



(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)



1-0030296

(51)⁷ C01B 31/04; H01M 4/02; C09D 11/52; (13) B
C10M 169/04; C08K 3/04; C08L 101/00

(21) 1-2017-01009

(22) 27/02/2015

(86) PCT/JP2015/055977 27/02/2015

(87) WO 2016/002254 A1 07/01/2016

(30) PCT/JP2014/073838 09/09/2014 JP

(45) 25/12/2021 405

(43) 25/07/2017 352A

(73) Graphene Platform Corporation (JP)

1-15-1, Ebisu-Minami, Shibuya-ku, Tokyo 150-0022 JAPAN

(72) HASEGAWA Shoji (JP); KAMIYA Nagisa (JP).

(74) Công ty Cổ phần Sở hữu công nghiệp INVESTIP (INVESTIP)

(54) TIỀN CHẤT GRAPHEN BAO GỒM VẬT LIỆU CACBON GỐC GRAPHIT

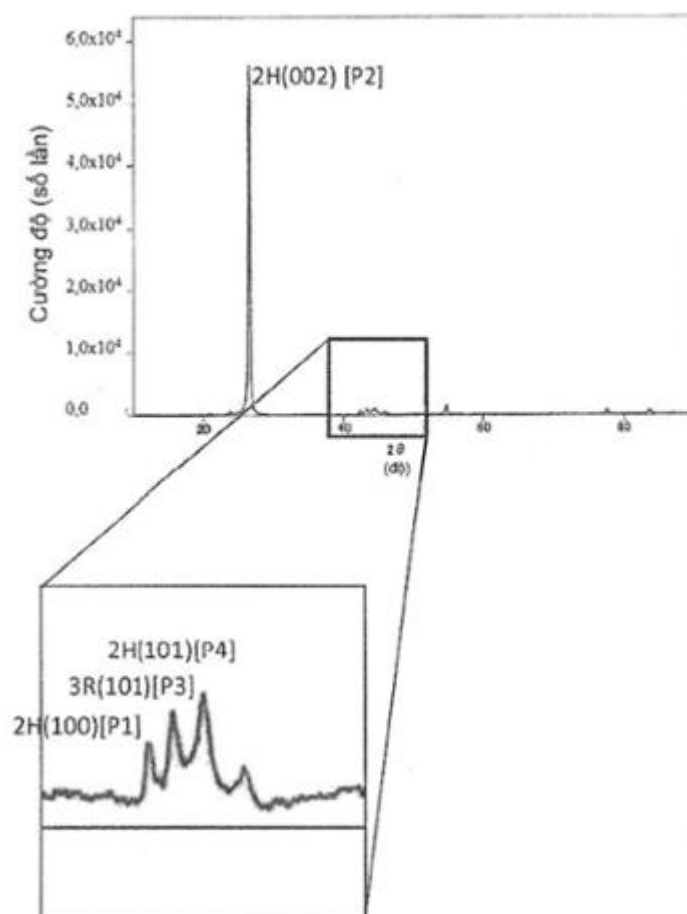
(57) Sáng chế đề cập đến vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen, mà graphen bị bóc ra dễ dàng từ vật liệu này khi vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất và mà hệ phân tán graphen đã cô đặc nhiều từ vật liệu này có thể thu được dễ dàng. Vật liệu cacbon gốc graphit là vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen trong đó tỷ lệ (3R) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, mà được xác định bởi phương trình sau đây 1 là 31% hoặc lớn hơn:

Tỷ lệ (3R) = $P3/(P3+P4) \times 100$ (phương trình 1)

trong đó:

P3 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit khối hộp thoi (3R) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

P4 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen mà có thể thu được graphen bằng phương pháp đơn giản, cũng như phương pháp tạo ra vật liệu này.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Trong những năm gần đây, sự bổ sung của các vật liệu nano khác nhau đã được nghiên cứu cho các mục đích thu nhỏ và tiết giảm trọng lượng trong các lĩnh vực khác nhau. Cụ thể, đối với các vấn đề môi trường và tài nguyên, các vật liệu cacbon như graphen, CNT (carbon nanotube - ống nano cacbon) và fulleren đã thu hút sự chú ý như các vật liệu nano phi kim.

Ví dụ, mặc dù cacbon đen đã được sử dụng làm chất trợ dẫn cho các pin lithi-ion và các dạng tương tự, sợi nano cacbon VGCF (nhãn hiệu đã đăng kí) được sản xuất bởi Showa Denko K.K., v.v., đã được nghiên cứu trong những năm gần đây để đảm bảo thêm tính dẫn điện (Tài liệu sáng chế 1).

Trong số chúng, graphen là vượt trội hơn so với các vật liệu cacbon khác theo khía cạnh về sản xuất hàng loạt, khả năng vận dụng, v.v., cũng như hiệu suất, và các kỳ vọng đã được đặt vào graphen trong các lĩnh vực khác nhau.

Để thu được graphen chất lượng cao mà, ví dụ, có các lớp graphit ít hơn, phương pháp trong đó các sóng siêu âm yếu được áp dụng vào graphit tự nhiên trong dung môi (NMP) trong khoảng thời gian dài (7-10 giờ), các khối kết tụ lớn mà kết lắng dưới đáy sau đó được loại bỏ, và dịch nổi sau đó được làm ly tâm để cô đặc nó, nhờ đó đạt được hệ phân tán graphen trong đó 20% vảy hoặc nhiều hơn của lớp đơn, 40% vảy hoặc nhiều hơn của hai lớp hoặc ba lớp, và nhỏ hơn 40% vảy của 10 lớp hoặc lớn hơn của vật liệu graphit được phân tán ở khoảng 0,5g/L, đã được xem xét (Tài liệu sáng chế 2).

Danh sách tài liệu viện dẫn

Tài liệu sáng chế

Tài liệu sáng chế 1: JP-A-2013-77475 (đoạn 0023)

Tài liệu sáng chế 2: WO 2014/064432 (các dòng từ 4 đến 9 ở trang 19)

Tài liệu phi sáng chế

Tài liệu phi sáng chế 1: “Structural Change of Graphite with Griding”; các tác giả: Michio INAGAKI, Hisae MUGISHIMA, và Kenji HOSOKAWA; ngày mùng 1 tháng Hai, năm 1973 (đã được thừa nhận)

Tài liệu phi sáng chế 2: “Changes of Probabilities P1, PABA, PABC with Heat Treatment of Carbons”; các tác giả: Tokiti NODA, Masaaki IWATSUKI, và Michio INAGAKI; ngày 16 tháng Chín, năm 1966 (đã được thừa nhận)

Tài liệu phi sáng chế 3: “Spectroscopic and X-ray diffraction studies on fluid deposited rhombohedral graphite from the Eastern Ghats Mobile Belt, India”; G.Parthasarathy, Current Science, Tập 90, số 7, ngày 10 tháng Tư năm 2006

Tài liệu phi sáng chế 4: “Classification of solid carbon materials and their structural characteristics”; Nagoya Institute of Technology; Shinji KAWASAKI.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Vấn đề kỹ thuật

Tuy nhiên, ngay cả khi vật liệu graphit (20% vảy hoặc lớn hơn của lớp đơn, 40% vảy hoặc lớn hơn của hai lớp hoặc ba lớp, và nhỏ hơn 40% vảy của 10 lớp hoặc lớn hơn) thu được bằng phương pháp được bộc lộ trong Tài liệu sáng chế 2 được trộn vào dung môi, lượng graphen được phân tán trong dung môi là nhỏ, và có thể chỉ thu được hệ phân tán graphen loãng. Ngoài ra, mặc dù được xem xét rằng dịch nổi được thu gom và được cô đặc, phải mất thời gian dài cho việc xử lý lặp lại các bước thu gom và cô đặc dịch nổi, và có vấn đề về hiệu suất sản xuất thấp của hệ phân tán graphen. Như được bộc lộ trong Tài liệu sáng chế 2, ngay cả bằng cách đưa graphit tự nhiên vào xử lý siêu âm trong khoảng thời gian dài, chỉ có các phần yếu của bề mặt bị tróc ra, các phần lớn khác không góp phần vào phần tróc ra, và được xem là vấn đề mà lượng graphen bị tróc ra là nhỏ.

Sáng chế đã được hoàn thành tập trung vào các điểm vấn đề này, và vật liệu cacbon gốc graphit, mà graphen bị tróc ra dễ dàng từ vật liệu này bằng cách thực hiện các việc xử lý định trước với graphit tự nhiên, và làm nó có thể phân tán graphen ở nồng độ cao hoặc ở mức độ cao được gọi là tiền chất graphen. Sau đó, mục đích của

sáng chế là đề xuất vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen, cũng như phương pháp tạo ra vật liệu này.

Giải quyết vấn đề

Để giải quyết các vấn đề nêu trên, vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen theo sáng chế có khác biệt bởi có lớp graphit khối hộp thoi (3R) và lớp graphit hình lục giác (2H), trong đó tỷ lệ (3R) của lớp graphit khối hộp thoi (3R) và lớp graphit hình lục giác (2H), dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, mà được xác định bởi phương trình sau đây 1 là 31% hoặc lớn hơn:

$$\text{Tỷ lệ (3R)} = P3/(P3+P4) \times 100 \quad (\text{phương trình 1})$$

trong đó:

P3 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit khối hộp thoi (3R) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

P4 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.

Theo khía cạnh này, do lượng lớn của lớp graphit khối hộp thoi (3R) mà một lớp bị tróc ra dễ dàng từ lớp này được chứa trong đó, vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen, mà graphen bị tróc ra dễ dàng từ vật liệu này khi vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất, và làm nó có thể phân tán graphen ở nồng độ cao hoặc ở mức độ cao có thể thu được.

Vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen theo sáng chế có khác biệt ở chỗ tỷ lệ (3R) là 40% hoặc lớn hơn.

Theo khía cạnh này, miễn là tỷ lệ (3R) là 40% hoặc lớn hơn, vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen mà graphen bị tróc ra dễ dàng hơn từ vật liệu này, so với các trường hợp mà tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn và nhỏ hơn 40%, có thể thu được dễ dàng.

Vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen theo sáng chế có khác biệt ở chỗ tỷ lệ (3R) là 50% hoặc lớn hơn.

Theo khía cạnh này, miễn là tỷ lệ (3R) là 50% hoặc lớn hơn, vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen mà graphen bị tróc ra dễ dàng hơn từ vật

liệu này, so với các trường hợp mà tỷ lệ (3R) là 40% hoặc lớn hơn và nhỏ hơn 50%, có thể thu được dễ dàng.

Vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen theo sáng chế có khác biệt ở chỗ tỷ số cường độ P1/P2 của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X là 0,01 hoặc lớn hơn, trong đó:

P1 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (100) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

P2 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (002) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.

Theo khía cạnh này, khi tỷ số cường độ P1/P2 của lớp graphit hình lục giác (2H) được tạo ra là 0,01 hoặc lớn hơn, sự mất trật tự định hướng cấu trúc tinh thể của vật liệu cacbon sẽ cao hơn, graphen bị trích ra dễ dàng, và vật liệu cacbon gốc graphit có thể được tạo ra có chức năng hiệu quả hơn làm tiền chất.

Vật liệu cacbon gốc graphit nêu trên hữu ích làm tiền chất graphen có khác biệt ở chỗ vật liệu cacbon gốc graphit được tạo ra bằng cách thực hiện việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và xử lý dựa trên lực vật lý trong chân không hoặc trong không khí.

Theo khía cạnh này, bằng cách kết hợp việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến bởi các vi sóng, các sóng milimet, plasma, làm nóng cảm ứng điện từ (IH), từ trường hoặc tương tự, và việc xử lý dựa trên lực vật lý bằng máy nghiền bi, máy nghiền phản lực, lực ly tâm, siêu trọng tới hạn hoặc tương tự, với vật liệu graphit tự nhiên trong chân không hoặc trong không khí, vật liệu cacbon gốc graphit bao gồm nhiều lớp graphit khối hộp thoi (3R) thu được. Ngoài ra, do các việc xử lý được thực hiện trong chân không hoặc trong không khí, thì các việc xử lý sau là đơn giản.

Phương pháp tạo ra vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen theo sáng chế có khác biệt bởi bao gồm: bước thực hiện xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và xử lý dựa trên lực vật lý với vật liệu graphit tự nhiên trong chân không hoặc trong không khí.

Theo khía cạnh này, bằng cách kết hợp việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến bởi các vi sóng, các sóng milimet, plasma, làm nóng cảm ứng điện từ (IH), từ trường

hoặc tương tự, và xử lý dựa trên lực vật lý bởi máy nghiền bi, máy nghiền phản lực, lực ly tâm, siêu trọng tới hạn hoặc tương tự, vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen, mà tách thành graphen dễ dàng hơn, so với sự sử dụng một trong hai việc xử lý, có thể thu được trong thời gian ngắn.

Phương pháp tạo ra vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen theo sáng chế có khác biệt ở chỗ vật liệu graphit tự nhiên nêu trên có ít nhất một lớp graphit hình lục giác (2H), và tỷ số cường độ P1/P2 của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X nhỏ hơn 0,01, trong đó:

P1 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (100) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

P2 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (002) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.

Theo các khía cạnh này, vật liệu cacbon có thể được tạo ra từ graphit tự nhiên dễ có mà sự mất trật tự định hướng cấu trúc tinh thể của vật liệu cacbon là thấp và thường gặp.

Vật liệu cacbon gốc graphit theo sáng chế có khác biệt bởi có lớp graphit khối hộp thoi (3R) và lớp graphit hình lục giác (2H), trong đó tỷ lệ (3R) của lớp graphit khối hộp thoi (3R) và lớp graphit hình lục giác (2H), dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, mà được xác định bởi phương trình sau đây 1 là 31% hoặc lớn hơn:

$$\text{Tỷ lệ (3R)} = P3/(P3+P4) \times 100 \quad (\text{phương trình 1})$$

trong đó:

P3 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit khối hộp thoi (3R) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

P4 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.

Theo các khía cạnh này, lượng lớn của lớp graphit khối hộp thoi (3R) mà bị tróc ra dễ dàng thành các lớp có thể thu được.

Hơn nữa, các khía cạnh khác là như sau.

Hệ phân tán graphen có khác biệt ở chỗ hệ phân tán graphen thu được bằng cách thực hiện xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và xử lý dựa trên lực vật lý với vật liệu cacbon gốc graphit nêu trên hữu ích làm tiền chất graphen trong chất lỏng.

Theo khía cạnh này, trong chất lỏng như dung môi, nhiệt tác động lên vật liệu cacbon gốc graphit do lực sóng vô tuyến bởi các vi sóng, các sóng milimet, plasma, làm nóng cảm ứng điện từ (IH), từ trường hoặc các dạng tương tự, và lực vật lý tiếp tục tác động lên trên đó bởi máy nghiền bi, máy nghiền phản lực, lực ly tâm, siêu trọng tới hạn hoặc các dạng tương tự. Do đó, bằng cách kết hợp xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và xử lý dựa trên lực vật lý, lượng lớn graphen bị tróc ra dễ dàng trong thời gian ngắn, vật liệu cacbon gốc graphit mà graphen không bị tróc ra và còn lại trong chất lỏng làm dung môi là ít, và graphen được phân tán nhiều trong đó. Do đó, lượng lớn graphen có thể được phân tán trong chất lỏng như dung môi, và hệ phân tán graphen đã cô đặc thu được.

Hệ phân tán graphen có khác biệt bởi chứa ít nhất là 0,01 phần theo trọng lượng của graphen hoặc lớn hơn.

Theo khía cạnh này, khi ít nhất 0,01 hoặc lớn hơn các phần theo trọng lượng của graphen có mặt, graphen có độ phân tán cao, và do đó, các chức năng được sử dụng bởi các hệ phân tán của graphen có thể được sử dụng đầy đủ.

Composit graphen có khác biệt ở chỗ composit graphen thu được bằng trộn vật liệu cacbon gốc graphit nêu trên hữu ích làm tiền chất graphen hoặc hệ phân tán graphen nêu trên với vật liệu nền composit, sau đó là khuấy trộn chúng trong khi áp dụng lực ép vào chúng.

Theo khía cạnh này, vật liệu cacbon gốc graphit nêu trên hoặc hệ phân tán graphen nêu trên và vật liệu nền composit được khuấy trộn trong khi áp dụng lực ép vào chúng, và do đó, graphen bị tróc ra dễ dàng từ đó, và graphen bị tróc ra được phân tán nhiều trong đó. Do đó, thu được composit graphen, mà có thể phân tán lượng lớn graphen trong vật liệu nền composit như các monome, các polyme, các vật liệu cacbon khác, gốm, gỗ, xi-măng, hoặc kim loại.

Composit graphen có khác biệt ở chỗ phụ gia liên kết được sử dụng trong việc khuấy trộn tiền chất graphen hoặc hệ phân tán graphen với vật liệu nền composit.

Theo khía cạnh này, do các sự ảnh hưởng của phụ gia liên kết, graphen bị tróc ra dễ dàng hơn.

Hệ phân tán graphen có khác biệt ở chỗ, khi 0,1 phần theo trọng lượng của vật liệu cacbon gốc graphit nêu trên hữu ích làm tiền chất graphen được trộn với N-methylpyrrolidon (NMP-N-methylpyrrolidone), và sóng siêu âm với công suất 100 W và với tần số 20kHz được áp dụng vào hỗn hợp thu được trong khoảng thời gian 3 giờ do đó làm phân tán graphen, 50% hoặc lớn hơn của lượng graphen mỗi lượng có 10 lớp hoặc ít hơn được tiếp xúc đối với tổng lượng của tất cả graphen và các tiền chất graphen.

Theo khía cạnh này, bằng cách chỉ thực hiện các việc xử lý nêu trên với 0,1 phần theo trọng lượng của vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen, hệ phân tán graphen trong đó graphen được phân tán ở nồng độ cao hoặc ở mức độ cao, sao cho lượng graphen mỗi lượng có 10 lớp hoặc ít hơn là 50% hoặc lớn hơn đối với tổng lượng của tất cả graphen và các tiền chất graphen, có thể thu được.

Vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen có khác biệt ở chỗ vật liệu cacbon gốc graphit được sử dụng với việc trộn khuấy trộn vật liệu nền composit.

Theo khía cạnh này, lực ép được áp dụng vào vật liệu cacbon gốc graphit với việc khuấy trộn chúng, và do đó, graphen bị tróc ra dễ dàng từ đó, và graphen bị tróc ra được phân tán nhiều trong đó. Do đó, thu được composit graphen, mà có thể phân tán lượng lớn graphen trong vật liệu nền composit như các monome, các polyme, các vật liệu cacbon khác, gốm, gỗ, xi-măng, hoặc kim loại.

Graphen trong vật liệu nền composit có khác biệt ở chỗ vật liệu nền composit là nhựa.

Theo khía cạnh này, có thể thu được vật dụng đúc nhựa có mức độ cao được phân tán graphen. Ví dụ, vật dụng đúc nhựa có mô đun đàn hồi ưu việt có thể thu được.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Fig.1 là hình vẽ thể hiện cấu trúc tinh thể của graphit, trong đó (a) để chỉ cấu trúc tinh thể của các tinh thể hình lục giác, và (b) để chỉ cấu trúc tinh thể của các tinh thể khối hộp thoi.

Fig.2 là biểu đồ thể hiện biên dạng nhiễu xạ tia X của graphit tự nhiên thông thường.

Fig.3 là biểu đồ minh họa thiết bị sản xuất A sử dụng máy nghiền phản lực và plasma của Ví dụ 1.

Fig.4 là hình vẽ minh họa thiết bị sản xuất B sử dụng máy nghiền bi và manhetron của Ví dụ 1, trong đó (a) là biểu đồ minh họa trạng thái tán thành bột, và (b) là biểu đồ minh họa trạng thái mà các vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền chất) được thu gom.

Fig.5 là biểu đồ thể hiện biên dạng nhiễu xạ tia X của vật liệu cacbon gốc graphit của mẫu 5 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B theo Ví dụ 1.

Fig.6 là biểu đồ thể hiện biên dạng nhiễu xạ tia X của vật liệu cacbon gốc graphit của mẫu 6 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất A theo Ví dụ 1.

Fig.7 là biểu đồ thể hiện biên dạng nhiễu xạ tia X của vật liệu cacbon gốc graphit của mẫu 1 chỉ ra ví dụ so sánh.

Fig.8 là biểu đồ thể hiện thiết bị tạo ra hệ phân tán mà tạo ra hệ phân tán sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit làm tiền chất.

Fig.9 là biểu đồ thể hiện các trạng thái phân tán của các hệ phân tán được tạo ra bằng cách sử dụng các vật liệu cacbon gốc graphit của mẫu 1 chỉ ra ví dụ so sánh, và mẫu 5 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B của Ví dụ 1.

Fig.10 là hình ảnh TEM của vật liệu cacbon gốc graphit (graphen) được phân tán trong hệ phân tán.

Fig.11 là hình vẽ thể hiện các trạng thái phân bố của vật liệu cacbon gốc graphit được phân tán trong hệ phân tán mà được tạo ra bằng cách sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit (tiền chất) của mẫu 5, mà (a) là biểu đồ thể hiện sự phân bố kích thước trung bình, trong khi (b) là biểu đồ thể hiện sự phân bố số lượng các lớp.

Fig.12 là hình vẽ thể hiện trạng thái phân bố của vật liệu cacbon gốc graphit được phân tán trong hệ phân tán mà được tạo ra bằng cách sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit của mẫu 1 chỉ ra ví dụ so sánh, mà (a) là biểu đồ thể hiện sự phân bố kích thước trung bình, và (b) là biểu đồ thể hiện sự phân bố số lượng các lớp.

Fig.13 là biểu đồ thể hiện các sự phân bố số lượng các lớp của mỗi vật liệu cacbon gốc graphit được phân tán trong các hệ phân tán mà được tạo ra bằng cách sử dụng các mẫu từ 1 đến 7 làm các tiền chất.

Fig.14 là biểu đồ thể hiện các tỷ lệ của graphen có 10 lớp hoặc ít hơn với hàm lượng của các tinh thể khối hộp thoi được phân tán trong hệ phân tán.

Fig.15 là hình vẽ thể hiện trạng thái phân bố của graphit khi thay đổi các điều kiện tạo ra hệ phân tán bằng cách sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit (tiền chất) của mẫu 5 theo Ví dụ 2, trong đó (a) là biểu đồ thể hiện sự phân bố trong trường hợp mà việc xử lý siêu âm và xử lý vi sóng được kết hợp, trong khi (b) là biểu đồ thể hiện sự phân bố số lượng các lớp trong trường hợp mà việc xử lý siêu âm được thực hiện.

Fig.16 là biểu đồ thể hiện trị số trở kháng khi vật liệu cacbon gốc graphit của Ví dụ 3 được phân tán trong mực dẫn điện.

Fig.17 là biểu đồ thể hiện độ bền kéo khi vật liệu cacbon gốc graphit của Ví dụ 4 được khuấy trộn với nhựa.

Fig.18 là biểu đồ thể hiện độ bền kéo khi vật liệu cacbon gốc graphit của Ví dụ 5 được khuấy trộn với nhựa.

Fig.19 là biểu đồ thể hiện các trạng thái phân tán của các vật liệu cacbon gốc graphit của các hệ phân tán để mô tả các trạng thái phân tán của Ví dụ 5 bổ sung, mà (a) là trạng thái phân tán của mẫu 12, và (b) là trạng thái phân tán của mẫu 2.

Mô tả chi tiết sáng chế

Sáng chế tập trung vào cấu trúc tinh thể của graphit, và, trước hết, các vấn đề liên quan đến cấu trúc tinh thể sẽ được giải thích. Đã biết rằng graphit tự nhiên được phân thành ba loại cấu trúc tinh thể, cụ thể là các tinh thể hình lục giác, các tinh thể khối hộp thoi và các tinh thể mất trật tự, phụ thuộc vào cách xếp chồng của các lớp. Như được thể hiện trong Fig.1, các tinh thể hình lục giác có cấu trúc tinh thể trong đó

các lớp được bố trí theo thứ tự ABABAB..., trong khi các tinh thể khối hộp thoi có cấu trúc tinh thể trong đó các lớp được bố trí theo thứ tự ABCABCABC...

Trong graphit tự nhiên, hầu như không có các tinh thể khối hộp thoi ở giai đoạn mà graphit tự nhiên được khai thác. Tuy nhiên, khoảng 14% của các tinh thể khối hộp thoi có trong các vật liệu cacbon gốc graphit tự nhiên thông thường bởi vì việc tán thành bột hoặc dạng tương tự được thực hiện trong giai đoạn tinh chế. Ngoài ra, đã biết rằng tỷ lệ của các tinh thể khối hộp thoi hội tụ về khoảng 30% ngay cả khi sự tán thành bột được thực hiện trong quá trình tinh chế trong khoảng thời gian dài (các Tài liệu phi sáng chế 1 và 2).

Hơn nữa, phương pháp trong đó graphit được kéo giãn bằng cách làm nóng, thay vì các lực vật lý như sự tán thành bột, do đó làm tróc vảy graphit. Tuy nhiên, ngay cả khi graphit được xử lý bằng nhiệt ở 1600 K (khoảng 1,300°C), tỷ lệ của các tinh thể khối hộp thoi là khoảng 25% (Tài liệu phi sáng chế 3). Hơn nữa, tỷ lệ lên đến khoảng 30% ngay cả khi nhiệt của nhiệt độ rất cao ở 3000°C được áp dụng lên đó (Tài liệu phi sáng chế 2).

Do đó, mặc dù có thể làm tăng tỷ lệ của các tinh thể khối hộp thoi bằng cách xử lý graphit tự nhiên với các lực vật lý hoặc nhiệt, giới hạn trên là khoảng 30%.

Các tinh thể hình lục giác (2H), mà được chứa trong graphit tự nhiên ở mức độ lớn, rất ổn định, và lực van der Waals lớp trung gian giữa các lớp graphen của chúng được thể hiện bởi phương trình 3 (Tài liệu sáng chế 2). Bằng cách áp dụng năng lượng vượt quá lực này, graphen bị tróc ra. Năng lượng cần cho sự làm tróc tỷ lệ nghịch với lập phương của độ dày. Do đó, ở trạng thái dày mà nhiều lớp được xếp chồng, graphen bị tróc ra bởi lực vật lý yếu như bởi các sóng siêu âm rất yếu. Tuy nhiên, trong trường hợp mà graphen bị tróc ra khỏi graphit hơi mỏng, thì cần năng lượng rất lớn. Nói cách khác, ngay cả nếu graphit được xử lý trong khoảng thời gian dài, chỉ các phần yếu của bề mặt bị tróc ra, và các phần lớn còn lại không bị tróc ra.

$$F_{vdw} = H \cdot A / (6\pi \cdot t^3) \quad (\text{phương trình 3})$$

F_{vdw} : Lực van der Waals

H: hằng số Hamaker

A: Diện tích bề mặt của graphit hoặc graphen

t: Các độ dày của graphit hoặc graphen

Các tác giả sáng chế đã thành công trong việc làm tăng tỷ lệ của các tinh thể khối hộp thoi (3R), vốn đã được tăng lên chỉ khoảng 30% bằng các cách xử lý tán thành bột hoặc làm nóng đến nhiệt độ rất cao, đến 30% hoặc lớn hơn bằng cách thực hiện các việc xử lý định trước, như được thể hiện dưới đây, với graphit tự nhiên. Các phát hiện sau đây thu được là kết quả của các thực nghiệm và các nghiên cứu. Tức là, khi hàm lượng của các tinh thể khối hộp thoi (3R) trong vật liệu cacbon gốc graphit cao hơn, cụ thể là khi hàm lượng là 31% hoặc lớn hơn, có xu hướng là graphen bị tróc ra dễ dàng bằng cách sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit này làm tiền chất, do đó dễ dàng thu được hệ phân tán graphen được cô đặc và được phân tán nhiều hoặc các dạng tương tự. Vì lý do này, đã được xem xét rằng, khi lực ép hoặc lực tương tự được áp dụng vào các tinh thể khối hộp thoi (3R), sự biến dạng xảy ra giữa các lớp, tức là sự biến dạng trong toàn bộ cấu trúc của graphit trở nên lớn, và graphen bị tróc ra dễ dàng không phụ thuộc vào lực van der Waals. Do đó, theo sáng chế, vật liệu cacbon gốc graphit, mà graphen được tróc ra dễ dàng từ vật liệu này bằng cách thực hiện các việc xử lý định trước với graphit tự nhiên, và làm nó có thể phân tán graphen ở nồng độ cao hoặc ở mức độ cao, được gọi là tiền chất graphen. Sau đây, phương pháp tạo ra tiền chất graphen thể hiện các việc xử lý định trước, cấu trúc tinh thể của tiền chất graphen, và hệ phân tán graphen sử dụng tiền chất graphen sẽ được mô tả theo thứ tự trong các ví dụ dưới đây.

Ở đây, trong bản mô tả, graphen để chỉ graphen dạng vảy hoặc dạng tấm mà là tinh thể có kích thước trung bình là 100nm hoặc lớn hơn nhưng không phải là tinh thể nhỏ có kích thước trung bình là vài nanomet đến vài chục nanomet, và có 10 lớp hoặc ít hơn.

Ngoài ra, do graphen là tinh thể có kích thước trung bình là 100nm hoặc lớn hơn, khi graphit nhân tạo và cacbon đen, mà là các vật liệu cacbon vô định hình (vì tinh thể) khác với graphit tự nhiên, thậm chí được xử lý, thì không thể thu được graphen (Tài liệu phi sáng chế 4).

Hơn nữa, trong bản mô tả này, composit graphen nghĩa là composit được tạo ra bằng cách sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen theo

sáng chế, tức là vật liệu cacbon gốc graphit có tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn (ví dụ các mẫu từ 2 đến 7 của Ví dụ 1; các mẫu 21, v.v., của Ví dụ 5 được mô tả dưới đây).

Sau đây, các ví dụ thực hiện vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen theo sáng chế, cũng như phương pháp tạo ra vật liệu này sẽ được mô tả.

Ví dụ thực hiện sáng chế

Ví dụ 1

Về việc sản xuất vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen

Phương pháp để thu được vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen bởi thiết bị sản xuất A sử dụng máy nghiền phản lực và plasma được thể hiện trong Fig.3 sẽ được giải thích. Làm ví dụ, thiết bị sản xuất A để chỉ trường hợp trong đó plasma được áp dụng để xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và trong đó máy nghiền phản lực được sử dụng để xử lý dựa trên lực vật lý.

Trong Fig.3, ký hiệu 1 để chỉ hạt 5mm hoặc nhỏ hơn của vật liệu graphit tự nhiên (graphit dạng vảy ACB-50 được sản xuất bởi Nippon Graphit Industries, Ltd.); ký hiệu 2 để chỉ phễu chứa vật liệu graphit tự nhiên 1; ký hiệu 3 để chỉ vòi phun Venturi mà xả vật liệu graphit tự nhiên 1 từ phễu 2; ký hiệu 4 để chỉ máy nghiền phản lực mà phun không khí đã được bơm vào máy nén 5, trong khi được chia thành tám vị trí, do đó cho phép vật liệu graphit tự nhiên va chạm đập vào bên trong của buồng bởi luồng phun; và ký hiệu 7 để chỉ máy tạo plasma mà phun khí 9, như oxy, argon, nitơ hoặc hydro, thông qua vòi phun 8 từ thùng 6 và áp dụng điện áp vào cuộn dây 11, được quấn quanh phần ngoại vi bên ngoài của vòi phun 8, từ nguồn cấp điện áp cao 10, nhờ đó tạo ra bên trong buồng của máy nghiền phản lực 4, và máy tạo plasma được bố trí ở mỗi trong số bốn vị trí bên trong buồng. Ký hiệu 13 để chỉ ống mà nối máy nghiền phản lực 4 và bộ thu bụi 14 với nhau; ký hiệu 14 để chỉ bộ thu bụi; ký hiệu 15 để chỉ vật gom; ký hiệu 16 để chỉ vật liệu cacbon gốc graphit (tiền chất graphen); và ký hiệu 17 để chỉ ống bể.

Tiếp theo, phương pháp tạo ra sẽ được giải thích. Các điều kiện cho máy nghiền phản lực và plasma là như sau.

Các điều kiện cho máy nghiền phản lực là như sau.

Áp suất: 0,5MPa

Thể tích không khí: 2,8 m³/phút

Đường kính bên trong vòi phun: 12mm

Tốc độ dòng: khoảng 410m/s

Các điều kiện cho plasma là như sau.

Công suất: 15W

Điện áp: 8kV

Các loại khí: Ar (độ tinh khiết 99,999% thể tích)

Khí tốc độ dòng: 5 L/phút

Cần hiểu rằng các vật liệu graphit tự nhiên 1, mà được nạp vào buồng của máy nghiền phản lực 4 từ vòi phun Venturi 3, được gia tốc đến tốc độ âm thanh hoặc cao hơn bên trong buồng, và được nghiền thành bột do tác động giữa các vật liệu graphit tự nhiên 1 hoặc do tác động của chúng đập vào thành, và, đồng thời, plasma 12 phóng dòng điện hoặc kích thích các vật liệu graphit tự nhiên 1, tác động trực tiếp lên các nguyên tử (các điện tử), và làm tăng sự biến dạng của các tinh thể, do đó thúc đẩy sự tán thành bột. Khi các vật liệu graphit tự nhiên 1 chuyển thành các hạt mịn có đường kính hạt nhất định (nằm trong khoảng từ 1 đến 10 μ m), khối lượng của chúng được giảm xuống, lực ly tâm bị yếu đi, và, do đó, các vật liệu graphit tự nhiên 1 được bơm ra từ ống 13 mà được nối với phần giữa của buồng.

Khí bao gồm các vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền chất graphen), mà được lưu thông từ ống 13 vào vật chứa hình trụ của buồng bộ thu bụi 14, tạo thành dòng xoắn ốc, và rơi xuống các vật liệu cacbon gốc graphit 16, mà va chạm với thành bên trong vật chứa, đến vật gom 15 ở dưới, trong khi dòng không khí từ dưới lên tạo ra ở phần giữa của buồng do phần vật chứa hình nêm ở phía dưới của buồng, và khí được thoát ra từ ống bễ 17 (được gọi là các hiệu ứng vòng xoáy). Theo thiết bị sản xuất A trong ví dụ này, khoảng 800g tiền chất graphen từ 1kg vật liệu thô, tức là các vật liệu graphit tự nhiên 1, được sử dụng. Vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền chất graphen) 16 thu được (hiệu suất thu hồi: khoảng 80%).

Tiếp theo, dựa trên thiết bị sản xuất B sử dụng máy nghiền bi và các vi sóng được thể hiện trong Fig.4, phương pháp để thu được vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen sẽ được mô tả. Thiết bị B để chỉ, làm ví dụ, trường hợp mà

các vi sóng được áp dụng làm xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và trường hợp máy nghiền bi được sử dụng để xử lý dựa trên lực vật lý.

Trong Fig.4 (a) và (b), ký hiệu 20 để chỉ máy nghiền bi; ký hiệu 21 để chỉ máy tạo vi sóng (manhetron); ký hiệu 22 để chỉ ống dẫn sóng; ký hiệu 23 để chỉ đầu vào vi sóng; ký hiệu 24 để chỉ phương tiện; ký hiệu 25 để chỉ các hạt 5mm hoặc nhỏ hơn của vật liệu graphit tự nhiên (graphit dạng vảy ACB-50 được sản xuất bởi Nippon Graphit Industries, ltd.); ký hiệu 26 để chỉ vật gom; ký hiệu 27 để chỉ bộ lọc; và ký hiệu 28 để chỉ vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền chất graphen).

Tiếp theo, phương pháp tạo ra sẽ được giải thích. Các điều kiện cho máy nghiền bi và các vi sóng là như sau.

Các điều kiện cho máy nghiền bi là như sau.

Tốc độ quay: 30rpm

Kích thước trung bình: $\phi 5\text{mm}$

Các loại phương tiện: các bóng zirconia

Thời gian tán thành bột: 3 giờ

Các điều kiện cho máy tạo vi sóng (manhetron) là như sau.

Công suất: 300W

Tần số: 2,45GHz

Phương pháp chiếu xạ: Gián đoạn

1kg các vật liệu thô cacbon graphit tự nhiên 25 và 800g của phương tiện 24 được nạp vào buồng của máy nghiền bi 20, buồng được đóng, và hỗn hợp được xử lý ở tốc độ quay là 30rpm trong khoảng thời gian 3 giờ. Trong quá trình xử lý, các vi sóng được chiếu xạ gián đoạn (khoảng 20 giây cho mỗi 10 phút) vào buồng. Cần hiểu rằng sự chiếu xạ vi sóng tác động trực tiếp lên các nguyên tử (các điện tử) của các vật liệu thô, do đó làm tăng sự biến dạng của các tinh thể. Sau khi xử lý, phương tiện 24 được loại bỏ khỏi bộ lọc 27, và do đó, bột khoảng $10\mu\text{m}$ của các vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền chất) 28 có thể được thu gom trong vật gom 26.

Về biên dạng nhiễu xạ tia X của các vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền chất graphen)

Đề cập đến các hình vẽ từ Fig.5 đến Fig.7, các biên dạng nhiễu xạ tia X và các cấu trúc tinh thể sẽ được mô tả đối với các vật liệu tự nhiên dựa trên graphite (các mẫu 6 và 5) được tạo ra bởi các thiết bị sản xuất A và B, và bột khoảng 10 μ m của các vật liệu tự nhiên dựa trên graphite (mẫu 1: ví dụ so sánh) thu được bằng chỉ sử dụng máy nghiền bi của thiết bị sản xuất B.

Các điều kiện đo cho thiết bị nhiễu xạ tia X như sau.

Nguồn: tia Cu K α

Tốc độ quét: 20 °/phút

Điện áp ống: 40kV

Dòng điện ống: 30mA

Theo phương pháp nhiễu xạ tia X (nhiễu xạ kế tia X đa dụng kiểu gắn mẫu ngang Ultima IV được sản xuất bởi Rigaku Corporation), mỗi mẫu thể hiện các cường độ đỉnh P1, P2, P3 và P4 trong các mặt phẳng (100), (002) và (101) của các tinh thể hình lục giác 2H và trong mặt phẳng (101) của các tinh thể khối hộp thoi 3R. Do đó, các cường độ đỉnh này sẽ được giải thích.

Ở đây, các phép đo của biên dạng nhiễu xạ tia X đã sử dụng các trị số chuẩn hóa ở trong và ngoài nước trong những năm gần đây. Nhiễu xạ kế tia X đa dụng kiểu gắn mẫu ngang Ultima IV này được sản xuất bởi Rigaku Corporation là thiết bị có thể đo biên dạng nhiễu xạ tia X theo JIS R 7651:2007 "Phép đo các thông số mạng và các kích thước mầm tinh thể của các vật liệu cacbon". Ngoài ra, tỷ lệ (3R) là tỷ lệ của cường độ nhiễu xạ thu được bằng phương trình: tỷ lệ (3R) = $P3 / (P3 + P4) \times 100$, ngay cả nếu trị số của cường độ nhiễu xạ được thay đổi, thì trị số của tỷ lệ (3R) không thay đổi. Có nghĩa là tỷ lệ của cường độ nhiễu xạ được chuẩn hóa, nó thường được sử dụng để tránh thực hiện việc xác định tính có trị số tuyệt đối và trị số của nó không phụ thuộc vào các thiết bị đo.

Như được thể hiện trong Fig.5 và Bảng 1, mẫu 5 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B, mà áp dụng việc xử lý với máy nghiền bi và xử lý vi sóng, có các tỷ lệ cao của các cường độ đỉnh P3 và P1, và tỷ lệ (3R) được xác định bằng phương trình 1 thể hiện tỷ lệ của P3 với tổng của P3 và P4 là 46%. Ngoài ra, tỷ số cường độ P1/P2 là 0,012.

$$\text{Tỷ lệ (3R)} = P3/(P3+P4) \times 100 \quad (\text{phương trình 1})$$

trong đó:

P1 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (100) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X,

P2 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (002) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X,

P3 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit khối hộp thoi (3R) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

P4 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.

Bảng 1

	Các cường độ đỉnh [số đếm·độ] ($2\theta[^\circ]$)
Các tinh thể hình lục giác 2H (100) [P1]	162 (42,33)
Các tinh thể hình lục giác 2H (002) [P2]	13157 (26,50)
Các tinh thể khối hộp thoi 3R (101) [P3]	396 (43,34)
Các tinh thể hình lục giác 2H (101) [P4]	466 (44,57)

Theo cách này, như được thể hiện trong Fig.6 và Bảng 2, mẫu 6 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất A, mà áp dụng việc xử lý dựa trên máy nghiền phản lực và xử lý dựa trên plasma, có tỷ lệ cao của các cường độ đỉnh P3 và P1, và tỷ lệ (3R) là 51%. Ngoài ra, tỷ lệ cường độ P1/P2 là 0,014.

Bảng 2

	Các cường độ đỉnh [số đếm·độ] ($2\theta[^\circ]$)
Các tinh thể hình lục giác 2H (100) [P1]	66 (42,43)
Các tinh thể hình lục giác 2H (002) [P2]	4.675 (26,49)
Các tinh thể khối hộp thoi 3R (101) [P3]	170 (43,37)

Các tinh thể hình lục giác 2H (101) [P4]	162 (44,63)
---	----------------

Hơn nữa, như được thể hiện trong Fig.7 và Bảng 3, mẫu 1 chỉ ra ví dụ so sánh được tạo ra chỉ với máy nghiền bi có tỷ lệ nhỏ của cường độ đỉnh P3, so với các mẫu 5 và 6, và tỷ lệ (3R) là 23%. Ngoài ra, tỷ lệ cường độ P1/P2 là 0,008.

Bảng 3

	Các cường độ đỉnh [số đếm/độ] (2 θ [°])
Các tinh thể hình lục giác 2H (100) [P1]	120 (42,4)
Các tinh thể hình lục giác 2H (002) [P2]	15.000 (26,5)
Các tinh thể khối hộp thoi 3R (101) [P3]	50 (43,3)
Các tinh thể hình lục giác 2H (101) [P4]	160 (44,5)

Do đó, mẫu 5 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B của Ví dụ 1, và mẫu 6 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất A của Ví dụ 1 có các tỷ lệ (3R) lần lượt là 46% và 51%, và nó đã thể hiện rằng các tỷ lệ (3R) của chúng là 40% hoặc lớn hơn, hoặc 50% hoặc lớn hơn, so với graphit tự nhiên được thể hiện trong Fig.2 và mẫu 1 chỉ ra ví dụ so sánh.

Tiếp theo, các hệ phân tán graphen được tạo ra bằng cách sử dụng các tiền chất graphen được tạo ra ở trên, và tính dễ dàng của chúng về sự tróc ra của graphen được đánh giá.

Về các hệ phân tán graphen

Phương pháp tạo ra hệ phân tán graphen sẽ được giải thích đề cập đến Fig.8. Fig.8 thể hiện, làm ví dụ, trường hợp mà sự xử lý siêu âm và xử lý vi sóng được kết hợp trong chất lỏng khi hệ phân tán graphen được tạo ra.

- (1) 0,2g của vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen và 200ml của N-methylpyrrolidon (NMP) mà đóng vai trò làm môi trường phân tán được nạp vào cốc vại 40.
- (2) Cốc vại 40 được đặt vào buồng 42 của máy tạo vi sóng 43, và bộ rung siêu âm 44A của đầu phát siêu âm 44 được đưa vào môi trường phân tán 41 từ hướng phía trên.
- (3) Đầu phát siêu âm 44 được kích hoạt, và các sóng siêu âm của 20kHz (100W) được áp dụng liên tục trong khoảng thời gian 3 giờ.
- (4) Trong khi đầu phát siêu âm nêu trên 44 được khởi động, máy tạo vi sóng 43 được kích hoạt để áp dụng các vi sóng 2,45GHz (300W) gián đoạn (chiếu xạ trong khoảng thời gian 10 giây cho mỗi 5 phút) vào đó.

Fig.9 đề cập đến các vẽ bề ngoài của các hệ phân tán graphen được tạo ra theo cách nêu trên khi 24 giờ đã trôi qua.

Mặc dù một phần của hệ phân tán graphen 30 sử dụng mẫu 5 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B được kết lắng, toàn bộ sản phẩm thể hiện màu đen được quan sát. Đối với điều này, cần hiểu rằng một phần lớn các vật liệu cacbon gốc graphit được sử dụng làm các tiền chất graphen được phân tán ở trạng thái mà graphen bị tróc ra khỏi chúng.

Trong hệ phân tán 31 sử dụng mẫu 1 chỉ ra ví dụ so sánh, hầu hết các vật liệu cacbon gốc graphit được kết lắng, và được khẳng định rằng một phần của chúng bị nổi là dịch nổi. Từ các thực tế, cần hiểu rằng graphen bị tróc ra từ phần nhỏ của chúng và chúng bị nổi là dịch nổi.

Hơn nữa, hệ phân tán graphen được tạo ra theo cách nêu trên được pha loãng đến nồng độ quan sát được, được phủ lên trên giai đoạn mẫu (lưới TEM), và lưới được làm khô. Do đó, kích cỡ và số lượng các lớp của graphen được quan sát trong hình ảnh được chụp của kính hiển vi điện từ truyền qua (TEM-transmission electron microscope), như được thể hiện trong Fig.10. Ngoài ra, lưới được phủ dịch nổi pha

loãng được sử dụng cho mẫu 1. Ví dụ, trong trường hợp của Fig.10, kích cỡ tương ứng với chiều dài tối đa L của vảy 33, mà là 600nm, dựa trên Fig.10 (a). Như với số lượng các lớp, mặt đầu của vảy 33 được quan sát trong Fig.10 (b), và chồng lên các lớp graphen được tính, do đó tính số lượng các lớp là 6 lớp (phần được chỉ ra bởi ký hiệu 34). Theo cách này, kích cỡ và số lượng các lớp được đo với mỗi vảy ("N" chỉ ra số lượng của các vảy), và các số lượng của các lớp graphen và các kích cỡ được thể hiện trong Fig.11 và Fig.12 thu được.

Đề cập đến Fig.11 (a), sự phân bố cỡ hạt (sự phân bố các kích thước) của các vảy mỏng được chứa trong hệ phân tán graphen của mẫu 5 (Tỷ lệ (R3) là 46%) được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B của Ví dụ 1 là phân bố có đỉnh là 0,5 μ m. Ngoài ra, trong Fig.11 (b), về số lượng các lớp, sự phân bố mà có đỉnh ở 3 lớp và trong đó graphen có 10 lớp hoặc ít hơn là 68% được quan sát.

Đề cập đến Fig.12, sự phân bố cỡ hạt (sự phân bố các kích thước) của các vảy mỏng được chứa trong hệ phân tán của mẫu 1 (tỷ lệ (R3) là 23%) của ví dụ so sánh là phân bố có đỉnh là 0,9 μ m. Ngoài ra, về số lượng các lớp, sự phân bố trong đó phân bố này có 30 lớp hoặc lớn hơn chiếm phần lớn hơn và trong đó graphen có 10 lớp hoặc ít hơn là 10% được quan sát.

Từ các kết quả này, đã bộc lộ rằng, khi sản phẩm của mẫu 5 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B được sử dụng làm tiền chất graphen, hệ phân tán graphen đã cô đặc nhiều mà chứa nhiều graphen có 10 lớp hoặc ít hơn và có độ phân tán ưu việt của graphen có thể thu được.

Tiếp theo, đề cập đến Fig.13, mối quan hệ giữa tỷ lệ (3R) của tiền chất graphen và số lượng các lớp trong hệ phân tán graphen sẽ được mô tả. Các mẫu 1, 5 và 6 trong Fig.13 là các mẫu được mô tả ở trên. Các mẫu 2, 3 và 4 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B mà được thực hiện việc xử lý dựa trên máy nghiền bi và xử lý vi sóng, và có các hệ phân tán graphen được tạo ra bằng cách sử dụng các tiền chất graphen mà được tạo ra bằng cách thực hiện thời gian chiếu xạ của các vi sóng ngắn hơn so với

thời gian chiếu xạ của mẫu 5. Ngoài ra, mẫu 7 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất A mà được thực hiện việc xử lý dựa trên máy nghiền phản lực và xử lý plasma, và có hệ phân tán graphene được tạo ra bằng cách sử dụng tiền chất graphene mà đã được tạo ra bằng cách áp dụng plasma của công suất cao hơn so với áp dụng cho mẫu 6.

Từ Fig.13, về các mẫu 2 và 3 thể hiện các tỷ lệ (3R) lần lượt là 31% và 38%, các sự phân bố số lượng các lớp có các đỉnh ở khoảng 13 là số lượng các lớp; tức là, các hình dạng của các sự phân bố mà gần với các hình dạng của sự phân bố thông thường (các hệ phân tán sử dụng các mẫu 2 và 3). Về các mẫu từ 4 đến 7 thể hiện các tỷ lệ (3R) là 40% hoặc lớn hơn, các sự phân bố số lượng các lớp có các đỉnh ở nhiều số lượng các lớp (graphen mỏng); tức là, các hình dạng của các sự phân bố là các hình dạng của các phân bố loga chuẩn. Mặt khác, về mẫu 1 có tỷ lệ (3R) là 23%, sự phân bố của chúng có đỉnh ở 30 hoặc nhiều hơn là số lượng các lớp (hệ phân tán sử dụng mẫu 1). Tức là, phải được hiểu như sau: có xu hướng là, trong các trường hợp mà tỷ lệ (3R) đạt 31% hoặc lớn hơn, các hình dạng của các sự phân bố số lớp khác với các hình dạng đối với các trường hợp mà tỷ lệ (3R) nhỏ hơn 31%; và hơn nữa, trong các trường hợp mà tỷ lệ (3R) đạt đến 40% hoặc lớn hơn, các hình dạng của các sự phân bố số lớp khác rõ ràng với các hình dạng đối với các trường hợp mà tỷ lệ (3R) nhỏ hơn 40%. Ngoài ra, có thể hiểu được rằng, về các tỷ lệ của graphene của 10 lớp hoặc ít hơn, tỷ lệ (3R) của hệ phân tán sử dụng mẫu 3 là 38%, trong khi tỷ lệ (3R) của hệ phân tán sử dụng mẫu 4 là 62%, và, khi tỷ lệ (3R) đạt đến 40% hoặc lớn hơn, tỷ lệ graphene của 10 lớp hoặc ít hơn tăng lên nhanh chóng.

Từ các thực tế này, có thể được hiểu rằng graphene của 10 lớp hoặc ít hơn bị tróc ra dễ dàng trong các trường hợp mà tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn, và, khi tỷ lệ (3R) tăng lên đến 40%, 50% và 60%, graphene của 10 lớp hoặc ít hơn bị tróc ra dễ dàng hơn. Tuy nhiên, có thể được hiểu thêm rằng, ngược lại, graphene của 10 lớp hoặc ít hơn khó tróc ra trong các trường hợp mà tỷ lệ (3R) nhỏ hơn 40%. Ngoài ra, tập trung vào tỷ lệ cường độ P1/P2, các mẫu từ 2 đến 7 thể hiện các trị số nằm trong khoảng tương

đổi hẹp từ 0,012 đến 0,016, và bất kỳ trong số chúng được ưu tiên bởi vì chúng vượt quá 0,01 mà cần hiểu rằng graphene bị tróc ra dễ dàng do các cấu trúc tinh thể sẽ bị biến dạng.

Hơn nữa, các kết quả thu được bằng các so sánh các tỷ lệ (3R) và các tỷ lệ của graphene của 10 lớp hoặc ít hơn được chứa trong đó được thể hiện trong Fig.14. Đề cập đến Fig.14, đã bộc lộ rằng, khi tỷ lệ (3R) đã đạt 25% hoặc lớn hơn, khoảng 31%, graphene của 10 lớp hoặc ít hơn đã bắt đầu tăng lên (thể hiện độ dốc ngày càng tăng). Hơn nữa, đã bộc lộ rằng, khoảng 40%, graphene của 10 lớp hoặc ít hơn được tăng lên nhanh chóng (về các tỷ lệ của graphene của 10 lớp hoặc ít hơn, ngược lại tỷ lệ (3R) của hệ phân tán sử dụng mẫu 3 là 38%, tỷ lệ (3R) của hệ phân tán sử dụng mẫu 4 là 62%, và tỷ lệ của graphene của 10 lớp hoặc ít hơn được tăng lên nhanh chóng là 24% khi tỷ lệ (3R) được tăng lên 4%), và tỷ lệ phần trăm của graphene của 10 lớp hoặc ít hơn đập vào tổng graphene là 50% hoặc lớn hơn. Ngoài ra, các điểm của mỗi hình vuông màu đen trong Fig.14 tương ứng với các mẫu khác nhau, và các mẫu từ 1 đến 7 được mô tả ở trên và các mẫu khác được chứa trong đó.

Từ các thực tế này, khi mẫu thể hiện tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn được sử dụng làm tiền chất graphene để tạo ra hệ phân tán graphene, tỷ lệ của graphene được phân bố của 10 lớp hoặc ít hơn bắt đầu tăng lên; hơn nữa, khi mẫu thể hiện tỷ lệ (3R) là 40% hoặc lớn hơn được sử dụng làm tiền chất graphene để tạo ra hệ phân tán graphene, 50% hoặc lớn hơn của graphene của 10 lớp hoặc ít hơn được tạo ra. Nói cách khác, hệ phân tán graphene trong đó graphene được cô đặc nhiều và được phân tán nhiều có thể thu được. Hơn nữa, bởi vì hầu như không có các vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền chất) được chứa trong hệ phân tán kết lắng như được nêu ở trên, hệ phân tán graphene đã cô đặc có thể thu được dễ dàng. Theo phương pháp này, ngay cả hệ phân tán graphene mà có nồng độ graphene vượt quá 10% có thể được tạo ra mà không cần cô đặc nó. Cụ thể, tốt hơn là tỷ lệ (3R) là 40% hoặc lớn hơn theo quan điểm về tỷ lệ của graphene được phân tán của 10 lớp hoặc ít hơn tăng mạnh đến 50% hoặc lớn hơn.

Phần mô tả ở trên làm rõ như sau: khi tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn, tốt hơn là 40% hoặc lớn hơn, và hơn nữa tốt hơn là 50% hoặc lớn hơn, sự tách thành graphen của 10 lớp hoặc ít hơn và các vật liệu cacbon gốc graphit mỏng của khoảng 10 lớp xảy ra ở tỷ lệ lớn hơn trong nhiều trường hợp; và trong trường hợp mà các vật liệu cacbon gốc graphit này được sử dụng làm các tiền chất graphen, hệ phân tán graphen đã cô đặc nhiều mà có độ phân tán ưu việt của graphen có thể thu được. Hơn nữa, Ví dụ 5 được mô tả dưới đây làm rõ rằng, trong trường hợp mà tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn, các vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen.

Hơn nữa, giới hạn trên cho tỷ lệ (3R) được xem là giới hạn trên không được xác định cụ thể. Tuy nhiên, giới hạn trên được xác định sao cho tỷ lệ cường độ P1/P2 đồng thời thỏa mãn 0,01 hoặc lớn hơn được ưu tiên, bởi vì các tiền chất graphen bị tróc ra dễ dàng khi hệ phân tán hoặc dạng tương tự được tạo ra. Ngoài ra, trong trường hợp các phương pháp sản xuất sử dụng các thiết bị sản xuất A và B, giới hạn trên là khoảng 70%, theo quan điểm mà graphen được tạo ra dễ dàng. Ngoài ra, phương pháp kết hợp việc xử lý dựa trên máy nghiền phản lực của thiết bị sản xuất A và xử lý plasma được ưu tiên hơn, bởi vì tiền chất graphen có tỷ lệ (3R) cao hơn có thể thu được dễ dàng. Ngoài ra, tỷ lệ (3R) miễn là nó đạt đến 31% hoặc lớn hơn bằng cách kết hợp xử lý dựa trên lực vật lý và xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến.

Ví dụ 2

Trong Ví dụ 1, trường hợp mà việc xử lý siêu âm và xử lý vi sóng được kết hợp để thu được hệ phân tán graphen được giải thích. Trong Ví dụ 2, chỉ có xử lý siêu âm được thực hiện trong khi xử lý vi sóng không được thực hiện, và các điều kiện khác là giống như các điều kiện của ví dụ 1.

Fig.15 (b) thể hiện sự phân bố số lượng các lớp đối với hệ phân tán graphen mà thu được bằng cách thực hiện việc xử lý siêu âm sử dụng tiền chất graphen của mẫu 5 (tỷ lệ (3R) = 46%) được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B. Ngoài ra, Fig.15 (a) là

giống như sự phân bố được thể hiện trong Fig.11 (b) của mẫu 5 được tạo ra bởi thiết bị sản xuất B của Ví dụ 1.

Kết quả là, mặc dù xu hướng của sự phân bố số lượng các lớp là gần như tương tự nhau, tỷ lệ của graphen của 10 lớp hoặc ít hơn là 64%, và bị giảm nhẹ, so với 68% của Ví dụ 1. Từ thực tế này, đã bộc lộ rằng việc đồng thời thực hiện hai việc xử lý dựa trên lực vật lý và lực sóng vô tuyến để tạo ra hệ phân tán graphen có hiệu quả hơn.

Ví dụ 3

Trong Ví dụ 3, ví dụ được sử dụng cho mực dẫn điện sẽ được mô tả.

Mẫu 1 (tỷ lệ (3R) = 23%), mẫu 3 (tỷ lệ (3R) = 38%), mẫu 5 (tỷ lệ (3R) = 46%) và mẫu 6 (tỷ lệ (3R) = 51%) của Ví dụ 1 được sử dụng làm các tiền chất graphen trong dung dịch hỗn hợp của nước và ancol có cacbon là 3 hoặc nhỏ hơn, mà đóng vai trò làm chất truyền dẫn, ở các nồng độ được chấp nhận cho các mực dẫn điện, do đó tạo ra INK1, INK3, INK5 và INK6, và các trị số trở kháng của chúng được so sánh. Dựa trên các kết quả, khi các Tỷ lệ (3R) trở nên càng cao, thì các trị số trở kháng càng thấp.

Ví dụ 4

Trong ví dụ 4, ví dụ trong đó tiền chất graphen được khuấy trộn với nhựa sẽ được giải thích.

Khi tấm nhựa, trong đó graphen được phân tán, được tạo ra, độ bền kéo là rất cao mặc dù các sợi thủy tinh được bổ sung vào đó. Do đó, một yếu tố về điều này được nghiên cứu, và, do đó, phát hiện ra rằng phụ gia liên kết được bổ sung đồng thời với các sợi thủy tinh góp phần vào sự tạo ra của graphen từ tiền chất có thể thu được. Do đó, các sản phẩm thu được bằng trộn các hệ phân tán và phụ gia liên kết vào nhựa được nghiên cứu.

1% trọng lượng của mẫu 5 (tỷ lệ (3R) = 46%) của Ví dụ 1 được bổ sung làm tiền chất trực tiếp vào LLDPE (polyetylen), và hỗn hợp được khuấy trộn trong khi áp

dụng việc ép (lực ép) vào hỗn hợp này với máy khuấy, máy khuấy hai trục (máy ép đùn) hoặc dạng tương tự.

Đã được biết đến rằng, khi các vật liệu cacbon gốc graphit được chuyển thành graphen, được phân tán nhiều trong nhựa, độ bền kéo tăng lên. Do đó, bằng cách làm tăng độ bền kéo của nhựa, các mức độ tróc ra thành graphen và hệ phân tán có thể được đánh giá một cách tương đối. Độ bền kéo được đo máy thử đa dụng mặt bàn chính xác (AUTOGRAPH AGS-J) được sản xuất bởi Shimadzu Corporation trong điều kiện về tốc độ thử nghiệm là 500mm/phút.

Ngoài ra, để so sánh mức độ tróc ra thành graphen và độ phân tán phụ thuộc vào sự có mặt hay không có mặt của các chất phụ gia, các sự so sánh sau đây của ba loại (a), (b) và (c) được thực hiện.

(a) Không có các chất phụ gia

(b) hệ phân tán thông thường (kẽm stearat)

(c) phụ gia liên kết (polyme được làm biến tính bằng cách ghép nối)

Đề cập đến Fig.17 thể hiện các kết quả đo, các kết quả sẽ được giải thích. Ngoài ra, trong Fig.17, các vòng tròn để chỉ các vật liệu nhựa sử dụng mẫu 1 của ví dụ so sánh, và các hình vuông để chỉ các vật liệu nhựa sử dụng mẫu 5 của Ví dụ 1.

Trong trường hợp (a) mà không có chất phụ gia được bổ sung, sự chênh lệch về các độ bền kéo là nhỏ.

Trong trường hợp (b) mà hệ phân tán được bổ sung, đã bộc lộ rằng sự tạo ra của graphen được thúc đẩy đến mức độ nhất định trong tiền chất graphen của mẫu 5.

Trong trường hợp (c) mà phụ gia liên kết được bổ sung, đã bộc lộ rằng mà sự tạo ra của graphen được thúc đẩy đáng kể trong tiền chất graphen của mẫu 5. Điều này là vì cần hiểu rằng, ngoài các hiệu quả phân tán graphen, phụ gia liên kết gắn kết các

thể gắn kết lớp graphen và nhựa, và tác động lên chúng sao cho các thể gắn kết lớp graphen được tách thành dải từ đó, khi áp dụng việc ép ở trạng thái đó.

Kẽm stearat được giải thích ở trên làm ví dụ về hệ phân tán. Tuy nhiên, các chất phù hợp cho các hợp chất có thể được chọn. Như các ví dụ về hệ phân tán, các chất hoạt động bề mặt anion (anion), các chất hoạt động bề mặt cation (cation), các chất hoạt động bề mặt ion lưỡng tính, và các chất hoạt động bề mặt không ion có thể được đề cập. Cụ thể, các chất hoạt động bề mặt anion và các chất hoạt động bề mặt không ion được ưu tiên cho graphen. Các chất hoạt động bề mặt không ion được ưu tiên hơn. Do các chất hoạt động bề mặt không ion là các chất hoạt động bề mặt mà không phân ly thành các ion và thể hiện các đặc tính ưa nước bởi các liên kết hydro với nước, như được quan sát trong các nhóm oxyetylen, các nhóm hydroxyl, các mạch carbohydrat như glucozit, và các dạng tương tự, có ưu điểm là chúng có thể được sử dụng trong các dung môi không phân cực, mặc dù chúng không có độ bề của tính ưa nước cao như các chất hoạt động bề mặt ion. Hơn nữa, điều này là vì, bằng cách thay đổi chiều dài mạch của các nhóm ưa nước, các đặc tính của chúng có thể được thay đổi tự do từ các đặc tính ưa chất béo thành các đặc tính ưa nước. Là các chất hoạt động bề mặt anion, muối axit X (như với axit X, ví dụ, axit cholic, và axit deoxycholic), ví dụ, SDC: natri deoxycholat, và các este phosphat, được ưu tiên. Hơn nữa, là các chất hoạt động bề mặt không ion, các este của axit béo glyxerol, các este của axit béo sorbitan, các ancol etoxylat béo, các ete polyoxyetylen alkyl phenyl, các alkyl glycozit, và các dạng tương tự được ưu tiên.

Ví dụ 5

Để làm rõ hơn rằng các chất thu được khi tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn là có lợi làm các tiền chất graphen, mà được mô tả ở trên trong Ví dụ 1, ví dụ trong đó tiền chất graphen được khuấy trộn với nhựa sẽ được giải thích thêm trong Ví dụ 5. Phần sau đây giải thích các môđun đàn hồi của các vật dụng đúc nhựa trong đó các vật liệu

cacbon gốc graphit chứa các mẫu từ 1 đến 7 trong Ví dụ 1, có các tỷ lệ (3R) được vẽ đồ thị trong Fig.14, được sử dụng làm các tiền chất.

(1) Sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit nêu trên làm tiền chất, 5% trọng lượng của LLDPE (polyetylen: 20201J được sản xuất bởi Prime Polymer Co., Ltd.) và 1% trọng lượng của hệ phân tán (chất hoạt động bề mặt không ion) được trộn trong nước được trao đổi ion, và thiết bị đã mô tả ở trên được minh họa trong Fig.8 được khởi động trong các điều kiện giống nhau, nhờ đó các hệ phân tán graphen chứa 5% trọng lượng của graphen và các vật liệu cacbon gốc graphit thu được.

(2) 0,6kg hệ phân tán graphen thu được trong (1) được khuấy trộn ngay vào nhựa 5,4 kg bằng cách sử dụng máy khuấy (máy khuấy kiểu ép WDS7-30 được tạo ra bởi Moriyama Co., Ltd.), nhờ đó tạo ra các viên. Các điều kiện khuấy trộn được mô tả dưới đây. Cần lưu ý rằng tỷ lệ trộn giữa nhựa và hệ phân tán được chọn sao cho lượng graphen và các vật liệu cacbon gốc graphit được trộn trong đó cuối cùng là 0,5% trọng lượng.

(3) Các viên được tạo ra trong (2) được tạo thành mẫu thử nghiệm theo JIS K7161 1A (chiều dài: 165mm, chiều rộng: 20mm, độ dày: 4mm) bởi máy đúc áp lực.

(4) Mô đun đàn hồi (Mpa) của mẫu thử nghiệm được tạo ra trong (3) được đo trong điều kiện về tốc độ thử nghiệm là 500mm/phút theo JIS K7161 bằng máy thử vụn năng chính xác kiểu mặt bàn được tạo ra bởi Shimadzu Corporation (AUTOGRAPH AGS-J).

Các điều kiện khuấy trộn là như sau.

Nhiệt độ khuấy trộn: 135°C

Tốc độ quay rôto: 30rpm

Thời gian khuấy trộn: 15 phút

Sự tăng áp trong lò: áp dụng 0,3MPa trong khoảng thời gian 10 phút sau khi

bắt đầu, và làm giảm áp suất xuống áp suất khí quyển sau 10 phút trôi qua.

Ở đây, sự phân tán của hệ phân tán graphen nêu trên vào nhựa được xem xét như sau. Khi điểm nóng chảy của nhựa thường là 100°C hoặc cao hơn, nước bay hơi trong không khí, nhưng trong máy khuấy kiểu ép, bên trong của lò có thể được tăng áp suất. Ở bên trong của lò, điểm sôi của nước được tăng lên để hệ phân tán được giữ ở dạng lỏng, nhờ đó nhũ tương của hệ phân tán và nhựa có thể thu được. Sau khi áp suất trong khoảng thời gian định trước, bên trong được làm giảm áp suất dần dần, mà làm cho điểm sôi của nước giảm xuống, do đó cho phép nước bay hơi. Ở đây, graphen giới hạn trong nước còn lại trong nhựa. Điều này làm cho graphen và các vật liệu cacbon gốc graphit được phân tán ở nồng độ cao trong nhựa.

Hơn nữa, do graphen và các vật liệu cacbon gốc graphit có xu hướng kết tủa trong hệ phân tán graphen khi thời gian trôi qua, hệ phân tán graphen được khuấy trộn vào nhựa tốt hơn là ngay sau khi hệ phân tán graphen thu được.

Cần lưu ý rằng phần sau đây có thể được sử dụng làm các phương tiện để thu được nhũ tương của hệ phân tán và nhựa, khác với máy khuấy ép: động cơ đẩy hóa học; máy trộn kiểu xoáy; máy trộn đồng hóa; máy đồng hóa áp suất cao; dòng chảy xoáy tâm; máy trộn kiểu phun dòng; máy nghiền phản lực ướt; và máy tạo sóng siêu âm.

Hơn nữa, phần sau đây có thể được sử dụng làm dung môi cho hệ phân tán, khác với nước: 2-propanol (IPA); axeton; toluen; N-metylpyrrolidon (NMP); và N,N-dimetyl formamit (DMF).

Bảng 4 minh họa mối quan hệ giữa các tỷ lệ (3R) ở khoảng 30% và các mô đun đàn hồi của các vật dụng đúc nhựa. Cần lưu ý rằng mẫu 00 trong Bảng 4 là mẫu trống là mẫu trong đó không có tiền chất được khuấy trộn, các mẫu 11 và 12 có các tỷ lệ (3R) nằm giữa tỷ lệ của mẫu 1 và tỷ lệ của mẫu 2, và mẫu 21 có tỷ lệ (3R) giữa tỷ lệ của mẫu 2 và tỷ lệ của mẫu 3.

Bảng 4

Số thứ tự mẫu	00	1	11	12	2	21	3	4
P3/(P3+P4)	-	23%	25%	28%	31%	35%	38%	42%
Mô đun đàn hồi (MPa) (Trung bình trong 5 lần)	175	197	196	199	231	249	263	272
Sự chênh lệch với mẫu trống	-	12,4 %	12,0 %	13,9 %	31,7 %	42,1 %	50,0 %	55,6 %
Dưới 10 lớp khi hệ phân tán trong NMP (Tham khảo)	-	10%	12%	25%	25%	30%	38%	62%

Fig.18 và Bảng 4 chứng minh rằng sự chênh lệch của mô đun đàn hồi đối với mô đun đàn hồi của mẫu 00 (mẫu trống) (tỷ lệ tăng lên của mô đun đàn hồi) là gần như đồng đều khoảng 10% cho đến khi tỷ lệ (3R) đạt đến 31%; sau khi tỷ lệ (3R) đạt đến 31%, sự chênh lệch tăng mạnh lên đến 32%; trong khi tỷ lệ (3R) tăng lên từ 31% đến 42%, sự chênh lệch tăng đều lên đến 50%; và sau khi tỷ lệ (3R) đạt đến 42%, sự chênh lệch tăng nhẹ và hội tụ đến khoảng 60%. Theo cách này, khi tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn, vật dụng đúc nhựa còn mô đun đàn hồi ưu việt có thể thu được. Hơn nữa, do lượng graphen và các vật liệu cacbon gốc graphit được chứa trong vật dụng đúc nhựa là 0,5% trọng lượng, mà là nhỏ, ảnh hưởng đến các đặc tính mà nhựa có được ban đầu là nhỏ.

Cần hiểu rằng xu hướng này góp phần vào làm tăng cao về vật liệu cacbon gốc graphit chứa graphen mỏng có 10 lớp hoặc ít hơn tiếp xúc với nhựa sau khi tỷ lệ (3R) đạt đến 31%. Ở đây, trong Ví dụ 5, không thể xác định số lượng các lớp của graphen bằng cách quan sát TEM do các sự ảnh hưởng của hệ phân tán được sử dụng cho hệ phân tán trong nước. Sau đó, chi để tham khảo, lý do về sự tăng mạnh nêu trên được xem xét dựa trên sự phân bố số lượng của các lớp vật liệu cacbon gốc graphit được

minh họa trong Bảng 4 khi hệ phân tán trong NMP. Mẫu 12 và mẫu 2 được so sánh với nhau, và đã phát hiện ra rằng cả hai các tỷ lệ của graphen (số lượng các lớp là 10 hoặc ít hơn) là 25%. Mặt khác, như được minh họa trong Fig.19, như với mẫu 2, tỷ lệ của các mẫu mỏng có ít hơn 15 lớp lớn hơn so với mẫu 12; nói cách khác, vật liệu cacbon gốc graphit được phân tán làm tiền chất có diện tích bề mặt lớn hơn, có nghĩa là diện tích của chúng tiếp xúc với nhựa được tăng lên mạnh.

Theo cách này, Ví dụ 5 chỉ rõ rằng khi tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn, vật liệu cacbon gốc graphit được sử dụng làm tiền chất graphen có xu hướng bị tách thành có 10 lớp hoặc ít hơn và vật liệu cacbon gốc graphit mỏng.

Hơn nữa, trong các Ví dụ từ 1 đến 5 được mô tả ở trên, thiết bị sản xuất A sử dụng máy nghiền phản lực và plasma và thiết bị sản xuất B sử dụng máy nghiền bi và các vi sóng được mô tả làm thiết bị sản xuất mà tạo ra tiền chất graphen. Khi việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến như bởi các vi sóng, các sóng milimet, plasma, làm nóng cảm ứng điện từ (IH), và từ trường, và việc xử lý dựa trên lực vật lý như bằng máy nghiền bi, máy nghiền phản lực, lực ly tâm, và siêu trọng tới hạn được kết hợp để sử dụng, tiền chất có tỷ lệ (R3) cao có thể thu được. Do đó, sự kết hợp của các việc xử lý này được ưu tiên. Ngoài ra, miễn là các việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và các xử lý dựa trên lực vật lý được sử dụng ở dạng kết hợp, không có sự hạn chế về các việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến hoặc xử lý dựa trên lực vật lý cụ thể được áp dụng. Cụ thể, như được ví dụ trong các thiết bị sản xuất A và B, ưu tiên là các hiệu quả dựa trên lực sóng vô tuyến và lực vật lý được sử dụng đồng thời. Tuy nhiên, lực sóng vô tuyến và lực vật lý có thể được sử dụng luân phiên ở các khoảng thời gian định trước. Hơn nữa, như với lực sóng vô tuyến, các lực sóng vô tuyến khác nhau, như các việc xử lý dựa trên các vi sóng và plasma, có thể được sử dụng luân phiên, và, song song với các việc xử lý, một hoặc nhiều việc xử lý dựa trên các lực vật lý có thể được sử dụng. Ngược lại, như với lực vật lý, các lực vật lý khác nhau, như việc xử lý dựa trên máy nghiền phản lực và siêu trọng tới hạn, có thể được sử dụng luân phiên, và, song song

với các việc xử lý, một hoặc nhiều việc xử lý dựa trên các lực sóng vô tuyến có thể được sử dụng.

Hơn nữa, trong các ví dụ được mô tả ở trên, thiết bị sản xuất sử dụng các vi sóng và các sóng siêu âm được mô tả làm thiết bị sản xuất để thu được hệ phân tán graphen bằng cách sử dụng tiền chất. Tuy nhiên, khi việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến như bởi các vi sóng, các sóng milimet, plasma, làm nóng cảm ứng điện từ (IH) và từ trường, và việc xử lý dựa trên lực vật lý như bằng các sóng siêu âm, máy nghiền bi, máy nghiền phân lực, lực ly tâm, và siêu trọng tới hạn được kết hợp, hệ phân tán graphen có nồng độ graphen cao có thể thu được. Do đó, sự kết hợp của các việc xử lý này được ưu tiên. Cụ thể, như được thấy trong thiết bị sản xuất, ưu tiên là các hiệu quả dựa trên lực sóng vô tuyến và lực vật lý được định hướng đồng thời vào đó. Tuy nhiên, lực sóng vô tuyến và lực vật lý có thể được định hướng luân phiên vào đó ở các khoảng thời gian định trước.

Hơn nữa, trong các ví dụ được mô tả ở trên, các hệ phân tán graphen, các mực dẫn điện và các vật dụng đúc nhựa được mô tả làm các ứng dụng sử dụng các tiền chất. Tuy nhiên, ngoài ra, bằng cách trộn các tiền chất vào các vật liệu nền composit, làm các vật liệu nền như các monome, các polyme, các vật liệu cacbon khác, gốm, gỗ, xi-măng hoặc kim loại, composit graphen có thể thu được. Tức là, theo sáng chế, composit graphen nghĩa là các sản phẩm bao gồm các hệ phân tán graphen nêu trên, các mực dẫn điện và các vật dụng đúc nhựa. Ngoài ra, hệ phân tán graphen bao gồm các sản phẩm nhào có các độ nhớt cao.

Là các ví dụ về các chất lỏng hoặc các vật liệu nền để phân tán các tiền chất, các vật liệu sau đây có thể được đề cập. Các nhựa bao gồm polyetylen (PE-polyethylene), polypropylen (PP-polypropylene), polystyren (PS-polystyrene), polyvinyl clorua (PVC-polyvinyl chloride), các nhựa ABS (ABS), các nhựa acrylic (PMMA), polyamit/nilông (PA), polyaxetal (POM-polyacetal), polycarbonat (PC-polycarbonate), polyetylen terephthalat (PET-polyethylene terephthalate), các xyclic

polyolefin (COP-cyclic polyolefin), các polyphenylen sulfua (PPS- polyphenylene sulfide), các polytetrafloetylen (PTFE-polytetrafluoroethylene), các polysulfon (PSF-polysulfones), các polyamit-imit (PAI-polyamide-imide), polyimit nhiệt dẻo (PI-thermoplastic polyimide), polyete ete keton (PEEK-polyether ether ketone), và các polyme tinh thể lỏng (LCP-liquid-crystal polymer). Ngoài ra, trong số các nhựa tổng hợp, như các nhựa nhiệt rắn, các nhựa nhiệt dẻo như các nhựa epoxy (EP), các nhựa phenolic (PF), các nhựa melamin (MF), các polyuretan (PUR-polyurethane) và các nhựa polyeste chưa bão hòa (UP) có thể được đề cập; nilông dạng sợi, và các sợi của polyeste, acryl, vinylon, polyolefin, polyuretan, tơ nhân tạo hoặc dạng tương tự có thể được đề cập; như các chất đàn hồi, các cao su isopren (IR-isoprene rubber), các cao su butadien (BR-butadiene rubber), các cao su styren/butadien (SBR-styrene/butadiene rubber), các cao su cloropren (CR-chloroprene rubber), các cao su nitril (NBR-nitrile rubber), các cao su polyisobutylen/cao su butyl (IIR), các cao su etylen propylen (EPM/EPDM), polyetylen được closulfonat hóa (CSM), các cao su acrylic (ACM), các cao su epiclohydrin (CO/ECO), và các chất đàn hồi tương tự có thể được đề cập; như các chất đàn hồi dựa trên nhựa nhiệt rắn, một số cao su uretan (U), các cao su silicon (Q), các cao su chứa flo (FKM), và các dạng tương tự có thể được đề cập; và, như các chất đàn hồi nhiệt dẻo, các chất đàn hồi dựa trên styren, olefin, polyvinyl clorua, uretan, hoặc amit có thể được đề cập.

Hơn nữa, như các dầu khoáng, các dầu bôi trơn, và các chất bôi trơn có thể được đề cập, và, như các dầu hỗn hợp cho các cao su, các dầu khoáng dựa trên parafin, dầu khoáng naphten, các dầu khoáng thơm, và các dạng tương tự có thể được đề cập.

Hơn nữa, như các sản phẩm không phân cực, hexan, benzen, toluen, clorofom, etyl axetat, và các dạng tương tự có thể được đề cập; như các sản phẩm aprotic phân cực, axeton, N,N-dimetylformamit (DMF-N,N-dimethylformamide), N-metylpyrrolidon (NMP- N-methylpyrrolidone), axetonitril, và dạng tương tự có thể

được đề cập; và, như các sản phẩm protic phân cực, axit axetic, etanol, metanol, nước, 1-butanol, 2-propanol, axit fomic, và các dạng tương tự có thể được đề cập.

Ngoài ra, làm ví dụ về graphit tự nhiên để tạo ra vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen, các hạt 5mm hoặc nhỏ hơn của vật liệu graphit tự nhiên (graphit dạng vảy ACB-50 được sản xuất bởi Nippon Graphit Industries, ltd.) được mô tả ở trên. Tuy nhiên, như với graphit tự nhiên, các sản phẩm mà là graphit dạng vảy, được nghiền thành bột 5mm hoặc nhỏ hơn, và có tỷ lệ (3R) nhỏ hơn 25% và tỷ số cường độ P1/P2 nhỏ hơn 0,01 được ưu tiên, theo quan điểm rằng chúng dễ có sẵn.

Khả năng ứng dụng trong công nghiệp

Phần sau đây có thể được đề cập làm các sản phẩm cho nỗ lực chức năng hóa theo graphen bằng cách bổ sung tiền chất vào các đối tượng.

- Các chất phụ gia cho các vật liệu polyme như nhựa, cao su, hoặc các vật liệu bao gói
- Các chất phụ gia cho các tấm bức xạ nhiệt, các tấm dẫn điện, băng bức xạ nhiệt, hoặc các băng dẫn điện
- Luyện kim thiêu kết thu được bằng bổ sung tiền chất vào bột kim loại, sau đó là thiêu kết
- Các chất phụ gia cho gốm như liti oxit hoặc nano khoáng sét
- Các chất phụ gia cho các á kim như bê tông, hoặc các vật liệu không phải polyme

Phần sau đây có thể được đề cập làm các sản phẩm sử dụng các hệ phân tán graphen.

- Các chất điện cực, các chất phụ trợ dẫn điện, các chất cải thiện công suất phóng điện, các chất cải thiện hiệu suất nạp/phóng cho các pin liti-ion
- Các điện cực hoặc các dung dịch điện phân cho các sản phẩm tụ điện

- Các chất dẫn điện cho mục dẫn điện

Danh sách ký hiệu chỉ dẫn

- | | |
|----|---|
| 1 | vật liệu graphit tự nhiên |
| 4 | máy nghiền phản lực |
| 7 | máy tạo plasma |
| 16 | vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen |
| 20 | máy nghiền bi |
| 21 | máy tạo vi sóng |
| 24 | phương tiện |
| 25 | vật liệu graphit tự nhiên |
| 28 | vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền chất graphen |
| 30 | hệ phân tán graphen sử dụng mẫu 5 |
| 31 | hệ phân tán graphen sử dụng mẫu 1 |
| 33 | vảy |
| 40 | cốc vại |
| 41 | hệ phân tán graphen |
| 43 | máy tạo vi sóng |
| 44 | máy tạo sóng siêu âm |

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Tiền chất graphen bao gồm vật liệu cacbon gốc graphit, trong đó vật liệu cacbon gốc graphit này có lớp graphit khối hộp thoi (3R) và lớp graphit hình lục giác (2H), trong đó tỷ lệ (3R) của lớp graphit khối hộp thoi (3R) và lớp graphit hình lục giác (2H), dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, mà được xác định bởi phương trình 1 sau đây là 31% hoặc lớn hơn:

$$\text{Tỷ lệ (3R)} = P3/(P3+P4) \times 100 \quad (\text{phương trình 1})$$

trong đó:

P3 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit khối hộp thoi (3R) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

P4 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.

2. Tiền chất graphen theo điểm 1, trong đó tỷ lệ (3R) là 40% hoặc lớn hơn.
3. Tiền chất graphen theo điểm 1, trong đó tỷ lệ (3R) là 50% hoặc lớn hơn.
4. Tiền chất graphen theo điểm 1, trong đó tỷ số cường độ P1/P2 của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X là 0,01 hoặc lớn hơn, trong đó:

P1 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (100) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

P2 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (002) của lớp graphit hình lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.

5. Tiền chất graphen theo điểm 1, trong đó vật liệu cacbon gốc graphit được tạo ra bằng cách thực hiện xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và xử lý dựa trên lực vật lý trong chân không hoặc trong không khí.

Fig. 1

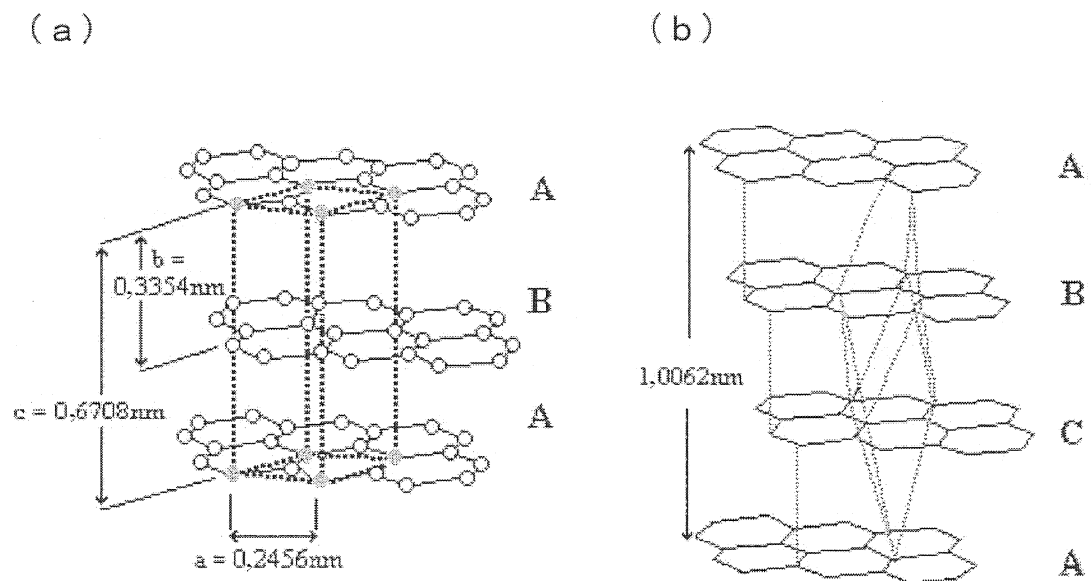


Fig. 2

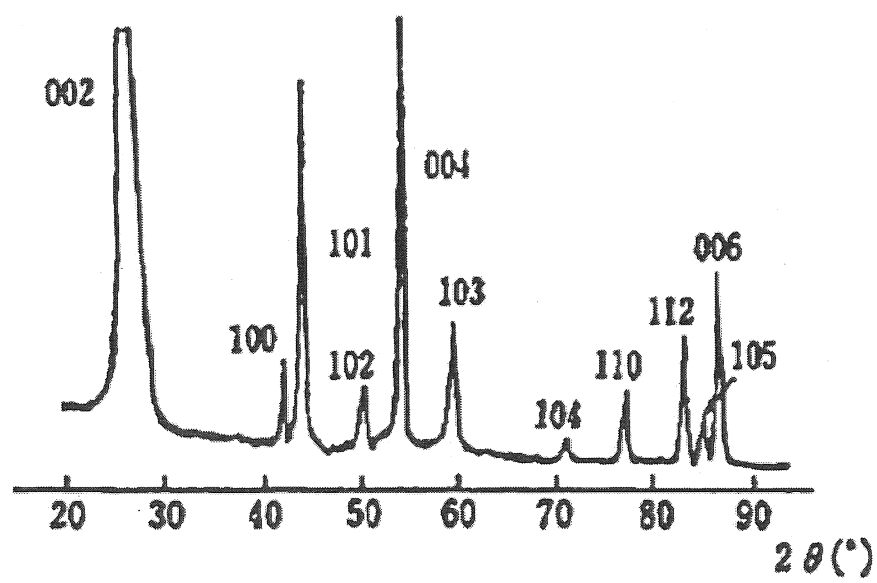


Fig. 3

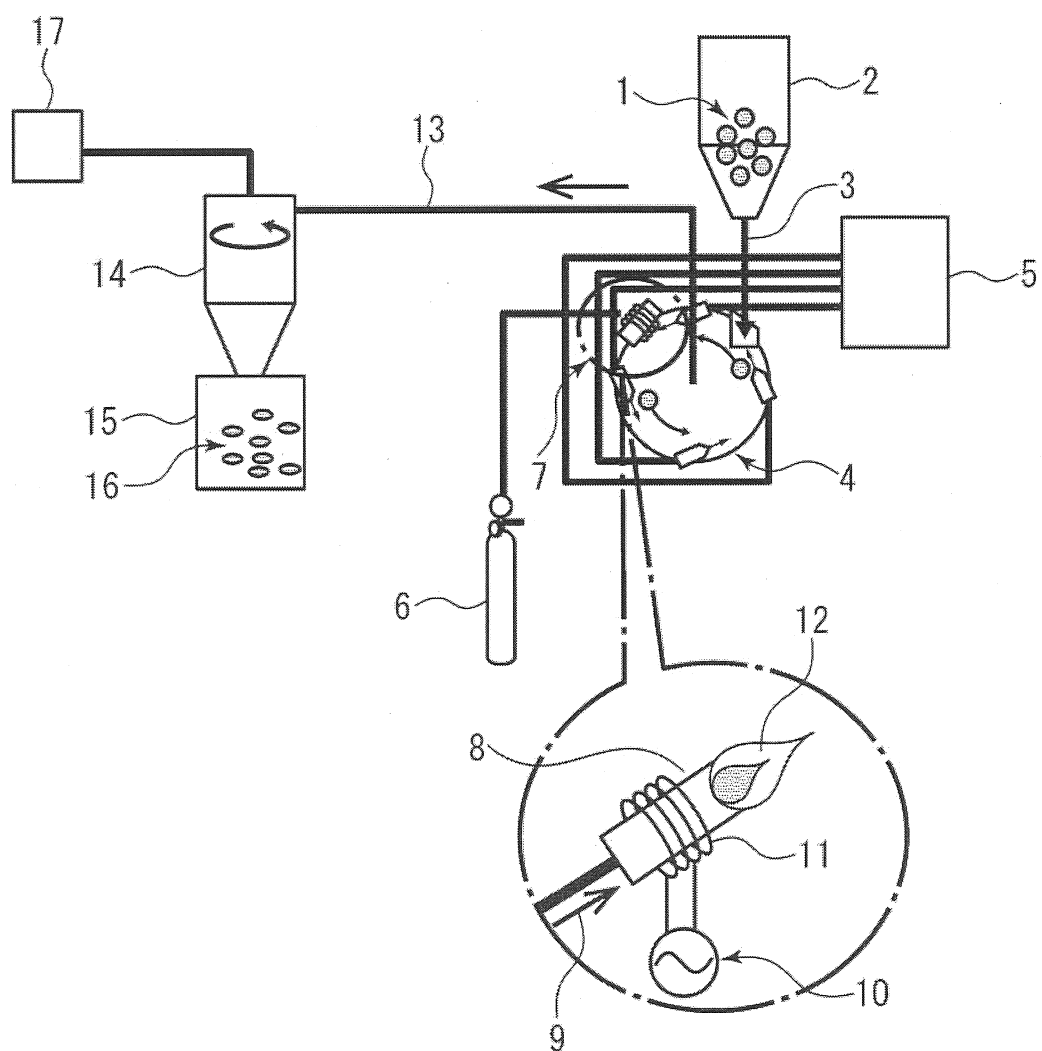
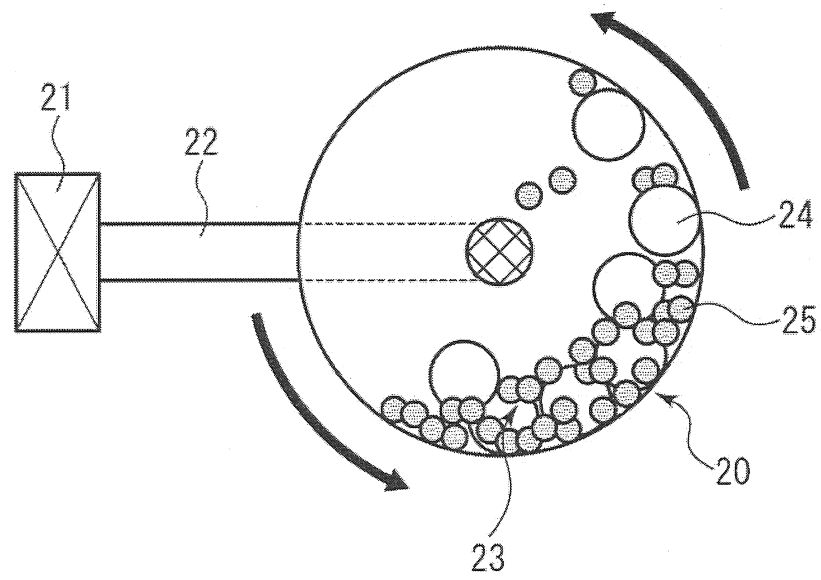


Fig. 4

(a)



(b)

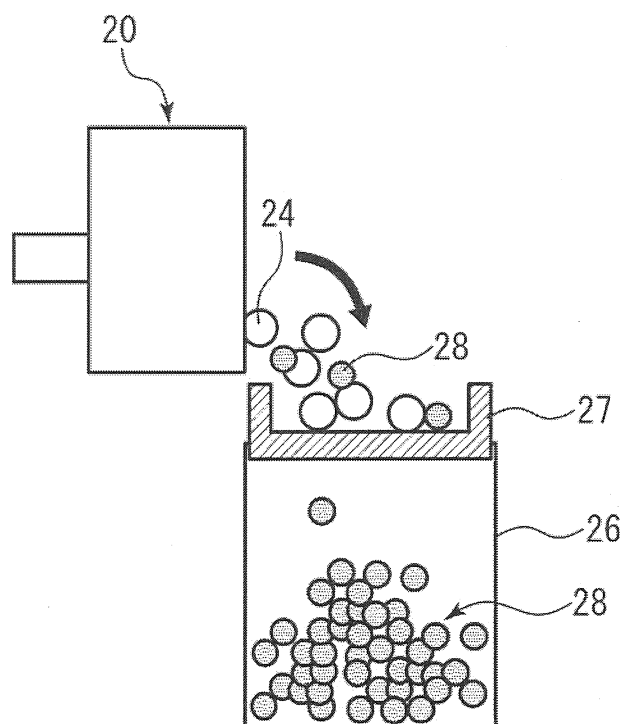


Fig. 5

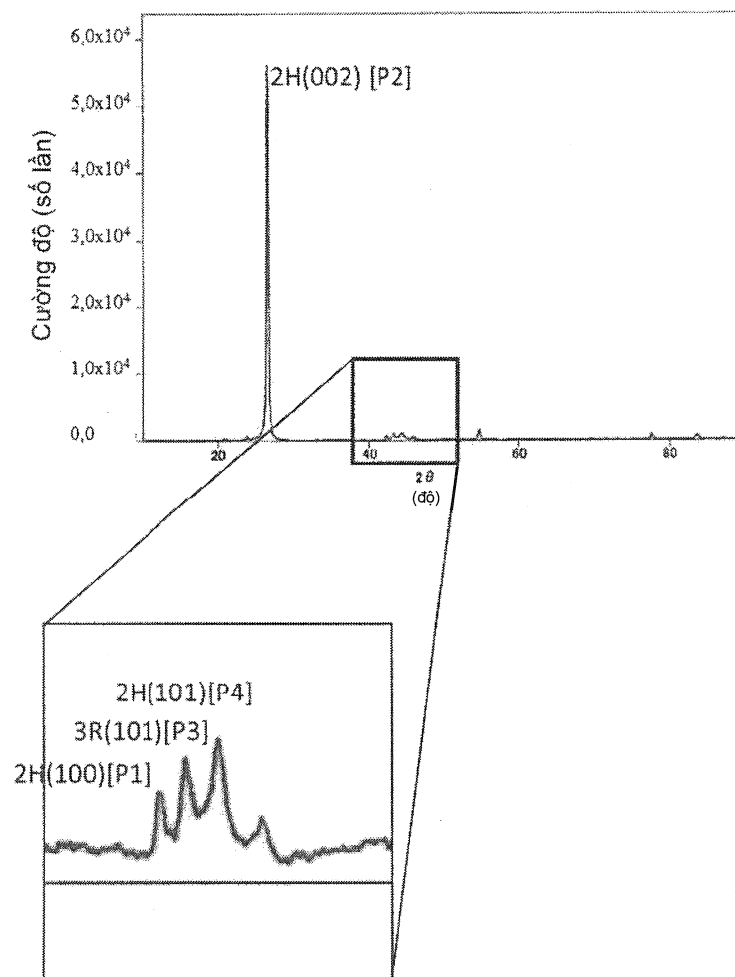


Fig. 6

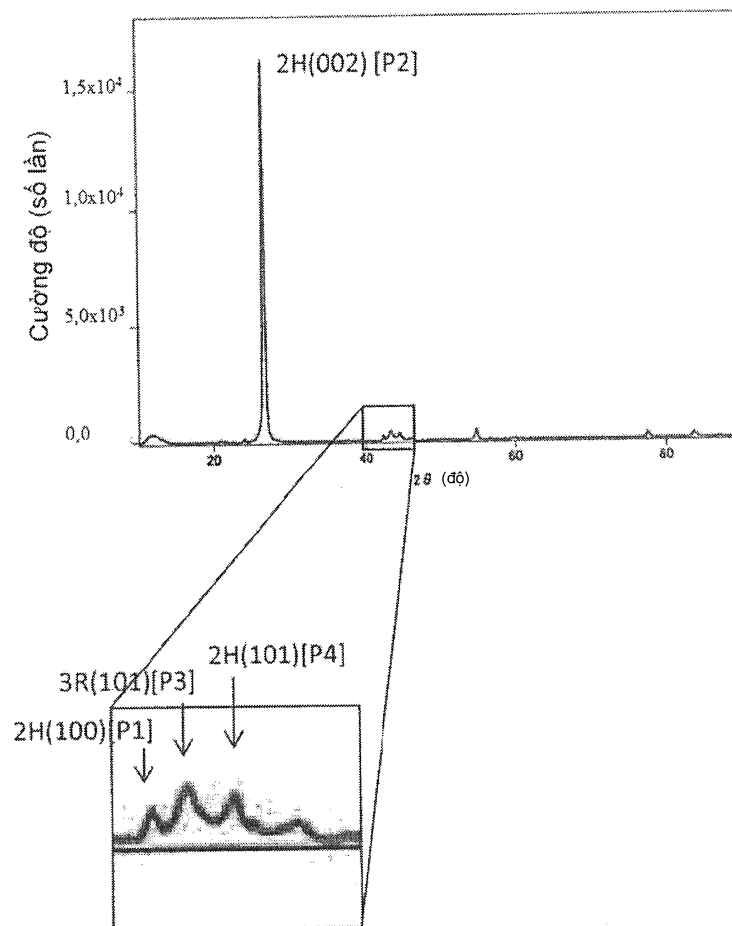


Fig. 7

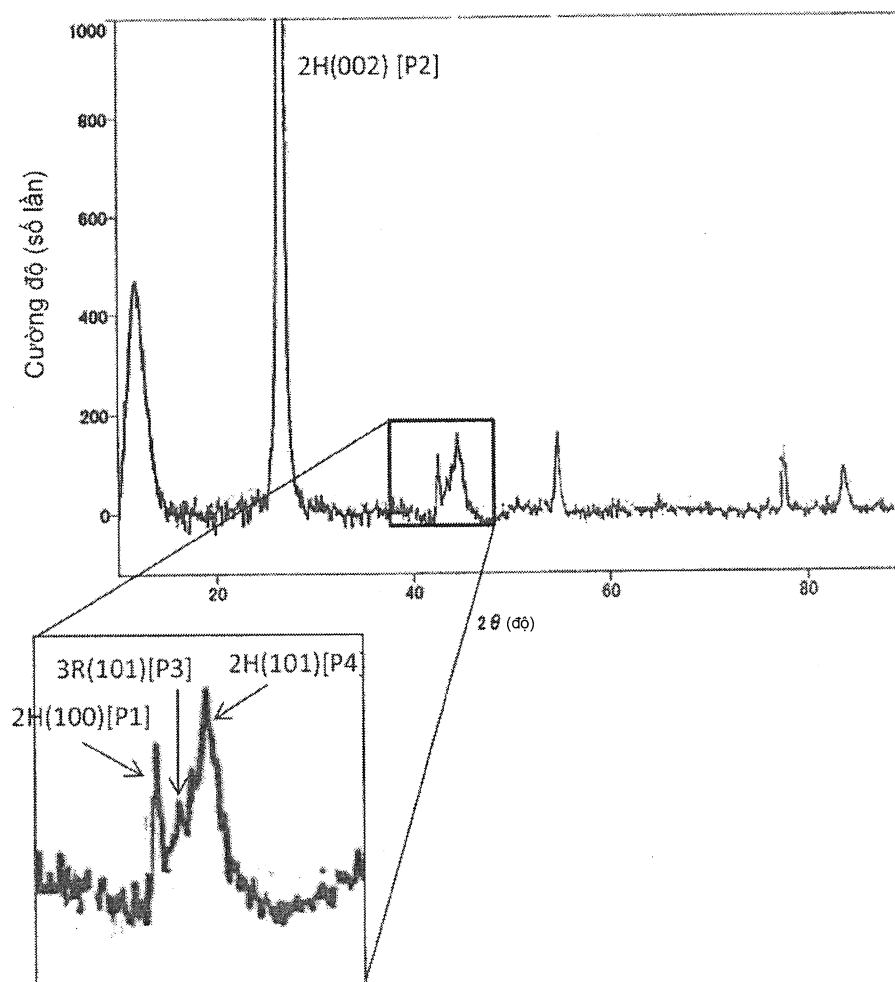


Fig. 8

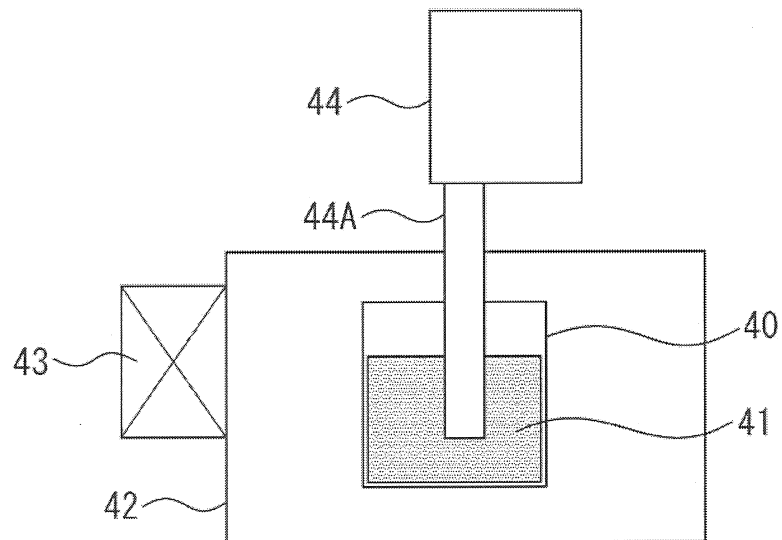


Fig. 9

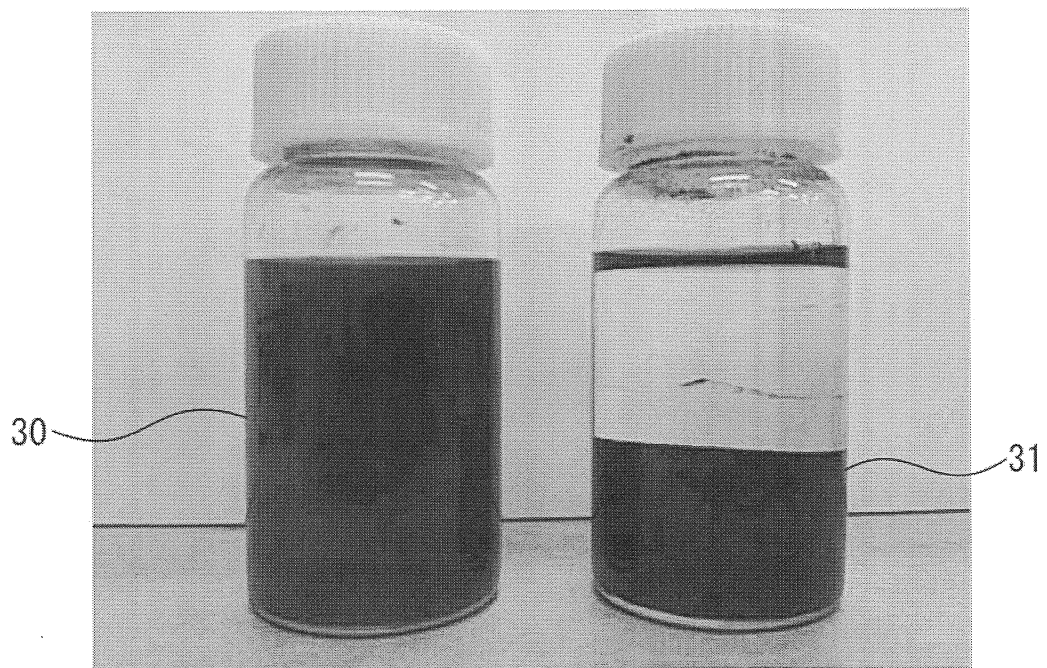


Fig. 10

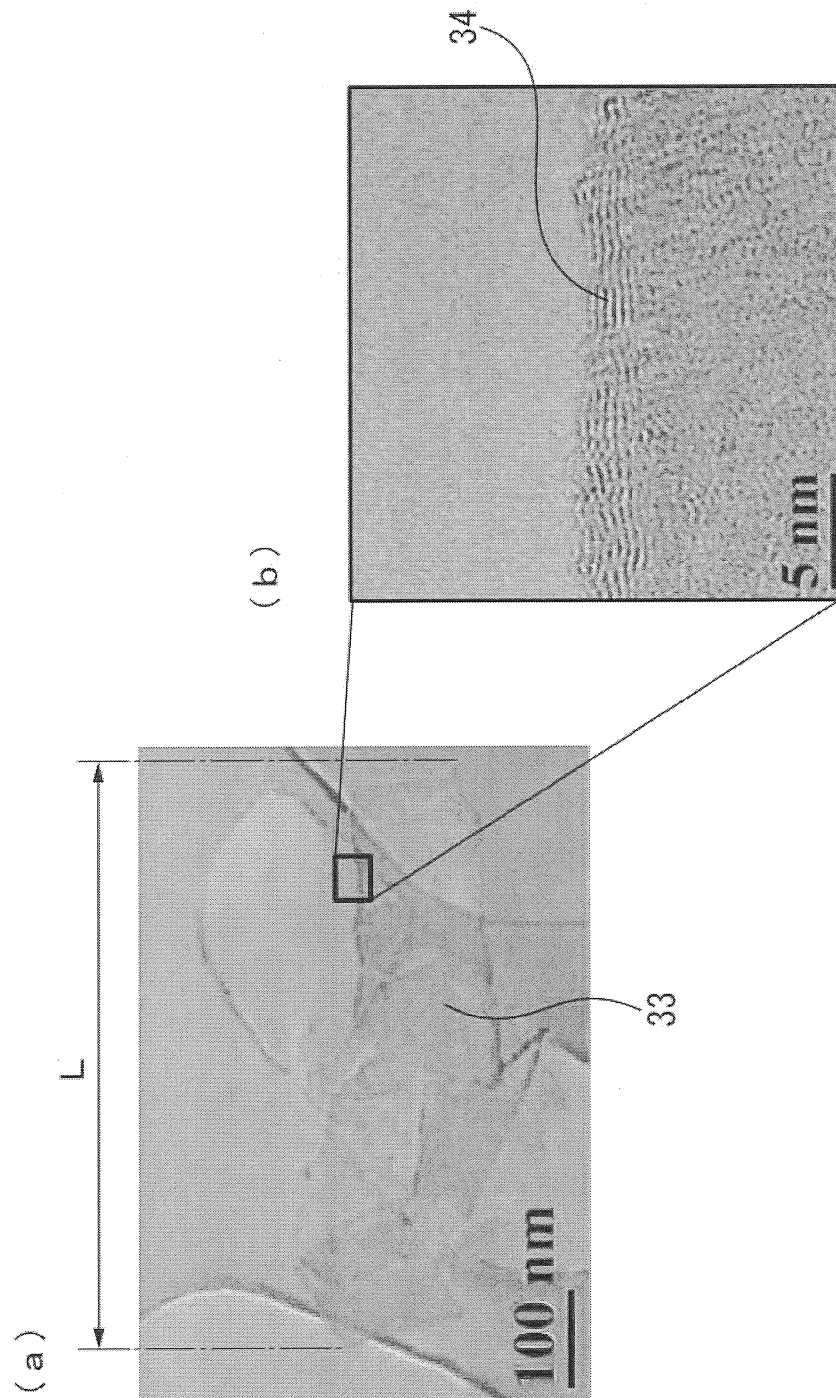
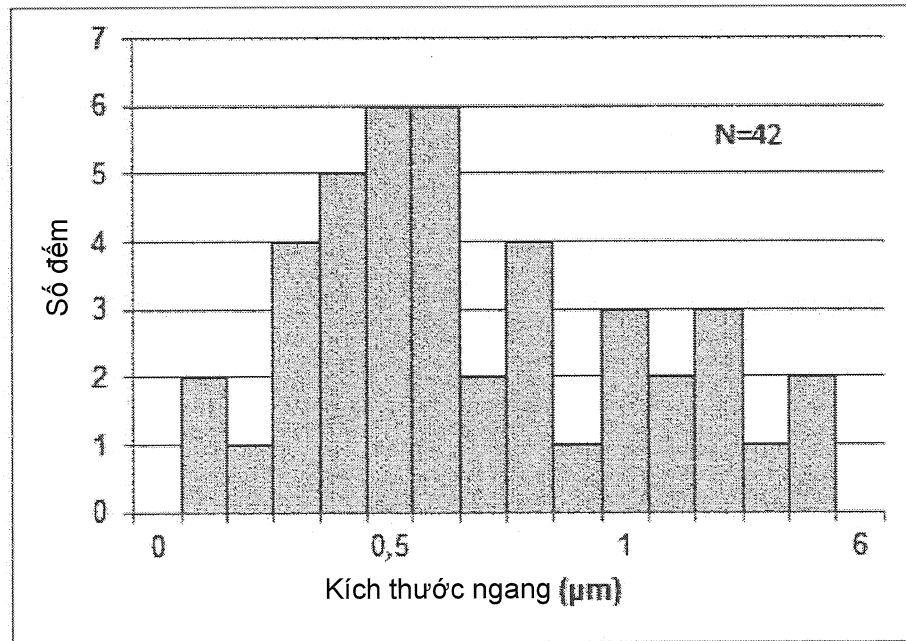


Fig. 11
(a)



(b)

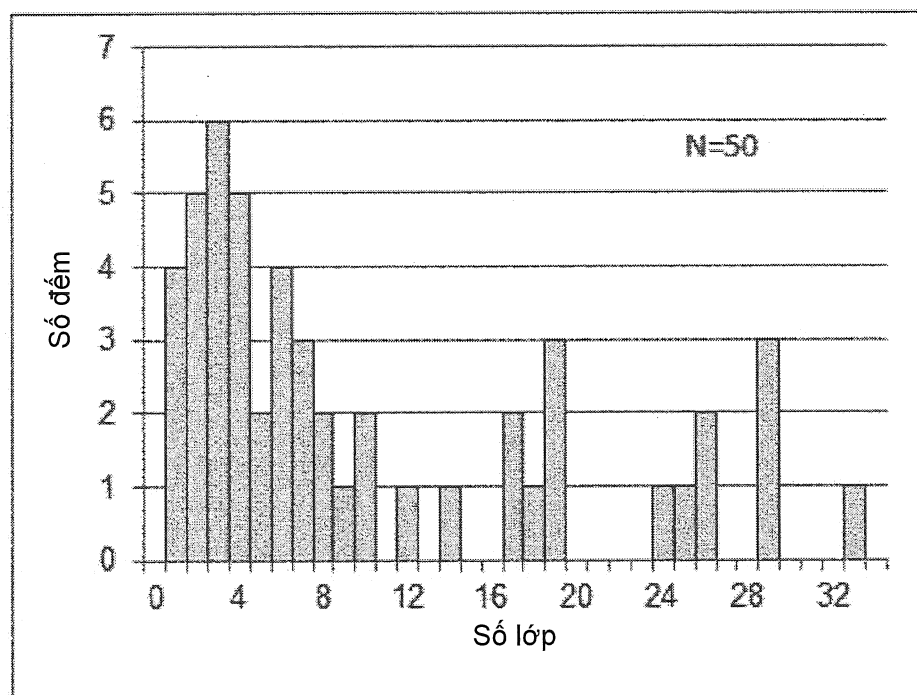
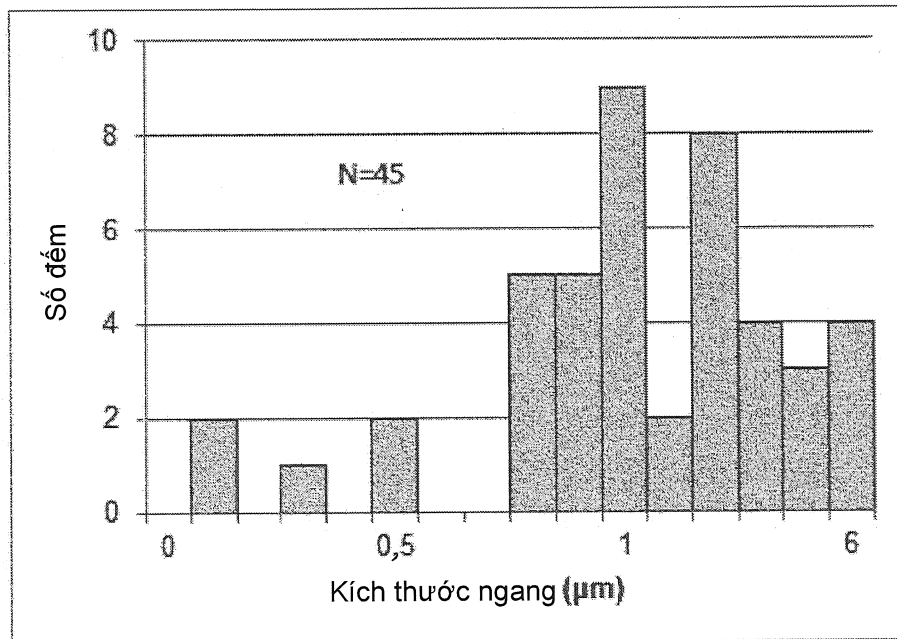


Fig. 12
(a)



(b)

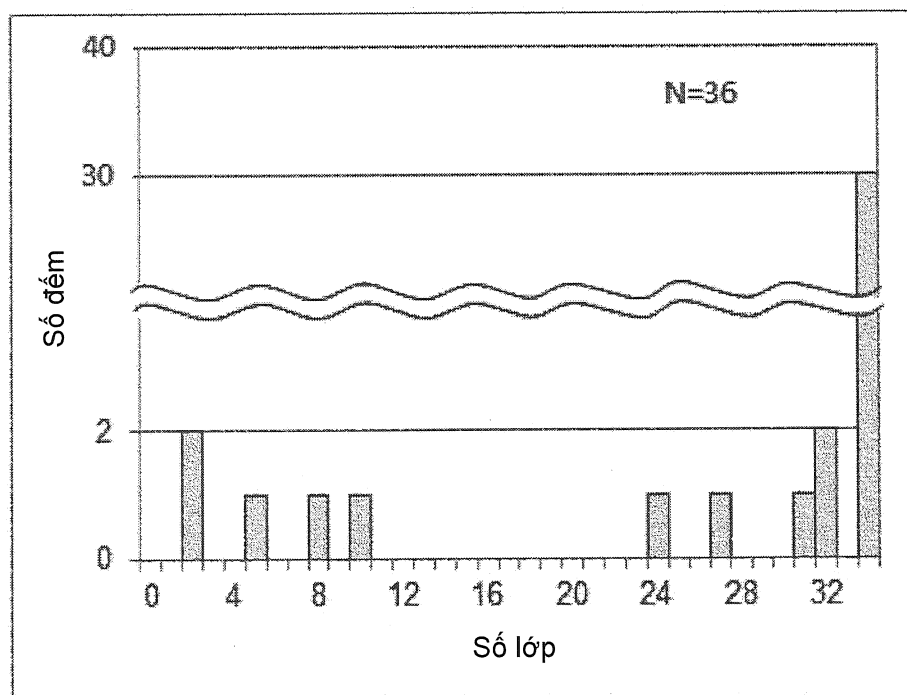


Fig. 13

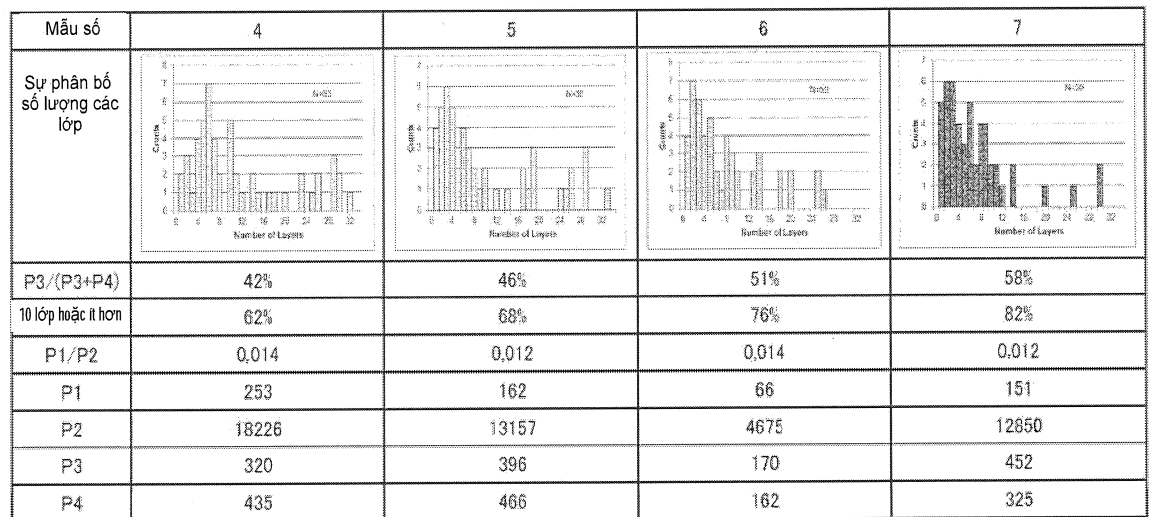
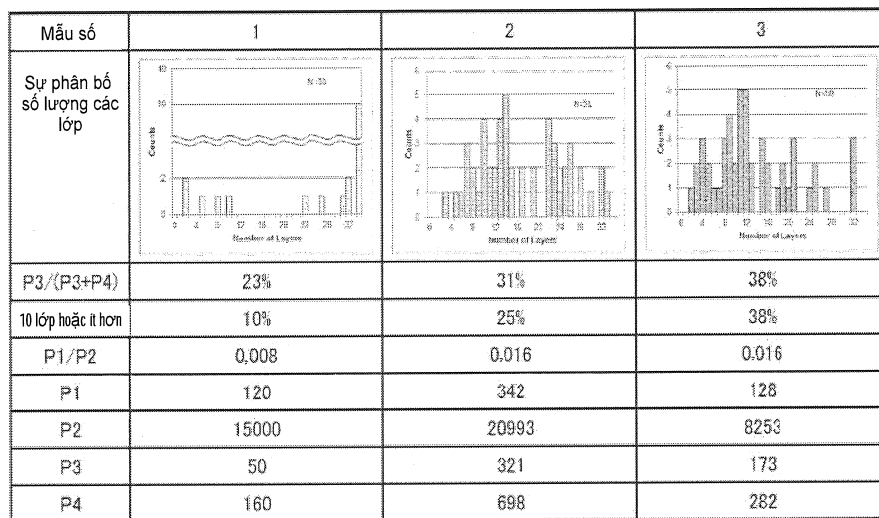


Fig. 14

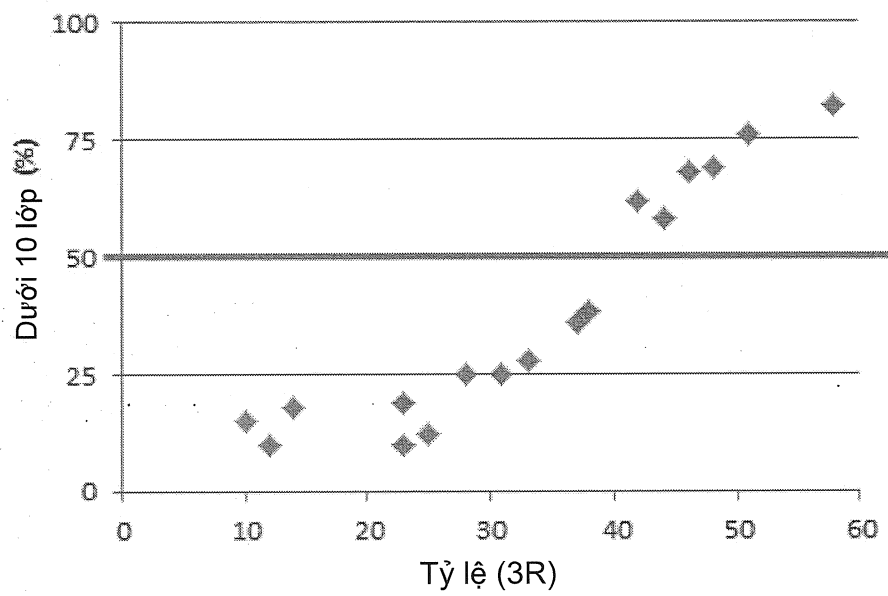
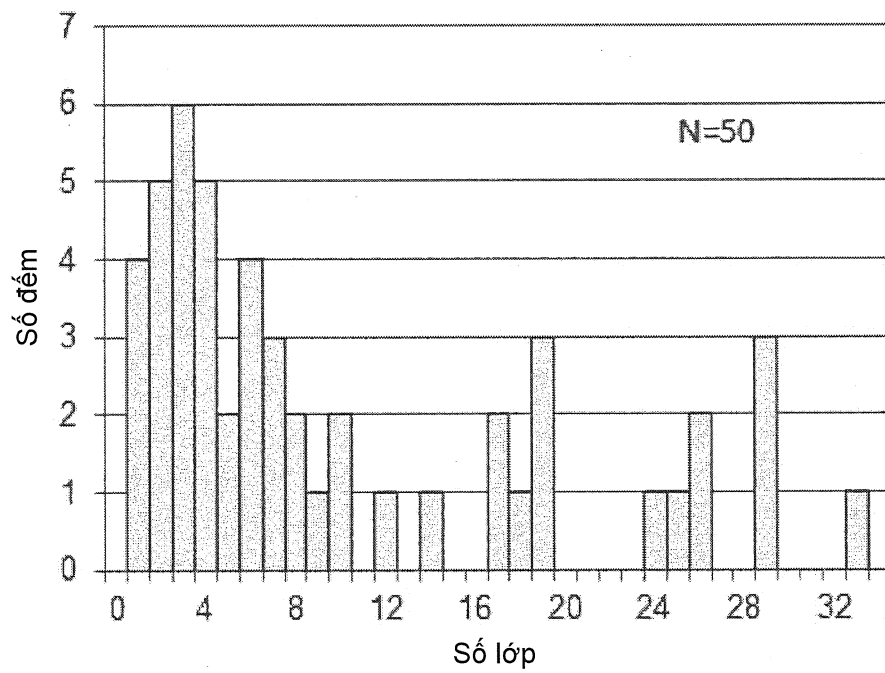


Fig. 15

(a)



(b)

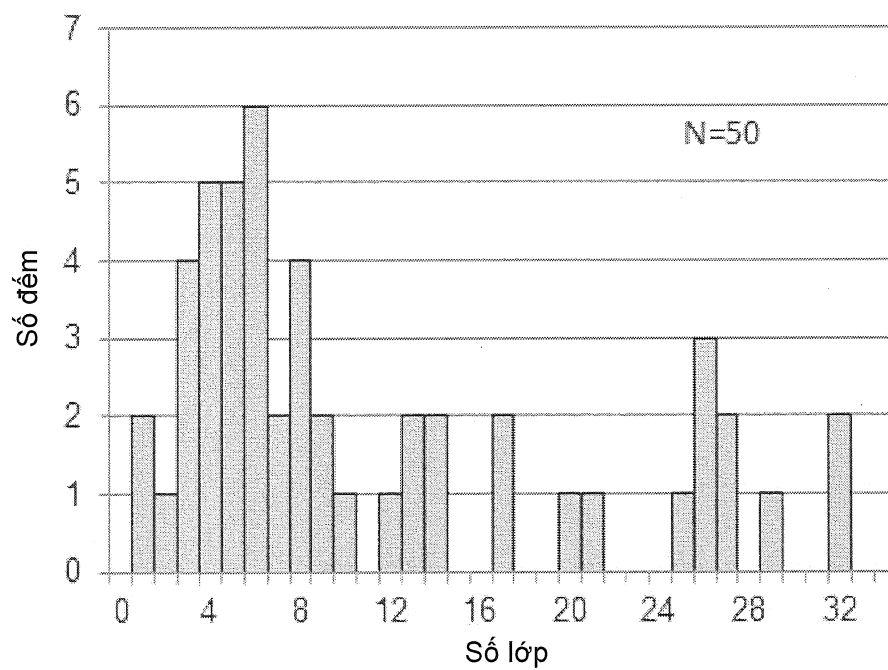


Fig. 16

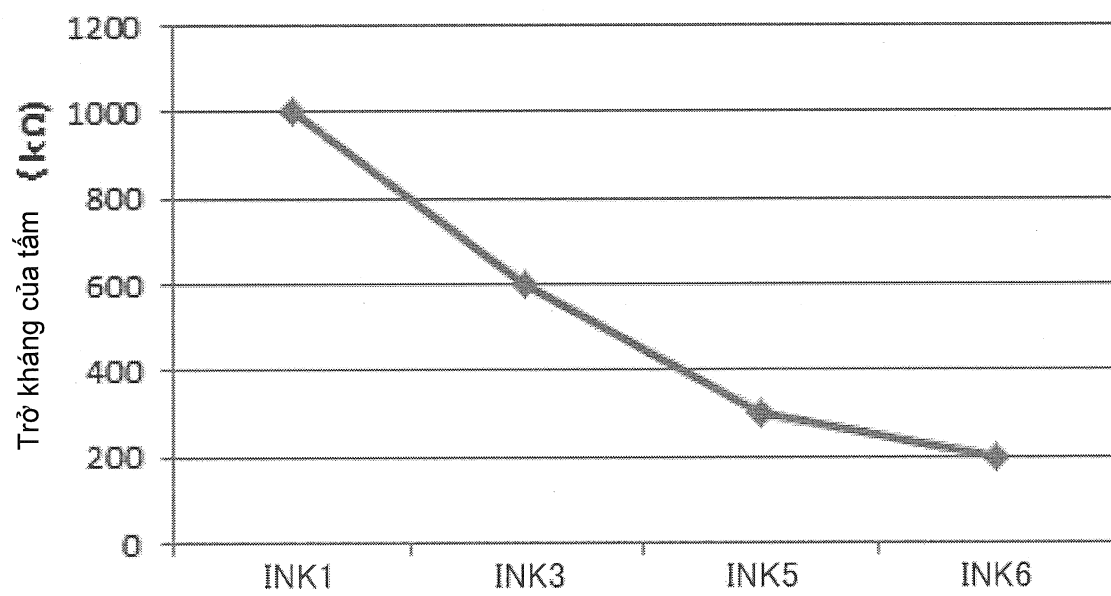


Fig. 17

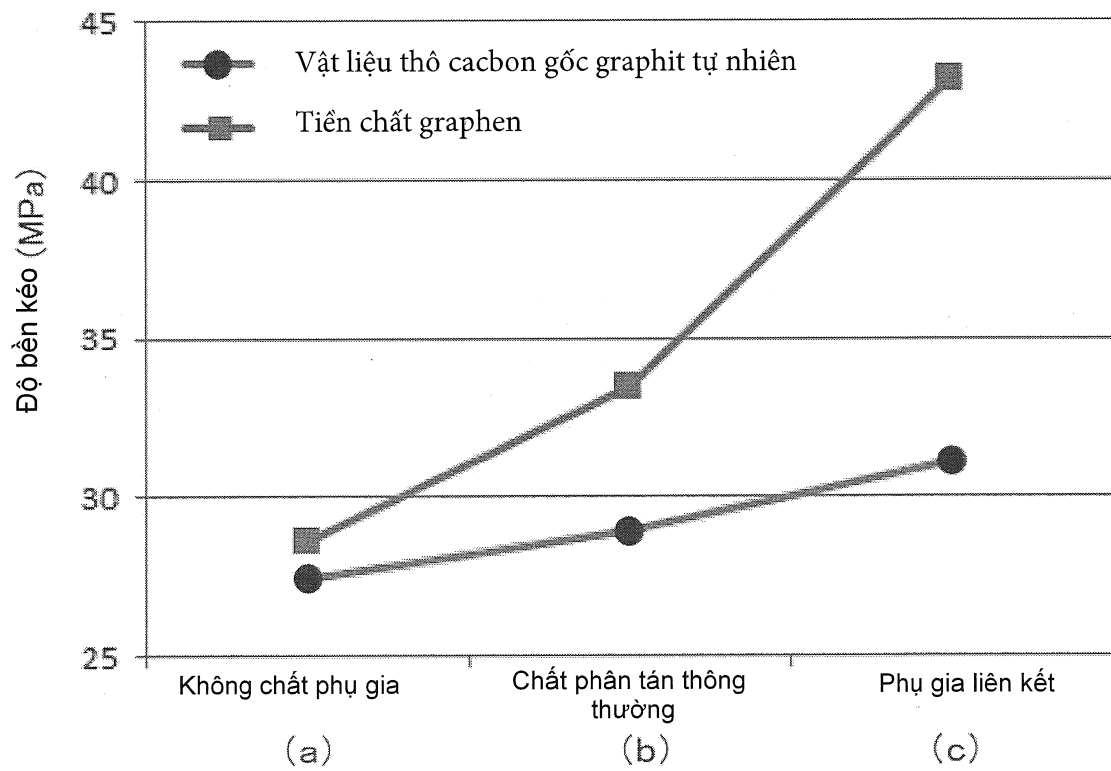


Fig. 18

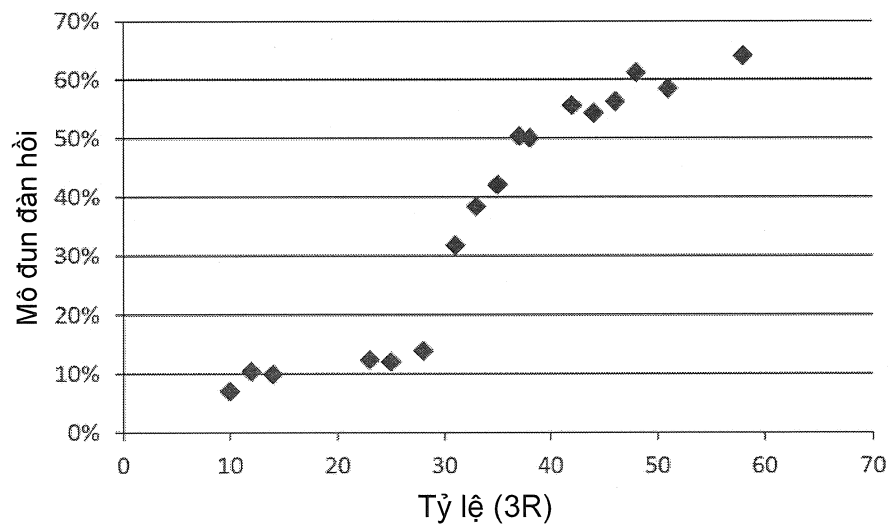


Fig. 19

