

(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2005-82832

(P2005-82832A)

(43) 公開日 平成17年3月31日(2005.3.31)

(51) Int. Cl.<sup>7</sup>

B22F 1/00  
C08J 3/12  
// C08L 101:00

F I

B22F 1/00 J  
C08J 3/12 CERZ  
C08J 3/12 CEZ  
C08L 101:00

テーマコード (参考)

4F070  
4K018

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号

特願2003-314216 (P2003-314216)

(22) 出願日

平成15年9月5日(2003.9.5)

(71) 出願人 504180239

国立大学法人信州大学  
長野県松本市旭三丁目1番1号

(72) 発明者 清水 保雄

長野県長野市若里4-17-1 信州大学  
工学部内

(72) 発明者 遠藤 守信

長野県須坂市北原町615

Fターム(参考) 4F070 AA71 AC04 AD02 AE01 DA04  
DB08 DC05 FA01 FB06 FC08  
4K018 BA02 BA08 BA20 BC12 KA02

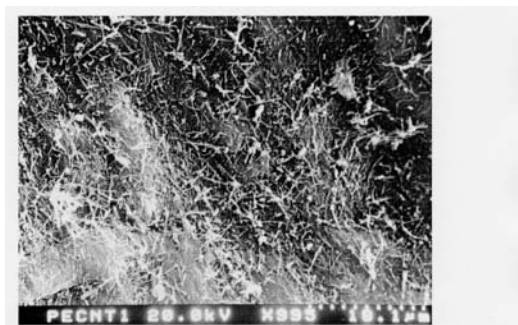
(54) 【発明の名称】 粉体の混合方法

(57) 【要約】

【課題】 ベース粉末とカーボンナノファイバーとを短時間で、かつ均一に混合することのできる粉体の混合方法を提供する。

【解決手段】 樹脂もしくは金属のベース粉末にカーボンナノファイバーを混合する粉体の混合方法において、前記ベース粉末、前記カーボンナノファイバーおよびボールとを、振動ボールミルの容器に収納し、該容器を振動させることにより、前記ボールによりカーボンナノファイバーをベース粉末表面に打ち付けて、カーボンナノファイバーをベース粉末表面に付着させることを特徴とする。

【選択図】 図7



## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

樹脂もしくは金属のベース粉末にカーボンナノファイバーを混合する粉体の混合方法において、

前記ベース粉末、前記カーボンナノファイバーおよびボールとを、振動ボールミルの容器に収納し、該容器を軸線が三次元内で揺動するように振動させることにより、前記ボールによりカーボンナノファイバーをベース粉末表面に打ち付けて、カーボンナノファイバーをベース粉末表面に付着させることを特徴とする粉体の混合方法。

## 【請求項 2】

前記振動ボールミルに、前記容器が、鉛直面内で往復円弧動すると共に、軸線が、該鉛直面に対して両側に所要角度で往復回転する三軸方向加振型ボールミルを用いることを特徴とする請求項 1 記載の粉体の混合方法。 10

## 【請求項 3】

前記容器が、鉛直面内で 1 往復円弧動する間に、軸線が、該鉛直面に対して 1 往復回転することを特徴とする請求項 2 記載の粉体の混合方法。

## 【請求項 4】

前記容器の、往復円弧動および往復回転数が 1 分間当たり 100 ~ 500 回であることを特徴とする請求項 3 記載の粉体の混合方法。

## 【請求項 5】

前記ベース粉末が樹脂粉末であり、この樹脂粉末に対してカーボンナノファイバーを 5 wt % ~ 50 wt % 混合することを特徴とする請求項 1 ~ 4 いずれか 1 項記載の粉体の混合方法。 20

## 【請求項 6】

前記ボールミルによる混合時間を 10 ~ 60 分とすることを特徴とする請求項 5 記載の粉体の混合方法。

## 【請求項 7】

前記ベース粉末がアルミニウム、錫、銅などの軟質金属粉末であり、該ベース粉末に対してカーボンナノファイバーを 5 wt % ~ 20 wt % 混合することを特徴とする請求項 1 ~ 4 いずれか 1 項記載の粉体の混合方法。

## 【請求項 8】

得られた混合粉末を加熱、加圧して押し固め、ペレット状に形成することを特徴とする請求項 1 ~ 7 いずれか 1 項記載の粉体の混合方法。 30

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は樹脂もしくは金属粉末とカーボンナノファイバーの粉末とを混合する粉体の混合方法に関する。

## 【背景技術】

## 【0002】

気相成長法によるカーボンナノチューブ (V G C F : 商品名) などのカーボンナノファイバーは、強度、電気導性、撓動性等に優れた特性を有することから、樹脂あるいは金属と混合して各種の複合体として利用されることが多い。 40

そのために、樹脂あるいは金属のベース粉末とカーボンナノファイバーとを均一に混合する必要がある。

従来、樹脂あるいは金属のベース粉末とカーボンナノファイバーの粉末との混合は、一般的に、遊星回転式ボールミルなどを用いて行われている。

## 【発明の開示】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0003】

上記遊星回転式ボールミルは、容器を回転板の周縁部上に配置して、それを回転板と共 50

に回転させると同時に、自身の軸線を中心とした自転が可能となるような構造をしている。この容器内に、ステンレススチール製のボールと材料粉末とを収容し、容器を自転かつ公転させることにより材料を混合するようにしている。

これにより、材料には、容器の自転による遠心力と、容器の公転による遠心力とが複合的に作用し、材料の混合がなされる。

#### 【0004】

しかしながら、この遊星回転式ボールミルの場合には、比重の小さいものと大きいものととが上下方向に分離してしまい、均一混合が困難となる課題がある。

また、嵩比重でみた場合には、樹脂が約0.7~0.9であるのに対し、カーボンナノファイバーは約0.03~0.05であって、樹脂に対して一桁以上も小さいことから、トータル容積の小さな樹脂と、膨大な容積のカーボンナノファイバーとを混合することとなり、均一混合が厄介であるというそもそもの課題がある。ベース粉末が金属の場合には、カーボンナノファイバーとの均一混合がさらに一層困難となる。

均一混合が困難なことから、混合のための時間も、数時間という長時間を要する。このために、カーボンナノファイバーが寸断され、その結果複合体に必要な導電性が劣化するなどの課題がある。

#### 【0005】

そこで本発明は上記課題を解決すべくなされたもので、その目的とするところは、ベース粉末とカーボンナノファイバーとを短時間で、かつ均一に混合することのできる粉体の混合方法を提供するにある。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0006】

本発明に係る粉体の混合方法は、樹脂もしくは金属のベース粉末にカーボンナノファイバーを混合する粉体の混合方法において、前記ベース粉末、前記カーボンナノファイバーおよびボールとを、振動ボールミルの容器に収納し、該容器を振動させることにより、前記ボールによりカーボンナノファイバーをベース粉末表面に打ち付けて、カーボンナノファイバーをベース粉末表面に付着させることを特徴とする。

#### 【0007】

また、前記振動ボールミルに、前記容器が、鉛直面内で往復円弧動すると共に、軸線が、該鉛直面に対して両側に所要角度で往復回転する三軸方向加振型ボールミルを用いることを特徴とする。この場合に、前記容器を、鉛直面内で1往復円弧動する間に、軸線が、該鉛直面に対して1往復回転するように構成し、また、前記容器の駆動が、往復円弧動および往復回転数が1分間当たり100~500回となる比較的緩やかな混合条件に設定すると好適である。

#### 【0008】

また、前記ベース粉末が樹脂粉末であり、この樹脂粉末に対してカーボンナノファイバーを5wt%~50wt%混合することを特徴とする。この場合前記ボールミルによる混合時間を10~60分とすると好適である。

また、前記ベース粉末がアルミニウム、錫、銅などの軟質金属粉末であり、該ベース粉末に対してカーボンナノファイバーを5wt%~20wt%混合することを特徴とする。

得られた混合粉末を加熱、加圧して押し固め、ペレット状に形成することができる。

#### 【発明の効果】

#### 【0009】

以上のように、本発明によれば、ベース粉末とカーボンナノファイバーとを短時間で、かつ均一に混合することのできる粉体の混合方法を提供できる。

短時間で混合できることから、カーボンナノファイバーの寸断を回避でき、導電性に優れた混合体を得ることができる。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0010】

以下、本発明の好適な実施の形態を添付図面に基づいて詳細に説明する。

10

20

30

40

50

図1、図2は、三軸方向加振型ボールミル(図示せず)における、混合する材料を収納する容器10の振動状態を示すもので、図1は平面図、図2は正面図である。

図2から明らかなように、容器10は、軸Pを中心に鉛直面内で揺動するアーム12に適宜部材を介して取り付けられていて、鉛直面内で往復円弧動可能に設けられている。

#### 【0011】

また容器10は、図1から明らかなように、上記往復円弧動する間に、鉛直面の揺動面Qに対して、角度の範囲で揺動する複合運動をするように設けられている。すなわち、容器10は自身の軸線が揺動面Qに対して $\theta/2$ の角度ずつ両側に振れるように往復回転する。

この場合に、容器10を、鉛直面内で1往復円弧動する間に、軸線が、該鉛直面に対して1往復回転するように構成し、また、容器10の駆動が、往復円弧動および往復回転数が1分間当たり100~500回となる比較的緩やかな混合条件に設定すると好適である。

#### 【0012】

このような容器10の駆動機構は、図示しないが例えば次のように構成できる。

すなわち、まず容器10は第1の支持台上に回転軸を介して角度の範囲で回転自在に支持される。この容器10を回転させる駆動機構は、シリンダ機構、あるいはモータ機構等の公知の機構によって構成することができる。

そしてこの第1の支持台にアーム12が連結される。アーム12を鉛直面内で回転する機構も、シリンダ機構、あるいはモータ機構等の公知の機構によって構成することができる。

#### 【0013】

上記の構成によって、容器10が、鉛直面内で往復円弧動すると共に、軸線が、該鉛直面に対して両側に所要角度で往復回転する三軸方向加振型ボールミルを形成することができる。

容器10の、角度の範囲内で往復回転する振れ速度、アーム12の往復回転速度を可変にすることによって、混合条件を種々に設定でき、種々の材料の混合に対応することができる。

また、容器10を密閉空間内に配置し、ヒータによって密閉空間内の温度を調整するようにすると好適である。

#### 【0014】

上記三軸方向加振型ボールミルを用いて、平均粒径が約0.2mmのポリエチレン樹脂粉末と気相成長法により製造したカーボンナノファイバーとステンレススチール製のボールとを容器10に収容し、常温下で、容器10を毎分300回、往復円弧動および往復回転させて混合した。

カーボンナノファイバーは、平均直径が約0.1 $\mu$ mで長さは数10 $\mu$ mのものを用いた。

ポリエチレン樹脂粉末に対するカーボンナノファイバーの配合比を10wt%、20wt%、30wt%、50wt%に設定し、混合時間を種々に設定して混合した後、混合物を180の温度下で6分間程度加圧することによってペレット状の成形体を得た。

#### 【0015】

図3に、混合時間に対する成形体の電気抵抗を計測したグラフを示す。カーボンナノファイバーの含有率が大きくボールミル混合時間が短いほど電気抵抗が低下することが示されており、1時間以内の混合時間で良好に混合されていることがわかる。

6時間等、長時間混合した場合に急激に電気抵抗値が上昇するのは、長時間の過酷な混合状況下でカーボンナノファイバーが短く寸断され、ファイバー同士の接触が少なくなることから導電性が低下するものと推測される。

#### 【0016】

図4は処理前のポリエチレン粉末の電子顕微鏡写真、図5は処理前のカーボンナノファイバーの電子顕微鏡写真である。

図6は、ポリエチレン粉末に対してカーボンナノファイバーを30wt%配合して、上

10

20

30

40

50

記三軸方向加振型ボールミルにより約1時間混合処理した混合物の電子顕微鏡写真、図7はその拡大図である。なお、混合処理条件は、常温で、容器10を毎分300回、往復円弧動、往復回動させた。

【0017】

処理前においては、カーボンナノファイバーはポリエチレン粉末に対して嵩比重が一桁も小さいことから、容積において圧倒的にカーボンナノファイバーの方が多い。

しかし、処理後は、図6、図7に示すようにカーボンナノファイバーはポリエチレン粉末の表面に打ち込まれ、該表面に付着することから、混合物の容積は大きく減じる。

【0018】

このように混合物の容積が減じるのは、上記三軸方向加振型ボールミルを用いることによって、従来の遊星回転式ボールミルを用いた場合の単なる遠心力が作用するのとは異なり、ステンレススチール製のボールと共に材料が容器10内で激しく転動し、ボールによって材料が容器10壁面にたたきつけられ、これによって相対的に小さなカーボンナノファイバーが大きな粒子状のポリエチレン粉末の表面に打ち込まれ、該表面に付着するからである。

【0019】

また、材料がステンレススチール製のボールと共に容器10内で激しく転動するので、従来のように比重の小さなものと大きなものとで材料が容器10内で上下に分離してしまうようなことがなく、すべてのポリエチレン粉末の表面にカーボンナノファイバーが均一に付着する。しかも、材料が容器10内で上下に分離することがなく、かつボールによって材料が容器10壁面にたたきつけられることから、短時間で材料を混合することができ、カーボンナノファイバーが短く寸断されることも少ない。

上記では混合処理を常温で行ったが、材料が溶融しない程度の加温雰囲気下で混合処理を行うようにすれば、さらに短時間での混合が可能となる。

【0020】

上記のように、カーボンナノファイバーがポリエチレン粉末表面に均一に付着し、この混合物を加熱、加圧して容易にペレット状となすことができるので、インジェクション等により、所望の形状に、しかも樹脂中にカーボンナノファイバーが均一に混入した成形品を得ることができる。

なお、樹脂材料はポリエチレンに限られることはなく、種々の熱可塑性、および熱硬化性の樹脂材料とカーボンナノファイバーとの混合が行える。

樹脂材料とカーボンナノファイバーとの混合の場合、樹脂材料に対してカーボンナノファイバーを5wt%～50wt%程度、10～60分の混合時間で良好に混合することができる。

【0021】

また、樹脂粉末でなく、種々の金属粉末とカーボンナノファイバーとの混合も行える。例えばアルミニウム粉末、錫粉末、銅粉末等の比較的柔らかい金属材料との混合を良好に行える。

金属材料との混合の場合には、加熱雰囲気中で混合を行うのが好適である。

金属材料とカーボンナノファイバーとの混合では、金属材料に対して5wt%～20wt%程度のカーボンナノファイバーを良好に混合し得る。

【0022】

なお、上記実施の形態では、三軸方向加振型ボールミルで説明したが、これに限られず、容器を軸線が三次元内で揺動するように振動させることにより、ボールによりカーボンナノファイバーをベース粉末表面に打ち付けて、カーボンナノファイバーをベース粉末表面に付着させることのできる振動ボールミルであればよい。

【図面の簡単な説明】

【0023】

【図1】三軸方向加振型ボールミルの容器の動きを示す平面図である。

【図2】三軸方向加振型ボールミルの容器の動きを示す正面図である。

【図3】ペレット状にした混合体の、混合時間と電気抵抗値との関係を示すグラフである。

【図4】ポリエチレン粉末材料の電子顕微鏡写真である。

【図5】カーボンナノファイバーの電子顕微鏡写真である。

【図6】混合物の電子顕微鏡写真である。

【図7】図6の拡大図である。

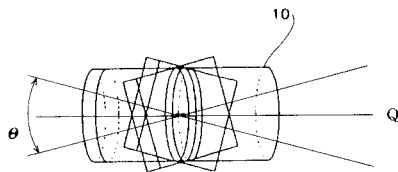
【符号の説明】

【0024】

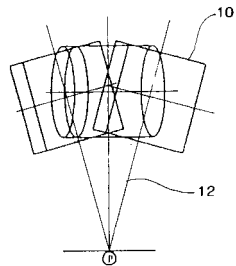
10 容器

12 アーム

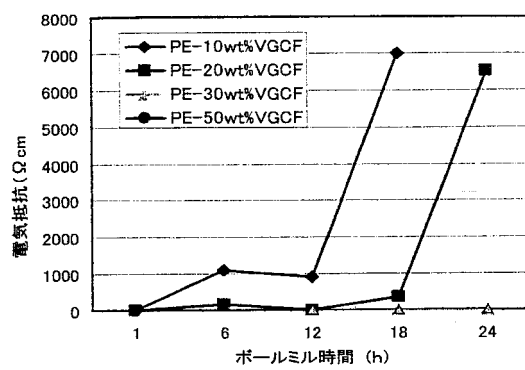
【図1】



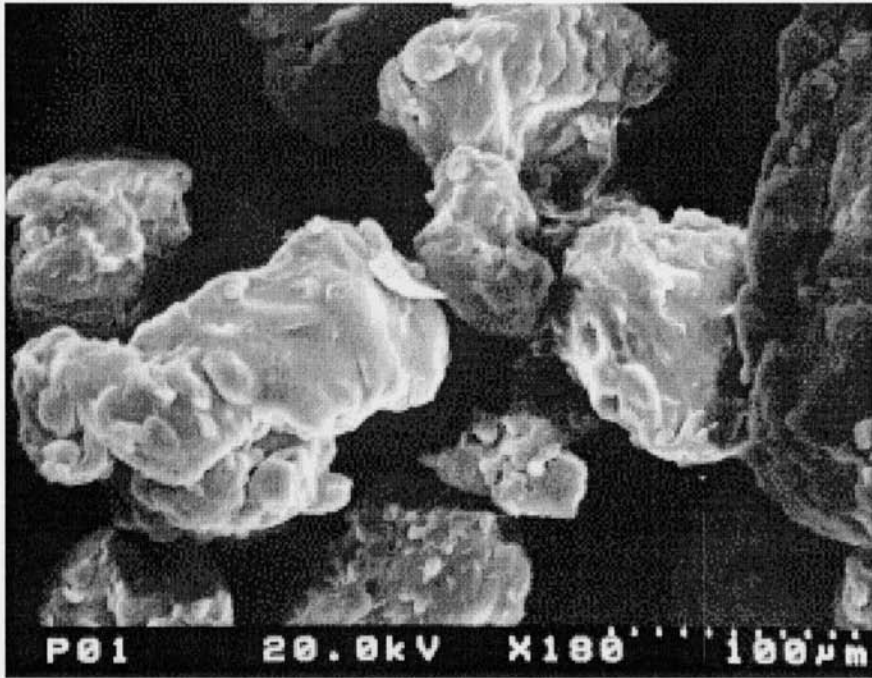
【図2】



【図3】



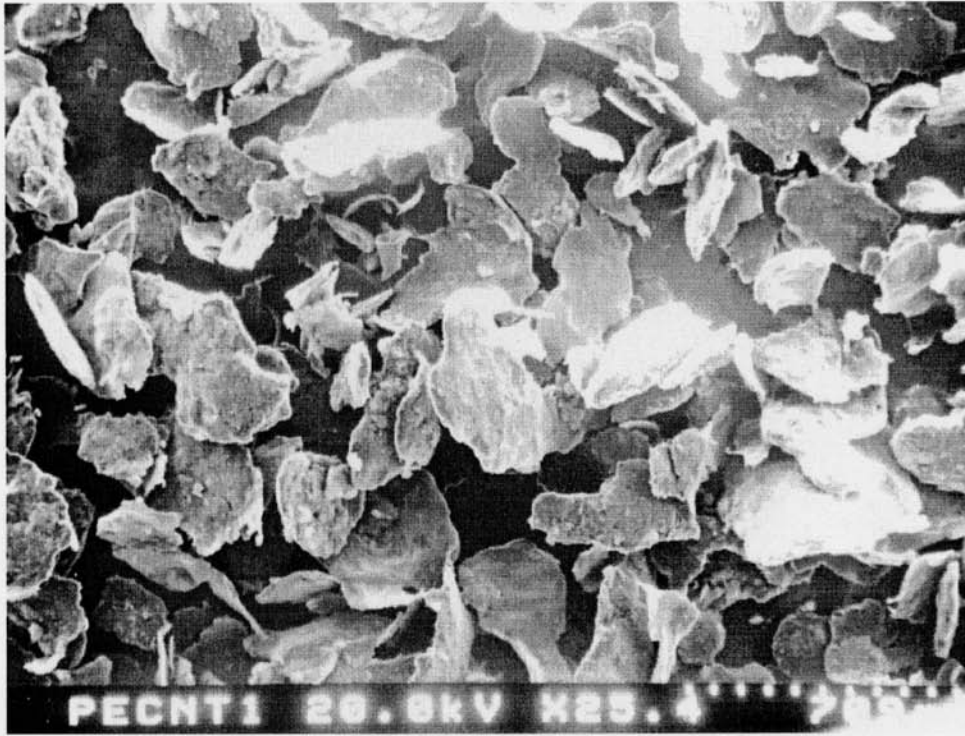
【 図 4 】



【 図 5 】



【 図 6 】



【 図 7 】

