



(12) BẢN MÔ TẢ SÁNG CHẾ THUỘC BẰNG ĐỘC QUYỀN SÁNG CHẾ

(19) Cộng hòa xã hội chủ nghĩa Việt Nam (VN)
CỤC SỞ HỮU TRÍ TUỆ

(11)



1-0041937

(51)^{2020.01} C04B 35/56; C04B 41/00; C04B 35/634; (13) B
C04B 35/565; C04B 35/626

(21) 1-2020-05033

(22) 30/01/2019

(86) PCT/EP2019/052235 30/01/2019

(87) WO 2019/154690 15/08/2019

(30) 10 2018 201 771.9 06/02/2018 DE

(45) 25/12/2024 441

(43) 25/11/2020 392A

(73) FRAUNHOFER-GESELLSCHAFT ZUR FÖRDERUNG DER ANGEWANDTEN
FORSCHUNG E.V. (DE)

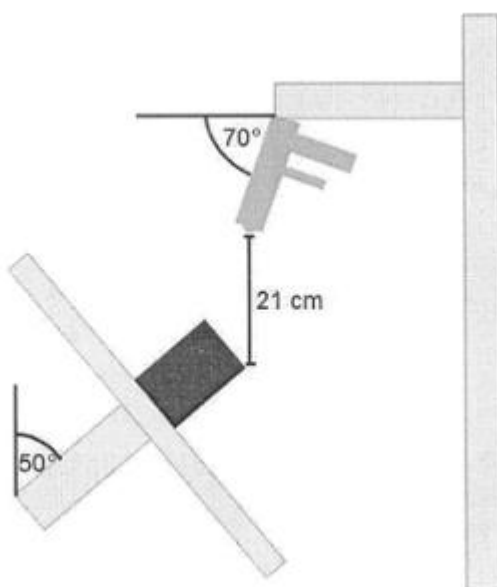
Hansastraße 27c 80686 München - Germany

(72) SCHWANKE, Stanislaus (DE); MÜLLER, Stephan (DE); MEISSNER, Elke (DE);
EPELBAUM, Boris (DE); REIMANN, Christian (DE); FRIEDRICH, Jochen (DE);
BECKER, Lucas (DE).

(74) Công ty TNHH Sở hữu trí tuệ Thảo Thọ Quyền (INVENCO.,LTD)

(54) QUY TRÌNH PHỦ CHẤT NỀN

(57) Sáng chế đề cập đến huyền phù chứa nước chứa các hạt cacbua kim loại và các tác nhân phân tán và quy trình phủ chất nền sử dụng các huyền phù chứa nước này. Sáng chế còn đề cập đến chất nền được phủ được sản xuất bằng quy trình theo sáng chế và việc sử dụng chúng.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến huyền phù chứa nước chứa các hạt cacbua kim loại và các tác nhân phân tán và quy trình phủ chất nền sử dụng các huyền phù chứa nước này. Sáng chế đề cập tiếp đến chất nền được phủ sản xuất bằng quy trình theo sáng chế và việc sử dụng chất nền này.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Cacbua kim loại có độ nóng chảy cao, ví dụ cacbua của titan, ziriconi, haf-ni, niobi, tantan, crom, molybden, wolfram, và silic, được đặc trưng bởi độ ổn định cơ học, hóa học và nhiệt cao. Do vậy, các nguyên liệu cacbua được sử dụng rộng rãi ở dạng các khối gốm rắn hoặc ở dạng lớp phủ. Ví dụ, các nguyên liệu cacbua được sử dụng trong sản xuất các nguyên liệu ở nhiệt độ cao và/hoặc trong môi trường hóa học mạnh, trong sản xuất công cụ cắt hoặc các miệng phun động cơ, và trong mọc tinh thể.

Tuy nhiên, độ cứng cơ học của chúng làm cho cacbua kim loại khó để xử lý. Điều này nghĩa là các khối hình dạng đặc có hình học tương đối phức tạp có thể được sản xuất chỉ từ các nguyên liệu này là khó khăn và với chi phí cao đáng kể. Vì lý do này, các thành phần cấu trúc hầu hết chỉ được bao phủ bằng cacbua kim loại.

Các quy trình phủ được sử dụng thông thường là các quy trình hóa kết tủa từ pha hơi-CVD (chemical vapor deposition) và kết tủa vật lý từ pha hơi-PVD (physical vapor deposition). Tuy nhiên, các lớp phủ thu được bằng các phương pháp này thường chỉ đạt tối đa với độ dày vài micromet, do có độ ổn định theo thời gian kém, là không thích hợp cho các ứng dụng nhất định, ví dụ trong sản xuất tinh thể silic cacbua hoặc nhôm nitrua.

Kỹ thuật trước đây cũng bao gồm mô tả các lớp phủ cacbua kim loại được sản xuất thông qua quy trình gồm ướt trong đó huyền phù hữu cơ hạt cacbua kim loại được áp dụng cho các thành phần được phủ bằng các quy trình sơn, phun hoặc nhúng, sau quy trình nung kết.

US 2013/0061800 A1 mô tả thành phần có độ ổn định nhiệt cao chứa chất nền graphit chứa graphit đẳng hướng. Thành phần có độ ổn định nhiệt cao này cũng bao gồm lớp phủ cacbua chứa cacbua như tantan cacbua. Ngoài ra, các quy trình sản xuất thành phần này được mô tả trong đó các hạt cacbua được lắng trên cơ chất này từ huyền phù. Điều này được thực hiện sử dụng các huyền phù có các dung môi hữu cơ làm pha lỏng.

Các quy trình gồm ướt để phủ graphit bằng tantan cacbua cũng được mô tả bởi D. Nakamura, T. Kimura, T. Narita, A. Suzumura, T. Kimoto, và K. Nakshima trong tạp chí the Journal of Crystal Growth, vol. 478, 2017 trên các trang 163 to 173, and by D. Nakamura, K. Shigetoh, and A. Suzumura in the Journal of the European Ceramic Society, vol. 37, 2017 trên các trang 1175 đến 1185. Trong các quy trình được công bố, tantan cacbua được lắng từ các huyền phù dựa trên các dung môi hữu cơ.

Các quy trình gồm ướt được biết từ kỹ thuật trước đây cho phép sản xuất các lớp khá dày trong đó lớp này trong một số trường hợp dày hàng trăm micromet. Ngược với các lớp được sản xuất bởi các quy trình CVD hoặc PVD, các lớp được sản xuất bằng các quy trình gồm ướt có kết cấu đẳng hướng với sự định hướng hạt ngẫu nhiên, dẫn đến giảm khả năng dễ bị nứt và tăng cường quá trình khuếch tán cho các loại lỗi chất nền.

Các huyền phù dựa trên các dung môi hữu cơ này, tuy nhiên, có các bất lợi đáng kể. Ngoài việc xem xét đến sinh thái và sức khỏe nảy sinh từ độc tố của các dung môi hữu cơ, việc sử dụng các huyền phù này cũng đòi hỏi về vấn đề an toàn của bụi sơn dễ bắt cháy cao. Hơn nữa, các dung môi hữu cơ phải được loại bỏ bằng sự nhiệt phân. Điều này dẫn đến việc đưa vào các chất lạ không mong

muốn vào trong lớp phủ này. Hơn nữa, sử dụng có kiểm soát huyền phù này là không thể với các huyền phù đã biết hiện nay, cụ thể là trong trường hợp quy trình phun, vì các đặc điểm của huyền phù có thể dao động do sự bay hơi của dung môi trong quy trình này, mà có nghĩa là theo thời gian trở nên không thể thu được các lớp đồng nhất.

Ngoài ra, sẽ mong muốn có khả năng tác động đến tỷ lệ mở cho các lỗ kín trong lớp màng cacbua, mà có thể chỉ đến mức giới hạn bằng các huyền phù đã biết dựa trên các dung môi hữu cơ. Mục đích mong muốn khác nữa là khả năng thu được lớp phủ có độ sâu thấm qua lớn hơn từ bề mặt chất nền.

Trên cơ sở này, mục đích của sáng chế là cung cấp huyền phù mà không gặp phải các vấn đề về môi trường, sức khỏe và độ an toàn. Việc sản xuất từ các huyền phù của các lớp phủ là rất thuận tiện và không cần bước nhiệt phân cũng nên có thể. Sử dụng huyền phù được đề xuất, cũng nên có thể phủ ngoài qua thời gian các lớp rất đồng nhất và kiểm soát tỷ lệ giữa các lỗ mở và kín trong lớp phủ được phủ ngoài từ huyền phù này. Ngoài ra, độ sâu thâm nhập từ bề mặt của chất nền được phủ của lớp phủ được phủ ngoài từ huyền phù được đề xuất nên được tăng lên. Hơn nữa, các lớp phủ nên có độ thấm khí thấp, khả năng chống sốc nhiệt cao, và ổn định đối với môi trường có chất hóa học mạnh.

Các vấn đề về môi trường sinh thái, sức khỏe và độ an toàn phát sinh thông qua việc sử dụng các huyền phù chứa các dung môi hữu cơ làm pha lỏng có thể được loại bỏ thông qua việc sử dụng nước làm pha lỏng.

Tuy nhiên, cho đến bây giờ nước đã không được xem xét vì nhiều lý do làm pha lỏng cho các huyền phù cacbua kim loại. Trước hết, cacbua kim loại có tỷ trọng rất cao (volfram cacbua $15,6 \text{ g/cm}^3$, tantan cacbua $13,9 \text{ g/cm}^3$), do vậy sự chia tách của huyền phù này diễn ra rất nhanh. Để phủ ngoài các lớp có độ đồng nhất cao, tuy nhiên quan trọng là các hạt cacbua kim loại được tạo hạt lơ lửng trong huyền phù này.

Hơn nữa, hàm lượng chất rắn cao cần thiết trong huyền phù chứa nước

nghĩa là sự kết tụ của các hạt cacbua kim loại phải được tính đến mà gây ra rạn và giảm mật độ mộc trong lớp phủ được phủ từ huyền phù này. Các dung môi hữu cơ, nói cách khác, cho thấy kiềm chế sự kết tụ – đến mức độ ít nhất – thông qua các nhóm chức của chúng.

Mục đích của sáng chế là để khắc phục các vấn đề nêu trên xảy ra với nước làm pha lỏng.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Mục đích của sáng chế đạt được bằng huyền phù chứa nước có đặc điểm nêu như trong điểm 1 yêu cầu bảo hộ, có các đặc điểm kỹ thuật được liệt kê dưới đây.

Huyền phù chứa nước chứa:

ít nhất một hạt cacbua kim loại và

ít nhất một tác nhân phân tán,

trong đó tỷ lệ của ít nhất một hạt cacbua kim loại là nằm trong khoảng từ 30% đến 95% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng của huyền phù này.

Các phương án hữu ích của huyền phù này theo sáng chế được nêu trong các điểm từ 2 đến 4.

Sáng chế đề cập tiếp đến, theo điểm 5 yêu cầu bảo hộ, quy trình phủ chất nền sử dụng huyền phù chứa nước theo sáng chế, bao gồm các bước sau:

- i) cung cấp chất nền;
- ii) cung cấp huyền phù chứa nước theo sáng chế;
- iii) đưa huyền phù từ bước ii) lên bề mặt của chất nền từ bước i);
- iv) làm khô huyền phù đã được dùng này, thu được sự tạo thành lớp màng phủ trên bề mặt của chất nền.

Các phương án hữu ích của quy trình này được nêu trong các điểm từ 6 đến

11 yêu cầu bảo hộ.

Sáng chế đề cập tiếp đến, theo điểm 12 và 13 yêu cầu bảo hộ, chất nền được sản xuất bằng quy trình theo sáng chế, với các điểm 14 và 15 yêu cầu bảo hộ chỉ định việc sử dụng chất nền này.

Mô tả vắn tắt hình vẽ

Fig. 1 mô tả phương án theo sáng chế trong đó graphit hình trụ được phủ trong một giá đỡ phủ có bàn xoay có thể xoay và nghiêng với sự hỗ trợ của súng phun.

Mô tả chi tiết sáng chế

Các định nghĩa thuật ngữ

Trong “huyền phù chứa nước” trong phạm vi của sáng chế, nước được sử dụng làm pha lỏng. Lên đến 2% trọng lượng, ưu tiên lên đến 1% trọng lượng, các dung môi khác có thể có mặt trong pha này. Tuy nhiên, đặc biệt ưu tiên là pha lỏng của “huyền phù chứa nước” không chứa nước.

“Cỡ hạt trung bình” theo sáng chế được hiểu nghĩa là giá trị d_{50} , nghĩa là giá trị với tỷ lệ 50% hạt có đường kính hạt nhỏ hơn và 50% hạt còn lại có đường kính hạt lớn hơn. Ưu tiên được đưa ra để xác định “cỡ hạt trung bình” trực tiếp trên huyền phù bằng tán sắc laze. Kích thước khối kết tụ ưu tiên là được xác định trực tiếp trên huyền phù bằng tán sắc laze.

“Độ tinh khiết” của các hạt cacbua kim loại hoặc của lớp phủ được tạo thành từ các hạt này được hiểu nghĩa là tinh khiết hóa học về mặt các nguyên tố tạp chất. Độ tinh khiết ưu tiên là được xác định bằng phép đo khối phổ phóng điện phát sáng GDMS (glow discharge mass spectrometry).

“Mật độ mội” của lớp phủ là trong phạm vi của sáng chế được hiểu nghĩa là mật độ của lớp được tạo ra tính theo mật độ tiêu chuẩn của lớp cacbua kim loại được nung kết.

Cacbua của silic á kim là trong phạm vi của sáng chế xem như là cacbua

kim loại.

Các khối lượng được nêu

Ngoài nước làm pha lỏng, huyền phù chứa nước theo sáng chế cũng chứa ít nhất một hạt cacbua kim loại, ít nhất một tác nhân phân tán, và chất phụ gia tùy ý. Các khối lượng được nêu này trong mỗi trường hợp dựa trên tổng khối lượng của huyền phù và tổng trọng lượng của các thành phần có mặt được bổ sung lên đến 100% trọng lượng.

Huyền phù chứa nước

Huyền phù chứa nước theo sáng chế chứa ít nhất một hạt cacbua kim loại và ít nhất một tác nhân phân tán, trong đó tỷ lệ của ít nhất một hạt cacbua kim loại là nằm trong khoảng từ 30% đến 95% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng của huyền phù này. Tỷ lệ của các hạt cacbua kim loại ưu tiên là được xác định bằng cách loại bỏ các thành phần dễ bay hơi khỏi huyền phù này, ưu tiên là được thực hiện bằng cách gia nhiệt huyền phù này đến nhiệt độ trên nhiệt độ bay hơi của nước. Tỷ lệ của các hạt cacbua kim loại có thể được xác định từ khối lượng được cân.

Các phương án ưu tiên của huyền phù chứa nước theo sáng chế được chỉ định dưới đây.

Trong phương án ưu tiên của sáng chế, ít nhất một hạt cacbua kim loại được chọn từ nhóm bao gồm cacbua của titan, ziriconi, hafni, vanadi, niobi, tantan, crom, molybden, wolfram, silic, và các hỗn hợp của nó, với ưu tiên cho tantan cacbua.

Ưu tiên ở đây là ít nhất một hạt cacbua kim loại có cỡ hạt trung bình nằm trong khoảng từ 0,05 đến 25 μm , ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 0,5 đến 5 μm , và đặc biệt ưu tiên là nằm trong khoảng từ 1 đến 2 μm .

Ưu tiên nữa là ít nhất một hạt cacbua kim loại có hàm lượng các nguyên tố tạp chất < 300 ppm, ưu tiên là < 10 ppm, và ưu tiên nữa là nhỏ hơn 1 ppm. Trong

đó các hạt cacbua kim loại không sẵn có trên thị trường có độ tinh khiết thích hợp, các hạt cacbua kim loại này có thể được tinh chế bằng các quy trình đã biết đối với chuyên gia trong ngành, như tinh chế hóa học ướt. Ngoài ra, độ tinh khiết của lớp phủ được phủ từ huyền phù chứa nước không nhất thiết tương ứng với độ tinh khiết của các hạt cacbua kim loại được sử dụng. Loại bỏ tạp chất có thể thông qua quy trình theo sáng chế được mô tả dưới đây.

Đặc biệt ưu tiên là ít nhất một hạt cacbua kim loại có cỡ hạt trung bình nằm trong khoảng từ 0,05 đến 25 μm , ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 0,5 đến 5 μm và đặc biệt rất ưu tiên nằm trong khoảng từ 1 đến 2 μm và hàm lượng các nguyên tố tạp chất là $< 300 \text{ ppm}$, ưu tiên là $< 10 \text{ ppm}$, và ưu tiên nữa là nhỏ hơn 1 ppm.

Cacbua kim loại ưu tiên là tantan cacbua, đặc biệt ưu tiên có tỷ lệ pha của pha theo khối nằm trong khoảng từ 70 đến 100%.

Theo phương án được ưu tiên khác, có thể là trường hợp là chất phân tán được chọn từ nhóm bao gồm axit polyacrylic, ưu tiên là có số trọng lượng phân tử trung bình nằm trong khoảng từ 3000 đến 10 000 g/mol và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 4000 đến 6000 g/mol, tetrabutylamoni hydroxit, và các hỗn hợp của nó.

Theo phương án được ưu tiên khác của sáng chế, huyền phù chứa nước bao gồm ít nhất một chất phụ gia ưu tiên là được chọn từ nhóm bao gồm các bazơ, cụ thể là dung dịch natri hydroxit, các chất khử bọt, cụ thể là polyalkylen glycol ete của rượu béo, các chất trợ giúp nung kết, cụ thể là coban hoặc silic, và các hỗn hợp của nó. Các chất phụ gia đặc biệt ưu tiên ở đây là các chất khử bọt. Việc sử dụng các chất khử bọt kiểm soát sự hình thành bong bóng trong huyền phù này, dẫn đến giảm rạn nứt.

Trong phương án ưu tiên nữa của sáng chế, có thể là trường hợp là tỷ lệ của các hạt cacbua kim loại là nằm trong khoảng từ 40% đến 90% trọng lượng ưu tiên là nằm trong khoảng từ 60% đến 85% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng huyền phù.

Theo phương án được ưu tiên khác của sáng chế, có thể là trường hợp là tỷ lệ của chất phân tán là nằm trong khoảng từ 0,05% đến 5% trọng lượng và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 0,1% đến 2% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng huyền phù.

Trong phương án ưu tiên nữa của sáng chế, tỷ lệ của chất phụ gia trong huyền phù là nằm trong khoảng từ 0% đến 10% trọng lượng và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 0,5% đến 5% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng huyền phù.

Theo phương án được ưu tiên khác của sáng chế, tỷ lệ của các hạt cacbua kim loại là nằm trong khoảng từ 40% đến 90% trọng lượng và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 60% đến 85% trọng lượng, tỷ lệ của tác nhân phân tán là nằm trong khoảng từ 0,05% đến 5% trọng lượng và nằm trong khoảng từ 0,1% đến 2% trọng lượng, và tỷ lệ của chất phụ gia trong huyền phù là nằm trong khoảng từ 0% đến 10% trọng lượng và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 0,5% đến 5% trọng lượng, trong mỗi trường hợp tính trên tổng trọng lượng huyền phù.

Trong phương án ưu tiên nữa của sáng chế, có thể là trường hợp là pH của huyền phù là nằm trong khoảng từ 5 đến 10 và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 7 đến 8. Khi axit polyacrylic được sử dụng làm chất phân tán, pH ưu tiên là nằm trong khoảng từ 7 đến 8.

Trong phương án ưu tiên nữa, huyền phù chứa nước không chứa các thành phần khác ngoài nước, các hạt cacbua kim loại, các tác nhân phân tán, và các chất phụ gia được chỉ định trên.

Trong phương án ưu tiên nữa của sáng chế, huyền phù chứa nước hoàn toàn không chứa các dung môi hữu cơ.

Quy trình

Quy trình theo sáng chế để phủ chất nền bao gồm các bước sau:

- i) cung cấp chất nền;
- ii) cung cấp huyền phù chứa nước theo sáng chế

- iii) đưa huyền phù từ bước ii) lên bề mặt của chất nền từ bước i);
- iv) làm khô huyền phù đã được dùng này, thu được sự tạo thành lớp màng phủ trên bề mặt của chất nền.

Các phương án ưu tiên của quy trình theo sáng chế được chỉ định dưới đây.

Trong phương án ưu tiên của quy trình theo sáng chế, chất nền được chọn từ nhóm bao gồm graphit, các nguyên liệu có hệ số dẫn nhiệt được điều chỉnh, ưu tiên là graphit có hệ số dẫn nhiệt được điều chỉnh nằm trong khoảng từ 6,5 đến $7,5 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$, và các hỗn hợp của nó.

Trong phương án ưu tiên nữa của quy trình theo sáng chế, có thể là trường hợp là quy trình bao gồm các bước nữa sau:

- v) xử lý trước chất nền được cung cấp trong bước i) trước bước iii), với sự xử lý trước được thực hiện ưu tiên là bằng phương pháp được chọn từ nhóm bao gồm làm xù xì bề mặt bằng cơ học, xử lý trước bằng nhiệt bề mặt này, xử lý hóa học bề mặt này, và các kết hợp của nó, và sau đó làm sạch, cụ thể là bằng phương tiện sóng siêu âm;
- vi) nung lớp phủ thu được sau bước iv).

Để thu được sự bám dính tốt của lớp phủ trên chất nền, đặc biệt hữu ích trước hết là làm xù xì bằng cơ học chất nền và sau đó tạo ra bề mặt ưa nước thông qua bước làm sạch thích hợp bằng phương tiện sóng siêu âm. Cụ thể là trong trường hợp chất nền graphit, phải lưu tâm để đảm bảo loại bỏ hoặc ít nhất giảm một số các hạt lỏng lẻo trên bề mặt này.

Theo phương án được ưu tiên khác, huyền phù trong bước iii) được dùng bằng cách sơn, nhúng hoặc phun.

Khi dùng bằng cách phun, chất nền ưu tiên là được đặt ở trung tâm của mặt quay tròn và được cố định một chỗ bằng phương tiện giữ đặc biệt. Góc nghiêng của mặt quay tròn và góc phun của súng phun được điều chỉnh thêm theo hình học của chất nền được phủ bằng giá đỡ được thiết kế chuyên dụng. Chất nền sau

đó được phủ bằng huyền phù chứa nước dưới các thông số phun được xác định chắc chắn (bao gồm áp suất không khí của máy phun, điều khiển bằng van bướm sự cung cấp nguyên liệu thông qua sức nâng kim, và khoảng cách từ lỗ vòi phun đến bề mặt chất nền). Tốc độ quay của mặt quay tròn trong quá trình phun được hướng dẫn bởi độ dày lớp mong muốn của lớp phủ sau đó.

Trong phương án ưu tiên nữa của sáng chế, bước iv) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 100 đến 600°C, ưu tiên là nằm trong khoảng từ 120 đến 550°C, và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 145 đến 455°C, với ưu tiên cho thực hiện bước iv) trong khoảng thời gian từ 5 đến 40 giờ và ưu tiên hơn là từ 20 đến 30 giờ.

Để thu được lớp phủ không rạn, đã chứng minh hữu ích là tôi lớp phủ thu được trong bước iv) qua một vài bước nhiệt độ. Việc đưa vào các pha giữ ưu tiên đặc biệt để ngăn ngừa khô nhanh quá mức và sau đó bị rạn. Các pha giữ cụ thể được hướng dẫn bởi đặc điểm bay hơi của chất phân tán được sử dụng. Khi coban được sử dụng để trợ giúp nung kết, nó là hữu ích để thực hiện quy trình làm khô dưới môi trường khí trơ.

Trong quy trình làm khô được ưu tiên iv), các giới hạn nhiệt độ và các khoảng thời gian có thể là như sau:

- (1) từ 140 đến 160°C trong từ 2,5 đến 3,5 giờ; sau đó
- (2) từ 180 đến 220°C trong từ 1,5 đến 2,5 giờ; sau đó
- (3) được giữ trong từ 2 giờ ở nhiệt độ từ (2); sau đó
- (4) từ 200 đến 250°C trong từ 1,5 đến 2,5 giờ; sau đó
- (5) từ 310 đến 350°C trong từ 4,5 đến 5,5 giờ; sau đó
- (6) từ 330 đến 350°C trong từ 1,5 đến 2,5 giờ; sau đó
- (7) được giữ trong từ 2 giờ ở nhiệt độ từ (6); sau đó
- (8) từ 380 đến 420°C trong từ 3,5 đến 4,5 giờ; sau đó

(9) từ 430 đến 470°C trong từ 1,5 đến 2,5 giờ,

Theo phương án được ưu tiên khác của sáng chế, bước vi) (= nung kết) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 2000 đến 2600°C, ưu tiên là nằm trong khoảng từ 2100 đến 2500°C, và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 2200 đến 2300°C. Ưu tiên đặc biệt để thực hiện bước vi) trong khoảng thời gian từ 1 đến 10 giờ, ưu tiên hơn là từ 3 đến 5 giờ. Ưu tiên hơn nữa để thực hiện bước vi) ở áp suất nằm trong khoảng từ 500 đến 900 torr, ưu tiên là nằm trong khoảng từ 600 đến 800 torr, và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 680 đến 720 torr.

Theo phương án được ưu tiên khác của sáng chế, bước vi) được thực hiện dưới khí trơ, với khí trơ ưu tiên đặc biệt được chọn từ nhóm bao gồm heli, argon, nitơ, và các hỗn hợp của nó.

Sự bổ sung tác nhân trợ giúp nung kết như coban hoặc silic tăng cường đặc tính chảy trong quy trình nung kết và gia tăng mật độ lớp phủ cuối cùng có thể thu được.

Theo phương án được ưu tiên khác của sáng chế, mật độ mốp của lớp phủ trước bước v) ít nhất là 50% và ưu tiên ít nhất là 60%.

Trong phương án ưu tiên nữa, có thể là trường hợp là lớp phủ sau bước iv) hoặc vi) có hàm lượng các nguyên tố tạp chất nhỏ hơn 300 ppm và ưu tiên là nhỏ hơn 1 ppm.

Theo phương án được ưu tiên khác, lớp phủ sau bước iv) hoặc vi) có độ xốp mở nhỏ hơn 5% và ưu tiên là nhỏ hơn 1%. Độ xốp này được xác định ưu tiên là bằng thiết bị đo độ xốp Hg.

Theo phương án được ưu tiên khác của sáng chế, độ dày của lớp phủ sau bước iv) hoặc vi) là nằm trong khoảng từ 20 đến 500 μm , ưu tiên là nằm trong khoảng từ 50 đến 400 μm , và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 100 đến 300 μm .

Trong phương án ưu tiên nữa, có thể là trường hợp là pH của huyền phù chứa nước trước bước iii) là nằm trong khoảng từ 5 đến 10 và ưu tiên là nằm

trong khoảng từ 7 đến 8, đặc biệt cho axit polyacrylic làm chất phân tán.

Chất nền được phủ

Sáng chế đề cập tiếp đến chất nền được phủ được sản xuất bằng quy trình theo sáng chế.

Theo phương án được ưu tiên khác, độ dày của lớp phủ là nằm trong khoảng từ 20 đến 500 μm , ưu tiên là nằm trong khoảng từ 50 đến 400 μm , và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 100 đến 300 μm .

Trong phương án ưu tiên nữa, có thể là trường hợp là lớp phủ sau bước iv) hoặc vi) có hàm lượng tạp chất nhỏ hơn 300 ppm và ưu tiên là nhỏ hơn 1 ppm.

Theo phương án được ưu tiên khác, lớp phủ sau bước iv) hoặc vi) có độ xốp mở nhỏ hơn 5% và ưu tiên là nhỏ hơn 1%.

Sử dụng

Chất nền được phủ theo sáng chế được sử dụng làm các nguyên liệu cacbua.

Ưu tiên được xác định ở đây là để sử dụng trong các ứng dụng mọc tinh thể, đặc biệt là các ứng dụng quy trình pha hơi vật lý PVT (physical vapor phase), các quy trình epitaxy, và cho các lò nung.

Mục đích của sáng chế được giải thích chi tiết hơn với việc tham chiếu đến các ví dụ sau, không nhằm làm giới hạn các phương án cụ thể được thể hiện ở đây.

Điều chế huyền phù chứa nước 1

Huyền phù tantan cacbua chứa nước được điều chế sử dụng máy khuấy phân tán. Việc điều chế này được thực hiện bằng cách bổ sung bột tantan cacbua (70% trọng lượng, hàm lượng tạp chất tổng cộng: 300 ppm, H.C. Starck), axit polyacrylic (0,5% trọng lượng, M_w 5000 g/mol, Polyscience Europe GmbH), tác nhân trợ giúp nung kết (0,7% trọng lượng silic, H.C. Starck), chất khử bọt (2 giọt

Contraspum, Zschimmer và Schwarz) trong một bước cùng lúc vào nước cất (28,8% trọng lượng). Giữa mỗi lần bổ sung từng thành phần, xử lý huyền phù này bằng máy khuấy trong khoảng thời gian lên đến 15 phút với 4000 vòng mỗi phút để đảm bảo rằng bột cacbua kim loại, chất phân tán và các chất phụ gia được sử dụng đã được phân tán đồng nhất trong huyền phù này. pH của huyền phù này được điều chỉnh bằng dung dịch natri hydroxit đến pH 8. Tỷ lệ của tantan cacbua là 70% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng của huyền phù chứa nước.

Điều chế huyền phù chứa nước 2

Huyền phù tantan cacbua chứa nước được điều chế sử dụng máy khuấy phân tán. Sự điều chế này được thực hiện bằng cách bổ sung bột tantan cacbua (70% trọng lượng, hàm lượng tạp chất tổng cộng: 300 ppm, H.C. Starck), tetrabutylamoni hydroxit (0,5% trọng lượng, Sigma Aldrich), tác nhân trợ giúp nung kết (0,7% trọng lượng silic, H.C. Starck), chất khử bọt (2 giọt Contraspum, Zschimmer và Schwarz) trong một bước cùng lúc vào nước cất (28,8% trọng lượng). Giữa mỗi lần bổ sung từng thành phần, xử lý huyền phù này bằng máy khuấy trong khoảng thời gian lên đến 15 phút với 4000 vòng mỗi phút để đảm bảo rằng bột cacbua kim loại, chất phân tán và các chất phụ gia được sử dụng đã được phân tán đồng nhất trong huyền phù này. pH của huyền phù này là 7. Tỷ lệ của tantan cacbua là 70% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng của huyền phù chứa nước.

Huyền phù chứa nước 1 và 2 được sử dụng để phủ chất nền graphit.

Phủ được thực hiện trên bề phủ có bàn xoay có thể quay và có thể nghiêng với sự trợ giúp của súng phun. Súng phun được hoạt động với 2 bar không khí nén được gắn lên trên giá đỡ cho phép cả hai góc và khoảng cách từ mẫu được thay đổi. Để phủ chất nền graphit (Fig. 1 mô tả graphit hình trụ bằng cách ví dụ), khoảng cách 19 cm và góc phun 90° được chọn. Vì lý do hình trụ, bên trong của hình trụ graphit được phủ theo bộ được thể hiện trong Fig. 1. Vì vậy, hình trụ được cố định đối với bàn quay và nghiêng một góc 50°. Miệng của súng được bố

trí ở khoảng cách 21 cm và góc nghiêng so với phương nằm ngang là 70° (Fig. 1). Bên ngoài được phủ thủ công bằng cách tạo ra sự chuyển động lên và xuống thẳng đứng so với thành hình trụ này cùng với quay đồng thời của bàn.

Để xác định mật độ nung kết của lớp tương ứng, sau bước nung kết thực tế khối lượng, độ dày, và diện tích của lớp thu được như vậy được xác định, mật độ nung kết được tính toán từ độ dày và diện tích thể tích lớp và từ thể tích và khối lượng và được liên quan đến mật độ lý thuyết tối đa của TaC ($14,3 \text{ g/cm}^3$). Lớp phủ từ huyền phù 1 thu được mật độ nung kết là 54% và đối với lớp phủ từ huyền phù 2 mật độ nung kết là 56%.

Qua các phân tích mặt cắt của các chất nền được phủ và nung kết, độ dày của lớp này trong cả hai trường hợp có thể được xác định bằng kính hiển vi điện tử quét và kính hiển vi ánh sáng tới và là $100 \text{ }\mu\text{m}$.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Quy trình phủ chất nền bao gồm các bước sau:

- i) cung cấp chất nền graphit;
- ii) cung cấp huyền phù chứa nước chứa ít nhất một hạt tantan cacbua và ít nhất một tác nhân phân tán, trong đó tỷ lệ của ít nhất một hạt tantan cacbua là nằm trong khoảng từ 30% đến 95% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng của huyền phù này;
- iii) đưa huyền phù từ bước ii) lên bề mặt của chất nền graphit từ bước i);
- iv) làm khô huyền phù đã được dùng này, thu được sự tạo thành lớp màng phủ trên bề mặt của chất nền graphit.

2. Quy trình theo điểm 1, khác biệt ở chỗ:

ít nhất một hạt tantan cacbua có cỡ hạt trung bình ưu tiên là nằm trong khoảng từ 0,05 đến 25 μm , ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 0,5 đến 5 μm , và đặc biệt ưu tiên là nằm trong khoảng từ 1 đến 2 μm , và/hoặc

ít nhất một hạt tantan cacbua có hàm lượng các nguyên tố tạp chất ưu tiên là < 300 ppm, ưu tiên hơn là < 10 ppm, và đặc biệt ưu tiên là < 1 ppm; và/hoặc

chất phân tán được chọn từ nhóm bao gồm axit polyacrylic, ưu tiên là có số trọng lượng phân tử nằm trong khoảng từ 3000 đến 10000 g/mol và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 4000 đến 6000 g/mol, tetrabutylamoni hydroxit, và các hỗn hợp của nó.

3. Quy trình theo điểm 1 hoặc 2, khác biệt ở chỗ:

huyền phù chứa nước này chứa ít nhất một chất phụ gia được chọn từ nhóm bao gồm các bazơ, cụ thể là dung dịch natri hydroxit, các chất khử bọt, cụ

thể là polyalkylen glycol ete của rượu béo, tác nhân trợ giúp nung kết, cụ thể là coban hoặc silic, và các hỗn hợp của nó.

4. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 3, khác biệt ở chỗ:

tỷ lệ của các hạt tantan cacbua là nằm trong khoảng từ 40% đến 90% trọng lượng và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 60% đến 85% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng huyền phù; và/hoặc

tỷ lệ của chất phân tán là nằm trong khoảng từ 0,05% đến 5% trọng lượng và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 0,1% đến 2% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng huyền phù; và/hoặc

tỷ lệ của ít nhất một chất phụ gia là nằm trong khoảng từ 0% đến 10% trọng lượng và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 0,5% đến 5% trọng lượng tính trên tổng trọng lượng huyền phù.

5. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 3, khác biệt ở chỗ quy trình này còn bao gồm các bước sau:

v) xử lý trước chất nền graphit được cung cấp trong bước i) trước bước iii), với sự xử lý trước được thực hiện ưu tiên là bằng phương pháp được chọn từ nhóm bao gồm làm xù xì bề mặt bằng cơ học, xử lý trước bằng nhiệt bề mặt này, xử lý hóa học bề mặt này, và các sự kết hợp của các phương pháp này, và làm sạch sau đó, cụ thể là bằng phương tiện sóng siêu âm;

vi) nung lớp phủ thu được sau bước iv).

6. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 5, khác biệt ở chỗ, huyền phù trong bước iii) được dùng bằng cách sơn, nhúng hoặc phun.

7. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 6, khác biệt ở chỗ:

bước iv) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 100 đến 600°C, ưu tiên là nằm trong khoảng từ 120 đến 550°C, và ưu tiên hơn nằm trong khoảng

từ 145 đến 455°C, với ưu tiên cho thực hiện bước iv) trong khoảng thời gian từ 5 đến 40 giờ và ưu tiên hơn là từ 20 đến 30 giờ, đặc biệt ưu tiên được đưa ra cho quy trình làm khô iv) trong đó nhiệt độ gia tăng trong các giai đoạn, với các khoảng nhiệt độ và các khoảng thời gian sau ưu tiên nhất là:

- (1) từ 140 đến 160°C trong 2,5 đến 3,5 giờ; sau đó
- (2) từ 180 đến 220°C trong 1,5 đến 2,5 giờ; sau đó
- (3) được giữ trong 2 giờ ở nhiệt độ từ (2); sau đó
- (4) từ 200 đến 250°C trong 1,5 đến 2,5 giờ; sau đó
- (5) từ 310 đến 350°C trong 4,5 đến 5,5 giờ; sau đó
- (6) từ 330 đến 350°C trong 1,5 đến 2,5 giờ; sau đó
- (7) được giữ trong 2 giờ ở nhiệt độ từ (6); sau đó
- (8) từ 380 đến 420°C trong 3,5 đến 4,5 giờ; sau đó
- (9) từ 430 đến 470°C trong 1,5 đến 2,5 giờ;

và/hoặc

bước vi) được thực hiện ở nhiệt độ nằm trong khoảng từ 2000 đến 2600°C, ưu tiên là nằm trong khoảng từ 2100 đến 2500°C, và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 2200 đến 2300°C, với ưu tiên cho thực hiện bước vi) trong khoảng thời gian từ 1 đến 10 giờ và ưu tiên hơn là từ 3 đến 5 giờ; và/hoặc

bước vi) được thực hiện ở áp suất nằm trong khoảng từ 500 đến 900 torr ($6,66 \times 10^4$ bis $12,0 \times 10^4$ Pascal), ưu tiên là nằm trong khoảng từ 600 đến 800 torr ($8,00 \times 10^4$ bis $10,7 \times 10^4$ Pascal), và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 680 đến 720 torr ($9,07 \times 10^4$ bis $9,60 \times 10^4$ Pascal); và/hoặc

bước vi) được thực hiện dưới khí trơ, với khí trơ ưu tiên là được chọn từ nhóm bao gồm heli, argon, nitơ, và các hỗn hợp của chúng.

8. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 7, khác biệt ở chỗ:

mật độ mội của lớp phủ sau bước iv) và/hoặc trước bước vi) ít nhất là 50% và ưu tiên ít nhất là 60%; và/hoặc

lớp phủ sau bước iv) hoặc vi) có hàm lượng tạp chất nhỏ hơn 300 ppm và ưu tiên là nhỏ hơn 1 ppm; và/hoặc

lớp phủ sau bước iv) hoặc vi) có độ xốp mở nhỏ hơn 5% và ưu tiên là nhỏ hơn 1%.

9. Quy trình theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 8, khác biệt ở chỗ:

độ dày của của lớp phủ sau bước iv) hoặc vi) nằm trong khoảng từ 20 đến 500 μm , ưu tiên là nằm trong khoảng từ 50 đến 400 μm , và ưu tiên hơn nằm trong khoảng từ 100 đến 300 μm ; và/hoặc

độ pH của huyền phù chứa nước trước bước iii) nằm trong khoảng từ 5 đến 10 và ưu tiên là nằm trong khoảng từ 7 đến 8, đặc biệt cho axit polyacrylic làm chất phân tán.

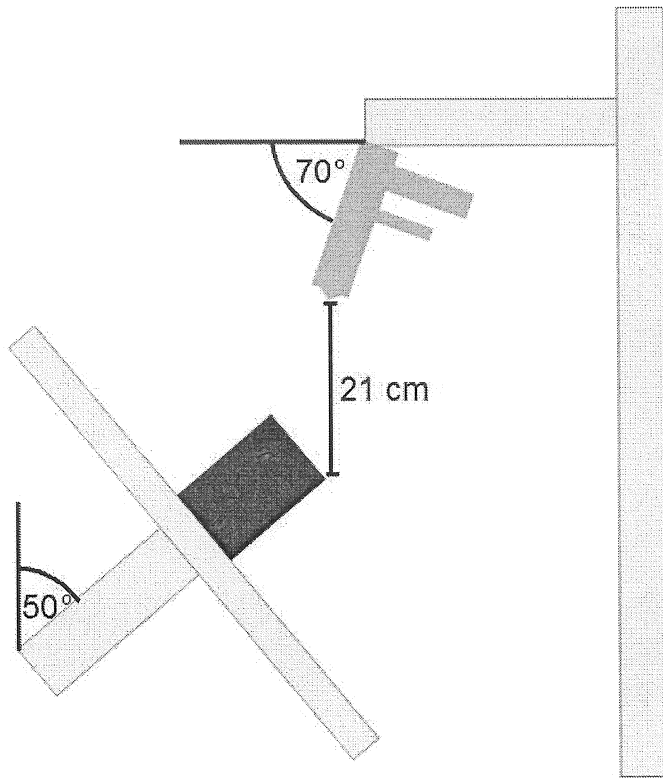


Fig. 1