

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 732 107**

51 Int. Cl.:

C01B 32/182 (2007.01)

C01B 32/225 (2007.01)

C01B 32/19 (2007.01)

C01B 32/00 (2007.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **15.04.2016 PCT/JP2016/062117**

87 Fecha y número de publicación internacional: **17.11.2016 WO16181760**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **15.04.2016 E 16792485 (1)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **27.03.2019 EP 3138813**

54 Título: **Método para hacer un material carbonáceo lamelar**

30 Prioridad:

12.05.2015 JP 2015097625

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

20.11.2019

73 Titular/es:

**MICROWAVE CHEMICAL CO., LTD. (100.0%)
6-1, Hirabayashiminami 1-chome, Suminoe-ku
Osaka-shi, Osaka 559-0025, JP**

72 Inventor/es:

**KURIHARA, HIDESHI;
NAKASHIMA, MAYUKO;
MORIKAWA, SATOSHI y
TSUKAHARA, YASUNORI**

74 Agente/Representante:

ARIAS SANZ, Juan

ES 2 732 107 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín Europeo de Patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre Concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

Método para hacer un material carbonáceo lamelar

5 **Campo técnico**

La presente invención se refiere a un método para producir un material de carbono escamoso irradiando un material de carbono en solvente no iónico con microondas, y un material de carbono escamoso producido por el método de producción.

10

Antecedentes técnicos

Convencionalmente, como una técnica para producir grafeno formando un material de carbono tal como grafito en escamas, hay un método de pelado que usa una cinta adhesiva Scotch (documento no de patente 1). Además, existe el método de Hummer o un método de Hummer mejorado en el que el grafito se oxida en agua durante un largo periodo de tiempo y se reduce adicionalmente para realizar un pelado (documento no de patente 2). Sin embargo, estos métodos requieren un largo periodo de tiempo para la operación de pelado o reacción de pelado, y por tanto no son eficaces.

15

20

Si el grafito se extrae en solvente, se puede obtener grafito que tiene varios números de capas (documento no de patente 3). Sin embargo, la concentración de grafito en el solvente es tan baja como el 1% o menos, es decir, no se puede asegurar que este método lleve a cabo un pelado eficaz.

25

Además, se hay un método conocido para producir una lámina de grafeno que incluye: oxidar una estructura grafitica que tiene una estructura turboestática; irradiar el material resultante con microondas; y realizar sonicación para separar la lámina de grafeno (documento de patente 1). Este método no requiere el uso de un oxidante fuerte tal como ácido sulfúrico/permanganato de potasio, ácido carboxílico, o ácido fórmico, o un uso excesivo de solvente orgánico dañino para el medio ambiente para producir pelado adicional, pero hay un problema de que se tienen que preparar nanofibras de carbono de antemano.

30

35

Además, hay un método conocido para producir una película de grafeno, que incluye: ajustar la temperatura del sustrato a 500°C o menos y la presión a 50 Pa o menos; y depositar una película de carbono conductora transparente sobre la superficie del sustrato mediante un método de plasma de onda de superficie de microondas en una atmósfera formada añadiendo un inhibidor de oxidación para inhibir la oxidación de la superficie del sustrato como gas aditivo a gas que contiene carbono o gas mezcla compuesto de gas que contiene carbono y gas inerte (documento de patente 2). Este método hace posible formar una película de grafeno a una temperatura menor y en un tiempo más corto al resolver un problema que la formación de la película de grafeno usando CVD térmica convencional requiere procesamiento a una alta temperatura y en un tiempo largo, pero es aún necesario un reactor de CVD de plasma que requiere condiciones de alto vacío.

40

45

Como un método para producir una película de grafeno mediante la descomposición de plasma de una fuente de carbono, también hay un método conocido para producir una película de grafeno, que incluye: producir que un gas materia prima compuesto de un compuesto que al menos tiene carbono e hidrógeno fluya sobre un sustrato; y formar plasma de onda de superficie del gas materia prima por excitación de microondas en el sustrato, produciendo mediante ello una película de grafeno sobre el sustrato (documento de patente 3). Sin embargo, también en este método, es aún necesario un reactor de CVD de plasma que requiere condiciones de alto vacío.

50

Además, hay un método conocido para producir una película fina de grafeno, que incluye: aplicar una solución o una dispersión de un polímero conductor a la superficie de cualquier material metálico seleccionado de cobre, cobalto, níquel y rutenio para formar una película de recubrimiento; e irradiar el material resultante con microondas, formando mediante ello una película fina de grafeno en la superficie del material metálico (documento de patente 4). Sin embargo, en este método, es necesario equipo de recubrimiento que forma una película de recubrimiento al aplicar, a una hoja de cobre o similar, una composición líquida en la que se disuelve o dispersa un polímero conductor en solvente.

55

60

Además, hay un método conocido para producir una película de grafeno, que incluye: ajustar la temperatura del sustrato de 200°C a 700°C y la presión a 50 Pa o menos; y depositar una película de grafeno sobre la superficie del sustrato por un método de CVD de plasma de onda de superficie de microondas en una atmósfera de gas formada añadiendo gas helio (He) a gas que contiene nitrógeno o gas mezcla compuesto de gas que contiene carbono y un inhibidor de oxidación (documento de patente 5). Sin embargo, también en este método, es aún necesario un reactor de CVD de plasma que requiere condiciones de alto vacío.

65

Además, se conoce un óxido de grafito escamoso compuesto de una o múltiples capas de láminas de carbono peladas de grafito, mediante oxidación añadiendo ácido sulfúrico, nitrato de sodio, y permanganato de potasio a grafito, que es un cuerpo laminado de láminas de carbono compuestas de átomos de carbono organizados en una forma de una red hexagonal, en donde el grafito antes de la oxidación se irradia con microondas (documento de patente 6). Sin

embargo, en este método, son necesarios ácido sulfúrico, nitrato de sodio, y permanganato de potasio para la oxidación.

5 Además, hay un método conocido para producir grafito en escamas, que incluye: una etapa de sumergir un material de carbono que tiene una estructura en capas de grafeno en un líquido que contiene un material líquido que tiene una tensión de superficie de 50 mN/m o menos a 20°C; y una etapa de irradiar el material de carbono sumergido en el líquido con ondas electromagnéticas para calentar el material de carbono, gasificando mediante ello el líquido que está en contacto con el material de carbono para hacer el material de carbono escamoso, en donde, en la etapa de hacer el material de carbono escamoso, un compuesto reactivo se une químicamente al material de carbono (documento de patente 7). Sin embargo, en este método, la temperatura tiene que aumentar según el progreso de gasificación del líquido y, por tanto, no solo el material de carbono se hace escamoso, sino que también el material de carbono forma un agregado debido al calor.

15 El documento WO2014061598A1 describe un método sencillo para fabricar un derivado de grafito en escamas se proporciona. Un método para fabricar un derivado de grafito en escamas provisto de: una etapa para preparar una mezcla que contiene grafito en escamas y un compuesto reactivo para injertar al grafito en escamas por irradiación de un rayo de energía activa; y una etapa para injertar el compuesto reactivo al grafito en escamas por irradiación de un rayo de energía activa sobre la mezcla.

20 El documento JP2014189629A describe un método de modificación de material que permite la modificación de material mediante irradiación de un haz de electrones sin usar un dispositivo de irradiación de haz de electrones. Se proporciona un método de modificación de material mediante irradiación de un haz de electrones. En el método, la materia prima que comprende material de carbono de una estructura de grafeno se somete a irradiación de microondas o calor de inducción mientras que simultáneamente se somete a aplicación de voltaje, de modo que el haz de electrones se genera en la materia prima.

25 El documento CN103935997A describe el campo de producción de grafeno y en particular se refiere a un método para producir grafeno a partir de dodecilsulfonato de sodio. El método de preparación se caracteriza por comprender las siguientes etapas: (1) pesar, (2) mezclar, (3) agitar, (4) calentamiento por microondas, (5) enfriar, (6) filtrar y (7) secar, en donde grafito expandible, N-metilpirrolidona, dodecilsulfonato de sodio y etanol se toman como materias primas. El grafeno preparado por este método, por una parte, tiene mayor calidad, por otra parte, y también puede tener mayor rendimiento, contribuyendo mediante ello a llevar a cabo la producción a gran escala e industrial de grafeno, de modo que el método tiene un amplio prospecto de aplicación, alta practicabilidad y valor de aplicación y la ventaja del bajo precio de las materias primas y el proceso de preparación sencillo.

30 Izabela Janowska et. al., "Microwave synthesis of large few-layer graphene sheets in aqueous solution of ammonia", Nano Research, vol. 3, no. 2, 1 Febrero 2010 (01-02-2010), páginas 126-137, XP055187807, ISSN: 1998-0124, DOI: 10.1007/s12274-010-1017-1 describe láminas de grafeno de pocas capas (FLG) con tamaños que superan varios micrómetros que se han sintetizado por exfoliación de grafito expandido en solución acuosa de amoníaco con irradiación de microondas, con un rendimiento global que se acerca al 8% en peso. La microscopía electrónica de transmisión (en modos de campo brillante y campo oscuro) junto con los patrones de difracción de electrones y microscopía de fuerza atómica confirmaron que este material de grafeno consistía principalmente en grafeno monocapa, bicapa o de pocas capas (menos de diez capas). El alto grado de reducción de superficie se confirmó por espectroscopías de fotoelectrón de rayos X e infrarroja. Además, la alta estabilidad del FLG en el medio líquido facilita la deposición del material de grafeno sobre varios sustratos a través de técnicas de procesamiento en fase solución de bajo coste, lo que abre la vía a posteriores aplicaciones del material.

Lista de citas

50 Documentos de patente

Documento de patente 1: JP 2012-509248A (Tokuhyo)
 Documento de patente 2: JP 2012-162442A
 Documento de patente 3: JP 2013-159521A
 55 Documento de patente 4: JP 2013-87023A
 Documento de patente 5: JP 2013-249530A
 Documento de patente 6: JP 2013-212948A
 Documento de patente 7: Publicación internacional No. 2014/163127

60 Documentos no de patente

Documento no de patente 1: Nature Materials, (2007), 6(3), p. 183-191
 Documento no de patente 2: Nature, (2006), 442(7100), p. 282-286
 Documento no de patente 3: Nature Nanotechnology, (2009), 4(4), p. 217-224

65 Compendio de la invención

Problema técnico

5 Como se ha descrito anteriormente, hay una demanda para la producción eficaz de un material de carbono escamoso, sin producir reacción con ácido u oxidante fuerte durante un largo periodo de tiempo, y sin usar equipo de gran escala tal como equipo de alto vacío o aparatos de recubrimiento.

10 La presente invención se hizo en estas circunstancias, y es un objeto de la misma proporcionar, por ejemplo, un método para producir un material de carbono escamoso, con el que se puede pelar un material de carbono que tiene una estructura en capas de forma más fácil y eficaz que en los ejemplos convencionales.

Solución al problema

15 Los presentes inventores realizaron un estudio en profundidad para alcanzar el objeto anteriormente descrito, y encontraron que es posible producir un material de carbono escamoso, por irradiación de un material de carbono en solvente no iónico con microondas y calentar el material de carbono de tal manera que el solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono no se gasifique, y por tanto la presente invención se completó.

20 La presente invención se define en la reivindicación 1. Las reivindicaciones dependientes definen formas de realización ventajosas de la misma.

Efectos ventajosos de la invención

25 Con el material de carbono escamoso y el método para producir el mismo según la presente invención, un material de carbono escamoso se pela irradiando un material de carbono en un solvente no iónico con microondas, y por tanto es posible producir de forma eficaz un material de carbono escamoso sin usar equipo de gran escala tal como equipo de alto vacío o aparatos de recubrimiento y sin producir reacción con ácido u oxidante fuerte durante un largo periodo de tiempo. Puesto que el solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono no se hierve, se puede prevenir que el material de carbono escamoso pelado forme un agregado. Puesto que el pelado se realiza en solvente no iónico, incluso cuando el solvente entra en un hueco entre capas que no se han pelado, es posible eliminar fácilmente el solvente sin dejar impurezas, mediante posterior secado.

Breve descripción de las figuras

35 La figura 1 es una tabla que muestras los resultados de los ejemplos.

La figura 2 es una tabla que muestras los resultados de los ejemplos comparativos.

40 La figura 3 es un gráfico que muestra una relación entre el carbono escamoso y el punto de ebullición del solvente no iónico.

[7] El método para producir un material de carbono escamoso según [6], en donde, en la etapa de pelar un material de carbono escamoso, el material de carbono se calienta de tal manera que una temperatura del solvente no iónico en una posición de medida es al menos 5°C menor que el punto de ebullición del solvente no iónico.

45 [8] El método para producir un material de carbono escamoso según cualquiera de [1] a [7], en donde el solvente no iónico contiene solvente hidrocarburo cíclico o solvente derivado de hidrocarburo cíclico.

50 [9] Un material de carbono escamoso obtenido por el método para producir un material de carbono escamoso según cualquiera de [1] a [8].

Efectos ventajosos de la invención

55 Con el material de carbono escamoso y el método para producir el mismo según la presente invención, un material de carbono escamoso se pela irradiando un material de carbono en un solvente no iónico con microondas, y por tanto es posible producir de forma eficaz un material de carbono escamoso sin usar equipo de gran escala tal como equipo de alto vacío o aparatos de recubrimiento y sin producir reacción con ácido u oxidante fuerte durante un largo periodo de tiempo. Puesto que el solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono no se hierve, se puede prevenir que el material de carbono escamoso pelado forme un agregado. Puesto que el pelado se realiza en solvente no iónico, incluso cuando el solvente entra en un hueco entre capas que no se han pelado, es posible eliminar fácilmente el solvente sin dejar impurezas, mediante posterior secado.

Breve descripción de las figuras

65 La figura 1 es una tabla que muestras los resultados de los ejemplos.

La figura 2 es una tabla que muestras los resultados de los ejemplos comparativos.

La figura 3 es un gráfico que muestra una relación entre el espesor del material de carbono escamoso y la temperatura en los ejemplos 2 y 5 a 10 u los ejemplos comparativos 6 a 8.

5

Descripción de una forma de realización

De aquí en adelante, se describirá un método para producir un material de carbono escamoso, el método incluye: una etapa de sumergir un material de carbono que tiene una estructura en capas en un solvente no iónico; y una etapa de irradiar el material de carbono en el solvente no iónico con microondas, calentando mediante ello el material de carbono de tal manera que el solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono no se gasifica, aumentando el espacio entre capas del material de carbono, y pelando un material de carbono escamoso.

10

Es suficiente que el material de carbono que tiene una estructura en capas sea un material sólido cuyo elemento constituyente incluya sustancialmente carbono, que tenga al menos parcialmente una estructura en capas. La estructura en capas es una estructura en capas de grafeno. Es decir, es suficiente que el material de carbono que tiene una estructura en capas sea un material que al menos parcialmente tiene una estructura en capas de grafeno. No hay limitación particular sobre el material de carbono que tiene una estructura en capas, y los ejemplos del mismo incluyen grafito, grafeno multicapa, negro de carbono, fibra de carbono, y similares. Nótese que incluso un material de carbono amorfo tal como el negro de carbono o fibra de carbono parcialmente contiene una estructura de grafeno, y por tanto se puede pelar grafeno de los mismos. Si el material de carbono es negro de carbono o fibra de carbono, un mayor grado de grafitización es más preferible. Es preferible usar grafito como el material de carbono. El grafito puede ser grafito natural, o puede ser grafito artificial. El grafito también puede ser grafito expandido obtenido al extender la distancia entre capas.

15

20

25

El solvente no iónico es un solvente que no es iónico. El solvente no iónico se puede considerar que es un solvente que no tiene un grupo funcional que es probable que se ionice. El solvente no iónico se puede considerar que es un solvente covalente. El solvente no iónico puede ser un solvente que tiene una afinidad por el material de carbono, o puede ser un solvente cuya afinidad por el mismo es mala. El solvente no iónico puede ser un solvente orgánico no iónico, o puede ser un solvente inorgánico no iónico. Por ejemplo, el solvente orgánico no iónico puede ser solvente de compuesto cíclico, puede contener solvente de compuesto cíclico, o puede ser otro solvente. Por ejemplo, el solvente de compuesto cíclico puede ser solvente de hidrocarburo cíclico tal como hidrocarburo aromático o hidrocarburo alicíclico, puede ser solvente de derivado de hidrocarburo cíclico tal como derivados de hidrocarburo aromático o derivados de hidrocarburo alicíclico, puede ser solvente de compuesto heterocíclico, o puede ser otro solvente. No hay limitación particular sobre el hidrocarburo aromático, y los ejemplos del mismo incluyen benceno, tolueno, xileno y etilbenceno. Por ejemplo, el hidrocarburo alicíclico puede ser o no cicloalcano. No hay limitación particular sobre el cicloalcano, y los ejemplos del mismo incluyen ciclohexano. No hay limitación particular sobre el solvente de derivado de hidrocarburo cíclico, y los ejemplos del mismo incluyen 1,2-diclorobenceno y bencilamina. No hay limitación particular sobre el solvente de compuesto heterocíclico, y los ejemplos del mismo incluyen N-metilpirrolidona y tetrahidrofurano. No hay limitación particular sobre el solvente orgánico no iónico diferente de un solvente de compuesto cíclico, y los ejemplos del mismo incluyen alcohol tal como metanol, etanol, propanol y butanol, glicol tal como etilenglicol, propilenglicol, y butilenglicol, acetona, dimetilformamida, N,N-dimetilacetamida, dimetilsulfóxido, diclorometano, 1,2-dicloroetano, y hexametilfosforamida. No hay limitación particular sobre el solvente inorgánico no iónico, y los ejemplos del mismo incluyen agua. El solvente no iónico es preferiblemente ciclohexano, tolueno, xileno, etilbenceno, agua, etilenglicol, N-metilpirrolidona, hexametilfosforamida, o bencilamina, y más preferiblemente tolueno, xileno, etilbenceno, N-metilpirrolidona o bencilamina. La razón para esto es que, puesto que cada capa de la estructura de grafeno contenida en el material de carbono está constituida por células hexagonales estrechamente organizadas, el solvente orgánico que tiene una estructura cíclica tal como solvente de compuesto cíclico parece que es más posible que entre en los huecos entre las capas. El solvente no iónico se puede usar solo o como una mezcla de múltiples tipos. No hay limitación sobre la cantidad de solvente no iónico, pero es preferiblemente una cantidad que permita que el material de carbono que se va a irradiar con microondas esté sumergido por completo en el solvente no iónico. Sin embargo, una mayor cantidad de solvente no iónico disminuye la eficacia de calentamiento, y por tanto es preferible que la cantidad de solvente no iónico no sea más de la necesaria.

35

40

45

50

Después de que el material de carbono se sumerja en el solvente no iónico, se pueden mezclar entre sí. Como el método para mezclar el material de carbono y el solvente, se pueden usar métodos conocidos. Es suficiente que el mezclado se realice de modo que aparentemente se produzca un estado uniforme, y no hay limitación sobre el método de mezclado. Es decir, se pueden mezclar entre sí usando un mezclador, se pueden mezclar al ser agitados juntos con un medio tal como bolas de vidrio, se pueden mezclar al dejar que pasen a través de un espacio estrecho a alta velocidad, o se pueden dispersar usando ondas ultrasónicas. El mezclador puede ser, por ejemplo, un mezclador que tiene palas de agitación.

60

No hay limitación particular sobre la frecuencia de microondas para irradiación sobre el material de carbono, y ejemplos de la misma incluyen 2,45 GHz, 5,8 GHz, 24 GHz, 915 MHz y otras frecuencias en el intervalo de 300 MHz a 300 GHz. Es decir, las microondas pueden ser ondas electromagnéticas que tienen una longitud de onda de 1 mm a 1 m. No hay limitación particular sobre la potencia (intensidad) de las microondas. Es preferible seleccionar una potencia

65

óptima según la escala de un sistema que realiza la irradiación de microondas, específicamente según la cantidad de material de carbono que se va a irradiar con microondas y el tamaño del reactor.

5 La irradiación de microondas se puede realizar de forma continua, o se puede realizar de forma intermitente de modo que irradiación y parada se repiten. Cuando el material de carbono se irradia con microondas, la temperatura del material de carbono y el solvente no iónico aumenta. La intensidad de la irradiación de microondas se puede ajustar de modo que la temperatura se mantenga constante, la temperatura se puede dejar fluctuar mientras se mantiene la intensidad de la irradiación de microondas constante, o la intensidad de la irradiación de microondas se puede cambiar con frecuencia. Es deseable seleccionar un método de irradiación que proporcione un gran efecto de pelado. Nótese que, en cualquier caso, el material de carbono se tiene que calentar en el intervalo donde el solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono no se gasifica. La irradiación de microondas se puede realizar en un modo único o un multimodo. Puesto que el material de carbono que se va a irradiar con las microondas está sumergido en el solvente no iónico, la gasificación del solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono parece significar hervir el solvente no iónico. Según esto, es preferible que la irradiación de microondas se realice de tal manera que la temperatura del solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono no alcance el punto de ebullición.

20 Cuando el material de carbono en el solvente no iónico se irradia con microondas, la temperatura del solvente no iónico aumenta. La temperatura se puede medir, por ejemplo, usando un termómetro conocido, tal como termómetro de tipo termopar, un termómetro de tipo fibra infrarroja, o un termómetro de mercurio u otro líquido orgánico en vidrio. Si la temperatura del solvente medida usando tal termómetro es igual a o mayor que el punto de ebullición del solvente, el solvente se gasifica activamente, el material de carbono pelado por irradiación de microondas forma un agregado, y el efecto de pelado disminuye. Parece que, en el caso donde el material de carbono se calienta por microondas y el solvente entre las capas del mismo se gasifica, típicamente, la gasificación no se produce de forma uniforme, sino que el grado de gasificación se diferencia de punto a punto. Como resultado de esta diferencia, el espacio entre capas aumenta en una parte de las capas, mientras que el espacio entre capas no aumenta en otra parte, de modo que el pelado se produce solo en una parte, y el tamaño del material de carbono escamoso pelado se puede volver más pequeño. Según esto, es preferible que el material de carbono se caliente de tal manera que la temperatura del solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono sea menor que el punto de ebullición. Nótese que la temperatura se mide preferiblemente cerca del material de carbono, pero, en sentido estricto, es difícil medir la temperatura del solvente que está en contacto con el material de carbono. Mientras tanto, cuando el solvente se gasifica, se generan burbujas en el solvente que está en contacto con el material de carbono. Según esto, es posible determinar si el solvente que está en contacto con el material de carbono se gasifica o no, comprobando visualmente si están presentes o no burbujas del solvente, es decir, burbujas generadas por gasificación en la superficie del material de carbono. Es difícil determinar si se han generado burbujas o no, debido a la influencia de la agitación por un agitador provisto en el reactor, el agitador preferiblemente se para temporalmente durante la comprobación. La influencia sobre el pelado causada al parar el agitador parece ser pequeña. Se asume que la temperatura medida cuando se determina así que la gasificación del solvente que está en contacto con el material de carbono ha empezado es el "punto de ebullición del solvente - α " ($^{\circ}\text{C}$). En este caso, es deseable que la irradiación de microondas se realice de tal manera que la temperatura medida usando el termómetro sea menor que el "punto de ebullición del solvente - α " ($^{\circ}\text{C}$), donde α es un número real de 0 o más. Aunque dependiendo del tipo de solvente, α parece ser menor de 5°C . Por tanto, por ejemplo, en la etapa de pelar un material de carbono escamoso, el material de carbono se puede calentar de tal manera que la temperatura del solvente no iónico medida en la posición de medida (por ejemplo, la posición del termómetro) sea al menos 5°C menor que el punto de ebullición del solvente no iónico. Si la diferencia entre la temperatura medida y la temperatura del solvente que está en contacto con el material de carbono escamoso es mayor, por ejemplo, el material de carbono se puede calentar de tal manera que la temperatura medida del solvente no iónico sea al menos 10°C menor que el punto de ebullición del solvente no iónico. Nótese que, si la diferencia entre la temperatura del solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono y la temperatura del solvente no iónico medida en la posición de medida se ha eliminado por agitación o similar, es decir, si α es sustancialmente 0, es posible calentar el material de carbono de tal manera que la temperatura del solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono sea menor que el punto de ebullición, irradiando el material de carbono con microondas de tal manera que la temperatura del solvente no iónico medida en la posición de medida sea menor que el punto de ebullición. Si se suprime la gasificación del solvente de esta manera, se puede disminuir la posibilidad de que el material de carbono escamoso forme un agregado según la gasificación del solvente, de modo que el efecto de pelado se puede aumentar.

60 Nótese que una mayor temperatura del solvente hace más fácil facilitar el pelado que resiste las fuerzas de van der Waals entre capas del material de carbono y, por tanto, para facilitar el pelado, es deseable realizar calentamiento de modo que el solvente no iónico tenga una mayor temperatura en el intervalo donde el solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono no se gasifica. Según esto, desde este punto de vista, la temperatura del solvente preferiblemente es mayor que la temperatura ambiente, más preferiblemente 50°C o más, e incluso más preferiblemente 100°C o más. Mientras tanto, respecto a la reacción de Diels-Alder (descrita posteriormente), sobre la temperatura de equilibrio, una mayor temperatura es más probable que permita que la reacción inversa progrese y, por tanto, para facilitar la reacción de Diels-Alder, es preferible que la temperatura del solvente no supere la temperatura de equilibrio. Nótese que la temperatura de equilibrio se refiere a una temperatura a la que la reacción

directa procede a la misma velocidad que la reacción inversa. Si el compuesto que se describirá después es anhídrido maleico, la temperatura de equilibrio es de 120 a 130°C.

5 Además, la etapa de pelar un material de carbono escamoso se realiza típicamente a presión normal, pero, si es necesario, se puede realizar a presión aumentada o a presión reducida. En vista de la manipulación, la presión normal es deseable. Si la presión no es la presión normal, el punto de ebullición del solvente es el punto de ebullición a esa presión.

10 Cuando el material de carbono en el solvente no iónico se irradia con microondas, el material de carbono se calienta, como resultado de lo cual el solvente no iónico que ha entrado en los huecos entre las capas del material de carbono, se calienta. Debido a un movimiento térmico del solvente calentado, el espacio entre las capas aumenta, las fuerzas de van der Waals entre las capas se reducen y, por tanto, el material de carbono escamoso se pela del material de carbono. En ese momento, si el solvente entre las capas se gasifica, no solo el material de carbono se hace escamoso, sino que también el material de carbono en escamas forma un agregado debido al calor. Parece que, si el solvente entre las capas se gasifica, no hay solvente en fase líquida entre las capas y, por tanto, la temperatura del material de carbono puede aumentar rápidamente debido a la irradiación de microondas, y el material de carbono forma un agregado según el aumento en la temperatura. Según esto, es importante calentar el material de carbono en el solvente no iónico de tal manera que el solvente no iónico no se gasifique.

20 El material de carbono escamoso puede ser grafeno, o puede ser capas múltiples de grafeno. El número de capas de grafeno puede ser una, o puede ser múltiple. Por ejemplo, el número de capas del material de carbono escamoso es preferiblemente 1000 o menos, más preferiblemente 500 o menos, e incluso más preferiblemente 100 o menos. El material de carbono escamoso se puede considerar que es grafito en escamas. Por ejemplo, el material de carbono escamoso puede ser una lámina de grafeno, o puede ser un copo de grafeno. Puesto que el material de carbono escamoso se obtiene al pelar el material de carbono que es la materia prima, el espesor del material de carbono escamoso es menor que el de el material de carbono que es la materia prima.

30 En la etapa de pelar un material de carbono escamoso, un compuesto se puede unir a un extremo de la estructura en capas del material de carbono. Si el compuesto se une a un extremo de la estructura en capas, es decir, un extremo del grafeno contenido en el material de carbono, la distancia entre capas de grafeno en ese extremo del grafeno se puede aumentar. Como resultado, es más probable que el solvente no iónico entre en un hueco entre las capas, y el pelado del material de carbono se facilita. Como el compuesto que reacciona con el material de carbono, un compuesto que reacciona con un doble enlace en el material de carbono es preferible. Además, para formar un enlace covalente, es preferible que el compuesto tampoco sea iónico. El compuesto y el extremo de la estructura en capas del material de carbono se pueden unir entre sí mediante la reacción de Diels-Alder. Es decir, el compuesto puede ser un compuesto que tiene reactividad de Diels-Alder. No hay limitación particular sobre el compuesto que tiene una reactividad de Diels-Alder, y los ejemplos del mismo pueden incluir al menos uno seleccionado del grupo que consiste en anhídrido maleico, tetracianoetileno, 2,3-dimetoxi-1,3-butadieno, 9-metilantraceno, quinodimetano, 5,6-bismetileno-1,3-ciclohexadieno, y 3,6-bismetileno-1,4-ciclohexadieno. Se asume que, si tal compuesto que tiene una reactividad de Diels-Alder se une a un extremo del grafeno contenido en el material de carbono, la distancia (aproximadamente 0,3 nm) entre capas de grafeno contenido en el grafito se aumenta ligeramente en ese extremo, y por tanto se facilita el pelado. Se sabe que, por ejemplo, es probable que el anhídrido maleico, tetracianoetileno, 2,3-dimetoxi-1,3-butadieno, 9-metilantraceno y similares se unan a un extremo del grafeno contenido en la estructura en capas del material de carbono.

45 La cantidad de compuesto que se mezcla con el solvente no iónico es preferiblemente 100 partes en peso o menos, y más preferiblemente 60 partes en peso o menos, con respecto a 100 partes en peso de material de carbono. La razón para esto es que, si la cantidad de compuesto es grande, el material de carbono escamoso pelado puede formar un agregado debido a ese compuesto. Si la cantidad de compuesto que se mezcla con el solvente no iónico es más de 100 partes en peso con respecto a 100 partes en peso de material de carbono, el pelado puede progresar parcialmente, pero una cantidad excesiva de compuesto hace que el material de carbono escamoso después del pelado forme un gran agregado, que no es preferible. Si la cantidad de compuesto que se mezcla con el solvente no iónico es 0,01 partes en peso o más con respecto a 100 partes en peso de material de carbono, el pelado del material de carbono cuando se irradia con microondas se facilita. Si la cantidad de compuesto es 10 partes en peso o más con respecto a 100 partes en peso de material de carbono, el efecto de facilitar el pelado del material de carbono cuando se irradia con microondas es grande, lo que es preferible. El compuesto se puede mezclar con el solvente no iónico antes de que el material de carbono se sumerja en el solvente no iónico, o se puede mezclar con el solvente no iónico después de que el material de carbono se sumerja en el solvente no iónico, por ejemplo. La mezcla del solvente no iónico y el compuesto se puede realizar añadiendo el compuesto al solvente no iónico. La mezcla del compuesto y el solvente no iónico se puede realizar antes de que se inicie el calentamiento con microondas, o se puede realizar después de que se inicie el calentamiento. La mezcla se puede realizar, por ejemplo, por mezclado con agitación o mezclado por cizalla.

65 Puesto que la irradiación con microondas se realiza de modo que el solvente no iónico no hierva, el material de carbono escamoso después del pelado se obtiene en un estado de estar disperso en el solvente no iónico. El material de carbono escamoso dispersado en el solvente no iónico se puede manipular normalmente. El material de carbono

escamoso se puede separar del solvente no iónico, por ejemplo, usando técnicas conocidas tal como filtración, separación centrífuga, o secado.

5 Como se ha descrito anteriormente, con el método para producir un material de carbono escamoso, y el material de carbono escamoso producido por el método de producción según la presente invención, puesto que el material de carbono escamoso se pela en el solvente no iónico, incluso cuando el solvente no iónico entra en un hueco entre capas que no se han pelado, es posible eliminar fácilmente el solvente, mediante posterior calentamiento o similar. Por ejemplo, si se realiza el pelado usando solvente iónico que contiene iones litio o similares, los iones litio o similares permanecen entre las capas que no se han pelado, y por tanto las características del material de carbono escamoso pelado cambian, mientras que, en el caso de usar solvente no iónico, se puede evitar tal problema, de modo que se puede obtener un material de carbono escamoso que tiene una alta calidad. Si se usa un compuesto que se va a unir a un extremo de la estructura en capas del material de carbono, el espacio entre las capas se puede aumentar en ese extremo, y por tanto es probable que el solvente no iónico entre en un hueco entre las capas de la estructura de grafeno. Como resultado, el pelado del material de carbono escamoso se facilita. Si la cantidad de compuesto que se mezcla con el solvente no iónico no se hace grande, se puede prevenir que el material de carbono escamoso pelado forme un agregado debido al compuesto.

En la descripción anterior, se describió el caso en que el método para producir un material de carbono escamoso incluye una etapa de sumergir el material de carbono en el solvente no iónico, pero no hay limitación respecto a esto. Si un material de carbono que se sumerge en el solvente no iónico se prepara por adelantado, el material de carbono escamoso se puede pelar irradiando ese material de carbono con microondas. De esta manera, el método para producir un material de carbono escamoso puede no incluir una etapa de sumergir el material de carbono en el solvente no iónico.

25 Ejemplos y ejemplos comparativos

De aquí en adelante, la presente invención se describirá en detalle mediante ejemplos, pero estos ejemplos son solamente ejemplos y la presente invención no se limita a estos ejemplos. Nótese que los valores en los ejemplos y los ejemplos comparativos se obtuvieron mediante los siguientes métodos. Se asume que, en los ejemplos y los ejemplos comparativos, "partes" se refiere a una proporción expresada en peso (partes en peso).

(1) Evaluación del pelado del material de carbono

Se evaluaron un material de carbono antes de pelar y el material de carbono después del pelado (material de carbono escamoso) mediante observación usando un microscopio electrónico de barrido (aparato: fabricado por JEOL Ltd., JSM-IT300). El material de carbono antes de pelar tenía una forma de tipo placa, y se compararon un espesor medio del material de carbono antes de pelar y un espesor medio del material de carbono escamoso después del pelado. Nótese que el espesor medio es una media obtenida midiendo el espesor de diez trozos de material de carbono cada uno antes y después de pelar.

(2) Evaluación de la reacción con material de carbono

Se evaluó una reacción obtenida añadiendo un compuesto que reacciona con el material de carbono y llevando a cabo irradiación con microondas usando espectroscopia infrarroja (aparato: fabricado por Shimadzu Corporation, IRAffinity-1). La muestra se lavó con acetona reactivo garantizado y se endureció por secado, y se sometió a medida.

Ejemplo 1

En este ejemplo, 10 partes de grafito expandido y 100 partes de tolueno se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 2 W durante 10 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente a 100°C. Después de que la temperatura alcanzara 100°C, la irradiación de microondas se realizó durante otra hora para mantener la temperatura interna a 100°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El tolueno tiene un punto de ebullición de 111°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado entre las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la irradiación de microondas se paró, y la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, después de lo cual un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 2

En este ejemplo, 10 partes de grafito expandido y 100 partes de o-xileno se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 1,5 W durante 15 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente a 110°C. Después de que la temperatura alcanzara 110°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 110°C. A continuación, se añadieron 5 partes de anhídrido maleico, y la mezcla se agitó bien, después de lo cual se realizó irradiación de microondas durante otra hora a una temperatura interna de 110°C. Durante este tratamiento, no se vio

la generación de burbujas. El o-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 144°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 3

En este ejemplo, 10 partes de grafito natural y 10 partes de etilbenceno se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 915 MHz a 5 W durante 30 segundos. Después de un minuto, la irradiación de microondas se realizó de nuevo a 5 W durante 30 segundos. Tomando el tratamiento "realizar irradiación de microondas a 5 W durante 30 segundos y parar durante un minuto" como un ciclo, se realizaron 20 ciclos en total. Durante este tratamiento, temperatura interna aumentó desde temperatura ambiente a 120°C. No se vio la generación de burbujas. El etilbenceno tiene un punto de ebullición de 136°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. Después de que se terminaran los 20 ciclos, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 4

En este ejemplo, 10 partes de grafito sintético y 50 partes de p-xileno se mezclaron bien, y se añadieron además a los mismos 5 partes de 2,3-dimetoxi-1,3-butadieno, después de lo cual la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Tomando el tratamiento "realizar irradiación de microondas a 915 MHz a 2 W durante 20 segundos y parar durante dos minutos" como un ciclo, se realizaron 50 ciclos en total. Durante este tratamiento, temperatura interna aumentó a 100°C. Además, se realizó irradiación de microondas de forma continua durante una hora para mantener la temperatura interna a 100°C. No se vio la generación de burbujas. El p-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 138°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 5

En este ejemplo, 10 partes de grafito expandido, 20 partes de o-xileno y 1 parte de anhídrido maleico se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor revestido con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 2 W durante 10 minutos, de modo que la temperatura aumentó hasta 120°C. Después de que la temperatura interna alcanzara 120°C, se añadieron 2 partes de anhídrido maleico y se mezcló bien. Tomando el tratamiento "realizar irradiación de microondas a 1 W durante 30 segundos y parar durante dos minutos" como un ciclo, se repitieron 30 ciclos en total. Durante este tratamiento, cuando la temperatura interna superó 130°C, el revestimiento se enfrió, de modo que la temperatura interna disminuyera a 120°C. Durante los 30 ciclos, no se vio la generación de burbujas. El o-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 144°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. Después de que se terminaran los 30 ciclos, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 6

En este ejemplo, 10 partes de grafito expandido, 20 partes de p-xileno y 1 parte de anhídrido maleico se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. La presión dentro del reactor se aumentó a 0,3 MPa, usando gas N₂. A continuación, se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz, de modo que la temperatura interna del reactor se mantuvo a 150°C. Se provocó que se produjera la reacción durante una hora mientras se mantenía la temperatura a 150°C. Durante este tratamiento, el agitador se paró durante cinco minutos y se observó el estado de burbujeo, pero no se vio la generación de burbujas. El p-xileno a una presión dentro del reactor de 0,3 MPa tiene un punto de ebullición de cerca de 185°C, y, además, no se vio la generación de burbujas, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 7

En este ejemplo, 10 partes de grafito expandido y 100 partes de xileno mezcla se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 1,5 W durante 10 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 80°C. Después de que la temperatura

alcanzara 80°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 80°C. A continuación, se añadieron 5 partes de anhídrido maleico, y la mezcla se agitó bien, después de lo cual se realizó irradiación de microondas durante otra hora a una temperatura interna de 80°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El xileno mezcla tiene un punto de ebullición de aproximadamente 136°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado. Nótese que 100 partes de xileno mezcla usado en este ejemplo comprendían 12 partes de o-xileno, 30 partes de m-xileno, 15 partes de p-xileno y 43 partes de etilbenceno.

Ejemplo 8

En este ejemplo, 10 partes de grafito expandido y 100 partes de xileno mezcla se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 2 W durante 10 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 100°C. Después de que la temperatura alcanzara 100°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 20 minutos para mantener la temperatura interna a 100°C. A continuación, se añadieron 3 partes de anhídrido maleico, y la mezcla se agitó bien, después de lo cual se realizó irradiación de microondas durante otras 1,5 horas a una temperatura interna de 100°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El xileno mezcla tiene un punto de ebullición de aproximadamente 136°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado. Nótese que el xileno mezcla usado en este ejemplo era el mismo que ese en el ejemplo 7.

Ejemplo 9

En este ejemplo, 25 partes de grafito expandido y 100 partes de xileno mezcla se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 2,5 W durante 20 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 120°C. Después de que la temperatura alcanzara 120°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 120°C. A continuación, se añadieron 6 partes de anhídrido maleico, y la mezcla se agitó bien, después de lo cual se realizó irradiación de microondas durante otra hora a una temperatura interna de 120°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El xileno mezcla tiene un punto de ebullición de aproximadamente 136°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado. Nótese que el xileno mezcla usado en este ejemplo era el mismo que ese en el ejemplo 7.

Ejemplo 10

En este ejemplo, 20 partes de grafito expandido y 100 partes de xileno mezcla se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 3,5 W durante 10 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 130°C. Después de que la temperatura alcanzara 130°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 20 minutos para mantener la temperatura interna a 130°C. A continuación, se añadieron 3 partes de anhídrido maleico, y la mezcla se agitó bien, después de lo cual se realizó irradiación de microondas durante otras 1,5 horas a una temperatura interna de 130°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El xileno mezcla tiene un punto de ebullición de aproximadamente 136°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado. Nótese que el xileno mezcla usado en este ejemplo era el mismo que ese en el ejemplo 7.

Ejemplo 11

En este ejemplo, 20 partes de grafito expandido y 200 partes de p-xileno se mezclaron bien, y además 0,6 partes de anhídrido maleico se añadieron y mezclaron con los mismos, después de lo cual se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 3 W durante 30 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 115°C. Después de que la temperatura alcanzara 115°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 115°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El p-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 138°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un

material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 12

5 En este ejemplo, 20 partes de grafito expandido y 200 partes de p-xileno se mezclaron bien, y además 2 partes de anhídrido maleico se añadieron y mezclaron con los mismos, después de lo cual se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 3 W durante 30 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 115°C. Después de que la temperatura alcanzara 115°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 115°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El p-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 138°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 13

20 En este ejemplo, 20 partes de grafito expandido y 200 partes de p-xileno se mezclaron bien, y además 4 partes de anhídrido maleico se añadieron y mezclaron con los mismos, después de lo cual se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 3 W durante 30 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 115°C. Después de que la temperatura alcanzara 115°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 115°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El p-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 138°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 14

35 En este ejemplo, 20 partes de grafito expandido y 200 partes de p-xileno se mezclaron bien, y además 12 partes de anhídrido maleico se añadieron y mezclaron con los mismos, después de lo cual se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 3 W durante 30 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 115°C. Después de que la temperatura alcanzara 115°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 115°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El p-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 138°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 15

45 En este ejemplo, 20 partes de grafito expandido y 200 partes de p-xileno se mezclaron bien, y además 20 partes de anhídrido maleico se añadieron y mezclaron con los mismos, después de lo cual se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 3 W durante 30 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 115°C. Después de que la temperatura alcanzara 115°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 115°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El p-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 138°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo 16

60 En este ejemplo, 20 partes de grafito expandido y 200 partes de p-xileno se mezclaron bien, y se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 3 W durante 30 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 115°C. Después de que la temperatura alcanzara 115°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 30 minutos para mantener la temperatura interna a 115°C. Durante este tratamiento, no se vio la generación de burbujas. El p-xileno tiene un punto de ebullición de aproximadamente 138°C, lo que significa que el solvente se calentó en el intervalo de una temperatura menor que el punto de ebullición. Según esto, parece que el solvente localizado ente las capas del material de carbono no se gasificó. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 1 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado.

Ejemplo comparativo 1

5 En este ejemplo comparativo, se colocó grafito expandido en un reactor con agitador unido, y se realizó calentamiento infrarrojo durante dos horas usando una lámpara halógena instalada dentro del reactor al tiempo que se agitaba el contenido bien. Después de que se acabara el calentamiento, un material sólido se sacó y se sometió a evaluación. La figura 2 muestra los resultados donde se ve que el pelado no había progresado.

Ejemplo comparativo 2

10 En este ejemplo comparativo, 100 partes de agua se añadieron a 10 partes de grafito natural, y la mezcla se colocó en un reactor revestido con calor. Mientras se agitaba el contenido bien, aceite de transferencia de calor calentado a una temperatura de 120°C se circuló en el revestimiento, de modo que la temperatura aumentó a 100°C. En un estado donde el gas evaporado se enfrió y licuó mediante un enfriador unido a la parte superior del reactor y se sometió a reflujo en el reactor, se provocó que se produjera la reacción durante una hora. Después de la reacción terminara, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido se sacó y se sometió a evaluación. La figura 2 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado solo ligeramente.

Ejemplo comparativo 3

20 En este ejemplo comparativo, 5 partes de anhídrido maleico se añadieron a 10 partes de grafito expandido, y la mezcla se mezcló bien, después de lo cual la mezcla se colocó en un reactor revestido con calor con agitador unido. Mientras se agitaba el contenido bien, aceite de transferencia de calor calentado a una temperatura de 120°C se circuló en el revestimiento, de modo que la temperatura interna se mantuviera a 80°C y, en este estado, se provocó que la reacción se produjera durante una hora. Después de la reacción terminara, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido se sacó y se sometió a evaluación. La figura 2 muestra los resultados donde se ve que el pelado no había progresado, y el material entero formó un gran agregado.

Ejemplo comparativo 4

30 En este ejemplo comparativo, 100 partes de tolueno se añadieron a 10 partes de grafito expandido, y la mezcla se mezcló bien, después de lo cual la mezcla se colocó en un reactor revestido con calor con agitador unido. Mientras se agitaba el contenido bien, aceite de transferencia de calor calentado a una temperatura de 130°C se circuló en el revestimiento, de modo que la temperatura interna se mantuviera a 110°C y, en este estado, se provocó que la reacción se produjera durante 30 minutos. Después de la reacción terminara, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido se sacó y se sometió a evaluación. La figura 2 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado solo ligeramente.

Ejemplo comparativo 5

40 En este ejemplo comparativo, en un estado donde grafito expandido se dejó reposar, se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz desde arriba a 500 W durante 20 minutos. Un termómetro insertado entre las capas de grafito indicó que la temperatura entre las capas era 220°C. Después de 20 minutos, se vio que un material sacado del reactor formaba un gran agregado.

Ejemplo comparativo 6

50 En este ejemplo comparativo, 10 partes de grafito expandido, 20 partes de p-xileno y 1 parte de anhídrido maleico se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. La presión dentro del reactor se aumentó a 0,3 MPa, usando gas N₂. A continuación, se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz, de modo que la temperatura interna del reactor se aumentó a 190°C. Se provocó que se produjera la reacción durante 30 minutos mientras se mantenía la temperatura a 190°C. La temperatura se aumentó adicionalmente a 195°C, y se provocó que la reacción se produjera durante cinco minutos. Dentro del reactor, se generaron burbujas activamente. El p-xileno a 0,3 MPa tiene un punto de ebullición de cerca de 185°C, y, además, se generaron burbujas activamente, lo que significa que el solvente localizado entre las capas del material de carbono se gasificó. En ese momento, parte del p-xileno se gasificó y, por tanto, se sacó del reactor a través de un tubo de enfriamiento unido a la parte superior del reactor. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 2 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado solo ligeramente.

Ejemplo comparativo 7

60 En este ejemplo comparativo, 10 partes de grafito expandido y 100 partes de xileno mezcla se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 4,5 W durante 10 minutos, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 140°C. Después de que la temperatura alcanzara 140°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros 10 minutos para mantener la

temperatura interna a 140°C. A continuación, se añadieron 10 partes de anhídrido maleico, y la mezcla se agitó bien, después de lo cual se realizó irradiación de microondas durante otras 0,5 horas a una temperatura interna de 140°C. Durante este tratamiento, se generaron una gran cantidad de burbujas. El xileno mezcla tiene un punto de ebullición de aproximadamente 136°C, y, además, se generaron una gran cantidad de burbujas, lo que significa que el solvente localizado entre capas del material de carbono se gasificó. Aunque se realizó enfriamiento mediante un tubo de enfriamiento unido a la parte superior del reactor, 50 partes de xileno mezcla se evaporaron del reactor. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 2 muestra los resultados donde se ve que el pelado había progresado solo ligeramente. Nótese que el xileno mezcla usado en este ejemplo era el mismo que ese en el ejemplo 7.

Ejemplo comparativo 8

En este ejemplo comparativo, 40 partes de grafito expandido y 100 partes de xileno mezcla se mezclaron bien, y la mezcla se colocó en un reactor con agitador unido. Se realizó irradiación de microondas a 2450 MHz a 1,5 W durante un minuto, de modo que la temperatura aumentó desde temperatura ambiente hasta 30°C. Después de que la temperatura alcanzara 30°C, la irradiación de microondas se realizó durante otros cinco minutos para mantener la temperatura interna a 30°C. A continuación, se añadieron 10 partes de anhídrido maleico, y la mezcla se agitó bien, después de lo cual se realizó irradiación de microondas durante otros 10 minutos a una temperatura interna de 30°C. Durante este tratamiento, no se vio generación de burbujas. A continuación, la temperatura se enfrió a temperatura ambiente, y un material sólido en el reactor se sacó y se sometió a evaluación. La figura 2 muestra los resultados donde se ve que el pelado no había progresado. Nótese que el xileno mezcla usado en este ejemplo era el mismo que ese en el ejemplo 7.

La figura 3 es un gráfico que muestra los resultados (indicados por ♦) de los ejemplos 7 a 10 y los ejemplos comparativos 7 y 8 usando el xileno mezcla y anhídrido maleico, y los resultados (indicados por ×) de los ejemplos 2, 5 y 6 y el ejemplo comparativo 6 usando xileno y anhídrido maleico. En la figura 3, los resultados del ejemplo 5 y el ejemplo comparativo 6 se representan en posiciones correspondientes a la mayor temperatura en el intervalo de temperatura. El xileno mezcla tiene un punto de ebullición de aproximadamente 136°C y, además, se generaron una gran cantidad de burbujas en el ejemplo comparativo 7, lo que significa que el xileno mezcla que había entrado en los huecos entre las capas del material de carbono se gasificó a 140°C, pero no se gasificó a 130°C. El p-xileno a 0,3 MPa tiene un punto de ebullición cerca de 185°C y, además, se generaron burbujas activamente en el ejemplo comparativo 6, lo que significa que el xileno mezcla que había entrado en los huecos entre las capas del material de carbono se gasificó de 190 a 195°C, pero no se gasificó a 150°C. Además, el espesor medio (500 nm) después del pelado del ejemplo comparativo 7 era significativamente mayor que cualquiera de los espesores medios (de 10 nm a 120 nm) después del pelado de los ejemplos 7 a 10, y, además, el espesor medio (500 nm) después del pelado del ejemplo comparativo 6 era significativamente mayor que cualquiera de los espesores medios (de 30 nm a 70 nm) después del pelado de los ejemplos 2, 5 y 6, lo que significa que, para pelar un material de carbono escamoso más delgado, es necesario realizar calentamiento en el intervalo donde el solvente no iónico que ha entrado en los huecos entre capas del material de carbono no se gasifica. Asumiendo que el xileno mezcla tiene un punto de ebullición de 136°C, en el ejemplo 10, se realizó calentamiento de tal manera que la temperatura medida del solvente era al menos 5°C menor que el punto de ebullición del solvente. Según esto, parece que, si se realiza el calentamiento de tal manera que la temperatura medida sea 5°C menor que el punto de ebullición del solvente, se puede prevenir que el solvente que está en contacto con el material de carbono se gasifique. Se ve de la figura 3 que un material de carbono escamoso más delgado se puede pelar a una temperatura más alta en el intervalo de temperatura menor que la temperatura de equilibrio (120 a 130°C) de anhídrido maleico, y un material de carbono escamoso más delgado se puede pelar a una temperatura menor en el intervalo de temperatura más alta que la temperatura de equilibrio. Según esto, se ve que el pelado se realiza preferiblemente a la temperatura de equilibrio.

Los espesores medios después de pelar en los ejemplos 1 y 3 en los que no se añadió el compuesto eran significativamente mayores que los de otros ejemplos en los que se añadió el compuesto. Como resultado, se ve que se puede pelar un material más delgado en el caso de añadir el compuesto. Una comparación entre los ejemplos 11 a 15 en los que se añadió anhídrido maleico y el ejemplo 16 en el que no se añadió anhídrido maleico, muestra que el espesor medio después de pelar es menor en el caso de añadir anhídrido maleico. Se ve de los ejemplos 11 a 15 que, para pelar un material de carbono escamoso más delgado, es preferible añadir anhídrido maleico en una cantidad mayor de 10 partes en peso, con respecto a 100 partes en peso de material de carbono.

Además, en los ejemplos 2, 4 a 15 en los que se añadió el compuesto al solvente no iónico, aparecieron nuevos picos en el espectro infrarrojo del material de carbono escamoso, y por tanto se ve que el compuesto estaba unido al material de carbono. Los picos que aparecieron de nuevo tenían diferentes números de onda de pico entre los ejemplos 2 y 5 a 15, y el ejemplo 4, porque los tipos de compuestos unidos al material de carbono eran diferentes.

Además, se ve de los ejemplos comparativos 1 a 4 que el pelado no se facilita sin realizar irradiación de microondas. Se ve del ejemplo comparativo 5 que el pelado no se produce incluso con irradiación de microondas si no hay solvente.

La presente invención no está limitada a los ejemplos anteriores. Son posibles varias modificaciones dentro del ámbito de la presente invención.

Aplicabilidad industrial

- 5 El material de carbono escamoso obtenido por el método para producir un material de carbono escamoso según la presente invención se puede usar, por ejemplo, como un material compuesto con plástico, para la aplicación como un material conductor, un material dieléctrico, un material que absorbe ondas electromagnéticas, o un material termoeléctrico, o como un material para mejorar las características de resistencia mecánica de plástico o similar.

REIVINDICACIONES

1. Un método para producir un material de carbono escamoso, que comprende:
- 5 una etapa de pelar un material de carbono escamoso, irradiando, con microondas, un material de carbono que tiene una estructura en capas en un solvente no iónico, de modo que se caliente el material de carbono de tal manera que el solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono no se gasifica, aumentando mediante ello el espacio entre las capas del material de carbono,
- 10 en donde, en la etapa de pelar un material de carbono escamoso, un compuesto se une a un extremo de la estructura en capas del material de carbono,
- en donde el compuesto y el extremo de la estructura en capas del material de carbono se unen entre sí mediante reacción de Diels-Alder,
- 15 en donde el compuesto es al menos un compuesto seleccionado del grupo que consiste en anhídrido maleico, tetracianoetileno, 2,3-dimetoxi-1,3-butadieno, 9-metilantraceno, quinodimetano, 5,6-bismetileno-1,3-ciclohexadieno, y 3,6-bismetileno-1,4-ciclohexadieno,
- 20 en donde, en la etapa de pelar un material de carbono escamoso, el material de carbono se calienta de tal manera que una temperatura del solvente no iónico que está en contacto con el material de carbono es menor que el punto de ebullición del solvente no iónico.
2. El método para producir un material de carbono escamoso según la reivindicación 1, en donde una cantidad del compuesto que se mezcla con el solvente no iónico es 0,01 partes en peso o más y 60 partes en peso o menos con respecto a 100 partes en peso del material de carbono.
- 25 3. El método para producir un material de carbono escamoso según la reivindicación 1 o 2, en donde en la etapa de pelar un material de carbono escamoso, el material de carbono se calienta de tal manera que una temperatura del solvente no iónico en una posición de medida es al menos 5°C menor que el punto de ebullición del solvente no iónico.
- 30 4. El método para producir un material de carbono escamoso según cualquiera de las reivindicaciones 1 a 3, en donde el solvente no iónico contiene solvente hidrocarburo cíclico o solvente derivado de hidrocarburo cíclico.
- 35

	Frecuencia de microondas (MHz)	Solvente	Compuesto	Temperatura (°C)	Espesor medio antes de pelar (nm)	Espesor medio después de pelar (nm)	Espectro infrarrojo
Ej. 1	2450	Tolueno	-	100	700	150	
Ej. 2	2450	Xileno	Anhidrido maleico	110	700	50	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 3	915	Etilbenceno	-	120	1500	300	
Ej. 4	915	Xileno	2,3-dimetoxi-1,3-butadieno	100	1000	120	Apareció pico nuevo cerca de 1100 cm ⁻¹ y cerca de 2800 cm ⁻¹
Ej. 5	2450	Xileno	Anhidrido maleico	120-130	700	30	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 6	2450	Xileno	Anhidrido maleico	150	700	70	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 7	2450	Xileno mezcla	Anhidrido maleico	80	700	120	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 8	2450	Xileno mezcla	Anhidrido maleico	100	700	55	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 9	2450	Xileno mezcla	Anhidrido maleico	120	700	13	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 10	2450	Xileno mezcla	Anhidrido maleico	130	700	10	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 11	2450	Xileno	Anhidrido maleico	115	700	120	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 12	2450	Xileno	Anhidrido maleico	115	700	100	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 13	2450	Xileno	Anhidrido maleico	115	700	50	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 14	2450	Xileno	Anhidrido maleico	115	700	80	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 15	2450	Xileno	Anhidrido maleico	115	700	150	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹
Ej. 16	2450	Xileno	-	115	700	280	Apareció pico nuevo cerca de 1300 cm ⁻¹ y cerca de 1700 cm ⁻¹

FIG. 1

	Frecuencia de microondas (MHz)	Solvente	Compuesto	Temperatura (°C)	Espesor medio antes de pelar (nm)	Espesor medio después de pelar (nm)	Evaluación del pelado
Ej. Com. 1	-	-	-	110	700	700	
Ej. Com. 2	-	Agua	-	100	1500	1300	
Ej. Com. 3	-	-	Anhidrido maleico	80	700	700	
Ej. Com. 4	-	Tolueno	-	110	700	500	
Ej. Com. 5	2450	-	-	220	700	El material entero formó un gran agregado	No se produjo pelado
Ej. Com. 6	2450	Xileno	Anhidrido maleico	190-195	700	500	También apareció un agregado
Ej. Com. 7	2450	Xileno mezcla	Anhidrido maleico	140	700	500	Se produjo pelado, pero apareció un gran agregado
Ej. Com. 8	2450	Xileno mezcla	Anhidrido maleico	30	700	670	El pelado no progresó sustancialmente

FIG. 2

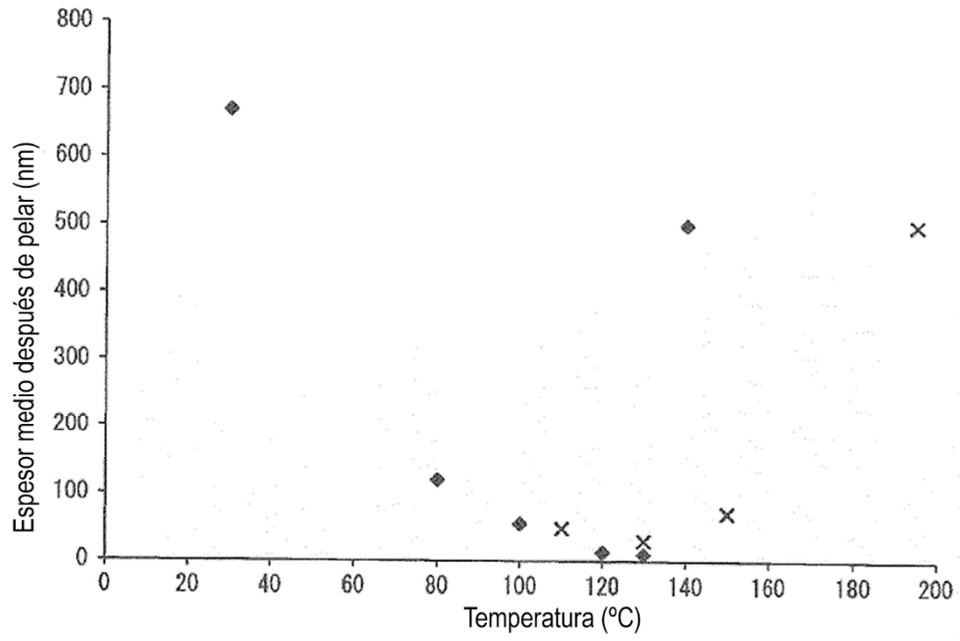


FIG.3