

# Study on Preparing Nano $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ by High Temperature Combustion of Microwave Method

Ling-li Xiao<sup>1,2</sup>, Ji-cheng Zhou<sup>1,2</sup>, Ruo-li Sun<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>School of Chemical Engineering Xiangtan University, Xiangtan hunan, 411105, China

<sup>2</sup>Key Laboratory of Green Catalysis and Reaction Engineering, Department of education of Hunan Province, Xiangtan Hunan, 411105, China

Email: lingli171@163.com

**Abstract:** In this paper we synthesized nano  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  by calcining precursor into  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  in microwave oven under high temperature. We have investigated the influence of different calcining methods and heating mode in microwave on the crystal of  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ . The product was characterized by TEM and XRD. The results show that the  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  with high crystallinity, distinct lines of crystal and complete crystal form calcined by microwave method has a particle size of 10~20nm and narrow diameter distribution.

**Keywords:** Nano  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ; Microwave method; calcination

## 微波高温煅烧制备纳米 $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ 的研究

肖伶俐<sup>1,2</sup>, 周继承<sup>1,2</sup>, 孙若力<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup>湘潭大学化工学院, 湖南湘潭, 411105

<sup>2</sup>“绿色催化与反应工程”湖南省普通高等高校重点实验室, 湖南湘潭, 411105

Email: lingli171@163.com

**摘 要:** 采用微波高温煅烧氧化铝前躯体制备纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ 。考察了不同的煅烧方式、微波煅烧的升温方式以及煅烧时间对纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  晶型的影响。经 XRD 和 TEM 对产品进行表征分析, 结果表明微波煅烧优于普通马弗炉煅烧, 所制备的  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  平均粒径约为 10~20nm, 粒径分布窄, 结晶度高且纹路清晰, 晶型完整。

**关键字:** 纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ; 微波场; 煅烧

## 1 引言

刚玉 ( $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) 是一种重要的陶瓷材料, 纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  粉末在高强度材料、电子陶瓷、催化剂等<sup>[1,2]</sup> 方面具有相当广泛的应用潜力。传统合成  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  粉末的方法包括机械研磨、气相反应、沉淀法、水热法、溶胶-凝胶法等。要制备纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  比较困难, 其原因一在于氧化铝在晶型转变过程中颗粒会发生团聚, 难以达到纳米级; 其次是晶相纯度不高、杂峰多, 煅烧成  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  的温度要求 1200℃ 以上, 不同的前躯体通过不同的合成方法煅烧成终极态  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  的温度范围在 1000 到 1500℃ 间<sup>[3,4,5]</sup>, 然要达到较高的结晶度,

必须提高煅烧温度, 增加煅烧时间, 一般普通加热方式很难满足要求。

微波加热不同于普通加热, 普通煅烧方法是热能通过传导方式由试样表面向心部传递, 使试样表面温度高于内部。对于微波煅烧, 试样内部和表面具有同等吸收微波的能力, 试样内外能同时被均匀加热。试样内部的温度梯度小, 可使物质内部热应力减至最小, 这样可以阻止颗粒的团聚<sup>[6]</sup>。且微波加热要比常规加热快, 节约能源, 而且无污染<sup>[7]</sup>。

本文报道由超重力法制备的氧化铝前躯体使用微波高温煅烧成纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ , 考察了不同的煅烧方式、微波煅烧的升温方式以及煅烧时间的影响。

## 2 实验

### 2.1 制备氧化铝样品

基金项目: 湖南省高校科技创新团队支持计划资助。

联系人: 肖伶俐 (1984-), 女, 湖南株洲人, 硕士研究生, 师承周继承教授, 从事纳米功能材料的研究

电话: 15200329907 E-mail: lingli171@163.com

采用超重力方法合成氧化铝前驱体, 高温煅烧得到纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ 。普通煅烧使用刚玉坩埚称取 5g 样品放入马弗炉中, 调节煅烧温度为 1200℃, 煅烧时间 2h; 微波快速升温煅烧使用刚玉坩埚分别称取 5g 样品放入美国 CEM 公司的 Phonix 微波马弗炉中在 1200℃ 下煅烧 2h、3h、4h; 微波程序升温是根据前驱体 TG/DTA 的变化而定, 同样称取 5g 样品, 使用刚玉坩埚在 1200℃ 下煅烧 2h。煅烧后的样品冷却之后装袋。

## 2.2 产品物性表征

用 JEM 2010 型透射电子显微镜 (TEM) 观察粉体形貌、结晶纹路、微观结构分析并估算颗粒大小, 用日本理学 D/max-3c 型 X 射线粉末衍射仪 (XRD) 对所制备的样品进行结晶度的分析, 根据 sherrer 公式计算颗粒的尺寸。

## 3 实验结果与分析

$\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  通常是由氧化铝水合物在高温条件下加热脱水而得, 本文中其水合物为超重力法制备的拟薄水铝石<sup>[8]</sup>。

图 1 是其前驱体在普通马弗炉中和微波马弗炉中以 1200℃ 煅烧 2h 下的 XRD 谱图, 可以明显的看出煅烧方式对  $\alpha$ -氧化铝晶相的形成有显著的影响。图 1, a 使用微波煅烧得到的  $\alpha$ -氧化铝具有较高的结晶度, 在  $2\theta=25.55^\circ, 35.10^\circ, 37.73^\circ, 43.30^\circ, 52.48^\circ, 57.42^\circ, 66.43^\circ, 68.12^\circ$  以及  $76.76^\circ$  处有很强衍射峰, 与  $\alpha$ -氧化铝物质的标准谱 (PDF No.75-1862) 进行对照, 两者峰高度吻合。而使用普通马弗炉煅烧得到的  $\alpha$ -氧化铝结晶度较低, 结晶不完全。因为在微波条件下可作水分子激活形成非氢键缔合的活性水分子, 微波的内场加热形式在煅烧体系中形成了无梯度的均匀的热分布, 极大地加快了焙烧的速度, 改善了产品的性质。

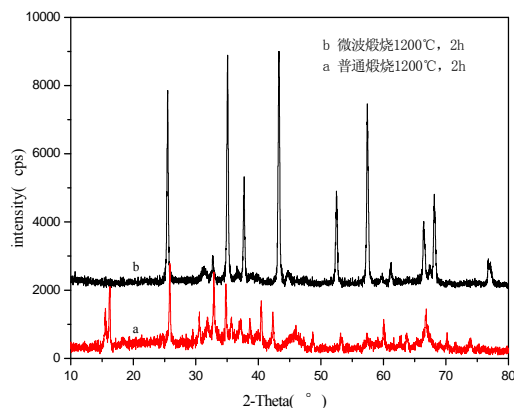


Figure 1 XRD patterns of  $\alpha$ -alumina powders calcined by muffle furnace and microwave

图 1 普通煅烧与微波煅烧  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  的 XRD 谱图

图 2 是前驱体在微波马弗炉中程序升温以 1200℃ 煅烧 2h 下的 XRD 图。微波程序升温的设定, 主要由其前驱体热重检测结果分析所得。从图中可以看出使用程序升温方式结晶度很高, 没有杂峰。原因是程序升温比快速升温方式减少了煅烧过程中的团聚, 煅烧更完全。

根据 scherrer 公式 ( $D_c=0.89\lambda/(B\cos\theta)$ ) 可计算出  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  的粒径在 10-20nm 之间。

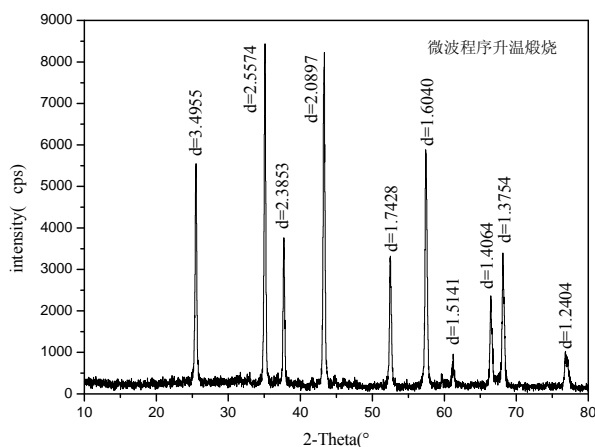


Figure 2 XRD patterns of  $\alpha$ -alumina powders calcined by microwave heating process

图 2 微波程序升温煅烧  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  的 XRD 谱图

图 3 是微波快速升温在 1200℃ 下煅烧不同时间的 XRD 图。煅烧时间分别为 2h、3h、4h, 从其衍射峰可以看出微波煅烧时间对晶型的影响不大, 微波加热要比常规加热快。由此可以说明要达到高的结晶度, 微波煅烧可大大减少煅烧时间。

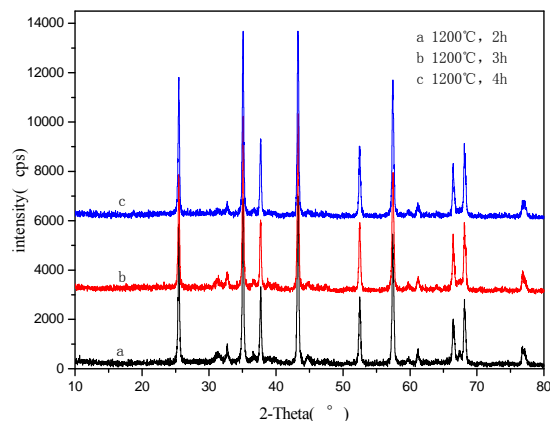


Fig.3 XRD patterns of  $\alpha$ -alumina powders calcined by microwave in different time

图 3 不同时间下微波煅烧  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  的 XRD 谱图

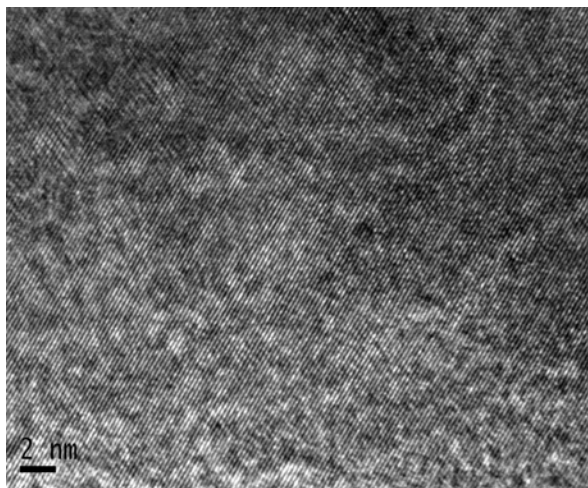


Fig.4 Crystal texture map of  $\alpha$ -alumina powders calcined by microwave heating process

图 4 微波程序升温煅烧  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  的晶体纹路图

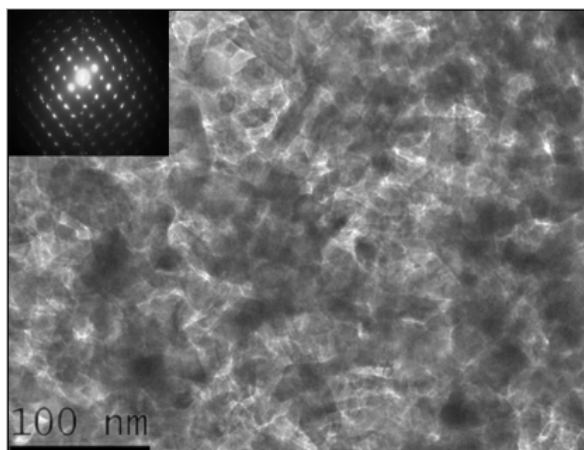


Fig.5 TEM images of  $\alpha$ -alumina powders calcined by microwave heating process

图 5 微波程序升温煅烧纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  的 TEM 图

图 4 和图 5 为微波程序升温  $1200^\circ\text{C}$  煅烧 2h 后所得  $\alpha$  氧化铝的 TEM 照片。图 4 是高放大倍数下所看到的晶相，晶体规则完整，纹路清晰。验证了 XRD 测试中结晶度较高的结论。图 5 为 TEM 观察到的样品的斑点及形貌，其斑点跟标准（JCPDS）相符合，由 TEM 可以测出制得的氧化铝粒径在 10-20nm 左右。

颗粒尺寸与通过 XRD 计算得到的结果吻合。

#### 4 结论

(1) 采用微波高温煅烧能很好的制备出平均粒径在 10~20nm，粒径分布窄，结晶度高且纹路清晰，晶型完整的纳米  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$ 。

(2) 微波煅烧明显优于普通煅烧。微波的内场加热形式在煅烧体系中形成了无梯度的均匀的热分布，极大地加快了焙烧的速度，改善了产品的品质。微波快速升温时间对晶型的影响不大。微波煅烧可大大减少煅烧时间。

(3) 微波程序升温优于快速升温。程序升温方式减少了煅烧过程中的团聚现象，煅烧更完全。

#### References (参考文献)

- [1] N. Ichinose, Superfine Particle Technology, Springer-Verlag, London, UK, 1993.
- [2] R. Uyeda, Progress of Materials Science(Pergamon, Oxford). 35 No.1 (1991) 1.
- [3] Jiang Li, Yubai Pan, Changshu Xiang, Qiming Ge, Jingkun Guo, Low temperature synthesis of ultrafine powder by a simple aqueous sol-gel process [J]. Ceramics International 32 (2006) 587-591.
- [4] Ranjan K. Pati, Jagadish C. Ray, Panchanan Pramanik, A novel chemical route for the synthesis of nanocrystalline powder [J]. Materials Letters. 44 (2000) 299-303.
- [5] Jiguang Li, Xudong Sun, Synthesis and sintering behavior of a nanocrystalline  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  powder [J]. Acta Mater. 48 (2000) 3103-3112.
- [6] Zhou Jian, Cheng Jiping, Yuan Runzhang, et al. Property and technology of WC-Co fine grain cemented carbide in microwave sintering [J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 1999, 3(9): 465-468  
周健,程吉平,袁润章等. 微波烧结 WC-Co 细晶硬质合金的工艺与性能 [J]. 中国有色金属学报, 1999, 3(9): 465-468
- [7] Jin Yong, Xie Huakun. Application and Development of Microwave sintering Technology [J]. Tool Technology. 2005, 39(1): 19-23  
晋勇, 谢华琨. 微波烧结技术的应用与发展 [J]. 工具技术, 2005, 39(1): 19-23
- [8] Li Youfeng, Zhou Jicheng, Liao Limin, et al. Preparation of dispersive aluminum Hydroxide Nanometer Powders By High-Gravity Varbanation Reactive Precipitation [J]. Journal of the Chinese Ceramic Society, 2006, 34(10): 1290-1294  
李友凤, 周继承, 廖立民等. 超重力碳分反应沉淀法制备分散性纳米氢氧化铝 [J]. 硅酸盐学报, 2006, 34(10): 1290-1294