

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載  
 【部門区分】第3部門第3区分  
 【発行日】平成25年4月11日(2013.4.11)

【公表番号】特表2012-520351(P2012-520351A)  
 【公表日】平成24年9月6日(2012.9.6)  
 【年通号数】公開・登録公報2012-035  
 【出願番号】特願2011-553319(P2011-553319)  
 【国際特許分類】

C 0 8 L 63/00 (2006.01)  
 C 0 8 G 59/22 (2006.01)  
 C 0 1 B 31/02 (2006.01)  
 C 0 8 K 9/00 (2006.01)  
 C 0 8 J 5/06 (2006.01)  
 B 8 2 Y 40/00 (2011.01)  
 B 8 2 Y 30/00 (2011.01)  
 E 0 1 D 1/00 (2006.01)

【F I】

C 0 8 L 63/00 C  
 C 0 8 G 59/22  
 C 0 1 B 31/02 1 0 1 F  
 C 0 8 K 9/00  
 C 0 8 J 5/06 C F C  
 B 8 2 Y 40/00  
 B 8 2 Y 30/00  
 E 0 1 D 1/00

【手続補正書】  
 【提出日】平成25年2月25日(2013.2.25)  
 【手続補正1】  
 【補正対象書類名】明細書  
 【補正対象項目名】0075  
 【補正方法】変更  
 【補正の内容】  
 【0075】

図2は、エポキシマトリックスおよびナノ複合材料についての典型的な引張応力 - 歪み曲線を示す。純エポキシ樹脂および p - MWCNT 充填エポキシ複合材料はいずれも、脆性な状態で破壊され、明らかな歪みは検出されないが、f - MWCNT 充填エポキシ複合材料は、やや延性挙動を示す。MWCNT の強化作用をより理解するために、ヤングの弾性率、引張強度および破断点伸びにおける相対的向上(規格化値)を図3に示す。概して、f - MWCNT は、p - MWCNT と比べて強化エポキシ樹脂中ではるかにより効率的である。破断点伸びの約82%の増加が、1重量%の f - MWCNT 充填にて得られる。図3は、調査試料の  $K_{IC}$  および  $G_{IC}$  における相対的向上(規格化値)を示す。p - MWCNT および f - MWCNT はいずれも顕著にエポキシ樹脂を強化する。f - MWCNT は、p - MWCNT に比べてはるかにより効率的にエポキシ樹脂を強化する。 $G_{IC}$  の約110%の増加が1重量%の f - MWCNT の組み込みにより得られる。これは、エポキシおよび f - MWCNT 間の良好な界面接着によるものである。

本発明の好ましい態様は、以下を包含する。

[1] エポキシポリマー、カーボンナノチューブおよび必要に応じて硬化剤を含んでなり

該カーボンナノチューブが、以下の工程：

a) カーボンナノチューブを反応ゾーン中へ設置する工程、  
 b) オゾン、酸素および水の混合物を前記カーボンナノチューブへ通過させる工程  
を含む酸素/オゾンによる気相中での同時処理により酸化されていることを特徴とする、  
複合材料。

[ 2 ] オゾン、酸素および水の混合物は、カーボンナノチューブ凝集体へ連続的に通過することを特徴とする、[ 1 ] に記載の材料。

[ 3 ] 反応ゾーンにおける温度は、少なくとも 200 、好ましくは少なくとも 120 、より好ましくは 0 ~ 100 、さらに好ましくは 10 ~ 60 であることを特徴とする、[ 1 ] または [ 2 ] に記載の材料。

[ 4 ] カーボンナノチューブのオゾン分解の反応時間は、120分まで、好ましくは60分まで、より好ましくは30分までであることを特徴とする、[ 1 ] ~ [ 3 ] のいずれかに記載の材料。

[ 5 ] カーボンナノチューブの暴露は、1体積% ~ 約11体積%のオゾンの割合を含むオゾン/酸素混合物を用いて行うことを特徴とする、[ 1 ] ~ [ 4 ] のいずれかに記載の材料。

[ 6 ] オゾン、酸素および水の混合物の流速は、カーボンナノチューブ1g当たり約100L/時 ~ 約1000L/時、好ましくは約100L/時 ~ 約200L/時であることを特徴とする、[ 1 ] ~ [ 5 ] のいずれかに記載の材料。

[ 7 ] 水蒸気の相対湿度は、反応ゾーンにおいて、100%まで、好ましくは少なくとも10% ~ 100%まで、特に好ましくは10% ~ 90%であることを特徴とする、[ 1 ] ~ [ 6 ] のいずれかに記載の材料。

[ 8 ] カーボンナノチューブの量は、複合材料の0.01 ~ 5重量%、好ましくは0.05 ~ 3重量%、特に好ましくは0.1 ~ 1重量%であることを特徴とする、[ 1 ] ~ [ 7 ] のいずれかに記載の材料。

[ 9 ] エポキシポリマーは、ビスフェノールAのジグリシジルエーテルエポキシ(DGEBA)、ノボラックエポキシ、臭素化エポキシポリマーおよびこれらの組み合わせの群から選択されることを特徴とする、[ 1 ] ~ [ 8 ] のいずれかに記載の材料。

[ 10 ] 硬化剤は、ジアミノジフェニルスルホン(DDS)、ジアミノジフェニルメタン(DDM)等を含む芳香族アミン硬化剤の群から選択されることを特徴とする、[ 1 ] ~ [ 9 ] のいずれかに記載の材料。

[ 11 ] [ 1 ] ~ [ 10 ] のいずれかに記載の材料の製造方法であって、以下の工程：1) オゾン処理CNTをエポキシ樹脂中へ機械的に混合して混合物を形成する工程；2) 前記混合物を高剪断混合系により分散して均質なCNT/エポキシマスターバッチを形成する工程；3) 硬化剤および更なるエポキシ樹脂を前記マスターバッチに必要なに応じて添加して分散体を形成する工程；4) 前記分散体を機械的に更に混合して均質な混合物を形成する工程；5) 該混合物を脱気および硬化してCNT/エポキシ複合材料を形成する工程  
を含み、前記CNTを、エポキシマトリックス中へ分散および組み込む、方法。

[ 12 ] 風力タービン、車両および架橋建築部品およびスポーツ用品の製造のための、[ 1 ] ~ [ 10 ] のいずれかに記載の複合材料の使用。

【手続補正2】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

エポキシポリマー、カーボンナノチューブおよび必要に応じて硬化剤を含んでなり、  
 該カーボンナノチューブが、以下の工程：

a) カーボンナノチューブを反応ゾーン中へ設置する工程、

b) オゾン、酸素および水の混合物を前記カーボンナノチューブへ通過させる工程を含む酸素/オゾンによる気相中での同時処理により酸化されていることを特徴とする、複合材料。

【請求項 2】

オゾン、酸素および水の混合物は、カーボンナノチューブ凝集体へ連続的に通過することを特徴とする、請求項 1 に記載の材料。

【請求項 3】

請求項 1 または 2 に記載の材料の製造方法であって、以下の工程：1) オゾン処理 CNT をエポキシ樹脂中へ機械的に混合して混合物を形成する工程；2) 前記混合物を高剪断混合系により分散して均質な CNT / エポキシマスターバッチを形成する工程；3) 硬化剤および更なるエポキシ樹脂を前記マスターバッチに必要な応じて添加して分散体を形成する工程；4) 前記分散体を機械的に更に混合して均質な混合物を形成する工程；5) 該混合物を脱気および硬化して CNT / エポキシ複合材料を形成する工程を含み、前記 CNT を、エポキシマトリックス中へ分散および組み込む、方法。

【請求項 4】

風力タービン、車両および架橋建築部品およびスポーツ用品の製造のための、請求項 1 または 2 に記載の複合材料の使用。