



(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)



1-0038363

(51)^{2020.01} C01B 32/16; C08L 7/00; B82Y 40/00

(13) B

(21) 1-2020-02254

(22) 27/09/2018

(86) PCT/SG2018/050491 27/09/2018

(87) WO 2019/066727 04/04/2019

(30) 10201707943S 27/09/2017 SG

(45) 25/01/2024 430

(43) 25/11/2020 392A

(73) AGENCY FOR SCIENCE, TECHNOLOGY AND RESEARCH (SG)

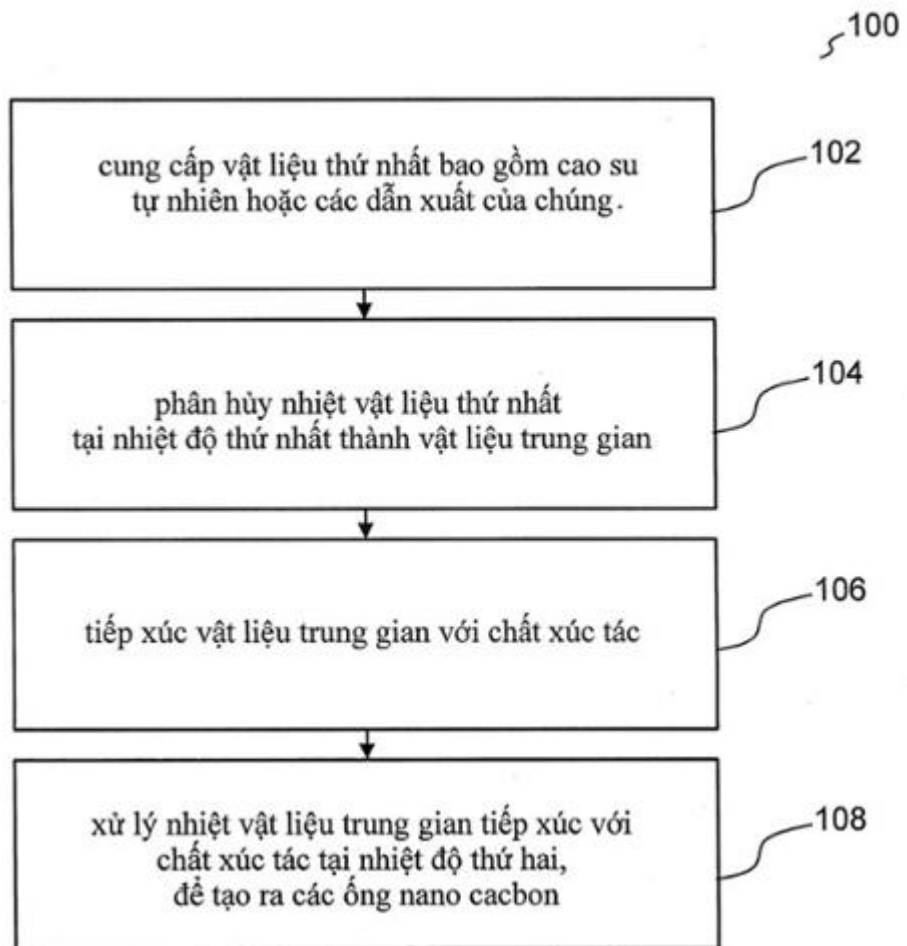
1 Fusionopolis Way, #20-10 Connexis North Tower, Singapore 138632

(72) LIN, Ming (CN); TANG, Yuanting Karen (SG); CHAI, Hui Teng Casandra (SG);
ZHONG, Ziyi (SG); LUO, Ji Zhong (SG).

(74) Công ty TNHH dịch vụ sở hữu trí tuệ DREWMARKS (DREWMARKS CO.,LTD.)

(54) PHƯƠNG PHÁP TỔNG HỢP ỐNG NANO CACBON TỪ CAO SU TỰ NHIÊN
VÀ PHƯƠNG PHÁP ĐIỀU CHỈNH ĐỂ ĐIỀU CHỈNH ĐẶC TÍNH TRUNG BÌNH
CỦA ỐNG NANO CACBON THU ĐƯỢC NÀY

(57) Sáng chế đề cập đến phương pháp tổng hợp ống nano cacbon từ cao su tự nhiên và phương pháp điều chỉnh để điều chỉnh đặc tính trung bình của ống nano cacbon thu được này. Phương pháp tổng hợp ống nano cacbon từ cao su tự nhiên, phương pháp bao gồm cung cấp vật liệu thứ nhất, vật liệu thứ nhất có thể bao gồm cao su tự nhiên hoặc dẫn suất của chúng, phân hủy nhiệt vật liệu thứ nhất tại nhiệt độ thứ nhất thành vật liệu trung gian, cho vật liệu trung gian tiếp xúc với chất xúc tác, xử lý vật liệu trung gian trong sự tiếp xúc với chất xúc tác tại nhiệt độ thứ hai, để tạo ra ống nano cacbon. Điều chỉnh đặc tính trung bình của các ống nano thu được, bao gồm thực hiện phương pháp tổng hợp như phương pháp tham chiếu và để giảm đường kính trung bình của các ống nano: giảm nhiệt độ thứ hai và/hoặc giảm thời gian phản ứng và/hoặc tăng nồng độ H₂ khi tạo ra khí so với phương pháp tham chiếu. Hoặc, để tăng đường kính trung bình của ống nano: tăng nhiệt độ thứ hai và/hoặc tăng thời gian phản ứng và/hoặc giảm nồng độ H₂ trong khí hình thành so với phương pháp tham chiếu.



Lĩnh vực kỹ thuật được đề cập

Sáng chế đề cập đến phương pháp tổng hợp ống nano cacbon từ cao su tự nhiên. Sáng chế đề cập đến phương pháp điều chỉnh để điều chỉnh đặc tính trung bình của ống nano cacbon thu được bằng phương pháp tổng hợp.

Tình trạng kỹ thuật của sáng chế

Các vật liệu nano cacbon một chiều có các ứng dụng công nghiệp quan trọng do các đặc điểm cơ khí và vật lý độc đáo của chúng. Ví dụ các sợi nano cacbon được sử dụng rộng rãi trong các sản phẩm hàng không vũ trụ, thể thao cao cấp và công nghiệp. Ống nano cacbon (CNT) là loại khác của vật liệu nano cacbon một chiều, mà bền hơn, nhẹ hơn, và dẫn điện tốt hơn các sợi nano cacbon. Các CNT có ứng dụng rộng hơn như cực điện trong suốt mà là thành phần thiết yếu của pin mặt trời hữu cơ, như cực điện ắc quy Li-ion, siêu tụ điện, bán dẫn hiệu quả về từ trường, và chất xúc tác, v.v.. Thị trường toàn cầu cho các cấp CNT khác nhau là 192 triệu đô năm 2011. Năm 2016, doanh thu được ước lượng là 527 triệu đô. Trong năm 2016, sản phẩm đầu ra ở Trung Quốc là khoảng 3000 tấn theo hệ mét. Hiện tại, cách truyền thống để tổng hợp CNT là từ việc phân hủy nhiệt nhiên liệu hóa thạch, hầu hết là hydrocacbon dạng khí (CH_4 , C_2H_4 , C_2H_2 v.v.), trên các chất xúc tác kim loại hoạt tính. Tuy nhiên, việc tổng hợp CNT sử dụng nhiên liệu hóa thạch không bền vững vì chúng phụ thuộc vào tài nguyên hạn chế.

Bản chất kỹ thuật của sáng chế

Các phương án khác nhau có thể đề xuất phương pháp để tổng hợp ống nano cacbon từ cao su tự nhiên, sau đây được đề cập đến là phương pháp tổng hợp. Phương pháp có thể còn bao gồm cung cấp vật liệu thứ nhất, vật liệu thứ hai có thể bao gồm cao su tự nhiên hoặc dẫn xuất của chúng. Phương pháp có thể còn bao gồm phân hủy nhiệt vật liệu thứ nhất tại nhiệt độ thứ nhất thành vật liệu trung gian. Phương pháp còn bao gồm cho vật liệu trung gian tiếp xúc với chất xúc tác. Phương pháp có thể còn bao gồm xử lý nhiệt vật liệu trung gian trong sự tiếp xúc với chất xúc tác tại nhiệt độ thứ hai, để tạo ra ống nano cacbon.

Các phương án khác có thể cung cấp phương pháp điều chỉnh để điều chỉnh đặc tính trung bình của các ống nano thu được được sản xuất bởi phương pháp tổng hợp. Phương pháp điều chỉnh có thể bao gồm thực hiện phương pháp tổng hợp như phương pháp tham chiếu và để giảm đường kính trung bình của các ống nano, phương pháp điều chỉnh có thể bao gồm giảm nhiệt độ thứ hai và/hoặc giảm thời gian phản ứng và/hoặc tăng nồng độ H_2 khi tạo ra khí so với phương pháp tham chiếu. Cách khác, phương pháp điều chỉnh có thể bao gồm thực hiện phương pháp tổng hợp như phương pháp tham chiếu và tăng đường kính trung bình của các ống nano, phương pháp điều chỉnh có thể còn tăng nhiệt độ thứ hai và/hoặc tăng thời gian phản ứng và/hoặc giảm nồng độ H_2 khi tạo ra khí so với phương pháp tham chiếu.

Mô tả vắn tắt các hình vẽ

Sáng chế tốt hơn nên được hiểu khi viện dẫn đến phần mô tả chi tiết khi được cân nhắc cùng với các ví dụ không hạn chế và các hình vẽ kèm theo, trong đó:

FIG.1 thể hiện sơ đồ giản lược minh họa phương pháp 100 để tổng hợp ống nano cacbon theo các phương án khác nhau;

FIG.2 thể hiện sơ đồ giản lược minh họa quy trình 200 để tạo ra chất xúc tác, theo các phương án khác nhau;

FIG.3 thể hiện hình chiếu giản lược của lò phản ứng 300 minh họa để thực hiện ít nhất một trong số các bước: phân hủy vật liệu thứ nhất, xử lý nhiệt vật liệu thứ nhất, nung khô tiền chất xúc tác, giảm tiền chất xúc tác, theo các phương án khác nhau;

FIG.4 thể hiện biểu đồ 400 với các kết quả phân tích nhiệt trọng trường (thermogravimetric analysis - TGA) của cao su tự nhiên;

FIG.5 thể hiện biểu đồ nhiễu xạ tia X (X-ray diffraction - XRD) cho các mẫu chất xúc tác khác nhau ở dạng khối và thời gian và nhiệt độ giảm khác nhau theo các phương án khác nhau.

FIG.6 thể hiện các ảnh từ kính hiển vi điện tử truyền qua (transmission electron microscopy - TEM) cho các mẫu khác nhau của chất xúc tác được giảm tại các nhiệt độ khác nhau theo các phương án khác nhau.

FIG.7 thể hiện các ảnh từ kính hiển vi điện tử truyền qua (transmission electron microscopy - TEM) cho các mẫu khác nhau của chất xúc tác sau các thời gian giảm

khác nhau theo các phương án khác nhau.

FIG.8 thể hiện ảnh kính hiển vi điện tử quét (scanning electron microscopy - SEM) và ảnh TEM của CNT thu được trong ví dụ thứ nhất theo các phương án khác nhau.

FIG.9 thể hiện ảnh kính hiển vi điện tử quét (scanning electron microscopy - SEM) và ảnh TEM của CNT thu được trong ví dụ thứ hai theo các phương án khác nhau.

FIG.10 thể hiện ảnh kính hiển vi điện tử quét (scanning electron microscopy - SEM) và ảnh TEM của CNT thu được trong ví dụ thứ ba theo các phương án khác nhau.

Mô tả chi tiết sáng chế

Mô tả chi tiết sau đây đề cập đến các hình vẽ mà thể hiện, dưới dạng minh họa, các chi tiết và phương án cụ thể trong đó sáng chế có thể được thực nghiệm. Các phương án này được mô tả chi tiết cụ thể để cho phép người có hiểu biết trong lĩnh vực kỹ thuật để thực nghiệm sáng chế. Các phương án khác có thể được sử dụng và tạo cấu trúc, các thay đổi logic có thể được thực hiện mà không vượt ra khỏi phạm vi của sáng chế. Các phương án khác nhau không nhất thiết phải loại trừ lẫn nhau, vì một số phương án có thể được tổ hợp với một hoặc nhiều phương án khác để tạo ra các phương án mới.

Các dấu hiệu mô tả trong ngữ cảnh của phương án có thể tương ứng được áp dụng với các dấu hiệu tương tự hoặc giống hệt trong các phương án khác. Các dấu hiệu mô tả trong ngữ cảnh của phương án có thể tương ứng được áp dụng với các phương án khác, thậm chí nếu không được nêu rõ trong các phương án này. Hơn nữa, việc bổ sung và/hoặc tổ hợp và/hoặc thay thế như được mô tả cho dấu hiệu trong ngữ cảnh của phương án có thể tương ứng được áp dụng với các dấu hiệu tương tự hoặc giống hệt trong các phương án khác.

Trong ngữ cảnh của các phương án khác nhau, các mạo từ được sử dụng đối với dấu hiệu hoặc phần tử bao gồm sự tham chiếu đến một hoặc nhiều dấu hiệu hoặc phần tử.

Như được sử dụng ở đây, thuật ngữ "và/hoặc" bao gồm bất kỳ và tất cả các tổ

hợp của một hoặc nhiều mục trong số các mục được liệt kê kèm theo.

Các khía cạnh của sáng chế có thể đề cập đến phương pháp để tổng hợp ống nano cacbon trực tiếp từ cao su tự nhiên dạng rắn bao gồm gel, ví dụ, sol gel, hoặc điều chế dung dịch của chất xúc tác (ví dụ, chất xúc tác kim loại chuyển tiếp) và quy trình hai bước để phân hủy cao su và sự gia tăng CNT. Cao su tự nhiên, hoặc rác thải của cao su tự nhiên, có thể được sử dụng như nguồn cacbon để tạo ra các CNT.

Như được sử dụng ở đây và theo các phương án khác, thuật ngữ “khoảng” liên quan đến giá trị số học đã cho, như đối với nhiệt độ và khoảng thời gian, có nghĩa là bao gồm các giá trị số học trong khoảng $\pm 10\%$ của giá trị số học đã cho cụ thể và để bao quanh giá trị số học đã cho cụ thể.

Như được sử dụng ở đây và cùng với các phương án khác, thuật ngữ “về cơ bản” và biến thể của nó, được định nghĩa là ít nhất 10% trọng lượng, tốt hơn là ít nhất 30% trọng lượng, tốt hơn nữa là ít nhất 50% trọng lượng của tổng trọng lượng. Ví dụ, “về cơ bản bao gồm cao su tự nhiên” có thể có nghĩa là ít nhất là 10% trọng lượng, tốt hơn là ít nhất 30% trọng lượng, tốt hơn nữa là ít nhất 50% trọng lượng của tổng trọng lượng là cao su tự nhiên.

Theo các phương án khác nhau, vật liệu thứ nhất có thể về cơ bản bao gồm hoặc có thể bao gồm cao su tự nhiên hoặc dẫn xuất của chúng. Trong các phương án khác nhau, cao su tự nhiên có thể đề cập đến mủ cao su như thu được từ thực vật, tốt hơn là cây, và từ các tầng xử lý trước khi lưu huỳnh được thêm vào. Do đó, theo các phương án khác nhau, cao su tự nhiên có thể thu được từ các bước xử lý cao su tự nhiên, giữa lúc thu thập mủ cao su tự nhiên, ví dụ, từ cây, và trước khi lưu huỳnh được thêm vào, ví dụ, trước bước nung khô. Ví dụ, mủ cao su có thể là mủ cao su đông tụ. Cao su tự nhiên có thể đề cập đến mủ cao su tự nhiên, tốt hơn là từ cây cao su *Hevea brasiliensis*. Trong các phương án khác nhau, nồng độ nước trong cao su tự nhiên hoặc dẫn xuất của chúng có thể nhỏ hơn 1% trọng lượng. Trong các phương án khác nhau, vật liệu thứ nhất có thể bao gồm cao su được nung khô với lượng nhỏ hơn 10% trọng lượng. Trong các phương án khác nhau, nồng độ nước của vật liệu thứ nhất có thể nhỏ hơn 1% trọng lượng. Ví dụ, cao su tự nhiên chứa vật liệu có thể đã được sấy trước khi được cung cấp như vật liệu thứ nhất. Vật liệu thứ nhất có thể là rác thải thu được từ việc xử lý cao su tự nhiên, hoặc đơn giản là “rác thải cao su tự nhiên”, có thể, ví dụ,

được lựa chọn từ nhóm bao gồm: mủ cao su, mủ cao su đông tụ. Trong một ví dụ, cao su tự nhiên hoặc dẫn xuất của chúng có thể được lựa chọn từ nhóm bao gồm một hoặc nhiều chất: mủ cao su, mủ cao su tự nhiên, cao su tái chế (từ cao su tự nhiên) được xử lý để loại bỏ lưu huỳnh.

Thành phần chính của cao su tự nhiên là polyisopren, cùng với tạp chất có lượng nhỏ, như protein, lipid tự nhiên, và các hợp chất vô cơ. Polyisopren bao gồm chuỗi dài các phân tử isopren lặp đi lặp lại. Khối lượng mol của polyisopren trong cao su nằm trong khoảng từ khoảng 50.000 đến khoảng 30.000.000g/mol. Cao su tự nhiên có thể được phân biệt với cao su tổng hợp, như cao su tổng hợp có nhiệt độ phân hủy cao hơn.

Theo các phương án khác nhau, dẫn xuất cao su tự nhiên có thể là cao su được tái chế. Cao su tái chế có thể là cao su được xử lý để lưu huỳnh được loại bỏ, ví dụ, phương pháp có thể bao gồm xử lý cao su để loại bỏ lưu huỳnh để giảm lượng lưu huỳnh.

FIG.1 thể hiện sơ đồ giản lược minh họa phương pháp 100 để tổng hợp ống nano cacbon theo các phương án khác nhau. Trong bước 102, vật liệu thứ nhất có thể được cung cấp. Vật liệu thứ nhất có thể bao gồm cao su tự nhiên thứ nhất hoặc dẫn xuất của chúng. Trong bước 104 khác, vật liệu thứ nhất có thể được phân hủy nhiệt, tại nhiệt độ thứ nhất, thành vật liệu trung gian. Vật liệu trung gian có thể bay hơi và có thể được vận chuyển bởi dòng khí. Trong bước 106 khác, vật liệu trung gian có thể được tiếp xúc với chất xúc tác và trong bước 108, vật liệu trung gian tiếp xúc với chất xúc tác có thể được xử lý nhiệt, tại nhiệt độ thứ hai, nhờ đó tạo ra ống nano cacbon. Các bước 106 và 108 có thể được thực hiện đồng thời.

Theo các phương án khác nhau, sự phân hủy nhiệt của vật liệu thứ nhất có thể được thực hiện ở vị trí thứ nhất. Vị trí thứ nhất có thể là lò nung thứ nhất, ví dụ, vị trí thứ nhất có thể là phần thứ nhất của lò nung thứ nhất.

Theo các phương án khác nhau, sự phân hủy nhiệt của vật liệu thứ nhất thành vật liệu trung gian được thực hiện tại nhiệt độ thứ nhất. Nhiệt độ thứ nhất có thể được lựa chọn nằm trong khoảng từ khoảng 200°C đến khoảng 500°C, ví dụ, từ khoảng 250°C đến khoảng 450°C, và ví dụ từ khoảng 350°C đến khoảng 420°C.

Theo các phương án khác nhau, xử lý nhiệt vật liệu trung gian có thể được thực

hiện ở vị trí thứ hai. Vị trí thứ hai có thể khác với vị trí thứ nhất. Vị trí thứ hai có thể được lựa chọn từ: lò nung thứ hai hoặc phần thứ hai của lò nung thứ nhất. Ví dụ, vị trí thứ nhất có thể là phần thứ nhất của lò nung thứ nhất và vị trí thứ hai có thể là phần thứ hai của lò nung thứ nhất.

Theo các phương án khác nhau, thời gian trong suốt sự xử lý nhiệt của vật liệu trung gian tiếp xúc với chất xúc tác có thể cũng được đề cập đến như thời gian phản ứng. Ví dụ, thời gian phản ứng có thể kéo dài từ khoảng 10 phút đến 2 giờ, và ví dụ khác từ khoảng 10 phút đến khoảng 50 phút.

Theo các phương án khác, xử lý nhiệt vật liệu trung gian có thể được thực hiện tại nhiệt độ thứ hai, ví dụ, tiếp xúc với chất xúc tác. Nhiệt độ thứ hai có thể được lựa chọn nằm trong khoảng từ khoảng 600°C đến khoảng 800°C, ví dụ từ khoảng 650°C đến khoảng 800°C.

Theo các phương án khác nhau, ít nhất một trong số (i) phân hủy nhiệt vật liệu thứ nhất và (ii) xử lý nhiệt vật liệu trung gian, được thực hiện dưới khí hình thành. Khí hình thành có thể được cung cấp như dòng khí. Khí hình thành có thể là khí trơ, ví dụ, khí nitơ (N_2) hoặc argon.

Thuật ngữ “khí trơ” được hiểu rộng là bao gồm khí bất kỳ mà không tạo ra liên kết hóa học khi được sử dụng trong phân hủy bay hơi hóa học. Khí trơ minh họa bao gồm khí hiếm nhưng không bao gồm các khí khác miễn là không có các liên kết hóa học được hình thành.

Theo các phương án khác nhau, dòng có thể từ vị trí thứ nhất đến vị trí thứ hai, và vật liệu trung gian có thể được thực hiện bằng dòng từ vị trí thứ nhất đến vị trí thứ hai. Ví dụ, khí hình thành có thể vận chuyển vật liệu trung gian từ vị trí thứ nhất đến vị trí thứ hai, và nhờ đó, sau khi vật liệu thứ nhất được phân hủy, vật liệu trung gian có thể được xử lý nhiệt trong vị trí thứ hai. Sự phân hủy nhiệt của cao su rắn dẫn đến dầu và/hoặc khí bay hơi, ví dụ, dầu bay hơi có thể bao gồm 4 đến 7 bộ phận isopren.

Ống nano cacbon được tạo ra trong suốt sự xử lý nhiệt vật liệu trung gian tiếp xúc với chất xúc tác tại nhiệt độ thứ hai. Theo các phương án khác, phương pháp có thể còn bao gồm phân tách ống nano cacbon từ các phần dư còn lại của phản ứng.

FIG.2 thể hiện sơ đồ giản lược minh họa quy trình 200 để tạo ra chất xúc tác, mà

việc xử lý có thể nằm trong phương pháp tổng hợp, theo các phương án khác nhau. Trong bước xử lý 202, chất xúc tác có thể được cung cấp ở dạng gel, ví dụ, sol gel, hoặc dung dịch. Bước xử lý 204 khác có thể bao gồm sấy gel hoặc dung dịch nhờ đó thu được vật liệu được sấy. Một cách tùy chọn, vật liệu được sấy có thể được nghiền. Bước xử lý 206 có thể nung khô tiền chất xúc tác, nói cách khác, nung khô vật liệu được sấy, hoặc vật liệu được sấy đã nghiền. Bước xử lý 208 có thể bao gồm việc giảm tiền chất xúc tác nhờ đó tạo ra chất xúc tác.

Theo các phương án khác nhau, chất xúc tác có thể được cung cấp như tiền chất xúc tác, ví dụ, trong vị trí thứ hai, và có thể còn được chuyển đổi thành chất xúc tác, ví dụ, trong vị trí thứ hai. Chuyển đổi tiền chất xúc tác thành chất xúc tác có thể bao gồm các bước phương pháp là nung khô vật liệu được sấy do đó thu được vật liệu được nung khô và khử vật liệu được nung khô, bước chuyển đổi có thể, ví dụ, được thực hiện trong vị trí thứ hai. Nhờ đó, tiền chất xúc tác có thể được cung cấp và chuyển đổi trong vị trí thứ hai, trong lò phản ứng, mà không yêu cầu sự vận chuyển giữa địa điểm khác nhau, do đó làm đơn giản quy trình.

Theo các phương án khác nhau, phương pháp có thể còn bao gồm tạo ra chất xúc tác, trong đó việc tạo ra chất xúc tác có thể bao gồm tạo ra gel, ví dụ, với quy trình sol gel, hoặc dung dịch. Do đó, tiền chất xúc tác có thể được cung cấp như gel, ví dụ như gel được sấy và nghiền, trong ít nhất một bước hình thành.

Theo các phương án khác nhau, ít nhất thành phần thứ nhất và chất phức có thể được sử dụng để tạo ra gel hoặc dung dịch. Ví dụ, thành phần thứ nhất có thể được đề xuất dưới dạng của muối nitrat thành phần thứ nhất. Thành phần thứ nhất có thể là kim loại chuyển tiếp hoặc kim loại hỗn hợp, mà có thể được lựa chọn từ: kim loại chuyển tiếp, kim loại hiếm, ví dụ, được lựa chọn từ ít nhất một trong số: Ni, Fe, Co. Muối nitrat thành phần thứ nhất có thể được lựa chọn từ ít nhất một trong số muối nitrat của Ni, muối nitrat của Fe, muối nitrat của Co.

Theo các phương án khác nhau, chất phức có thể là axit citric hoặc chất phù hợp khác.

Trong một số phương án, ít nhất thành phần thứ hai ở dạng của muối nitrat thành phần thứ hai có thể được sử dụng để hình thành gel hoặc dung dịch, ví dụ thêm vào thành phần thứ nhất và chất phức. Thành phần thứ hai có thể được lựa chọn từ nhóm

Al, Si, Mg, L, La, và tổ hợp của chúng. Như được sử dụng ở đây và phù hợp với các phương án khác nhau, “L” có thể đề cập đến nguyên tố, hoặc tổ hợp của các nguyên tố, được lựa chọn từ họ lanthanit. Một ví dụ của L là lanthanum (La).

Theo các phương án khác nhau, thành phần thứ nhất và thứ hai phản ứng với nhau để tạo ra tiền chất xúc tác.

Theo các phương án khác nhau, thành phần thứ hai có thể được biến đổi thành oxit, ví dụ trong khi nung khô. Oxit có thể được chọn từ ít nhất một trong số: Al_2O_3 , SiO_2 , MgO , La_2O_3 . Các oxit này có thể đóng vai trò chất hỗ trợ trong chất xúc tác.

Theo các phương án khác nhau, phương pháp có thể còn bao gồm sấy (do đó thu được vật liệu được sấy), tùy chọn nghiền, và nung khô gel hoặc dung dịch, do đó thu được vật liệu được nung khô. Phương pháp có thể còn bao gồm khử vật liệu được nung khô, để giải phóng thành phần trong trạng thái nguyên tố như các hạt, ví dụ, các hạt kim loại, nhờ đó tạo ra chất xúc tác. Trong một số phương án, ít nhất một trong số bước sấy, nung khô, giảm, có thể được thực hiện trong vị trí thứ hai, mà không yêu cầu loại bỏ trước khi sử dụng chất xúc tác để tạo ra ống nano cacbon.

Theo các phương án khác nhau, nhiệt độ sấy được sử dụng khi sấy có thể được lựa chọn từ khoảng 60°C đến khoảng 120°C .

Theo các phương án khác nhau, nhiệt độ nung khô được sử dụng trong khi nung khô có thể được lựa chọn nằm trong khoảng từ khoảng 500°C đến khoảng 800°C . Bước nung khô có thể được thực hiện trong khí bao gồm khí oxy, ví dụ, bao gồm hoặc chứa không khí.

Theo các phương án khác nhau, bước khử có thể được thực hiện với sự có mặt của khí hydro, ví dụ, với dòng khí trơ được trộn với H_2 . Ví dụ của khí trơ là N_2 .

Theo các phương án khác nhau, nhiệt độ trong bước khử có thể được lựa chọn nằm trong khoảng từ khoảng 650°C đến khoảng 800°C .

Theo các phương án khác nhau, chất xúc tác có thể bao gồm kim loại đơn và hoặc hạt kim loại hỗn hợp, mà có thể được lựa chọn từ: kim loại chuyển tiếp, kim loại hiếm, ví dụ, các hạt Ni hoặc FeNi. Chất xúc tác có thể được cung cấp ở dạng các hạt chất xúc tác, ví dụ, bao gồm nhiều hơn một loại kim loại, ví dụ, được lựa chọn từ nhóm bao gồm: kim loại chuyển tiếp, kim loại hiếm. Chất xúc tác có thể bao gồm chất

hỗ trợ, như oxit nhôm, ví dụ, Al_2O_3 .

Như được sử dụng ở đây và theo các phương án khác nhau, (các) nhiệt độ có thể đề cập đến (các) nhiệt độ được đo tại vật liệu, tốt hơn là thể rắn hoặc thể lỏng, được xử lý. Ví dụ, nhiệt độ sấy của cao su tự nhiên có thể đề cập đến nhiệt độ được đo tại cao su tự nhiên đang được sấy. Ví dụ, nhiệt độ nung khô của gel hoặc dung dịch có thể đề cập đến nhiệt độ được đo tại vật liệu được sấy đang được nung khô. Ví dụ, nhiệt độ của bước khử của chất xúc tác có thể đề cập đến nhiệt độ được đo tại tiền chất xúc tác đang được giảm. Ví dụ, nhiệt độ thứ hai (cũng được gọi là nhiệt độ hình thành) có thể đề cập đến nhiệt độ được đo tại chất xúc tác trong khi ống nano cacbon đang được hình thành. Ví dụ, nhiệt độ của bước phân hủy của cao su tự nhiên có thể đề cập đến nhiệt độ được đo tại cao su tự nhiên đang được phân hủy.

Theo các phương án khác nhau, các bước phương pháp khác nhau của phương pháp được mô tả bất kỳ có thể được thực hiện tại áp suất môi trường, ví dụ tại áp suất khoảng 101325 Pa.

Theo các phương án khác nhau, chất xúc tác được sử dụng có thể được tái chế để sản xuất chất xúc tác mới. Theo đó, phương pháp theo các phương án khác nhau có thể bao gồm tái chế chất xúc tác được sử dụng để sản xuất chất xúc tác mới.

Phương pháp tổng hợp có thể dễ dàng được thích ứng để điều chỉnh đặc tính của các ống nano thu được, ví dụ, đối với các ống nano thu được có đường kính nhất định.

Các phương án khác có thể cung cấp phương pháp điều chỉnh để điều chỉnh đặc tính trung bình của các ống nano thu được được sản xuất bởi phương pháp tổng hợp. Phương pháp điều chỉnh có thể bao gồm thực hiện phương pháp phân tích như phương pháp tham chiếu, với nhiệt độ thứ hai như nhiệt độ thứ hai tham chiếu, thời gian phản ứng tham chiếu, và nồng độ tham chiếu của H_2 trong khí hình thành, nhờ đó tạo ra ống nano cacbon bao gồm đường kính trung bình tham chiếu. Phương pháp điều chỉnh có thể còn bao gồm điều chỉnh ít nhất một trong số: nhiệt độ thứ hai thành nhiệt độ thứ hai được điều chỉnh, thời gian phản ứng thành thời gian phản ứng được điều chỉnh, nồng độ của H_2 trong khí hình thành thành nồng độ được điều chỉnh, nhờ đó cung cấp các tham số tổng hợp được điều chỉnh. Phương pháp điều chỉnh có thể còn bao gồm thực hiện phương pháp tổng hợp với các tham số tổng hợp được điều chỉnh, nhờ đó tạo ra ống nano cacbon với đường kính trung bình được điều chỉnh.

Trong một số phương án, ít nhất một trong số các bước sau có thể được đề xuất để sản xuất ống nano cacbon bao gồm đường kính trung bình được điều chỉnh nhỏ hơn đường kính trung bình tham chiếu: nhiệt độ thứ hai được điều chỉnh thấp hơn nhiệt độ thứ hai tham chiếu; thời gian phản ứng được điều chỉnh ngắn hơn thời gian phản ứng tham chiếu; nồng độ được điều chỉnh lớn hơn nồng độ tham chiếu. Cách khác, trong một số phương án, ít nhất một trong số các bước sau có thể được đề xuất để sản xuất ống nano cacbon bao gồm đường kính trung bình được điều chỉnh lớn hơn đường kính trung bình tham chiếu: nhiệt độ thứ hai được điều chỉnh cao hơn nhiệt độ thứ hai tham chiếu; thời gian phản ứng được điều chỉnh dài hơn thời gian phản ứng tham chiếu; nồng độ được điều chỉnh nhỏ hơn nồng độ tham chiếu.

FIG.3 thể hiện hình chiếu giản lược của lò phản ứng 300 minh họa để thực hiện ít nhất một trong số các bước: phân hủy vật liệu thứ nhất, xử lý nhiệt vật liệu thứ nhất, nung khô tiền chất xúc tác, giảm tiền chất xúc tác, theo các phương án khác nhau. FIG.3 thể hiện lò phản ứng 300 bao gồm vị trí thứ nhất 322 trong đó vật liệu thứ nhất có thể được cung cấp, ví dụ, trong ống phản ứng bằng thạch anh, và vị trí thứ hai 332 trong đó chất xúc tác có thể được cung cấp hoặc tiền chất xúc tác có thể được cung cấp và chuyển đổi thành chất xúc tác, ví dụ, trong ống phản ứng bằng thạch anh. Đối với mục đích minh họa, trong ví dụ được thể hiện trên FIG.3, vị trí thứ nhất 322 được thể hiện nằm trong lò phản ứng thứ nhất 320 và vị trí thứ hai 332 được thể hiện nằm trong lò phản ứng thứ hai 330. Cách khác, vị trí thứ hai có thể được định vị trong lò phản ứng thứ nhất, và ví dụ, vật liệu thứ nhất và chất xúc tác có thể nằm trong cùng ống phản ứng thạch anh, và lò đốt thứ hai có thể không nhất thiết được yêu cầu. FIG.3 cũng thể hiện đường dòng 304 cho khí 302, ví dụ, khí hình thành, mà có thể chảy từ vị trí thứ nhất 322 đến vị trí thứ hai 332.

Ví dụ thực hiện sáng chế

Kết quả thử nghiệm

Các thí nghiệm được thực hiện sử dụng lò phản ứng như được thể hiện trên FIG.3. các ống phản ứng bằng thạch anh được làm nóng riêng lẻ bằng lò nung điện, với nhiệt độ hoàn toàn được điều khiển và kiểm soát. Chất xúc tác đầu tiên được giảm trong lò đốt phía trên bằng dòng khí nitơ/khí hydro và sau đó được sử dụng cho phản ứng xúc tác. Sự phân hủy cao su được thực hiện trong lò đốt phía dưới, với dòng khí

nitơ được đưa từ bên dưới lò phản ứng. Do đó, sau khi đưa vật liệu thứ nhất và tiền chất xúc tác, tiền chất xúc tác có thể được chuyển đổi thành chất xúc tác và các ống nano có thể được tổng hợp mà không cần yêu cầu mở lò phản ứng.

Sự phân hủy cao su

FIG.4 thể hiện sơ đồ 400 với các kết quả phân tích nhiệt trọng trường (thermogravimetric analysis - TGA) của cao su tự nhiên. Trục hoành 402 biểu diễn nhiệt độ theo đơn vị Celsius. Biểu đồ 410 thể hiện sự tổn hao trọng lượng của ví dụ, được biểu diễn tại trục 412, Biểu đồ 420 thể hiện sự suy ra từ biểu đồ 410, được biểu diễn tại trục 422. Biểu đồ 430 thể hiện dòng nhiệt, được biểu diễn tại trục 432.

Các kết quả TGA (FIG.4) thể hiện rằng cao su tự nhiên bắt đầu phân hủy tại 200°C và sự phân hủy được hoàn thiện tại 450°C, với lượng nhỏ hơn 2% trọng lượng còn lại. Định tổn hao trọng lượng đơn được quan sát ở nhiệt độ giữa 350°C đến 450°C, biểu thị rằng sự phân hủy cao su là phản ứng một tầng. Như được thể hiện, sự phân hủy nhiệt là tuyến phù hợp để suy giảm polyisopren rắn thành các phân tử nhỏ, vì điều này đơn giản và không cần các quy trình phức tạp và thiết bị đắt đỏ. Do đó, bất kỳ cao su tự nhiên chứa polyisopren có thể được sử dụng để sản xuất ống nano cacbon.

Điều chế chất xúc tác

Chất xúc tác Ni-Al₂O₃ được điều chế bởi phương pháp phức axit citric với tải Ni nằm trong khoảng lớn hơn 5% mol đến 30% mol như được mô tả trên đây. Thông thường, kẽm (II) nitrat hexahydrat (11,6 g, 0,04 mol), nhôm nitrat monohydrat (67,0 g, 0,18 mol) và axit citric (46.0 g, 0.24 mol) được hòa tan trong nước được khử ion với lượng 200ml. Dung dịch được đặt trong lò và được duy trì tại nhiệt độ là 85°C cho đến khi gel dính được hình thành. Nhiệt độ lò khi đó được tăng đến 130°C và được làm nóng cho đến khi khô hoàn toàn. Hỗn hợp được sấy được nghiền cẩn thận và nung khô tại 400°C trong 1 giờ, và khi đó tại nhiệt độ 700°C trong 5 giờ sử dụng tốc độ tăng dần là 1,5 °C/phút.

FIG.5 thể hiện biểu đồ nhiễu xạ tia X (X-ray diffraction - XRD) cho các mẫu chất xúc tác dạng khối. FIG.5 (A) thể hiện các mẫu XRD cho chất xúc tác dạng khối trước khi giảm (tiền chất xúc tác) trong biểu đồ 511, sau khi giảm tại nhiệt độ 600°C (biểu đồ 512), sau khi giảm tại nhiệt độ 650°C (biểu đồ 513), sau khi giảm tại nhiệt độ 700°C (biểu đồ 514), sau khi giảm tại nhiệt độ 750°C (biểu đồ 515), và sau khi giảm

tại nhiệt độ 800°C (biểu đồ 516). Biểu đồ trên FIG.5 (A) là độ chênh lệch theo chiều dọc để tăng cường việc hiển thị. FIG.5 (B) thể hiện các mẫu XRD cho chất xúc tác dạng khối tại các thời điểm khác nhau trong khi giảm. Biểu đồ 521 thể hiện các mẫu XRD cho chất xúc tác dạng khối trước khi giảm (tiền chất xúc tác), biểu đồ 522 là sau 0,5 giờ, biểu đồ 523 sau 1 giờ và biểu đồ 524 sau 2 giờ.

Các mẫu XRD bộc lộ thông tin kết cấu chất xúc tác dạng khối sau khi giảm. Sau khi nung khô chất xúc tác, pha (spinen) NiAl_2O_4 được tạo ra đầu tiên trong khi xử lý khí. Trong khi giảm bằng khí hydro, nguyên tố Ni có thể được giảm và tách ra khỏi pha NiAl_2O_4 để tạo ra các hạt nano Ni trên bề mặt $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{NiAl}_2\text{O}_4$. Các hạt nano Ni mới được tạo ra này là thành phần hoạt tính cho sự tăng trưởng các CNT. Trong các mẫu XRD, ba đỉnh lớn tại 44,4°, 51,5° và 76° có thể được gán cho Ni có tính kim loại. Mật độ đỉnh trở nên cao hơn với việc giảm nhiệt độ và thời gian nhiều, biểu thị nhiều Ni được phân tách khỏi pha NiAl_2O_4 . Hơn nữa, toàn bộ chiều rộng tại một nửa tối đa của các đỉnh trở nên rộng hơn, điều này có nghĩa là kích thước hạt Ni tăng tại nhiệt độ cao hoặc thời gian giảm dài hơn. Nhìn chung, kích thước hạt Ni trung bình tăng với việc giảm nhiệt độ hoặc thời gian. Chất xúc tác phù hợp có kích thước hạt là khoảng 7nm cho sự tăng trưởng của các CNT với lượng nhỏ các khối cầu cacbon vô định hình.

Các mẫu tương tự được đặc trưng bởi TEM. Các ảnh TEM của chất xúc tác trên cơ sở Ni với việc giảm nhiệt độ và thời gian khác nhau được thể hiện lần lượt trên FIG.6 và FIG.7. FIG.6 thể hiện mẫu A được giảm tại nhiệt độ 600°C, mẫu B được giảm tại nhiệt độ 650°C, mẫu C được giảm tại nhiệt độ 700°C, mẫu D được giảm tại nhiệt độ 750°C và mẫu E được giảm tại nhiệt độ 800°C. Các mẫu của FIG.6 tương ứng với các biểu đồ XRD của FIG.5 (A).

FIG.7 thể hiện mẫu A sau thời gian giảm 0,5 giờ, mẫu B sau thời gian giảm 1 giờ và mẫu C sau thời gian giảm 1,5 giờ. Các mẫu của FIG.7 này tương ứng với các biểu đồ XRD của FIG.5 (B).

Các điểm trắng biểu thị sự có mặt của các hạt hoạt tính Ni, và các hạt lớn màu xám là chất nền Al_2O_3 hoặc NiAl_2O_4 . Các ảnh TEM thể hiện rằng các hạt Ni tương đối đồng đều về kích thước trong mỗi mẫu. Tương tự với các kết quả XRD, có xu hướng chung về việc tăng kích thước hạt với nhiệt độ tăng hoặc thời gian giảm kéo dài.

Sự phát triển ống nano cacbon

Tốc độ chuyển đổi của cao su thành ống nano cacbon và sản lượng ống nano cacbon mỗi g chất xúc tác được đo với phần dư chất xúc tác. Các kết quả thí nghiệm cho thấy rằng cao su với lượng lớn, ví dụ nằm trong khoảng từ khoảng 40% đến khoảng 60%, có thể được chuyển đổi thành các ống nano cacbon đa vách. Các giá trị I_G/I_D được tính toán (I_G là mật độ tín hiệu Raman của băng G và I_D là mật độ tín hiệu Raman của băng D) từ phổ Raman là giống với các ống nano cacbon được phát triển từ tiền chất dầu hóa thạch, biểu thị chất lượng tương tự của các CNT với một vài lỗi.

Sau đây, 3 ví dụ sẽ được mô tả cho sự tăng trưởng CNT sử dụng cao su tự nhiên như vật liệu thứ nhất theo các phương án khác nhau.

Ví dụ 1: cao su tự nhiên được sấy với lượng 1g được cung cấp như vật liệu thứ nhất trong vị trí thứ nhất. Chất xúc tác được sấy, nghiền và nung khô (vật liệu nung khô) với lượng 0,5g được cung cấp trong vị trí thứ hai. Vật liệu được nung khô được sản xuất như mô tả trên đây. Chất xúc tác được hình thành bằng cách giảm tại nhiệt độ 775 °C dưới dòng N_2/H_2 (20:10 mL/phút) trong 1 giờ. Sau khi hình thành chất xúc tác, vật liệu thứ nhất được phân hủy nhiệt tại nhiệt độ thứ nhất là 400°C thành vật liệu trung gian mà được mang đến vị trí thứ hai để tiếp xúc chất xúc tác. Vật liệu trung gian đã được xử lý nhiệt tại nhiệt độ thứ hai là 700 °C dưới dòng N_2/H_2 (20:10 mL/phút) trong 1 giờ. Thu được ống nano cacbon đa vách với lượng 0,20g. Đường kính bên ngoài trung bình của ống nano cacbon được tạo ra là 20,9 nm, với độ dày vách là khoảng 7,7 nm. Hình ảnh thông thường của các ống nano cacbon được thể hiện trong ảnh SEM của FIG.8 (A) và trong ảnh TEM của FIG.8 (B).

Ví dụ 2: thí nghiệm thứ hai đã được thực hiện như trong Ví dụ 1, ngoại trừ việc nhiệt độ thứ hai là 750°C dưới dòng N_2 (20 mL/phút) trong 1 giờ. Thu được các ống nano cacbon đa vách với lượng 0,15g. Đường kính bên ngoài trung bình của các ống nano cacbon được tạo ra là 25,1 nm, với độ dày vách là khoảng 9,3nm. Các ảnh bình thường của các ống nano cacbon thu được được thể hiện trên ảnh SEM của FIG.9 (A) và ảnh TEM của FIG.9 (B).

Ví dụ 3: thí nghiệm thứ ba được thực hiện như trong Ví dụ 2, loại trừ việc nhiệt độ thứ hai là 700°C. Thu được các ống nano cacbon đa vách với lượng 0,13g. Đường kính bên ngoài trung bình của các ống nano cacbon được tạo ra là 25,6nm, với độ dày vách là khoảng 7,7nm. Các ảnh thông thường của các ống nano cacbon được thể hiện

trong ảnh SEM của FIG.10 (A) và trong ảnh TEM của FIG.10 (B).

Việc sử dụng phương pháp tổng hợp theo các phương án khác nhau, cao su tự nhiên hoặc dẫn xuất của nó có thể được phân hủy nhiệt tại nhiệt độ cao, và sau đó được tái cấu trúc trên chất xúc tác gốc kim loại để tạo ra các ống nano cacbon. Được thể hiện rằng sản lượng cao, ví dụ 40% đến 60% cao su có thể được chuyển đổi thành các ống nano cacbon đa vách với sự phân bố đường kính hẹp. Đường kính và độ dày vách của các ống nano cacbon có thể được tinh chỉnh bằng cách biến đổi các điều kiện tổng hợp.

YÊU CẦU BẢO HỘ

1. Phương pháp tổng hợp ống nano cacbon từ cao su tự nhiên, phương pháp bao gồm:

cung cấp vật liệu thứ nhất bao gồm cao su tự nhiên thứ nhất hoặc dẫn xuất của chúng;

phân hủy nhiệt vật liệu thứ nhất tại nhiệt độ thứ nhất thành vật liệu trung gian, trong đó nhiệt độ thứ nhất được lựa chọn nằm trong khoảng nhiệt độ từ khoảng 200°C đến khoảng 500°C;

cho vật liệu trung gian tiếp xúc với chất xúc tác; và

xử lý nhiệt vật liệu trung gian trong sự tiếp xúc với chất xúc tác tại nhiệt độ thứ hai, để tạo ra ống nano cacbon.

2. Phương pháp theo điểm 1, trong đó bước phân hủy nhiệt vật liệu thứ nhất được thực hiện trong vị trí thứ nhất, và trong đó vị trí thứ nhất là trong lò nung thứ nhất hoặc trong phần của lò nung thứ nhất.

3. Phương pháp theo điểm 1 hoặc 2, trong đó bước xử lý nhiệt vật liệu trung gian được thực hiện trong vị trí thứ hai, và trong đó vị trí thứ hai được lựa chọn từ nhóm bao gồm: lò nung thứ hai hoặc phần thứ hai của lò nung thứ nhất.

4. Phương pháp theo điểm 3, trong đó ít nhất một trong số các bước (i) phân hủy nhiệt vật liệu thứ nhất và (ii) xử lý nhiệt vật liệu trung gian, được thực hiện dưới khí hình thành, trong đó khí hình thành được cung cấp như dòng khí.

5. Phương pháp theo điểm 4, trong đó dòng khí là từ vị trí thứ nhất đến vị trí thứ hai, nhờ đó có thể vận chuyển vật liệu trung gian từ vị trí thứ nhất đến vị trí thứ hai.

6. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm nêu trên, trong đó nhiệt độ thứ hai được lựa chọn nằm trong khoảng nhiệt độ từ khoảng 600°C đến khoảng 800°C.

7. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm nêu trên, phương pháp còn bao gồm tách ống nano cacbon từ phần dư còn lại của phản ứng.

8. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 3 đến 7, trong đó chất xúc tác được cung cấp như tiền chất xúc tác trong vị trí thứ hai, và được chuyển đổi thành chất xúc tác trong vị trí thứ hai.

9. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm nêu trên, phương pháp còn bao gồm tái chế chất xúc tác được sử dụng để sản xuất chất xúc tác sạch.
10. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm nêu trên, phương pháp còn bao gồm tạo ra chất xúc tác, trong đó phương pháp tạo ra chất xúc tác bao gồm tạo ra dung dịch hoặc gel, tùy chọn với quy trình sol gel.
11. Phương pháp theo điểm 10, trong đó ít nhất thành phần thứ nhất ở dạng muối nitrat thành phần thứ nhất và chất phức được sử dụng để tạo ra dung dịch hoặc gel.
12. Phương pháp theo điểm 11, trong đó thành phần thứ nhất là kim loại chuyển tiếp và/hoặc kim loại hỗn hợp, tốt hơn là được lựa chọn từ nhóm bao gồm: kim loại chuyển tiếp, kim loại hiếm, tốt hơn nữa được lựa chọn từ ít nhất một trong số: Ni, Fe, Co.
13. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm 10 hoặc 12 nêu trên, trong đó ít nhất thành phần thứ hai ở dạng muối nitrat thành phần thứ hai được sử dụng để tạo ra dung dịch hoặc gel.
14. Phương pháp theo điểm 13, trong đó thành phần thứ hai được lựa chọn từ nhóm bao gồm: Al, Si, Mg, La, tổ hợp của chúng.
15. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm 11 đến 14 nêu trên, phương pháp còn bao gồm

sấy, tùy chọn nghiền, và nung khô dung dịch hoặc gel, do đó thu được vật liệu được nung khô; và

khử vật liệu được nung, để giải phóng thành phần thứ nhất trong trạng thái nguyên tố như các hạt.
16. Phương pháp theo điểm 13 hoặc 14, phương pháp còn bao gồm

sấy, tùy chọn nghiền, và nung khô dung dịch hoặc gel, do đó thu được vật liệu được nung khô; và

khử vật liệu được nung, để giải phóng thành phần thứ nhất trong trạng thái nguyên tố như các hạt,

trong đó thành phần thứ hai được biến đổi thành oxit trong khi nung khô, và trong đó oxit tốt hơn được lựa chọn từ ít nhất một trong số nhóm bao gồm: Al_2O_3 , SiO_2 , MgO , La_2O_3 .

17. Phương pháp theo điểm 15 hoặc 16, trong đó nhiệt độ sấy được sử dụng khi sấy được lựa chọn từ khoảng 60°C đến khoảng 120°C.
18. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 15 đến 17, trong đó nhiệt độ nung khô được sử dụng khi nung khô được lựa chọn từ khoảng 500°C đến khoảng 800°C.
19. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 15 đến 18, trong đó bước khử được thực hiện với sự có mặt của khí hydro.
20. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 15 đến 19, trong đó nhiệt độ trong suốt bước khử là nằm trong khoảng từ khoảng 650°C đến khoảng 800°C.
21. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm nêu trên, trong đó vật liệu thứ nhất bao gồm cao su được lưu hóa với lượng nhỏ hơn 10% trọng lượng, tùy chọn trong đó cao su tự nhiên là một hoặc nhiều mẫu cao su, mẫu cao su đồng tụ.
22. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 20 nêu trên, trong đó dẫn xuất cao su tự nhiên là cao su tái chế và trong đó cao su tái chế được xử lý để loại bỏ lưu huỳnh.
23. Phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 1 đến 20 nêu trên, trong đó vật liệu thứ nhất là rác thải cao su thu được từ việc xử lý cao su tự nhiên.
24. Phương pháp điều chỉnh để điều chỉnh đặc tính trung bình của ống nano cacbon thu được được tạo ra bởi phương pháp theo điểm bất kỳ trong số các điểm từ 4 đến 23 nêu trên, phương pháp bao gồm thực hiện phương pháp như phương pháp tham chiếu nhờ đó tạo ra ống nano cacbon bao gồm đường kính trung bình tham chiếu, và

để giảm đường kính trung bình của ống nano cacbon: giảm nhiệt độ thứ hai và/hoặc giảm thời gian phản ứng và/hoặc tăng nồng độ H_2 ở dạng khí hình thành so với phương pháp tham chiếu; hoặc

để tăng đường kính trung bình của ống nano cacbon: tăng nhiệt độ thứ hai và/hoặc tăng thời gian phản ứng và/hoặc giảm nồng độ H_2 ở dạng khí hình thành so với phương pháp tham chiếu.

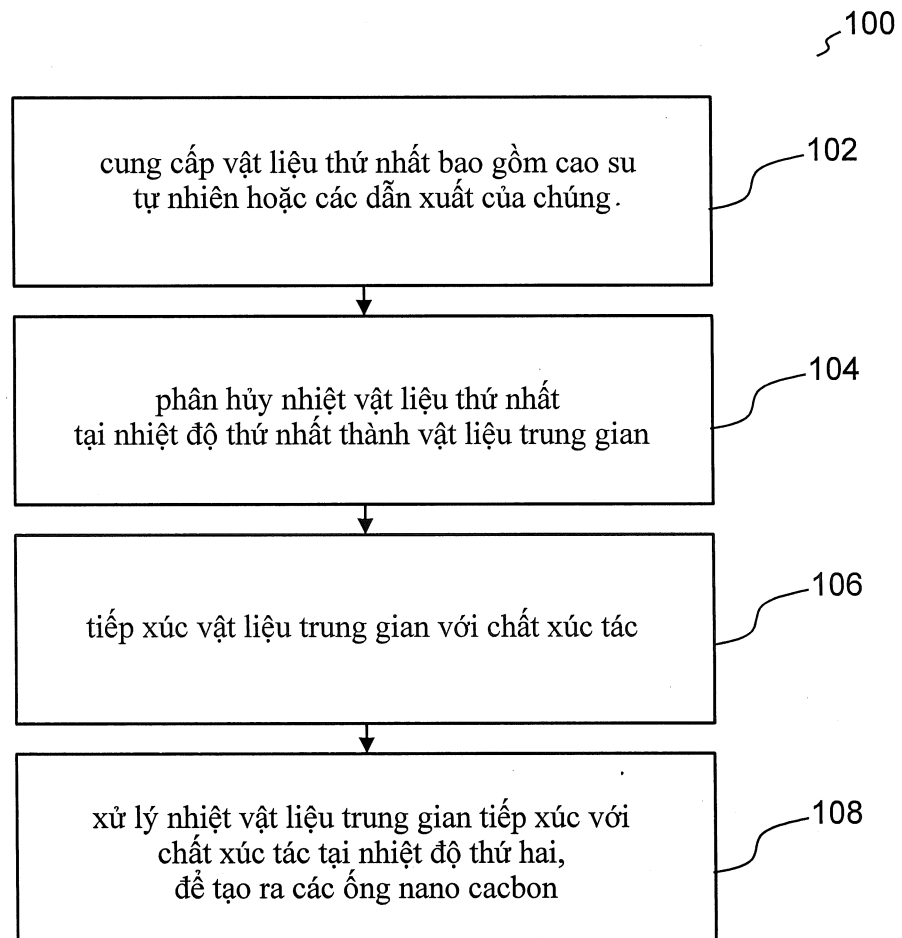


FIG. 1

2/10

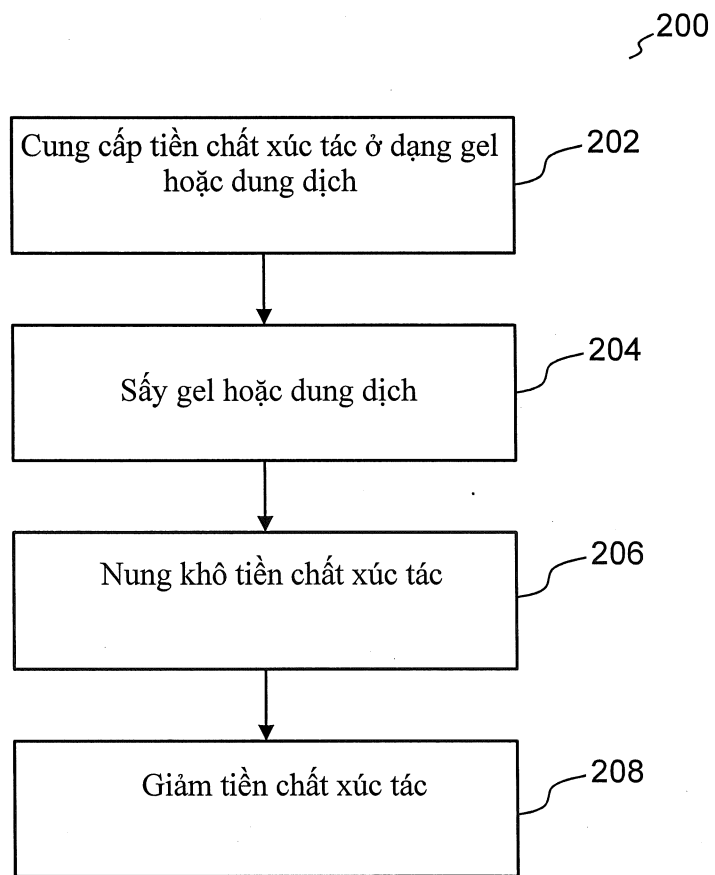


FIG. 2

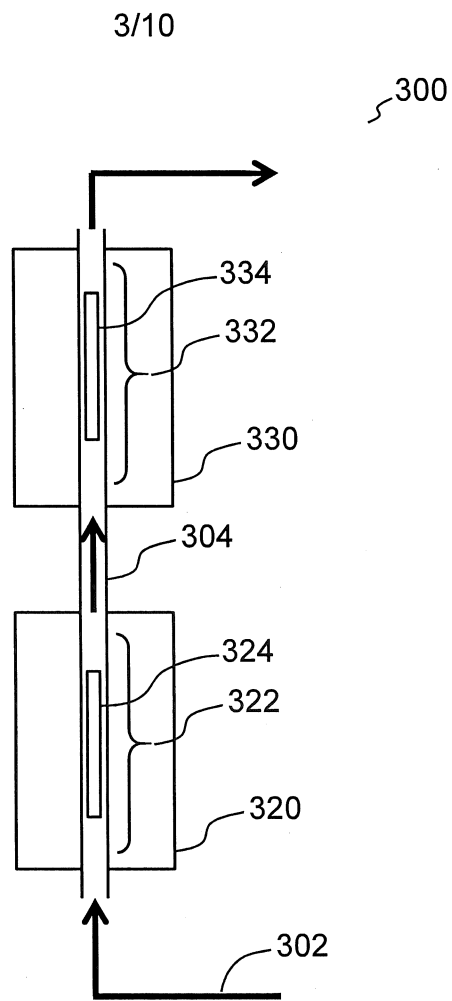


FIG. 3

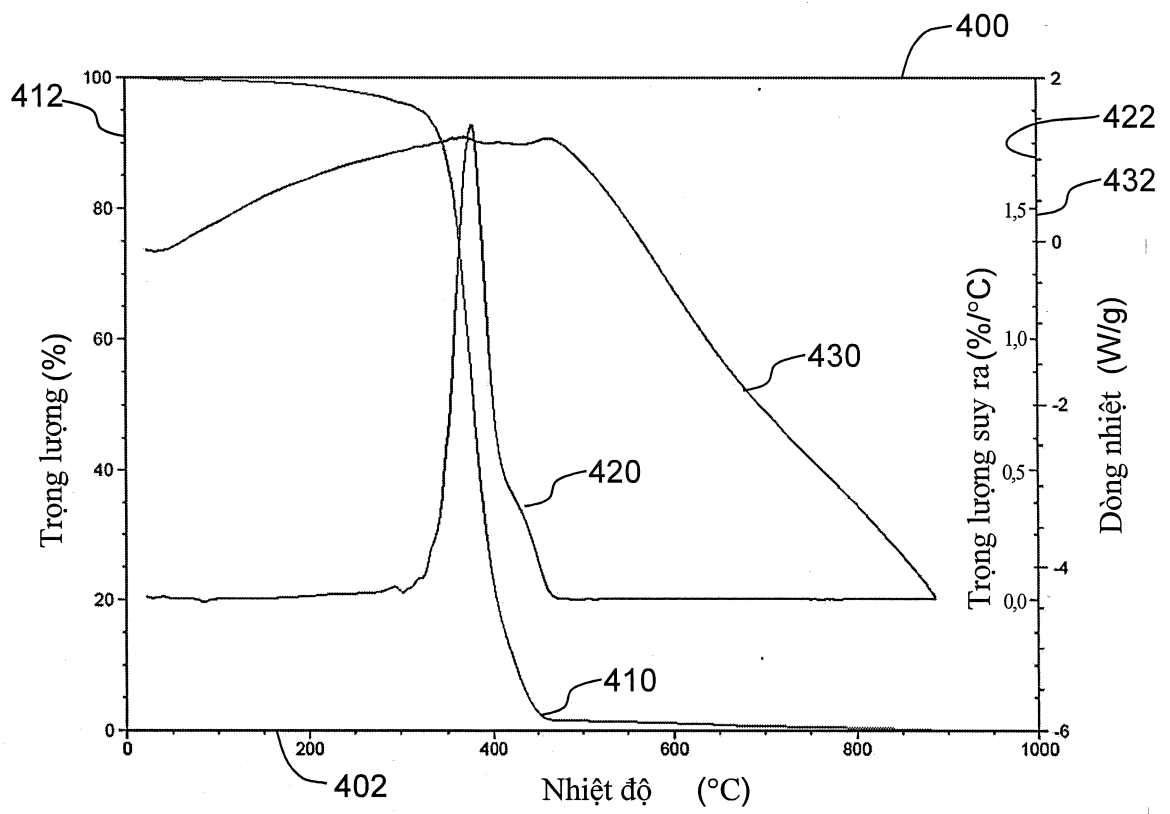


FIG. 4

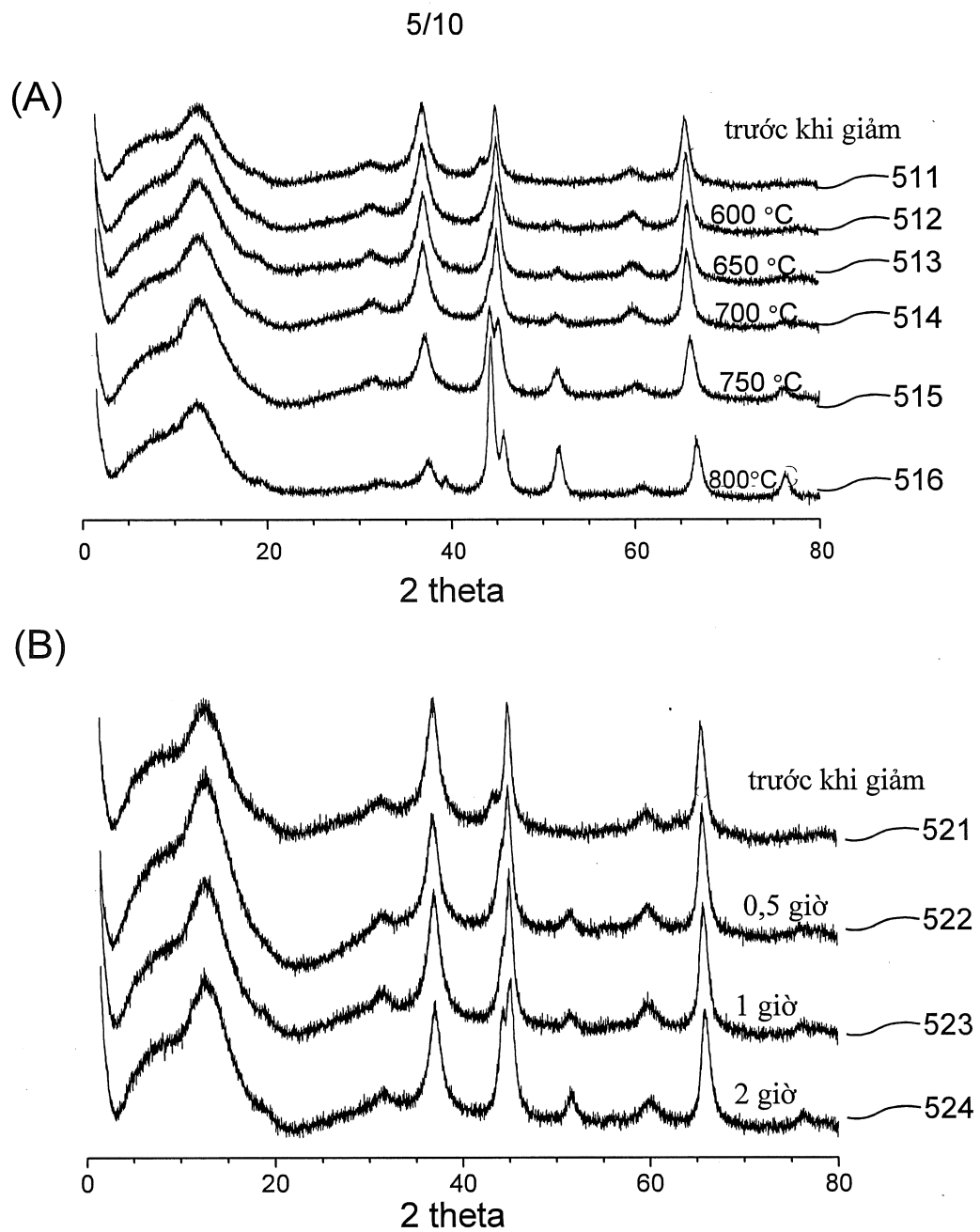


FIG. 5

6/10

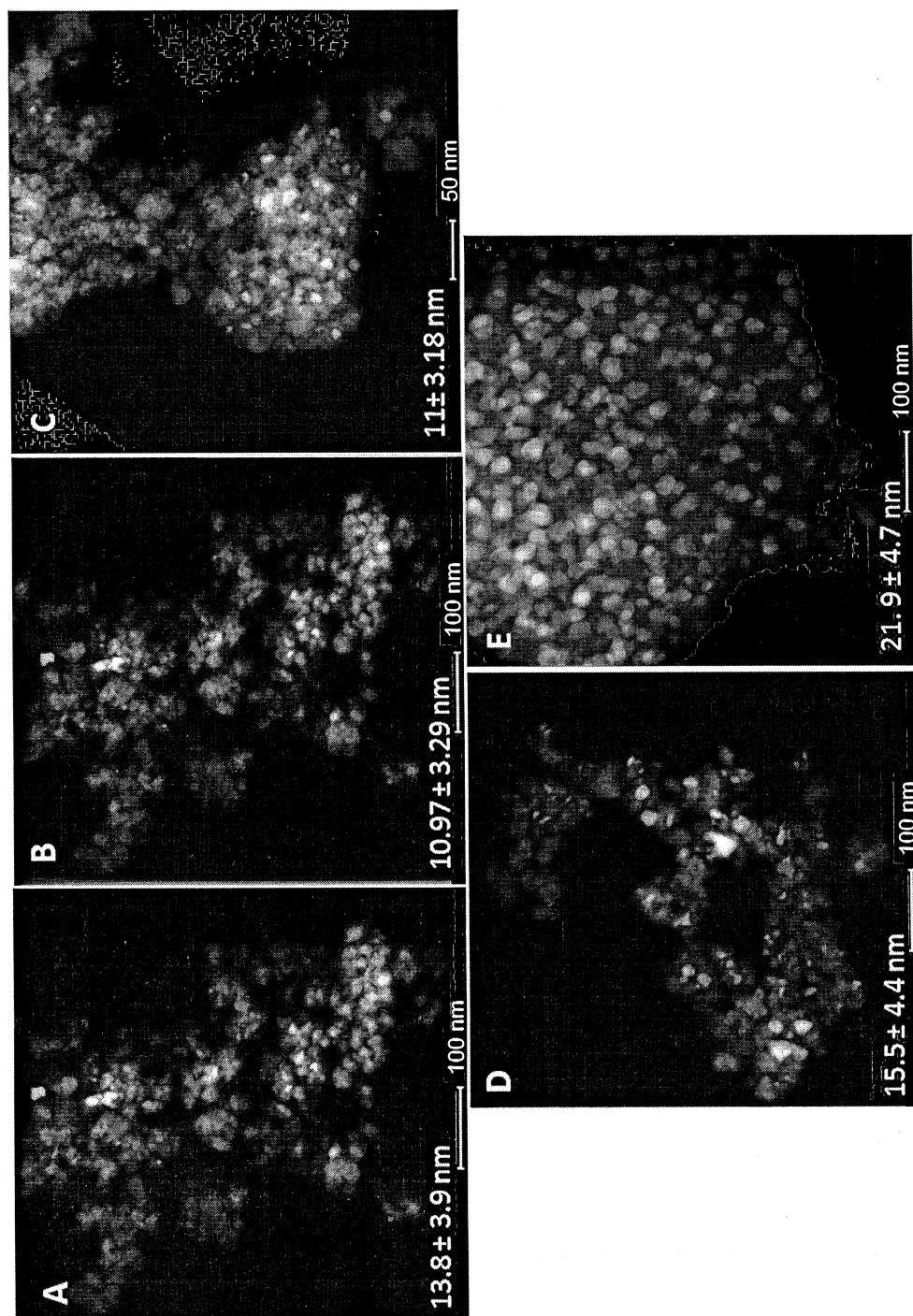


FIG. 6

7/10

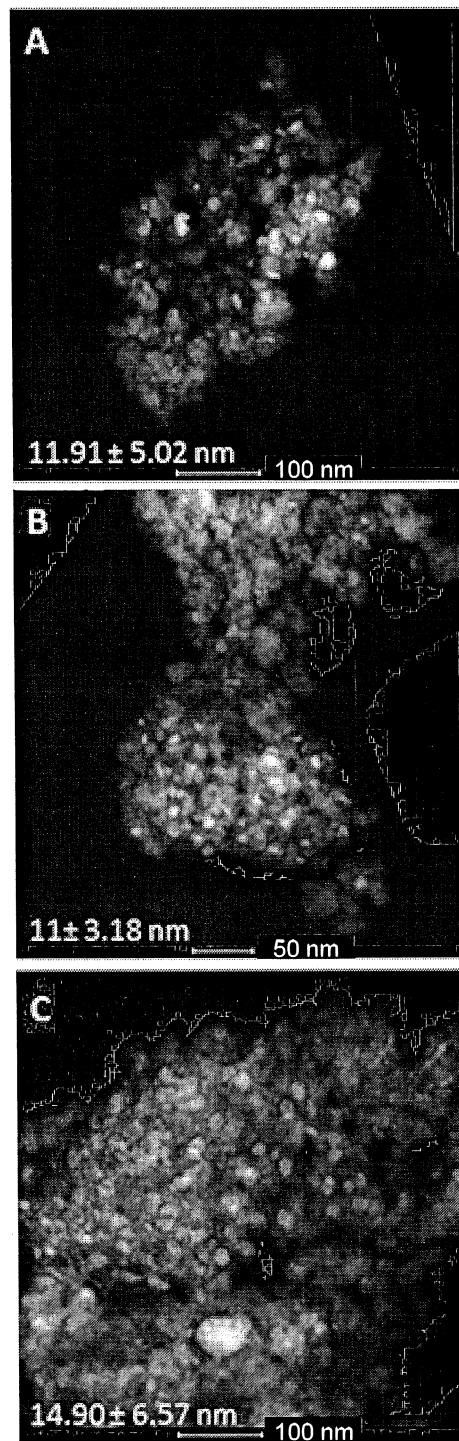


FIG. 7

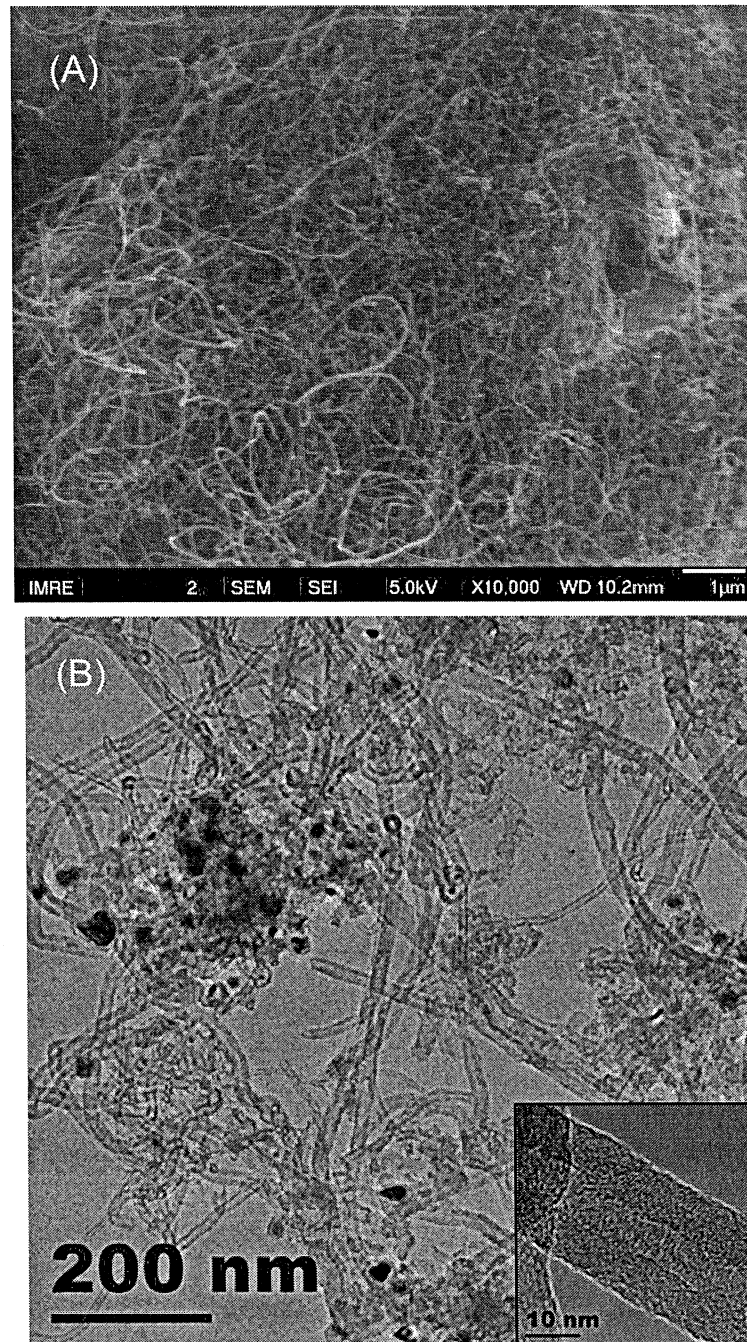


FIG. 8

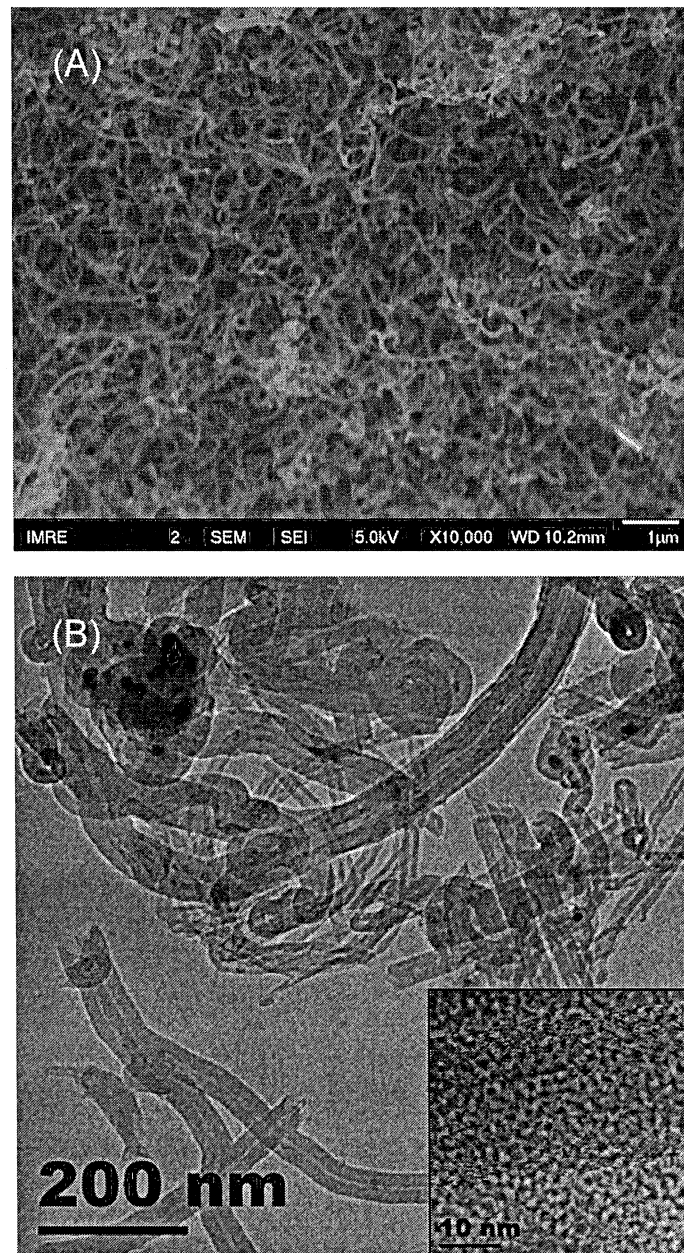


FIG. 9

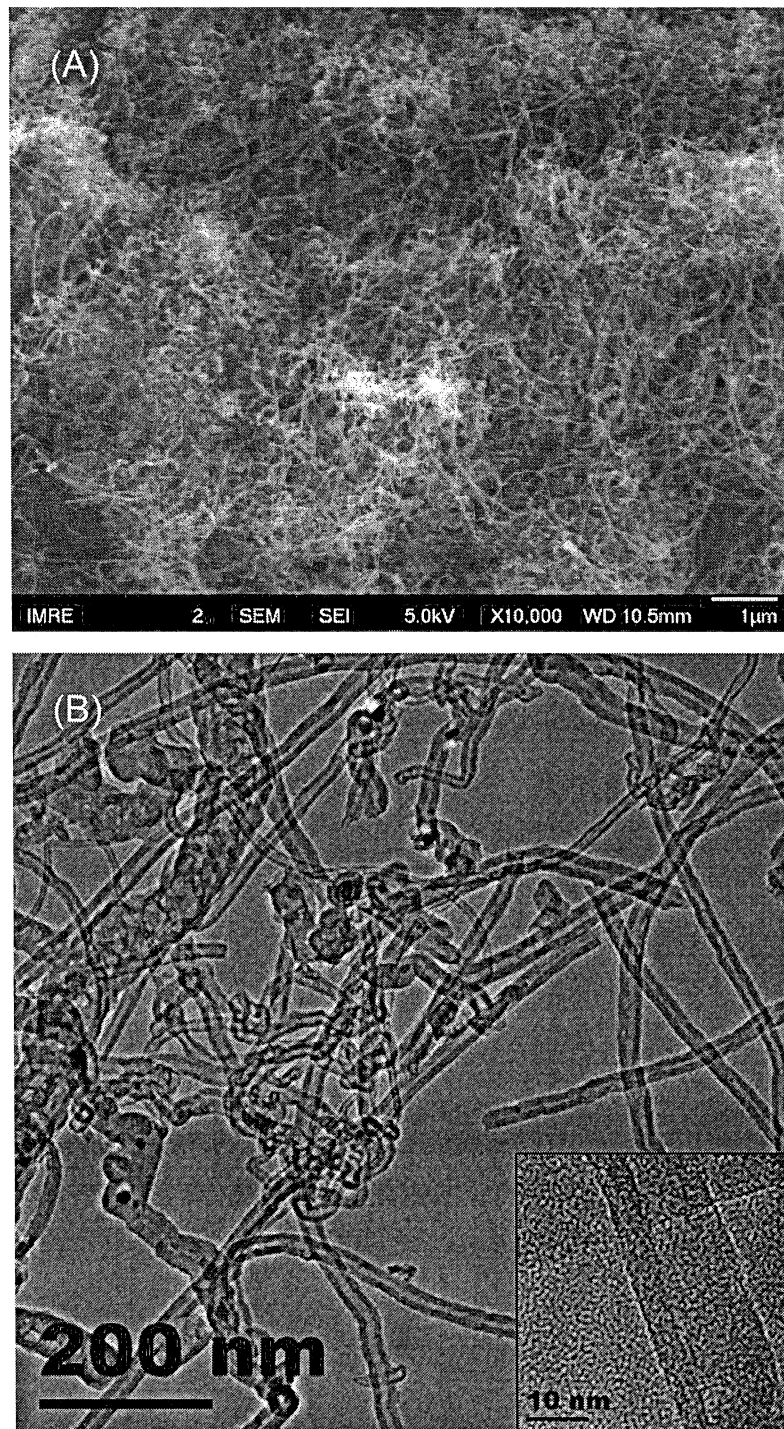


FIG. 10