

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2009-1717

(P2009-1717A)

(43) 公開日 平成21年1月8日(2009.1.8)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
CO8L 101/00 (2006.01)	CO8L 101/00	4FO70
B29C 45/00 (2006.01)	B29C 45/00	4F206
CO8K 3/04 (2006.01)	CO8K 3/04	4G146
CO8J 3/20 (2006.01)	CO8J 3/20 A	4J002
CO1B 31/02 (2006.01)	CO1B 31/02 1O1F	

審査請求 有 請求項の数 6 O L (全 19 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2007-165363 (P2007-165363)
 (22) 出願日 平成19年6月22日 (2007.6.22)

(71) 出願人 000227054
 日精樹脂工業株式会社
 長野県埴科郡坂城町大字南条2110番地
 (74) 代理人 100067356
 弁理士 下田 容一郎
 (72) 発明者 小塚 誠
 長野県埴科郡坂城町大字南条2110番地
 日精樹脂工業株式会社内
 (72) 発明者 小林 恒司
 長野県埴科郡坂城町大字南条2110番地
 日精樹脂工業株式会社内
 (72) 発明者 高橋 幸彦
 長野県埴科郡坂城町大字南条2110番地
 日精樹脂工業株式会社内

最終頁に続く

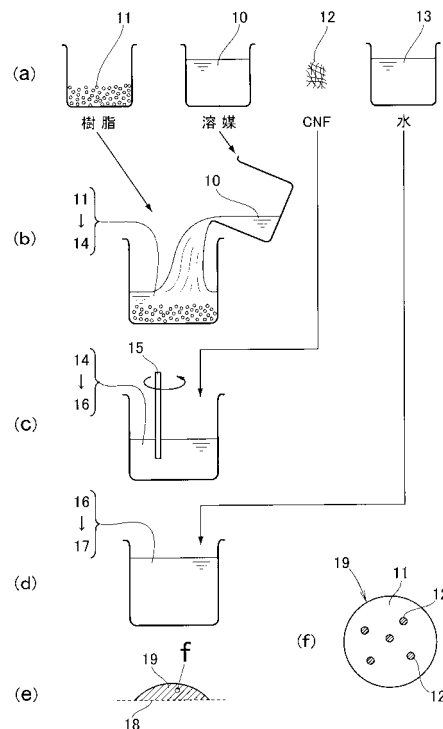
(54) 【発明の名称】 樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法及びカーボンナノ複合樹脂成形品の製造方法

(57) 【要約】

【解決手段】 図(b)に示すように、樹脂材料11と有機溶媒10とを混合し、有機溶媒10中に樹脂材料11を溶解させて樹脂分散溶液14を得る。次に、(c)に示すように、樹脂分散溶液14に、(a)で準備したカーボンナノ材料12を添加する。そして、攪拌棒15により、カーボンナノ材料12が分散するように、十分に攪拌する。(d)に示すように、カーボンナノ・樹脂分散溶液16に十分な量の水13を添加して、水相化溶液17にする。すると、THFは水相へ移行される。水相化溶液17を、(e)に示すように、濾紙18で濾過する。これで、THFは水と共に除去される。残りは、乾燥により除去することができる。乾燥の結果、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料19を得る。(f)に示すように、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料19は、カーボンナノ材料12が大量の樹脂材料11で被覆されている。

【効果】 表面の樹脂材料が隔壁となって、カーボンナノ材料同士の接触、凝集を阻止する。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

テトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒と、この有機溶媒に溶解する樹脂材料と、カーボンナノ材料と、水とを準備する工程と、

前記有機溶媒と前記樹脂材料とを混合し、有機溶媒中に樹脂材料を溶解させて樹脂分散溶液を得る樹脂分散工程と、

得られた樹脂分散溶液に、前記カーボンナノ材料を添加し、攪拌してカーボンナノ・樹脂分散溶液を得る攪拌工程と、

得られたカーボンナノ・樹脂分散溶液に水を添加して、前記有機溶媒を水相へ移行する溶媒水相化工程と、

水相化溶液を乾燥することで、前記有機溶媒を除去し、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料を得る乾燥工程と、からなることを特徴とする樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法。

【請求項 2】

前記攪拌工程での攪拌は、機械的攪拌であることを特徴とする請求項 1 記載の樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法。

【請求項 3】

前記樹脂材料は、ポリカーボネート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリメチルメタクリレート樹脂から選ばれる少なくとも 1 種を含むことを特徴とする請求項 1 記載の樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法。

【請求項 4】

前記カーボンナノ材料が、前記樹脂で被覆されたカーボンナノ材料に占める割合は、3 ~ 20 質量%であることを特徴とする請求項 1 記載の樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法。

【請求項 5】

前記カーボンナノ材料は、黒鉛化処理を施していない未黒鉛カーボンナノ材料であることを特徴とする請求項 1 記載の樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法。

【請求項 6】

請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項記載の樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法で製造された樹脂で被覆されたカーボンナノ材料を準備する工程と、

この樹脂で被覆されたカーボンナノ材料を射出成形することでカーボンナノ複合樹脂成形品を得る射出成形工程と、からなるカーボンナノ複合樹脂成形品の製造方法。

【発明の詳細な説明】**【技術分野】****【0001】**

本発明は、樹脂材料とカーボンナノ材料との混合技術に関する。

【背景技術】**【0002】**

近年、カーボンナノ材料と称する特殊な炭素繊維を、プラスチックに混入することで導電性プラスチックにすることや、熔融金属に混入することで繊維強化金属にする技術が注目

【0003】

図 8 はカーボンナノファイバのモデル図であり、カーボンナノ材料の 1 種であるカーボンナノファイバ 110 は、六角網目状に配列した炭素原子のシートを筒状に巻いた形態のものであり、直径 D が 1.0 nm (ナノメートル) ~ 150 nm であり、ナノレベルであるため、カーボンナノ材料と呼ばれる。なお、長さ L は数 μm ~ 100 μm である。

【0004】

炭素原子が立方格子状に並んだものがダイヤモンドであって、ダイヤモンドは極めて硬い物質である。カーボンナノファイバ 110 は、ダイヤモンドと同様に規則的な結晶構造を有するために機械的強度は大きい。また、炭素は電気をよく通すため、電極などに用い

10

20

30

40

50

られる。

【0005】

しかし、上述したとおりにカーボンナノ材料は超微細であるために、ミクロンオーダーのカーボン粉末と比較すると、凝集しやすく分散しにくいという特性があるため、取扱いが難しい。

そこで、本出願人は先に、樹脂材料とカーボンナノ材料との混合を促す技術を提案した（例えば、特許文献1参照。）。

【特許文献1】特開2005-298553公報（図1、図2）

【0006】

特許文献1を次図に基づいて説明する。

10

図9は従来製造フロー図であり、ST××はステップ番号を示す。

ST101：先ず、樹脂材料及びカーボンナノ材料を所定量準備する。樹脂材料は、粉末や粒状物など表面積が大きな形態の材料が望ましい。

ST102：樹脂材料及びカーボンナノ材料を混合器に入れ、樹脂材料の表面全体が軟化する温度に保ちつつ混合する。

これで、混合物を得ることができる。

【0007】

樹脂材料の表面全体が軟化する温度は、樹脂材料がポリプロピレンであれば、その融点温度は160～170であり、加熱温度は140～160とする。また、樹脂材料がPET（ポリエチレンテレフタレート）であれば、その融点温度は253～265であり、加熱温度は200～210とすることが望ましい。

20

【0008】

図10は本発明方法で得た混合物の模式図であり、混合物110は、樹脂材料111の表面に無数のカーボンナノ材料112が付着したものである。

樹脂材料111の周囲にカーボンナノ材料112が付着するため、カーボンナノ材料112同士が凝集する虞がなく、結果的にカーボンナノ材料112を均一に樹脂材料に分散させることができる。

【0009】

このような混合物110を用いて射出成形を実施し、樹脂成形品を得たところ、一定の強度向上が認められた。しかし、この強度向上幅は、期待したほどは大きくなかった。その理由は、混合物110が射出成形機の加熱筒に投入され、混練される段階（可塑化・計量工程の初期段階）で、樹脂材料111に付着させていたカーボンナノ材料112の一部が脱落する。そして、脱落したカーボンナノ材料112が樹脂に分散する前に凝集してしまつたと考えられる。

30

そこで、従来混合技術（加熱混合技術、以下、加熱法という。）に代わる混合技術が求められる。

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0010】

本発明は、成形品の強度をより高めることができる樹脂材料とカーボンナノ材料との新しい混合技術を提供することを課題とする。

40

【課題を解決するための手段】

【0011】

請求項1に係る発明は、テトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒と、この有機溶媒に溶解する樹脂材料と、カーボンナノ材料と、水とを準備する工程と、

前記有機溶媒と前記樹脂材料とを混合し、有機溶媒中に樹脂材料を溶解させて樹脂分散溶液を得る樹脂分散工程と、

得られた樹脂分散溶液に、前記カーボンナノ材料を添加し、攪拌してカーボンナノ・樹脂分散溶液を得る攪拌工程と、

得られたカーボンナノ・樹脂分散溶液に水を添加して、前記有機溶媒を水相へ移行する

50

溶媒水相化工程と、

水相化溶液を乾燥することで、前記有機溶媒を除去し、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料を得る乾燥工程と、からなることを特徴とする樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法である。

【0012】

請求項2に係る発明では、攪拌工程での攪拌は、機械的攪拌であることを特徴とする。

【0013】

請求項3に係る発明では、樹脂材料は、ポリカーボネート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリメチルメタクリレート樹脂から選ばれる少なくとも1種を含むことを特徴とする。

【0014】

請求項4に係る発明では、カーボンナノ材料が、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料に占める割合は、3～20質量%であることを特徴とする。

【0015】

請求項5に係る発明では、カーボンナノ材料は、黒鉛化処理を施していない未黒鉛カーボンナノ材料であることを特徴とする。

【0016】

請求項6に係る発明は、請求項1～4のいずれか1項記載の樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法で製造された樹脂で被覆されたカーボンナノ材料を準備する工程と、この樹脂で被覆されたカーボンナノ材料を射出成形することでカーボンナノ複合樹脂成形品を得る射出成形工程と、からなるカーボンナノ複合樹脂成形品の製造方法である。

【発明の効果】

【0017】

請求項1に係る発明は、カーボンナノ材料を樹脂材料で被覆することを目標に完成したものである。表面の樹脂材料が隔壁となって、カーボンナノ材料同士の接触、凝集を阻止するからである。

そのためには、被覆材としての樹脂材料を液体にする必要がある。液状にするには溶剤が必要であるが、本発明では、毒性と後処理の2点を考慮して、テトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒を採用した。

【0018】

テトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒は、比較的毒性が低い。そして、水と混合することにより、水相へ移行させることができ、容易に除去することができる。

このようなテトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒で樹脂材料を液状にし、この溶液にカーボンナノ材料を混ぜる。これで、カーボンナノ材料は樹脂材料で被覆される。後は、水で有機溶媒を除去し、乾燥させれば、樹脂材料で被覆されたカーボンナノ材料を得ることができる。

樹脂材料で被覆されたカーボンナノ材料を用いて射出成形を実施すれば、高強度の成形品を得ることができる。

【0019】

請求項2に係る発明では、攪拌工程での攪拌は、機械的攪拌とした。機械的攪拌は、棒や羽根で溶液を攪拌することを指す。別の代表的な攪拌には超音波攪拌がある。超音波攪拌は、機械的攪拌に比較して、攪拌作用が格段に強力であり、攪拌時間の短縮化が図れる。しかし、実験の結果、樹脂の種類によっては強度が低下する事象が確認された。これは、超音波により樹脂の劣化が起こり、添加剤が樹脂から抜けやすくなるためと考えられる。この点、機械的攪拌であれば、樹脂材料で被覆されたカーボンナノ材料を健全な状態で攪拌することができる。

【0020】

請求項3に係る発明では、樹脂材料は、ポリカーボネート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリメチルメタクリレート樹脂から選ばれる少なくとも1種を含む。ポリカーボネート樹脂、ポリスチレン樹脂、ポリメチルメタクリレート樹脂は、何れも入手容易で、安価であり、且つテトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒に可溶性材料である。

10

20

30

40

50

【0021】

請求項4に係る発明では、カーボンナノ材料が、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料に占める割合は、3～20質量%とした。3質量%以上であれば、高い強度が得られる。一方、20質量%を超えると、最高引張降伏点に達せずに切れてしまい、明らかに強度が低下していることが判明した。そのため、カーボンナノ材料の添加は3～20質量%とする。

【0022】

請求項5に係る発明では、カーボンナノ材料は、黒鉛化処理を施していない未黒鉛カーボンナノ材料とした。未黒鉛化カーボンナノ材料は、黒鉛化カーボンナノ材料に比べて、表面が粗いため、樹脂材料と絡みやすくなり、この結果、強度向上が期待できる。

10

【0023】

請求項6に係る発明は、請求項1～4のいずれか1項記載の樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法で製造された樹脂で被覆されたカーボンナノ材料を準備する工程と、この樹脂で被覆されたカーボンナノ材料を射出成形することでカーボンナノ複合樹脂成形品を得る射出成形工程と、からなるカーボンナノ複合樹脂成形品の製造方法である。

樹脂で被覆されたカーボンナノ材料で射出成形したため、カーボンナノ材料の分散性が確保され、高い強度の樹脂成形品を製造することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0024】

本発明を実施するための最良の形態を添付図に基づいて以下に説明する。

20

図1は本発明に係る製造方法の工程を説明する図であり、(a)に示すように、テトラヒドロフラン(以下、THFと記す。)を主成分とする有機溶媒10と、この有機溶媒10に溶解する樹脂材料11と、適量のカーボンナノ材料12と、水13とを準備する。

【0025】

樹脂材料11は、THFに溶解する樹脂であれば種類は任意であるが、ポリカーボネート樹脂やポリスチレン樹脂やポリメチルメタクリレート樹脂や変性ポリフェニレンエーテル樹脂が、入手容易で安価であるため、好適である。樹脂材料は2種又はそれ以上の樹脂材料を混合したものであってもよい。

【0026】

カーボンナノ材料12は、樹脂材料11との和の3～20質量%が適量である。

30

次に、(b)に示すように、樹脂材料11と有機溶媒10とを混合し、有機溶媒10中に樹脂材料11を溶解させて樹脂分散溶液14を得る。混合は、樹脂材料11に有機溶媒10を注ぐ方法と、有機溶媒10の中に樹脂材料11を投入する方法の何れであってもよい。

【0027】

次に、(c)に示すように、樹脂分散溶液14に、(a)で準備したカーボンナノ材料12を添加する。そして、攪拌棒15により、カーボンナノ材料12が分散するように、十分に攪拌する。これで、カーボンナノ・樹脂分散溶液16を得ることができる。攪拌棒15は攪拌羽根であってもよい。

【0028】

40

これで、THFは用済みである。そこで、(d)に示すように、カーボンナノ・樹脂分散溶液16に十分な量の水13を添加して、水相化溶液17にする。すると、THFは水相へ移行される。

【0029】

水相化溶液17を、(e)に示すように、濾紙18で濾過する。これで、THFは水と共に除去される。残りは、乾燥により除去することができる。乾燥の結果、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料19を得る。

(f)は、(e)のf部拡大図であり、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料19は、カーボンナノ材料12が大量の樹脂材料11で被覆されている。

【0030】

50

すなわち、本発明は、(a)に示すように、テトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒10と、この有機溶媒に溶解する樹脂材料11と、カーボンナノ材料12と、水13とを準備する工程と、(b)に示すように、前記有機溶媒10と前記樹脂材料11とを混合し、有機溶媒中に樹脂材料を溶解させて樹脂分散溶液14を得る樹脂分散工程と、(c)に示すように、得られた樹脂分散溶液14に、前記カーボンナノ材料12を添加し、攪拌してカーボンナノ・樹脂分散溶液16を得る攪拌工程と、(d)に示すように、得られたカーボンナノ・樹脂分散溶液16に水13を添加して、前記有機溶媒を水相へ移行する溶媒水相化工程と、得られた水相化溶液17を、(e)に示すように、乾燥することで、前記有機溶媒を除去し、樹脂で被覆されたカーボンナノ材料19を得る乾燥工程と、からなることを特徴とする樹脂で被覆されたカーボンナノ材料の製造方法である。

10

【0031】

テトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒は、毒性が低い。そして、水と混合することにより、水相へ移行させることができ、容易に除去することができる。

このようなテトラヒドロフランを主成分とする有機溶媒で樹脂材料を液状にし、この溶液にカーボンナノ材料を混ぜる。これで、カーボンナノ材料は樹脂材料で被覆される。後は、水で有機溶媒を除去し、乾燥させれば、樹脂材料で被覆されたカーボンナノ材料を得ることができる。

【0032】

なお、具体的な樹脂材料(ポリカーボネート樹脂、ポリスチレン樹脂、変性ポリフェニレンエーテル樹脂)について、実験を行い、本発明の製造方法の優位性が確認できた。この実験の詳細を次に述べる。

20

【0033】

(実験例)

本発明に係る実験例を以下に述べる。なお、本発明は実験例に限定されるものではない。

【0034】

図2は実施例1~4のためのフロー図であり、PC(ポリカーボネート樹脂)56g~67.9gを準備し(ST01)、これにTHF溶媒500mlを投入して(ST02)、樹脂分散溶液を得る(ST03)。この樹脂分散溶液にCNF(カーボンナノ材料)2.1g~14gを投入し(ST04)、60分間機械的攪拌を実施し(ST05)、次に水を投入し(ST06)、THF溶液を水相化した(ST07)。これを濾過し(ST08)、乾燥し(ST09)、塊を得た。この塊を射出成形材料に適する大きさに粉碎し(ST10)、さらに乾燥させる(ST11)。適当な大きさの射出成形材料を射出成形機へ供給し、射出成形を実施する(ST12)。得られた樹脂成形品を引張り試験機に掛けて、引張り強さを計測する(ST13)。

30

【0035】

図3は比較例1~2のためのフロー図であり、図2のST05とST06との間に超音波攪拌(ST26)を追加した。他は、図2と同一であるが、ステップ番号(ST)を振り直した上で、説明を繰り返す。

すなわち、PC(ポリカーボネート樹脂)63g~67.9gを準備し(ST21)、これにTHF溶媒500mlを投入して(ST22)、樹脂分散溶液を得る(ST23)。この樹脂分散溶液にCNF(カーボンナノ材料)2.1g~7gを投入し(ST24)、60分間機械的攪拌を実施し(ST25)、更に120分間超音波攪拌を実施する(ST26)。

40

【0036】

次に水を投入し(ST27)、THF溶液を水相化した(ST28)。これを濾過し(ST29)、乾燥し(ST30)、塊を得た。この塊を射出成形材料に適する大きさに粉碎し(ST31)、さらに乾燥させる(ST32)。適当な大きさの射出成形材料を射出成形機へ供給し、射出成形を実施する(ST33)。得られた樹脂成形品を引張り試験機に掛けて、引張り強さを計測する(ST34)。

50

【 0 0 3 7 】

比較例 3 ~ 5 :

さらなる比較のために、従来の技術（図 9）で、成形材料を製造し、この材料で樹脂成形品を製造し、得られた樹脂成形品を引張り試験機に掛けて、引張り強さを計測した。

以上の実施例 1 ~ 3 及び比較例 1 ~ 5 の内容及び結果を、次表にまとめた。

【 0 0 3 8 】

【表 1】

	材料			フオーク	処理		$\frac{\text{CNF}}{\text{PC+CNF}}$	引張り強さ
	PC	THF	CNF		加熱	超音波攪拌		
実施例1	67.9g	500ml	2.1g	図2	/	/	3%	67.3MPa
実施例2	66.5g	500ml	3.5g	図2	/	/	5%	70.7MPa
実施例3	63g	500ml	7g	図2	/	/	10%	72.3MPa
実施例4	56g	500ml	14g	図2	/	/	20%	74.8MPa
比較例1	66.5g	500ml	3.5g	図3	/	○	5%	64.7MPa
比較例2	63g	500ml	7g	図3	/	○	10%	66.0MPa
比較例3	66.5g	/	3.5g	図9	○	/	5%	64.4MPa
比較例4	64.7g	/	5.3g	図9	○	/	7.5%	65.9MPa
比較例5	63g	/	7g	図9	○	/	10%	64.7MPa

実施例 1 は、P C (ポリカーボネート) 67.9 g、T H F 溶媒 500 m l、C N F (カーボンナノ材料) 2.1 g を準備し、図 2 の要領で処理した。カーボンナノ材料の添加率 (C N F / (P C + C N F)) で計算。以下同様) は 3 % である。得られた樹脂成形品の引張り強さは、67.3 M P a であった。

【0040】

実施例 2 は、実施例 1 に対して、カーボンナノ材料の添加率を 5 % とした。得られた樹脂成形品の引張り強さは、70.7 M P a であった。

実施例 3 は、実施例 1 に対して、カーボンナノ材料の添加率を 10 % とした。得られた樹脂成形品の引張り強さは、72.3 M P a であった。

実施例 4 は、実施例 1 に対して、カーボンナノ材料の添加率を 20 % とした。得られた樹脂成形品の引張り強さは、74.8 M P a であった。

【0041】

比較例 1 は、実施例 2 に対して超音波撹拌を追加した。

すなわち、比較例 1 は、ポリカーボネート 66.5 g、T H F 溶媒 500 m l、カーボンナノ材料 3.5 g を準備し、図 3 の要領で処理した。カーボンナノ材料の添加率は 5 % である。得られた樹脂成形品の引張り強さは、64.7 M P a であった。

比較例 2 は、比較例 1 に対して、カーボンナノ材料の添加率を 10 % とした。得られた樹脂成形品の引張り強さは、66.0 M P a であった。

【0042】

比較例 3 ~ 5 は、従来の加熱法によるものである。

すなわち、比較例 3 は、ポリカーボネート 66.5 g、カーボンナノ材料 3.5 g を準備し、図 9 の要領で処理した。カーボンナノ材料の添加率は 5 % である。得られた樹脂成形品の引張り強さは、64.4 M P a であった。

比較例 4 は、比較例 3 に対して、カーボンナノ材料の添加率を 7.5 % とした。得られた樹脂成形品の引張り強さは、65.9 M P a であった。

比較例 5 は、比較例 3 に対して、カーボンナノ材料の添加率を 10 % とした。得られた樹脂成形品の引張り強さは、64.7 M P a であった。

【0043】

上記表の結果を、グラフ化する。

図 4 はカーボンナノ材料の添加率と引張り強さの相関を示すグラフであり、実施例 1 ~ 4 と比較例 1 ~ 2 と比較例 3 ~ 5 をプロットしたところ、実施例 1 ~ 4 は、比較例 1 ~ 5 より 10 % 程度高い引張り強さが得られた。

【0044】

先ず、実施例 1 ~ 4 が、従来の加熱法に基づく比較例 3 ~ 5 よりも優れていることから、樹脂材料で被覆されたカーボンナノ材料の優秀さが証明できた。

一方、撹拌を促すために超音波撹拌を追加した比較例 1 ~ 2 が、比較例 3 ~ 5 並であったことから、超音波撹拌を施すと樹脂の劣化が起り、添加剤が樹脂から抜けやすくなるためと考えられる。

【0045】

次に、樹脂材料を、ポリスチレン樹脂とした場合の実験 (実施例 5) について説明する。

図 5 は実施例 5 のためのフロー図であり、P S (ポリスチレン樹脂) 66.5 g を準備し (S T 4 1)、これに T H F 溶媒 500 m l を投入して (S T 4 2)、樹脂分散溶液を得る (S T 4 3)。この樹脂分散溶液に C N F (カーボンナノ材料) 3.5 g を投入し (S T 4 4)、60 分間機械的撹拌を実施し (S T 4 5)、次に水を投入し (S T 4 6)、T H F 溶液を水相化した (S T 4 7)。これを濾過し (S T 4 8)、乾燥し (S T 4 9)、塊を得た。この塊を射出成形材料に適する大きさに粉碎し (S T 5 0)、さらに乾燥させる (S T 5 1)。適当な大きさの射出成形材料を射出成形機へ供給し、射出成形を実施する (S T 5 2)。得られた樹脂成形品を引張り試験機に掛けて、引張り強さを計測する (S T 5 3)。

10

20

30

40

50

【 0 0 4 6 】

【 表 2 】

	材料			処理		引張り強さ
	PS	THF	CNF	フロー	加熱	
実施例5	66.5g	500ml	3.5g	図5		45MPa
比較例6	66.5g		3.5g	図9	○	42.4MPa

10

20

30

40

【 0 0 4 7 】

実施例5は、PS（ポリスチレン樹脂）66.5g、THF溶媒500ml、カーボンナノ材料3.5gを準備し、図5の要領で処理した。得られた樹脂成形品の引張り強さは、45MPaであった。

比較例6は、PS（ポリスチレン樹脂）66.5g、カーボンナノ材料3.5gを準備し、図9の要領で処理した。得られた樹脂成形品の引張り強さは、42.4MPaであった。

$45\text{MPa} / 42.4\text{MPa} = 1.06$ の計算により、実施例5は比較例6より、6%引張り強さの点で優れていた。

50

【 0 0 4 8 】

次に、樹脂材料を、変性ポリフェニレンエーテル樹脂（P S と P P E のポリマーアロイ）とした場合の実験（実施例 6）について説明する。

図 6 は実施例 6 のためのフロー図であり、P S（ポリスチレン樹脂）7 5 g を準備し（S T 6 1）、これに T H F 溶媒 8 0 0 m l を投入して（S T 6 2）、樹脂分散溶液を得る（S T 6 3）。この樹脂分散溶液に P P E（ポリフェニレンエーテル樹脂）2 0 g を投入し（S T 6 4）、さらに C N F（カーボンナノ材料）5 g を投入し（S T 6 5）、5 日間機械的攪拌を実施し（S T 6 6）、次に水を投入し（S T 6 7）、T H F 溶液を水相化した（S T 6 8）。これを濾過し（S T 6 9）、乾燥し（S T 7 0）、塊を得た。この塊を射出成形材料に適する大きさに粉碎し（S T 7 1）、さらに乾燥させる（S T 7 2）。適当な大きさの射出成形材料を射出成形機へ供給し、射出成形を実施する（S T 7 3）。得られた樹脂成形品を引張り試験機に掛けて、引張り強さを計測する（S T 7 4）。

【 0 0 4 9 】

【表 3】

	材料				処理		引張り強さ
	PS	PPE	THF	CNF	フロー	加熱	
実施例6	75g	20g	500ml	5g	図6		56MPa
比較例7	75g	20g		5g	図9	○	52MPa

10

20

30

40

【0050】

実施例6は、PS 75 g、PPE（ポリフェニレンエーテル樹脂）20 g、THF 溶媒 500 ml、カーボンナノ材料 5 g を準備し、図6の要領で処理した。得られた樹脂成形品の引張り強さは、56 MPaであった。

比較例7は、PS 75 g、PPE（ポリフェニレンエーテル樹脂）20 g、カーボンナ

50

ノ材料 5 g を準備し、図 9 の要領で処理した。得られた樹脂成形品の引張り強さは、52 MPa であった。

$56 \text{ MPa} / 52 \text{ MPa} = 1.077$ の計算により、実施例 6 は比較例 7 より、約 8 % 引張り強さの点で優れていた。

このように、本発明では、THF 溶媒に可溶性樹脂材料と、溶媒に溶解しない樹脂の組合せであっても強度を高めることができる。

【0051】

なお、実験例は省略するが、樹脂材料がポリメチルメタクリレート樹脂であっても同様の結果が確認できた。

【0052】

また、図 5 の ST 45 において、機械的攪拌を 2 日間実施したが、PS は、PC に比較して強度の低下が認められなかったため、1 日～2 日の超音波攪拌に変更することが可能である。

【0053】

次に、カーボンナノ材料の添加量について実験したので、その内容を説明する。

【0054】

【表 4】

実験番号	材料			処理	CNF PCT+CNF	引張り強さ
	PC	THF	CNF			
実験1	70g			フロ-	0	59.2MPa
実験2	66.5g	500ml	3.5g	図2	5%	76.0MPa
実験3	63g	500ml	7g	図2	10%	80.0MPa
実験4	56g	500ml	14g	図2	20%	81.3MPa

10

20

30

40

【0055】

実験番号1では、比較のために、カーボンナノ材料を添加しないPC（ポリカーボネート）材料を射出成形することで樹脂成形品を製造した。この樹脂成形品の引張り強さは59.2MPaであった。

【0056】

実験番号2では、PC（ポリカーボネート）66.5g、THF溶媒500ml、未黒鉛化カーボンナノ材料3.5gを準備し、図2の要領で処理した。未黒鉛化カーボンナノ材料の添加率は5%である。得られた樹脂成形品の引張り強さは、76.0MPaであった。

【0057】

50

実験番号 3 では、実験番号 2 に対して、未黒鉛化カーボンナノ材料の添加率は 10% に変更した。得られた樹脂成形品の引張り強さは、80.0 MPa であった。

実験番号 4 では、実験番号 2 に対して、未黒鉛化カーボンナノ材料の添加率は 20% に変更した。得られた樹脂成形品の引張り強さは、81.3 MPa であった。

【0058】

図 7 はカーボンナノ材料の添加率と引張り強さの相関を示すグラフであり、破線は、表 1 に示した実施例 2 の引張り強さ 70.7 MPa、実施例 3 の引張り強さ 72.3 MPa、実施例 4 の引張り強さ 74.8 MPa を結ぶ線である。なお、実施例 2 ~ 4 は黒鉛化カーボンナノ材料を使用している。

これに対して、実線は、表 4 に示した実験 1 から実験 4 の引張り強さ 59.2 MPa、76.0 MPa、80.0 MPa、81.3 MPa を結ぶ曲線である。

10

【0059】

グラフから明らかなように未黒鉛化カーボンナノ材料を使用したものは、黒鉛化カーボンナノ材料を使用したものに比較して、全体的に強度の向上していることが分かる。未黒鉛化カーボンナノ材料は、黒鉛化カーボンナノ材料に比べて、表面が粗いため、樹脂材料と絡みやすくなり、この結果、強度が向上したと考えられる。

【産業上の利用可能性】

【0060】

本発明の樹脂で被覆されたカーボンナノ材料は、射出成形材料に好適である。

【図面の簡単な説明】

20

【0061】

【図 1】本発明に係る製造方法の工程を説明する図である。

【図 2】実施例 1 ~ 4 のためのフロー図である。

【図 3】比較例 1 ~ 2 のためのフロー図である。

【図 4】カーボンナノ材料の添加率と引張り強さの相関を示すグラフである。

【図 5】実施例 5 のためのフロー図である。

【図 6】実施例 6 のためのフロー図である。

【図 7】カーボンナノ材料の添加率と引張り強さの相関を示すグラフである。

【図 8】カーボンナノファイバのモデル図である。

【図 9】従来の製造フロー図である。

30

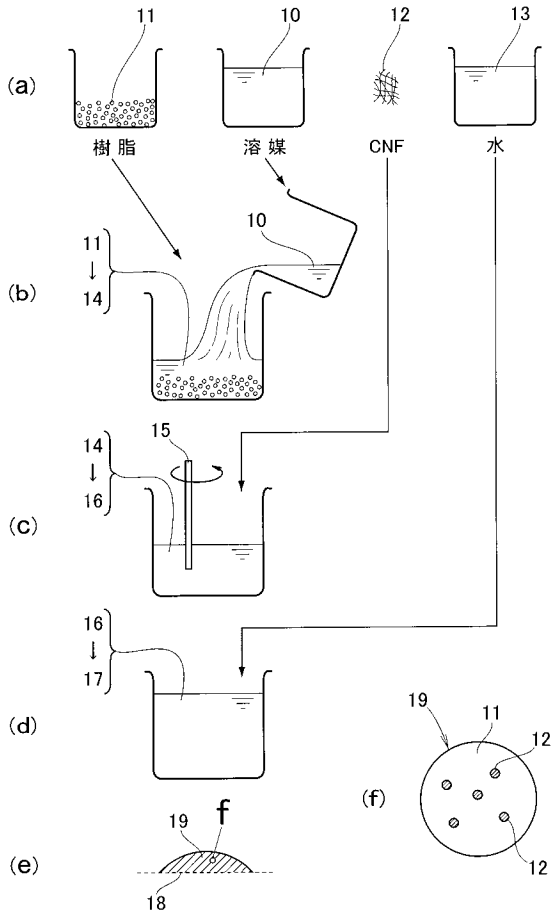
【図 10】本発明方法で得た混合物の模式図である。

【符号の説明】

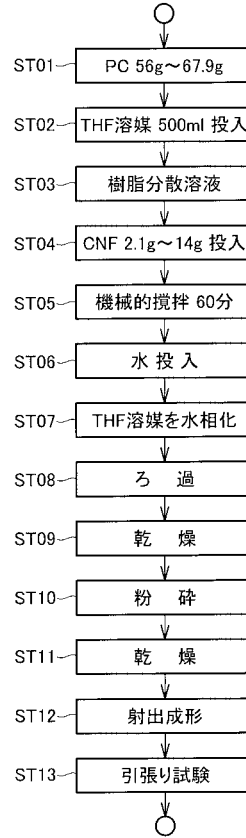
【0062】

10 ... 有機溶媒、11 ... 樹脂材料、12 ... カーボンナノ材料、13 ... 水、14 ... 樹脂分散溶液、15 ... 攪拌棒、16 ... カーボンナノ・樹脂分散溶液、17 ... 水相化溶液、18 ... 濾紙、19 ... 樹脂で被覆されたカーボンナノ材料。

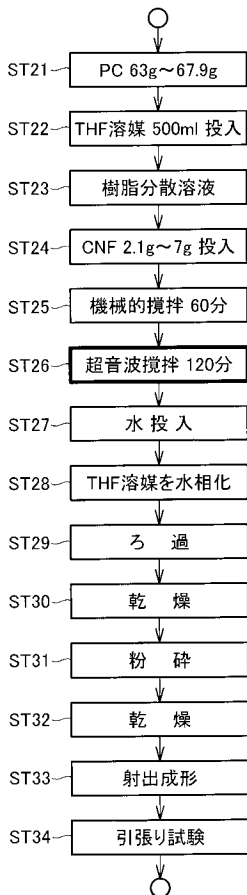
【 図 1 】



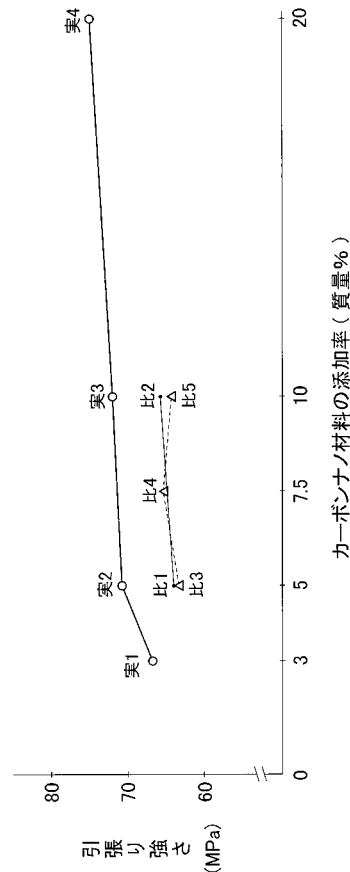
【 図 2 】



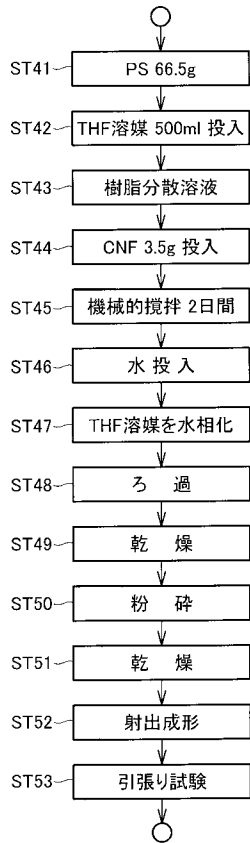
【 図 3 】



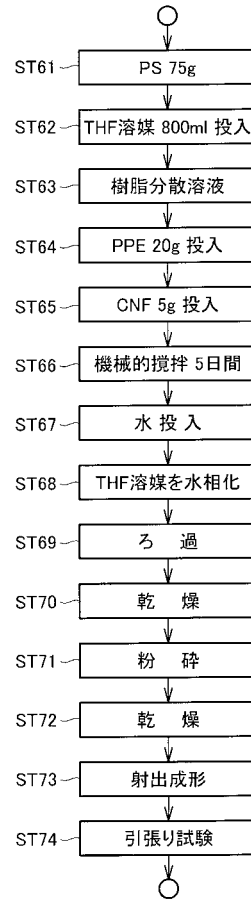
【 図 4 】



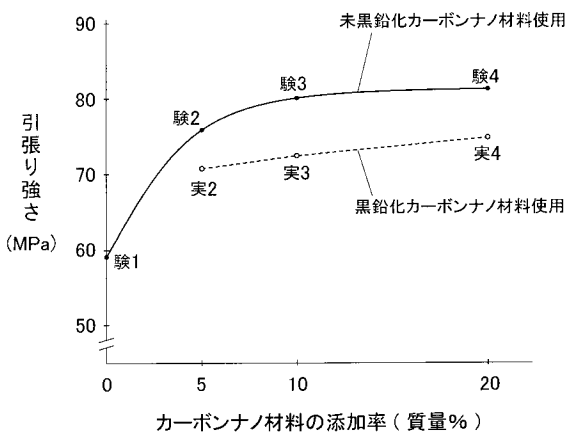
【 図 5 】



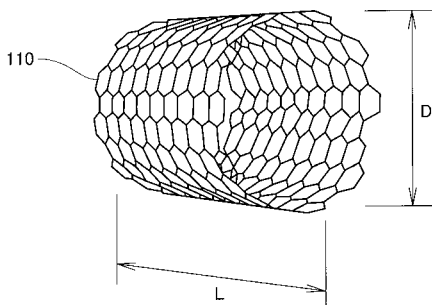
【 図 6 】



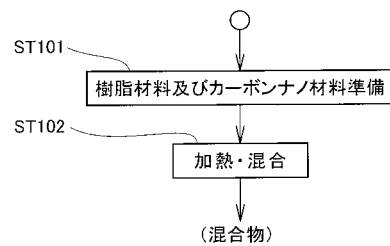
【 図 7 】



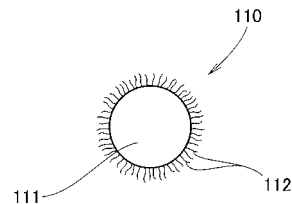
【 図 8 】



【 図 9 】



【 図 10 】



【手続補正書】

【提出日】平成20年3月5日(2008.3.5)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0054

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0054】

【表4】

実験番号	材料			処理	CNF PC+CNF	引張り強さ
	PC	THF	CNF			
実験1	70g			フロ-	0	59.2MPa
実験2	66.5g	500ml	3.5g	図2	5%	76.0MPa
実験3	63g	500ml	7g	図2	10%	80.0MPa
実験4	56g	500ml	14g	図2	20%	81.3MPa

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
B 2 9 K 25/00 (2006.01)	B 2 9 K 25:00	
B 2 9 K 33/04 (2006.01)	B 2 9 K 33:04	
B 2 9 K 69/00 (2006.01)	B 2 9 K 69:00	
B 2 9 K 105/12 (2006.01)	B 2 9 K 105:12	
B 2 9 K 507/04 (2006.01)	B 2 9 K 507:04	

Fターム(参考) 4F070 AA18 AA32 AA50 AC04 FA04 FA05 FB06 FC01 FC02
4F206 AA13 AA21 AA28 AB11 AB13 AB18 AB25 JA07 JE11 JE21
4G146 AA11 AB06 AC23B AD04 AD22 AD37 CB02 CB10 CB19 CB23
CB35
4J002 BC021 BG061 CG001 DA036