

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 1 区分

【発行日】平成30年2月22日 (2018.2.22)

【公表番号】特表2017-513793(P2017-513793A)

【公表日】平成29年6月1日 (2017.6.1)

【年通号数】公開・登録公報2017-020

【出願番号】特願2016-559553(P2016-559553)

【国際特許分類】

C 0 1 B 32/205 (2017.01)

H 0 1 M 4/36 (2006.01)

H 0 1 M 4/587 (2010.01)

H 0 1 M 4/62 (2006.01)

C 0 1 B 32/05 (2017.01)

H 0 1 M 8/0202 (2016.01)

H 0 1 M 8/10 (2016.01)

【 F I 】

C 0 1 B 31/04 1 0 1 B

H 0 1 M 4/36 C

H 0 1 M 4/587

H 0 1 M 4/62 Z

C 0 1 B 31/02 1 0 1 B

H 0 1 M 8/02 B

H 0 1 M 8/02 Y

H 0 1 M 8/10

【誤訳訂正書】

【提出日】平成30年1月15日 (2018.1.15)

【誤訳訂正 1】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 3 6

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【 0 0 3 6 】

他の添加剤を分散体に加えてそれを安定化させてよく、又はスプレードライ及び粒子形成プロセスに影響を及ぼしてよい。係る添加剤としては、例えばでんぶん、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ポリアクリレート、及びポリウレタンなどのレオロジー増粘剤が挙げられ、それは追加的に分散体を安定化させ、粒子の速い沈降を抑制し、それによってスプレードライプロセスを最適化する。さらに他の可能な添加剤としては、アンモニア、マルトデキストリン、アラビア・ゴム、ゼラチン、ポリスチレンラテックス、ポリビニルピロリドン、ポリ乳酸、ステアリン酸、又はこれらの組み合わせが挙げられる。

【誤訳訂正 2】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

表面修飾炭素質粒子の製造方法であって、前記炭素質粒子がアモルファス炭素の表面層

によりコーティングされており、前記方法が、

a．炭素質粒子を両親媒性有機化合物と共に分散させることと、

b．分散体をスプレードライすることと、

c．前記粒子の表面上に両親媒性有機化合物を含むスプレードライされた粒子の炭化を起こすことと、

を含む、方法。

【請求項 2】

表面修飾される炭素質粒子が、天然又は合成グラファイト、膨張グラファイト、グラフェン、数層グラフェン、グラファイト繊維、ナノグラファイトを含むグラファイト性粒子、又はカーボンブラック、石油若しくは石炭系のコークス、ガラス状炭素、ナノチューブ、フラーレンを含む非グラファイト性炭素、又はこれらの組み合わせから選択され、所望により他の非炭素質粒子（例えば金属粒子）を含む、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

表面修飾される炭素質粒子が、3 より大きく、4 より大きく、5 より大きく、6 より大きく、7 より大きく、8 より大きく、9 より大きく、又は 10 より大きい [0 0 4] 及び [1 1 0] 反射のピーク面積の比（ピーク面積 % [0 0 4] / [1 1 0] ）により特徴づけられる、請求項 1 又は 2 に記載の方法。

【請求項 4】

炭素質粒子及び両親媒性有機化合物が、溶媒の存在下で分散される、請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 5】

溶媒が、極性溶媒である、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 6】

溶媒が、水、メタノール、エタノール、プロパノール、イソプロパノール、及びアセトンから選択され、所望により、溶媒が水である、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

両親媒性有機化合物が、コーティングされる炭素質粒子に対して 1 : 3 （質量 / 質量）以下の比で加えられる、請求項 1 ～ 6 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 8】

両親媒性有機化合物が、PEO PPO PEOブロックコポリマー、ポリグリコールエーテル、アルキル アリールポリエチレングリコールエーテル、アリール エチル フェニルポリグリコールエーテル、アリールポリグリコールエーテル、カルボン酸ポリエチレングリコールエステルノニオン性界面活性剤、アルキルポリオキシエチレンエーテル、アリールポリオキシエチレンエーテル、ノニルフェノールノボラックエトキシレート等のノボラック系樹脂、ポリスチレンメタクリレートコポリマー、ポリアクリレート、ポリアクリレートコポリマー、アルキル、フェニル、又はポリアルキルフェニルスルホン酸塩、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 1 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 9】

両親媒性有機化合物が、硫酸化リグニン、リグノスルホン酸塩、又はこれらの混合物である、請求項 8 に記載の方法。

【請求項 10】

さらに、添加剤が分散体に加えられ、所望により、前記添加剤が、でんぶん、カルボキシメチルセルロース、メチルセルロース、ポリアクリレート、ポリウレタン、フルフリルアルコール、フルフラール、ポリビニルアルコール、ホルムアルデヒドフェノール樹脂、ホルムアルデヒドテトラヒドロフラン樹脂、スクロース、グルコース、又は他の糖類、ポリエチルエーテルケトン、ポリフェニレンスルフィド、ポリビニルクロリド、ポリスチレン、ピロメリット酸、クエン酸、ポリアニリン、スチレン、タンニン酸、スチレンブチルゴム、ニトリルブチルゴム系の合成ラテックス、アンモニア、マルトデキストリン、酢酸、ギ酸、アラビア・ゴム、ゼラチン、ポリスチレンラテックス、ポリビニルピロリドン、

ポリ乳酸、リンゴ酸、ステアリン酸、又はポリスチレンアクリルゴム、及びこれらの組み合わせからなる群から選択される、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

分散工程中、カーボンブラック、コロイド状グラファイト、カーボンナノチューブ、又はケイ素、アルミニウム、スズ、銀、銅、ニッケル、アンチモン、ゲルマニウム等の少なくとも 1 種の微細な金属 / 半金属、 TiO_2 、リチウムチタネート、 SiO_x 、若しくは SnO_x 等の金属 / 半金属酸化物、カルコゲニド、又は金属合金粉末が、分散体に加えられ、所望により、前記金属 / 半金属が、ケイ素、アルミニウム、スズ、又は前記金属を含む合金から選択される、請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 12】

前記炭化が、減圧又は不活性雰囲気下、所望により窒素又はアルゴン雰囲気下における、 $600 \sim 3000$ 、又は $1000 \sim 1500$ の範囲の温度での熱分解により達成される、請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 13】

炭化工程の前に、スプレードライされた粒子が、減圧、空気、窒素、アルゴン、又は CO_2 雰囲気下、 700 未満又は 500 未満の温度にて実施される前処理に供される、請求項 1 ~ 12 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 14】

炭化された粒子が、窒素、アルゴン、窒素とアセチレン、プロパン若しくはメタンなどの炭化水素との混合物、又は空気、水蒸気、若しくは CO_2 等の酸化ガスとの混合物等のガス雰囲気中での追加の熱処理に供されて、アモルファス炭素コーティング炭素質粒子のモルフォロジー及び表面化学が調節され、所望により、前記熱処理が、 $800 \sim 1600$ の範囲の温度にて実施される、請求項 1 ~ 13 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 15】

前記コーティングされる粒子の粒子サイズ分布が、 $< 90 \mu m$ の D_{90} 、若しくは $< 25 \mu m$ の D_{90} 、及び / 又は $< 50 \mu m$ の D_{50} 、若しくは $< 20 \mu m$ の D_{50} により特徴づけられる、請求項 1 ~ 14 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 16】

炭素質粒子の BET 比表面積を減少させる方法であって、前記炭素質粒子が、請求項 1 ~ 15 のいずれか 1 項に記載の方法に供されることを特徴とする、方法。

【請求項 17】

$12 m^2 / g$ 未満、又は $6 m^2 / g$ 未満、又は $3 m^2 / g$ 未満、又は $2 m^2 / g$ 未満の BET SSA により特徴づけられる、アモルファス炭素によりコーティングされた表面修飾炭素質粒子。

【請求項 18】

コア粒子が、さらに、 0.8 未満のアスペクト比により特徴づけられる、請求項 17 に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 19】

粒子が、さらに、 $2.22 g / cm^3$ 未満、又は $2.20 g / cm^3$ 未満のキシレン密度により特徴づけられる、請求項 17 又は 18 に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 20】

アモルファス炭素によりコーティングされた粒子のコアが、 $0.337 nm$ 以下の層間距離 $c / 2$ を有するグラファイト性炭素である、請求項 17 ~ 19 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子（「表面修飾グラファイト性粒子」）。

【請求項 21】

粒子が、 3.6 未満、又は 3.0 未満、又は 2.5 未満、又は 2.0 未満の $[004]$ 及び $[110]$ 反射のピーク面積の比（ピーク面積 $\% [004] / [110]$ ）により特徴づけられる、請求項 20 に記載の表面修飾グラファイト性粒子。

【請求項 22】

さらに、少なくとも 70% 、又は少なくとも 74% の多孔性により特徴づけられる、請

求項 20 又は 21 に記載の表面修飾グラファイト性粒子。

【請求項 23】

さらに、純酸素雰囲気中で TGA により決定された少なくとも 4 %、又は 4 ~ 35 %、又は 5 ~ 25 % のパイロレート化炭素の質量損失により特徴づけられる、請求項 20 ~ 22 のいずれか 1 項に記載の表面修飾グラファイト性粒子。

【請求項 24】

さらに、15 ~ 45 μm の範囲の D_{90} 値、及び / 又は 15 ~ 25 μm の範囲の D_{50} 値、及び / 又は 5 ~ 15 μm の範囲の D_{10} 値を有する PSD により特徴づけられる、請求項 20 ~ 23 のいずれか 1 項に記載の表面修飾グラファイト性粒子。

【請求項 25】

さらに、 < 1250 の k_{AR} 値により特徴づけられ、
 $k_{AR} = Q3^{(AR=0.8)} / (2.26 - \text{キシレン密度})$
 (式中、 $Q3^{(AR=8)}$ が、0.8 以下のアスペクト比 (AR) を有する粒子の (累積量による) 割合である。)

である、請求項 20 ~ 24 のいずれか 1 項に記載の表面修飾グラファイト性粒子。

【請求項 26】

さらに、 < 400 の k_s 値により特徴づけられ、
 $k_s = Q3^{(S=0.8)} / (2.26 - \text{キシレン密度})$
 (式中、 $Q3^{(S=8)}$ が、0.8 以下の真球度を有する粒子の (累積量による) 割合である。)

である、請求項 20 ~ 25 のいずれか 1 項に記載の表面修飾グラファイト性粒子。

【請求項 27】

アモルファス炭素によりコーティングされた粒子のコアが、0.340 nm 以上のコアの層間距離 $c/2$ により特徴づけられる、カーボンブラック、石油若しくは石炭系のコークス、又はこれらの混合物により形成されている、請求項 17 ~ 19 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 28】

炭素質粒子が、 $7\text{ m}^2/\text{g}$ 未満の BET 表面積を有し、及び / 又は 10 nm 未満の結晶子サイズ L_c を有する、請求項 27 に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 29】

炭素質粒子が、約 55 % ~ 約 80 % の多孔性を有する、請求項 27 又は請求項 28 に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 30】

さらに、 < 800 の k_{AR} 値により特徴づけられ、
 $k_{AR} = Q3^{(AR=0.8)} / (2.1 - \text{キシレン密度})$
 (式中、 $Q3^{(AR=8)}$ が、0.8 以下のアスペクト比 (AR) を有する粒子の (累積量による) 割合である。)

である、請求項 27 ~ 29 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 31】

さらに、 < 70 の k_s 値により特徴づけられ、
 $k_s = Q3^{(S=0.8)} / (2.1 - \text{キシレン密度})$
 (式中、 $Q3^{(S=8)}$ が、0.8 以下の真球度を有する粒子の (累積量による) 割合である。)

である、請求項 27 ~ 30 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 32】

炭素質コアが、多数の凝集したより小さい粒子により形成されている、請求項 17 ~ 31 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 33】

さらに、カーボンブラック、コロイド状グラファイト、カーボンナノチューブ、ケイ素、アルミニウム、スズ、銀、銅、ニッケル、アンチモン、ゲルマニウム等の金属 / 半金属

、 TiO_2 、リチウムチタネート、 SiO_x 、又は SnO_x 等の金属/半金属酸化物、カルコゲニド、又は金属合金からなる群から選択される添加剤を含むことにより特徴づけられ、所望により、金属/半金属が、ケイ素、アルミニウム、若しくはスズ、又は前記金属を含む合金から選択される、請求項 17 ~ 32 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 34】

炭素質粒子が、さらに 1 種又はそれより多くの表面上の追加のコーティングを含む、請求項 17 ~ 33 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 35】

前記粒子が、本質的にグラファイト性粒子及びアモルファス炭素からなる、請求項 17 ~ 33 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 36】

粒子の表面上のアモルファス炭素が、両親媒性有機化合物の炭化により作られている、請求項 17 ~ 35 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 37】

200 mg / kg 未満、150 mg / kg 未満、30 mg / kg 未満、10 mg / kg 未満、5 mg / kg 未満、2 mg / kg 未満、1 mg / kg 未満、又は 0.5 mg / kg 未満の多環芳香族炭化水素 (PAH) 濃度を有する、請求項 17 ~ 36 のいずれか 1 項に記載の表面修飾炭素質粒子。

【請求項 38】

請求項 1 ~ 16 のいずれか 1 項に記載の方法により得ることができる、請求項 17 ~ 37 のいずれか 1 項に規定された、アモルファス炭素によりコーティングされた表面修飾炭素質粒子。

【請求項 39】

請求項 17 ~ 38 のいずれか 1 項に規定された表面修飾炭素質粒子を含む、組成物。

【請求項 40】

請求項 17 ~ 38 のいずれか 1 項に規定された 1 種又はそれより多くの表面修飾炭素質粒子と混合され、1 種又はそれより多くの追加の表面修飾炭素質粒子が、第一の表面修飾炭素質粒子と異なる、請求項 39 に記載の組成物。

【請求項 41】

他の修飾されていない又は修飾された炭素質粒子と混合された、請求項 39 又は 40 に記載の組成物。

【請求項 42】

リチウムイオンバッテリーのための負極物質を製造するための請求項 17 ~ 38 のいずれか 1 項に規定された表面修飾炭素質粒子の使用。

【請求項 43】

バッテリーの負極中の活物質として請求項 17 ~ 38 のいずれか 1 項に規定された表面修飾炭素質粒子を含む、リチウムイオンバッテリーの負極又はリチウムイオンバッテリー。

【請求項 44】

請求項 17 ~ 38 のいずれか 1 項に規定された表面修飾炭素質粒子を含む、エネルギー貯蔵デバイス。

【請求項 45】

請求項 17 ~ 38 のいずれか 1 項に規定された表面修飾炭素質粒子を含む、カーボンブラシ。

【請求項 46】

請求項 17 ~ 38 のいずれか 1 項に規定された表面修飾炭素質粒子を含む、ポリマー複合材料。

【請求項 47】

リチウムイオンバッテリーが、バッテリーの負極中の活物質として請求項 17 ~ 38 の

いずれか 1 項に規定された表面修飾炭素質粒子を含み、前記リチウムイオンバッテリーを含む、電気自動車、ハイブリッド電気自動車、又はプラグインハイブリッド電気自動車。

【請求項 48】

炭素質粒子が、グラファイト性材料を含む、請求項 47 に記載の電気自動車、ハイブリッド電気自動車、又はプラグインハイブリッド電気自動車。

【請求項 49】

炭素質粒子が、非グラファイト性材料を含む、請求項 47 に記載の電気自動車、ハイブリッド電気自動車、又はプラグインハイブリッド電気自動車。

【請求項 50】

孔形成材料として請求項 17 ~ 38 のいずれか 1 項に規定された表面修飾炭素質粒子を含む、セラミック、セラミック前駆体材料、又は環境材料。