



[12] 发明专利申请公开说明书

[21]申请号 94192378.9

[51]Int.Cl⁶

C01B 31/02

[43]公开日 1996 年 6 月 19 日

[22]申请日 94.5.26

[30]优先权

[32]93.6.8 [33]DE[31]P4319049.9

[86]国际申请 PCT/EP94/01712 94.5.26

[87]国际公布 WO94/29218 德 94.12.22

[85]进入国家阶段日期 95.12.8

[71]申请人 赫彻斯特股份公司

地址 联邦德国法兰克福

[72]发明人 H·莫恩

U·维尔斯

[74]专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专利商
标事务所

代理人 樊卫民

权利要求书 1 页 说明书 3 页 附图页数 0 页

[54]发明名称 从含富勒烯的炭黑中分离富勒烯的方法

[57]摘要

本发明涉及一种从含富勒烯的炭黑中分离出富勒烯的方法。炭黑通过微波加热且用载气流包裹。

权 利 要 求 书

1. 一种从含富勒烯的炭黑中分离出富勒烯的方法,其特征在于:通过微波加热炭黑和用载气流包裹炭黑。

2. 根据权利要求 1 的方法,其特征不在于:惰性气体作为载气。

3. 根据权利要求 1 或 2 的方法,其特征不在于:炭黑用频率为 403—24,125MHZ 的微波加热。

4. 根据权利要求 1—3 中的一项或多项的方法,其特征不在于:采用 0.1—100 米/秒的载气流速。

说 明 书

从含富勒烯的炭黑中分离富勒烯的方法

含富勒烯(Fulleren)的炭黑优选由 Krätschmer 和 Huffman 方法通过在电弧中蒸发石墨得到。 C_{60} —和 C_{70} —富勒烯主要由文献方法通过甲苯萃取接着用柱色谱法分离(Krätschmer, W. et al., *Nature* 347, 1990, S. 354)。只是偶尔为制备特殊样品和薄层, C_{60} 和 C_{70} 才通过升华纯化(Lin, J. Z. et al., *Appl. Phys. Lett.* 62(5), 1993)。

用溶剂对含富勒烯的炭黑的处理存在一系列问题:

- 由于低的溶解性而要求大量的溶剂流;
- 在色谱柱上长的保留时间,分解的危险;
- 大规模、耗能源的溶剂处理。

现已发现可借助升华从炭黑中分离出富勒烯,通过与炭黑作用的微波输入能量,且用一预热至 300—1000K 的惰性气流从炭黑中分离出升华的富勒烯蒸气,在冷却区中沉积。

因此本发明涉及一种从含富勒烯的炭黑中分离出富勒烯的方法,其中炭黑通过微波加热且用一载气流包裹。

通过微波将含富勒烯的炭黑加热至 600—1300K。炭黑可通过 433—24125MHZ 频率的微波加热。使用载送蒸发的富勒烯的载气流包裹炭黑。带入的炭黑颗粒通过耐热的过滤器分离。含富勒烯

的载气流被逐步冷却以便分级的富勒烯沉积。升华可于大气压或 $\leq 1000\text{mbar}$ 的减压下进行。

可在部分真空或稍超过大气压的压力下进载气流。 1mbar — 2bar 的操作压力是可能的；优选在环境压力的范围内进行。

适用于本发明工艺的载气为稀有气体如氦、氖、氩及其它惰性气体。原则上两种或更多种所述气体可作为混合物用于本发明工艺。

载气的体积流可在很宽范围内变化且基本上取决于装置的几何形状。相应地，流速也可在宽的范围内变化，操作可在 0.1 — 100 米/秒，优选 5 — 15 米/秒的流速下进行。然而，富勒烯还可以更低或更高的速度排出。优选采用的流速可允许形成流化床。然而，可采用其它导致形成流化床或流体通过其中的固定床的流速。

输入的气体的温度也可在一宽范围内变化且可根据待分离富勒烯的种类来调整。为分离 C_{60} 和/或 C_{70} 载气优选预热至 700 — 1000K 的温度范围。相反，结晶富勒烯的沉积可发生在约 600°C 以下。

与通常的方法比较以及与单独应用这两个步骤比较，通过用微波对含富勒烯炭黑加热和用载气流包裹进行结合产生了显著的速度产率提高。微波—载气—流化床—升华方法在几分钟的照射时间内得到高于 80% 的高富勒烯产率。

以下借助于实施例对本发明作进一步说明：

实施例：

在一来自 *Büchi GmbH, D-7320 Göppingen* 的型号 *MLS 1200* 商用实验微波装置中，含富勒烯的炭黑在一竖直石英玻璃管（

长:150mm,内直径:20mm)中通过微波加热(800W)。炭黑样品通过石英烧结物固定在竖直管中。载气,优选氮、250L/h、从底部流经样品且产生流化床。此外气流确保升华的富勒烯被载送进冷却区,在此实施例中,石英管中样品上的用石英棉填充的空间为冷却区。

样品于800W被五次照射1分钟。在加热阶段之间各有1分钟的冷却阶段。这一程序确保升华温度不超过800℃。

HPLC分析冷凝物表明产率为80%,组成为75% C_{60} 和25% C_{70} 。