

**(19) 대한민국특허청(KR)**
(12) 공개특허공보(A)**(11) 공개번호** 10-2024-0161953
(43) 공개일자 2024년11월13일

- | | |
|--|--|
| <p>(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
 <i>C01G 35/00</i> (2006.01) <i>H01M 10/0525</i> (2010.01)
 <i>H01M 4/02</i> (2006.01) <i>H01M 4/36</i> (2006.01)
 <i>H01M 4/505</i> (2010.01)</p> <p>(52) CPC특허분류
 <i>C01G 35/00</i> (2013.01)
 <i>H01M 10/0525</i> (2013.01)</p> <p>(21) 출원번호 10-2024-7027168
 (22) 출원일자(국제) 2022년10월25일
 심사청구일자 없음
 (85) 번역문제출일자 2024년08월13일
 (86) 국제출원번호 PCT/JP2022/039739
 (87) 국제공개번호 WO 2023/171020
 국제공개일자 2023년09월14일
 (30) 우선권주장
 JP-P-2022-037839 2022년03월11일 일본(JP)</p> | <p>(71) 출원인
 미쓰이금속광업주식회사
 일본국도쿄도시나가와구오사키1-11-1</p> <p>(72) 발명자
 아라카와 다이키
 일본 8360003 후쿠오카켄 오무타시 오아자 도오센
 2081 미쓰이금속광업주식회사 내
 세키 사토 리코
 일본 8360003 후쿠오카켄 오무타시 오아자 도오센
 2081 미쓰이금속광업주식회사 내
 하라 슈헤이
 일본 8360003 후쿠오카켄 오무타시 오아자 도오센
 2081 미쓰이금속광업주식회사 내</p> <p>(74) 대리인
 양영준, 김명곤</p> |
|--|--|

전체 청구항 수 : 총 19 항

(54) 발명의 명칭 탄탈산 화합물 분산액 및 그 제조 방법**(57) 요약**

본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 탄탈을 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 30질량% 미만 함유하는 탄탈산 화합물 분산액이며, 동적 광산란법에 의한 상기 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물 입자경(D50)이 100nm 이하이다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법은, 과산화수소를, 불화 탄탈 수용액에 첨가하여, 탄탈 화합물 수용액을 생성하는 반응 공정과, 상기 탄탈 화합물 수용액을, 알칼리성 수용액에 첨가하여, 탄탈 함유 침전물을 생성하는 역중화 공정을 갖는다.

(52) CPC특허분류

H01M 4/366 (2022.01)

H01M 4/505 (2013.01)

C01P 2004/64 (2013.01)

H01M 2004/028 (2013.01)

Y02E 60/10 (2020.08)

명세서

청구범위

청구항 1

탄탈을 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 30질량% 미만 함유하는 탄탈산 화합물 분산액이며,

동적 광산란법에 의한 상기 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물 입자경(D50)이 100nm 이하인 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 2

제1항에 있어서,

유기 질소 화합물을 함유하는 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 3

제1항에 있어서,

알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속 원소로 이루어지는 군에서 선택된 1종 이상의 원소 M을 함유하는 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 4

제3항에 있어서,

상기 원소 M이, Li인 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 5

제4항에 있어서,

상기 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 15질량% 이하인 것을 특징하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 6

제4항 또는 제5항에 있어서,

상기 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산리튬의 리튬(Li)과 탄탈(Ta)의 몰비 Li/Ta가, 0.8 이상 1.5 이하인 것을 특징하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 7

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 탄탈산 화합물 분산액이, 수분산액인 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 8

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 탄탈산 화합물 입자경(D50)이 30nm 이하인 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 9

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 탄탈산 화합물 분산액의 pH가 7 초과인 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액.

청구항 10

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 기재된 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물을 함유하는 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분말.

청구항 11

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 기재된 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물을 함유하는 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 막.

청구항 12

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 기재된 탄탈산 화합물 분산액을 함유하는 것을 특징으로 하는 코팅제.

청구항 13

제10항에 기재된 탄탈산 화합물 분말을 함유하는 것을 특징으로 하는 코팅제.

청구항 14

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 기재된 상기 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 탄탈산 화합물로 그 표면이 피복되어 있는 것을 특징으로 하는 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질.

청구항 15

제14항에 기재된 상기 정극 활물질이 피복된 정극을 갖는 것을 특징으로 하는 리튬 이온 이차 전지.

청구항 16

과산화수소를, 불화 탄탈 수용액에 첨가하여, 탄탈 화합물 수용액을 생성하는 반응 공정과,
상기 탄탈 화합물 수용액을, 알칼리성 수용액에 첨가하여, 탄탈 함유 침전물을 생성하는 역중화 공정을
갖는 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법.

청구항 17

제16항에 있어서,
상기 탄탈 함유 침전물과, 유기 질소 화합물을 혼합하는 공정을 갖는 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액
의 제조 방법.

청구항 18

제16항에 있어서,
상기 탄탈 함유 침전물과, 알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속 원소로 이루어지는 군에서 선택된 1종 이
상의 원소 M을 함유하는 원소 M의 수산화물을 혼합하는 공정을 갖는 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액
의 제조 방법.

청구항 19

제18항에 있어서,
상기 원소 M의 수산화물은, 수산화리튬인 것을 특징으로 하는 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 탄탈산 화합물 분산액 및 그 제조 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 탄탈산 화합물은, 오토일렉트로닉스, 촉매 등의 재료에 이용되고 있다. 각종 부품의 표면을 코팅제로서, 균일

한 입자로 구성되어 있고, 장기간의 보존이 가능한 탄탈산 화합물로서, 특허문헌 1에는 산화탄탈졸이 개시되어 있다. 또한, 탄탈산 화합물, 특히 탄탈산리튬은, 광학 특성, 비선형 특성, 전기 광학 특성이 우수하고, 압전 소자 등에 이용되고 있다. 예를 들어, 특허문헌 2에는, 전고체 리튬 이온 전지에 발생하는 전지 저항을 저하시키는 것이 가능한 복합 활물질 입자가 개시되어 있다. 그 복합 활물질 입자의 표면의 적어도 일부를 피복하는 리튬 이온 전도성 산화물의 하나로서, 탄탈산리튬이 니오브산리튬과 함께 예시되어 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0003] (특허문헌 0001) 일본 특허 공개 평8-143315호 공보
- (특허문헌 0002) 일본 특허 공개 제2018-125214호 공보

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0004] 그러나, 특허문헌 1에 개시된 산화탄탈졸은, 옥살산과 같은, 휘발시키기 어려운 유기 성분을 포함하고 있기 때문에, 당해 유기 성분이 균일한 제막의 형성을 방해하는 요인이 되고, 촉매의 첨가제에 사용할 때에는 촉매 작용을 저해하는 요인이 될 수 있다. 또한, 탄탈산리튬은, 니오브산리튬에 비하여, 물에의 분산성이나, 용해성이 나쁘고, 경시 변화에 의해, 침전물이 생기기 쉽고, 특허문헌 2에 개시된 니오브산리튬의 제조 방법을 사용하여, 제조한 탄탈산리튬은, 물에의 분산성이 낮고, 물에 대한 용해성이 불량하고, 또한 보존 안정성이 우수한 것은 아니었다.
- [0005] 본 발명은 상기 과제를 감안하여, 극성 용매, 특히 물에의 분산성이 높고, 물에 대한 용해성이 양호하고, 또한 보존 안정성이 우수한 탄탈산 화합물 분산액 및 그 제조 방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

- [0006] 상기 과제를 해결하기 위해 이루어진 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 탄탈을 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 30질량% 미만 함유하는 탄탈산 화합물 분산액이며, 동적 광산란법에 의한 상기 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물 입자경(D50)이 100nm 이하인 것을 특징으로 한다.
- [0007] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 탄탈을 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 30질량% 미만 함유하면, 극성 용매, 특히 물에의 분산성 및 용해성이 향상되는 점에서 바람직하다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 0.5 질량% 이상이면 보다 바람직하고, 1질량% 이상이면 더욱 바람직하다. 한편, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 25질량% 이하이면 보다 바람직하고, 20질량% 이하이면 더욱 바람직하다.
- [0008] 여기서, 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈 농도는, 당해 분산액을 필요에 따라 회염산으로 적당한 정도로 희석하고, ICP 발광 분석(에질런트·테크놀로지사제: AG-5110)을 사용하여, JIS K0116:2014에 준거하여, 산화탄탈(Ta₂O₅) 환산의 Ta 중량 분율을 측정하여 산출한다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산은, 반드시 Ta₂O₅의 상태로 존재하는 것은 아니다. 탄탈산의 함유량을, Ta₂O₅ 환산으로 나타내고 있는 것은, 탄탈 농도를 나타낼 때의 관례에 기초한 것이다.
- [0009] 여기서, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물은, 탄탈산과, 후술하는 유기 질소 화합물이나, 알칼리 금속, 또는 알칼리 토류 금속이 이온 결합된 상태의 이온으로서 당해 분산액 중에 존재하는 것으로 추측된다. 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에는, 음이온으로서 수산화물 이온은 존재하는 한편, 불화물 이온 및 염화물 이온 등의 할로겐화물 이온은 거의 존재하지 않고, 유기 질소 화합물이나, 알칼리 금속은 양이온으로서 존재한다고 생각되기 때문에, 탄탈은 TaO₃⁻와 같은 음이온이나, 복수의 탄탈 원자와 산소 원자가 결합된 폴리옥소메탈레이트(폴리산) 이온으로서 존재하고 있다고 생각된다.
- [0010] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 탄탈산 화합물 외에, 이온화된 알칼리성 수용액, 예를 들어 암모니아도 포함된다. 후술하는 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법에서 상세하게 설명하지만, 당해 제조 공

정에 있어서, 산성의 탄탈 착체 수용액을 알칼리성 수용액, 예를 들어 암모니아수에 첨가하는 역중화법에 의해, 탄탈을 함유하는 침전 슬러리인 탄탈산 함유 침전물, 예를 들어 함수 탄탈산 암모늄 케이크를 생성한 후, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액이 생성되기 때문에, 암모니아는, 암모늄 이온을 포함하고, 양이온으로서 당해 분산액 중에 존재한다고 생각된다.

[0011] 당해 분산액 중에 존재하는 암모니아 농도의 측정 방법은, 당해 분산액에 수산화나트륨을 첨가하여 암모니아를 증류 분리하고, 이온 미터에 의해 암모니아 농도를 정량하는 방법, 가스화된 시료 중의 N₂분을 열전도도계로 정량하는 방법, 켈달법, 가스 크로마토그래피(GC), 이온 크로마토그래피, 가스 크로마토그래피 질량 분석법(GC-MS) 등을 들 수 있다. 특히, 이온 미터에 의해 암모니아 농도를 정량하는 방법이 바람직하다.

[0012] 또한, 동적 광산란법에 의한 상기 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물 입자경(D50)이 100nm 이하이면, 분산성이 높고, 경시 변화가 적고 안정되며, 다른 물질과의 반응이나 복합화에 있어서의 반응성, 성막 시에 있어서의 막 균일성의 관점에서 바람직하다. 또한, 당해 탄탈산 화합물 입자경(D50)은 보다 소입경이면 바람직하고, 50nm 이하이면 보다 바람직하고, 30nm 이하이면 더욱 바람직하고, 20nm 이하이면 특히 바람직하고, 10nm 이하이면 또한 특히 바람직하고, 1nm 이하이면 특히 더 바람직하고, 0.6nm 이하이면 보다 특히 바람직하다. 이와 같이, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물 입자경(D50)이 동적 광산란법을 사용하여 측정된 결과, 탄탈산 화합물 입자경(D50)이 100nm 이하인 상태의 액을, 본 발명의 「탄탈산 화합물 분산액」이라고 한다.

[0013] 여기서, 동적 광산란법이란, 현탁 용액 등의 용액에 레이저 광 등의 광을 조사함으로써, 브라운 운동하는 입자 군에서의 광산란 강도를 측정하고, 그 강도의 시간적 변동으로부터 입자경과 분포를 구하는 방법이다. 구체적으로는, 입도 분포의 평가 방법은, 제타 전위·입경·분자량 측정 시스템(오즈카 텐시 가부시키키가이샤제: ELSZ-2000)을 사용하여, JIS Z 8828:2019 「입자경 해석-동적 광산란법」에 준거하여 실시한다. 또한, 측정 직전에 측정 대상인 용액 중의 먼지 등을 제거하기 위해, 1 μ m 구멍 직경의 필터로 당해 용액을 여과하고, 초음파 세정기(애즈원사제: VS-100III)로, 28kHz, 3분간의 초음파 처리를 실시한다. 또한, 입자경(D50)은 적산 분포 곡선의 50% 적산값을 나타내는 입자경인 메디안 직경(D50)을 말한다.

[0014] 또한, 본 발명에 있어서의 「분산액」이란, 용질이 용매 중에 단분자의 상태로 분산 또는 혼합되어 있는 것에 한정되지는 않고, 복수의 분자가 분자 간의 상호 작용에 의해 서로 끌어당긴 집합체, 예를 들어 (1) 다량체 분자, (2) 용매화 분자, (3) 분자 클러스터, (4) 콜로이드 입자 등이 용매에 분산되어 있는 것도 포함된다.

[0015] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 유기 질소 화합물을 함유하는 것을 특징으로 한다.

[0016] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산은, 유기 질소 화합물과 이온 결합된 상태의 이온으로서 당해 분산액 중에 존재하는 것으로 추측된다.

[0017] 여기서, 유기 질소 화합물로서는, 지방족 아민, 방향족 아민, 아미노 알코올, 아미노산, 폴리아민, 4급 암모늄, 구아니딘 화합물, 아졸 화합물을 들 수 있다.

[0018] 지방족 아민으로서, 예를 들어 메틸아민, 디메틸아민, 트리메틸아민, 에틸아민, 메틸에틸아민, 디에틸아민, 트리에틸아민, 메틸디에틸아민, 디메틸에틸아민, n-프로필아민, 디n-프로필아민, 트리n-프로필아민, iso-프로필아민, 디iso-프로필아민, 트리iso-프로필아민, n-부틸아민, 디n-부틸아민, 트리n-부틸아민, iso-부틸아민, 디iso-부틸아민, 트리iso-부틸아민 및 tert-부틸아민, n-펜타아민, n-헥실아민, 시클로헥실아민, 피페리딘 등을 들 수 있다.

[0019] 방향족 아민으로서, 예를 들어 아닐린, 페닐렌디아민, 디아미노톨루엔 등을 들 수 있다. 또한, 아미노 알코올로서, 예를 들어 메탄올아민, 에탄올아민, 프로판올아민, 부탄올아민, 펜탄올아민, 디메탄올아민, 디에탄올아민, 트리메탄올아민, 메틸메탄올아민, 메틸에탄올아민, 메틸프로판올아민, 메틸부탄올아민, 에틸메탄올아민, 에틸에탄올아민, 에틸프로판올아민, 디메틸메탄올아민, 디메틸에탄올아민, 디메틸프로판올아민, 메틸디메탄올아민, 메틸디에탄올아민, 디에틸메탄올아민, 트리스히드록시메틸아미노메탄, 비스(2-히드록시에틸)아미노트리소(히드록시메틸)메탄 및 아미노페놀 등을 들 수 있다. 또한, 아미노산으로서, 예를 들어 알라닌, 아르기닌, 아스파르트산, EDTA 등을 들 수 있다. 또한, 폴리아민으로서, 예를 들어 폴리아민, 폴리에테르아민 등을 들 수 있다.

[0020] 4급 암모늄으로서, 예를 들어 알킬이미다졸륨, 피리디늄, 피롤리듐, 테트라알킬암모늄 등을 들 수 있다. 여기서, 알킬이미다졸륨의 구체예로서는, 1-메틸-3-메틸이미다졸륨, 1-에틸-3-메틸이미다졸륨, 1-프로필-3-메틸이

미다졸륨, 1-부틸-3-메틸이미다졸륨, 1-헥실-3-메틸이미다졸륨, 1-메틸-2,3-디메틸이미다졸륨, 1-에틸-2,3-디메틸이미다졸륨, 1-프로필-2,3-디메틸이미다졸륨, 1-부틸-2,3-디메틸이미다졸륨 등을 들 수 있다. 또한, 피리디늄, 피롤리듐의 구체예로서는, N-부틸-피리디늄, N-에틸-3-메틸-피리디늄, N-부틸-3-메틸-피리디늄, N-헥실-4-(디메틸아미노)-피리디늄, N-메틸-1-메틸피롤리디늄, N-부틸-1-메틸피롤리디늄 등을 들 수 있다. 또한, 테트라알킬암모늄의 구체예로서는, 테트라메틸암모늄, 테트라에틸암모늄, 테트라부틸암모늄, 에틸-디메틸-프로필암모늄을 들 수 있다. 또한, 상술한 양이온과 염을 형성하는 음이온으로서, OH⁻, Cl⁻, Br⁻, I⁻, BF₄⁻, HSO₄⁻ 등을 들 수 있다.

[0021] 구아니딘 화합물로서는, 구아니딘, 디페닐구아니딘, 디톨릴구아니딘 등을 들 수 있다. 또한, 아졸 화합물로서는, 이미다졸 화합물, 트리아졸 화합물 등을 들 수 있다. 여기서, 이미다졸 화합물의 구체예로서는, 이미다졸, 2-메틸이미다졸, 2-에틸-4-메틸이미다졸 등을 들 수 있다. 또한, 트리아졸 화합물의 구체예로서는, 1,2,4-트리아졸, 1,2,4-트리아졸-3-카르복실산메틸, 1,2,3-벤조트리아졸 등을 들 수 있다.

[0022] 여기서, 유기 질소 화합물은, 지방족 아민이면, 휘발성이 높고, 저독성이기도 하기 때문에 바람직하다. 구체적으로는, 탄소수 1 이상 4 이하의 지방족 아민이면 보다 바람직하고, 탄소수 1 이상 2 이하의 지방족 아민이면 특히 바람직하다. 예를 들어, 메틸아민, 디메틸아민 등을 들 수 있다.

[0023] 또한, 유기 질소 화합물은, 4급 암모늄이면, 용해성이 높을 뿐만 아니라, 높은 결정화 억제나, 높은 졸화 억제를 갖는 점에서 바람직하다. 예를 들어, 테트라알킬암모늄염이 바람직하고, 수산화테트라알킬암모늄염이 보다 바람직하고, 수산화테트라메틸암모늄, 테트라에틸암모늄이 특히 바람직하고, 수산화테트라메틸암모늄(TMAH)이 또한 특히 바람직하다.

[0024] 또한, 유기 질소 화합물은, 지방족 아민, 방향족 아민, 아미노 알코올, 아미노산, 폴리아민, 4급 암모늄, 구아니딘 화합물, 아졸 화합물에서 선택된 1종이 아니라, 2종 이상을 혼합한 것이어도 된다. 예를 들어, 지방족 아민과 4급 암모늄의 2종을 혼합한 것이면, 독성이 높아지지 않도록 첨가량을 억제하면서, 용해도를 높일 수 있다는 점에서 바람직하다.

[0025] 구체적으로는, 메틸아민 및 수산화테트라메틸암모늄(TMAH), 디메틸아민 및 수산화테트라메틸암모늄(TMAH), 메틸아민 및 디메틸아민과 같이 2종의 유기 질소 화합물을 혼합한 것이나, 메틸아민, 디메틸아민 및 수산화테트라메틸암모늄(TMAH)과 같이 3종의 유기 질소 화합물을 혼합한 것을 들 수 있다.

[0026] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중에 존재하는 유기 질소 화합물 농도의 측정 방법은, 가스 크로마토그래피(GC), 액체 크로마토그래피(LC), 질량 분석(MS), 가스 크로마토그래피·질량 분석(GC-MS), 액체 크로마토그래피·질량 분석(LC-MS) 등을 들 수 있다. 휘발성이 낮은 유기 질소 화합물을 포함하는 경우, 액체 크로마토그래피(LC), 액체 크로마토그래피·질량 분석(LC-MS)에 의한 유기 질소 화합물 농도의 측정이 바람직하다.

[0027] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속 원소로 이루어지는 군에서 선택된 1종 이상의 원소 M을 함유하는 것을 특징으로 한다. 또한, 상기 원소 M이, Li이면 바람직하다.

[0028] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산은, 알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속 원소로 이루어지는 군에서 선택된 1종 이상의 원소 M의 이온과 이온 결합된 상태의 이온으로서 당해 분산액 중에 존재하는 것으로 추측된다. 또한, 상기 원소 M이, Li이면 바람직하다. 또한, 원소 M은, Li의 1종의 알칼리 금속 원소에만 한정되는 것은 아니며, Li와 Na, 혹은 K의 2종의 알칼리 금속 원소나, Li, Na 및 K의 3종의 알칼리 금속 원소이면 적합하다. 또한, 원소 M은, Na, 혹은 K의 1종의 알칼리 금속 원소, 또는 Na와 K의 2종의 알칼리 금속 원소여도 된다.

[0029] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 상기 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 15질량% 이하인 것을 특징으로 한다.

[0030] 상기 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 농도가, Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 15질량% 이하이면, 탄탈산리튬 분산액의 실용성 및 안정성을 양립시키는 점에서 바람직하고, 또한 Ta₂O₅ 환산으로 1질량% 이상 15질량% 이하이면 보다 바람직하고, Ta₂O₅ 환산으로 3질량% 이상 10질량% 이하이면 더욱 바람직하고, Ta₂O₅ 환산으로 5질량% 이상 10질량% 이하이면 특히 바람직하다.

[0031] 여기서, 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 농도는, 당해 분산액을 필요에 따라 회염산으로 적당한 정도로 희석

하고, ICP 발광 분석(애질런트·테크놀로지사제: AG-5110)을 사용하여, JIS K0116:2014에 준거하여, Ta₂O₅ 환산의 Ta 중량 분율을 측정하여 산출한다. 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 농도를 Ta₂O₅ 환산으로 나타냄으로써, 탄탈의 복수의 산화물 상태를 종합하여 구할 수 있다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산이, 알칼리 금속, 또는 알칼리 토류 금속과 이온 결합된 것, 예를 들어 리튬 이온과 이온 결합된, 탄탈산리튬염일 경우, 리튬 농도를 Li 환산의 Li 중량 분율을 측정하여 산출해도 된다. 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 농도와 리튬 농도를 특정함으로써, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 탄탈산리튬의 리튬(Li)과 탄탈(Ta)의 몰비 Li/Ta를 특정할 수 있다.

[0032] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 농도를, Ta 환산으로 나타낼 수도 있다. 상술한 탄탈산 농도를 Ta 환산으로 나타내면, 이하와 같다. 당해 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 농도가, Ta 환산으로 0.08 질량% 이상 12.3질량% 이하이면, 탄탈산리튬 분산액의 실용성 및 안정성을 양립시키는 점에서 바람직하고, 또한 Ta 환산으로 0.8질량% 이상 12.3질량% 이하이면 보다 바람직하고, Ta 환산으로 2.4질량% 이상 8.2질량% 이하이면 더욱 바람직하고, Ta 환산으로 4.1질량% 이상 8.2질량% 이하이면 특히 바람직하다.

[0033] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 상기 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 탄탈산리튬의 리튬(Li)과 탄탈(Ta)의 몰비 Li/Ta가 0.8 이상 1.5 이하이면 바람직하다.

[0034] 상기 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 탄탈산리튬의 리튬(Li)과 탄탈(Ta)의 몰비 Li/Ta가 0.8 이상 1.5 이하이면, 물에의 분산성 및 용해성이 향상되는 점에서 바람직하고, 0.8 이상 1.3 이하이면 보다 바람직하고, 0.9 이상 1.2 이하이면 더욱 바람직하고, 0.9 이상 1.1 이하이면 특히 바람직하다.

[0035] 또한, 탄탈산리튬을 포함하는 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 암모니아 농도는, 임의의 농도이면 된다. 예를 들어, 당해 암모니아 농도는, 0질량% 초과 10질량% 이하이면 되고, 0.001질량% 이상 10질량% 이하이면 되고, 0.003질량% 이상 5질량% 이하이면 된다.

[0036] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 유기산이 포함되지 않으면 바람직하다.

[0037] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 유기산을 포함하지 않음으로써, 당해 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 폴리산 이온이 안정된다.

[0038] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액이, 수분산액인 것을 특징으로 한다.

[0039] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물은, 물에의 분산성이 높고, 물에 대한 용해성이 양호하기 때문에, 용매로서 순수를 사용할 수 있다. 용매로서는, 유기 용매를 사용해도 된다. 유기 용매로서는, 알코올 용매, 케톤 용매, 에테르 용매, 에스테르 용매, 방향족 탄화수소 용매, 지방족 탄화수소류 용매 등을 들 수 있고, 이들 유기 용매와 순수를 혼합한 용매여도 된다. 또한, 알코올 용매로서는, 탄소수 5 이하의 알코올(메탄올, 에탄올, n-프로판올, 이소프로필알코올, 부탄올, 에틸렌글리콜, 프로필렌글리콜, 글리세린)이나, 아세톤 등을 들 수 있다.

[0040] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 상기 탄탈산 화합물 분산액의 pH가 7 초과인 것을 특징으로 한다.

[0041] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 pH가 7 초과이면, 당해 분산액 중에 포함되는 폴리산 이온이 안정되는 점에서 바람직하다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 pH가 8 이상이면 보다 바람직하고, 9 이상이면 더욱 바람직하고, 10 이상이면 특히 바람직하고, 11 이상이면 또한 특히 바람직하고, 12 이상이어도 된다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중에 유기산이 포함되면 pH를 저하시키는 점에 있어서도, 유기산이 포함되지 않는 것이 바람직하다.

[0042] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중, 유기 질소 화합물을 함유하는 탄탈산 화합물 분산액의 pH는, 10.0 내지 14.1이면 적합하다. 한편, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중, 알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속 원소로 이루어지는 군에서 선택된 1종 이상의 원소 M을 함유하는 탄탈산 화합물 분산액의 pH는, 11 내지 13이면 적합하다.

[0043] 여기서, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 pH의 측정은, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에 pH 미터(HORIBA제: 유리 전극식 수소 이온 농도 지시기 D-51)의 전극(HORIBA제: 스탠다드 ToupH 전극 9615S-10D)을 침지시키고, 액온이 25℃로 안정된 것을 확인한 후, 실시한다.

[0044] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 탄탈산 화합물을 구성하지 않는 원소, 또는 그 화합물을 첨가물로서 함유해도 된다. 당해 첨가물로서, Li, Na, Mg, Al, Si, K, Ca,

Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Sr, Zr, Nb, Mo, Sn, Ba, La, W 등의 원소, 또는 화합물을 들 수 있다. 여기서, 화합물이란, 예를 들어 산화물, 금속산 알칼리 금속염, 금속산 알칼리 토류 금속염, 염화물, 금속산 알콕시드, 폴리옥소메탈레이트 등을 들 수 있다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에서의 첨가물의 함유량은, 첨가물인 각 원소의 총 함유 mol수를 X라 했을 때, 탄탈(Ta)에 대한 첨가물인 각 원소의 총 함유 mol수(X)의 몰비 X/Ta는, 0.001 내지 75여도 되고, 0.002 내지 50이어도 되고, 0.01 내지 40이어도 되고, 0.2 내지 30이어도 되고, 0.5 내지 25여도 되고, 0.8 내지 1.5여도 되고, 0.8 내지 1.3이어도 되고, 0.9 내지 1.2여도 되고, 0.9 내지 1.1이어도 된다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 균일한 분산액이므로, 이들 화합물이 현탁 상태여도, 균일성의 향상, 반응성(반응률)의 향상이 기대되기 때문이다. 또한, 이들 화합물이 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에 용해되어, 균일한 분산액이 되면, 복합화 원소가 가장 반응성이 양호한 상태로 될 수 있다.

[0045] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 그 작용 효과를 저해하지 않는 범위에서, 탄탈 내지 탄탈산에서 유래하는 성분, 암모니아, 유기 질소 화합물 및 원소 M에서 유래하는 성분 이외의 성분(「다른 성분」이라고 함)을 함유해도 된다. 다른 성분으로서는, 예를 들어, Li, Na, Mg, Al, Si, K, Ca, Ti, V, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Sr, Zr, Nb, Mo, Sn, Ba, La, W 등을 들 수 있다. 단, 이들에 한정되는 것은 아니다. 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액을 100질량%라 했을 때, 다른 성분의 함유량은, 5질량% 이하인 것이 바람직하고, 4질량% 이하인 것이 보다 바람직하고, 3질량% 이하이면 더욱 바람직하다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 의도한 것은 아니며, 불가피 불순물을 포함하는 것으로 상정된다. 불가피 불순물의 함유량은 0.01질량% 이하인 것이 바람직하다.

[0046] 본 발명의 탄탈산 화합물 분말은, 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물을 함유하는 것을 특징으로 한다.

[0047] 본 발명의 탄탈산 화합물 분말은, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액을 건조, 예를 들어 진공 건조 등에 의해 얻어지는 건조 분말과, 얻어진 건조 분말을 소성함으로써 얻어지는 소성 분말을 포함한다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분말은, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액을 진공 건조나, 소성함으로써 발생하는, 결정 구조 등의 물성이 다른 탄탈산 화합물 분말도 포함하고, 아몰퍼스 구조여도 되고, 단결정 구조여도 되고, 다결정 구조여도 된다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분말의 제조 방법은, 후술한다.

[0048] 본 발명의 탄탈산 화합물 막은, 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물을 함유하는 것을 특징으로 한다.

[0049] 본 발명의 탄탈산 화합물 막은, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액을 기재의 표면에 도포한 후, 건조, 예를 들어 진공 건조 등에 의해 얻어지는 건조막과, 얻어진 건조막을 소성함으로써 얻어지는 소성막을 포함한다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 막은, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액을 진공 건조나, 소성함으로써 발생하는, 결정 구조 등의 물성이 다른 탄탈산 화합물 막도 포함하고, 아몰퍼스 구조여도 되고, 단결정 구조여도 되고, 다결정 구조여도 된다. 본 발명의 탄탈산 화합물 막의 원료인 탄탈 화합물은 내약품성이 높기 때문에, 본 발명의 탄탈산 화합물 막에 의해 기재의 표면이 피복됨으로써, 기재의 고온 특성(예를 들어 기재의 열에 의한 열화로부터의 보호 등)·내약품성을 향상시킬 수 있다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 막의 제조 방법은, 후술한다.

[0050] 본 발명의 코팅제는, 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액, 또는 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분말 중 적어도 1종을 함유하는 것을 특징으로 한다.

[0051] 본 발명의 코팅제는, 물에의 분산성이 높고, 물에 대한 용해성이 양호하고, 또한 보존 안정성이 우수한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액, 또는 본 발명의 탄탈산 화합물 분말 중 적어도 1종을 함유하고 있고, 예를 들어 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질의 표면에 도포함으로써, 균일한 도막을 형성하는 것이 가능하다.

[0052] 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 리튬 이온 이차 전지용 정극재, 혹은 정극의 피복용으로 할 수 있다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 전고체 리튬 이온 전지용 정극재, 혹은 정극의 피복용으로 할 수 있다.

[0053] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 실온(25℃)으로 설정한 항온기 내에서 1개월 정치한 후의 당해 분산액의 상태를 목시 관찰하는 경시 안정성 시험, 및 동적 광산란법에 의해 당해 분산액 중의 탄탈산 화합물 입자의 경시 입자경(D50)을 측정된 결과에 더하여, 리튬 이온 이차 전지용 정극의 집전판의 대체품으로 한 유리 기판 상에 도포하고, 그 도막의 상태를 광학 현미경으로 관찰하는 성막성 시험의 결과로부터, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 리튬 이온 이차 전지용 정극재, 혹은 정극의 피복용으로서 적합하다.

[0054] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질의 표면을 피복하는 것으로서 적

합하다. 본 발명의 탄탈산 화합물이 피복된 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질을 정극의 표면에 피복시킴으로써, 리튬 이차 전지로서의 성능 향상을 도모할 수 있다.

- [0055] 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법에 대하여, 이하 설명한다.
- [0056] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법은, 과산화수소를, 불화 탄탈 수용액에 첨가하여, 탄탈 화합물 수용액을 생성하는 반응 공정과, 상기 탄탈 화합물 수용액을, 알칼리성 수용액에 첨가하여, 탄탈 함유 침전물을 생성하는 역중화 공정을 갖는 것을 특징으로 한다.
- [0057] 우선, 불화 탄탈 수용액은, 탄탈, 탄탈 산화물 또는 수산화탄탈을, 불화수소산 수용액 등의 불산(HF)과 반응시켜 불화 탄탈(H_2TaF_7)로 하고, 이것을 물에 용해하여 제작할 수 있다.
- [0058] 여기서, 불화물 이온을 함유하는 산성 탄탈 용액, 예를 들어 불화 탄탈 수용액은, 물(예를 들어 순수)을 첨가하여 탄탈을 Ta_2O_5 환산으로 1 내지 100g/L 함유하도록 조정하면 바람직하다. 이때, 탄탈 농도가 Ta_2O_5 환산으로 1g/L 이상이면, 물에 녹기 쉬운 탄탈산 화합물 수화물이 되기 때문에 바람직하고, 생산성을 고려한 경우, 10g/L 이상이 보다 바람직하고, 20g/L 이상이면 더욱 바람직하다. 한편, 탄탈 농도가 Ta_2O_5 환산으로 100g/L 이하이면, 물에 녹기 쉬운 탄탈산 화합물 수화물이 되기 때문에 바람직하고, 보다 확실하게 물에 녹기 쉬운 탄탈산 화합물 수화물을 합성하기 위해서는, 90g/L 이하이면 보다 바람직하고, 80g/L 이하이면 더욱 바람직하고, 70g/L 이하이면 특히 바람직하다. 또한, 불화 탄탈 수용액의 pH는, 탄탈 내지 탄탈 산화물을 완전 용해시키는 관점에서, 2 이하이면 바람직하고, 1 이하이면 보다 바람직하다.
- [0059] 다음으로, 과산화수소를, 불화 탄탈 수용액에 첨가하여, 탄탈 화합물 수용액을 생성하는 반응 공정에서는, 과산화수소를 불화 탄탈 수용액에 첨가하여, 혼합함으로써, 탄탈 화합물 수용액이 얻어진다. 또한, 얻어진 탄탈 화합물 수용액의 적어도 일부는, 펠록소 착체를 형성하고 있다고 추측된다.
- [0060] 여기서, 불화 탄탈 수용액에 첨가되는 과산화수소의 과산화수소 농도는, 0.5질량% 내지 35질량%이면 바람직하다. 또한, 과산화수소는, 과산화수소와 탄탈의 몰비 H_2O_2/Ta 가 0.6 이상 1.5 이하가 되도록 첨가하면 바람직하고, 과산화수소가 혼합 중에 분해될 가능성이 있기 때문에, 0.7 이상 1.2 이하이면 보다 바람직하다.
- [0061] 얻어진 탄탈 화합물 수용액을, 알칼리성 수용액에 첨가하여, 탄탈산 함유 침전물을 생성하는 역중화 공정에서는, 탄탈 화합물 수용액을, 알칼리성 수용액, 예를 들어 암모니아수에 첨가, 즉 역중화법에 의해, 탄탈을 함유하는 침전 슬러리가 얻어진다. 그리고, 얻어진 탄탈을 함유하는 침전 슬러리에서 불화물 이온을 제거함으로써, 불화물 이온이 제거된 탄탈 함유 침전물이 얻어진다.
- [0062] 역중화에 사용하는 암모니아수의 암모니아 농도는 10질량% 내지 30질량%이면 바람직하다. 당해 암모니아 농도가 10질량%이면, 탄탈이 녹지 않고 남기 어려워져, 탄탈 내지 탄탈산을 물에 완전히 용해시킬 수 있다. 한편, 당해 암모니아 농도가 30질량% 이하이면, 암모니아의 포화 수용액 부근이기 때문에 바람직하다.
- [0063] 이러한 관점에서, 암모니아수의 암모니아 농도는 10질량% 이상이면 바람직하고, 15질량% 이상이면 보다 바람직하고, 20질량% 이상이면 더욱 바람직하고, 25질량% 이상이면 특히 바람직하다. 한편, 당해 암모니아 농도는 30질량% 이하이면 바람직하고, 29질량% 이하이면 보다 바람직하고, 28질량% 이하이면 더욱 바람직하다.
- [0064] 역중화 공정 시, 암모니아수에 첨가하는 불화 탄탈 수용액의 첨가량은, NH_3/Ta 의 몰비가 95 이상 500 이하로 하는 것이 바람직하고, 100 이상 450 이하로 하는 것이 보다 바람직하고, 110 이상 400 이하로 하는 것이 더욱 바람직하다. 또한, 암모니아수에 첨가하는 불화 탄탈 수용액의 첨가량은, 아민이나 연한 암모니아수에 녹는 탄탈산 화합물이 생성되는 관점에서, NH_3/HF 의 몰비가 3.0 이상으로 하는 것이 바람직하고, 4.0 이상으로 하면 보다 바람직하고, 5.0 이상으로 하면 더욱 바람직하다. 한편, 비용 저감의 관점에서, NH_3/HF 의 몰비가 100 이하로 하는 것이 바람직하고, 50 이하로 하면 보다 바람직하고, 40 이하로 하면 더욱 바람직하다.
- [0065] 역중화 공정에 있어서, 불화 탄탈 수용액의 암모니아수에의 첨가에 걸리는 시간은, 10분 이내이면 바람직하고, 8분 이내이면 보다 바람직하고, 5분 이내이면 더욱 바람직하다. 즉, 시간을 들여 서서히 불화 탄탈 수용액을 첨가하는 것이 아니라, 예를 들어 단숨에 투입하는 등, 가능한 한 짧은 시간에 암모니아수에 투입하고, 중화 반응시키면 적합하다. 또한, 역중화 공정에서는, 알칼리성의 암모니아수에, 산성의 불화 탄탈 수용액을 첨가하기 때문에, 높은 pH를 유지한 채 중화 반응시킬 수 있다. 또한, 불화 탄탈 수용액 및 암모니아수는, 상온인 채로 사용할 수 있다.

- [0066] 그리고, 역중화 공정에서는, 역중화법에 의해 얻어진 탄탈을 함유하는 침전 슬러리에서 불화물 이온을 제거함으로써, 불화물 이온이 제거된 탄탈 함유 침전물을 얻을 수 있다. 역중화법에 의해 얻어진 탄탈을 함유하는 침전 슬러리에는, 불순물로서, 불화 암모늄 등의 불소 화합물이 존재하기 때문에, 이들을 제거하는 것이 바람직하다.
- [0067] 불소 화합물의 제거 방법은 임의이지만, 예를 들어 암모니아수나 순수를 사용한 역삼투 여과, 한외 여과, 정밀 여과 등의 막을 사용한 여과에 의한 방법이나, 원심 분리, 그 외의 공지된 방법을 채용할 수 있다. 또한, 탄탈을 함유하는 침전 슬러리에서 불화물 이온을 제거할 때, 온도 조절은 특별히 필요없고, 상온에서 실시하는 것이 가능하다.
- [0068] 구체적으로는, 역중화법에 의해 얻어진 탄탈을 함유하는 침전 슬러리를, 원심 분리를 사용하여 디켄테이션하고, 유리된 불화물 이온량이 100mg/L 이하로 될 때까지 세정을 반복함으로써, 불화물 이온이 제거된 탄탈 함유 침전물이 얻어진다. 또한, 당해 세정을 반복함으로써, 반응 공정에서, 첨가된 과산화수소도 제거된다.
- [0069] 불화물 이온의 제거에 사용되는 세정액은 암모니아수이면 적합하다. 구체적으로는, 1질량% 이상 35질량% 이하의 암모니아수가 바람직하다. 이러한 암모니아수이면, 암모니아가 불화물 이온에 대하여 적절하고 불필요한 비용의 증가를 피할 수 있다.
- [0070] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법은, 상술한 반응 공정 및 역중화 공정을 거쳐, 생성된 탄탈 함유 침전물과, 유기 질소 화합물을 혼합하는 공정을 갖는다.
- [0071] 상술한 반응 공정 및 역중화 공정을 거쳐, 생성된 불화물 이온이 제거된 탄탈 함유 침전물을 순수 등으로 희석함으로써, 불화물 이온이 제거된, 탄탈 함유 침전 슬러리가 얻어진다. 또한, 탄탈 함유 침전 슬러리의 탄탈 농도는, 탄탈 함유 침전 슬러리의 일부를 채취하고, 110℃에서 24시간 건조시킨 후, 1,000℃에서 4시간 소성하여, Ta₂O₅를 생성한다. 이와 같이 생성한 Ta₂O₅의 중량을 측정하고, 그 중량으로부터 탄탈 함유 침전 슬러리의 탄탈 농도를 산출할 수 있다.
- [0072] 그리고, 불화물 이온이 제거된, 탄탈 함유 침전 슬러리와, 유기 질소 화합물과, 순수를 혼합한 혼합물을 교반하면서 5℃ 내지 90℃, 0.1시간 내지 48시간 유지함으로써, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액이 얻어진다.
- [0073] 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물은, 상술한 바와 같이 지방족 아민, 방향족 아민, 아미노 알코올, 아미노산, 폴리아민, 4급 암모늄, 구아니딘 화합물, 아졸 화합물이면 바람직하고, 특히 지방족 아민 및, 또는 4급 암모늄 화합물이면 보다 바람직하다.
- [0074] 지방족 아민은, 용해성의 관점에서, 탄탈 함유 침전 슬러리 중의 지방족 아민 농도가 40질량% 이하가 되도록 혼합하는 것이 바람직하고, 20질량% 이하이면 보다 바람직하다. 또한, 마찬가지로의 관점에서, 탄탈 함유 침전 슬러리 중의 지방족 아민 농도가 0.1질량% 이상이 되도록 혼합하는 것이 바람직하고, 1질량% 이상이 되도록 혼합하는 것이 보다 바람직하고, 또한 5질량% 이상이어도 되고, 10질량% 이상이어도 된다. 또한, 지방족 아민은, 메틸아민, 또는 디메틸아민이면 보다 바람직하다.
- [0075] 또한, 4급 암모늄 화합물은, 용해성의 관점에서, 탄탈 함유 침전 슬러리 중의 4급 암모늄 화합물 농도가 40질량% 이하가 되도록 혼합하는 것이 바람직하고, 20질량% 이하이면 보다 바람직하다. 또한, 마찬가지로의 관점에서, 탄탈 함유 침전 슬러리 중의 4급 암모늄 화합물 농도가 0.1질량% 이상이 되도록 혼합하는 것이 바람직하고, 1질량% 이상이 되도록 혼합하는 것이 보다 바람직하고, 또한 5질량% 이상이어도 되고, 10질량% 이상이어도 된다. 또한, 4급 암모늄 화합물은, 수산화테트라메틸암모늄(TMAH)이나 수산화테트라에틸암모늄(TEAH)이면 보다 바람직하다.
- [0076] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법은, 상술한 반응 공정 및 역중화 공정을 거쳐, 생성된 탄탈산 함유 침전물과, 알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속 원소로 이루어지는 군에서 선택된 1종 이상의 원소 M을 함유하는 원소 M의 수산화물을 혼합하는 공정을 갖는다. 여기서, 원소 M의 수산화물은, 수산화리튬이면 바람직하다.
- [0077] 상술한 반응 공정 및 역중화 공정을 거쳐, 생성된 불화물 이온이 제거된 탄탈 함유 침전물을 순수 등으로 희석함으로써, 불화물 이온이 제거된, 탄탈 함유 침전 슬러리가 얻어진다. 그리고, 불화물 이온이 제거된, 탄탈 함유 침전 슬러리와, 원소 M의 수산화물, 예를 들어 수산화리튬 일수화물과, 순수를 혼합한 혼합물을 교반하면서 5℃ 내지 100℃, 0.1시간 내지 72시간 유지함으로써, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액이 얻어진다. 또한, 얻어진 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 암모니아 성분을 제거하기 위해, 이하의 온도 조절 공정을 행해도 된다. 온도 조절 공정에서는, 예를 들어 60℃ 내지 90℃에서 1시간 내지 100시간 가열 교반한 후, 실온까지

생각한다. 그 후, 증발한 용매(순수 등)를 보급하기 위해, 용매(순수 등)를 첨가한다. 당해 용매의 첨가량은, 암모니아 성분을 제거한 후의 탄탈산 화합물 분산액의 탄탈산 농도가, 암모니아 성분을 제거하기 전의 탄탈산 화합물 분산액의 탄탈산 농도와 일치하도록 조절한다.

[0078] 구체적으로는, 최종적인 혼합물의 탄탈산 농도가 탄탈을 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 15질량% 이하, 또한 리튬과 탄탈의 몰비 Li/Ta가 0.8 이상 1.5 이하가 되도록, 얻어진 탄탈 함유 침전 슬러리와, 수산화리튬 일수화물과, 순수와 혼합하고, 교반함으로써, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액, 즉 탄탈산리튬 분산액이 얻어진다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 원소 M이 리튬 이외의 다른 알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속 원소에서 선택된 1종의 원소 M인 경우에도, 원소 M과 탄탈의 몰비 M/Ta는, 0.8 이상 1.5 이하이면 바람직하고, 0.8 이상 1.3 이하이면 보다 바람직하고, 0.9 이상 1.2 이하이면 더욱 바람직하고, 0.9 이상 1.1 이하이면 특히 바람직하다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 원소 M이 복수 원소인 경우에도, 원소 M과 탄탈의 몰비 M/Ta는, 0.8 이상 1.5 이하이면 바람직하고, 0.8 이상 1.3 이하이면 보다 바람직하고, 0.9 이상 1.2 이하이면 더욱 바람직하고, 0.9 이상 1.1 이하이면 특히 바람직하다. 구체적으로는, 원소 M이, 리튬과 다른 알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속 원소의 복수 원소인 경우나, 리튬 이외의 알칼리 금속 원소, 또는 알칼리 토류 금속에서 선택된 복수 원소인 경우를 포함한다.

[0079] 다음으로, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물을 함유하는 탄탈산 화합물 분말의 제조 방법에 대하여, 이하 설명한다.

[0080] 탄탈산 화합물 분말 중, 탄탈산 화합물의 건조 분말 제조 방법은, 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법에 의해 얻어진 탄탈산 화합물 분산액을 정치로 내에 적재하고, 가열 온도 약 60℃ 내지 200℃에서 1시간 내지 72시간에 걸쳐, 건조, 예를 들어 진공 건조 등을 함으로써, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 수분이 증발하여, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액에 포함되는 탄탈산 화합물의 결정 입자를 함유하는 탄탈산 화합물의 건조 분말이 얻어진다.

[0081] 한편, 탄탈산 화합물의 소성 분말의 제조 방법은, 상술한 바와 같이 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액을 진공 건조하여, 얻어진 탄탈산 화합물의 건조 분말을 정치로 내에 적재하고, 대기하에서, 소성 온도가 300℃ 이상 1,200℃ 이하에서, 소성 시간이 1시간 이상 72시간 이하로 소성함으로써, 탄탈산 화합물의 소성 분말이 얻어진다.

[0082] 또한, 상술한 탄탈산 화합물의 건조 분말 및 소성 분말을 분쇄한 것을 탄탈산 화합물 분말로서 사용해도 된다. 또한, 분쇄되는지 여부에 관계없이, 상술한 탄탈산 화합물의 건조 분말 및 소성 분말을 체 등에 의해 분급하여 얻어진 체 아래(미립측)를 탄탈산 화합물 분말로서 사용해도 된다. 체 위(조립측)는 다시 분쇄하고, 분급하여 사용해도 된다. 또한, 나일론 또는 불소 수지에 의해 코팅한 철구 등이 분쇄 미디어로서 투입된 진동체를 사용하여 분쇄와 분급을 겸하는 것도 가능하다. 이와 같이 분급과 분쇄를 겸함으로써, 너무 큰 탄탈산 화합물 분말이 존재해도 제거가 가능하다. 구체적으로는, 체를 사용하여 분급하는 경우, 눈 크기가 150 μ m 내지 1,000 μ m인 것을 사용하면 바람직하다. 150 μ m 내지 1,000 μ m이면, 체 위의 비율이 너무 많아지는 일이 없고 재분쇄를 반복하는 일이 없고, 또한 체 아래에 재분쇄가 필요한 탄탈산 화합물 분말이 분급되는 일이 없다.

[0083] 이렇게 하여 얻어진 탄탈산 화합물 분말을, 분산매로서 물이나, 유기 용매와 혼합하고, 비즈 등의 미디어를 사용하여 습식 분쇄함으로써, 탄탈산 화합물 분말 분산액을 얻을 수 있다. 여기서, 분산매로서 사용되는 유기 용매는, 예를 들어 알코올류, 에스테르류, 케톤류, 방향족 탄화수소류, 지방족 탄화수소류, 에테르류, 및 그것들의 혼합 용매를 들 수 있다. 또한, 탄탈산 화합물 분말 분산액을 사용한, 탄탈산 화합물 막의 성막성을 향상시키기 위해, 수지 성분 등의 바인더를 첨가해도 된다. 바인더로서 사용되는 수지 성분은, 예를 들어 아크릴 수지, 폴리우레탄, 에폭시 수지, 폴리스티렌, 폴리카보네이트, 글리콜계 수지, 셀룰로오스계 수지, 및 그것들의 혼합 수지, 공중합 수지를 들 수 있다.

[0084] 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물을 함유하는 탄탈산 화합물 막의 제조 방법에 대하여, 이하 설명한다.

[0085] 탄탈산 화합물 막 중, 탄탈산 화합물 건조막의 제조 방법은, 탄탈산 화합물 분산액을, 기재의 표면에 도포하는 도포 공정과, 상기 기재의 표면에 도포된 상기 탄탈산 화합물 분산액을 건조시켜, 건조막을 얻는 막 건조 공정을 갖는다.

[0086] 구체적으로는, 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액의 제조 방법에 의해 얻어진 탄탈산 화합물 분산액을, 필요에 따라, 예를 들어 1 μ m 구멍 직경의 필터로 여과하면서 시린지를 사용하여 기재의 표면 상에 적하하고, 스핀

코팅(1,500rpm, 30초)에 의해, 도포한다. 다음으로, 110℃에서 30분간 건조시킴으로써, 기재의 표면 상에 탄탈산 화합물 건조막을 형성시킨다.

- [0087] 탄탈산 화합물 막 중, 탄탈산 화합물 소성막의 제조 방법은, 탄탈산 화합물 분산액을, 기재의 표면에 도포하는 도포 공정과, 상기 기재의 표면에 도포된 상기 탄탈산 화합물 분산액을 대기하, 또는 진공하에서 건조시켜, 건조막을 얻는 막 건조 공정과, 당해 건조막을 대기하에서, 소성 온도가 300℃ 이상 1,200℃ 이하에서, 소성 시간이 1시간 이상 12시간 이하로 소성하여, 소성막을 얻는 막 소성 공정을 갖는다.
- [0088] 구체적으로는, 상술한 바와 같이 탄탈산 화합물 분산액을, 기재의 표면에 도포하고, 건조시킴으로써 얻어진 탄탈산 화합물 건조막이 형성된 기재를, 정지로 내에 적재하고, 대기하, 소성 온도가 300℃ 이상 1,200℃ 이하에서, 소성 시간이 1시간 이상 12시간 이하로 소성함으로써, 기재의 표면 상에 탄탈산 화합물 소성막을 형성시킨다.
- [0089] 또한, 상술한 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액이 피복된 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질의 제조 방법에 대하여, 이하 설명한다.
- [0090] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액이 피복된 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질의 제조 방법은, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액과, 정극 활물질과, 필요에 따라 수산화리튬 수용액을 혼합하여, 탄탈산 화합물을 함유하는 전지용 정극 활물질 슬러리를 생성하는 공정과, 상기 탄탈산 화합물을 함유하는 전지용 정극 활물질 슬러리를 건조시키는 공정을 갖는 것을 특징으로 한다.
- [0091] 우선, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액인, 탄탈산리튬 분산액을 순수로 희석한 탄탈산리튬 분산액 중에, 전지용 정극 활물질, 예를 들어 LiMn_2O_4 (머크사제: 스피넬형, 입경<0.5 μm)를 첨가함으로써, 탄탈산리튬을 함유하는 슬러리가 얻어진다. 그리고, 탄탈산리튬을 함유하는 슬러리를 교반하면서, 수산화리튬 수용액을 적하하고, 10분간 90℃로 유지함으로써, 탄탈산리튬을 함유하는 전지용 정극 활물질 슬러리가 생성된다.
- [0092] 전지용 정극 활물질로서, 상술한 LiMn_2O_4 외에, LiCoO_2 , LiNiO_2 , LiFeO_2 , Li_2MnO_3 , LiFePO_4 , LiCoPO_4 , LiNiPO_4 , LiMnPO_4 , $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$, $\text{LiMn}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Ni}_{1/3}\text{O}_2$, $\text{LiCo}_{0.2}\text{Ni}_{0.4}\text{Mn}_{0.4}\text{O}_2$, 폴리브덴산리튬, LiMnO_4 , $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.15}\text{Al}_{0.05}\text{O}_2$, LiMnO_2 등을 사용할 수 있다.
- [0093] 다음으로, 탄탈산리튬을 함유하는 전지용 정극 활물질 슬러리를, 노 내 온도를 110℃로 유지하고, 15시간에 걸쳐 대기 건조로 내에서 건조시킴으로써, 탄탈산리튬에 의해 피복된 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질을 제조할 수 있다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액이 피복된 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질의 제조 방법 으로서는, 상술한 제조 방법 외에, 침지법, 스프레이 분무법, 유동층법, 순환 유동층법, 전동 유동층법, 공침법 등을 사용해도 된다.
- [0094] 상술한 탄탈산리튬 분산액이 피복된 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질에서는, 본 발명의 탄탈산리튬 분산액을 사용했지만, 본 발명의 탄탈산리튬 분산액을 건조시킨 건조 분말이나, 본 발명의 탄탈산리튬 분산액을 건조시키고, 소성한 소성 분말을 분산매에 분산시킨 것을 사용해도 된다.
- [0095] 또한, 상술한 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질의 제조 방법에서는, 전지용 정극 활물질을 첨가했지만, 적절히 용도에 맞추어 변경해도 된다. 예를 들어, 분산제, pH 조정제, 착색제, 증점제, 습윤제, 바인더 수지 등을 첨가해도 된다.
- [0096] 상술한 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질의 제조 방법에서는, 본 발명의 탄탈산리튬 분산액을 사용하고 있지만, 유기 질소 화합물을 함유하는 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액으로 치환해도 되고, 마찬가지로의 공정을 거쳐, 탄탈산에 의해 피복된 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질을 제조할 수 있다.
- [0097] 이와 같이 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액이 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질 입자 표면을 피복하고 있음으로써, 이차 전지의 정극 활물질 입자의 리튬 이온 이차 전지의 정극과 전해질 사이에서 발생하는 계면 저항을 저감시킬 수 있다.
- [0098] 또한, 이차 전지의 정극 활물질 입자의 리튬 이온 이차 전지의 정극과 전해질 사이에서 발생하는 계면 저항을 저감시킬 목적으로서, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액과, 니오브산 화합물, 예를 들어 니오브산리튬이나 니오브산을 혼합한 탄탈산 화합물 분산액에 의해, 리튬 이온 이차 전지용 정극 활물질 입자 표면을 피복해도 된다. 또한, 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액과 니오브산 화합물을 혼합한 탄탈산 화합물 분산액 중의 동적 광산란법

에 의한 탄탈산 화합물 입자경(D50)이나, 니오브산 화합물 입자경(D50)이 100nm 이하이면 된다.

[0099] 또한, 본 명세서에 있어서 「X 내지 Y」(X, Y는 임의의 숫자)로 표현하는 경우, 특별히 정하지 않는 한, 「X 이상 Y 이하」의 의미와 함께, 「바람직하게는 X보다 크다」 혹은 「바람직하게는 Y보다 작다」는 취지의 의미도 포함한다. 또한, 「X 이상」(X는 임의의 숫자) 혹은 「Y 이하」(Y는 임의의 숫자)로 표현하는 경우, 「X보다 큰 것이 바람직하다」 혹은 「Y 미만인 것이 바람직하다」는 취지의 의도도 포함한다.

발명의 효과

[0100] 본 발명의 탄탈산 화합물 분산액은, 극성 용매, 특히 물에의 분산성이 높고, 물에 대한 용해성도 양호하고, 또한 보존 안정성이 우수하다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0101] 이하, 본 발명에 관한 실시 형태의 탄탈산 화합물 분산액에 대하여, 이하의 실시예에 의해 더 설명한다. 단, 이하의 실시예는, 본 발명을 한정하는 것은 아니다.

[0102] (실시예 1)

[0103] 미쓰이 긴조쿠 코오교오사제 수산화탄탈 137.9g(Ta₂O₅ 농도 66질량%)을 55질량% 불화수소산 수용액(120g)에 용해시키고, 이온 교환수를 849mL 첨가함으로써, 불화 탄탈 수용액(Ta₂O₅ 농도 8.2질량%)을 얻었다.

[0104] 이 불화 탄탈 수용액 1,000g에, 과산화수소수 27.5g(H₂O₂ 농도 35질량%)을 첨가하고(H₂O₂/Ta 몰비=0.76), 5분간 교반함으로써, 탄탈 화합물 수용액을 얻었다.

[0105] 이 탄탈 화합물 수용액 1,000g을, 암모니아수(NH₃ 농도 25질량%) 6.82L에, 10분간 미만의 시간으로 첨가하여(NH₃/Ta 몰비=245, NH₃/HF 몰비=30.7), 반응액(pH11)을 얻었다. 이 반응액은 탄탈산 화합물 수화물의 슬러리, 바꿔 말하면 탄탈 함유 침전물의 슬러리였다.

[0106] 다음으로, 이 반응액을, 원심 분리기를 사용하여 디켄테이션하고, 유리된 불화물 이온량이 100mg/L 이하로 될 때까지 세정하여, 당해 불화물 이온을 제거한 탄탈 함유 침전물을 얻었다. 이때, 세정액에는 암모니아수를 사용하였다.

[0107] 또한, 당해 불화물 이온을 제거한 탄탈 함유 침전물을 순수로 회석하여 탄탈 함유 침전 슬러리를 얻었다. 이 탄탈 함유 침전 슬러리의 일부를 110℃에서 24시간 건조 후, 1,000℃에서 4시간 소성함으로써 Ta₂O₅를 생성하고, 그 중량으로부터 탄탈 함유 침전 슬러리에 포함되는 Ta₂O₅ 농도를 산출하였다.

[0108] 그리고, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와, 유기 질소 화합물로서 5질량%의 디메틸아민과, 순수를, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 5질량%, 또한 Ta₂O₅/유기 질소 화합물의 중량비가 1.0이 되도록 혼합함으로써, 실시예 1에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 1에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.0이었다.

[0109] (실시예 2)

[0110] 실시예 2에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 20질량%의 메틸아민인 것, 및 Ta₂O₅/유기 질소 화합물의 중량비가 4.0인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 2에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 2에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.9였다.

[0111] (실시예 3)

[0112] 실시예 3에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 5질량%의 수산화테트라메틸암모늄(TMAH)인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 3에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 3에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 13.3이었다.

[0113] (실시예 4)

[0114] 실시예 4에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 1질량%의 디메틸아민인 것, 및 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 1질량%인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방

법을 실시하여, 실시예 4에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 4에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 11.4였다.

[0115] (실시예 5)

[0116] 실시예 5에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 10질량%의 디메틸아민인 것, 및 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 10질량%인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 5에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 5에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.2였다.

[0117] (실시예 6)

[0118] 실시예 6에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 10질량%의 수산화테트라메틸암모늄(TMAH)인 것, 및 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 10질량%인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 6에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 6에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 13.9였다.

[0119] (실시예 7)

[0120] 실시예 7에서는, 과산화수소수(H₂O₂ 농도 35질량%)가 불화 탄탈 수용액에 대하여, H₂O₂/Ta 몰비=0.9가 되도록 첨가되는 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 7에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 7에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 11.9였다.

[0121] (실시예 8)

[0122] 실시예 8에서는, 과산화수소수(H₂O₂ 농도 35질량%)가 불화 탄탈 수용액에 대하여, H₂O₂/Ta 몰비=0.70이 되도록 첨가되는 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 8에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 8에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.0이었다.

[0123] (실시예 9)

[0124] 실시예 9에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 20질량%의 디메틸아민인 것, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 12질량%인 것, 및 Ta₂O₅/유기 질소 화합물의 중량비가 1.7인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 9에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 9에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.5였다.

[0125] (실시예 10)

[0126] 실시예 10에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 12질량%의 수산화테트라메틸암모늄(TMAH)인 것, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 20질량%인 것, 및 최종적인 혼합물의 Ta₂O₅/유기 질소 화합물의 중량비가 0.6인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 14.1이었다.

[0127] (실시예 11)

[0128] 실시예 11에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 4질량%의 디메틸아민인 것, 및 최종적인 혼합물의 Ta₂O₅/유기 질소 화합물의 중량비가 0.8인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 11에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 11.8이었다.

[0129] (실시예 12)

[0130] 실시예 12에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 40질량%의 디메틸아민인 것, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 1질량%인 것, 및 Ta₂O₅/유기 질소 화합물의 중량비가 40.0인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 12에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 12에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 13.4였다.

[0131] (실시예 13)

- [0132] 실시예 13에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 35질량%의 디메틸아민인 것, 및 최종적인 혼합물의 Ta_2O_5 /유기 질소 화합물의 중량비가 7.0인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 13에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 13에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 13.0이었다.
- [0133] (실시예 14)
- [0134] 실시예 14에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 4질량%의 디메틸아민, 0.5질량%의 메틸아민, 및 0.5질량%의 수산화테트라메틸암모늄(TMAH)의 3종의 유기 질소 화합물을 혼합한 것인 것, 및 최종적인 혼합물의 Ta_2O_5 /유기 질소 화합물의 중량비가 각각 0.8, 0.1, 0.1인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 14에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 14에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.1이었다.
- [0135] (비교예 1)
- [0136] 비교예 1에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 30질량%의 디메틸아민인 것, 및 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta_2O_5 환산으로 30질량%인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 비교예 1에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 1에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.7이었다.
- [0137] (비교예 2)
- [0138] 비교예 2에서는, 불화 탄탈 수용액에 과산화수소를 첨가하지 않는 것, 및 최종적인 혼합물의 Ta_2O_5 /유기 질소 화합물의 중량비가 1.0인 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 비교예 2에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 2에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.0이었다.
- [0139] (비교예 3)
- [0140] 비교예 3에서는, 불화 탄탈 수용액에 과산화수소를 첨가하지 않는 것, 및 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리에 유기 질소 화합물을 첨가하지 않는 것 이외에는, 실시예 1과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 비교예 3에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 3에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 10.7이었다.
- [0141] (비교예 4)
- [0142] 비교예 4에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 이하와 같이 생성되었다.
- [0143] 미쓰이 긴조쿠 코오교오사제 수산화탄탈 137.9g(Ta_2O_5 농도 66질량%)을 55질량% 불화수소산 수용액(120g)에 용해시키고, 이온 교환수를 849mL 첨가함으로써, 불화 탄탈 수용액(Ta_2O_5 농도 8.2질량%)을 얻었다.
- [0144] 이 불화 탄탈 수용액 100g을, 50질량% 디메틸아민 100mL에, 10분 미만의 시간으로 첨가하였다. 그 후, 15분간 교반하여, 1차 반응액(pH11)을 얻었다. 이 1차 반응액을, 암모니아수(NH_3 농도 25질량%) 2L에, 10분 미만의 시간으로 첨가하여, 2차 반응액(pH11)을 얻었다. 이 2차 반응액은 탄탈산 화합물 수화물의 슬러리, 바꿔 말하면 탄탈 함유 침전물의 슬러리였다.
- [0145] 다음으로, 이 2차 반응액을, 원심 분리기를 사용하여 디캔테이션하고, 유리된 불화물 이온량이 100mg/L 이하로 될 때까지 세정하여, 당해 불화물 이온을 제거한 탄탈 함유 침전물을 얻었다. 이때, 세정액에는 암모니아수를 사용하였다.
- [0146] 또한, 당해 불화물 이온을 제거한 탄탈 함유 침전물을 순수로 회석하여 탄탈 함유 침전 슬러리를 얻었다. 이 탄탈 함유 침전 슬러리의 일부를 110°C에서 24시간 건조 후, 1,000°C에서 4시간 소성함으로써 Ta_2O_5 를 생성하고, 그 중량으로부터 탄탈 함유 침전 슬러리에 포함되는 Ta_2O_5 농도를 산출하였다.
- [0147] 그리고, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와, 유기 질소 화합물로서 5질량%의 디메틸아민과, 순수를, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta_2O_5 환산으로 5질량%, 또한 Ta_2O_5 /유기 질소 화합물의 중량비가 1.0이 되도록 혼합함으로써, 비교예 4에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 4에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.0이었다.

- [0148] (비교예 5)
- [0149] 비교예 5에서는, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와 혼합되는 유기 질소 화합물이 10질량%의 디메틸아민인 것, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 10질량%인 것 이외에는, 비교예 4와 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 비교예 5에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 5에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.1이었다.
- [0150] (실시예 15)
- [0151] 실시예 15에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 이하와 같이 생성되었다.
- [0152] 미쓰이 긴조쿠 코오교오사제 수산화탄탈 137.9g(Ta₂O₅ 농도 66질량%)을 55질량% 불화수소산 수용액(120g)에 용해시키고, 이온 교환수를 849mL 첨가함으로써, 불화 탄탈 수용액(Ta₂O₅ 농도 8.2질량%)을 얻었다.
- [0153] 이 불화 탄탈 수용액 1,000g에, 과산화수소수 36.1g(H₂O₂ 농도 35질량%)을 첨가하고(H₂O₂/Ta 몰비=1.0), 5분간 교반함으로써, 탄탈 화합물 수용액을 얻었다.
- [0154] 이 탄탈 화합물 수용액 1,000g을, 암모니아수(NH₃ 농도 25질량%) 6.82L에, 1분간 미만의 시간으로 첨가하여(NH₃/Ta 몰비=245, NH₃/HF 몰비=30.7), 반응액(pH11)을 얻었다. 이 반응액은 탄탈산 화합물 수화물의 슬러리, 바꿔 말하면 탄탈 함유 침전물의 슬러리였다.
- [0155] 다음으로, 이 반응액을, 원심 분리기를 사용하여 디캔테이션하고, 유리된 불화물 이온량이 100mg/L 이하로 될 때까지 세정하여, 당해 불화물 이온을 제거한 탄탈 함유 침전물을 얻었다. 이때, 세정액에는 암모니아수를 사용하였다.
- [0156] 또한, 당해 불화물 이온을 제거한 탄탈 함유 침전물을 순수로 회석하여 탄탈 함유 침전 슬러리를 얻었다. 이 탄탈 함유 침전 슬러리의 일부를 110℃에서 24시간 건조 후, 1,000℃에서 4시간 소성함으로써 Ta₂O₅를 생성하고, 그 중량으로부터 탄탈 함유 침전 슬러리에 포함되는 Ta₂O₅ 농도를 산출하였다.
- [0157] 그리고, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와, 0.54질량%의 수산화리튬과, 순수물, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 5질량%, 또한 Li/Ta의 몰비가 1.0이 되도록 혼합함으로써, 실시예 15에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 15에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.2이며, 암모니아 농도는 0.7질량%였다.
- [0158] (실시예 16)
- [0159] 실시예 16에서는, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 1질량%인 것 이외에는, 실시예 15와 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 16에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 16에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 11.9이며, 암모니아 농도는 0.2질량%였다.
- [0160] (실시예 17)
- [0161] 실시예 17에서는, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 10질량%인 것 이외에는, 실시예 15와 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 17에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 17에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.3이며, 암모니아 농도는 1.5질량%였다.
- [0162] (실시예 18)
- [0163] 실시예 18에서는, 최종적인 혼합물의 Li/Ta의 몰비가 0.8인 것 이외에는, 실시예 15와 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 18에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 18에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.0이며, 암모니아 농도는 0.7질량%였다.
- [0164] (실시예 19)
- [0165] 실시예 19에서는, 최종적인 혼합물의 Li/Ta의 몰비가 1.5인 것 이외에는, 실시예 15와 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 실시예 19에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 19에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.4이며, 암모니아 농도는 0.7질량%였다.

- [0166] (실시예 20)
- [0167] 실시예 20에서는, 실시예 15에서 얻어진 탄탈산 화합물 분산액을 워터 베스에서 70℃에서 가열하고, 교반하면서 10시간 유지한 후, 실온까지 냉각하였다. 이 가열에 의해, 증발한 수분을 보충하기 위해, 순수를 첨가하고, 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 5질량%가 되도록 농도 조절을 행하여, 실시예 20에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 20에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 11.8이며, 암모니아 농도는 0.02질량%였다.
- [0168] (실시예 21)
- [0169] 실시예 21에서는, 실시예 15에서 얻어진 탄탈산 화합물 분산액을 워터 베스에서 80℃에서 가열하고, 교반하면서 10시간 유지한 후, 실온까지 냉각하였다. 이 가열에 의해, 증발한 수분을 보충하기 위해, 순수를 첨가하고, 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 5질량%가 되도록 농도 조절을 행하여, 실시예 20에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 실시예 21에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 11.7이며, 암모니아 농도는 0.006질량%였다.
- [0170] (비교예 6)
- [0171] 비교예 6에서는, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 15질량%인 것 이외에는, 실시예 15와 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 비교예 6에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 6에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 측정 불가능이었다.
- [0172] (비교예 7)
- [0173] 비교예 7에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 이하와 같이 생성되었다.
- [0174] 미쓰이 긴조쿠 코오교오사제 수산화탄탈 137.9g(Ta₂O₅ 농도 66질량%)에, 순수 1,824g 및 과산화수소수 1,285g(H₂O₂ 농도 35질량%)을 첨가하고(H₂O₂/Ta 몰비=32.1), 0.5시간 교반함으로써, 탄탈 함유 분산액을 얻었다.
- [0175] 다음으로, 이 탄탈 함유 분산액 3,246.9g을, 암모니아수(NH₃ 농도 25질량%) 168.4mL에, 10분간 미만의 시간으로 첨가하여(NH₃/Ta 몰비=6.0), 반응액(pH11)을 얻었다.
- [0176] 그리고, 이 반응액과, 0.289질량%의 수산화리튬을, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 2.7질량%, 또한 Li/Ta의 몰비가 1.0이 되도록 혼합함으로써, 비교예 7에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 7에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.1이었다.
- [0177] (비교예 8)
- [0178] 비교예 8에서는, 과산화수소수가, H₂O₂/Ta 몰비=1.0이 되도록 수산화탄탈에 첨가된 것 이외에는, 비교예 7과 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 비교예 8에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 8에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.1이었다.
- [0179] (비교예 9)
- [0180] 비교예 9에서는, 과산화수소수가, 불화 탄탈 수용액에 첨가되어 있지 않은 것 이외에는, 실시예 15와 마찬가지로의 제조 방법을 실시하여, 비교예 9에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 9에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.2였다.
- [0181] (비교예 10)
- [0182] 비교예 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 이하와 같이 생성되었다.
- [0183] 미쓰이 긴조쿠 코오교오사제 수산화탄탈 137.9g(Ta₂O₅ 농도 66질량%)을 55질량% 불화수소산 수용액(120g)에 용해시키고, 이온 교환수를 849mL 첨가함으로써, 불화 탄탈 수용액(Ta₂O₅ 농도 8.2질량%)을 얻었다.
- [0184] 이 불화 탄탈 수용액 100g을, 50질량% 디메틸아민 100mL에, 10분 미만의 시간으로 첨가하였다. 그 후, 15분간 교반하여, 1차 반응액(pH11)을 얻었다. 이 1차 반응액을, 암모니아수(NH₃ 농도 25질량%) 2L에, 10분 미만의 시간으로 첨가하여, 2차 반응액(pH11)을 얻었다. 이 2차 반응액은 탄탈산 화합물 수화물의 슬러리, 바꿔 말하면 탄탈 함유 침전물의 슬러리였다.

- [0185] 다음으로, 이 2차 반응액을, 원심 분리기를 사용하여 디캔테이션하고, 유리된 불화물 이온량이 100mg/L 이하로 될 때까지 세정하여, 당해 불화물 이온을 제거한 탄탈 함유 침전물을 얻었다. 이때, 세정액에는 암모니아수를 사용하였다.
- [0186] 또한, 당해 불화물 이온을 제거한 탄탈 함유 침전물을 순수로 회석하여 탄탈 함유 침전 슬러리를 얻었다. 이 탄탈 함유 침전 슬러리의 일부를 110℃에서 24시간 건조 후, 1,000℃에서 4시간 소성함으로써 Ta₂O₅를 생성하고, 그 중량으로부터 탄탈 함유 침전 슬러리에 포함되는 Ta₂O₅ 농도를 산출하였다.
- [0187] 그리고, 순수로 회석한 탄탈 함유 침전 슬러리와, 0.54질량%의 수산화리튬과, 순수를, 최종적인 혼합물의 탄탈 농도가 Ta₂O₅ 환산으로 5질량%, 또한 Li/Ta의 몰비가 1.0이 되도록 혼합함으로써, 비교예 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 얻었다. 비교예 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액의 pH는 12.2였다.
- [0188] 그리고, 실시예 1 내지 21, 및 비교예 1 내지 10의 탄탈산 화합물 분산액에 대하여, 다음과 같은 물성을 측정하였다. 이하, 측정된 물성값, 및 그 물성값의 측정 방법을 나타냄과 함께, 실시예 1 내지 10, 및 비교예 1 내지 5의 탄탈산 화합물 분산액의 측정 결과를 표 1에 나타내고, 실시예 15 내지 21, 및 비교예 6 내지 10의 탄탈산 화합물 분산액의 측정 결과를 표 2에 나타낸다.
- [0189] <원소 분석>
- [0190] 필요에 따라 시료를 회염산으로 적당한 정도로 회석하고, ICP 발광 분석(애질런트·테크놀로지사제: AG-5110)을 사용하여, JIS K0116:2014에 준거하여, 실시예 1 내지 14, 및 비교예 1 내지 5에 관한 탄탈산 화합물 분산액에 대해서는, Ta₂O₅ 환산의 Ta 중량 분율을 측정하고, 실시예 15 내지 21, 및 비교예 6 내지 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액에 대해서는, Ta₂O₅ 환산의 Ta 중량 분율, 또는 Li 환산의 Li 중량 분율을 측정하였다.
- [0191] <암모니아 정량 분석>
- [0192] 수산화나트륨 용액(30g/100ml) 25ml를, 시료 용액 1 내지 5ml에 첨가하고, 이 혼합액을 비등시켜 증류하고, 그 증류액(약 200ml)을 순수 20ml와 황산 0.5ml를 넣은 용기에 유출시킴으로써 암모니아를 분리하였다. 다음으로, 분리한 암모니아를 250ml의 메스 플라스크로 전이하여 순수로 250ml로 정용(定容)하였다. 또한, 250ml로 정용한 용액을 100ml의 메스 플라스크에 10ml 분취하고, 분취한 용액에, 수산화나트륨 용액(30g/100mL) 1ml를 첨가하고, 순수로 100ml로 정용하였다. 이렇게 하여 얻어진 용액을 이온 미터(본체: HORIBA F-53, 전극: HORIBA 500 2A)를 사용하여 정량 분석함으로써, 실시예 15 내지 21에 관한 탄탈산 화합물 분산액 중에 포함되는 암모니아 농도(질량%)를 측정하였다.
- [0193] <pH 측정>
- [0194] 실시예 1 내지 21, 및 비교예 1 내지 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액에 pH 미터(HORIBA제: 유리 전극식 수소 이온 농도 지시기 D-51)의 전극(HORIBA제: 스탠다드 ToupH 전극 9615S-10D), 액온이 25℃로 안정된 것을 확인한 후, pH를 측정하였다.
- [0195] <동적 광산란법>
- [0196] 입도 분포의 평가는, 제타 전위·입경·분자량 측정 시스템(오츠카 덴시 가부시키키가이샤제: ELSZ-2000)을 사용하여, JIS Z 8828:2019에 준한 동적 광산란법에 의해 행하였다. 또한, 측정 직전에 측정 대상인 실시예 1 내지 21, 및 비교예 1 내지 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액 중의 먼지 등을 제거하기 위해, 1 μ m 구멍 직경의 필터로 당해 분산액을 여과하여, 필터링을 행하였다. 그리고, 초음파 세정기(애즈원사제: VS-100III)로, 28kHz, 3분간의 초음파 처리를 실시하여, 초음파를 사용한 분산 처리를 행하였다. 또한, D50은 체적 분율로 하여 50%에 이르는 입자경을 나타낸다. 표 1의 「초기 입자경 D50(nm)」이란, 생성된 직후의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물 입자경(D50)을 말한다. 또한, 표 1의 「경시 입자경 D50(nm)」이란, 실온 25℃로 설정한 항온기 내에서 1개월 정치한 후의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물 입자경(D50)을 말한다. 그리고, 측정된 「초기 입자경 D50(nm)」 및 「경시 입자경 D50(nm)」을, 평가 기준 「A」, 「B」, 「C」, 또는 「D」에 의해 평가하였다. 평가 기준 「A」는, 「D50 \leq 10nm」를 충족시키는 것을 나타낸다. 평가 기준 「B」는, 「10nm<D50 \leq 50nm」를 충족시키는 것을 나타낸다. 평가 기준 「C」는, 「50nm<D50 \leq 100nm」를 충족시키는 것을 나타낸다. 평가 기준 「D」는, 「100nm<D50」을 충족시키는 것을 나타낸다. 또한, 상술한 필터링은, 「초기 입자경 D50(nm)」의 측정 시에 행했지만, 「경시 입자경 D50(nm)」의 측정 시에는 행하지 않고, 초음파 처리만을 실시

하였다.

[0197] <경시 안정성 시험>

[0198] 실시예 1 내지 21, 및 비교예 1 내지 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 실온 25℃로 설정한 항온기 내에서 1개월간 정치한 후, 백색 침전이나 겔화의 유무를 목시 관찰함으로써 행하였다. 백색 침전이나 겔화가 하나도 관찰되지 않은 것은 경시 안정성을 가지는 것으로 하여 「○」로 평가하고, 백색 침전이나 겔화가 하나라도 관찰된 것은 경시 안정성을 갖지 않는 것으로 하여 「×」로 평가하였다. 여기서, 겔화의 판정은, 각 탄탈산 화합물 분산액을 플라스틱 용기에 넣고, 당해 용기를 거꾸로 했을 때, 빠르게 낙하하지 않는 분산액을 겔화되어 있다고 판정하였다. 또한, 1개월 정치 후의 실시예 1 내지 21, 및 비교예 1 내지 10의 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물의 경시 입자경(D50)을 상술한 동적 광산란법을 사용하여 측정하였다.

[0199] <성막성 시험>

[0200] 집전판의 대체품인 유리 기관의 표면에 형성한 도막의 외관 평가를 광학 현미경으로 관찰함으로써 행하였다. 실시예 1 내지 21, 및 비교예 1 내지 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액을 2 μ m 구멍 직경의 필터로 여과하면서 시린지를 사용하여, 아세톤에 의해 탈지 세정한 후, 건조를 행한 50mm×50mm의 유리 기관에 적하하고, 스핀 코팅(1,500rpm, 15초)에 의해, 도포하였다. 그리고, 도포한 개소를, 자연 건조함으로써, 유리 기관 상에 도막을 형성하였다. 형성한 도막의 중앙 15mm×15mm의 범위에 있어서, 광학 현미경(배율: 40배)으로 당해 유리 기관을 관찰하고, 기포, 도공 불균일, 균열이, 하나도 관찰되지 않은 것은 성막성이 우수한 것으로 하여 「○」로 평가하고, 하나라도 관찰된 것을 성막성이 우수하지 않은 것으로 하여 「×」로 평가하였다.

[0201] [표 1]

	물질의 특징					액·도막 평가					
	Ta ₂ O ₅ (질량%)	H ₂ O ₂ /Ta 몰비	유기 질소 화합물: 질량%	Ta ₂ O ₅ /유기 질소 화합물 중량비	분산액 pH	초기 입자경 D50(nm)	경시 입자경 D50(nm)	경시 안정성	성막성		
실시예 1	5	0.76	디메틸아민: 5질량%	1.0	12.0	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 2	5	0.76	메틸아민: 20질량%	4.0	12.9	<50nm	B	<50nm	B	○	○
실시예 3	5	0.76	TMAH: 5질량%	1.0	13.3	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 4	1	0.76	디메틸아민: 1질량%	1.0	11.4	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 5	10	0.76	디메틸아민: 10질량%	1.0	12.2	<50nm	B	<50nm	B	○	○
실시예 6	10	0.76	TMAH: 10질량%	1.0	13.9	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 7	5	0.90	디메틸아민: 5질량%	1.0	11.9	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 8	5	0.70	디메틸아민: 5질량%	1.0	12.0	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 9	12	0.76	디메틸아민: 20질량%	1.7	12.5	<50nm	B	<50nm	B	○	○
실시예 10	20	0.76	TMAH: 12질량%	0.6	14.1	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 11	5	0.76	디메틸아민: 4질량%	0.8	11.6	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 12	1	0.76	디메틸아민: 40질량%	40.0	13.4	<100nm	C	<100nm	C	○	○
실시예 13	5	0.76	디메틸아민: 35질량%	7.0	13.0	<50nm	B	<50nm	B	○	○
실시예 14	5	0.76	디메틸아민: 4질량% 메틸아민: 0.5질량% TMAH: 0.5질량%	0.8 0.1 0.1	12.1	<10nm	A	<10nm	A	○	○
비교예 1	30	0.76	디메틸아민: 30질량%	1.0	12.7	침전	D	침전	D	×	×
비교예 2	5	0.00	디메틸아민: 5질량%	1.0	12.0	침전	D	침전	D	×	×
비교예 3	5	0.00	-	-	10.7	침전	D	침전	D	×	×
비교예 4	5	0.00	디메틸아민: 5질량%	1.0	12.0	>100nm	D	>100nm	D	×	×
비교예 5	10	0.00	디메틸아민: 10질량%	1.0	12.1	>100nm	D	>100nm	D	×	×

[0202]

[0203] [표 2]

	물질의 특징						액·도막 평가					
	Ta ₂ O ₅ (질량%)	H ₂ O ₂ /Ta 몰비	화합물	Li/Ta 몰비	분산액 pH	NH ₃ 농도 (질량%)	초기 입자경 D50(nm)	경시 입자경 D50(nm)	경시 안정성	성막성		
실시예 15	5.0	1.0	수산화리튬	1.0	12.2	0.7	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 16	1.0	1.0	수산화리튬	1.0	11.9	0.2	<100nm	C	<100nm	C	○	○
실시예 17	10.0	1.0	수산화리튬	1.0	12.3	1.5	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 18	5.0	1.0	수산화리튬	0.8	12.0	0.7	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 19	5.0	1.0	수산화리튬	1.5	12.4	0.7	<50nm	B	<50nm	B	○	○
실시예 20	5.0	1.0	수산화리튬	1.0	11.8	0.07	<10nm	A	<10nm	A	○	○
실시예 21	5.0	1.0	수산화리튬	1.0	11.7	0.005	<10nm	A	<10nm	A	○	○
비교예 6	15.0	1.0	수산화리튬	1.0	측정 불능	-	겔화	D	겔화	D	×	×
비교예 7	2.7	32.1	수산화리튬	1.0	12.1	-	>100nm	D	>100nm	D	×	×
비교예 8	2.7	1.0	수산화리튬	1.0	12.2	-	>100nm	D	>100nm	D	×	×
비교예 9	5.0	0.0	수산화리튬	1.0	12.2	-	>100nm	D	>100nm	D	×	×
비교예 10	5.0	0.0	수산화리튬	1.0	12.2	-	>100nm	D	>100nm	D	×	×

[0204]

[0205] 표 1에 나타내는 바와 같이, 실시예 1 내지 14에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 탄탈을 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 30질량% 미만 함유하고, 당해 분산액 중의 동적 광산란법에 의한 탄탈산 화합물의 입자경(D50)이 100nm 이하이면, 분산매에의 분산성이 높고, 용해성도 우수한 것이었다. 또한, 실시예 15 내지 21에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 30질량% 미만 함유하고, 당해 분산액 중의 동적 광산란법에 의한 탄탈산 화합물의 입자경(D50)이 100nm 이하이면, 분산매에의 분산성이 높고, 용해성도 우수한

것이였다.

- [0206] 실시예 1 내지 21에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 1개월 경과한 후에도 탄탈산 화합물의 경시 입자경(D50)은 초기 입자경(D50)에 비하여 큰 차는 보이지 않고, 경시 안정성이 우수한 것이였다. 또한, 비교예 1 내지 3, 7 내지 10에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 침전물이 보였다. 또한, 비교예 4, 5에 관한 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물의 초기 입자경(D50) 및 경시 입자경(D50)은 100nm 이상이 되어, 경시 안정성의 면에서도 뒤 떨어졌다. 또한, 비교예 6에 관한 탄탈산 화합물 분산액 중의 탄탈산 화합물의 초기 입자경(D50) 및 경시 입자경(D50)은 겔화 때문에 측정이 불가능하였다.
- [0207] 실시예 15 내지 21에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 리튬과 탄탈의 몰비 Li/Ta가 0.8 이상 2.0 이하이고, 당해 분산액 중의 탄탈산 농도가 탄탈을 Ta₂O₅ 환산으로 0.1질량% 이상 15질량% 이하이면, 장기 보관 시의 안정성이 향상되였다.
- [0208] 실시예 1 내지 21에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 당해 분산액의 pH가 7 초과이면, 경시 안정성이 우수하였다. 또한, 비교예 6에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 겔화되어 있어, pH를 측정할 수 없었다.
- [0209] 실시예 1 내지 21에 관한 탄탈산 화합물 분산액으로 형성한 탄탈산 화합물 막은, 각 탄탈산 화합물 분산액으로 형성한 도막을 광학 현미경으로 관찰한 결과, 당해 도막 내에 조립자가 존재하지 않고, 또한 기포, 도공 불균일, 균열이 하나도 관찰되지 않아, 성막성이 우수한 것이였다.
- [0210] 본 명세서 개시의 발명은, 각 발명이나 실시 형태의 구성 외에, 적용 가능한 범위에서, 이들 부분적인 구성을 본 명세서 개시의 다른 구성으로 변경하여 특정한 것, 혹은 이들 구성에 본 명세서 개시의 다른 구성을 부가하여 특정한 것, 혹은 이들 부분적인 구성을 부분적인 작용 효과가 얻어지는 한도에서 삭제하여 특정한 상위 개념 화한 것을 포함한다.

산업상 이용가능성

- [0211] 본 발명에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 극성 용매, 특히 물에의 분산성이 높고, 물에 대한 용해성도 양호하고, 또한 보존 안정성도 우수하기 때문에, 리튬 이온 이차 전지의 정극 활물질을 피복하는 것으로서 적합하다. 또한, 본 발명에 관한 탄탈산 화합물 분산액이 보존 안정성이 우수하고, 경시 변화에 의해, 침전물이 생기는 것에 의한 불량품의 발생률을 억제시킬 수 있기 때문에, 폐기물을 저감시킬 수 있어, 폐기물의 처분에서의 에너지 비용도 삭감하는 것이 가능하게 된다. 또한, 본 발명에 관한 탄탈산 화합물 분산액은, 성막의 형성도 양호하기 때문에, 피복된 리튬 이온 이차 전지의 정극 활물질에 있어서도 마찬가지로 폐기물을 저감시킬 수 있고, 또한 불량품의 발생률을 억제할 수 있다. 이러한 점들에 의해, 천연 자원의 지속 가능한 관리 및 효율적인 이점, 그리고 탈탄소(카본 뉴트럴)화를 달성하는 것으로 이어진다.