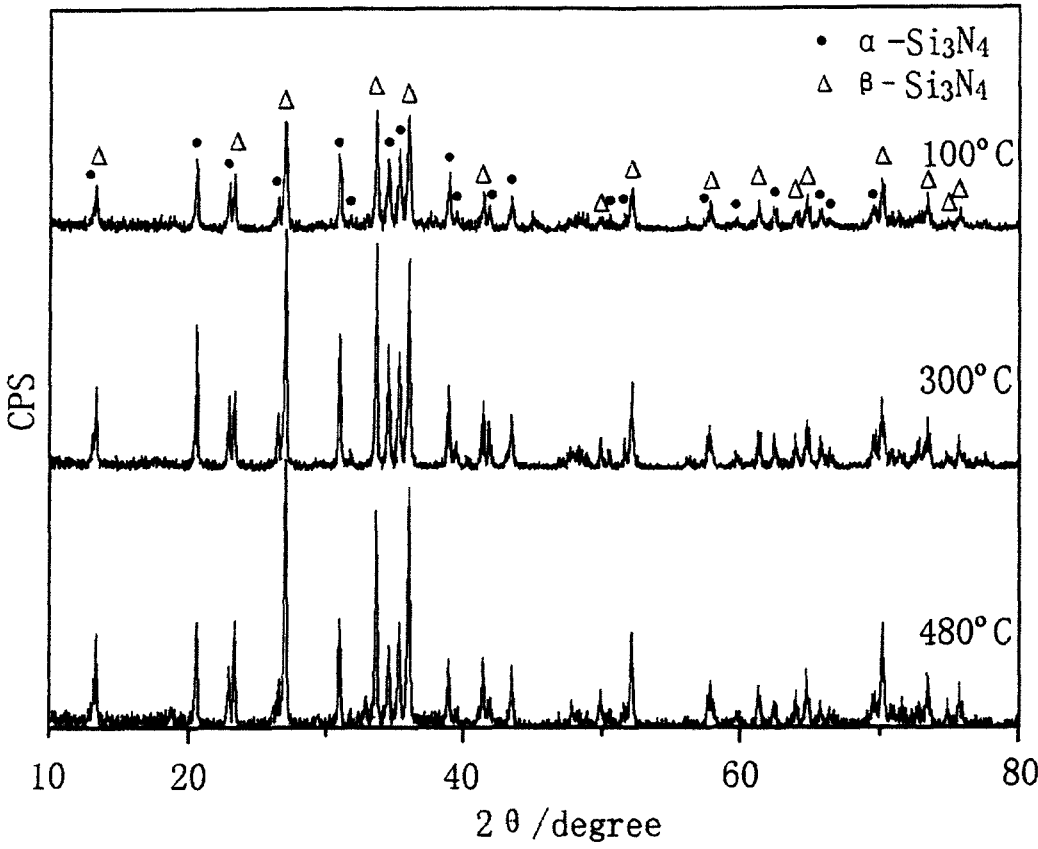


图 1