



(12)

BREVET DE INVENȚIE

(21) Nr. cerere: **a 2010 00860**

(22) Data de depozit: **20/09/2010**

(45) Data publicării mențiunii acordării brevetului: **26/02/2016** BOPI nr. 2/2016

(41) Data publicării cererii:
30/05/2012 BOPI nr. 5/2012

(73) Titular:
• **UNIVERSITATEA "DUNĂREA DE JOS"**
DIN GALAȚI, STR.DOMNEASCĂ NR.47,
GALAȚI, GL, RO

(72) Inventatori:
• **DIMA DUMITRU, STR.REGIMENT 11**
SIRET NR.19, BLE 6, SC.2, AP.23, GALAȚI,
GL, RO;
• **MURĂRESCU MONICA,**
STR.DOMNEASCĂ NR.17, BL.B, SC.2,
ET.1, AP.11, GALAȚI, GL, RO;
• **ANDREI GABRIEL,**
STR.ARMATA POPORULUI NR.10, BL.CL 2,
SC.2, AP.24, GALAȚI, GL, RO;
• **CÎRCIUMARU ADRIAN, CALEA GIULEȘTI**
NR.22, BL.OD 5, SC.1, AP.1, SECTOR 6,
BUCUREȘTI, B, RO

(56) Documente din stadiul tehnicii:
QIANG FU, SHAOMING HUANG, AND JIE
LIU, "CHEMICAL VAPOR DEPOSITIONS
OF SINGLE- WALLED CARBON
NANOTUBES CATALYZED BY UNIFORM
Fe₂O₃ NANOCCLUSERS SYNTHESIZED
USING DIBLOCK COPOLYMER
MICELLES", J. PHYS. CHEM. B, GROSS
CHEMISTRY LABORATORY, DUKE
UNIVERSITY, VOL. 108, PP. 6124-6129,
DURHAM, NORTH CAROLINA, 2004;
B. AHMMAD, Y. KUSUMOTO,
M. ABDULLA-AL-MAMUN, A. MIHATA, AND
H. YANG, "EFFECT OF SINGLE WALLED
CARBON NANOTUBE AS COUNTER
ELECTRODE ON LASER-DEPOSITED
Fe₂O₃ AND TiO₂ FILMS SOLAR CELLS",
J. SCI. RES., DEPARTMENT OF
CHEMISTRY AND BIOSCIENCE,
GRADUATE SCHOOL OF SCIENCE AND
ENGINEERING, VOL. 1 (3), PP. 430-437,
KORIMOTO, KAGOSHIMA, 2009

(54) **PROCEDEU DE COMPATIBILIZARE A NANOTUBURILOR**
DE CARBON

Examinator: **ing. TEODORESCU DANIELA**



Orice persoană are dreptul să formuleze în scris și motivat,
la OSIM, o cerere de revocare a brevetului de invenție, în
termen de 6 luni de la publicarea mențiunii hotărârii de
acordare a acesteia

Invenția se referă la un procedeu de compatibilizare a nanotuburilor de carbon cu o matrice polimerică, în scopul realizării unei dispersii eficiente și a unei interacțiuni fizico-chimice corespunzătoare, în vederea obținerii unui material nanocompozit hibrid, multifuncțional. Astfel, prin aplicarea acestui procedeu, se pot obține compozite polimerice ușoare, utilizate în domeniul transportului aerian, naval și terestru, înlocuind cu succes unele componente metalice (eleroane, came, panouri, uși etc.). Plăcile compozite cu matrice polimerice aditivate cu nanotuburi de carbon compatibilizate, și armate cu țesături de carbon și/sau Kevlar au performanțe mecanice, termice și electrice deosebite, și sunt folosite în construcția aeronavelor.

Sunt cunoscute metode de tratare a nanotuburilor de carbon prin modificarea structurii chimice și fizice a suprafeței acestora. Qiang Fu, Shaoming Huang și Lie Liu prezintă un procedeu în care se utilizează miceli inverse de polistiren-bloc-polivinil-piridină în toluen încărcat cu FeCl_3 , care au fost folosite pentru sinteza și realizarea de nanoclusteri de Fe_2O_3 cu diamante uniforme pe substraturi plate, cum sunt nanotuburile de carbon (**Chemical Vapor Deposition of Single-Walled Carbon Nanotubes Catalyzed by Uniform Fe_2O_3 Nanoclusters Synthesized Using Diblock Copolymer Micelles**-J. Phys. Chem. B 2004, 108, 6124-6129, Gross Chemistry Laboratory, Duke University, Box 90354, Durham, North Carolina 27708).

Aceste procedee au dezavantajul că modifică proprietățile inițiale ale nanotuburilor de carbon.

Problema tehnică pe care o rezolvă invenția constă în stabilirea unui procedeu de compatibilizare a suprafețelor nanotuburilor de carbon pe cale chimică, astfel încât să poată forma dispersii bune și stabile, cu o matrice polimerică prestabilită.

Procedeu de compatibilizare a nanotuburilor de carbon cu un strat molecular de oxid de Fe(III) are loc prin următoarele etape: se dispersează nanotuburi de carbon cu ajutorul unui agent tensioactiv anionic, constând din soluție 1% sulfat de dodecil sodiu, și se ultrasonează suspensia timp de 10 min, la o amplitudine de 40% a generatorului de ultrasunete, apoi se adaugă cantitativ soluție de clorură de Fe(III) 1 M, sub agitare magnetică timp de 5 min, și se ultrasonează amestecul timp de 10 min, se adaugă apoi cantitativ o soluție amoniacală 1 M, până la obținerea unui pH de 8,5 slab bazic, se ultrasonează suspensia timp de 30 min la aceeași amplitudine a ultrasunetelor, se spală în trepte nanotuburile acoperite cu un strat molecular de oxid de Fe(III) cu apă bidistilată, până se ajunge la un pH neutru de 5,5, se separă nanotuburile din soluție prin centrifugare la o viteză de 6000 rot/min, se spală nanotuburile acoperite în trepte cu apă bidistilată și alcool etilic absolut, se usucă în etuvă timp de 8 h la 443°C și, în final, se macină uscat și se depozitează.

Avantajele aplicării procedurii conform invenției constau în aceea că, prin aplicarea unui strat molecular de oxid de Fe(III) , se asigură păstrarea proprietăților inițiale ale nanotuburilor de carbon, și are ca efect obținerea unei bune dispersii într-o matrice polimerică. Aplicarea procedurii mai prezintă și următoarele avantaje:

- este simplă și nu implică metode chimice complicate;
- utilizează materiale ușor de procurat și ieftine;
- asigură o foarte bună aderență între nanotuburi și polimer;
- este o metodă ieftină și eficientă.

Se dă în continuare un exemplu de realizare a procedurii conform invenției, în legătură și cu fig. 1...10, ce reprezintă (și în care CNT înseamnă nanotuburi de carbon, iar SDS este sulfat de dodecil sodiu):

- fig. 1, CNT-uri introduse în apă bidistilată;
- fig. 2, ultrasunarea amestecului format din CNT-uri în soluție 1% SDS;
- fig. 3, detaliu al vasului de ultrasunare;
- fig. 4, introducerea soluției 1 M clorură de Fe(III) ;

RO 127397 B1

- fig. 5, introducerea soluției 1 M de amoniac;	1
- fig. 6, ultrasonarea suspensiei de CNT-uri acoperite;	
- fig. 7, transvazarea suspensiei în cuvele de centrifugare;	3
- fig. 8, introducerea cuvelor cu suspensie în centrifugă;	
- fig. 9, CNT-urile acoperite, separate prin centrifugare;	5
- fig. 10, uscarea CNT-urilor acoperite în etuvă.	
Procedeul conform invenției se desfășoară prin următoarele etape:	7
1. dispersia nanotuburilor de carbon cu ajutorul unui agent tensioactiv anionic, ce conține unul sau mai multe nuclee benzenice legate de gruparea hidrofilă, și ultrasonarea suspensiei, în vederea ruperii aglomerărilor de nanotuburi de carbon;	9
2. adăugare cantitativă a primului precursor de obținere a stratului molecular de oxid de Fe(III), și ultrasonare în scopul difuziei acestuia la suprafața nanotuburilor de carbon;	11
3. adăugare cantitativă a celui de-al doilea precursor de obținere a stratului molecular de oxid de Fe(III), și ultrasonare în vederea difuziei acestuia la suprafața nanotuburilor de carbon;	13
4. spălare în trepte a nanotuburilor acoperite cu particule de oxid de Fe(III) cu apă bidistilată, până la un pH apropiat de neutru;	15
5. separare prin centrifugare a nanotuburilor din soluție;	17
6. spălare în trepte a nanotuburilor acoperite cu alcool etilic absolut;	19
7. uscare în etuvă;	
8. măcinare uscată.	21
Se prezintă în continuare un exemplu detaliat de aplicare a invenției, cu un agent tensioactiv anionic, în acord cu succesiunea etapelor și operațiilor descrise anterior, conform fig. 1...10.	23
1. Se dispersează nanotuburile de carbon cu ajutorul unui agent tensioactiv constând din sulfat de dodecil sodiu (SDS) soluție 1%, și se ultrasonează timp de 10 min cu generatorul de ultrasunete BANDELIN HD3200, cu o amplitudine de 40%.	25
2. Se adaugă cantitativ o soluție 1 M de clorură de Fe(III), sub agitare magnetică timp de 5 min, și apoi se ultrasonează timp de 10 min cu generatorul de ultrasunete BANDELIN HD3200, cu o amplitudine de 40%.	27
3. Se adaugă cantitativ o soluție amoniacală 1 M, până la atingerea unui pH = 8,5, și se ultrasonează timp de 30 min cu generatorul de ultrasunete BANDELIN HD3200, cu o amplitudine de 40%.	29
4. Se spală în trepte cu apă bidistilată nanotuburile acoperite cu particule de oxid de Fe(III), până se atinge un pH = 5,5.	31
5. Se separă nanotuburile din soluție prin centrifugare (la o viteză de centrifugare de 6000 rot/min).	33
6. Se spală nanotuburile acoperite în trepte cu alcool etilic absolut.	35
7. Se usucă în etuvă timp de 8 h, la 443°K.	37
8. Se macină uscat.	39
	41

3 Procedeu de compatibilizare a nanotuburilor de carbon cu un strat molecular de oxid
de Fe(III), **caracterizat prin aceea că** are loc prin următoarele etape: se dispersează
5 nanotuburi de carbon cu ajutorul unui agent tensioactiv anionic, constând din soluție 1% sulfat
de dodecil sodiu, și se ultrasonează suspensia timp de 10 min la o amplitudine de 40% a
7 generatorului de ultrasunete, apoi se adaugă cantitativ soluție de clorură de Fe(III) 1 M, sub
agitare magnetică timp de 5 min, și se ultrasonează amestecul timp de 10 min, se adaugă
9 cantitativ o soluție amoniacală 1 M, până la obținerea unui pH de 8,5 slab bazic, se ultra-
sonează suspensia timp de 30 min la aceeași amplitudine de ultrasunete, se spală în trepte
11 nanotuburile acoperite cu un strat molecular de oxid de Fe(III), cu apă bidistilată, până se
ajunge la un pH neutru de 5,5, se separă nanotuburile din soluție prin centrifugare la o viteză
13 de 6000 rot/min, se spală nanotuburile acoperite în trepte, cu apă bidistilată și alcool etilic
absolut, se usucă în etuvă timp de 8 h la 443°C și, în final, se macină uscat și se depozitează.

(51) Int.Cl.
B82B 3/00 (2006.01),
C08J 5/00 (2006.01),
C08K 3/04 (2006.01),
B82Y 30/00 (2011.01)

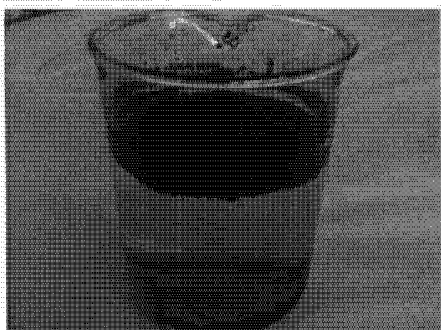


Fig. 1

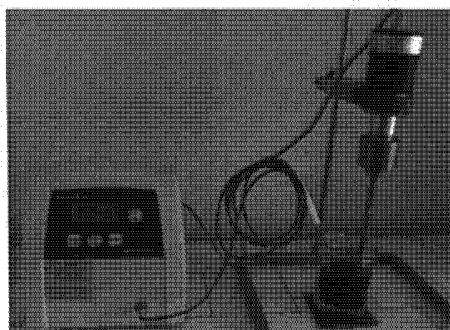


Fig. 2



Fig. 3

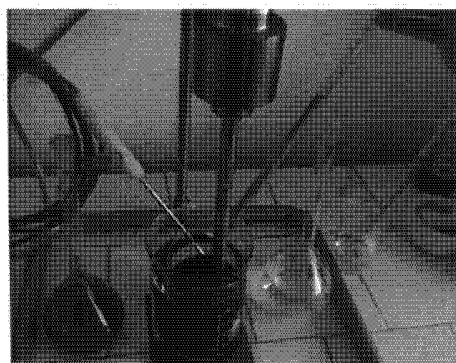


Fig. 4

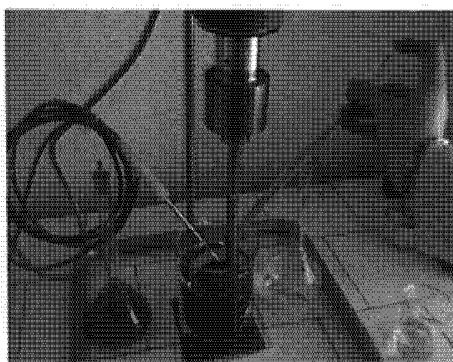


Fig. 5

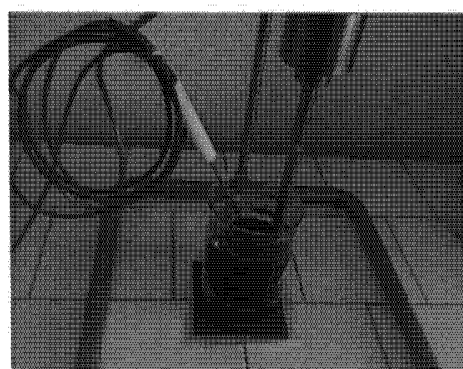


Fig. 6

(51) Int.Cl.
B82B 3/00 (2006.01),
C08J 5/00 (2006.01),
C08K 3/04 (2006.01),
B82Y 30/00 (2011.01)

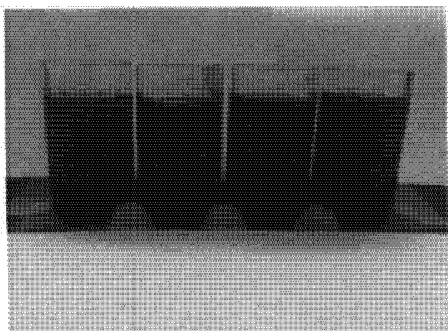


Fig. 7

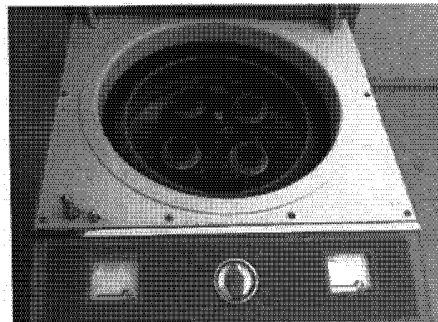


Fig. 8

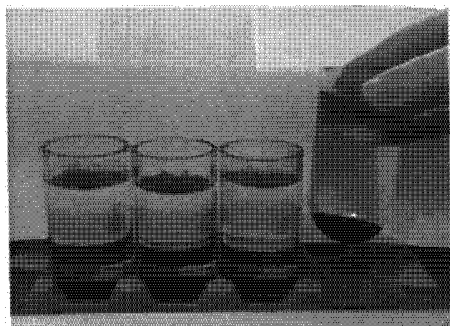


Fig. 9

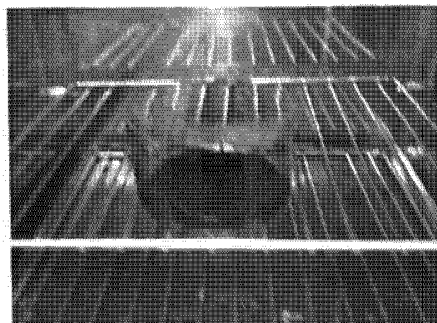


Fig. 10



Editare și tehnoredactare computerizată - OSIM
 Tipărit la: Oficiul de Stat pentru Invenții și Mărci
 sub comanda nr. 80/2016