



(10) **DE 10 2010 044 563 B4** 2015.04.09

(12)

Patentschrift

(21) Aktenzeichen: **10 2010 044 563.0**
(22) Anmeldetag: **07.09.2010**
(43) Offenlegungstag: **08.03.2012**
(45) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung: **09.04.2015**

(51) Int Cl.: **B01F 3/12 (2006.01)**
B01J 13/00 (2006.01)

Innerhalb von neun Monaten nach Veröffentlichung der Patenterteilung kann nach § 59 Patentgesetz gegen das Patent Einspruch erhoben werden. Der Einspruch ist schriftlich zu erklären und zu begründen. Innerhalb der Einspruchsfrist ist eine Einspruchsgebühr in Höhe von 200 Euro zu entrichten (§ 6 Patentkostengesetz in Verbindung mit der Anlage zu § 2 Abs. 1 Patentkostengesetz).

(73) Patentinhaber:
Fachhochschule Lübeck, 23562 Lübeck, DE

(74) Vertreter:
**Hansen und Heeschen Patentanwälte, 21680
Stade, DE**

(72) Erfinder:
**Jendrzewski, Stefan, Prof. Dr., 23562 Lübeck,
DE**

(56) Ermittelter Stand der Technik:

DE	10 2006 039 638	B3
DE	102 35 170	A1
DE	102 41 510	A1
DE	10 2007 021 002	A1

BEARI, F. u.a.: Organofunctional alkoxy silanes in dilute aqueous solution: new accounts on the dynamic structural mutability. Journal of Organometallic Chemistry 625, 2001, S. 208 – 216

Enzyklopädie der technischen Chemie: Ullmann. Bd. 21: Schwefel bis Sprengstoffe. 4., neubeab. und erw. Aufl. Weinheim [u.a.] : Verl. Chemie, 1982. S. 466-467. - ISBN 3-527-20021-5

STÖBER, W. u.a.: Controlled Growth of Monodisperse Silica Spheres in the Micron Size Range, Journal of Colloid and Interface Science, 26, 1968, S. 62 - 69

(54) Bezeichnung: **Stabile Dispersionen**

(57) Hauptanspruch: Verfahren zum Herstellen einer Dispersion von in einem aprotischen organischen Lösungsmittel dispergierten Metalloxid-Nanopartikeln, mit den Schritten:

a. Bereitstellen eines aprotischen organischen Lösungsmittels,

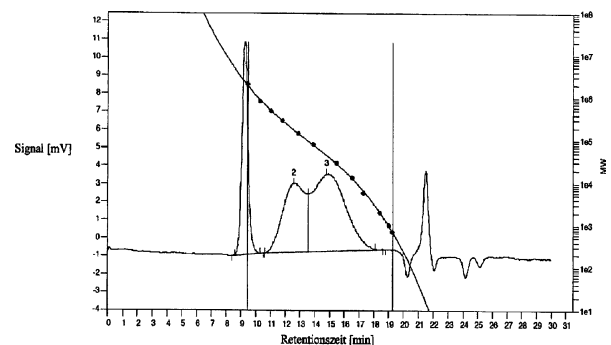
b. Hinzufügen einer für eine vorbestimmte Konzentration von Metalloxid-Nanopartikeln im Dispersionsmittel benötigten Teilmenge von pulverförmigen agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln,

c. Behandeln des die agglomerierten Metalloxid-Nanopartikel (AM-N) enthaltenden Lösungsmittels mit Ultraschall, gekennzeichnet durch

d. Hinzufügen einer weiteren Teilmenge von agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln,

e. Wiederholen der Schritte c und d bis die vorbestimmte Konzentration erreicht ist,

wobei das Verfahren mit nicht durch Silanisierung oberflächenbehandelten Partikeln bei einer Temperatur von 15 °C bis 40 °C durchgeführt wird, und die Partikelgröße der agglomerierten Metalloxid-Nanopartikel in der Dispersion 60–70 nm beträgt, wobei die Partikel des zugegebenen AM-N eine primäre Partikelgröße unter 12nm aufweisen.



Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft stabile Dispersionen von nanoskaligen Füllstoffen und ein Verfahren zu deren Herstellung und deren Verwendung.

[0002] Nanopartikeldispersionen werden im Wesentlichen auf zwei Wegen erhalten.

- a) Beim Sol_Gel-Prozess werden Tetraalkoxysilane hydrolysiert, die gebildeten Silanole kondensieren im flüssigen Medium unter Abspaltung von Wasser zu Partikeln mit Durchmessern von einigen Nanometern. Das übliche Verfahren ist der Stöber-Prozess [W. Stöber, J. Coll. Interf. Sci. 26 (1968) 62]
- b) Durch mechanisches Einbringen von agglomerierten Materialien unter Energieeinsatz in flüssige Medien.

[0003] Die Nanopartikel neigen zur Aggregation und Agglomeration und verändern so ihre nanoskaligen Eigenschaften. Aus diesem Grund werden Hilfsmittel zugegeben, welche die Oberfläche der nanoskaligen Partikel verändern und so eine Aggregation und Agglomeration unterbinden und gleichzeitig die Mischbarkeit mit organischen Substanzen verbessern. Ein Beispiel hierfür ist die Oberflächenbehandlung der festen Nanopartikel in der Gasphase mit Silanen oder das Aufsprühen von Alkoholischen Lösungen der Silane auf die Nanopartikel.

[0004] Eine weitere Möglichkeit ist es, kommerziell erhältliche agglomerierte Nanopulver in einem organischen Lösungsmittel zu dispergieren und gleichzeitig die Oberfläche mit Siloxanen oder organofunktionellen Silanen zu modifizieren (DE 10241510 A1), wobei die Silane/Siloxane das nanoskalige Dispergieren in den meisten Fällen erst ermöglichen. Die hierbei entstehenden Dispersionen werden entweder direkt weiterverarbeitet oder es wird bevorzugt das Lösungsmittel entfernt und das trockene Pulver der Weiterverarbeitung zugeführt. Dagegen kann die Einarbeitung nanoskaliger Füllstoffe in organische Bindemittel in Form von Dispersionen von großem Vorteil sein, da die Dispersionen deutlich besser mit den organischen Bindemitteln mischbar sind als z.B. der trockene Füllstoff.

[0005] Zur Oberflächenmodifizierung von agglomerierten oder nanoskaligen Metalloxiden werden Oberflächenmodifizierungsreagenzien (OMR) eingesetzt. Diese sind häufig Alkoxysilane, Zirkonate oder Titanate, die im Zusammenspiel mit Hilfsreagenzien wie Basen, Säuren und Dispergiermitteln kovalente Bindungen zur Partikeloberfläche eingehen. Die Oberflächenmodifizierung von mit organofunktionellen Trialkoxyalkoxysilanen beruht darauf, dass, im Fall eines Trialkoxysilans die darin enthaltenen Alkoxygruppen hydrolysiert werden und das entstandene Silantriol mit Si-OH-Gruppen auf der Partikeloberfläche unter Abspaltung von Wasser kondensiert. Wenn partikelgebundene organofunktionelles Silane eine polymerisierbare Gruppe enthalten, so können die Partikel bei einer in-situ Polymerisation über diese Gruppen als Vernetzungsstellen in das Polymer eingebunden werden. Die organofunktionellen Silantriole können aber bei Abwesenheit von reaktiven Oberflächen auch untereinander reagieren, diese Reaktion wird hier als „Silan-Autokondensation“ bezeichnet. Dabei werden lineare und cyclische Siloxane gebildet. [J. Organom. Chem. 625 (2001) 208]. In diesem Fall führen die oligomeren linearen und cyclischen Siloxane zu einer zusätzlichen Vernetzung bei der Polymerisation zu einem Nanokomposit (sog. „Silanvernetzung“).

[0006] Die DE 10 2007 021 002 A1 beschreibt pulverförmige Partikel, ihre Herstellung und deren Dispersion in wässrigen und organischen Medien, wobei ein aprotisches organisches Lösungsmittel bereitgestellt, für eine vorbestimmte Konzentration von Metalloxid-Nanopartikeln im Dispersionsmittel benötigten Teilmenge von agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln hinzugefügt und die agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln enthaltenden Lösungsmittels mit Ultraschall behandelt wird.

[0007] Aus der DE 10 2006 039 638 B3 ist ein Verfahren zur Herstellung von Nanokompositen aus agglomeriert vorliegenden Nanopulvern und organischen Bindemittel bekannt. Durch Oberflächenmodifikation der Nanofüllstoffe in einem organischen Medium gelingt es die Agglomerate dauerhaft soweit zu zerteilen, dass transparente Nanokomposite erhalten werden können.

[0008] Es ist Aufgabe der Erfindung nanoskalige Dispersionen bereitzustellen, die über einen hinreichend langen Zeitraum ihre nanoskaligen Eigenschaften und ihre niedrige Viskosität behalten.

[0009] Es wurde nun gefunden, dass sich stabile Dispersionen von nanoskaligen Füllstoffen erzeugen lassen, wenn man das in den Ansprüchen beschriebene Verfahren anwendet.

[0010] Das erfindungsgemäße Verfahren umfasst die Schritte

- a. Bereitstellen eines aprotischen organischen Lösungsmittels,
- b. Hinzufügen einer für eine vorbestimmte Konzentration von Metalloxid-Nanopartikeln im Dispersionsmittel benötigten Teilmenge von agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln,
- c. Behandeln des die agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln enthaltenden Lösungsmittels mit Ultraschall,
- d. Hinzufügen einer weiteren Teilmenge von agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln,
- e. Wiederholen der Schritte c und d bis die vorbestimmte Konzentration erreicht ist,

wobei das Verfahren bei einer Temperatur von 15 °C bis 40 °C durchgeführt wird.

[0011] Wenn notwendig kann als weiterer Schritt noch eine getaktete Ultraschallbehandlung bis zum Erreichen des Durchmesser Endwertes (\varnothing_p) durchgeführt werden.

[0012] Als AM-N kommen dabei Aluminiumoxid (Al_2O_3), Titandioxid (TiO_2), Siliziumdioxid (SiO_2) sowie die Hydrate und Säuren ($\text{Al}_2\text{O}_3 \times a\text{H}_2\text{O}$, $\text{TiO}_2 \times b\text{H}_2\text{O}$, $\text{SiO}_2 \times b\text{H}_2\text{O}$) dieser Verbindungen in Frage.

[0013] Es ist von Vorteil, wenn die Primäre Partikelgröße des zugegebenen AM-N unter 12 nm liegt.

[0014] Es hat sich als vorteilhaft erwiesen, wenn AM-N verwendet werden, die an ihrer Agglomeratoberfläche schwach hydrophobiert sind, besonders bevorzugt wird als AM-N hydrophobe, pyrogen hergestellte Kieselsäure wie sie aus Ullmann's Enzyklopädie der technischen Chemie, 4. Auflage, Band 21, Seiten 466 bis 467 und der DE 102 35 170 Tabelle 1 bekannt sind, verwendet.

[0015] Als aprotisch organische Lösungsmittel kommen besonders solche in Frage die über ein gewisses Maß an Polarität verfügen, insbesondere Ketone, Nitoalkane, Nitrile, Ester, Sulfoxide, Sulfone, Lactone, Lactame und einige Ether. Einige Beispiele für diese Lösungsmittel sind Aceton, Nitromethan, Acetonitril, Dimethylsulfoxid (DMSO), N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP) und Tetrahydrofuran (THF).

[0016] Zur Hochenergetischen Ultraschallbehandlung sind handelsübliche Geräte geeignet insbesondere Stabsonotroden, besonders bevorzugt solche mit Amplituden von mehr als 180 μm

[0017] Ein extremer Vorteil ist lange Haltbarkeit der erfindungsgemäß erzeugten Dispersionen. Die niedrigviskosen kolloidalen Lösungen sind praktisch farblos, in der Durchsicht transparent und zeigen einen weißlichen Schimmer, der durch Streuung des sichtbaren Lichts verursacht wird. Das Ausmaß dieses Effektes hängt von der Partikelgröße sowie vom Brechungsindex-Unterschied zwischen den Partikeln und dem Dispergiermittel ab.

[0018] Die Haltbarkeit der Dispersionen hängt bei einer Partikelgröße (Durchmesser \varnothing_p) von 60–70 nm vom Lösemittel und der Partikelkonzentration ab. THF erweist sich als ein herausragend gutes Lösemittel für nanoskaliges SiO_2 . Die Maximalkonzentration beträgt darin ca. 0,35 g / ml. In THF bleibt der Durchmesser-Endwert bei einer SiO_2 -Konzentration von 200 g/l über mindestens 12 Monate unverändert; eine Dispersion mit 330g/L fängt nach 8–10 Tagen an, sichtbar ein Gel zu bilden, was durch kurzzeitige Ultraschalleinwirkung reversibel ist.

[0019] Die Tabelle 1 zeigt die Haltbarkeit der erfindungsgemäßen Dispersionen mit einer Massenkonzentration von 0,2 g SiO_2 / ml Lösemittel.

Tabelle 1: Haltbarkeit von erfindungsgemäßen (1, 2, 3, 4) und nicht erfindungsgemäßen (5, 6) Dispersionen*

Eintr.	Lm	\varnothing_p [nm] Δt : 0 d	\varnothing_p [nm] Δt : 60 d	Gelieren* Δt : 60 d	Gelieren* Δt : 90 d
1	Aceton	68	68	0	0
2	tert.-BuOMe	65	69	0	20
3	NMP	86	n.b.	0	0
4	THF	65	68*	0	0
5	Methylacetat	61	-	100	100
6	Methanol	62	81	viskos	100

* Sichtbar gelierter Volumenanteil nach 60 bzw. 90 Tagen Lagerung bei Raumtemperatur.

Herstellung von kolloidalen Partikellösungen mit Ultraschall (Tabelle 2):

[0020] In ein zylindrisches Glasgefäß mit Kühlmantel wird unter Rühren und Ultraschalleinsatz portionsweise Aerosil R106, jeweils bis zur vollständigen Benetzung in das Lösemittel eingetragen. Nach Erreichen der Endkonzentration wird bei maximaler Amplitude und einem Cyclus von 0,1/0,2 (Schall/Pause) bei ca.35°C geschallt und die Partikelgröße bestimmt.

Abk.: Lm. = Lösemittel, tert.-BuOMe = tert.-Butylmethylether, NMP = N-Methyl-1-pyrrolidon, THF = Tetrahydrofuran, \varnothing_p = mittlerer hydrodynamischer Partikeldurchmesser bestimmt mit dynamischer Lichtstreuung (DLS).

Tabelle 2:

Eintr.	m (R106) [g]	Lösemittel Lm	Volumen Lm [ml]	Schallzeit [h]	Energie [KJ]	\varnothing_p [nm]	Gelieren [%]*
1	8	Aceton	40	10	500	68	0
2	4	Acetonitri l	40	10	500	68	n.b.
3	8	tert.-BuO- Me	40	10	500	65	20
4	8	NMP	40	10	500	86	0
5	8	Methanol	40	10	500	62	100
6	8	Methylac etat	40	10	500	61	100
7	8	THF	40	10	500	65	0
8	40	THF	120	40	3500	62	100
9	100	THF	500	30**	**	95	n.b.

* Sichtbar gelierter Volumenanteil nach 3-monatiger Lagerung bei 20–25 °C

** : Sonotrode KE 76, Amplitude, 184 μ

Abk.: Lm. = Lösemittel, tert.-BuOMe = tert.-Butylmethylether, NMP = N-Methyl-1-pyrrolidon, THF = Tetrahydrofuran, \varnothing_p = mittlerer hydrodynamischer Partikeldurchmesser bestimmt mit dynamischer Lichtstreuung (DLS).

[0021] Ein wesentlicher Vorteil der erfindungsgemäß hergestellten Dispersionen ist, dass die Partikelgröße vor einer weiteren Verarbeitung z.B. einer Oberflächenmodifizierung eingestellt werden kann. Die Partikelgröße der erfindungsgemäß hergestellten Dispersion ist damit unabhängig von der weiteren Verarbeitung einstellbar.

[0022] Die Partikel der erfindungsgemäß hergestellten Dispersionen können einer Oberflächenbehandlung unterzogen werden, diese ist aber zur Erzeugung der gewünschten Partikelgröße nicht notwendig.

[0023] Im Vergleich zu den agglomerierten oder schwach dispergierten agglomerierten Nanomaterialien, steht in der erfindungsgemäßen kolloidalen Partikellösung von vornherein eine große Oberfläche zur Verfügung, die gleichmäßig belegt werden kann. Das erfindungsgemäß verwendete aprotische organische Lösemittel ist, im Gegensatz zu protischen Lösemitteln (Wasser Alkohole) unter den Bedingungen der Oberflächenmodifizierung nicht reaktionsfähig und stört daher eine Oberflächenfunktionalisierung mit reaktiven organischen Gruppen nicht. Es ist somit möglich, mit verschiedenen OMR z.B. durch sukzessive Reaktionen auch mischfunktionalisierte Partikel herzustellen.

[0024] Überraschenderweise zeigte sich, dass die erfindungsgemäß hergestellten Dispersionen oberhalb bestimmter Konzentrationen die Silan-Autokondensation unterbinden. Bei der Verwendung hochkonzentrierter Dispersionen (28–30 % SiO₂) und unterhalb eines bestimmten Verhältnisses Silan (mol):Nano-SiO₂ (g), wird kein Silanvernetzungsprodukt des Nanomomposites mehr detektiert. Dieser Wert liegt bei 0,16–0,24 mmol Trialkoxysilan pro Gramm Nano-SiO₂ mit einem mittleren Partikeldurchmesser von 65 nm. Dieser Zusammenhang ist auch aus den in **Fig. 1** bis **Fig. 3** gezeigten GPC-Diagrammen erkennbar. Es ist jeweils das GPC eines Nanokomposits (15% Nano-SiO₂) nach Beispiel 1 mit 0.5 mmol Silan/g Nano-SiO₂ (\varnothing_p = 65 nm) (**Fig. 1**), mit 0.16 mmol Silan/g Nano-SiO₂ (\varnothing_p = 65 nm) (**Fig. 2**) und ohne Silanisierung (\varnothing_p = 65 nm) (**Fig. 3**) zu sehen.

[0025] Bei dem Peak mit Retentionszeit 8,5–10 min (**Fig. 1** und **Fig. 2**) handelt es sich um die Nanopartikel mit aufgepropftem Polyamid. Der Peak im Bereich der Retentionszeit von 11–13,5 min ist nur bei Konzentrationen ab > 0,24 mmol Silan pro Gramm Nano-SiO₂ ($\varnothing_p = 65$ nm) zu sehen (**Fig. 1**), bei fehlender Silanzugabe (**Fig. 3**) oder bei einer Silanzugabe von z.B. 0,16 mmol pro Gramm Nano-SiO₂ (**Fig. 2**) tritt der Peak nicht auf. Der Nachweis, dass es sich dabei um eine Polymerfraktion mit SiO₂-Kern handelt, wird, ebenso wie für den Peak der polymer-gepropften Nanopartikel, dadurch geführt, dass diese beiden Signale nach Behandlung der Probe mit SiO₂-auflösender wässriger Fluorwasserstofflösung nicht mehr beobachtet werden.

[0026] Der Verzicht auf eine Oberflächenmodifizierung der Partikel der erfindungsgemäßen Dispersionen kann ebenfalls große Vorteile mit sich bringen. Die Mischungseigenschaften der erfindungsgemäßen aprotisch organischen Lösemittel erlauben das Einbringen nativer Nanopartikel in eine große Vielfalt organischer Stoffsysteme. Das Lösungsmittel kann in einem späteren Verfahrensschritt wieder entfernt werden. Handelt es sich dabei um ein polymerisationsfähiges System, so entstehen Nanokomposite. Die Einarbeitung von nicht oberflächenbehandelten Nanopartikeln, die bei trockenem Pulver nur sehr schwer und in geringen Mengen gelingt, ist somit möglich. Es können auf diese Weise echte nanostrukturierte Komposite (mit einer durchschnittlichen Partikelgröße < 100 nm) erhalten werden.

[0027] Eine Anwendung der erfindungsgemäß hergestellte kolloidalen Dispersionen ist die Herstellung von Nanokompositen mit polymeren organischen Bindemitteln. Ein Verfahren, das besonders geeignet ist, den nanoskaligen Dispergiergrad zu erhalten, ist die in-situ Polymerisation. Dabei wird die erfindungsgemäß hergestellte kolloidalen Dispersion mit dem flüssigen Monomer eines Kunststoffes vermischt, das Lösungsmittel durch Destillation entfernt und die verbleibende Mischung einer Polymerisation des Monomeren (Polykondensation oder Polyaddition) unterworfen.

[0028] Die in-situ-Polymerisation mit den modifizierten Partikeln kann nach den gängigen Polymerisationsarten als Reaktion in Substanz, in Lösung oder im Zweiphasensystem mit Wasser (Suspension/Emulsion) erfolgen. Für Substanzpolymerisationen wie z.B. für Polyamid 6, wird das Lösungsmittel vollständig gegen das Monomer ausgetauscht. Dazu wird das Lösungsmittel der Dispersion so gewählt, dass es oberhalb des Schmelzpunktes des Monomeren bei Normaldruck oder bei vermindertem Druck abdestilliert werden kann d.h. ohne dass sich die Mischung verfestigt und jederzeit die vollständige Mischbarkeit (Homogenität) gegeben ist. Diese Situation lässt sich mit der breiten Palette aprotisch polarer Lösungsmittel praktisch immer realisieren.

Material und Methoden

[0029] Partikelgrößen wurden mit einem Nanosizer der Fa. Malvern bestimmt, Algorithmus: CONTIN.

[0030] Als aggregiertes Nanomaterial wurde Aerosil R 106 (flammpyrolitisch hergestelltes Siliciumdioxid mit einer Primärpartikelgröße von 7 nm) verwendet.

[0031] Lösemittel wurden in pA.-Qualität eingesetzt. Triethoxysilylpropylbernsteinsäureanhydrid (GF20) geliefert von der Firma ABCR mit einer Reinheit von 97 %.

[0032] Der Ultraschalleinsatz erfolgte, wenn nicht anders vermerkt, mit einem Gerät HD 3200, Sonotrode KE 76 (max. Amplitude: 183 μ) der Fa. Bandelin.

[0033] Herstellung der von kolloidalen Partikellösungen mit Ultraschall (Tabelle 1):
In ein zylindrisches Glasgefäß mit Kühlmantel wird unter Rühren und Ultraschalleinsatz portionsweise Aerosil R106, jeweils bis zur vollständigen Benetzung in das Lösemittel eingetragen. Nach Erreichen der Endkonzentration wird bei maximaler Amplitude und einem Cyclus von 0,1/0,2 (Schall/Pause) bei ca. 35 °C geschallt und die Partikelgröße bestimmt.

[0034] Beispiel für die Funktionalisierung der Nanopartikel und die Herstellung eines Komposits:

- a) Funktionalisierung von dispergierten SiO₂-Nanopartikeln
mit 3-(Triethoxysilyl)propyl-bernsteinsäureanhydrid:

[0035] Zu 24 ml der Dispersion nach Eintr. 8 Tabelle 1 werden unter schnellem Rühren mit einem Magnetrührstab 0,245 ml H₂O zugegeben, anschließend werden 0,42 ml (Triethoxysilyl)propyl-bernsteinsäureanhydrid gelöst in 2 ml THF über 5 min. zugetropft und weiter 12 h bei RT gerührt.

b) Herstellung eines Polyamid 6 mit 15 Gew.-% SiO₂ mit funktionalisierten Nanopartikeln

[0036] 24 ml der Dispersion 8 (Tabelle 1) werden mit 16 ml THF verdünnt und in einem Rohrreaktor (230 × 40 mm) auf 60 °C erhitzt, löst darin 36,5 g ε-Caprolactam und destilliert das THF bei 100 °C ab. Reste des Lösemittels werden bei vermindertem Druck entfernt, der Druck auf 30 mbar reduziert und die Temperatur auf 160 °C erhöht. Es werden unter magnetischem Rühren 9,2 g pulverisierte 6-Aminohexansäure zugesetzt, der Magnetrührstab entfernt und die Mischung unter Stickstoff im Ölbad auf 250 °C erhitzt (1 °C/min.). Nach weiteren 5 h bei dieser Temperatur lässt man an der Luft abkühlen, entfernt den zersprungenen Glasmantel des Reaktionsrohrs und granuliert den Polyamid-Kern. T_m wird mit DSC zu 216,1 °C bestimmt.

[0037] In Fig. 4 und Fig. 5 sind die Bilder der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) des Polyamid 6 mit 15 Gew.-% SiO₂ mit funktionalisierten Nanopartikeln zu sehen. Fig. 4 zeigt eine Übersichtsaufnahme, Fig. 5 die Detailvergrößerung.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Herstellen einer Dispersion von in einem aprotischen organischen Lösungsmittel dispergierten Metalloxid-Nanopartikeln, mit den Schritten:

- a. Bereitstellen eines aprotischen organischen Lösungsmittels,
- b. Hinzufügen einer für eine vorbestimmte Konzentration von Metalloxid-Nanopartikeln im Dispersionsmittel benötigten Teilmenge von pulverförmigen agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln,
- c. Behandeln des die agglomerierten Metalloxid-Nanopartikel (AM-N) enthaltenden Lösungsmittels mit Ultraschall,
gekennzeichnet durch
- d. Hinzufügen einer weiteren Teilmenge von agglomerierten Metalloxid-Nanopartikeln,
- e. Wiederholen der Schritte c und d bis die vorbestimmte Konzentration erreicht ist,
wobei das Verfahren mit nicht durch Silanisierung oberflächenbehandelten Partikeln bei einer Temperatur von 15 °C bis 40 °C durchgeführt wird, und die Partikelgröße der agglomerierten Metalloxid-Nanopartikel in der Dispersion 60–70 nm beträgt, wobei die Partikel des zugegebenen AM-N eine primäre Partikelgröße unter 12 nm aufweisen.

2. Verfahren nach Anspruch 1, gekennzeichnet durch den weiteren Schritt:
Behandeln des Lösungsmittels nach Erreichen der vorbestimmten Konzentration von Metalloxid-Nanopartikeln im Lösungsmittel mit getakteten Ultraschallgaben bis zum Erreichen eines vorbestimmten mittleren hydrodynamischen Partikeldurchmessers.

3. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Lösungsmittel eine Polarität aufweist.

4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass das Lösungsmittel ausgewählt ist aus der Gruppe bestehend aus Aceton, Nitromethan, Acetonitril, Dimethylsulfoxid (DMSO), N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP) und Tetrahydrofuran (THF).

5. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass die Agglomeratoberfläche der agglomerierten Metalloxid-Nanopartikel hydrophob ist.

6. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, **dadurch gekennzeichnet**, dass zum Behandeln mit Ultraschall einer Stabsonotrode mit einer Amplitude von wenigstens 180 µm verwendet wird.

Es folgen 4 Seiten Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

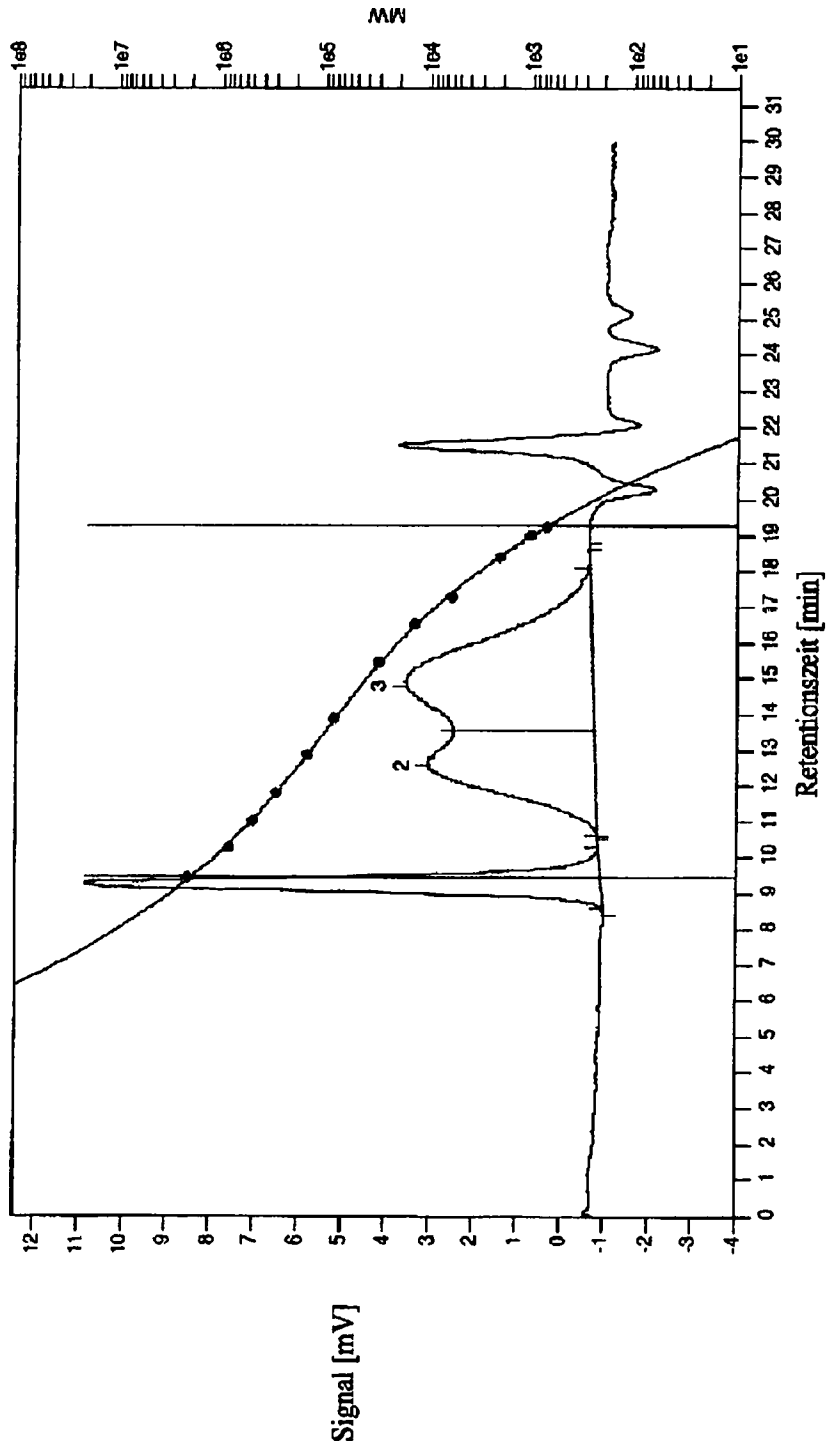


FIG. 1

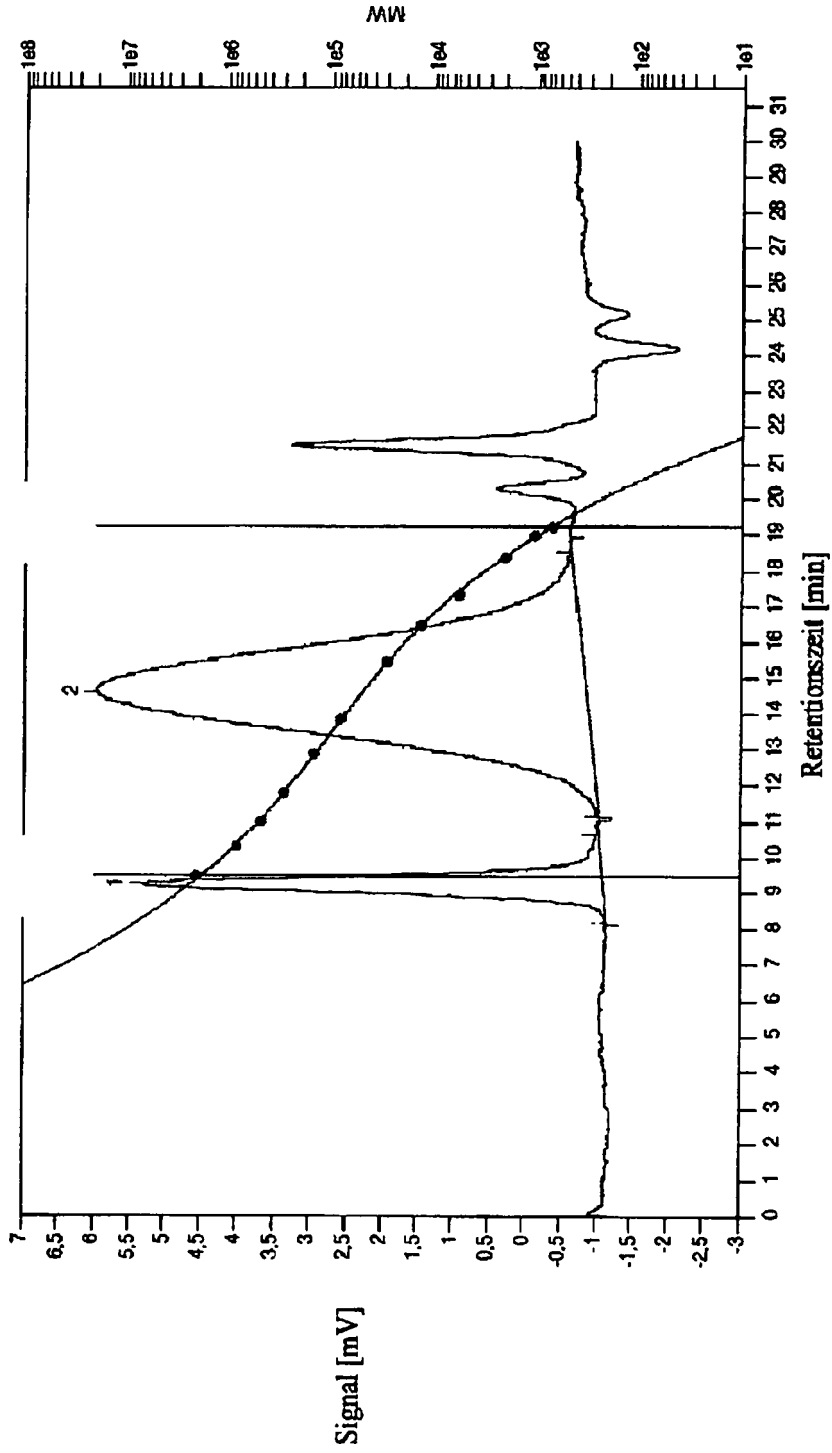


FIG. 2

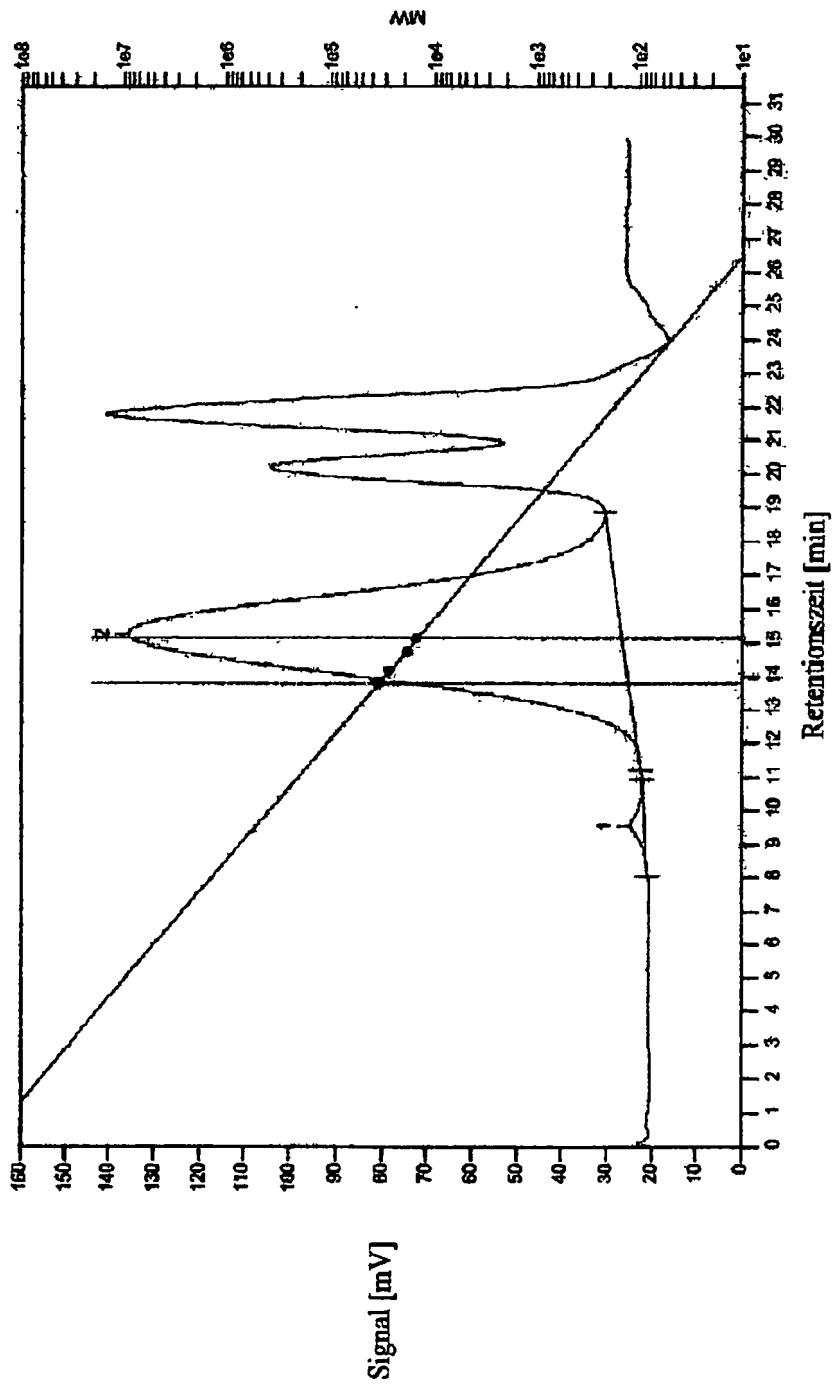


FIG. 3

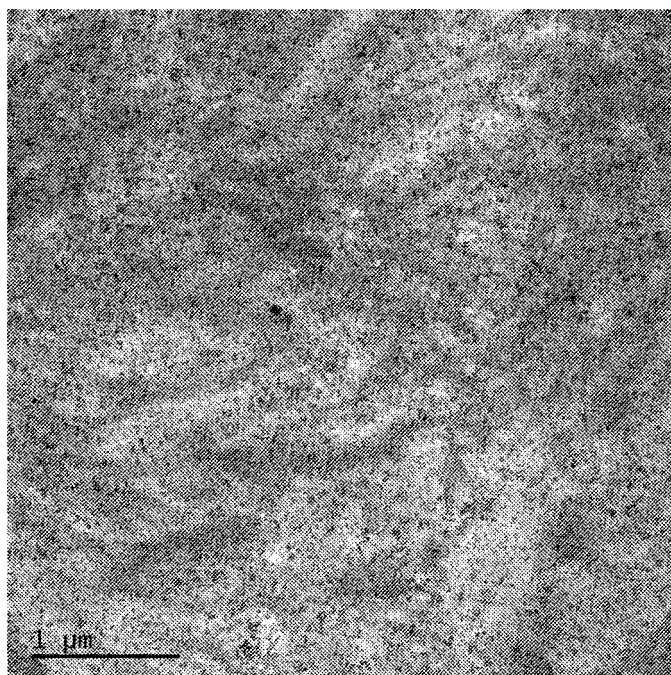


FIG. 4

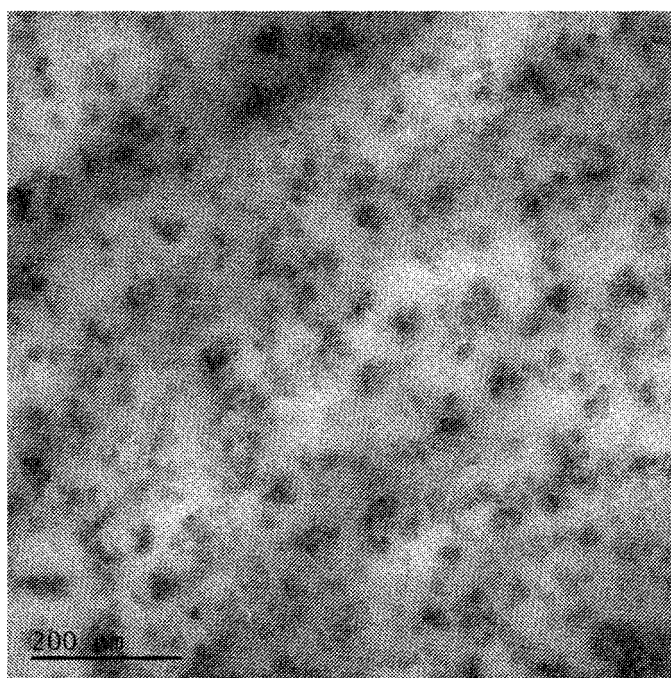


FIG. 5