



(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)



1-0031874

(51)<sup>7</sup> C01B 31/02; C01B 31/04

(13) B

(21) 1-2017-01010

(22) 13/03/2015

(86) PCT/JP2015/057593 13/03/2015

(87) WO/2016/002261 A1 07/01/2016

(30) PCT/JP2014/073838 09/09/2014 JP; PCT/JP2015/055977 27/02/2015 JP

(45) 25/05/2022 410

(43) 25/12/2017 357A

(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) VẬT LIỆU DẪN ĐIỆN COMPOZIT, THIẾT BỊ LƯU ĐIỆN, HỆ PHÂN TÁN DẪN ĐIỆN, THIẾT BỊ DẪN ĐIỆN, COMPOZIT DẪN ĐIỆN VÀ COMPOZIT DẪN NHIỆT

(57) Sáng chế đề xuất vật liệu dẫn điện compozit có tính ưu việt về độ dẫn điện. Vật liệu dẫn điện compozit bao gồm ít nhất vật liệu dạng graphen được tróc từ vật liệu cacbon gốc graphit và vật liệu dẫn được phân tán trong vật liệu nền. Vật liệu cacbon gốc graphit khác biệt ở chỗ có lớp graphit khối sáu mặt thoi (3R) và lớp graphit lục giác (2H), trong đó tỷ lệ (3R) của lớp graphit khối sáu mặt thoi (3R) và lớp graphit lục giác (2H), dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, mà được xác định bởi phương trình 1 sau đây là 31% hoặc nhiều hơn:

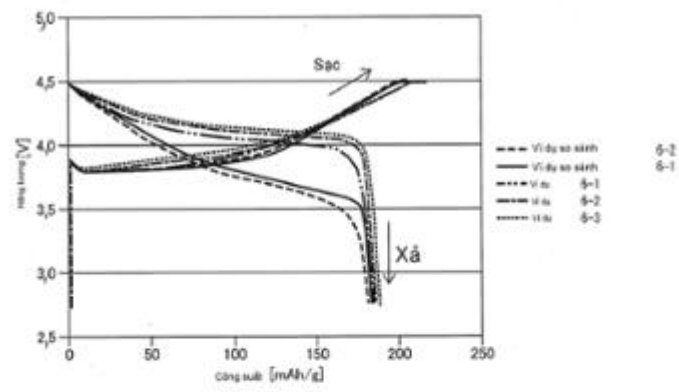
Tỷ lệ (3R) =  $P3/(P3+P4) \times 100$  .... (Phương trình 1)

trong đó:

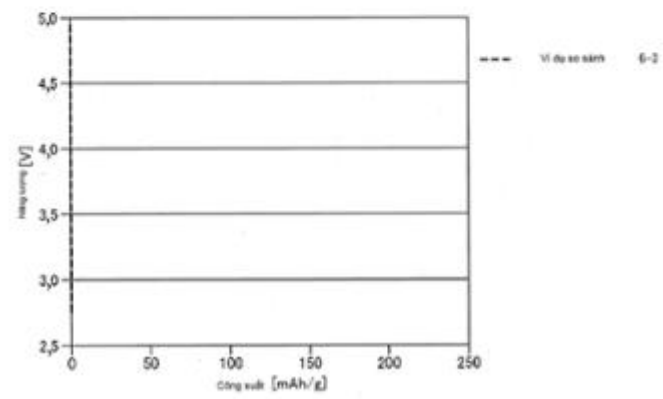
P3 là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit khối sáu mặt thoi (3R) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

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

(a)



(b)



### **Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập**

Sáng chế đề cập đến vật liệu dẫn điện composit, thiết bị lưu điện, hệ phân tán dẫn, thiết bị dẫn điện, composit dẫn điện, và composit dẫn nhiệt.

### **Tình trạng kỹ thuật của sáng chế**

Trong những năm gần đây, sự bổ sung các vật liệu nano khác nhau đã được nghiên cứu cho mục đích tiết kiệm làm giảm kích thước và trọng lượng trong các lĩnh vực khác nhau. Cụ thể, đối với các vấn đề về môi trường hoặc các nguồn tài nguyên, các vật liệu cacbon như graphene, CNT và fuloren đã thu hút sự quan tâm dùng làm các vật liệu nano á kim. Ví dụ, pin li-ion hiện nay đưa vào sử dụng thực tế đã được cải thiện về công suất của nó do việc cải thiện vật liệu hoạt động của nó. Tuy nhiên, công suất lại thấp hơn đáng kể công suất lý thuyết của nó, nên việc cải thiện thêm được mong muốn.

Về vấn đề này, trong khi axetylen đen thường được sử dụng làm chất trợ dẫn cho các pin li-ion, các vật liệu dẫn điện cao mới như sợi nano cacbon (VGCF (sợi cacbon lớn hơn): đã đăng ký nhãn hiệu) được sản xuất bởi Showa Denko K.K. đã được nghiên cứu trong những năm gần đây để cải thiện thêm độ dẫn điện (tài liệu sáng chế 1: JP-A-2013-77475).

Hơn nữa, phương pháp cải thiện các đặc tính chu kỳ (hiệu suất lặp) của pin bằng cách phủ trực tiếp vật liệu hoạt tính làm điện cực dương với chất dẫn điện và phương pháp tạo ra pin li-ion hiệu suất cao và dung lượng cao bằng cách tập trung vào độ dẫn ion đã được nghiên cứu. (Tài liệu sáng chế 2: JP-T-2013-513904), (tài liệu sáng chế 3: WO 2014/115669)

Hơn nữa, kích thước nano của bản thân vật liệu hoạt tính dùng làm pin li-ion cũng đã được nghiên cứu trong những năm gần đây. (Tài liệu phi sáng chế 5)

Tài liệu trích dẫn

Tài liệu sáng chế

Tài liệu sáng chế 1: JP-A-2013-77475 (Đoạn từ 0031 đến 0039)

Tài liệu sáng chế 2: JP-T-2013-513904 (Đoạn 0016)

Tài liệu sáng chế 3: WO 2014/115669 (Đoạn 0017, 0018)

Tài liệu sáng chế 4: WO 2014/064432 (dòng 4-9 trên trang 19)

Tài liệu phi sáng chế

Tài liệu phi sáng chế 1: Sự thay đổi kết cấu của Graphit với việc tạo lưới; các tác giả: Michio INAGAKI, Hisae MUGISHIMA, và Kenji HOSOKAWA; February 1<sup>st</sup>, 1973 (Đã nhận)

Tài liệu phi sáng chế 2: Sự thay đổi xác suất P1, PABA, PABC với việc xử lý nhiệt của cacbon; các tác giả: Tokiti NODA, Masaaki IWATSUKI, và Michio INAGAKI; 16/09/1966 (Đã nhận)

Tài liệu phi sáng chế 3: quang phổ và sự nhiễu xạ tia X nghiên cứu trên graphit khối sáu mặt thoi được lắng đọng chất lỏng từ Eastern Ghats Mobile Belt, India; G.Parthasarathy, Current Science, Quyển 90, số 7, 10/04/2006

Tài liệu phi sáng chế 4: Sự phân loại của các vật liệu cacbon rắn và các đặc điểm cấu trúc của chúng; Viện công nghệ Nagoya; Shinji KAWASAKI

Tài liệu phi sáng chế 5: Sự tổng hợp của các hạt nano LiCoO<sub>2</sub>s. The Micromeritics (52), 13-18, 2009. Hosokawa Powder Technology Research Institute. (ISSN: 04299051)

Tài liệu phi sáng chế 6: The National Institute of Advanced Industrial Science and Technology. Ống nano cacbon thành đơn/sợi cacbon/vật liệu composit cao su có độ dẫn nhiệt bằng với độ dẫn nhiệt của titan

[http://www.aist.go.jp/aist\\_j/press\\_release/pr2011/pr20111006/pr20111006.html](http://www.aist.go.jp/aist_j/press_release/pr2011/pr20111006/pr20111006.html)

Tuy nhiên, giải pháp cơ bản về công suất không thu được bởi các phương pháp này như được bộc lộ trong các tài liệu sáng chế 2 và 3, và Tài liệu phi sáng chế 5, và vấn đề có lẽ còn ở đâu đó nữa. Để thực hiện dẫn điện và hoạt động tương tự giữa các chất, chúng đơn giản là cần được nối bởi vật liệu dẫn điện, tuy nhiên, thường có trở kháng trong phần tiếp xúc giữa chất dẫn và vật liệu dẫn điện. Hơn nữa, diện tích tiếp

xúc là nhỏ giữa các bề mặt bị cong và có nhiều điểm tiếp xúc, mà góp phần vào việc trở kháng tiếp xúc bị tăng lên. Chủ yếu xem xét về việc trở kháng trở lên cao hơn khi số các điểm tiếp xúc tăng lên.

Nếu điều này được áp dụng vào pin li-ion, vật liệu hoạt tính làm điện cực dương và chất trợ dẫn (chất dẫn điện) như axetylen đen và VGCF ở hình dạng cầu hoặc dạng sợi, ví dụ, hình dạng được làm cong, có kích thước trong phạm vi nano đến micromet, vì vậy nhiều chất trợ dẫn được xen kẽ giữa các vật liệu hoạt tính làm điện cực dương, nhờ đó tạo ra nhiều điểm tiếp xúc. Do vậy, được xem là công suất lý thuyết không đạt được do trở kháng tiếp xúc.

Như được mô tả ở trên, công suất lý thuyết chưa bao giờ đạt được trong bất kỳ tài liệu nào trong số các tài liệu sáng chế từ 1 đến 3, hoặc Tài liệu phi sáng chế 5.

Mặt khác, về độ dẫn nhiệt, đã được đề xuất là tấm dẫn nhiệt cao có thể thu được bằng cách kết hợp các sợi cacbon và CNT, được sử dụng trong lượng bổ sung nhỏ (Tài liệu phi sáng chế 6). Tuy nhiên, trong phương pháp này, theo cùng cách như được mô tả ở trên, chất ở hình dạng dạng chuỗi tạo ra điểm tiếp xúc với nhau, do đó nhiệt trở được tạo ra theo cách tương tự như trong độ dẫn điện. Kết quả là, hiệu quả không cao như mong đợi.

Về vấn đề này, trong khi chú ý đến việc làm giảm trở kháng tiếp xúc và khai thác tối đa hiệu suất của chất dẫn, các nghiên cứu đã được thực hiện trên việc sử dụng của graphen, mà là chất dẫn, chất phẳng, và vật liệu cacbon dẻo.

Có vấn đề là lượng graphen mà được tróc ra thường nhỏ bởi quy trình xử lý graphit tự nhiên mà không có bước xử lý bất kỳ. Tuy nhiên, từ các nghiên cứu nghiêm túc, bằng cách thực hiện các xử lý đã được xác định trước cho graphit mà có vai trò như vật liệu nguồn, có thu được vật liệu cacbon gốc graphit (tiền thân graphen), mà graphen được làm tróc dễ dàng từ đó, graphen có thể được phân tán ở hàm lượng cao hoặc đến mức cao.

Một phần hoặc toàn bộ tiền thân graphen được làm tróc bằng các sóng siêu âm, bước khuấy và bước nhào trộn để tạo ra vật liệu được trộn là “vật liệu dạng graphen”, chứa vật liệu từ các tiền thân graphen đến graphen. Kích thước, độ dày, vv... của vật liệu dạng graphen không bị giới hạn do chúng thay đổi tùy thuộc vào lượng bổ sung, thời

gian xử lý, vv... của các tiền thân graphen, tuy nhiên, vật liệu dạng graphen tốt hơn là được tạo vầy nhiều hơn.

Nghĩa là, nói cách khác, vật liệu cacbon gốc graphit (tiền thân graphen) là loại graphit có khả năng được tróc dễ dàng và được phân tán làm vật liệu dạng graphen bởi các quy trình hoặc thiết bị khuấy và nhào trộn hiện nay.

Do vật liệu dạng graphen có tính ưu việt về độ dẫn, đã phát hiện ra là, khi nó được sử dụng ở trạng thái phân tán cao, ví dụ, ở cực dương của pin thứ cấp li-ion, công suất của nó có thể được làm gần đến công suất lý thuyết của nó.

### **Bản chất kỹ thuật của sáng chế**

Sáng chế đã được thực hiện tập trung vào các vấn đề này, và mục đích của sáng chế là đề xuất vật liệu dẫn điện composít, thiết bị lưu điện, hệ phân tán dẫn, thiết bị dẫn điện, composít dẫn điện, và composít dẫn nhiệt, mà có tính ưu việt về độ dẫn điện.

Để giải quyết các vấn đề nêu trên, vật liệu dẫn điện composít của sáng chế bao gồm ít nhất vật liệu dạng graphen được tróc từ vật liệu cacbon gốc graphit và vật liệu dẫn được phân tán trong vật liệu nền,

vật liệu cacbon gốc graphit khác biệt ở chỗ có lớp graphit khối sáu mặt thoi (3R) và lớp graphit lục giác (2H), trong đó tỷ lệ (3R) của lớp graphit khối sáu mặt thoi (3R) và lớp graphit lục giác (2H), dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, mà được xác định bởi phương trình 1 sau đây là 31% hoặc nhiều hơn:

$$\text{Tỷ lệ (3R)} = P_3 / (P_3 + P_4) \times 100 \cdots \text{Phương trình 1}$$

trong đó

$P_3$  là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit khối sáu mặt thoi (3R) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, và

$P_4$  là cường độ đỉnh của mặt phẳng (101) của lớp graphit lục giác (2H) dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X.

Theo các dấu hiệu kỹ thuật, vật liệu composít có tính ưu việt về độ dẫn điện. Điều này là do, được suy đoán là, vật liệu dạng graphen được tróc từ vật liệu cacbon gốc graphit tồn tại ở trạng thái vầy, vì vậy vật liệu dạng graphen tạo ra tiếp xúc với vật liệu

nền và vật liệu dẫn ở nhiều vùng. Cũng được suy đoán là điều này do vật liệu dạng graphen là mỏng và dễ dàng biến dạng, vì vậy phần tiếp xúc được tạo ra như mặt phẳng tiếp xúc.

Vật liệu dẫn khác biệt ở chỗ có các vi hạt ở dạng sợi, dạng chuỗi thẳng, tuyến tính, hoặc hình dạng dạng vẩy.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, các vi hạt được bao quanh bởi vật liệu dạng graphen, vì vậy độ dẫn điện của vi hạt có thể được tác dụng đủ.

Vi hạt khác biệt ở chỗ có tỷ lệ phương diện là 5 hoặc lớn hơn.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, độ dẫn điện của vi hạt có thể được tác dụng đủ hơn.

Tỷ lệ trọng lượng của vật liệu cacbon gốc graphit so với vật liệu dẫn khác biệt ở chỗ là 1/50 hoặc lớn hơn và nhỏ hơn 10.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, độ dẫn điện của vi hạt có thể được tác dụng hiệu quả.

Vật liệu nền khác biệt ở chỗ là vật liệu hoạt tính dùng cho pin.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, điện cực có tính ưu việt về các đặc điểm sạc và xả có thể thu được.

Vật liệu hoạt tính khác biệt ở chỗ là vật liệu hoạt tính dùng cho điện cực dương.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, điện cực dương có tính ưu việt về các đặc điểm sạc và xả có thể thu được.

Vật liệu nền khác biệt ở chỗ là polyme.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, vật liệu dẫn điện composít có tính ưu việt về điện, nhiệt, và độ dẫn ion có thể thu được.

Vật liệu nền khác biệt ở chỗ là vật liệu mà được tiêu hủy bởi sự bay hơi và cách tương tự.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, vật liệu dạng graphen có thể được phân tán đều trong các vật liệu dẫn bằng cách phân tán vật liệu dạng graphen sử dụng các vật liệu nền và sau đó bằng cách tiêu hủy các vật liệu nền.

Thiết bị lưu điện, như pin sơ cấp, pin thứ cấp, và tụ điện, khác biệt ở chỗ bao gồm vật liệu dẫn điện compozit.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, thiết bị lưu điện có tính ưu việt về hiệu suất lưu điện có thể thu được.

Sự phân tán dẫn, như mực dẫn điện, sơn dẫn điện, và bột nhão dẫn điện, khác biệt ở chỗ bao gồm vật liệu dẫn điện compozit.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, hệ phân tán dẫn có tính ưu việt về độ dẫn điện có thể thu được.

Thiết bị dẫn điện, như điện cực trong suốt, màng dẫn điện trong suốt, mạch dẫn điện, và nền, khác biệt ở chỗ là được phủ hoặc được in sử dụng hệ phân tán dẫn.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, thiết bị dẫn điện có tính ưu việt về độ dẫn điện có thể thu được.

Compozit dẫn điện để sử dụng trong việc ngăn điện và tĩnh điện, chặn sóng điện từ, và tương tự khác biệt ở chỗ bao gồm vật liệu dẫn điện compozit.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, compozit dẫn điện có tính ưu việt về độ dẫn điện có thể thu được.

Compozit dẫn nhiệt, như bộ tản nhiệt và mỡ bức xạ nhiệt, khác biệt ở chỗ bao gồm vật liệu dẫn điện compozit.

Theo dấu hiệu kỹ thuật này, compozit dẫn nhiệt có tính ưu việt về các đặc điểm truyền nhiệt 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) chỉ cấu trúc tinh thể có các tinh thể hình lục giác, và (b) chỉ cấu trúc tinh thể có các tinh thể khối sáu mặt thoi.

Fig.2 là sơ đồ thể hiện biên dạng nhiễu xạ tia X của graphit tự nhiên nói chung.

Fig.3 là sơ đồ minh họa thiết bị sản xuất A bằng cách sử dụng máy nghiền siêu mịn và thể điện tương của ví dụ 1.

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

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

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

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

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

Fig.9 là sơ đồ thể hiện các trạng thái phân tán của các hệ phân tán được sản xuất bằng cách sử dụng các vật liệu cacbon gốc graphit của mẫu 1 mà chỉ ra ví dụ so sánh, và mẫu 5 được sản xuất 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 sản xuất bằng cách sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit (tiền chất) của mẫu 5, trong đó (a) là sơ đồ thể hiện sự phân bố kích thước trung bình, trong khi (b) là sơ đồ thể hiện sự phân bố của 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 sản xuất sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit của mẫu 1 mà chỉ ra ví dụ so sánh, trong đó (a) là sơ đồ thể hiện sự phân bố kích thước trung bình, và (b) là sơ đồ thể hiện sự phân bố của các lớp.

Fig.13 là sơ đồ thể hiện các sự phân bố của các lớp của các vật liệu cacbon gốc graphit mỗi lớp được phân tán trong hệ phân tán mà được sản xuất bằng cách sử dụng các mẫu 1 đến 7 làm các tiền chất.

Fig.14 là sơ đồ thể hiện các tỷ lệ của graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn so với hàm lượng của các tinh thể khối sáu mặt thoi được phân tán trong hệ phân tán.

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

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

Fig.17 là sơ đồ thể hiện độ bền kéo khi vật liệu cacbon gốc graphit của ví dụ 4 được nhào trộn với nhựa.

Fig.18 là sơ đồ thể hiện độ bền kéo khi vật liệu cacbon gốc graphit của ví dụ 5 được nhào trộn với nhựa.

Fig.19 là hình vẽ thể hiện trạng thái phân bố của vật liệu cacbon gốc graphit trong hệ phân tán, được phân tán trong N-metylpyrrolidon (NMP), để tạo ra sự mô tả bổ sung của trạng thái phân tán của ví dụ 5, trong đó (a) là trạng thái phân bố của mẫu 12, và (b) là trạng thái phân bố của mẫu 2.

Fig.20 là đồ thị thể hiện các đặc điểm sạc và xả của pin thứ cấp li-ion trong ví dụ 6, trong đó (a) là đồ thị biểu diễn các ví dụ 6-1 đến 6-3 và các ví dụ so sánh 6-1 và 6-2, và (b) là đồ thị biểu diễn ví dụ so sánh 6-3.

Fig.21 là hình vẽ lý thuyết mà thể hiện điện cực dương của pin thứ cấp li-ion trong ví dụ 6.

Fig.22 là hình ảnh được chụp SEM (hình vẽ bằng) của tiền thân graphen.

Fig.23 là hình ảnh được chụp SEM (hình vẽ nhìn từ phía bên) của tiền thân graphen.

Fig.24 là đồ thị thể hiện các đặc điểm sạc và xả của pin thứ cấp li-ion trong đó các ống nano cacbon được bổ sung trong ví dụ 7.

Fig.25 là đồ thị thể hiện các đặc điểm sạc và xả của pin thứ cấp li-ion trong đó tỷ lệ trộn của tiền thân graphen được thay đổi trong ví dụ 8.

Fig.26 là hình ảnh được chụp SEM (hình vẽ mặt cắt ngang) của nhựa trong đó vật liệu dạng graphen được phân tán.

Fig.27 là hình ảnh được chụp SEM (hình vẽ nhìn từ phía bên) của vật liệu dạng graphen trên Fig.26.

Fig.28 là hình vẽ dạng sơ đồ minh họa hình dạng của các vật liệu dẫn trong ví dụ 11, trong đó (a) minh họa hình dạng của axetylen đen, (b) minh họa hình dạng của sợi cacbon, và (c) minh họa hình dạng của hạt kim loại.

### **Mô tả chi tiết sáng chế**

Sáng chế tập trung vào cấu trúc tinh thể của graphit, và, đầu tiên, các vấn đề liên quan đến cấu trúc tinh thể sẽ được giải thích. Đã biết rằng graphit tự nhiên được phân loại thành ba loại cấu trúc tinh thể, cụ thể là các tinh thể hình lục giác, các tinh thể khối sáu mặt thoi và các tinh thể mất trật tự, tùy thuộc vào cách xếp chồng của các lớp. Như được thể hiện trên Fig.1, các tinh thể hình lục giác có cấu trúc tinh thể trong đó các lớp được bố trí theo trình tự là ABABAB..., trong khi các tinh thể khối sáu mặt thoi có cấu trúc tinh thể trong đó các lớp được bố trí theo trình tự là ABCABCABC...

Trong graphit tự nhiên, hầu như không có các tinh thể khối sáu mặt thoi ở giai đoạn mà graphit tự nhiên được đào lên. Tuy nhiên, khoảng 14% của các tinh thể khối sáu mặt thoi tồn tại trong các vật liệu cacbon gốc graphit tự nhiên nói chung do việc nghiền hoặc cách tương tự được thực hiện ở giai đoạn lọc. Ngoài ra, đã biết rằng tỷ lệ của các tinh thể khối sáu mặt thoi hội tụ trên khoảng 30% ngay cả khi việc nghiền được thực hiện trong quá trình lọc trong khoảng thời gian dài (Các Tài liệu phi sáng chế 1 và 2).

Ngoài ra, phương pháp trong đó graphit được giãn nở bằng cách nung nóng, hơn là với các lực vật lý như việc nghiền, nhờ đó tạo vẩy graphit. Tuy nhiên, ngay cả khi graphit được xử lý với nhiệt là 1600 K (khoảng 1,300°C), tỷ lệ của các tinh thể khối sáu mặt thoi là khoảng 25% (Tài liệu phi sáng chế 3). Hơn nữa, tỷ lệ lên tới khoảng 30% ngay cả khi nhiệt có nhiệt độ cực cao là 3000°C được áp vào đó (Tài liệu phi sáng chế 2).

Vì vậy, mặc dù có thể làm tăng tỷ lệ của các tinh thể khối sáu mặt 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 bao gồm trong graphit tự nhiên ở mức cao, là rất ổn định, và lớp xen giữa lực van der Waal giữa các lớp graphit của chúng được thể hiện bởi phương trình 3 (tài liệu sáng chế 4). Bằng cách áp năng lượng vượt quá lực này, graphen được tróc. Năng lượng cần cho việc làm tróc tỷ lệ nghịch với lập phương của độ dày. Do đó, ở trạng thái dày mà số các lớp được xếp chồng, graphen được làm tróc bằng lực vật lý yếu như bằng các sóng siêu âm rất yếu ớt. Tuy nhiên, trong trường hợp mà graphen được tróc từ graphit hơi mỏng, cần năng lượng rất lớn. Nói cách khác, thậm chí nếu graphit được xử lý trong khoảng thời gian dài, chỉ các phần yếu của bề mặt được tróc ra, và các phần lớn còn lại không được tróc.

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

$F_{vdw}$ : Lực Van der Waal

H: hằng số Hamaker

A: Diện tích bề mặt của graphit hoặc graphen

t: 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 sáu mặt thoi (3R), mà đã được làm tăng đến chỉ khoảng 30% bởi các quy trình xử lý gồm việc nghiền hoặc làm nóng đến nhiệt độ cực cao, đến 30% hoặc lớn hơn bằng cách thực hiện các xử lý đã được xác định trước, như được thể hiện ở dưới, đến graphit tự nhiên. Các phát hiện sau đây thu được là các kết quả của các thử nghiệm và nghiên cứu. Nghĩa là, khi hàm lượng của các tinh thể khối sáu mặt thoi (3R) trong vật liệu cacbon gốc graphit là cao hơn, cụ thể khi hàm lượng là 31% hoặc nhiều hơn, có xu hướng là graphen được làm tróc dễ dàng bằng việc sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit này làm tiền chất, nhờ đó dễ dàng thu được hệ phân tán graphen được phân tán và cô đặc cao hoặc có đặc điểm tương tự. Vì lý do này, được xem là, khi lực cắt hoặc lực tương tự được áp tới các tinh thể khối sáu mặt thoi (3R), sự biến dạng xảy ra giữa các lớp, ví dụ sự biến dạng trong toàn bộ cấu trúc của graphit trở nên lớn, và graphen được làm tróc dễ dàng không phụ thuộc vào lực van der Waal. Theo đó, trong sáng chế, vật liệu

cacbon gốc graphit, mà graphen được làm tróc dễ dàng từ đó bằng cách thực hiện các xử lý đã được xác định trước vào graphit tự nhiên, và làm nó có thể phân tán graphen ở hàm lượng cao hoặc đến mức cao, được gọi là tiền thân graphen. Sau đây, phương pháp tạo ra tiền thân graphen mà thể hiện các xử lý đã được xác định trước, cấu trúc tinh thể của tiền thân graphen, và hệ phân tán graphen bằng cách sử dụng tiền thân graphen sẽ được mô tả theo trình tự trong các ví dụ ở dưới.

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

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

Hơn nữa, trong bản mô tả, compozit graphen là compozit mà được sản xuất bằng cách sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền thân graphen theo sáng chế, ví dụ vật liệu cacbon gốc graphit có tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn (ví dụ các mẫu 2-7 của ví dụ 1, các mẫu 2, 21, ... của ví dụ 5 được mô tả ở dưới).

Sau đây, các ví dụ để thực hiện vật liệu dẫn điện compozit, thiết bị lưu điện, hệ phân tán dẫn, thiết bị dẫn điện, compozit dẫn điện, và compozit dẫn nhiệt, theo sáng chế, sẽ được mô tả.

#### Ví dụ 1

Đối với việc sản xuất của vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền thân graphen

Phương pháp để thu được vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền thân graphen bởi thiết bị sản xuất A sử dụng máy nghiền siêu mịn và thể điện tương được thể hiện trên Fig.3 sẽ được giải thích. Như ví dụ, thiết bị sản xuất A chỉ trường hợp trong đó thể điện tương được áp dụng cho việc xử lý trên cơ sở lực sóng vô tuyến và trong đó máy nghiền siêu mịn được sử dụng cho việc xử lý trên cơ sở lực vật lý.

Trên Fig.3, ký hiệu 1 chỉ hạt có kích thước 5 mm hoặc nhỏ hơn của vật liệu graphit tự nhiên (graphit dạng vảy ACB-50 được sản xuất bởi Nippon Graphite Industries, Ltd.); ký hiệu 2 chỉ phễu mà chứa vật liệu graphit tự nhiên 1; ký hiệu 3 chỉ vòi phun Venturi mà xả vật liệu graphit tự nhiên 1 từ phễu 2; ký hiệu 4 chỉ máy nghiền siêu mịn mà phun không khí mà được bơm từ máy nén 5, trong khi được chia thành tám vị trí, để nhờ đó cho phép vật liệu graphit tự nhiên va chạm với bên trong của buồng bởi bộ thổi phun; và ký hiệu 7 chỉ máy phát điện thể điện tương mà phun khí 9, như oxy, argon, khí nitơ hoặc khí hydro, qua vòi phun 8 từ bể 6 và áp điện áp vào cuộn 11, quấn quanh biên phía ngoài của vòi phun 8, từ bộ nguồn điện áp cao 10, nhờ đó tạo ra thể điện tương bên trong buồng của máy nghiền siêu mịn 4, và máy phát điện thể điện tương được bố trí ở mỗi trong số bốn vị trí bên trong buồng. Ký hiệu 13 chỉ ống mà nối máy nghiền siêu mịn 4 và bộ thu bụi 14 với nhau; ký hiệu 14 chỉ bộ thu bụi; ký hiệu 15 chỉ bộ chứa thu thập; ký hiệu 16 chỉ vật liệu cacbon gốc graphit (tiền thân graphen); và ký hiệu 17 chỉ bộ thổi.

Tiếp theo, phương pháp sản xuất sẽ được giải thích. Các điều kiện cho máy nghiền siêu mịn và thể điện tương như sau.

Các điều kiện cho máy nghiền siêu mịn như sau.

Áp suất: 0,5 MPa

Thể tích không khí: 2,8 m<sup>3</sup>/phút

Đường kính bên trong vòi phun: 12 mm

Tốc độ chảy: khoảng 410 m/giây

Các điều kiện cho thể điện tương như sau.

Đầu ra: 15 W

Điện áp: 8 kV

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

Tốc độ lưu thông khí: 5 L/phút

Được xem xét là các vật liệu graphit tự nhiên 1, mà được nạp vào trong buồng của máy nghiền siêu mịn 4 từ vòi phun Venturi 3, được gia tốc đến vận tốc âm thanh hoặc

cao hơn bên trong buồng, và được nghiền bởi sự tác động giữa các vật liệu graphit tự nhiên 1 hoặc bởi tác động của chúng đối với thành, và, đồng thời, thế điện tương 12 xả dòng điện hoặc kích thích các vật liệu graphit tự nhiên 1, tác động trực tiếp lên các phân tử (các electron), và làm tăng sự biến dạng của các tinh thể, nhờ đó thúc đẩy việc nghiền. Khi các vật liệu graphit tự nhiên 1 chuyển thành các hạt mịn có đường kính hạt nhất định (khoảng 1 đến 10  $\mu\text{m}$ ), trọng lượng của chúng bị giảm, lực ly tâm bị yếu đi, và, kết quả là, các vật liệu graphit tự nhiên 1 được bơm ra ngoài từ ống 13 mà được nối đến trung tâm của buồng.

Khí bao gồm các vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền thân graphen), mà được chảy từ ống 13 vào trong vật chứa hình trụ của buồng của bộ thu bụi 14, tạo ra dòng xoắn ốc, và rơi xuống các vật liệu cacbon gốc graphit 16, mà va chạm với thành bên trong của vật chứa, đến bộ chứa thu thập 15 ở dưới, trong khi dòng khí tăng dần tạo ra ở trung tâm của buồng do phần vật chứa thuôn nhọn của phía dưới của buồng, và khí được phát ra từ bộ thổi 17 (còn gọi là hiệu ứng lốc xoáy). Theo thiết bị sản xuất A trong ví dụ này, khoảng 800g tiền thân graphen từ 1 kg của các nguyên liệu thô, ví dụ các vật liệu graphit tự nhiên 1, được sử dụng. Vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền thân graphen) 16 thu được (hiệu quả khôi phục: khoảng 80%).

Tiếp theo, dựa trên thiết bị sản xuất B sử dụng máy nghiền kiểu bi và các lò vi sóng được thể hiện trên Fig.4, phương pháp để thu được vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền thân graphen sẽ được mô tả. Thiết bị B, làm ví dụ, chỉ trường hợp mà các vi sóng được áp khi việc xử lý trên cơ sở lực sóng vô tuyến và trường hợp mà máy nghiền kiểu bi được sử dụng cho việc xử lý trên cơ sở lực vật lý.

Trên Fig.4 (a) và (b), ký hiệu 20 chỉ máy nghiền kiểu bi; ký hiệu 21 chỉ máy tạo vi sóng (manhetron); ký hiệu 22 chỉ phần dẫn sóng; ký hiệu 23 chỉ đầu vào vi sóng; ký hiệu 24 chỉ phương tiện truyền; ký hiệu 25 chỉ các hạt có kích thước 5 mm hoặc nhỏ hơn của vật liệu graphit tự nhiên (graphit dạng vảy ACB-50 được sản xuất bởi Nippon Graphite Industries, Ltd.); ký hiệu 26 chỉ bộ chứa thu thập; ký hiệu 27 chỉ bộ lọc; và ký hiệu 28 chỉ vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền thân graphen).

Tiếp theo, phương pháp sản xuất sẽ được giải thích. Các điều kiện cho máy nghiền kiểu bi và máy tạo vi sóng như sau.

Các điều kiện cho máy nghiền kiểu bi như sau.

Tốc độ quay: 30 vòng/phút

Kích thước phương tiện:  $\phi 5$  mm

Loại phương tiện: các bi zirconia

Thời gian nghiền: 3 giờ

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

Đầu ra: 300 W

Tần số: 2,45 GHz

Phương pháp chiếu xạ: Từng đợt

1 kg các nguyên liệu thô cacbon graphit tự nhiên 25 và 800 g của phương tiện truyền 24 được nạp vào trong buồng của máy nghiền kiểu bi 20, buồng được đóng, và hỗn hợp được xử lý ở tốc độ quay là 30vòng/phút trong 3 giờ. Trong khi xử lý, các vi sóng được chiếu xạ từng đợt (trong khoảng 20 giây mỗi 10 phút) vào buồng. Được xem xét là việc chiếu xạ vi sóng tác động trực tiếp lên các phân tử (các electron) của các nguyên liệu thô, vì vậy làm tăng sự biến dạng của các tinh thể. Sau khi xử lý, phương tiện truyền 24 được loại bỏ bởi bệ lọc 27, và vì vậy, bột có kích thước khoảng 10  $\mu$ m của các vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền chất) 28 có thể được thu thập trong bộ chứa thu thập 26.

Đối với biến dạng nhiều xạ tia X của các vật liệu cacbon gốc graphit (các tiền thân graphen)

Tham chiếu đến các Fig. 5 đến 7, các biến dạng nhiều xạ tia X và các cấu trúc tinh thể sẽ được mô tả đối với các vật liệu tự nhiên trên cơ sở graphit (các mẫu 6 và 5) được sản xuất bởi các thiết bị sản xuất A và B, và bột có kích thước khoảng 10  $\mu$ m của các vật liệu tự nhiên trên cơ sở graphit (mẫu 1: ví dụ so sánh) thu được bằng cách sử dụng chỉ máy nghiền kiểu bi của thiết bị sản xuất B.

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

Nguồn : tia Cu K $\alpha$

Tốc độ quét : 20 °/phút

Điện áp ống : 40kV

Dòng ống : 30mA

Theo phương pháp nhiễu xạ tia X (nhiều xạ kế tia X đa mục đích loại gắn mẫu theo phương ngang Ultima IV được sản xuất bởi Rigaku Corporation), mỗi mẫu thể hiện các cường độ đỉnh P1, P2, P3 và P4 trên các mặt phẳng (100), (002) và (101) của các tinh thể hình lục giác 2H và trên mặt phẳng (101) của các tinh thể khối sáu mặt 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 được sử dụng còn được gọi là các trị số tiêu chuẩn ở trong nước và nước ngoài trong những năm gần đây. Nhiễu xạ kế tia X đa mục đích loại gắn mẫu theo phương ngang Ultima IV này được sản xuất bởi Rigaku Corporation là thiết bị mà có thể đo biên dạng nhiễu xạ tia X theo tiêu chuẩn JIS R 7651:2007 "phép đo các thông số mạng tinh thể và các kích thước vi tinh thể của các vật liệu cacbon". Ngoài ra, tỷ lệ (3R) là tỷ lệ của cường độ nhiễu xạ thu được bởi tỷ lệ  $(3R) = P3 / (P3 + P4) \times 100$ , thậm chí nếu trị số của cường độ nhiễu xạ được thay đổi, trị số của tỷ lệ (3R) không thay đổi. Nghĩa là tỷ lệ của cường độ nhiễu xạ được chuẩn hóa, tỷ lệ này thường được sử dụng để tránh thực hiện việc xác định chất trị số tuyệt đối và trị số của nó không phụ thuộc vào các thiết bị đo.

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

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

trong đó

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

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

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

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

Bảng 1

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

Theo cùng một cách, như được thể hiện trên Fig.6 và bảng 2, mẫu 6 được sản xuất bởi thiết bị sản xuất A, mà áp dụng việc xử lý dựa trên máy nghiền siêu mịn và xử lý dựa trên thể điện tương, có các tỷ lệ cường độ đỉnh cao 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 [độ đếm/độ]<br>( $2\theta[^\circ]$ ) |
|-------------------------------------------------|--------------------------------------------------------|
| Các tinh thể hình lục giác 2H (100)<br>[P1]     | 66<br>(42,43)                                          |
| Các tinh thể hình lục giác 2H (002)<br>[P2]     | 4,675<br>(26,49)                                       |
| Các tinh thể khối sáu mặt thoi 3R (101)<br>[P3] | 170<br>(43,37)                                         |
| Các tinh thể hình lục giác 2H (101)<br>[P4]     | 162<br>(44,63)                                         |

Hơn nữa, như được thể hiện trên Fig.7 và bảng 3, mẫu 1 mà chỉ ra ví dụ so sánh được sản xuất với chỉ duy nhất máy nghiền kiểu 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 [độ đếm]<br>(2 $\theta$ [°]) |
|-------------------------------------------------|------------------------------------------------|
| Các tinh thể hình lục giác 2H (100)<br>[P1]     | 120<br>(42,4)                                  |
| Các tinh thể hình lục giác 2H (002)<br>[P2]     | 15,000<br>(26,5)                               |
| Các tinh thể khối sáu mặt thoi 3R (101)<br>[P3] | 50<br>(43,3)                                   |
| Các tinh thể hình lục giác 2H (101)<br>[P4]     | 160<br>(44,5)                                  |

Vì vậy, mẫu 5 được sản xuất bởi thiết bị sản xuất B của ví dụ 1, và mẫu 6 được sản xuất bởi thiết bị sản xuất A của ví dụ 1 có các tỷ lệ (3R) là 46% và 51%, tương ứng, và nó đã thể hiện là các tỷ lệ (3R) của chúng là 40% hoặc nhiều hơn, hoặc 50% hoặc nhiều hơn, so với graphite tự nhiên được thể hiện trên Fig.2 và mẫu 1 mà chỉ ra ví dụ so sánh.

Tiếp theo, các hệ phân tán graphen được sản xuất bằng cách sử dụng các tiền thân graphen được sản xuất ở trên, và độ dễ tróc vẩy của graphen được đánh giá.

Đối với các hệ phân tán graphen

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

(1) 0,2g vật liệu cacbon gốc graphite hữu ích làm tiền thân graphen và 200ml N-methylpyrrolidon (NMP) mà hoạt động như môi trường phân tán được nạp vào cốc bệse 40.

(2) Cốc bêse 40 được đặt vào trong buồng 42 của máy tạo vi sóng 43, và bộ rung siêu âm 44A của sừng siêu âm 44 được lắp vào trong môi trường phân tán 41 từ hướng phía trên.

(3) Sừng siêu âm 44 được kích hoạt, và các sóng siêu âm là 20 kHz (100 W) được áp liên tục tới đó trong 3 giờ.

(4) Trong khi sừng siêu âm 44 ở trên được dẫn động, máy tạo vi sóng 43 được kích hoạt để áp các vi sóng là 2,45 GHz (300 W) không liên tục (chiếu xạ trong 10 giây mỗi 5 phút) tới đó.

Fig.9 chỉ vẽ bên ngoài của các hệ phân tán graphen được sản xuất theo cách được mô tả ở trên khi 24 giờ đã trôi qua.

Mặc dù một phần của hệ phân tán graphen 30 sử dụng mẫu 5 được sản xuất bởi thiết bị sản xuất B được lắng đọng, sản phẩm hoàn toàn thể hiện màu đen được quan sát thấy. Đối với điều này, được xem là phần lớn của các vật liệu cacbon gốc graphit được sử dụng làm các tiền thân graphen được phân tán ở trạng thái mà graphen được tróc từ chúng.

Trong phần phân tán 31 sử dụng mẫu 1 mà chỉ ra ví dụ so sánh, hầu hết các vật liệu cacbon gốc graphit được lắng đọng, và được xác nhận là một phần của chúng được nổi làm các chất nổi trên bề mặt. Từ các thực tế, được xem là graphen được tróc từ một phần nhỏ của chúng và chúng được nổi làm các chất nổi trên bề mặt.

Hơn nữa, hệ phân tán graphen được sản xuất theo cách được mô tả ở trên được pha loãng đến nồng độ có thể quan sát, được phủ lên trên bộ mẫu (lưới TEM), và lưới được làm khô. Vì vậy, kích thước và số lượng các lớp của graphen được quan sát trên hình ảnh chụp được của kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM - transmission electron microscope), như được thể hiện trên Fig.10. Ngoài ra, lưới được phủ với các chất nổi trên bề mặt được pha loãng được sử dụng cho mẫu 1. Ví dụ, trong trường hợp của Fig.10, kích thước tương ứng với chiều dài lớn nhất  $L$  của vảy 33, mà là 600nm, dựa trên Fig.10 (a). Đối với các lớp, mặt đầu của vảy 33 được quan sát trên Fig.10 (b), và các lớp graphen xếp chồng được đếm, nhờ đó tính toán số các lớp là 6 lớp (một phần được chỉ ra bởi ký hiệu 34). Theo cách này, kích thước và số lượng các lớp được đo đối

với mỗi vảy (“N” chỉ ra số của các vảy), và số lượng của các lớp graphen và các kích thước được thể hiện trên các Fig. 11 và 12 thu được.

Tham chiếu đến Fig.11 (a), sự phân bố kích thước hạt (sự phân bố của các kích thước) của các vảy mỏng được bao gồm trong hệ phân tán graphen của mẫu 5 (tỷ lệ (R3) là 46%) được sản xuất bởi thiết bị sản xuất B của ví dụ 1 là hệ phân bố có đỉnh là  $0,5\mu\text{m}$ . Ngoài ra, trên Fig.11 (b), đối với số lượng các lớp, hệ phân bố mà có đỉnh trong 3 lớp và trong đó graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn là 68% được quan sát.

Tham chiếu đến Fig.12, sự phân bố kích thước hạt (sự phân bố của các kích thước) của các vảy mỏng được bao gồm trong hệ phân tán của mẫu 1 (tỷ lệ (R3) là 23%) của ví dụ so sánh được phân bố có đỉnh là  $0,9\mu\text{m}$ . Ngoài ra, đối với số lượng các lớp, sự phân bố trong đó mà có 30 lớp hoặc lớn hơn chiếm phần lớn hơn và trong đó graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn là 10% được quan sát.

Từ các kết quả, được bộc lộ là, khi sản phẩm của mẫu 5 được sản xuất bởi thiết bị sản xuất B được sử dụng làm tiền thân graphen, hệ phân tán graphen được cô đặc cao mà chứa nhiều graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn và có khả năng phân tán tốt của graphen có thể thu được.

Tiếp theo, tham chiếu đến Fig.13, quan hệ giữa tỷ lệ (3R) của tiền thân graphen và số các lớp trong hệ phân tán graphen sẽ được mô tả. Các mẫu 1, 5 và 6 trên Fig.13 là các mẫu được mô tả ở trên. Các mẫu 2, 3 và 4 được sản xuất bởi thiết bị sản xuất B mà thực hiện việc xử lý dựa trên máy nghiền kiểu bi và xử lý vi sóng, và là các hệ phân tán graphen được sản xuất sử dụng các tiền thân graphen mà đã được sản xuất bằng cách làm thời gian chiếu xạ của các vi sóng ngắn hơn thời gian cho mẫu 5. Ngoài ra, mẫu 7 được sản xuất bởi thiết bị sản xuất A mà thực hiện việc xử lý dựa trên máy nghiền siêu mịn và xử lý thể điện tương, và là hệ phân tán graphen được sản xuất bằng cách sử dụng tiền thân graphen mà đã được sản xuất bằng cách áp thể điện tương có đầu ra cao hơn thể điện tương cho mẫu 6.

Từ Fig.13, đối với các mẫu 2 và 3 thể hiện các tỷ lệ (3R) là 31% và 38%, tương ứng, các sự phân bố của các lớp có các đỉnh ở khoảng 13 làm số các lớp; nghĩa là, các hình dạng phân bố gần với hình dạng của sự phân bố bình thường (các hệ phân tán mà sử dụng các mẫu 2 và 3). Đối với các mẫu 4 đến 7 thể hiện các tỷ lệ (3R) là 40% hoặc

nhiều hơn, các sự phân bố của các lớp có các đỉnh ở nhiều như số các lớp (graphen mỏng); nghĩa là, các hình dạng phân bố là các hình dạng gọi là sự phân bố logarit chuẩn. Mặt khác, đối với mẫu 1 có tỷ lệ (3R) là 23%, sự phân bố của nó có đỉnh ở 30 hoặc lớn hơn làm số các lớp (hệ phân tán sử dụng sử dụng mẫu 1). Nghĩa là, được hiểu như sau: có xu hướng là, trong các trường hợp mà tỷ lệ (3R) đạt 31% hoặc nhiều hơn, các hình dạng của các sự phân bố số lớp khác với các hình dạng cho các trường hợp mà tỷ lệ (3R) nhỏ hơn 31%; và hơn nữa, trong các trường hợp mà tỷ lệ (3R) đạt 40% hoặc nhiều hơn, các hình dạng của các sự phân bố số lớp rõ ràng khác với các hình dạng cho các trường hợp mà tỷ lệ (3R) nhỏ hơn 40%. Ngoài ra, có thể được hiểu là, đối với các tỷ lệ của graphen có 10 lớp hoặc nhỏ 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 40% hoặc nhiều hơn, tỷ lệ của graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn tăng lên nhanh chóng.

Từ những thực tế này, có thể xem là graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn được tróc dễ dàng trong các trường hợp mà tỷ lệ (3R) là 31% hoặc nhiều hơn, và mà, khi tỷ lệ (3R) tăng lên đến 40%, 50% và 60%, graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn được tróc dễ dàng hơn. Ngoài ra, tập trung vào tỷ lệ cường độ P1/P2, các mẫu 2 đến 7 thể hiện các trị số nằm trong phạm vi tương đối hẹp là từ 0,012 đến 0,016, và bất kỳ trong số chúng được ưu tiên do chúng vượt quá 0,01 mà được xem là graphen được làm tróc dễ dàng do các cấu trúc tinh thể sẽ được biến dạng.

Hơn nữa, các kết quả thu được bằng cách so sánh các tỷ lệ (3R) và các tỷ lệ của graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn được bao gồm trong đó được thể hiện trên Fig.14. Tham chiếu đến Fig.14, được bộc lộ là, khi tỷ lệ (3R) đã đạt 25% hoặc nhiều hơn, khoảng 31%, graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn đã bắt đầu tăng lên (thể hiện độ dốc ngày càng tăng). Hơn nữa, được bộc lộ là, khoảng 40%, graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn được tăng lên nhanh (đối với các tỷ lệ của graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn, trong khi 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 graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn được tăng lên nhanh bằng 24% khi tỷ lệ (3R) được tăng lên bằng 4%), và tỷ lệ phần trăm của graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn so với tổng graphen là 50% hoặc nhiều hơn. Ngoài ra, các điểm vuông màu đen trên Fig.14 mỗi điểm tương ứng với các mẫu khác nhau, và các mẫu 1 đến 7 được mô tả ở trên và các mẫu khác được bao gồm trong đó.

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

Phần mô tả ở trên làm rõ những điều sau: khi tỷ lệ (3R) là 31% hoặc nhiều hơn, tốt hơn là 40% hoặc nhiều hơn, và tốt hơn nữa là 50% hoặc nhiều hơn, phân chia thành graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn và các vật liệu cacbon gốc graphit mỏng có 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 thân graphen, hệ phân tán graphen được cô đặc cao mà có khả năng phân tán tốt của graphen có thể thu được. Vẫn thêm nữa, ví dụ 5 được mô tả ở dưới làm rõ là, trong trường hợp mà tỷ lệ (3R) là 31% hoặc nhiều hơn, các vật liệu cacbon gốc graphit là hữu ích làm tiền thân graphen.

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

Ví dụ 2

Trong ví dụ 1, trường hợp mà 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 xử lý siêu âm được thực hiện trong khi xử lý vi sóng không được thực hiện, và các điều kiện khác giống với các điều kiện cho ví dụ 1.

Fig.15 (b) thể hiện sự phân bố của các lớp đối với hệ phân tán graphen mà thu được bằng cách thực hiện xử lý siêu âm sử dụng tiền thân graphen của mẫu 5 (Tỷ lệ  $(3R) = 46\%$ ) được sản xuất bởi thiết bị sản xuất B. Ngoài ra, Fig.15 (a) là giống với sự phân bố được thể hiện trên Fig.11 (b) của mẫu 5 được sản xuất bởi thiết bị sản xuất B của ví dụ 1.

Kết quả là, mặc dù xu hướng của sự phân bố của các lớp hầu như tương tự, tỷ lệ của graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn là 64%, và được giảm nhẹ, so với 68% của ví dụ 1. Từ thực tế, được bộc lộ là nó có hiệu quả hơn để đồng thời thực hiện hai quy trình xử lý dựa trên lực vật lý và lực sóng vô tuyến để sản xuất hệ phân tán graphen.

#### 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 thân graphen trong dung dịch hỗn hợp gồm nước và rượu của số cacbon là 3 hoặc nhỏ hơn, mà hoạt động như chất truyền dẫn điện, ở các nồng độ áp dụng cho các mực dẫn điện, vì vậy tạo ra INK1, INK3, INK5 và INK6, và trị số điện trở của chúng được so sánh. Dựa trên các kết quả, như các tỷ lệ  $(3R)$  trở nên cao hơn, các trị số điện trở thấp hơn.

#### Ví dụ 4

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

Khi tấm nhựa, trong đó graphen được phân tán, được sản xuất, độ bền kéo là rất cao mặc dù các sợi thủy tinh được bổ sung vào đó. Do đó, yếu tố cho điều này được nghiên cứu, và, kết quả là, tìm ra là chất tương thích được bổ sung đồng thời với các sợi thủy tinh góp phần vào sự tạo thành của graphen từ tiền chất có thể thu được. Do đó,

các sản phẩm thu được bằng cách trộn các chất phân tán và chất tương thích vào trong 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 nhào trộn trong khi áp dụng cắt (lực cắt) tới đó với máy nhào, máy nhào hai trục (máy đùn) hoặc lực tương tự.

Đã biết rộng rãi là, khi các vật liệu cacbon gốc graphit đã chuyển thành graphen, được phân tán cao trong nhựa, độ bền kéo tăng lên. Do đó, bằng cách đo độ bền kéo của nhựa, mức độ tróc vảy vào trong graphen và hệ phân tán có thể được ước tính tương đối. Độ bền kéo được đo với máy kiểm tra đa dụng mặt hàn chính xác (AUTOGRAPH AGS-J) được sản xuất bởi Shimadzu Corporation dưới điều kiện là tốc độ kiểm tra là 500 mm/phút.

Ngoài ra, để so sánh mức độ tróc vảy vào trong graphen và khả năng phân tán tùy thuộc vào sự có mặt hoặc vắng mặt của các phụ gia, các so sánh sau đây của ba loại gồm (a), (b) và (c) được thực hiện.

- (a) Không có các phụ gia
- (b) Chất phân tán chung (kẽm stearat)
- (c) Chất tương thích (polyme ghép biến đổi)

Tham chiếu đến Fig.17 thể hiện các kết quả đo, các kết quả sẽ được giải thích. Ngoài ra, trên Fig.17, các vòng tròn chỉ ra các vật liệu nhựa sử dụng mẫu 1 của ví dụ so sánh, và các hình vuông chỉ ra 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 khác nhau giữa các độ bền kéo là nhỏ.

Trong trường hợp (b) mà chất phân tán được bổ sung, được bộc lộ là sự tạo thành của graphen được thúc đẩy đến mức nhất định trong tiền thân graphen của mẫu 5.

Trong trường hợp (c) mà chất tương thích được bổ sung, được bộc lộ là sự tạo thành của graphen được thúc đẩy đáng kể trong tiền thân graphen của mẫu 5. Điều này là do được xem là, ngoài các hiệu quả để phân tán graphen, chất tương thích kết dính các thân liên kết lớp graphen và nhựa, và tác động trên chúng sao cho các thân liên kết lớp graphen được lột ra từ đó, khi áp dụng cắt ở trạng thái đó.

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

#### Ví dụ 5

Để xác minh thêm là các chất thu được khi tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn có lợi như các tiền thân graphen, mà được mô tả ở trên trong ví dụ 1, ví dụ trong đó tiền thân graphen được nhào trộn với nhựa sẽ được giải thích thêm trong ví dụ 5. Sau đây giải thích mô đun đàn hồi của các vật dụng được đúc nhựa trong đó các vật liệu cacbon gốc graphit chứa các mẫu 1 đến 7 trong ví dụ 1, có các tỷ lệ (3R) được vẽ trên Fig.14, được sử dụng làm các tiền chất.

(1) Việc sử dụng vật liệu cacbon gốc graphit được mô tả ở trên làm tiền chất, 5% trọng lượng của LLDPE (polyetylen: 20201J được sản xuất bởi Prime Polyme Co., Ltd.) và 1% trọng lượng của chất phân tán (các chất hoạt tính bề mặt dạng không ion) được trộn trong nước được trao đổi ion, và thiết bị được mô tả ở trên được minh họa trên Fig.8 được dẫn động dưới dùng các điều kiện, nhờ đó các hệ phân tán graphen

chứa 5% trọng lượng của graphene và các vật liệu cacbon gốc graphit thu được.

(2) 0,6 kg hệ phân tán graphene thu được trong (1) được nhào trộn ngay vào trong nhựa có 5,4 kg sử dụng máy nhào (máy nhào loại nén WDS7-30 được sản xuất bởi Moriyama Co., Ltd.), nhờ đó các viên được sản xuất. Các điều kiện nhào được mô tả ở dưới. Nên lưu ý là tỷ lệ trộn giữa nhựa và hệ phân tán được chọn để lượng graphene và các vật liệu cacbon gốc graphit được trộn trong đó cuối cùng là 0,5% trọng lượng.

(3) Các viên được sản xuất trong (2) được tạo thành mẫu thử theo tiêu chuẩn JIS K7161 1A (chiều dài: 165mm, chiều rộng: 20 mm, độ dày: 4mm) bởi máy ép phun.

(4) Mô đun đàn hồi (Mpa) của mẫu thử được sản xuất trong (3) được đo dưới điều kiện là tốc độ kiểm tra là 500mm/phút theo tiêu chuẩn JIS K7161 bởi thiết bị kiểm tra phổ quát chính xác loại table-top được sản xuất bởi Shimadzu Corporation (AUTOGRAPH AGS-J).

Các điều kiện nhào như sau.

Nhiệt độ nhào: 135°C

Tốc độ quay rôto: 30 vòng/phút

Thời gian nhào: 15 phút

Sự điều áp trong lò nung: áp một áp suất 0,3MPa trong thời gian 10 phút sau khi bắt đầu, và giảm áp đến áp suất môi trường sau khi thời gian 10 phút trôi qua

Ở đây, sự phân tán của hệ phân tán graphene được mô tả ở trên vào trong nhựa được xem xét như sau. Khi điểm tan chảy của nhựa thường là ở nhiệt độ 100°C hoặc cao hơn, nước bay hơi trong môi trường, nhưng trong máy nhào loại nén, bên trong lò nung có thể được tăng áp. Ở bên trong lò nung, 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 thời gian được xác định trước, bên trong được giảm áp dần, mà khiến điểm sôi của nước để giảm xuống, nhờ đó cho phép nước bốc hơi. Ở đây, graphene được giữ trong nước được để lại trong nhựa. Điều này khiến graphene và các vật liệu cacbon gốc graphit được phân tán ở hàm lượng cao trong nhựa.

Hơn nữa, do graphene và các vật liệu cacbon gốc graphit có xu hướng kết tủa trong hệ phân tán graphene khi thời gian trôi qua, hệ phân tán graphene được nhào trộn vào

trong nhựa tốt hơn là ngay lập tức sau khi hệ phân tán graphen thu được.

Nên lưu ý là những thứ sau có thể được sử dụng làm phương tiện để thu được nhũ tương của hệ phân tán và nhựa, ngoài máy nhào nén: động cơ đẩy hóa học; máy trộn xoáy; máy đồng trộn; máy làm đồng nhất áp suất cao; máy cắt thủy lực; máy trộn phun dòng; máy nghiền siêu mịn âm; và máy phát siêu âm.

Hơn nữa, những chất sau có thể được sử dụng làm dung môi cho hệ phân tán, ngoài nước: 2-propanol (IPA); axeton; toluen; N-methylpyrrolidon (NMP); và N,N-dimethyl formamit (DMF).

Bảng 4 minh họa mối quan hệ giữa các tỷ lệ (3R) là khoảng 30% và suất đàn hồi của các vật dụng được đúc nhựa. Nên lưu ý là mẫu 00 trong bảng 4 là mẫu trống trong đó không có tiền chất được nhào trộn, các mẫu 11 và 12 có các tỷ lệ (3R) 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

| Mẫu số                                                   | 00  | 1     | 11    | 12    | 2     | 21    | 3     | 4     |
|----------------------------------------------------------|-----|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| P3/(P3+P4)                                               | -   | 23%   | 25%   | 28%   | 31%   | 35%   | 38%   | 42%   |
| Suất đàn hồi (MPa)<br>(Trung bình trong 5 lần)           | 175 | 197   | 196   | 199   | 231   | 249   | 263   | 272   |
| Sự khác biệt với chỗ trống                               | -   | 12,4% | 12,0% | 13,9% | 31,7% | 42,1% | 50,0% | 55,6% |
| Các lớp dưới 10 khi hệ phân tán trong NMP<br>(Tham khảo) | -   | 10%   | 12%   | 25%   | 25%   | 30%   | 38%   | 62%   |

Fig.18 và bảng 4 chứng minh rằng sự khác nhau của mô đun đàn hồi đối với mô đun của mẫu 00 (mẫu trống) (làm tăng lên tỷ lệ của mô đun đàn hồi) có độ đồng đều xấp xỉ khoảng 10% đến khi tỷ lệ (3R) đạt 31%; sau khi tỷ lệ (3R) đạt 31%, sự khác nhau tăng mạnh đến 32%; trong khi tỷ lệ (3R) tăng lên từ 31% đến 42%, sự khác nhau tăng lên đều đều đến 50%; và sau khi tỷ lệ (3R) đạt 42%, sự khác nhau tăng nhẹ và hội tụ đến khoảng 60%. Theo cách này, khi tỷ lệ (3R) là 31% hoặc nhiều hơn, vật dụng được đúc nhựa có 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 được đúc nhựa là 0,5% trọng lượng, mà là nhỏ, ảnh hưởng lên các đặc tính mà nhựa có ban đầu là nhỏ.

Được xem xét là khuynh hướng này là do sự tăng mạnh trong vật liệu cacbon gốc graphit mỏng chứa graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn tiếp xúc với nhựa sau khi tỷ lệ (3R) đạt 31%. Ở đây, trong ví dụ 5, không thể xác định số các lớp của graphen bởi sự quan sát với TEM do ảnh hưởng của chất phân tán được sử dụng cho hệ phân tán trong nước. Khi đó, chỉ để tham khảo, lý do cho việc tăng mạnh được mô tả ở trên được xem xét dựa trên sự phân bố của số lượng của các lớp của 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 được phát hiện ra là cả hai tỷ lệ của graphen (số các lớp là 10 hoặc nhỏ hơn) là 25%. Mặt khác, như được minh họa trên Fig.19, đối với mẫu 2, tỷ lệ của các mẫu mỏng có nhỏ hơn 15 các lớp là lớn hơn khi 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, mà nghĩa là diện tích của nó tiếp xúc với nhựa được tăng mạnh.

Theo cách này, ví dụ 5 chỉ ra rõ ràng là khi tỷ lệ (3R) là 31% hoặc nhiều hơn, vật liệu cacbon gốc graphit được sử dụng làm tiền thân graphen có xu hướng tách rời vào trong graphen có 10 lớp hoặc nhỏ hơn và vật liệu cacbon gốc graphit mỏng.

#### Ví dụ 6

Các thử nghiệm được thực hiện để thu được điện cực dương của pin thứ cấp li-ion sử dụng tiền thân graphen được sản xuất bởi các phương pháp ở trên.

#### Các điều kiện khác nhau

Dung môi: NMP (N-methylpyrrolidon) (lớp pin được sản xuất bởi Mitsubishi Chemical Corp.),

Chất trợ dẫn (vật liệu dẫn): Axetylen đen (HS-100 được sản xuất bởi Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha, đường kính hạt trung bình là 48nm, mật độ khối là 0,15g/ml, hàm lượng tro là 0,01%),

Vật liệu cacbon gốc graphit: Tiền thân graphen (được sản xuất bởi phương pháp ở trên),

Chất kết dính: PVdF (PolyVinyliden) (SolefTA5130 được sản xuất bởi Solvay),

Vật liệu hoạt tính làm điện cực dương (vật liệu nền): NCM Li ( $\text{Ni}_{1/3}$ ,  $\text{Co}_{1/3}$ ,  $\text{Mn}_{1/3}$ ) $\text{O}_2$ ) được sản xuất bởi Mitsui Mining & Smelting Co., Ltd. (Đường kính hạt trung bình là  $30\mu\text{m}$ ),

Thiết bị xử lý siêu âm (UP100S được sản xuất bởi Hielscher Ultrasonics GmbH),

Điều kiện xử lý: 20kHz, 100 W

Điều kiện phân tán 1: Giống như phương pháp điều chế của hệ phân tán của được tróc các tiền thân graphen trong ví dụ 1 (Fig.8). Việc áp dụng các điều kiện của các sóng siêu âm và các vi sóng cũng giống nhau.

Máy trộn (ARE-310 được sản xuất bởi THINKY),

Điều kiện trộn 1: Nhiệt độ bình thường là  $25^\circ\text{C}$ , việc trộn ở 2,000 vòng/phút x 10 phút

Điều kiện trộn 2: Nhiệt độ bình thường là  $25^\circ\text{C}$ , việc trộn ở 2,000 vòng/phút x 10 phút, bước khử bọt sau khi việc trộn ở 2,100 vòng/phút x 30 giây,

Màng phân cách (2400 được sản xuất bởi Celgard, LLC., độ dày tấm là  $25\mu\text{m}$ , vật liệu: PP (polypropylen)),

Dung dịch điện phân: EC (etylen carbonat) chứa 1,0 mol/L của  $\text{LiPF}_6$  (lithi hexafluorophosphat): DEC (dietyl carbonat) (7:3 % thể tích) (được sản xuất bởi Kishida Chemical Co., Ltd.),

Lá lithi (điện cực âm): (được sản xuất bởi Honjo Metal Co., Ltd., độ dày là 0,2 mm)

#### Quy trình thử nghiệm

Bước 1. Đến NMP (90 g), 10 g của các tiền thân graphen (xem các mẫu 1, 2, 21, và 4 (các mẫu được sử dụng trong các ví dụ 1 và 5)) được bổ sung, và, dưới điều kiện phân tán 1, các tiền thân graphen bị tróc và được phân tán để thu được hệ phân tán là 10% trọng lượng về nồng độ.

Bước 2. Sự phân tán (20 g), PVdF (4 g), và axetylen đen (6 g) được bổ sung và được trộn dưới điều kiện trộn 1 để thu được 30 g của hỗn hợp 1.

Bước 3. Đến hỗn hợp 1, các vật liệu hoạt tính làm điện cực dương được bổ sung ở

tỷ lệ được thể hiện trong bảng 5 và được trộn dưới điều kiện trộn 2 để thu được hỗn hợp 2.

Bước 4. Hỗn hợp 2 được phủ lên lá nhôm đến độ dày màng là 0,25 mm, và vật liệu phủ được làm khô chân không ở 100°C và được nén ở áp suất là 1,5 MPa để thu được điện cực dương có độ dày cho trước.

Bước 5. Điện cực dương được đục thành hình dạng có đường kính là 15 mm.

Bước 6. Lá lithi được nén và được cố định vào tấm thép không gỉ hoạt động như điện cực âm, màng phân cách, dung dịch điện phân, và điện cực dương được xếp chồng theo thứ tự này, và sản phẩm xếp chồng được gắn lên tế bào HS được làm bằng thép không gỉ được sản xuất bởi Hohsen Corp.

Bước 7. Sự đánh giá đặc tính điện hóa của tế bào HS được thực hiện dưới các điều kiện kiểm tra sau đây.

Nên lưu ý là, trong các quy trình ở trên, việc chuyển sang bước tiếp theo được thực hiện liên tiếp mà không có thời gian chờ. Điều tương tự được áp dụng cho các ví dụ sau đây.

Các điều kiện kiểm tra

Việc sạc ban đầu: sạc CC-CV 0,2 C (0,01 C cắt)

Việc xả ban đầu: xả CC 0,2 C

Môi trường lắp ráp: 25°C, điểm sương là -64°C dưới môi trường agon (bên trong của hộp dụng cụ)

Phạm vi điện áp: 2,75 V đến 4.5 V vs. Li/Li<sup>+</sup>

Thiết bị đo: BTS2004W được sản xuất bởi Nagano Co., Ltd.

Lưu ý là bước nạp CC-CV chỉ bước nạp điện áp không đổi/dòng không đổi và bước xả CC chỉ bước xả dòng không đổi, trong khi 0,2 C là tốc độ sạc/xả trong thời gian 5 giờ và ngưỡng 0,01 C biểu diễn điều kiện ngưỡng.

Hơn nữa, để xác nhận hiệu quả của vật liệu dạng graphen, các thử nghiệm được thực hiện với tỷ lệ (3R) là 23% (mẫu 1), 31% (mẫu 2), 35% (mẫu 21), và 42% (mẫu 4) có tỷ lệ trộn được thể hiện trong bảng 5.

Bảng 5

|                   | Tỷ lệ hỗn hợp (% trọng lượng) |    |      |                               |                               |                                |                               |
|-------------------|-------------------------------|----|------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------------------|-------------------------------|
|                   | NCM                           | AB | PVdF | Tiền thân graphen             |                               |                                |                               |
|                   |                               |    |      | Tỷ lệ (3R)<br>=23%<br>(mẫu 1) | Tỷ lệ (3R)<br>=31%<br>(mẫu 2) | Tỷ lệ (3R)<br>=35%<br>(mẫu 21) | Tỷ lệ (3R)<br>=42%<br>(mẫu 4) |
| Ví dụ 6-1         | 94                            | 3  | 2    | -                             | 1                             | -                              | -                             |
| Ví dụ 6-2         | 94                            | 3  | 2    | -                             | -                             | 1                              | -                             |
| Ví dụ 6-3         | 94                            | 3  | 2    | -                             | -                             | -                              | 1                             |
| Ví dụ so sánh 6-1 | 94                            | 3  | 2    | 1                             | -                             | -                              | -                             |
| Ví dụ so sánh 6-2 | 95                            | 3  | 2    | -                             | -                             | -                              | -                             |
| Ví dụ so sánh 6-3 | 95                            | -  | 2    | -                             | 3                             | -                              | -                             |

Từ bảng 5 và Fig.20, các ví dụ 6-1, 6-2, 6-3, ví dụ so sánh 6-1, và ví dụ so sánh 6-2 trong đó vật liệu dạng graphen không được phân tán được chỉ ra xu hướng tương tự trong đặc tính sạc khi việc sạc được thực hiện đến khả năng sạc là 4,5 V ở tỷ lệ là 0,2 C. Các ví dụ 6-1, 6-2, và 6-3, đặc biệt ví dụ 6-3 bằng sự so sánh, được ưu tiên hơn do điện áp sạc được tăng nhanh. Ngược lại, hoạt động sạc bị lỗi được quan sát trong ví dụ so sánh 6-3. Được suy đoán rằng điều này là do đường dẫn đường dẫn không thể được tạo ra bởi các hạt nano như chỉ một mình vật liệu dạng graphen mà không có các vật liệu ở hình dạng dạng chuỗi như axetylen đen.

Hơn nữa, đối với đặc tính xả, quan sát thấy các ví dụ 6-1, 6-2, và 6-3 có khả năng kết thúc nạp cao hơn các ví dụ so sánh 6-1 và 6-2. Quan sát được thêm là các ví dụ 6-1, 6-2, 6-3, và ví dụ so sánh 6-1, trong tất cả vật liệu dạng graphen được phân tán, có công suất lớn hơn ví dụ so sánh 6-2, mà vật liệu dạng graphen không được phân tán. Quan sát được là công suất được tăng lên đáng kể đặc biệt trong các ví dụ 6-1, 6-2, và 6-3. Mặt khác, hoạt động xả bị lỗi được quan sát trong ví dụ so sánh 6-3.

Bằng cách sử dụng vật liệu dạng graphen được tróc từ các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn (các ví dụ 6-1, 6-2, và 6-3) cùng với AB, được xác nhận là pin tạo ra có khả năng kết thúc sạc cao và có tính ưu việt về đặc tính xả của điện cực dương. Đặc biệt, từ Fig.20, được xác nhận là khả năng kết thúc sạc thể hiện xu hướng tăng mạnh sau khi tỷ lệ (3R) đã đạt 31%. Được suy đoán rằng, như được thể hiện trên Fig.21, giữa các vật liệu hoạt tính làm điện cực dương 52 và 52, có đường kính hạt là vài chục  $\mu\text{m}$ , tồn tại các chất trợ dẫn AB53, 53,  $\cdot\cdot$ , 53, được tạo ra ở hình dạng dạng chuỗi, có đường kính mặt cắt ngang là vài chục nm, và vật liệu dạng graphen 54 (ví dụ, độ dày là 50 nm hoặc nhỏ hơn, kích thước là 100 nm to 5  $\mu\text{m}$ ) được phân tán lẫn lộn+ giữa vật liệu hoạt tính làm điện cực dương 52 và AB53, AB53 và AB53, lá nhôm 51 và vật liệu hoạt tính làm điện cực dương 52, và lá nhôm 51 và AB53. Ngoài ra, do vật liệu dạng graphen 54 ở hình dạng phẳng và dẻo khi so với các vật liệu khác như lá nhôm 51, vật liệu hoạt tính làm điện cực dương 52, và AB53, được xem là lá nhôm 51, vật liệu hoạt tính làm điện cực dương 52, và AB53 được đưa vào tiếp xúc gần với nhau qua vật liệu dạng graphen 54, vì vậy các đặc tính xả của điện cực dương được cải thiện. Ngược lại, trong các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) là nhỏ hơn 31% (ví dụ so sánh 6-1), được xem là lượng vật liệu dạng graphen that được phân tán là quá nhỏ để hiệu quả bổ sung vật liệu dạng graphen không được tác dụng đủ.

Đối với tỷ lệ (3R) là các tiền thân graphen tăng lên đến 35% (ví dụ 6-2) và 42% (ví dụ 6-3), các đặc tính xả và công suất của điện cực dương được cải thiện khi so với trường hợp của tỷ lệ (3R) bằng hoặc thấp hơn đó. Điều này là do, được xem là, khi so với trường hợp của tỷ lệ (3R) là 31% (ví dụ 6-1), số lượng và diện tích tiếp xúc của vật liệu dạng graphen 54, mà đưa lá nhôm 51, vật liệu hoạt tính làm điện cực dương 52, và AB53 vào trong tiếp xúc với nhau, được tăng lên.

Hơn nữa, do các tiền thân graphen được sản xuất bởi việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến và/hoặc việc xử lý dựa trên lực vật lý như được mô tả ở trên, không cần thực hiện việc xử lý oxy hóa/phục hồi khử. Hơn nữa, do xử lý phục hồi khử không cần thiết để tạo ra điện cực dương, nhiệt độ cao không được yêu cầu, vì vậy điện cực dương được sản xuất dễ dàng. Ngoài ra, điện cực dương được sản xuất dưới các điều kiện nhào 1 và 2 cũng như bằng cách làm khô chân không, vì vậy việc sản xuất của nó là đơn giản.

Hơn nữa, trước khi được nhào trộn vào trong các vật liệu hoạt tính làm điện cực dương 52, hệ phân tán trong đó vật liệu dạng graphen được phân tán dưới điều kiện phân tán 1 được nhào trộn vào trong AB53, vì vậy vật liệu dạng graphen 54 và AB53 được trộn kỹ bởi điều kiện nhào trộn 1. Hỗn hợp sau đó được nhào trộn vào trong các vật liệu hoạt tính làm điện cực dương 52, để vật liệu dạng graphen 54 được phân tán đều.

Nên lưu ý là, trong hệ phân tán thu được ở bước 1, các vật liệu được trích từ các tiền thân graphen được phân tán. Như được mô tả ở trên, một phần hoặc toàn bộ của các tiền thân graphen được trích để tạo ra vật liệu được trộn chứa vật liệu từ các tiền thân graphen đến graphen, mà được gọi là “vật liệu dạng graphen”. Vật liệu dạng graphen được phân tán trong hệ phân tán không được minh họa, tuy nhiên, có thể được quan sát bởi kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) theo cùng cách như graphen được thể hiện trên Fig.10.

Để tham khảo, sự giải thích được đưa ra trên các hình ảnh đã chụp của các tiền thân graphen được thực hiện bởi kính hiển vi quét điện tử (SEM). Các tiền chất của graphen thu được trong ví dụ 1 là lớp của graphit vảy có chiều dài là 7  $\mu\text{m}$  và độ dày là 0,1  $\mu\text{m}$  như được thể hiện ví dụ trên các Fig. 22 và 23.

#### Ví dụ 7

Các thử nghiệm được thực hiện để thu được điện cực dương của pin thứ cấp li-ion sử dụng các tiền thân graphen được sản xuất trong các phương pháp ở trên.

Trong ví dụ 7, các ống nano cacbon được sử dụng làm vật liệu dẫn và các thử nghiệm được thực hiện với tỷ lệ trộn trong bảng 6. Phần còn lại là giống với trong ví dụ 6.

#### Các điều kiện khác nhau

Ống nano cacbon: VGCF-H được sản xuất bởi Showa Denko K.K. (đường kính sợi là 150 nm, chiều dài sợi là 10 đến 20  $\mu\text{m}$ )

Bảng 6

Như được thể hiện trên Fig.24, xu hướng tương tự với ví dụ 6 được quan sát. Bằng cách sử dụng các ống nano cacbon, các đặc điểm sạc và xả được cải thiện một chút tổng thể so với trường hợp của sử dụng AB.

|                   | Tỷ lệ hỗn hợp (% trọng lượng) |                |          |                               |                               |                                |                               |
|-------------------|-------------------------------|----------------|----------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------------------|-------------------------------|
|                   | NC<br>M                       | VG<br>CF-<br>H | PVd<br>F | Tiền thân graphen             |                               |                                |                               |
|                   |                               |                |          | Tỷ lệ (3R)<br>=23%<br>(mẫu 1) | Tỷ lệ (3R)<br>=31%<br>(mẫu 2) | Tỷ lệ (3R)<br>=35%<br>(mẫu 21) | Tỷ lệ (3R)<br>=42%<br>(mẫu 4) |
| Ví dụ 7-1         | 94                            | 3              | 2        | -                             | 1                             | -                              | -                             |
| Ví dụ 7-2         | 94                            | 3              | 2        | -                             | -                             | 1                              | -                             |
| Ví dụ 7-3         | 94                            | 3              | 2        | -                             | -                             | -                              | 1                             |
| Ví dụ so sánh 7-1 | 94                            | 3              | 2        | 1                             | -                             | -                              | -                             |
| Ví dụ so sánh 7-2 | 95                            | 3              | 2        | -                             | -                             | -                              | -                             |

Ví dụ 8

Các thử nghiệm được thực hiện để thu được điện cực dương của pin thứ cấp li-ion sử dụng các tiền thân graphen được sản xuất trong các phương pháp ở trên.

Trong ví dụ 8, tỷ lệ trộn của các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) là 31% đến các vật liệu dẫn được thay đổi dưới các điều kiện được thể hiện trong bảng 7 để thực hiện các thử nghiệm. Phần còn lại là giống với trong ví dụ 6.

Bảng 7

|           | Tỷ lệ hỗn hợp (% trọng lượng) |        |          |                           |
|-----------|-------------------------------|--------|----------|---------------------------|
|           | NCM                           | A<br>B | PVd<br>F | Tiền thân graphen         |
|           |                               |        |          | Tỷ lệ (3R)=31%<br>(mẫu 2) |
| Ví dụ 6-1 | 94                            | 3      | 2        | 1                         |
| Ví dụ 8-1 | 93                            | 3      | 2        | 2                         |
| Ví dụ 8-2 | 92                            | 3      | 2        | 3                         |
| Ví dụ 8-3 | 91                            | 3      | 2        | 4                         |
| Ví dụ 8-4 | 90                            | 3      | 2        | 5                         |

|                   |       |   |   |      |
|-------------------|-------|---|---|------|
| Ví dụ 8-5         | 94,5  | 3 | 2 | 0,5  |
| Ví dụ 8-6         | 94,9  | 3 | 2 | 0,1  |
| Ví dụ 8-7         | 94,95 | 3 | 2 | 0,05 |
| Ví dụ so sánh 6-2 | 95    | 3 | 2 | -    |

Như được thể hiện trên Fig.25, khi tỷ lệ trộn của các tiền thân graphen so với các vật liệu dẫn lớn hơn 1 (ví dụ 8-2), chủ yếu tương tự xu hướng trong các đặc điểm sọc và xả được quan sát, thể hiện mà đặc điểm được bão hòa. Hơn nữa, khi tỷ lệ trộn của các tiền thân graphen là 10 hoặc nhiều hơn, tác động lên các đặc tính của các vật liệu nền trở nên đáng kể. Mặt khác, khi tỷ lệ trộn nhỏ hơn 1/50 (ví dụ 8-7), xu hướng hầu hết tương tự được quan sát đến trường hợp mà các tiền thân graphen không được trộn (ví dụ so sánh 6-2), và khi tỷ lệ trộn là 1/10 hoặc lớn hơn (ví dụ 8-6), sự cải thiện của các đặc điểm sọc và xả được quan sát. Dựa trên những điều này, giới hạn dưới của tỷ lệ trộn là 1/50 hoặc nhiều hơn, tốt hơn là 1/10 hoặc nhiều hơn, và giới hạn trên của nó là 10 hoặc nhỏ hơn, tốt hơn là 1 hoặc nhỏ hơn.

#### Ví dụ 9

Tiếp theo, các thử nghiệm được thực hiện để thu được vật dụng được đúc nhựa sử dụng các tiền thân graphen được sản xuất trong các phương pháp ở trên.

#### Các điều kiện khác nhau

##### Các vật liệu

Nhựa: LLDPE (polyetylen: 20201J được sản xuất bởi Prime Polyme Co., Ltd.),

Dung môi: Nước (nước trao đổi ion),

Chất phân tán: 1% trọng lượng (các chất hoạt tính bề mặt dạng không ion),

Thiết bị xử lý siêu âm (UP100S được sản xuất bởi Hielscher Ultrasonics GmbH),

Điều kiện xử lý: 20 kHz, 100 W

Điều kiện phân tán 2: Các tiền thân graphen được trộn với nước trao đổi ion cùng với 1% trọng lượng của chất phân tán (các chất hoạt tính bề mặt dạng không ion), và hỗn hợp được xử lý với thiết bị đã nêu được thể hiện trên Fig.8 được hoạt động dưới cùng điều kiện để thu được hệ phân tán có 10% trọng lượng của vật liệu dạng graphen.

Máy nhào trộn

Máy nhào trộn: Máy nhào loại nén WDS7-30 được sản xuất bởi Moriyama Co., Ltd.,

Nhiệt độ nhào: 135°C,

Tốc độ quay rôto: 30 vòng/phút,

Thời gian xử lý: 15 phút,

Tỷ lệ hỗn hợp: Nhựa 5,340 g, AB (HS-100) 600 g, hệ phân tán 600 g (60 g về vật liệu dạng graphen),

Trị số điện trở khối

Mẫu thử:  $\phi 100$  mm x t3 mm (ASTM D257),

Thiết bị đo: Thân thiết bị (R-503 được sản xuất bởi Kawaguchi Electric Works Co., Ltd), thiết bị điện cực (P-616 được sản xuất bởi Kawaguchi Electric Works Co., Ltd),

Điện áp sử dụng: 500 V,

Dòng điện được đo 1 phút sau khi áp dụng điện áp,

Độ dẫn nhiệt

Mẫu thử:  $\phi 50$  mm x t3 mm (ASTM E1530),

Thiết bị đo: UNITHERM 2021 được sản xuất bởi ANTER Corp.

Quy trình thử nghiệm

Bước 1. Bằng cách sử dụng các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) khác nhau như được thể hiện trong bảng 8, hệ phân tán thu được dưới điều kiện phân tán 2.

Bước 2. Sự phân tán thu được ở bước 1 và nhựa được đặt trong máy nhào loại nén và được nhào với tỷ lệ trộn được mô tả ở trên.

Bước 3. Hỗn hợp đã nhào trộn thu được ở bước 2 được tạo thành mẫu thử theo ASTM D257 bởi máy ép phun và thay đổi trong các trị số điện trở khối được quan sát.

Bước 4. Hỗn hợp đã nhào trộn thu được ở bước 2 được tạo thành mẫu thử theo ASTM E1530 bởi máy ép phun, và thay đổi trong độ dẫn nhiệt được quan sát bởi phương pháp thông thường.

Bảng 8

|                   | Tỷ lệ hỗn hợp (% trọng lượng) |        |                               |                               |                                |                               | Điện trở khối<br>(Ωcm) | Độ dẫn nhiệt<br>(W/mK) |
|-------------------|-------------------------------|--------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------------------|-------------------------------|------------------------|------------------------|
|                   | LLDP<br>E                     | A<br>B | Tiền thân graphen             |                               |                                |                               |                        |                        |
|                   |                               |        | Tỷ lệ (3R)<br>=23%<br>(mẫu 1) | Tỷ lệ (3R)<br>=31%<br>(mẫu 2) | Tỷ lệ (3R)<br>=35%<br>(mẫu 21) | Tỷ lệ (3R)<br>=42%<br>(mẫu 4) |                        |                        |
| Ví dụ 9-1         | 89                            | 10     | -                             | 1                             | -                              | -                             | 8,9 x 10 <sup>6</sup>  | 5,2                    |
| Ví dụ 9-2         | 89                            | 10     | -                             | -                             | 1                              | -                             | 5,5 x 10 <sup>6</sup>  | 5,7                    |
| Ví dụ 9-3         | 89                            | 10     | -                             | -                             | -                              | 1                             | 3,4 x 10 <sup>6</sup>  | 6,8                    |
| Ví dụ so sánh 9-1 | 89                            | 10     | 1                             | -                             | -                              | -                             | 3,0 x 10 <sup>10</sup> | 1,2                    |
| Ví dụ so sánh 9-2 | 90                            | 10     | -                             | -                             | -                              | -                             | 2,7 x 10 <sup>10</sup> | 1,1                    |
| Ví dụ so sánh 9-3 | 99                            | -      | -                             | 1                             | -                              | -                             | 7,8 x 10 <sup>17</sup> | 0,4                    |
| Ví dụ so sánh 9-4 | 100                           | -      | -                             | -                             | -                              | -                             | 5,4 x 10 <sup>18</sup> | 0,32                   |

Từ bảng 8, các ví dụ 9-1, 9-2, và 9-3, tất cả có điện trở khối thấp và có tính ưu việt về độ dẫn điện.

Hơn nữa quan sát thấy độ dẫn nhiệt cao hơn đáng kể trong các ví dụ 9-1, 9-2, và 9-3 so với trong các ví dụ so sánh 9-1, 9-2, 9-3, và 9-4.

Khi vật liệu dạng graphen được trích từ các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn (các ví dụ 9-1, 9-2, và 9-3) được sử dụng cùng với AB, được xác nhận là điện trở khối và độ dẫn nhiệt được cải thiện. Đặc biệt, từ bảng 8, được xác nhận là điện trở khối và độ dẫn nhiệt thể hiện xu hướng cải thiện mạnh sau khi tỷ lệ (3R) đã đạt 31%. Được xem xét là điều này là do các lý do sau: theo cùng nguyên lý như trong ví dụ 6, AB có đường kính mặt cắt ngang của vài trăm nm đến vài  $\mu\text{m}$  tồn tại giữa các phân tử cao của LLDPE. Được suy đoán rằng vật liệu dạng graphen được phân tán lần lượt giữa LLDPE và AB, AB và AB, và LLDPE và LLDPE. Do vật liệu dạng graphen ở hình dạng phẳng và dẻo khi so với các vật liệu khác như LLDPE và AB, được xem là LLDPE và AB được đưa vào tiếp xúc gần với nhau qua vật liệu dạng graphen, vì vậy điện trở khối và độ dẫn nhiệt được cải thiện. Ngược lại, khi tỷ lệ (3R) nhỏ hơn 31% (ví dụ so sánh 9-1), được xem là lượng vật liệu dạng graphen mà được phân tán là quá nhỏ để hiệu quả phân tán vật liệu dạng graphen không được tác dụng đủ.

Đối với tỷ lệ (3R) tăng lên đến 35% (ví dụ 9-2) và 42% (ví dụ 9-3), điện trở khối và độ dẫn nhiệt được cải thiện khi so với trường hợp của tỷ lệ (3R) bằng hoặc thấp hơn đó. Điều này là do, được xem là, khi so với trường hợp của tỷ lệ (3R) là 31% (ví dụ 9-1), số lượng và diện tích tiếp xúc của vật liệu dạng graphen, mà đưa LLDPE và AB vào trong tiếp xúc với nhau, được tăng lên.

Nên lưu ý là, trong hệ phân tán thu được ở bước 1, các vật liệu được trích từ các tiền thân graphen được phân tán. Như được mô tả ở trên, một phần hoặc toàn bộ của các tiền thân graphen được trích để tạo ra vật liệu được trộn chứa từ các tiền thân graphen thành graphen, mà được gọi là “vật liệu dạng graphen”. Vật liệu dạng graphen được phân tán trong hệ phân tán không được minh họa, tuy nhiên, chúng có thể được quan sát bởi kính hiển vi điện tử truyền qua (TEM) theo cùng cách như graphen được thể hiện trên Fig.10.

Hơn nữa, vật liệu dạng graphen được phân tán trong nhựa có thể được quan sát bởi kính hiển vi quét điện tử (SEM) và tương tự sau khi được tạo thành mẫu thử và cắt bởi cưa chính xác tốc độ cao (TechCut5 được sản xuất bởi Allied High Tech Products, Inc.) và thiết bị tương tự. Ví dụ, Fig.26 thể hiện mặt cắt ngang của nhựa trong đó các ống nano cacbon và vật liệu dạng graphen được phân tán, mà các ống nano cacbon được biểu diễn bởi các phần đường thẳng và vật liệu dạng graphen được biểu diễn bởi các phần đốm trắng. Vật liệu dạng graphen này là lớp của graphit vảy có độ dày là 3,97 nm như được thể hiện ví dụ trên Fig.27.

#### Ví dụ 10

Tiếp theo, các thử nghiệm được thực hiện để thu được vật dụng được đúc nhựa sử dụng các tiền thân graphen được sản xuất trong các phương pháp ở trên.

Các thử nghiệm được thực hiện với tỷ lệ trộn của các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) là 31% đến các vật liệu dẫn dưới các điều kiện được thể hiện trong bảng 9.

Các điều kiện khác nhau

Các vật liệu

Nhựa: LLDPE (polyetylen: 20201J được sản xuất bởi Prime Polyme Co., Ltd.),

Các chất tương thích: KAYABRID 006PP (PP được biến đổi maleic anhydrit được sản xuất bởi Kayaku Akzo Corp.),

Axetylen đen (HS-100 được sản xuất bởi Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha, đường kính hạt trung bình là 48 nm, mật độ khối là 0,15 g/ml, hàm lượng tro là 0,01%),

Máy đùn hai trục

Máy đùn hai trục: HYPERKTX 30 được sản xuất bởi Kobe Steel, Ltd.,

Nhiệt độ nhào: 135°C,

Tốc độ quay trục vít: 100 vòng/phút,

Trị số điện trở khối

Mẫu thử:  $\phi 100$  mm x t3 mm (ASTM D257),

Thiết bị đo: Thân thiết bị (R-503 được sản xuất bởi Kawaguchi Electric Works Co., Ltd), thiết bị điện cực (P-616 được sản xuất bởi Kawaguchi Electric Works Co., Ltd),

Điện áp sử dụng: 500 V,

Dòng điện được đo 1 phút sau khi áp dụng điện áp,

Độ dẫn nhiệt

Mẫu thử:  $\varnothing 50$  mm x t3 mm (ASTM E1530),

Thiết bị đo: UNITHERM 2021 được sản xuất bởi ANTER Corp.

Quy trình thử nghiệm

Bước 1. Các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) khác nhau như được thể hiện trong bảng 9 và chất tương thích được nhào bởi máy đùn hai trục để thu được hỗn hợp 1 chứa 40% trọng lượng của vật liệu dạng graphen. Nên lưu ý là các tiền thân graphen trở thành vật liệu dạng graphen trong quá trình xử lý nhào.

Bước 2. Trong cùng máy đùn hai trục, hỗn hợp 1 thu được ở bước 1, nhựa, và AB được nhào với tỷ lệ trộn được thể hiện trong bảng 9.

Bước 3. Hỗn hợp đã nhào trộn thu được ở bước 2 được tạo thành mẫu thử theo ASTM D257 bởi máy ép phun và thay đổi trong các trị số điện trở khối được quan sát.

Bước 4. Hỗn hợp đã nhào trộn thu được ở bước 2 được tạo thành mẫu thử theo ASTM E1530 bởi máy ép phun và thay đổi trong độ dẫn nhiệt được quan sát bởi phương pháp thông thường.

Nên lưu ý là điện trở khối và độ dẫn nhiệt được gây ra bởi chất tương thích là không khác biệt đáng kể với điện trở khối và độ dẫn nhiệt của nhựa hoạt động như vật liệu nền, vì vậy chúng không được xem xét trong các phương án sáng chế.

Bảng 9

|                     | Tỷ lệ hỗn hợp(% trọng lượng) |    |                              | Điện trở khối<br>( $\Omega\text{cm}$ ) | Độ dẫn nhiệt<br>(W/mK) |
|---------------------|------------------------------|----|------------------------------|----------------------------------------|------------------------|
|                     | LLDPE<br>(chất tương thích)  | AB | Tiền thân<br>graphen         |                                        |                        |
|                     |                              |    | Tỷ lệ<br>(3R)=31%<br>(mẫu 2) |                                        |                        |
| Ví dụ 10-1          | 89(1,5)                      | 10 | 1                            | $9,5 \times 10^6$                      | 5,3                    |
| Ví dụ 10-2          | 87(4,5)                      | 10 | 3                            | $1,5 \times 10^6$                      | 5,9                    |
| Ví dụ 10-3          | 85(7,5)                      | 10 | 5                            | $4,2 \times 10^5$                      | 6,2                    |
| Ví dụ 10-4          | 82(12)                       | 10 | 8                            | $1,5 \times 10^5$                      | 6,8                    |
| Ví dụ 10-5          | 80(15)                       | 10 | 10                           | $9,8 \times 10^4$                      | 7,0                    |
| Ví dụ 10-6          | 75(22,5)                     | 10 | 15                           | $9,2 \times 10^4$                      | 7,1                    |
| Ví dụ 10-7          | 89,5(0,75)                   | 10 | 0,5                          | $8,9 \times 10^7$                      | 3,1                    |
| Ví dụ so sánh 10-8  | 89,7(0,45)                   | 10 | 0,3                          | $5,6 \times 10^9$                      | 2,0                    |
| Ví dụ so sánh 10-9  | 89,9(0,15)                   | 10 | 0,1                          | $2,5 \times 10^{10}$                   | 1,3                    |
| Ví dụ so sánh 9-2   | 90(0)                        | 10 | -                            | $2,7 \times 10^{10}$                   | 1,1                    |
| Ví dụ so sánh 9-4   | 100(0)                       | -  | -                            | $5,4 \times 10^{18}$                   | 0,32                   |
| Ví dụ so sánh 10-10 | 100(25)                      | -  | -                            | $5,5 \times 10^{18}$                   | 0,31                   |

Như được thể hiện trong bảng 9, khi tỷ lệ trộn của các tiền thân graphen so với các vật liệu dẫn là lớn hơn 1 (ví dụ 10-5), quan sát thấy điện trở khối và độ dẫn nhiệt nằm ở hầu hết các trị số giống nhau và các đặc điểm của chúng trở nên bị bão hòa. Hơn nữa, khi tỷ lệ trộn của các tiền thân graphen là 10 hoặc nhiều hơn, tác động lên các đặc tính của các vật liệu nền trở nên đáng kể. Mặt khác, khi tỷ lệ trộn nhỏ hơn 1/50 (ví dụ so sánh 10-9), quan sát thấy điện trở khối và độ dẫn nhiệt là hầu như giống với trường hợp mà các tiền thân graphen không được trộn (ví dụ so sánh 9-2). Dựa trên những điều này, giới hạn dưới của tỷ lệ trộn là 1/50 hoặc nhiều hơn, tốt hơn là 1/10 hoặc nhiều hơn, và giới hạn trên của nó là 10 hoặc nhỏ hơn, tốt hơn là 1 hoặc nhỏ hơn.

Ví dụ 11

Tiếp theo, các thử nghiệm được thực hiện để thu được vật dụng được đúc nhựa sử dụng các tiền thân graphen được sản xuất trong các phương pháp ở trên.

Trong ví dụ 11, vật liệu dẫn được sử dụng cho mixing với các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) là 31% được thay đổi và hiệu quả được gây ra bởi hình dạng của vật liệu dẫn được xác nhận. Phần còn lại là giống với trong ví dụ 9.

Như được thể hiện trên Fig.28, axetylen đen (AB), loại cacbon đen, hoạt động như vật liệu dẫn, is dạng sợi hoặc hình dạng như chuỗi thẳng, có đường kính là vài chục nm và chiều dài là từ vài đến vài chục  $\mu\text{m}$ . Các sợi cacbon (CF - carbon fiber) có hình dạng tuyến tính có đường kính là vài chục  $\mu\text{m}$  và chiều dài là vài trăm của  $\mu\text{m}$ . Các hạt kim loại có đường kính là vài chục nm đến vài  $\mu\text{m}$ .

Bảng 10

|                    | Tỷ lệ hỗn hợp(% trọng lượng) |    |    |                       |                        | Điện trở khối<br>( $\Omega\text{cm}$ ) | Độ dẫn nhiệt<br>(W/mK) |
|--------------------|------------------------------|----|----|-----------------------|------------------------|----------------------------------------|------------------------|
|                    | LLDPE                        | AB | CF | Các hạt nano kim loại | Tiền thân graphen      |                                        |                        |
|                    |                              |    |    |                       | Tỷ lệ (3R)=31% (mẫu 2) |                                        |                        |
| Ví dụ 9-1          | 89                           | 10 | -  | -                     | 1                      | $8,9 \times 10^6$                      | 5,2                    |
| Ví dụ 11-1         | 89                           | -  | 10 | -                     | 1                      | $4,5 \times 10^4$                      | 7,5                    |
| Ví dụ 11-2         | 89                           | -  | -  | 10                    | 1                      | $7,5 \times 10^{15}$                   | 0,85                   |
| Ví dụ so sánh 9-2  | 90                           | 10 | -  | -                     | -                      | $2,7 \times 10^{10}$                   | 1,1                    |
| Ví dụ so sánh 11-1 | 90                           | -  | 10 | -                     | -                      | $5,2 \times 10^8$                      | 2,2                    |
| Ví dụ so sánh 11-2 | 90                           | -  | -  | 10                    | -                      | $4,8 \times 10^{16}$                   | 0,41                   |
| Ví dụ so sánh 9-4  | 100                          | -  | -  | -                     | -                      | $5,4 \times 10^{18}$                   | 0,32                   |

Như được thể hiện trong bảng 10, cả hai ví dụ 9-1 mà AB được bổ sung và ví dụ 11-1 mà CF được bổ sung có tính ưu việt về điện trở khối và độ dẫn nhiệt. Ngược lại, ví dụ 11-2 mà các hạt kim loại được bổ sung không thể hiện điện trở khối hoặc độ dẫn nhiệt ưu việt mặc dù các tiền thân graphen được bổ sung và vật liệu dạng graphen được phân tán. Dựa trên những điều này, đã phát hiện ra là tiền thân graphen tốt hơn là được sử dụng cùng với vật liệu dẫn có dạng sợi, dạng chuỗi thẳng, hoặc hình dạng tuyến tính. Hơn nữa, mặc dù không được thể hiện trong các ví dụ, vật liệu dẫn có hình dạng dạng vẩy cũng có tính ưu việt về điện trở khối và độ dẫn nhiệt. Do nano vật liệu dẫn ở dạng chuỗi, dạng chuỗi thẳng, tuyến tính, hoặc hình dạng dạng vẩy có diện tích bề mặt rộng trên đơn vị khối lượng do của hình dạng của nó, được suy đoán là nó đưa vào tiếp xúc với nhiều mẫu vật liệu dạng graphen, vì vậy có khả năng tương thích cao với vật liệu dạng graphen. Cũng đã được bộc lộ là, đối với vật liệu dẫn ở dạng chuỗi, dạng chuỗi thẳng, tuyến tính, hoặc hình dạng dạng vẩy, có tỷ lệ phương diện là 5 hoặc lớn hơn được ưu tiên cụ thể. Lưu ý là tỷ lệ phương diện là vật liệu có cấu trúc phân nhánh như axetylen đen có thể thu được bằng cách tính toán tỷ lệ đường kính trung bình so với chiều dài của phần dài nhất. Hơn nữa, tỷ lệ phương diện là vật liệu ở hình dạng dạng

vậy có thể thu được bằng cách tính toán tỷ lệ của độ dày trung bình so với chiều dài của phần dài nhất.

#### Ví dụ 12

Tiếp theo, các thử nghiệm được thực hiện để thu được vật dụng được đúc nhựa sử dụng các tiền thân graphene được sản xuất trong các phương pháp ở trên. Trong ví dụ 12, các thử nghiệm được thực hiện sử dụng bột nhào graphene được sản xuất từ các tiền thân graphene dưới điều kiện phân tán 3.

#### Các điều kiện khác nhau

##### Các vật liệu

Rượu diaxeton: Được sản xuất bởi Wako Pure Chemical Industries,

Metylparaben: Được sản xuất bởi Wako Pure Chemical Industries,

Chất ổn định: Nitrocellulose DLX-30-50 (Nobel NC Co. Ltd),

Axetylen đen (HS-100 được sản xuất bởi Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha, đường kính hạt trung bình là 48 nm, mật độ khối là 0,15 g/ml, hàm lượng tro là 0,01%),

##### Bước trộn

Máy trộn (ARE-310 được sản xuất bởi THINKY),

Điều kiện trộn 3: Nhiệt độ bình thường là 25°C, việc trộn ở 2,000 vòng/phút x 10 phút, bước khử bột sau khi việc trộn ở 2,100 vòng/phút x 30 giây)

##### Điều kiện phủ 1

Máy bào thanh: Số 16 được sản xuất bởi Dai-Ichi Rika Co., Ltd.,

Độ dày màng phủ: 36,6  $\mu\text{m}$  (25,4  $\mu\text{m}$  sau khi làm khô),

Điều kiện làm khô: 130°C x 30 phút,

Nền: thủy tinh thạch anh (t2 mm),

Diện tích phủ: 50 mm x 50 mm,

Dụng cụ đo điện trở tấm

LorestaGP MCP-T610 loại được sản xuất bởi Mitsubishi Chemical Analytech Co., Ltd.,

Điều kiện đo: JIS K7194

#### Quy trình thử nghiệm

Bước 1. Các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) khác nhau như được thể hiện trong bảng 11 được bổ sung vào rượu diaxeton (4-hydroxy-4-metyl-2-pentanone), và hỗn hợp được xử lý với thiết bị đã nêu được thể hiện trên Fig.8 được hoạt động dưới cùng điều kiện dẫn động để thu được hệ phân tán có 10% trọng lượng của vật liệu dạng graphen. (Điều kiện phân tán 3)

Bước 2. Sự phân tán graphen thu được ở bước 1, methylparaben (metyl 4-hydroxybenzoat), chất ổn định, và

AB được bổ sung ở tỷ lệ được thể hiện trong bảng 11 và được trộn dưới điều kiện trộn 3 để thu được hỗn hợp 3.

Bước 3. Hỗn hợp 3 được phủ sử dụng chất phủ dạng thanh dưới điều kiện phủ 1 và điện trở tấm được đo theo tiêu chuẩn JIS K7194 bởi bốn phương pháp thăm dò.

Bảng 11

|                    | Tỷ lệ hỗn hợp(% trọng lượng) |                  |                    |        |                               |                               |                                |                               | Điện trở<br>tâm<br>(Ω/sq) |
|--------------------|------------------------------|------------------|--------------------|--------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------------------|-------------------------------|---------------------------|
|                    | Di-<br>rượu<br>axeton        | Metyl<br>paraben | Chất<br>ổn<br>định | A<br>B | Tiền thân graphene            |                               |                                |                               |                           |
|                    |                              |                  |                    |        | Tỷ lệ (3R)<br>=23%<br>(mẫu 1) | Tỷ lệ (3R)<br>=31%<br>(mẫu 2) | Tỷ lệ (3R)<br>=35%<br>(mẫu 21) | Tỷ lệ (3R)<br>=42%<br>(mẫu 4) |                           |
| Ví dụ 12-1         | 25                           | 20               | 15                 | 30     | -                             | 10                            |                                | -                             | 22                        |
| Ví dụ 12-2         | 25                           | 20               | 15                 | 30     |                               |                               | 10                             |                               | 15                        |
| Ví dụ 12-3         | 25                           | 20               | 15                 | 30     | -                             | -                             |                                | 10                            | 8                         |
| Ví dụ so sánh 12-1 | 25                           | 20               | 15                 | 30     | 10                            | -                             |                                | -                             | 54                        |
| Ví dụ so sánh 12-2 | 25                           | 20               | 15                 | 40     | -                             | -                             |                                | -                             | 56                        |

Như được thể hiện trong bảng 11, quan sát thấy các ví dụ 12-1, 12-2, và 12-3 có điện trở tấm thấp hơn các ví dụ so sánh 12-1 và 12-2. Cũng được quan sát là ví dụ so sánh 12-1 có tỷ lệ (3R) là 23% về cơ bản có cùng điện trở tấm như ví dụ so sánh 12-2 mà các tiền thân graphen không được bổ sung. Dựa trên những điều này, được suy đoán là, trong các ví dụ 12-1, 12-2, và 12-3, vật liệu dạng graphen cùng với AB đóng góp đáng kể vào việc làm giảm điện trở tấm. Hơn nữa đã phát hiện ra là bột nhão graphen được điều chế bằng cách sử dụng các tiền thân graphen có tỷ lệ (3R) là 31% hoặc lớn hơn (các ví dụ 12-1, 12-2, và 12-3) được giảm mạnh điện trở tấm khi so với bột nhão graphen được điều chế bằng cách sử dụng tiền chất có tỷ lệ (3R) là 23% (ví dụ so sánh 12-1).

Nên lưu ý là, theo các phương án sáng chế, chỉ các vật liệu nên được sử dụng làm kết cấu để loại trừ các yếu tố gây nhiễu. Trong mực dẫn điện và bột nhão cho sử dụng thực tế, chất chống oxy hóa, chất biến đổi độ nhớt, và nhiều vật liệu dẫn thường được bổ sung để tạo ra mực mong muốn và làm giảm trị số điện trở.

Các phương án được giải thích ở trên của sáng chế sử dụng các hình vẽ, tuy nhiên nên được hiểu là các điều kiện cụ thể không bị hạn chế vào các phương án này, và các thay đổi và bổ sung cũng được bao gồm trong sáng chế mà không xa rời khỏi ý chính của sáng chế.

Theo các phương án đã nêu, thiết bị sản xuất A sử dụng máy nghiền siêu mịn và thể điện tương và thiết bị sản xuất B sử dụng máy nghiền kiểu bi và các lò vi sóng được mong muốn làm thiết bị sản xuất mà sản xuất tiền thân graphen. Khi việc xử lý dựa trên lực sóng vô tuyến như bởi các vi sóng, các sóng mm, thể điện tương, nhiệt cảm ứng điện từ (IH), và từ trường, và việc xử lý dựa trên lực vật lý như bởi máy nghiền kiểu bi, máy nghiền siêu mịn, lực ly tâm, và siêu tới hạn được kết hợp cho việc sử dụng, tiền chất có tỷ lệ (R3) cao có thể thu được. Do đó, việc kết hợp các xử lý như vậy được ưu tiên. Ngoài ra, miễn là việc xử lý dựa trên các lực sóng vô tuyến và việc xử lý dựa trên các lực vật lý được sử dụng ở dạng kết hợp, không có sự hạn chế về loại cụ thể của việc xử lý dựa trên các lực sóng vô tuyến hoặc việc xử lý dựa trên các lực vật lý được áp dụng. Cụ thể, như được minh họa 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 tác dụng đồng thời. Tuy nhiên, lực

sóng vô tuyến và lực vật lý có thể được tác dụng luân phiên ở các khoảng được xác định trước. Ngoài ra, đối với lực sóng vô tuyến, các lực sóng vô tuyến khác biệt, như các xử lý dựa trên các vi sóng và thể điện tương, có thể được tác dụng luân phiên, và, song song với các xử lý, một hoặc nhiều các xử lý dựa trên các lực vật lý có thể được tác dụng. Ngược lại, đối với lực vật lý, các lực vật lý khác nhau, như các xử lý dựa trên máy nghiền siêu mịn và siêu tới hạn, có thể được tác dụng luân phiên, và, song song với các xử lý, một hoặc nhiều các xử lý dựa trên các lực sóng vô tuyến có thể được tác dụng.

Như các ví dụ về các vật liệu nền để phân tán các vật liệu dẫn và các vật liệu cacbon gốc graphit, các vật liệu sau đây có thể được đề cập. Lưu ý là tỷ lệ của các vật liệu nền có thể nhỏ hơn tỷ lệ của các vật liệu dẫn hoặc các vật liệu cacbon gốc graphit. Hơn nữa, các vật liệu nền có thể bị hủy bởi sự đốt cháy, sự bốc hơi, bay hơi, và điều kiện tương tự khi sử dụng. Ví dụ, các vật liệu nền sẽ được tiêu hủy từ sơn dẫn điện, mực dẫn điện, vv..., mà các vật liệu nền là các dung môi để bay hơi và tương tự. Các vật liệu nền có thể bao gồm thêm vật liệu dẫn.

Các ví dụ về các vật liệu hoạt tính làm điện cực dương bao gồm các vật liệu hoạt tính trên cơ sở oxit được tạo lớp ( $\text{LiCoO}_2$ ,  $\text{LiNiO}_2$ ,  $\text{Li}(\text{Ni}_x\text{Co}_y)\text{O}_2$  (trong đó  $x+y=1$ ),  $\text{Li}(\text{Ni}_x\text{Co}_y\text{Al}_z)\text{O}_2$ ,  $\text{Li}(\text{Ni}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z)\text{O}_2$ ,  $\text{Li}(\text{Ni}_x\text{Mn}_y)\text{O}_2$ ,  $\text{Li}_2\text{MnO}_3$ - $\text{Li}(\text{Ni}_x\text{Mn}_y\text{Co}_z)\text{O}_2$  (trong đó  $x+y+z=1$ ), vv...), các vật liệu hoạt tính trên cơ sở olivin ( $\text{LiMPO}_4$ ,  $\text{Li}_2\text{MPO}_4\text{F}$ ,  $\text{Li}_2\text{MSiO}_4$  (trong đó mỗi M chỉ một hoặc nhiều loại nguyên tố kim loại được chọn từ Ni, Co, Fe, và Mn)), các vật liệu hoạt tính giàu lithi, các vật liệu hoạt tính làm điện cực dương loại spinen ( $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ), và tương tự.

Các ví dụ về các nhựa bao gồm các nhựa nhiệt dẻo như polyetylen (PE), polypropylen (PP), polystyren (PS), polyvinyl clorua (PVC), các nhựa ABS (ABS), các nhựa acrylic (PMMA), polyamit/nylon (PA), polyaxetal (POM), polycarbonat (PC), polyetylen terephtalat (PET), các polyolefin vòng (COP), polyphenylen sulfua (PPS), polytetrafluoroetylen (PTFE), polysulfon (PSF), polyamit-imit (PAI), polyimit nhiệt dẻo (PI), polyete ete xeton (PEEK), và các polyme tinh thể lỏng (LCP). Ngoài ra, trong số các nhựa tổng hợp: đối với các nhựa nhiệt rắn hoặc các nhựa lưu hóa cực tím, được bao gồm là các nhựa epoxy (EP), các nhựa phenolic (PF), các nhựa melamin (MF), các polyuretan (PUR), và các nhựa polyete chưa bão hòa (UP) và chất tương tự; làm các

polyme dẫn điện, được bao gồm là PEDOT, polytiophen, polyaxetylen, polyanilin, polypyrrol, và tương tự; làm các sợi, được bao gồm là ni lông dạng sợi, các chất polyeste, acryl, vinylon, polyolefin, polyuretan, rayon và tương tự; đối với các chất đàn hồi, được bao gồm là các cao su isopren (IR), các cao su butadien (BR), các cao su styren/butadien (SBR), các cao su cloropren (CR), các cao su nitril (NBR), các cao su polyisobutylen/các cao su butyl (IIR), các cao su etylen propylen (EPM/EPDM), polyetylen được clorosulfonat hóa (CSM), các cao su acrylic (ACM), các cao su epichlorohydrin (CO/ECO), và tương tự; đối với các chất đàn hồi trên cơ sở nhựa nhiệt rắn, được bao gồm là một số các cao su uretan (U), các cao su silic (Q), các cao su chứa flo (FKM), và tương tự; và, đối với các chất đàn hồi nhiệt dẻo, được bao gồm là các chất đàn hồi dựa trên styren, olefin, polyvinyl clorua, urethane, và amit.

Ngoài ra, đối với các dầu khoáng, được bao gồm là các dầu bôi trơn, và các mỡ, và, như các dầu được pha trộn cho các cao su, được bao gồm là các dầu khoáng trên cơ sở paraffin, dầu khoáng naphthenic, các dầu khoáng thơm, và các dầu tương tự.

Hơn nữa, đối với các sản phẩm không cực, được bao gồm là hexan, benzen, toluen, chloroform, etyl axetat, và chất tương tự, đối với các sản phẩm dung môi không proton có cực, được bao gồm là axeton, N,N-dimethylformamid (DMF), N-methylpyrrolidon (NMP), axetonitril, và chất tương tự, và, đối với các sản phẩm dung môi proton có cực, được bao gồm là axit axetic, etanol, metanol, nước, 1-butanol, 2-propanol, axit formic, và chất tương tự.

Đối với các vật liệu dẫn, các vật liệu sau đây có thể được đề cập. Đối với các vật liệu kim loại, được bao gồm là các hạt nano bạc, các hạt nano đồng, các dây nano bạc, các dây nano đồng, bạc dạng vảy, đồng dạng vảy, bột sắt, thiếc oxit, và tương tự. Đối với các vật liệu cacbon, được bao gồm là cacbon đen, các sợi cacbon, CNT, graphit, than hoạt tính, và tương tự. Đối với các polyme dẫn, được bao gồm là PEDOT, polytiophen, polyaxetylen, polyanilin, polypyrrol, và chất tương tự. Cụ thể, các vật liệu dạng sợi ở dạng chuỗi, dạng sợi, và hình dạng dạng vảy có tính ưu việt về độ dẫn điện.

Hơn nữa, đối với ví dụ về graphit tự nhiên để sản xuất vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền thân graphen, vật liệu graphit tự nhiên ở dạng hạt có kích thước là 5 mm hoặc nhỏ hơn (graphit dạng vảy ACB-50 được sản xuất bởi Nippon Graphite

Industries, Ltd.) được mô tả ở trên. Đối với graphit tự nhiên, sản phẩm ưu tiên là graphit vảy mà được nghiền thành 5 mm hoặc nhỏ hơn, có tỷ lệ (3R) là nhỏ hơn 25% và tỷ lệ cường độ P1/P2 của nhỏ hơn 0,01, từ góc độ dễ thu mua. Tương ứng với sự phát triển công nghệ gần đây, graphit dạng graphit tự nhiên (trong đó các tinh thể được xếp chồng trong các lớp) có thể được tổng hợp tùy ý, vì vậy các nguyên liệu thô cho graphen và vật liệu dạng graphen không bị giới hạn vào graphit tự nhiên (khoáng chất). Graphit nhân tạo có độ tinh khiết cao tốt hơn là được sử dụng cho mục đích kiểm soát hàm lượng kim loại như trong pin.

Nên lưu ý là vật liệu cacbon gốc graphit hữu ích làm tiền thân graphen thường được gọi là graphen, tiền thân graphen, graphen dạng tấm mỏng nano (GNP - graphene nanoplatelet), graphen ít lớp (FLG - few-layer graphene), nano graphen, và tương tự, tuy nhiên không bị giới hạn vào đó.

### **Khả năng ứng dụng công nghiệp**

Sáng chế nghiên cứu bao quát về vật liệu dẫn điện composit có độ dẫn, và lĩnh vực ứng dụng của nó không bị giới hạn. Nên lưu ý là, theo sáng chế, độ dẫn chỉ ít nhất một trong số độ dẫn điện, độ dẫn ion, và độ dẫn nhiệt. Các lĩnh vực sau được bao gồm làm các ví dụ.

#### **(1) Các ví dụ về các chất dẫn điện (các chất dẫn)**

##### **(1-1) Thiết bị lưu điện**

##### **(1-1-1) Pin**

Gồm có các vật liệu dẫn điện được sử dụng cho điện cực dương vật liệu, điện cực âm vật liệu và tương tự dùng cho pin, cụ thể pin li-ion, các vật liệu dẫn điện tốt hơn là có tính ưu việt về cả hai độ dẫn điện và độ dẫn ion. Đối với vật liệu cấu thành pin, các vật liệu sau đây được minh họa, tuy nhiên, nó không bị giới hạn tới đó.

Vật liệu hoạt tính làm điện cực dương:  $\text{LiCoO}_2$ ,  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ,  $\text{LiNiO}_2$ ,  $\text{LiFeO}_4$ ,  $\text{Li}_2\text{FePO}_4\text{F}$ ,  $\text{Li}(\text{Co}_x\text{Ni}_y\text{Mn}_z)\text{O}_2$

Chất trợ dẫn: các bột graphit, axetylen đen, VGCF, CNT

Vật liệu điện cực âm: các bột graphit, carbon cứng, than hoạt tính, titanat ( $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ ), Si

Dung dịch điện phân: PC (polycarbonat), EC (etylen carbonat), DEC (dietyl carbonat)

Chất điện phân hỗ trợ:  $\text{LiPF}_6$ ,  $\text{LiBF}_4$ ,  $\text{LiTFSI}$

Chất dẫn thu thập: lá nhôm, lá đồng, lá lithi

(1-1-2) Tụ điện và bình ngưng

Gồm có các tụ điện và các bình ngưng, như tụ điện lithi-ion, tụ điện hai lớp điện, và bình ngưng, tốt hơn là có tính ưu việt về độ dẫn điện. Đối với vật liệu cấu thành các tụ điện và các bình ngưng, các vật liệu sau đây được minh họa, tuy nhiên, nó không bị giới hạn tới đó.

- Điện cực góp: lá nhôm

- Điện cực có thể phân cực: than hoạt tính

- Chất trợ dẫn: cacbon đen, CNT

- Chất điện phân: tetraethylammoni ion, tetrafluoroborat ion, bis(trifluorometylsulfonyl)imit

- Dung dịch điện phân: propylen carbonat, etylen carbonat, dietyl carbonat, dimetyl carbonat

(1-2) Sự phân tán dẫn điện

Gồm có hệ phân tán dẫn điện, như mực dẫn điện, sơn dẫn điện, bột nhão dẫn điện, và tương tự, được sử dụng cho các thiết bị dẫn điện mà bao gồm màng dẫn điện trong suốt/ không trong suốt và nền mạch điện tử (in và khắc quang), hệ phân tán dẫn điện tốt hơn là có tính ưu việt về độ dẫn điện. Đối với vật liệu cấu thành hệ phân tán dẫn điện, các vật liệu sau đây được minh họa, tuy nhiên, không bị giới hạn vào đó.

- Dung môi: nước, các chất ngăn khô lại (glyxerin, các glycol, vv...), các chất thấm (các rượu, glycol ete, vv...), các rượu, NMP (N-metylpyrrolidon), DMF, toluen, etyl axetoacetat, các xeton

- Chất tạo màu: thuốc nhuộm, thuốc màu

- Nhựa: các nhựa nhiệt dẻo như các copolyme acrylic khối, acryl, axit maleic, nhựa thông, epoxy, silicon, butyral, và nhựa tương tự

- Chất phụ gia: các chất điều chỉnh pH, các chất tạo phức, các chất có hoạt tính bề mặt, chất kháng khuẩn và các chất chống nấm, các chất chống oxy hóa, các chất hấp thụ tia cực tím, các chất làm dẻo

- Vật liệu dẫn: các bột graphit, cacbon đen (Ketjen black, axetylen đen, vv...), các sợi cacbon, CNT (SWNT và MWNT), các bột kim loại mịn (các hạt nano đồng/ bạc), các oxit kim loại (ITO và thiếc oxit), các sợi kim loại (các dây nano đồng/ bạc), các polyme dẫn điện (PEDOT, polyaxetylen, vv...)

### (1-3) Chế phẩm dẫn điện

Gồm có các compozit dẫn điện như để sử dụng trong việc ngăn độ dẫn điện, điện tĩnh, và sự nhiễm điện, và chặn sóng điện từ, các compozit dẫn điện tốt hơn là có tính ưu việt về độ dẫn điện. Đối với vật liệu cấu thành các compozit dẫn điện, các vật liệu sau đây được minh họa, tuy nhiên, không bị giới hạn vào đó.

- Vật liệu dẫn điện: Fe và Ni làm kim loại. Các sợi cacbon, graphit đẳng hướng, và cacbon đen làm các vật liệu cacbon.

- Polyme: PE, PP, PS, PC, PVC, ABS, PA6, PA66, PSS, PEEK, POM, epoxy, các cao su tự nhiên, các cao su cloropren, NBR, các cao su silic.

### (2) Các ví dụ về độ dẫn nhiệt

#### (2-1) Compozit dẫn nhiệt

##### (2-1-1) Các bộ tản nhiệt dùng cho các màng dẫn nhiệt, các polyme dẫn nhiệt, vv...

Gồm có các bộ tản nhiệt có khả năng cải thiện thời gian chịu nhiệt của hỗn hợp bằng cách giải phóng nhiệt cục bộ, tốt hơn là có tính ưu việt về độ dẫn nhiệt. Đối với vật liệu cấu thành các bộ tản nhiệt, các vật liệu sau đây được minh họa, tuy nhiên, không bị giới hạn vào đó.

- Vật liệu dẫn: Cu, Al, và W làm kim loại. Các sợi cacbon và graphit đẳng hướng làm các vật liệu cacbon.

- Polyme: PE, PP, PS, PC, PVC, ABS, PA6, PA66, PSS, PEEK, POM, epoxy, các cao su tự nhiên, các cao su cloropren, NBR, các cao su silic.

##### (2-1-2) Mỡ và bột nhão bức xạ nhiệt

Gồm có mỡ và chất nhão bức xạ nhiệt hoạt động như vật liệu cho việc nối giữa vật thể bức xạ nhiệt và bộ tản nhiệt như được minh họa trong (2-1-1), tốt hơn là có tính ưu việt về độ dẫn nhiệt. Đối với vật liệu cấu thành mỡ và chất nhão bức xạ nhiệt, các vật liệu sau đây được minh họa, tuy nhiên, không bị giới hạn vào đó.

- Dung môi: mỡ silic (các hợp chất polysiloxan)
- Các chất dẫn điện: thiếc oxit, các hạt nano bạc, kim cương nano, cacbon đen, silic các hạt nano

## YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Vật liệu dẫn điện composit bao gồm ít nhất graphen được tróc từ vật liệu cacbon gốc graphit và vật liệu dẫn được phân tán trong vật liệu nền,

graphen là tinh thể có kích thước trung bình từ 100nm hoặc nhiều hơn và được tạo thành dạng mảnh hoặc tấm có 10 lớp hoặc nhỏ hơn, vật liệu cacbon gốc graphit được tạo thành dạng khối có nhiều hơn 10 lớp, vật liệu nền được bao gồm vật liệu mà khác với vật liệu dẫn điện,

vật liệu cacbon gốc graphit có, ngay trước khi tróc graphit giống graphen từ vật liệu cacbon gốc graphit có lớp graphit khối sáu mặt thoi (3R) và lớp graphit lục giác (2H), trong đó tỷ lệ (3R) của lớp graphit khối sáu mặt thoi (3R) và lớp graphit lục giác (2H), dựa trên phương pháp nhiễu xạ tia X, mà được xác định bởi phương trình 1 sau đây, là 31% hoặc nhiều hơn:

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

trong đó

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

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

2. Vật liệu dẫn điện composit theo điểm 1, trong đó vật liệu dẫn là vi hạt ở dạng thẳng, chuỗi thẳng, tuyến tính, hoặc vảy

3. Vật liệu dẫn điện composit theo điểm 2, trong đó vi hạt có tỷ lệ phương diện là 5 hoặc lớn hơn.

4. Vật liệu dẫn điện composit theo điểm 2, trong đó tỷ lệ trọng lượng của tổng graphen và vật liệu cacbon gốc graphit so với vật liệu dẫn là 1/50 hoặc lớn hơn và nhỏ hơn 10/1.

5. Vật liệu dẫn điện composit theo điểm 1, trong đó tỷ lệ trọng lượng của tổng graphen và vật liệu cacbon gốc graphit so với vật liệu dẫn là 1/50 hoặc nhiều hơn và ít hơn 10/1.

6. Vật liệu dẫn điện compozit theo điểm 1, trong đó vật liệu nền là vật liệu hoạt tính dùng cho pin.

7. Vật liệu dẫn điện compozit theo điểm 6, trong đó vật liệu hoạt tính là vật liệu hoạt tính làm điện cực dương.

8. Vật liệu dẫn điện compozit theo điểm 1, trong đó vật liệu nền là polyme.

9. Vật liệu dẫn điện compozit theo điểm 1, trong đó vật liệu nền là dung môi dễ bay hơi.

10. Thiết bị lưu điện bao gồm vật liệu dẫn điện compozit theo điểm 1.

11. Hệ phân tán dẫn bao gồm vật liệu dẫn điện compozit theo điểm 1.

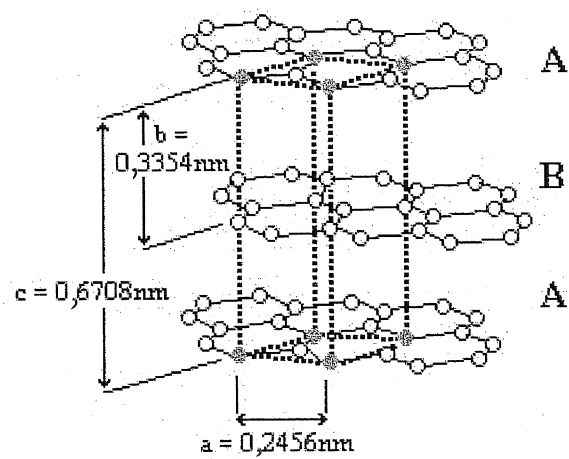
12. Thiết bị dẫn điện bao gồm điện cực trong suốt, màng dẫn điện trong suốt, mạch dẫn điện, hoặc nền, được phủ hoặc được in bằng cách sử dụng hệ phân tán dẫn theo điểm 11.

13. Compozit dẫn bao gồm vật liệu dẫn điện compozit theo điểm 1.

14. Compozit dẫn nhiệt bao gồm vật liệu dẫn điện compozit theo điểm 1.

Fig. 1

(a)



(b)

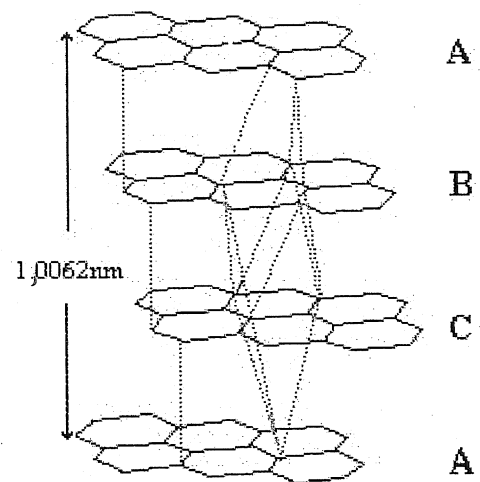
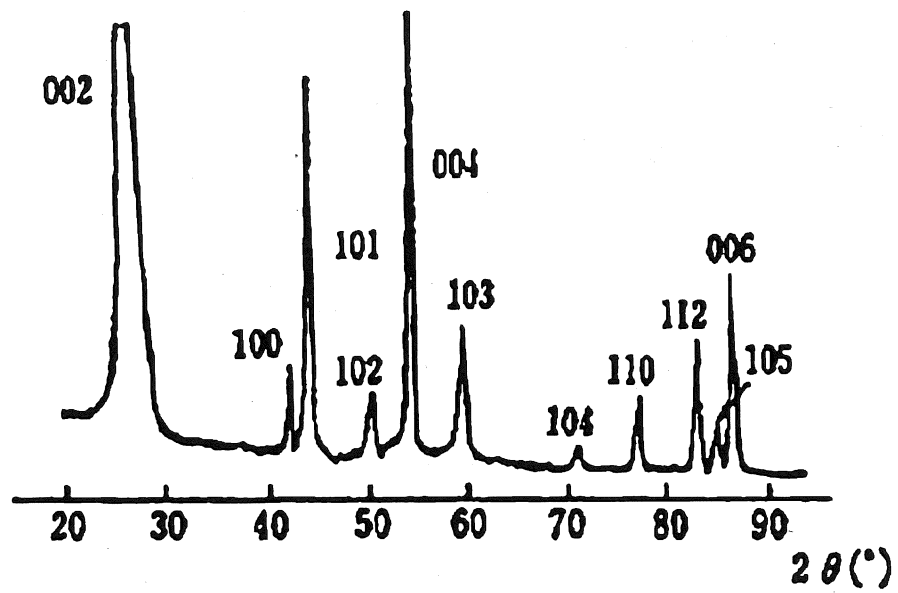


Fig. 2



3/28

Fig. 3

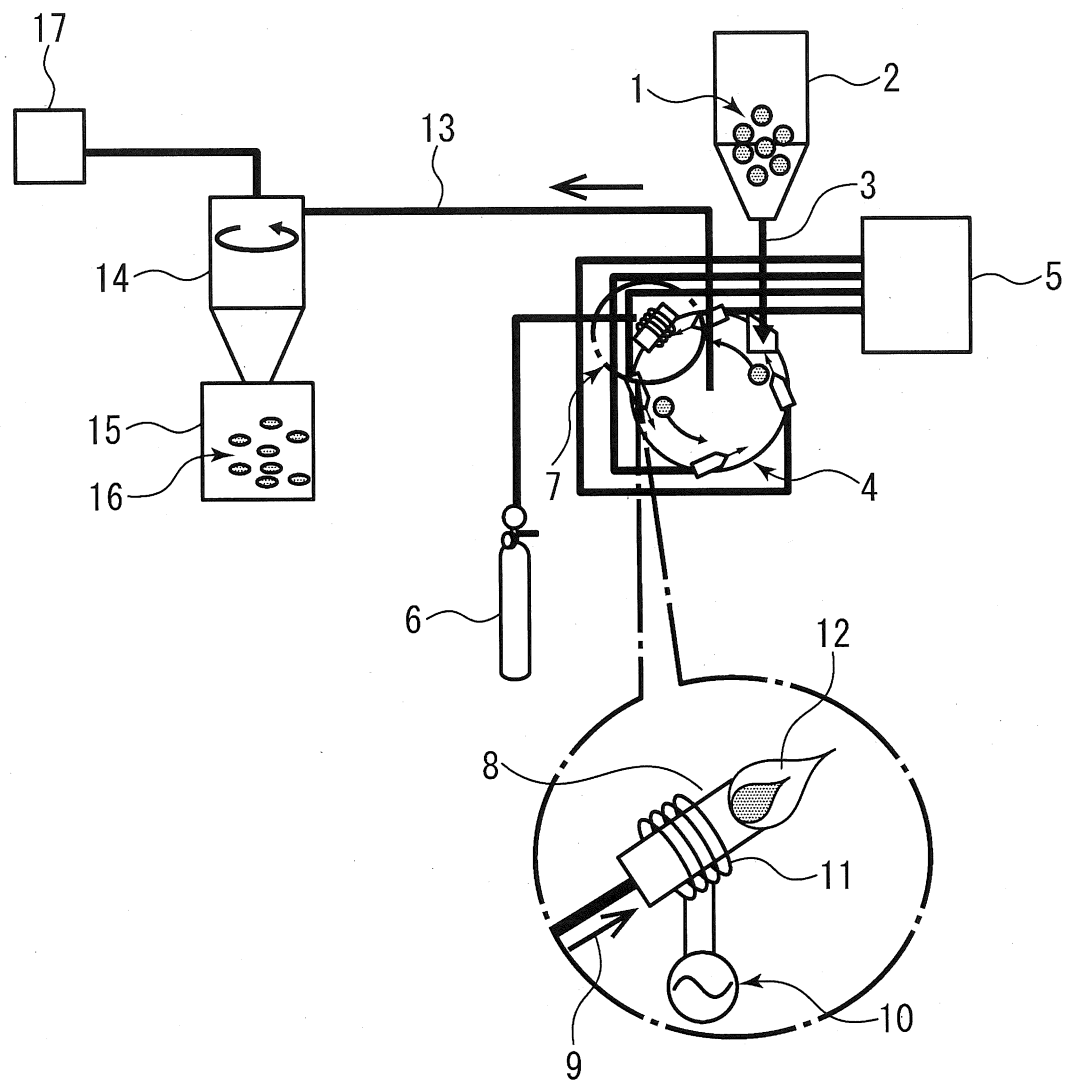
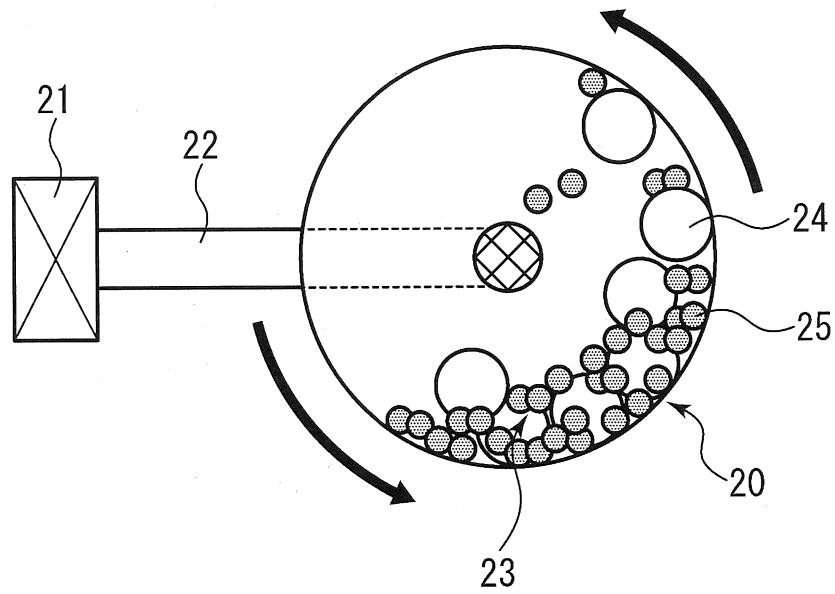


Fig. 4

4/28

(a)



(b)

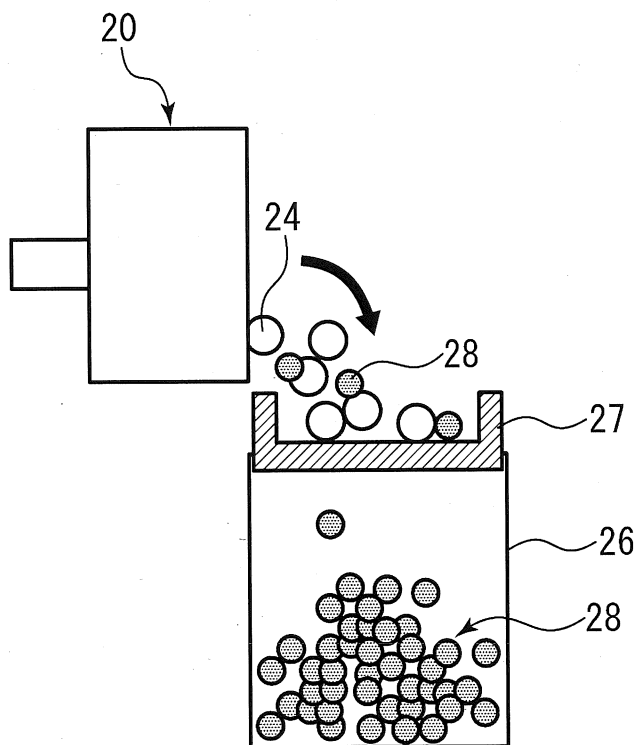


Fig. 5

5/28

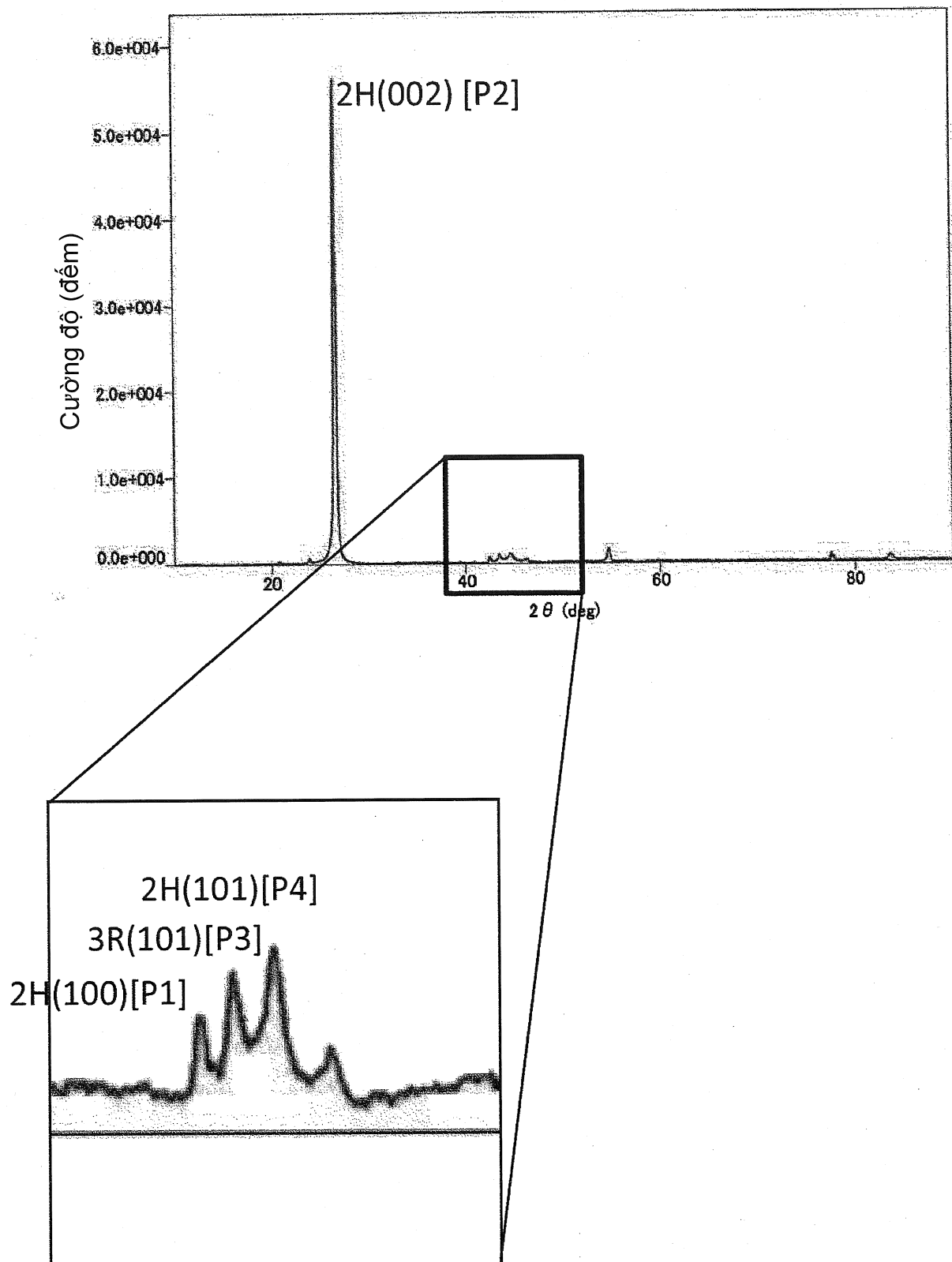


Fig. 6

6/28

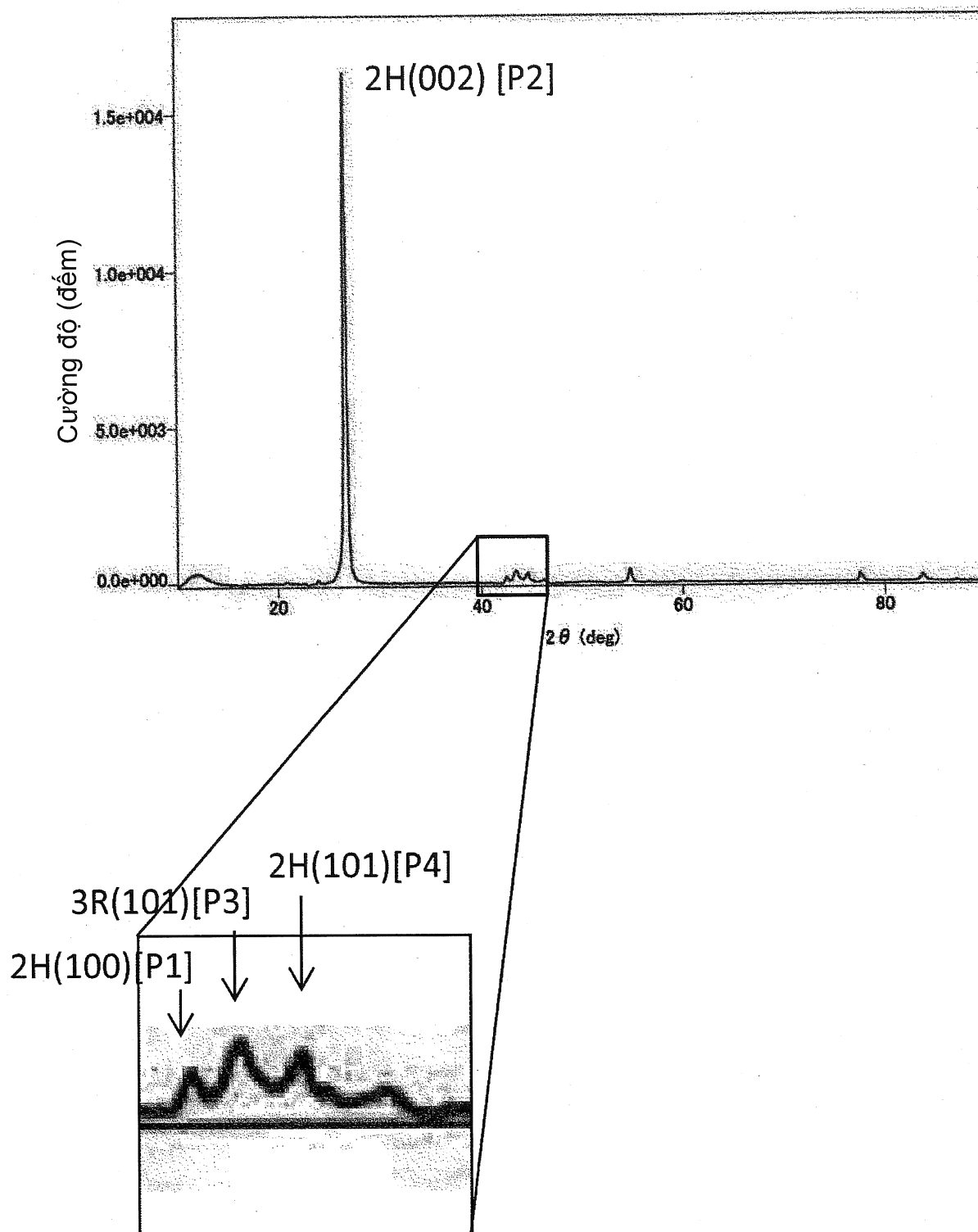


Fig. 7

7/28

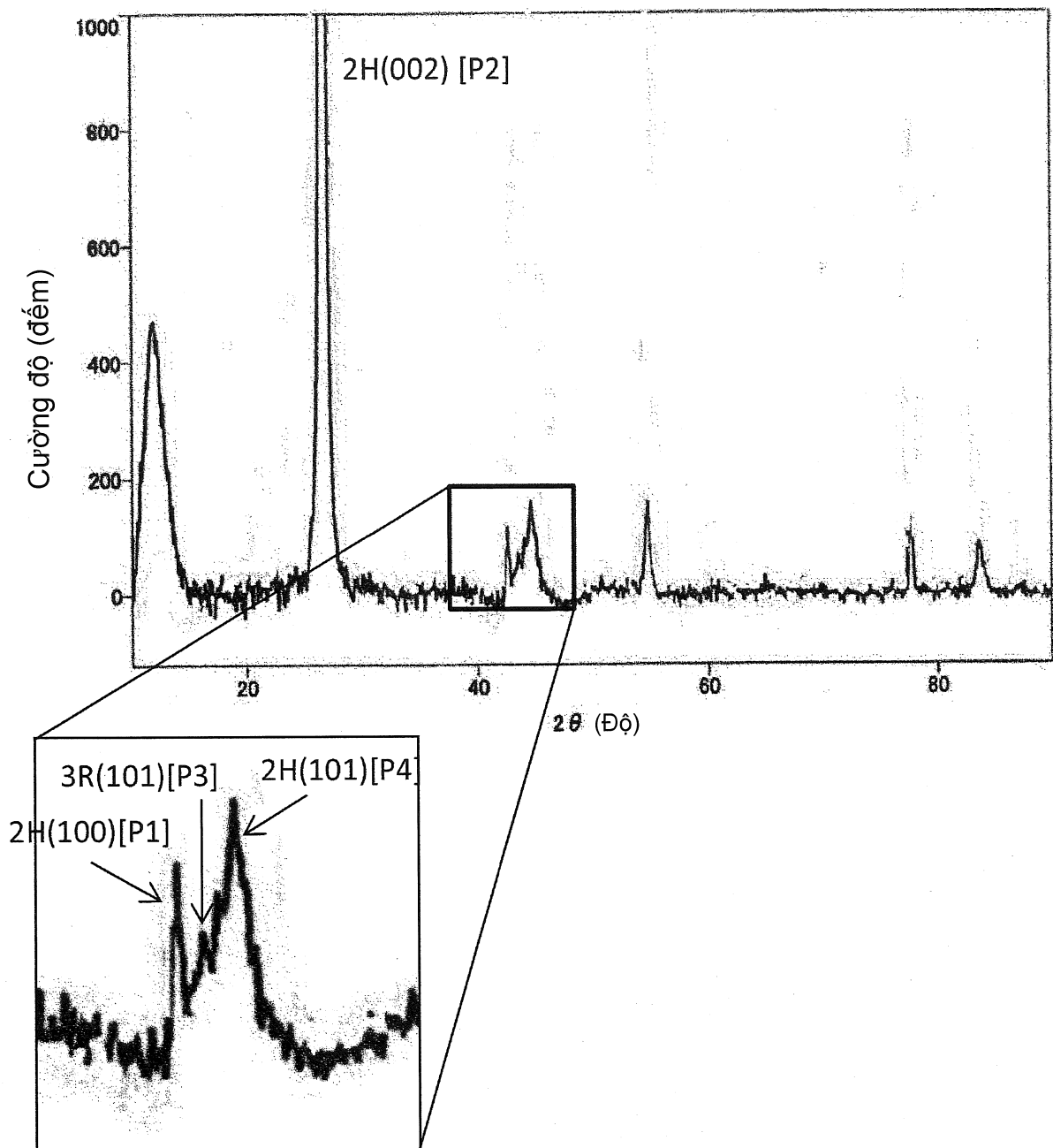
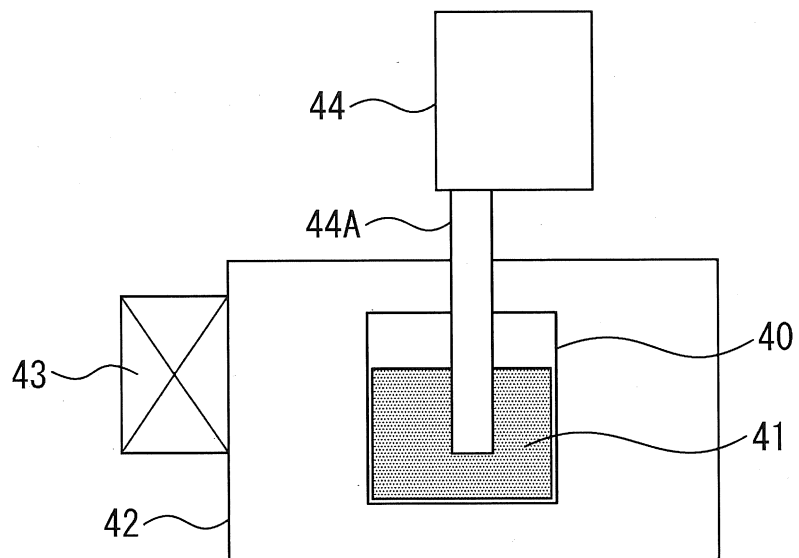
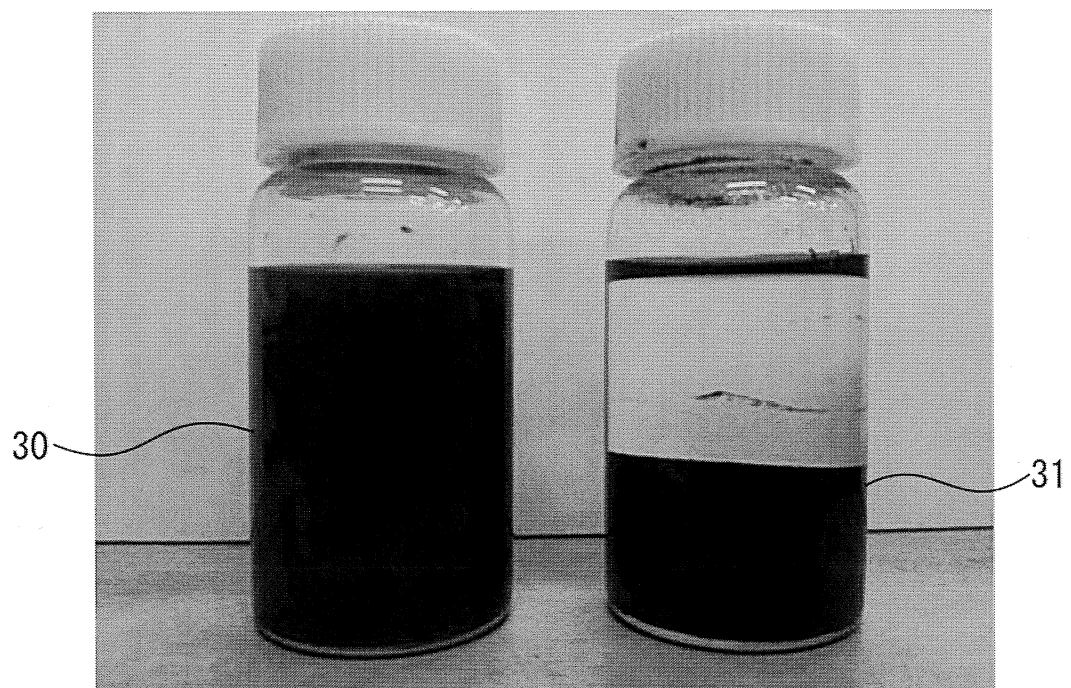


Fig. 8



9/28

Fig. 9



10/28

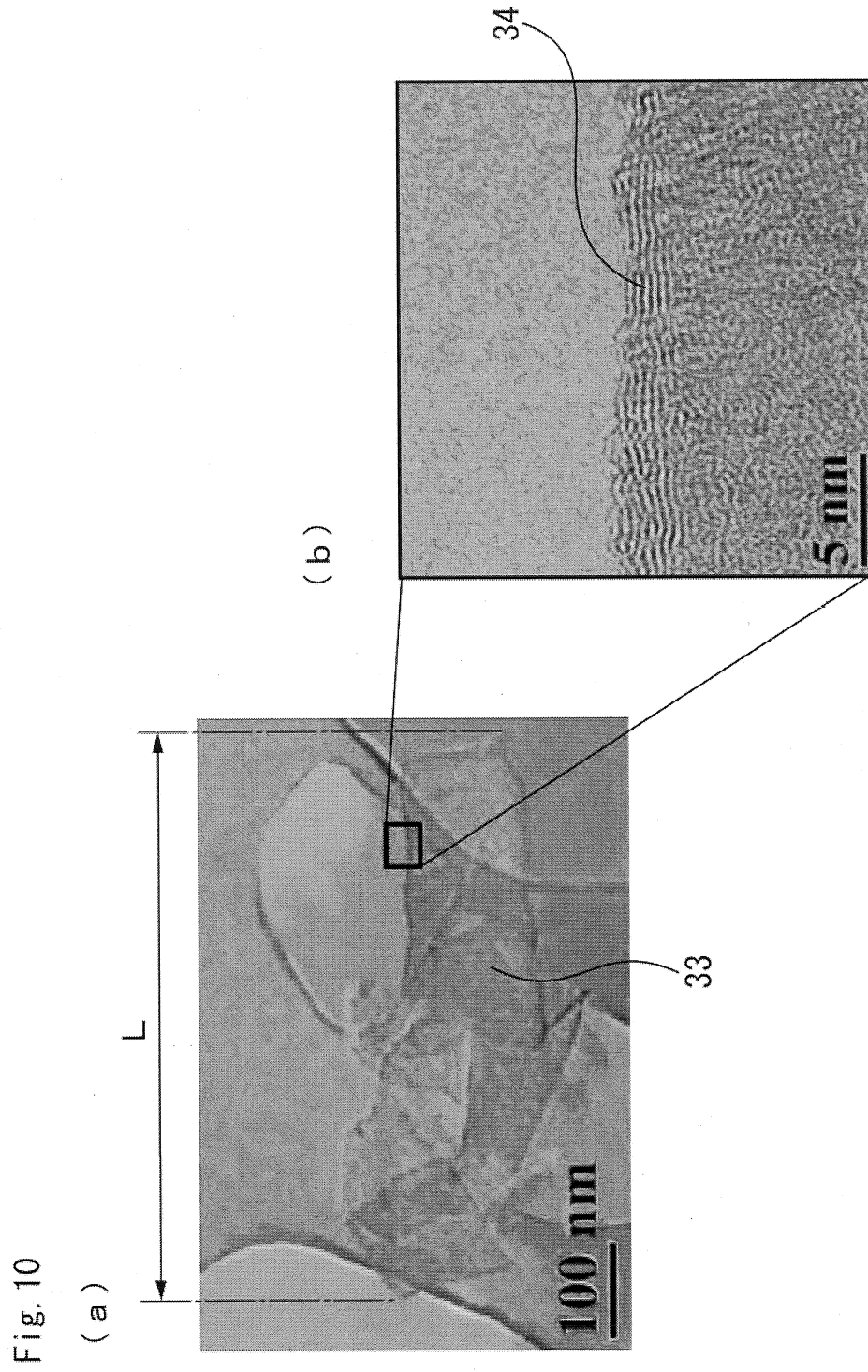
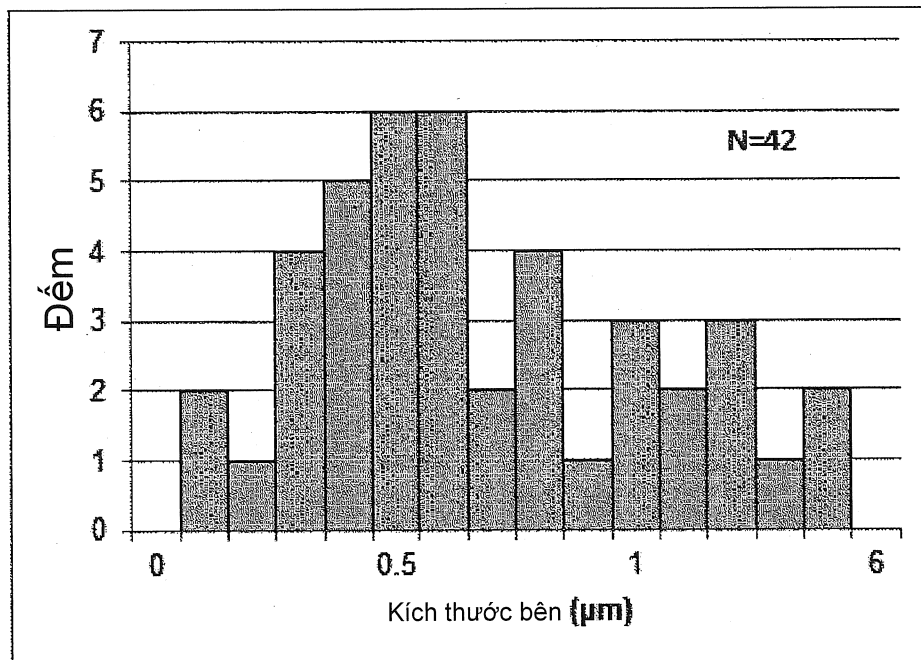


Fig. 11  
(a)

11/28



(b)

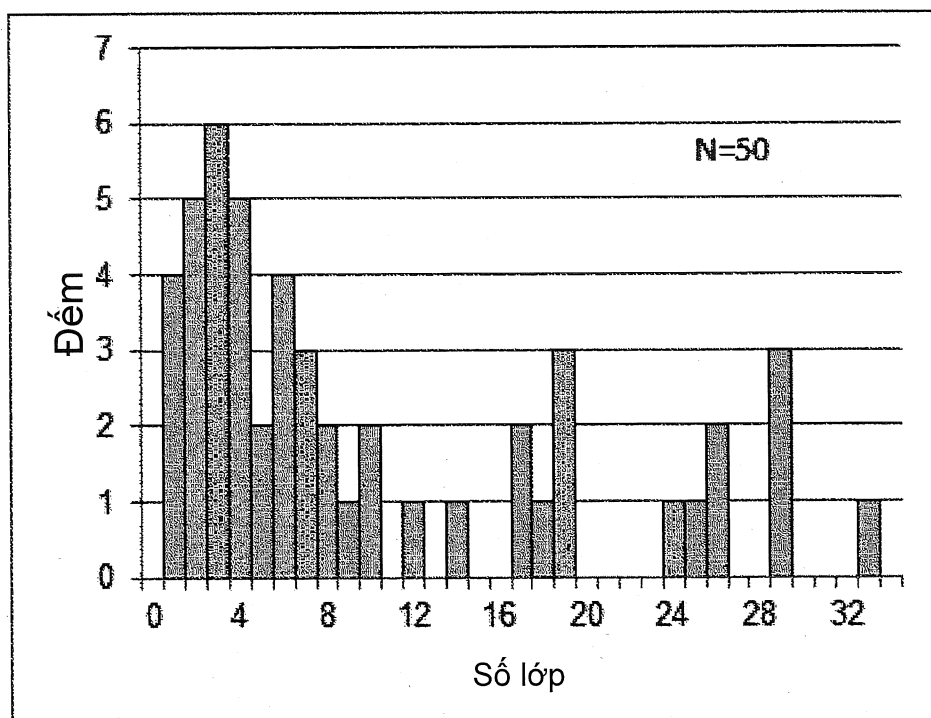
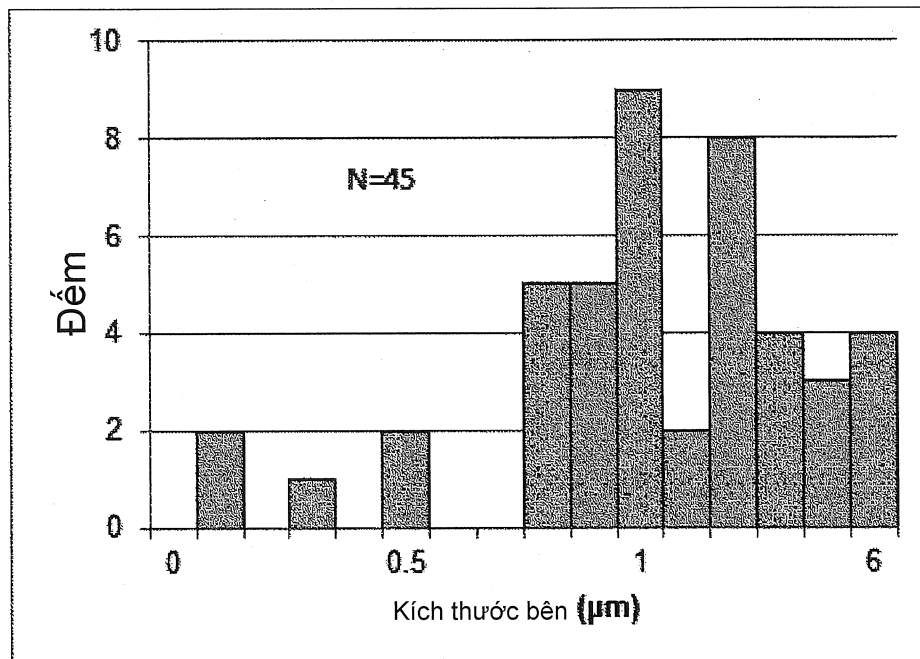


Fig. 12  
(a)

12/28



(b)

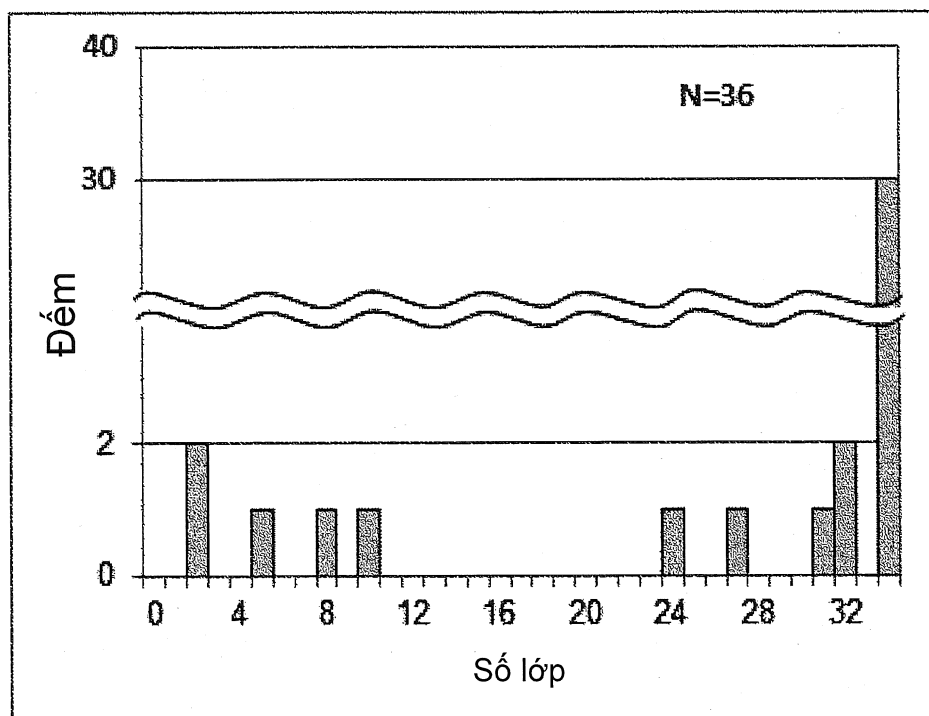
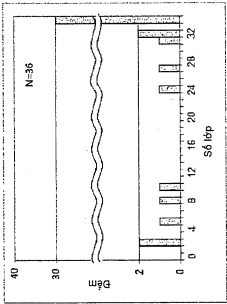
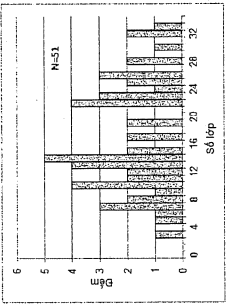
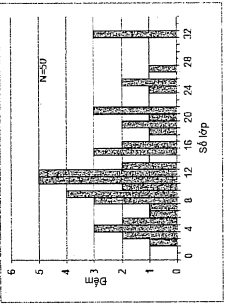


Fig. 13

| Mẫu số               | 1                                                                                   | 2                                                                                   | 3                                                                                  |
|----------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------|
| Sự phân bố các lớp   |  |  |  |
| P3/(P3+P4)           | 23%                                                                                 | 31%                                                                                 | 38%                                                                                |
| Mười lớp hoặc ít hơn | 10%                                                                                 | 25%                                                                                 | 38%                                                                                |
| P1/P2                | 0,008                                                                               | 0,016                                                                               | 0,016                                                                              |
| P1                   | 120                                                                                 | 342                                                                                 | 128                                                                                |
| P2                   | 15000                                                                               | 20993                                                                               | 8253                                                                               |
| P3                   | 50                                                                                  | 321                                                                                 | 173                                                                                |
| P4                   | 160                                                                                 | 698                                                                                 | 282                                                                                |

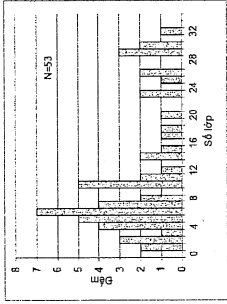
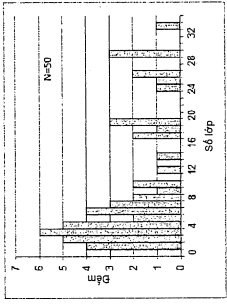
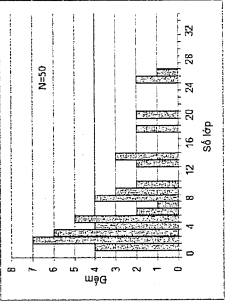
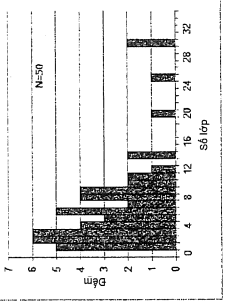
| Mẫu số               | 4                                                                                    | 5                                                                                    | 6                                                                                   | 7                                                                                  |
|----------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------------|------------------------------------------------------------------------------------|
| Sự phân bố các lớp   |  |  |  |  |
| P3/(P3+P4)           | 42%                                                                                  | 46%                                                                                  | 51%                                                                                 | 58%                                                                                |
| Mười lớp hoặc ít hơn | 62%                                                                                  | 68%                                                                                  | 76%                                                                                 | 82%                                                                                |
| P1/P2                | 0,014                                                                                | 0,012                                                                                | 0,014                                                                               | 0,012                                                                              |
| P1                   | 253                                                                                  | 162                                                                                  | 66                                                                                  | 151                                                                                |
| P2                   | 18226                                                                                | 13157                                                                                | 4675                                                                                | 12850                                                                              |
| P3                   | 320                                                                                  | 396                                                                                  | 170                                                                                 | 452                                                                                |
| P4                   | 435                                                                                  | 466                                                                                  | 162                                                                                 | 325                                                                                |

Fig. 14

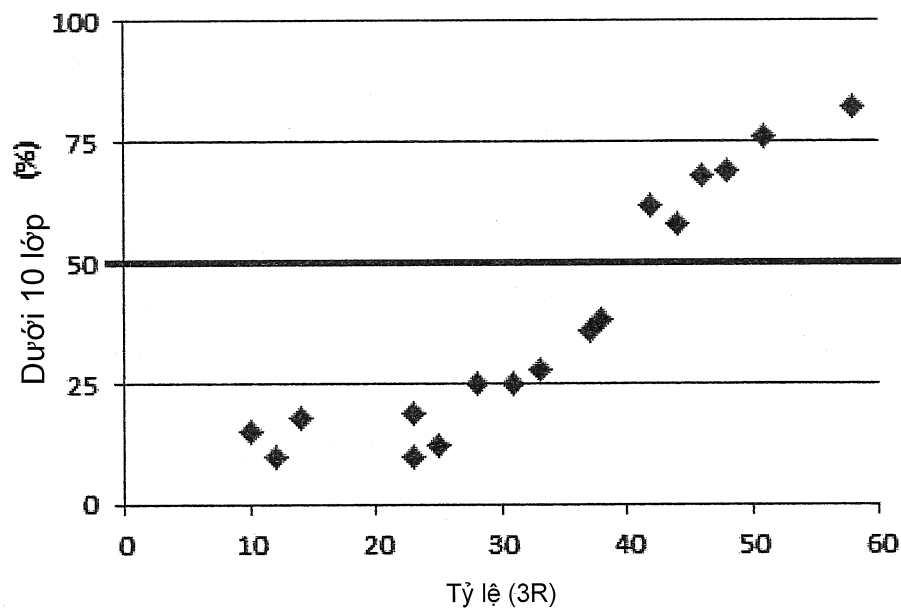
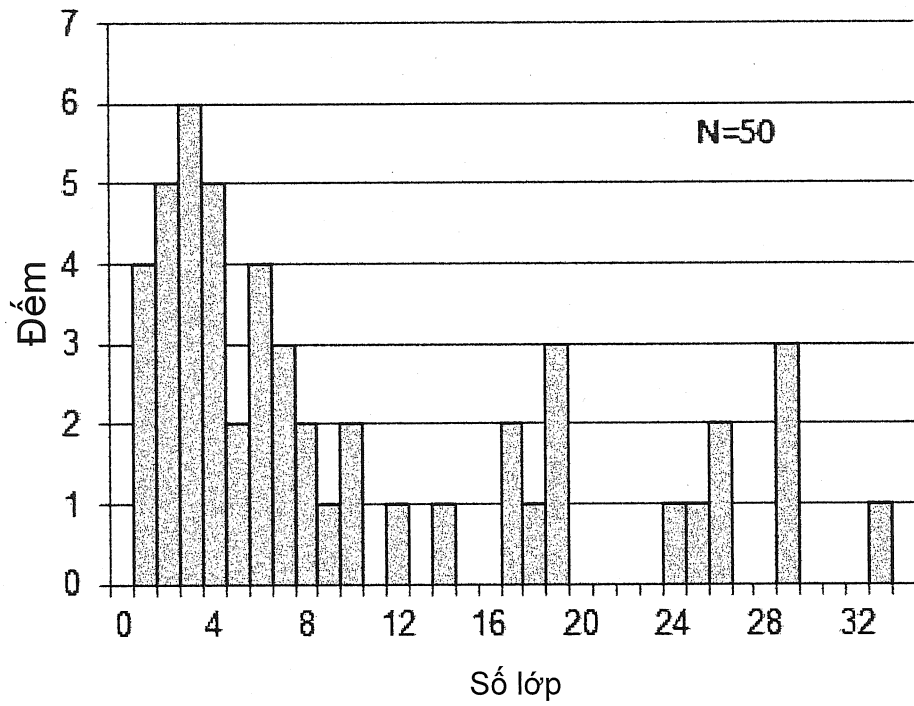


Fig. 15

(a)

15/28



(b)

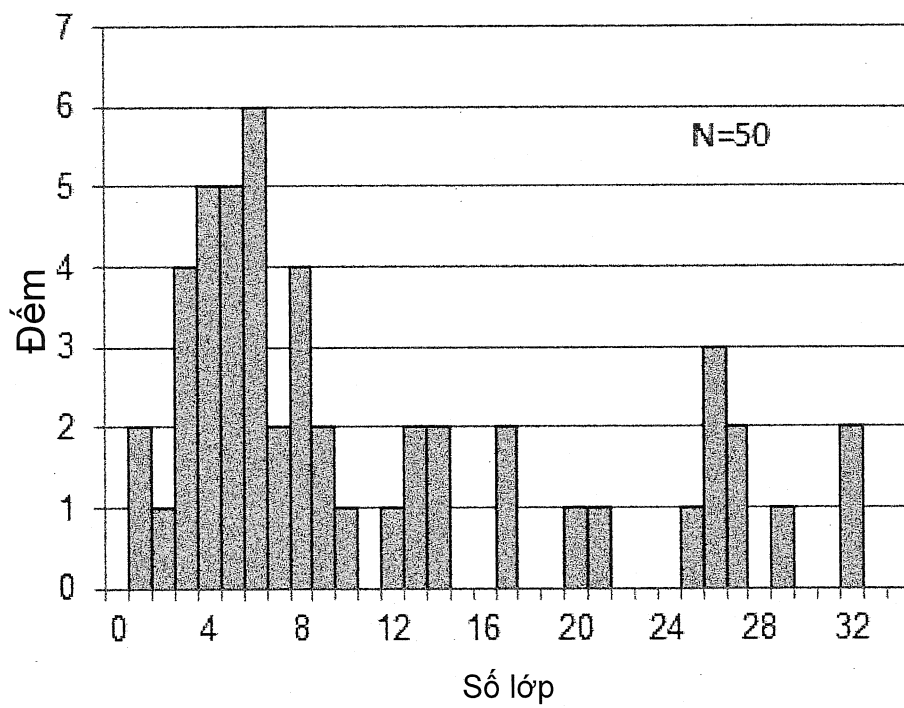


Fig. 16

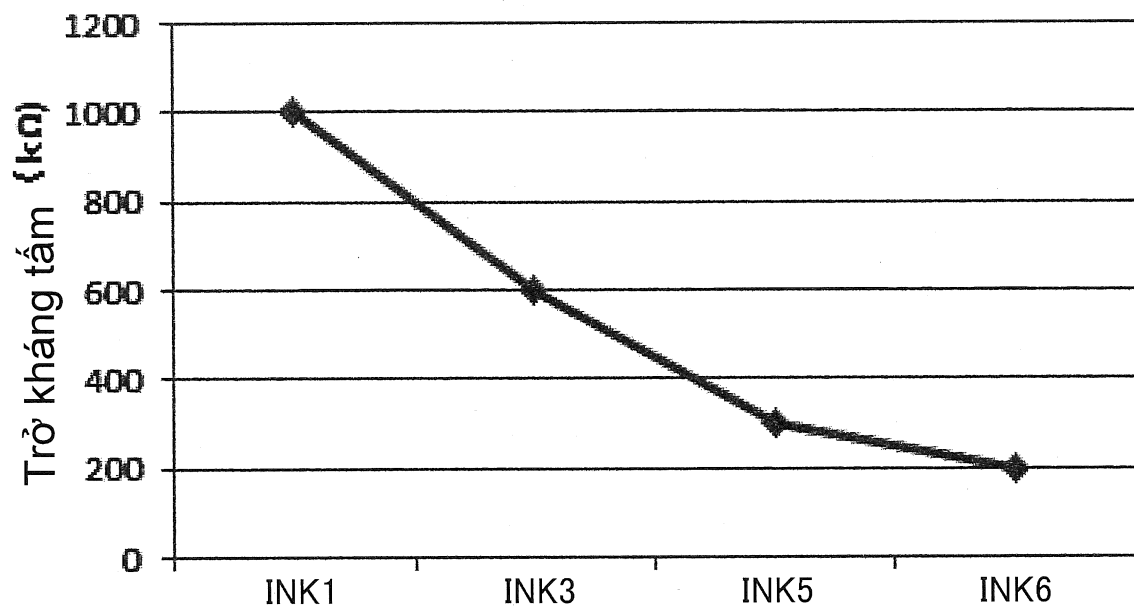


Fig. 17

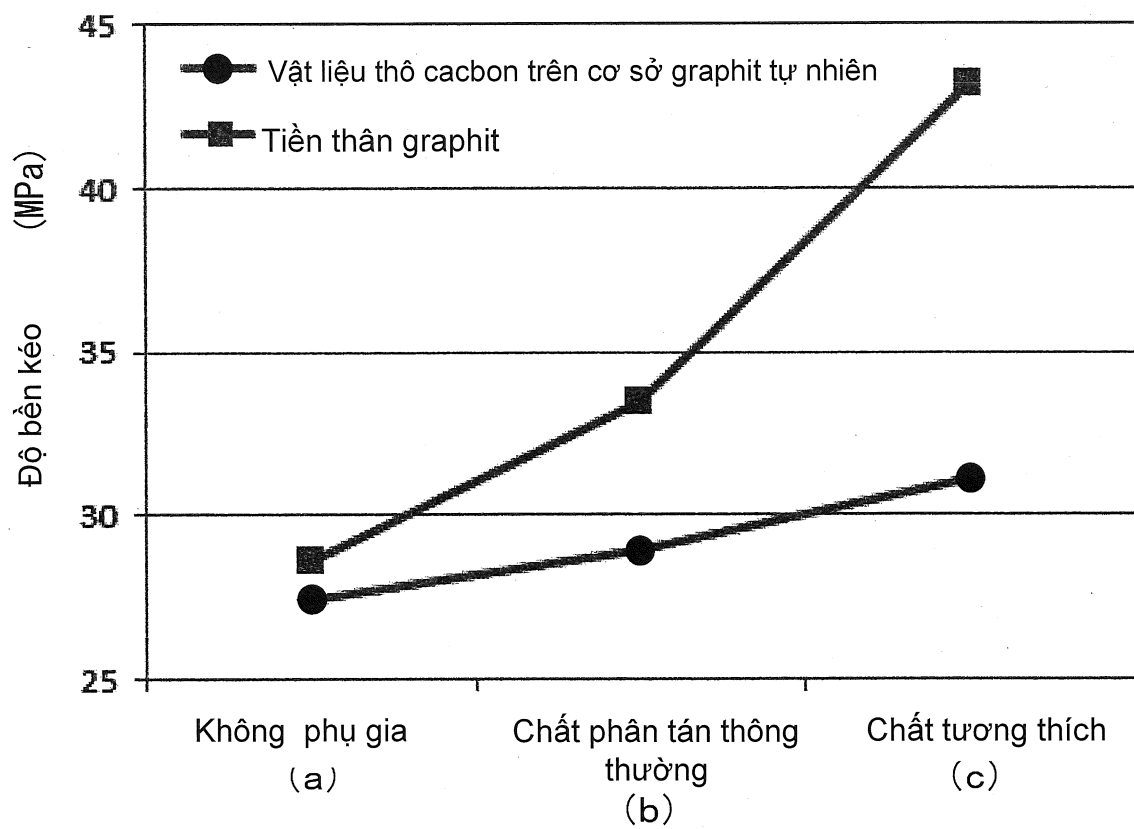
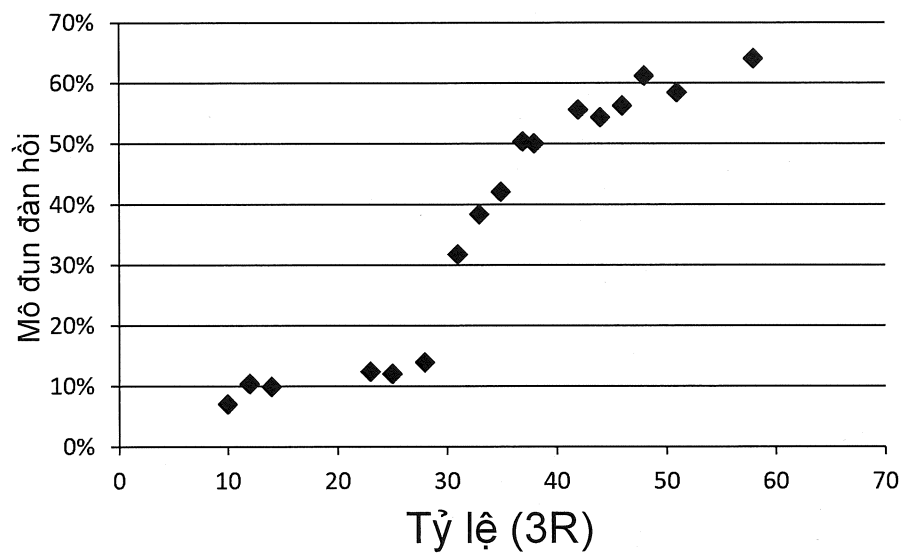


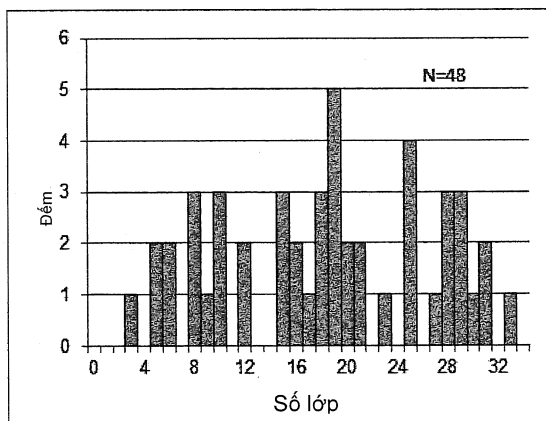
Fig. 18



19/28

Fig. 19

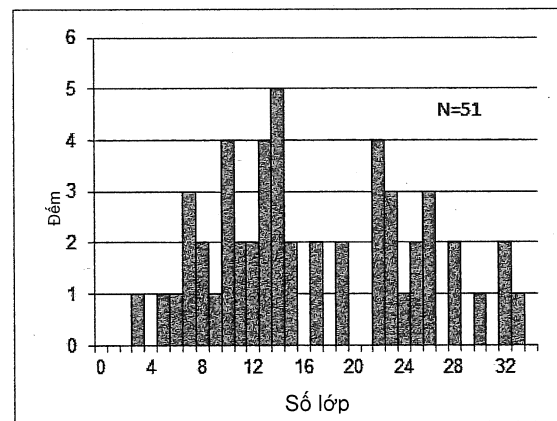
(a)



$$P3/(P3+P4)=28\%$$

Mười lớp hoặc ít hơn: 25%

(b)



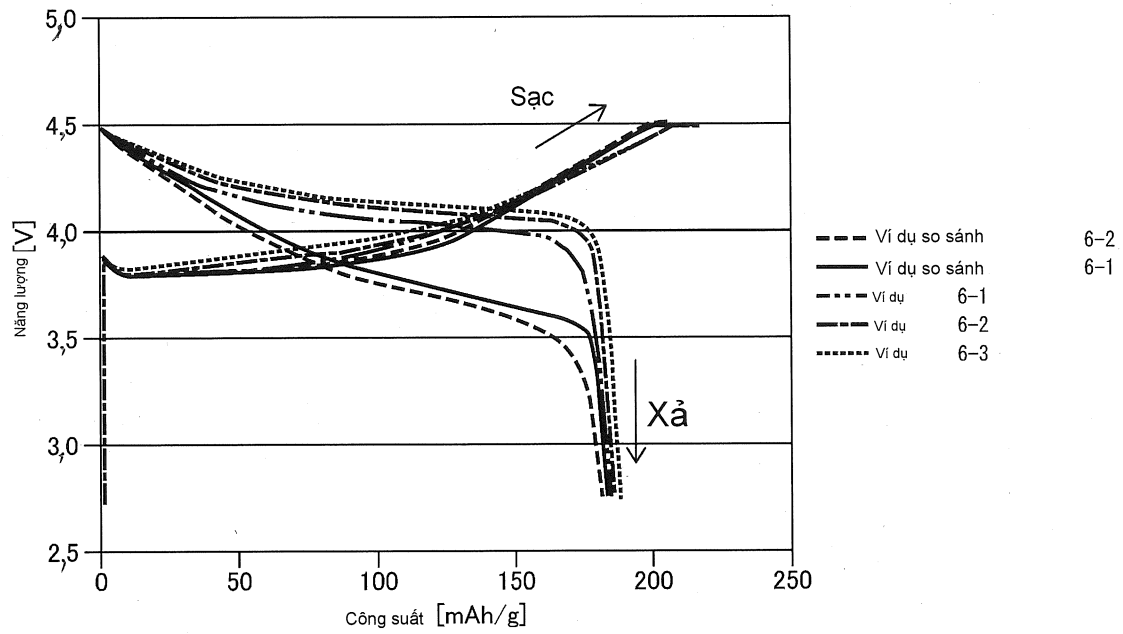
$$P3/(P3+P4)=31\%$$

Mười lớp hoặc ít hơn: 25%

Fig. 20

20/28

(a)



(b)

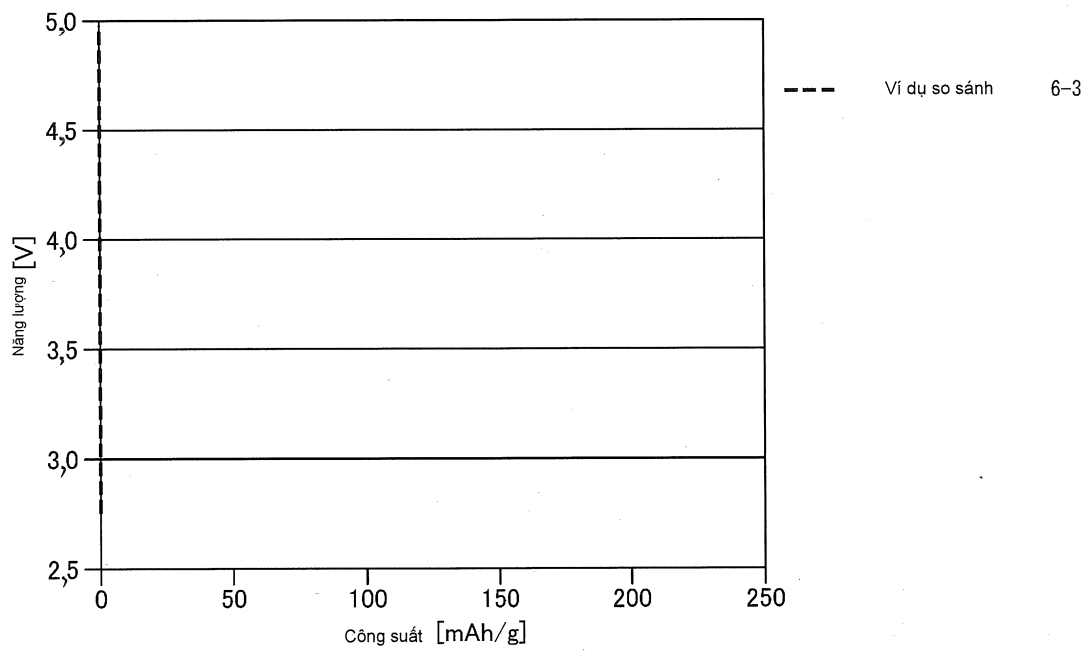
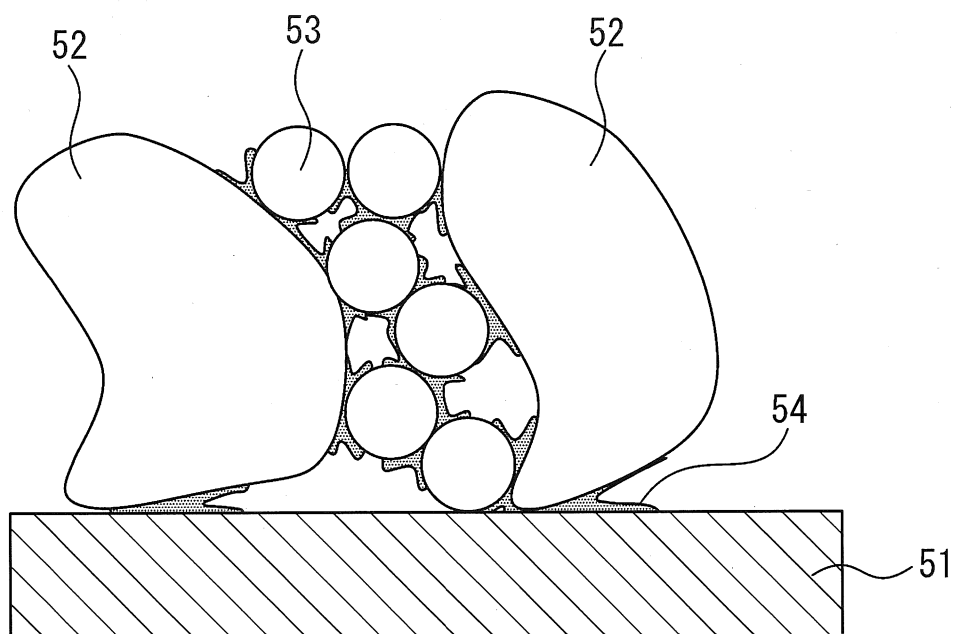
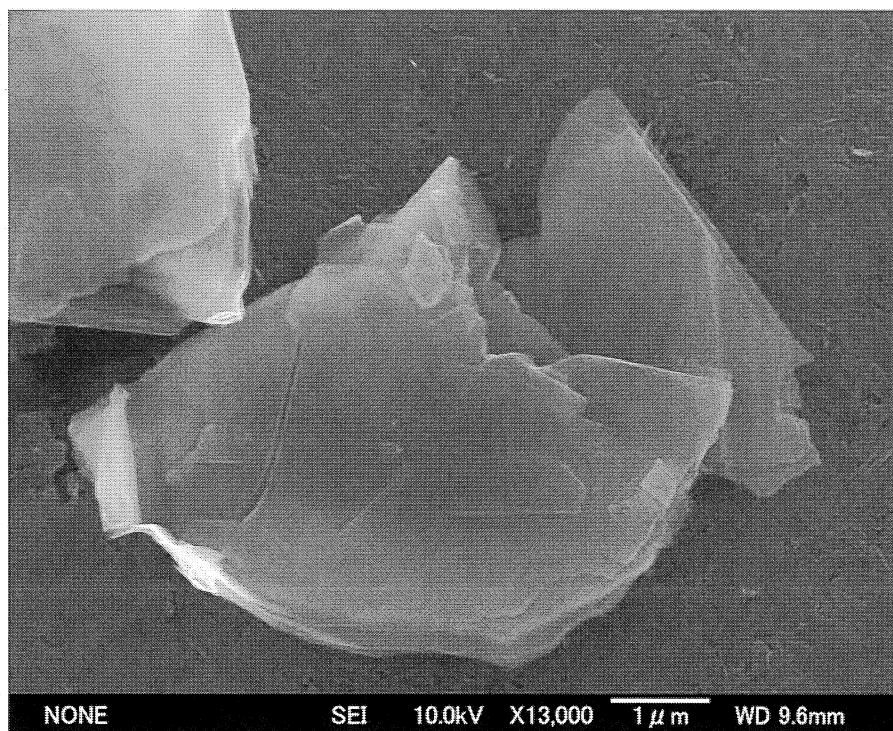


Fig. 21



22/28

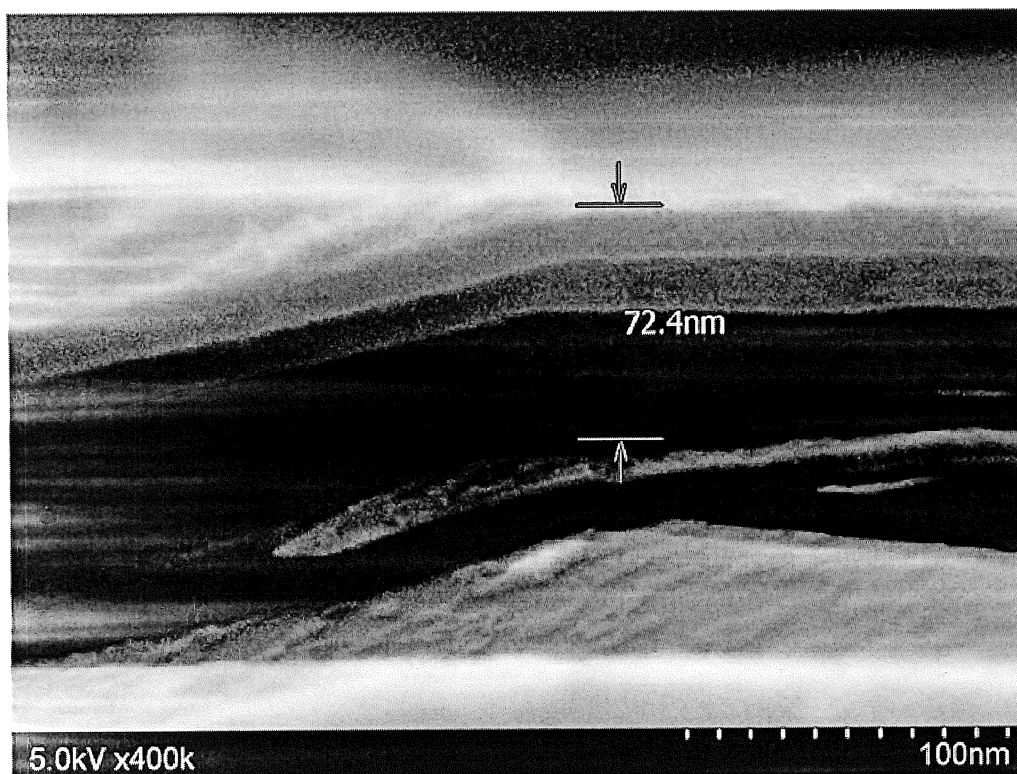
Fig. 22



31874

23/28

Fig. 23



24/28

Fig. 24

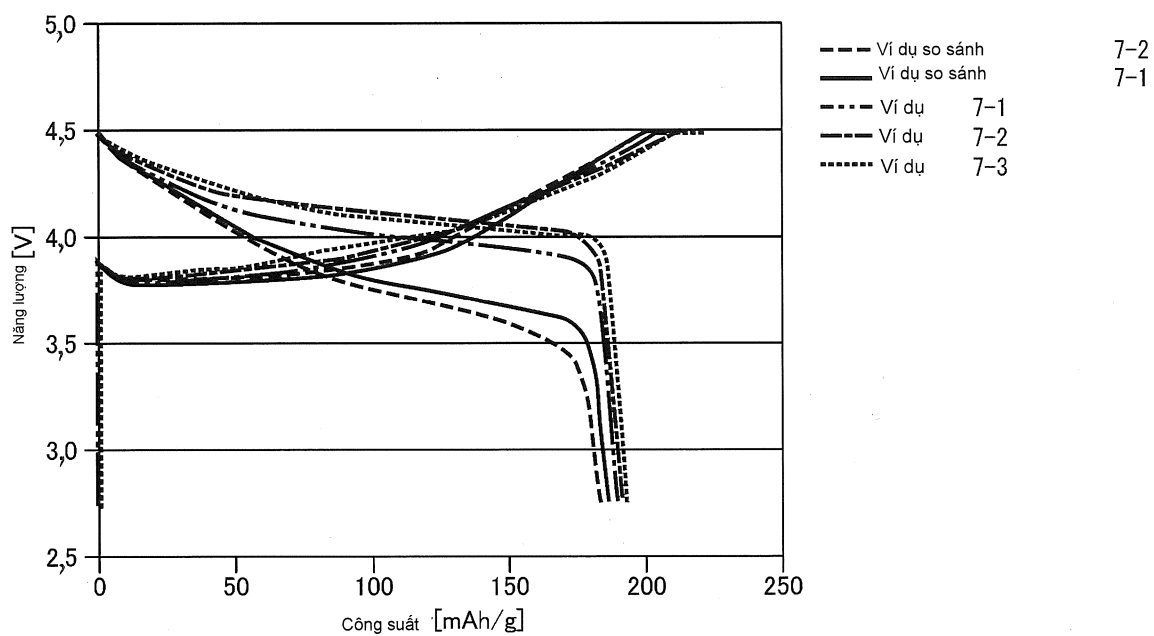
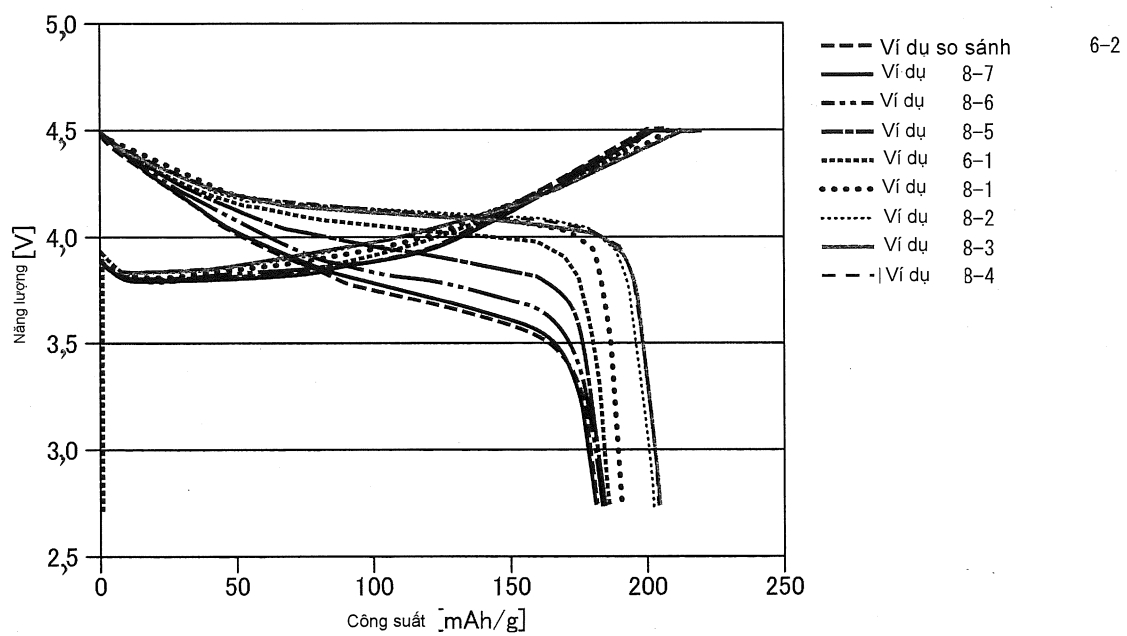


Fig. 25



26/28

Fig. 26

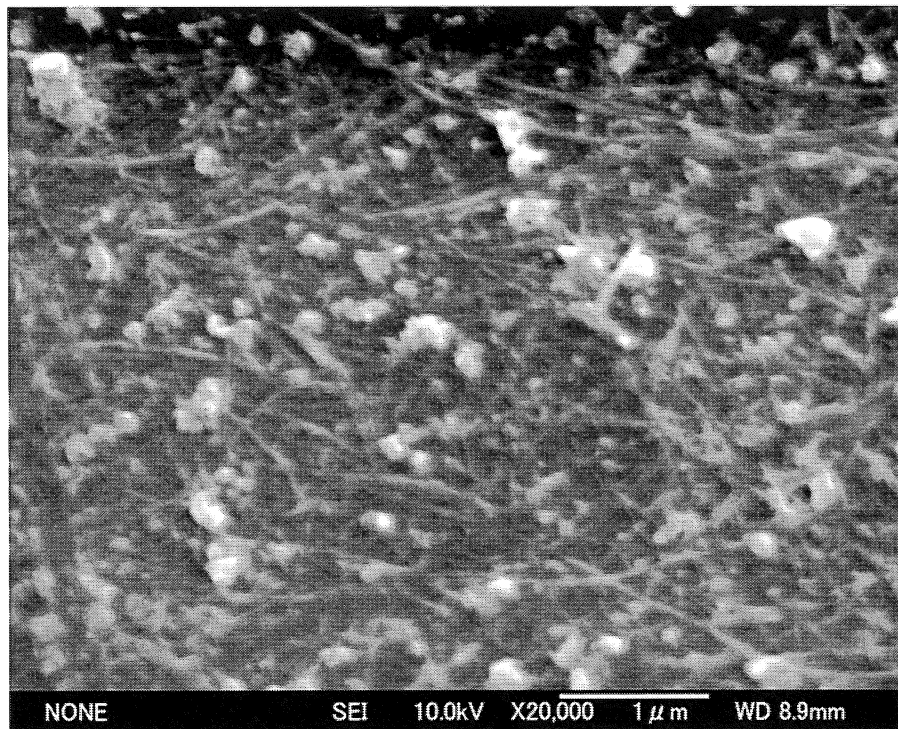
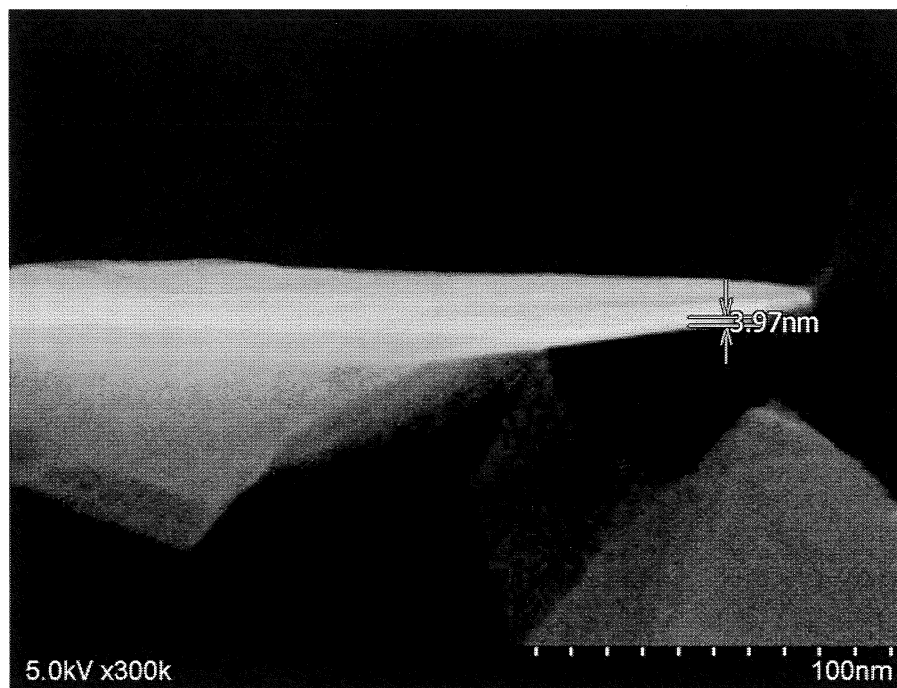


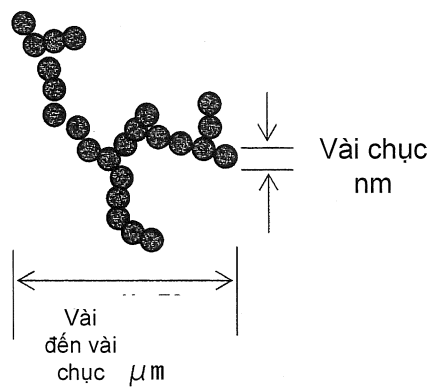
Fig. 27



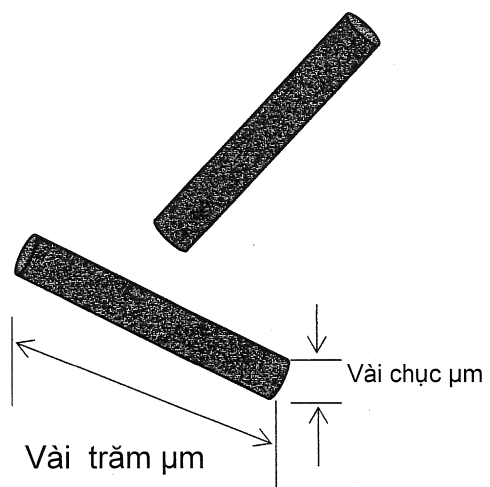
28/28

Fig. 28

(a)



(b)



(c)

