

【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30年10月4日 (2018.10.4)

【公表番号】特表2017-531052(P2017-531052A)

【公表日】平成29年10月19日 (2017.10.19)

【年通号数】公開・登録公報2017-040

【出願番号】特願2017-504705(P2017-504705)

【国際特許分類】

C 0 8 L 101/00 (2006.01)

C 0 1 B 32/19 (2017.01)

C 0 8 K 3/04 (2006.01)

C 0 8 L 77/00 (2006.01)

C 0 8 L 77/10 (2006.01)

【 F I 】

C 0 8 L 101/00

C 0 1 B 32/19

C 0 8 K 3/04

C 0 8 L 77/00

C 0 8 L 77/10

【手続補正書】

【提出日】平成30年8月23日 (2018.8.23)

【手続補正 1】

【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】

熱可塑性ポリマーマトリクス内に、複合体の総重量の約 10 % から約 50 % で、グラファイトマイクロ粒子、単層グラフェンナノ粒子、多層グラフェンナノ粒子、およびこれらの 2 以上の組み合わせからなる群より選択される粒子を実質的に均一な分布で含み、

前記粒子の少なくとも 50 重量 % は、c 軸方向に沿って 50 ナノメートル未満の厚さの単層および / または多層グラフェンナノ粒子からなり ; および

前記熱可塑性ポリマーは、脂肪族ポリアミド、半芳香族ポリアミド、芳香族ポリアミド、高密度ポリエチレン、ポリグリコール酸、ポリ乳酸 - ポリグリコール酸共重合体 (PLGA) およびこれらの 2 以上の組み合わせからなる群より選択される、グラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項 2】

前記粒子の少なくとも 50 重量 % は、c 軸方向に沿って 10 ナノメートル未満の厚さの単層および / または多層グラフェンナノ粒子からなる、請求項 1 に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項 3】

前記グラフェン強化ポリマーマトリクス複合体は、前記熱可塑性ポリマーマトリクス内に、前記複合体の総重量の約 20 % から約 50 % で、グラファイトマイクロ粒子、単層グラフェンナノ粒子、多層グラフェンナノ粒子、およびこれらの 2 以上の組み合わせからなる群より選択される粒子を実質的に均一な分布で含む、請求項 1 に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項 4】

前記グラフェン強化ポリマーマトリクス複合体は、前記熱可塑性ポリマーマトリクス内に、前記複合体の総重量の約30%から約50%で、グラファイトマイクロ粒子、単層グラフェンナノ粒子、多層グラフェンナノ粒子、およびこれらの2以上の組み合わせからなる群より選択される粒子を実質的に均一な分布で含む、請求項1に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項5】

熱可塑性ポリマー中で機械的に剥離された、単層および/または多層グラフェンナノ粒子に結合または接着された、前記熱可塑性ポリマーを含み、

前記熱可塑性ポリマーは、脂肪族ポリアミド、半芳香族ポリアミド、芳香族ポリアミド、高密度ポリエチレン、ポリ乳酸、ポリグリコール酸、ポリ乳酸-ポリグリコール酸共重合体(PLGA)およびこれらの2以上の組み合わせからなる混合物からなる群より選択される、グラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項6】

熱可塑性ポリマーマトリクス内に、グラファイトマイクロ粒子、単層グラフェンナノ粒子、多層グラフェンナノ粒子、およびこれらの2以上の組み合わせからなる群より選択される粒子を実質的に均一な分布で含む、

前記粒子の少なくとも50重量%は、c軸方向に沿って50ナノメートル未満の厚さの、前記熱可塑性ポリマー中で機械的に剥離された、単層および/または多層グラフェンナノ粒子からなり、その少なくとも一部は、1以上の前記熱可塑性ポリマー分子とそれぞれ共有結合する、グラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項7】

1以上の前記単層および/または多層グラフェンナノ粒子とそれぞれ共有結合する、前記熱可塑性ポリマー分子を含む、請求項6に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項8】

1以上の機械的に剥離された、単層および/または多層グラフェンナノ粒子に結合または接着された、少なくとも1の熱可塑性ポリマー分子を含む、グラフェン強化ポリマーマトリクス混合物。

【請求項9】

請求項8に記載の混合物を含む、グラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項10】

前記熱可塑性ポリマーは、脂肪族ポリアミド、半芳香族ポリアミド、芳香族ポリアミド、高密度ポリエチレン、ポリグリコール酸、ポリ乳酸-ポリグリコール酸共重合体(PLGA)およびこれらの2以上の組み合わせからなる群より選択される、請求項6、7および9のいずれか1項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項11】

前記グラフェン強化ポリマーマトリクス複合体は、前記単層および/または多層グラフェンナノ粒子の底面を横切って形成される前記単層および/または多層グラフェンナノ粒子の裂け目を含み、

前記裂け目のエッジは、1または2以上の溶融された前記熱可塑性ポリマーと反応して、熱可塑性ポリマー鎖が前記単層および/または多層グラフェンナノ粒子と直接共有結合し、分子間架橋する複合体を提供する、反応性フリーラジカル結合部位を含む、請求項1、5～7、9および10のいずれか1項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項12】

前記脂肪族ポリアミドが、ポリアミド-6,6;ポリアミド-6,9;ポリアミド-6,10;ポリアミド-6,12;ポリアミド-4,6;ポリアミド-6(ナイロン-6);ポリアミド-11(ナイロン-11)およびポリアミド-12(ナイロン-12)からなる群より選択される、請求項1～4、10および11のいずれか1項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 13】

前記脂肪族ポリアミドは、ポリアミド - 6 , 6 である、請求項 12 に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 14】

前記半芳香族ポリアミドは、ポリフタルアミドである、請求項 1 ~ 4、10 および 11 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 15】

前記芳香族ポリアミドは、p - アラミドである、請求項 1 ~ 4、10 および 11 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 16】

前記グラファイトは、剥離されたグラフェンナノ粒子の表面化学を修飾するために他の成分をドーブされる、請求項 1 ~ 7 および 11 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 17】

前記グラファイトは、膨張グラファイトである、請求項 1 ~ 7 および 11 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 18】

前記分散されたグラファイトの表面化学またはナノ構造は、前記グラフェン強化複合体の強度および剛性を増加するために前記ポリマーマトリクスと結合するよう改質される、請求項 1 ~ 7 および 11 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 19】

前記グラフェンナノ粒子の指向性配列は、ポリマーマトリクス相の 1、2 または 3 次元強化を得るために用いられる、請求項 1 ~ 7 および 9 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 20】

シートのエッジ上に反応性結合部位を有する炭素原子を有する単層または多層グラフェンシートにより分子間架橋されたポリマー鎖を含む、請求項 1 ~ 7 および 9 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 21】

請求項 1 ~ 7 および 9 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体から形成される、自動車、航空機、船舶または航空宇宙の部品。

## 【請求項 22】

前記部品はエンジン部品である、請求項 21 に記載の部品。

## 【請求項 23】

前記複合体が、

(a) 1 以上の前記マトリクスポリマーを含む溶融熱可塑性ポリマー相中にグラファイトマイクロ粒子を分配すること、

ここで、前記グラファイトマイクロ粒子中の前記グラファイトの少なくとも 50 % が、c 軸方向に沿って 1 . 0 ~ 1 0 0 0 ミクロンの範囲の厚さの多層グラファイト結晶からなる；および

(b) 前記溶融ポリマー相中のせん断応力は前記グラファイトマイクロ粒子の層間せん断強度 (ISS) 以上となり、前記グラファイトの少なくとも 50 % が剥離されて、前記溶融ポリマー相中に c 軸方向に沿って 50 ナノメートル未満の厚さの単層および / または多層グラフェンナノ粒子の分布が形成されるまで、前記溶融ポリマー相がそれぞれの操作とともに連続して前記グラファイトを剥離するように、前記溶融ポリマー相にせん断ひずみ操作を連続して供給すること；

というステップを含む方法によって調製される、請求項 1 ~ 7 および 9 ~ 15 のいずれか 1 項に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

## 【請求項 24】

前記 ( b ) において、前記グラファイトの少なくとも 50 % が剥離されて、前記溶融ポリマー相中に c 軸方向に沿って 10 ナノメートル未満の厚さの単層および / または多層グラフェンナノ粒子の分布が形成されるまで、前記溶融ポリマー相がそれぞれの操作とともに連続して前記グラファイトを剥離するように、前記溶融ポリマー相にせん断ひずみ操作を連続して供給する、請求項 2 3 に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項 2 5】

前記グラファイト粒子は、

( i ) グラファイト含有鉱物をミリメートルサイズの寸法にまで粗砕および粉碎され、前記ミリメートルサイズの粒子をマイクロサイズの粒子にまで小さくし、前記グラファイト含有鉱物からマイクロサイズのグラファイト粒子を抽出することにより製造される ; または、

( i i ) 軸方向溝付き伸張混合部材またはスパイラル溝付き伸長混合部材を有する一軸スクリー押出機を用いて前記溶融ポリマー相に分配される ;

請求項 2 3 または 2 4 に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。

【請求項 2 6】

前記グラファイト含有溶融ポリマー相は、繰り返しの押出をされて、前記グラファイト材料の剥離を誘導し、前記熱可塑性ポリマーマトリクス中に、前記単層および / または多層グラフェンナノ粒子の前記実質的に均一な分布を形成する、請求項 2 5 に記載のグラフェン強化ポリマーマトリクス複合体。