

【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8月30日(2018.8.30)

【公表番号】特表2017-527512(P2017-527512A)

【公表日】平成29年9月21日(2017.9.21)

【年通号数】公開・登録公報2017-036

【出願番号】特願2017-501653(P2017-501653)

【国際特許分類】

C 0 1 B 32/21 (2017.01)

H 0 1 M 4/587 (2010.01)

H 0 1 M 4/36 (2006.01)

H 0 1 M 10/0525 (2010.01)

C 0 1 B 33/02 (2006.01)

H 0 1 M 4/38 (2006.01)

H 0 1 M 4/48 (2010.01)

【 F I 】

C 0 1 B 32/21

H 0 1 M 4/587

H 0 1 M 4/36 C

H 0 1 M 4/36 E

H 0 1 M 4/36 D

H 0 1 M 10/0525

C 0 1 B 33/02 Z

H 0 1 M 4/36 B

H 0 1 M 4/38 Z

H 0 1 M 4/48

【手続補正書】

【提出日】平成30年7月17日(2018.7.17)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 1 4 7

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 1 4 7 】

【表 7】

表 7：様々な処理及び未処理の炭素質粒子材料の表面エネルギー

	2. 7%の2-プロパノール水溶液	表面エネルギー (mJ/m <sup>2</sup> ) =表面張力 (mN/m)
CVDコートグラファイトB (例2)	疎水性	< 59
CVDコート&酸化グラファイトB (例2)	親水性	> 59
CVDコート&酸化NSG (例3)	親水性	> 59
CVDコート&酸化Si-A (Si-C) (例6)	親水性	> 59
ピッチコート天然グラファイト	疎水性	< 59

本発明の実施態様の一部を以下の項目 1 - 4 1 に記載する。

1 親水性非グラファイト質炭素コーティングを有する炭素質コア粒子を含む、表面変性炭素質粒子材料であって、前記親水性表面変性炭素質粒子材料は、BET比表面積 (BET SSA) が、 $49 \text{ m}^2 / \text{g}$  未満、好ましくは  $25 \text{ m}^2 / \text{g}$  未満又は  $10 \text{ m}^2 / \text{g}$  未満である、表面変性炭素質粒子材料。

2 (i) 3秒後接触角が、 $90^\circ$  未満、好ましくは  $75^\circ$  未満、 $70^\circ$  未満又は  $65^\circ$  未満であり、及び / 又は、5秒後接触角が約  $60^\circ$  未満、好ましくは  $40^\circ$  未満、 $30^\circ$  未満、 $25^\circ$  未満又は  $20^\circ$  未満であり、及び / 又は、

(ii) 前記炭素質粒子材料の表面エネルギーが、少なくとも  $59 \text{ mJ} / \text{m}^2$ 、好ましくは少なくとも  $62 \text{ mJ} / \text{m}^2$ 、少なくとも  $67 \text{ mJ} / \text{m}^2$  又は少なくとも  $70 \text{ mJ} / \text{m}^2$  である

ことを特徴とする濡れ性能を示す、項目 1 に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料。

3 スプリングバック比が、約  $15 \sim$  約  $75\%$ 、好ましくは約  $20 \sim 60\%$  又は  $25 \sim 50\%$  であることを特徴とする、項目 1 又は 2 に記載の表面変性炭素質粒子材料。

4 多環芳香族炭化水素 (PAH) 濃度が、 $200 \text{ mg} / \text{kg}$  未満、 $150 \text{ mg} / \text{kg}$  未満、 $30 \text{ mg} / \text{kg}$  未満又は  $10 \text{ mg} / \text{kg}$  未満である、項目 1 ~ 3 のいずれか一項に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料。

5 前記炭素質コア粒子は、天然グラファイト、合成グラファイト、コークス、硬質炭素、グラファイト化微細コークス、それらの混合物、又は、ケイ素、スズ、ビスマス、アンチモン、アルミニウム、銀、 $\text{SiO}_x$  ( $x = 0.2 \sim 1.8$ ) 若しくは  $\text{SnO}_2$  粒子をさらに含有しているかかる炭素粒子の組成物から選ばれる、項目 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料。

6 前記炭素質コア粒子が、合成グラファイト粒子、又は、合成グラファイト粒子とケイ素粒子との混合物である、項目 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料。

7 前記炭素コーティングが、酸化された非晶性炭素を含み、好ましくは、酸化処理前の初期炭素コーティングが化学気相成長 (CVD) 法により得られる、項目 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料。

8 (i) 酸素含有分が、約  $200 \text{ ppm}$  超であり、約  $400 \text{ ppm}$  超であり、約  $600 \text{ ppm}$  超であり、約  $700 \text{ ppm}$  超であり又は約  $800 \text{ ppm}$  超であり、及び / 又は

(ii) BET 表面積が、約  $0.5 \sim$  約  $5 \text{ m}^2 / \text{g}$ 、又は、約  $1.0 \sim$  約  $5 \text{ m}^2 / \text{g}$ 、

又は、約  $1.5 \sim 4.1 \text{ m}^2 / \text{g}$  であり、及び / 又は、

( i i i ) メソポア面積が、 $5.0 \text{ m}^2 / \text{g}$  未満、 $4 \text{ m}^2 / \text{g}$  未満、 $3.8 \text{ m}^2 / \text{g}$  未満又は約  $3.6 \text{ m}^2 / \text{g}$  未満であり、及び / 又は、

( i v ) キシレン密度が、 $2.1 \sim 2.260 \text{ g} / \text{cm}^3$ 、好ましくは  $2.15 \sim 2.25 \text{ g} / \text{cm}^3$  であり、及び / 又は、

( v ) 励起波長が  $632.8 \text{ nm}$  であるレーザを用いて測定されるときに、 $I_D / I_G$  比 ( $R(I_D / I_G)$ ) が、約  $0.3$  超であり、好ましくは  $R(I_D / I_G)$  が  $0.4 \sim 1.0$  である

ことを特徴とする、項目 1 ～ 7 のいずれか一項に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料。

9 親水性非グラファイト質炭素コーティングを有する炭素質コア粒子を含む、表面変性炭素質粒子材料であって、前記親水性表面変性炭素質粒子材料は、BET SSA 及び比表面エネルギーの比が、 $0.8$  未満、好ましくは  $0.6$  未満、 $0.5$  未満、 $0.4$  未満、 $0.3$  未満又は  $0.2$  未満であることを特徴とする、表面変性炭素質粒子材料。

10 親水性非グラファイト質炭素コーティングを有する炭素質コア粒子を含む、表面変性炭素質粒子材料であって、前記親水性表面変性炭素質粒子材料が、 $40$  質量 % の前記炭素質材料を含有している水性分散体において低い粘度を示し、好ましくは  $40$  質量 % の前記炭素質材料を含む前記分散体の粘度が  $2,000 \sim 4,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$  であることを特徴とする、表面変性炭素質粒子材料。

11 項目 1 ～ 10 のいずれか一項に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料の調製方法であって、前記炭素質粒子を

( a ) 非グラファイト質炭素によりコーティングすること、及び、

( b ) 工程 ( a ) により得られたコート炭素質粒子材料の親水性を増加するための酸化処理を施し、

好ましくは、変性されるべき炭素質粒子が、天然グラファイト、合成グラファイト、コークス、硬質炭素、それらの混合物、又は、ケイ素、スズ、アルミニウム、銀、ビスマス、アンチモン、 $\text{SiO}_x$  ( $x = 0.2 \sim 1.8$ ) 若しくは  $\text{SnO}_2$  粒子をさらに含有しているかか炭素粒子の組成物から選ばれる、方法。

12 工程 ( a ) の非グラファイト質炭素コーティングを、化学気相成長 (CVD)、物理気相成長 (PVD)、ピッチコーティング、熱分解、原子層堆積 (ALD)、レーザアブレーション、スパッタリング又は蒸着から選ばれる方法により得る、項目 11 に記載の方法。

13 前記炭素質粒子材料を、不活性キャリアガスと混合された炭化水素ガス又はアルコール蒸気と  $10 \sim 180$  分間の範囲の時間接触させることにより、前記化学気相成長を行い、好ましくは、前記炭化水素ガスがメタン、エタン、エチレン、プロパン、プロペン、アセチレン、ブタン、ベンゼン、トルエン、キシレン及びそれらの組合せからなる群より選ばれる脂肪族若しくは芳香族炭化水素であり、又は、前記アルコールがエタノール、プロパノール、イソプロパノール及びそれらの組合せからなる群より選ばれる、項目 11 又は 12 に記載の方法。

14 前記化学気相成長を、 $500 \sim 1200$ 、又は、 $600 \sim 1100$ 、又は、 $700 \sim 1050$  の範囲の温度で行い、及び / 又は、

前記炭化水素ガスがアセチレン又はプロパンであり、前記キャリアガスが窒素であり、及び / 又は、

接触時間が  $10 \sim 180$  分、 $10 \sim 120$  分、 $10 \sim 60$  分、又は、 $20 \sim 40$  分間の範囲である、項目 11 ～ 13 のいずれか一項に記載の方法。

15 工程 a ) から得られた炭素質粒子材料を、気相 / 固相法において、空気、二酸化炭素、水蒸気、酸素、オゾン若しくはそれらの任意の組合せを接触させるか、又は、別には、液相 / 固相法において、水性過酸化水素若しくは液相中に存在する他の酸化剤と接触させるかのいずれかにより、前記酸化処理工程 b ) を行い、好ましくは、

空気、二酸化炭素、水蒸気、オゾン又は酸素の流速が、 $1 \sim 50 \text{ L} / \text{min}$ 、又は、 $1$

～ 20 L/min 又は 2 ～ 5 L/min の範囲にあり、及び / 又は、

前記酸化処理が、500 ～ 900、550 ～ 750 又は 550 ～ 600 の範囲の温度で行われるが、但し、工程 b) がオゾンを用いて行われる場合には、前記酸化処理を周囲温度で行い、及び / 又は、

前記酸化処理を 10 ～ 30 分、又は、10 ～ 25 分、又は、15 ～ 20 分の時間行う、項目 11 ～ 14 のいずれか一項に記載の方法。

16 a) 工程 (b) の後に得られる表面変性炭素質粒子材料の BET SSA は、(i) 出発炭素質粒子材料の BET SSA より小さく、好ましくは、BET SSA は出発材料と比較して 10 ～ 90 % 低下され、及び / 又は、

(ii) 工程 (a) から得られる非グラファイト質炭素コート炭素質粒子材料の BET SSA 以上であり、及び / 又は、

b) 工程 (b) から得られる表面変性炭素質粒子材料の  $D_{90}$  粒度分布は、

(i) 工程 (a) から得られる非グラファイト質炭素コート炭素質粒子材料の  $D_{90}$  粒度分布と同様であり、及び / 又は、

(ii) 出発炭素質粒子材料の  $D_{90}$  粒度分布と同様であり、

好ましくは、 $D_{90}$  粒度分布値は、出発材料の  $D_{90}$  粒度分布の  $\pm 10\%$  の範囲内又は  $\pm 5\%$  の範囲内にあり、及び / 又は、

c) 工程 (b) の後に得られる表面変性炭素質粒子材料のメソポア面積は、

(i) 出発炭素質粒子材料のメソポア面積よりも小さく、及び / 又は、

(ii) 工程 (a) から得られる非グラファイト質炭素コート炭素質粒子材料のメソポア面積以上であり、及び / 又は、

d) 工程 (b) から得られる親水性表面変性炭素質粒子材料のキシレン密度が、出発炭素質粒子材料のキシレン密度と比較して、1 ～ 7 % 低下されている、

項目 11 ～ 15 のいずれか一項に記載の方法。

17 (i) プロセス工程 (a) 及び (b) を同一の反応器中で行い、好ましくは、工程 (a) の非グラファイト質炭素コーティングの後に、そして工程 (b) の酸化処理の前に、反応器を不活性ガスでパージし、又は、

(ii) 非グラファイト質炭素コート炭素質粒子材料を反応器から回収し、次いで、工程 (b) の酸化処理のための同一の又は異なる反応器中に移す、

項目 11 ～ 16 のいずれか一項に記載の方法。

18 項目 11 ～ 17 のいずれか 1 項記載の方法により得ることができる、項目 1 ～ 10 のいずれか一項に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料。

19 項目 1 ～ 10 のいずれか一項又は項目 18 に記載の表面変性炭素質粒子材料を含む組成物。

20 項目 1 ～ 10 のいずれか一項又は項目 18 に記載の 1 種以上の表面変性炭素質粒子材料と混合され、前記 1 種以上の追加の表面変性炭素質粒子材料が、第一の表面変性炭素質粒子材料とは異なる、項目 19 に記載の組成物。

21 項目 19 又は 20 に記載の組成物であって、

(i) 他の未変性又は変性炭素質粒子材料との混合物の状態である組成物、好ましくは、前記追加の炭素質粒子材料は、天然若しくは合成グラファイト、剥離グラファイト、カーボンブラック、コークス、グラフェン、グラフェン繊維、単層ナノチューブ (SWNT)、多層ナノチューブ (MWNT) 若しくはこれらの組合せであるカーボンナノチューブを含むナノチューブ、フラーレン、ナノグラファイト、グラファイト化微細コークス、及び、それらの組合せからなる群より選ばれ、又は、

(ii) 粒子形態の他の非炭素質材料又はそれらの組合せとの混合物の状態である、組成物。

22 項目 1 ～ 10 のいずれか一項又は項目 18 に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料の、リチウムイオン電池の負電極材料を調製するための使用。

23 項目 1 ～ 10 のいずれか一項又は項目 18 に記載の親水性表面変性炭素質粒子

材料を活物質として含む、リチウムイオン電池の負電極。

24 前記炭素質コア粒子は、天然グラファイト及び／又は合成グラファイトを含み、そして前記負電極は、追加の天然グラファイト、合成グラファイト及び／又はグラファイト化微細コークスをさらに含む、項目23に記載のリチウムイオン電池の負電極。

25 前記追加の天然グラファイト及び／又は合成グラファイトは負電極の2質量％～10質量％又は3質量％～5質量％の範囲の量で存在する、項目24に記載の負電極。

26 前記追加の天然グラファイト及び／又は合成グラファイトの平均粒子サイズは、平均粒子サイズ( $D_{50}$ )が0.5～100  $\mu\text{m}$ 又は1～20  $\mu\text{m}$ の範囲である、項目24又は25に記載の負電極。

27 前記追加の天然グラファイト、合成グラファイト及び／又はグラファイト化微細コークスはピッチコートされたものである、項目24～26のいずれか一項に記載の負電極。

28 電池の負電極に項目1～10のいずれか一項又は項目18に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料を含む、リチウムイオン電池。

29 リチウムイオン負電極半電池試験において決定される一回目のサイクルでの非可逆的な電荷損失が、20％未満であり、及び／又は、リチウムイオン負電極半電池試験において決定される二回目のサイクルでの非可逆的な電荷損失が、6％未満であり、

好ましくは、リチウムイオン負電極半電池試験において決定される一回目のサイクルでの非可逆的な電荷損失における改良は、項目11の工程b)において規定されるとおりの酸化処理を行っていない対照材料と比較して、少なくとも約10％であり、及び／又は、

リチウムイオン負電極半電池試験において決定される二回目のサイクルでの非可逆的な電荷損失における改良は、項目11の工程b)において規定されるとおりの酸化処理を受けていない対照材料と比較して、少なくとも約20％である、項目28に記載のリチウムイオン電池。

30 5～95質量％、好ましくは10～85質量％の質量比で、項目1～10のいずれか一項又は項目18に記載の親水性表面変性炭素質粒子材料を含む、ポリマー複合材料。

31 項目1～10のいずれか一項又は項目18に記載の表面変性炭素質粒子材料を含む、エネルギー貯蔵デバイス。

32 項目1～10のいずれか一項又は項目18に記載の表面変性炭素質粒子材料を含む、炭素ブラシ。

33 リチウムイオン電池を含む、電気車両、ハイブリッド電気車両又はプラグインハイブリッド電気車両であって、前記リチウムイオン電池が、前記電池の負電極中に項目1～10のいずれか一項又は項目18に記載の表面変性炭素質粒子材料を活物質として含む、車両。

34 前記炭素質粒子材料が、グラファイト質材料を含む、項目33に記載の電気車両、ハイブリッド電気車両又はプラグインハイブリッド電気車両。

35 前記炭素質粒子材料のコア粒子が、非グラファイト質粒子を含む、項目33に記載の電気車両、ハイブリッド電気車両又はプラグインハイブリッド電気車両。

36 項目1～10のいずれか一項又は項目18に記載の表面変性炭素質粒子材料を孔形成性材料として含む、セラミック、セラミック前駆体材料又はグリーン材料。

37 液体、及び、親水性非グラファイト質炭素コーティングを有する炭素質コア粒子を含む表面変性炭素質粒子材料を含む、分散体であって、粘度が低く、好ましくは、40質量％の前記炭素質材料を含有している分散体の粘度が、2,000～4,000  $\text{mPa}\cdot\text{s}$ であり、又は、2,000～3,000  $\text{mPa}\cdot\text{s}$ であり、又は、2,300～2,600  $\text{mPa}\cdot\text{s}$ である、分散体。

38 前記表面変性炭素質粒子材料は、

(i) BET SSAが49  $\text{m}^2/\text{g}$ 未満、好ましくは25  $\text{m}^2/\text{g}$ 未満又は10  $\text{m}^2/\text{g}$ 未満であり、及び／又は、

(ii) 酸素含有分が約200 ppm超、約400 ppm超、約600 ppm超、約7

0 0 p p m 超又は約 8 0 0 p p m 超である  
ことを特徴とする、項目 3 7 に記載の分散体。

3 9 表面変性炭素質粒子材料が、項目 1 ~ 1 0 のいずれか一項又は項目 1 8 に規定されたとおりである、項目 3 7 又は 3 8 に記載の分散体。

4 0 未変性炭素質粒子を更に含み、前記表面変性炭素質粒子が、炭素質粒子の総量の 1 0 ~ 9 9 w t . %、又は、炭素質粒子の総量の 2 0 ~ 9 0 %、又は、炭素質粒子の総量の 3 0 ~ 8 5 w t . % の範囲の量で存在する、項目 3 7 ~ 3 9 のいずれか一項に記載の分散体。

4 1 前記表面変性炭素質粒子の平均粒子サイズ ( $D_{50}$ ) が、 $0.5 \sim 100 \mu m$ 、又は、 $1 \sim 50 \mu m$  の範囲にある、項目 1 ~ 1 0 のいずれか一項又は項目 1 8 に記載の表面変性炭素質粒子材料、又は、項目 3 7 ~ 4 0 のいずれか一項に記載の分散体。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

親水性非グラファイト質炭素コーティングを有する炭素質コア粒子を含む、表面変性炭素質粒子材料であって、前記表面変性炭素質粒子材料は、BET 比表面積 (BET SSA) が、 $49 m^2 / g$  未満である、表面変性炭素質粒子材料。

【請求項 2】

(i) 3 秒後接触角が、 $90^\circ$  未満、及び / 又は、5 秒後接触角が  $60^\circ$  未満であり、並びに / 又は、

(ii) 前記表面変性炭素質粒子材料の表面エネルギーが、少なくとも  $59 mJ / m^2$  である

ことを特徴とする濡れ性能を更に有する、請求項 1 に記載の表面変性炭素質粒子材料。

【請求項 3】

(i) スプリングバック比が、 $15 \sim 75 \%$  であり、及び / 又は

(ii) 多環芳香族炭化水素 (PAH) 濃度が、 $200 mg / kg$  未満であり、及び / 又は

(iii) 酸素含有分が、 $200 p p m$  超であり、及び / 又は

(iv) BET 表面積が、 $0.5 \sim 5 m^2 / g$  であり、及び / 又は

(v) メソポア面積が、 $5.0 m^2 / g$  未満であり、及び / 又は、

(vi) キシレン密度が、 $2.1 \sim 2.260 g / cm^3$  であり、及び / 又は、

(vii) 励起波長が  $632.8 nm$  であるレーザを用いて測定されるときに、 $I_D / I_G$  比 ( $R(I_D / I_G)$ ) が、 $0.3$  超であり、及び / 又は

(viii) 平均粒子サイズ ( $D_{50}$ ) が、 $0.5 \sim 100 \mu m$  である

ことを更に特徴とする、請求項 1 又は 2 に記載の表面変性炭素質粒子材料。

【請求項 4】

前記炭素質コア粒子は、天然グラファイト、合成グラファイト、コークス、硬質炭素、グラファイト化微細コークス、それらの混合物、又は、ケイ素、スズ、ビスマス、アンチモン、アルミニウム、銀、 $SiO_x$  ( $x = 0.2 \sim 1.8$ ) 若しくは  $SnO_2$  粒子を更に含有しているか炭素粒子の組成物から選ばれる、請求項 1 ~ 3 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料。

【請求項 5】

前記炭素質コア粒子が、合成グラファイト粒子、又は、合成グラファイト粒子とケイ素粒子との混合物である、請求項 4 に記載の表面変性炭素質粒子材料。

【請求項 6】

前記炭素コーティングが、酸化された非晶性炭素を含む、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項

に記載の表面変性炭素質粒子材料。

【請求項 7】

請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料の調製方法であって、前記炭素質粒子に、

(a) 非グラファイト質炭素によりコーティングをし、そして

(b) 工程 (a) により得られたコーティングされている炭素質粒子材料の親水性を増加するための酸化処理を施す、方法。

【請求項 8】

工程 (a) の非グラファイト質炭素コーティングを、化学気相成長 (CVD)、物理気相成長 (PVD)、ピッチコーティング、熱分解、原子層堆積 (ALD)、レーザアブレーション、スパッタリング又は蒸着から選ばれる方法により得る、請求項 7 に記載の方法。

【請求項 9】

工程 (a) の非グラファイト質炭素コーティングを、化学気相成長 (CVD) により得て、かつ前記炭素質粒子材料を、不活性キャリアガスと混合された炭化水素ガス又はアルコール蒸気と 10 ~ 180 分間の範囲の時間接触させることにより、前記化学気相成長を行う、請求項 7 又は 8 に記載の方法。

【請求項 10】

工程 (a) から得られた炭素質粒子材料を、気相 / 固相法において、空気、二酸化炭素、水蒸気、酸素、オゾン若しくはそれらの任意の組合せを接触させるか、又は、別には、液相 / 固相法において、水性過酸化水素若しくは液相中に存在する他の酸化剤と接触させるかのいずれかにより、前記酸化処理工程 (b) を行う、請求項 7 ~ 9 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 11】

a) 工程 (b) の後に得られる表面変性炭素質粒子材料の BET SSA は、

(i) 出発炭素質粒子材料の BET SSA より小さく、及び / 又は、

(ii) 工程 (a) から得られる非グラファイト質炭素コート炭素質粒子材料の BET SSA 以上であり、

及び / 又は、

b) 工程 (b) から得られる表面変性炭素質粒子材料の  $D_{90}$  粒度分布は、

(i) 工程 (a) から得られる非グラファイト質炭素コート炭素質粒子材料の  $D_{90}$  粒度分布と同様であり、及び / 又は、

(ii) 出発炭素質粒子材料の  $D_{90}$  粒度分布と同様であり、

及び / 又は、

c) 工程 (b) の後に得られる表面変性炭素質粒子材料のメソポア面積は、

(i) 出発炭素質粒子材料のメソポア面積よりも小さく、及び / 又は、

(ii) 工程 (a) から得られる非グラファイト質炭素コート炭素質粒子材料のメソポア面積以上であり、及び / 又は、

d) 工程 (b) から得られる表面変性炭素質粒子材料のキシレン密度が、出発炭素質粒子材料のキシレン密度と比較して、1 ~ 7 % 低下されている、請求項 7 ~ 10 のいずれか一項に記載の方法。

【請求項 12】

請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料を含む組成物。

【請求項 13】

請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の 1 種以上の追加の表面変性炭素質粒子材料と混合され、前記 1 種以上の追加の表面変性炭素質粒子材料が、第一の表面変性炭素質粒子材料とは異なる、請求項 12 に記載の組成物。

【請求項 14】

請求項 12 又は 13 に記載の組成物であって、

- ( i ) 他の未変性若しくは変性の炭素質粒子材料との混合物の状態であるか、又は、  
 ( i i ) 粒子形態の他の非炭素質材料若しくはそれらの組合せとの混合物の状態である

、  
 組成物。

【請求項 15】

請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料の、リチウムイオン電池の負電極材料を調製するための使用。

【請求項 16】

請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料を活物質として含む、リチウムイオン電池の負電極。

【請求項 17】

前記炭素質コア粒子は、天然グラファイト及び／又は合成グラファイトを含み、かつ前記負電極は、追加の天然グラファイト、合成グラファイト及び／又はグラファイト化微細コークスをさらに含む、請求項 16 に記載のリチウムイオン電池の負電極。

【請求項 18】

( i ) 前記追加の天然グラファイト及び／又は合成グラファイトは負電極の 2 質量 % ～ 10 質量 % の範囲の量で存在し、及び／又は  
 ( i i ) 前記追加の天然グラファイト、合成グラファイト及び／又はグラファイト化微細コークスは、ピッチコートされたものである、  
 請求項 17 に記載のリチウムイオン電池の負電極。

【請求項 19】

前記追加の天然グラファイト及び／又は合成グラファイトの平均粒子サイズは、平均粒子サイズ ( $D_{50}$ ) が  $0.5 \sim 100 \mu m$  又は  $1 \sim 20 \mu m$  の範囲である、請求項 18 に記載のリチウムイオン電池の負電極。

【請求項 20】

電池の負電極に請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料を含む、リチウムイオン電池。

【請求項 21】

リチウムイオン負電極半電池試験において決定される一回目のサイクルでの非可逆的な電荷損失が、20 % 未満であり、及び／又は、リチウムイオン負電極半電池試験において決定される二回目のサイクルでの非可逆的な電荷損失が、6 % 未満である、請求項 20 に記載のリチウムイオン電池。

【請求項 22】

5 ～ 95 質量 % の質量比で、請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料を含む、ポリマー複合材料、又は

請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料を含む、エネルギー貯蔵デバイス、又は

請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料を含む、炭素ブラシ、又は

請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料を孔形成性材料として含む、セラミック、セラミック前駆体材料又はグリーン材料。

【請求項 23】

リチウムイオン電池を含む、電気車両、ハイブリッド電気車両又はプラグインハイブリッド電気車両であって、前記リチウムイオン電池が、前記電池の負電極中に請求項 1 ～ 6 のいずれか一項に記載の表面変性炭素質粒子材料を活物質として含む、車両。

【請求項 24】

前記表面変性炭素質粒子材料が、グラファイト質材料を含むか、又は、前記表面変性炭素質粒子材料のコア粒子が、非グラファイト質粒子を含む、請求項 23 に記載の電気車両、ハイブリッド電気車両又はプラグインハイブリッド電気車両。

【請求項 25】



液体、及び、親水性非グラファイト質炭素質コーティングを有する炭素質コア粒子を含む表面変性炭素質粒子材料を含む、分散体であって、40質量%の前記表面変性炭素質粒子材料を含有している分散体の粘度が、 $2,000 \sim 4,000 \text{ mPa} \cdot \text{s}$ である、分散体。

【請求項26】

(a) 前記表面変性炭素質粒子材料は、

(i) BET SSAが $49 \text{ m}^2 / \text{g}$ 未満であり、及び／又は、

(ii) 酸素含有分が $200 \text{ ppm}$ 超である

ことを特徴とするか、又は

(b) 前記表面変性炭素質粒子材料が、請求項1～6のいずれか一項に規定されるとおりである、

請求項25に記載の分散体。

【請求項27】

未変性炭素質粒子を更に含み、前記表面変性炭素質粒子材料が、炭素質粒子の総量の $10 \sim 99 \text{ wt} \cdot \%$ の範囲の量で存在する、請求項25又は26に記載の分散体。