

【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 7 部門第 2 区分

【発行日】平成 27 年 7 月 30 日 (2015.7.30)

【公表番号】特表 2014-523646 (P2014-523646A)

【公表日】平成 26 年 9 月 11 日 (2014.9.11)

【年通号数】公開・登録公報 2014-049

【出願番号】特願 2014-518618 (P2014-518618)

【国際特許分類】

H 0 1 G 11/30 (2013.01)

C 3 0 B 29/38 (2006.01)

C 3 0 B 7/10 (2006.01)

H 0 1 G 11/60 (2013.01)

H 0 1 G 11/68 (2013.01)

H 0 1 G 11/24 (2013.01)

【 F I 】

H 0 1 G 11/30

C 3 0 B 29/38 Z

C 3 0 B 7/10

H 0 1 G 11/60

H 0 1 G 11/68

H 0 1 G 11/24

【手続補正書】

【提出日】平成 27 年 6 月 9 日 (2015.6.9)

【手続補正 1】

【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】

( a ) アノード電極 ;

( b ) カソード電極 ;

( c ) 前記アノード電極と前記カソード電極との間のセパレーター ;

( d ) 前記アノード電極と前記カソード電極との間の電解質

を含む、電気エネルギー蓄積装置であって、

少なくとも 1 つの電極が、無視できる量のハロゲン化物不純物を有する、遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物を含有し、

前記遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物が、アルカリ金属添加剤をさらに含有する、

電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 2】

前記アノード電極およびカソード電極の両方が、前記無視できる量のハロゲン化物不純物を有する、前記遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物を含有する、請求項 1 に記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 3】

前記アルカリ金属添加剤が、Li、Na、および K からなる群から選択される少なくとも 1 つのアルカリ金属を含む、請求項 2 に記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 4】

前記アノード電極、前記カソード電極、前記セパレーター、および前記電解質を封入するハウジングの外側に露出した、各電極に接続した電気端子をさらに含む、請求項 1 から 3 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 5】

前記アノード電極、前記セパレーター、および前記カソード電極の複数のセットのスタックをさらに含み、前記スタックは、前記電解質を有するハウジング中に封入されており、電気端子は、最外側の電極に接続しており、かつ前記ハウジングの外側に露出している、請求項 1 から 3 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 6】

前記電極が、金属箔上に形成された、遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物の粒子を含有する多孔性膜を含む、請求項 1 から 5 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 7】

前記多孔性膜が、10重量パーセント超の遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物を含有する、請求項 6 に記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 8】

前記金属箔は、アルミニウムを含む、請求項 6 または請求項 7 に記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 9】

前記遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の前記混合物の粒子が、 $10\text{ m}^2/\text{g}$  超の比表面積を有する、請求項 1 から 8 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 10】

前記遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の前記混合物の粒子が、100 nm 未満のサイズを有する、請求項 1 から 9 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 11】

前記遷移金属窒化物が、窒化バナジウムを含む、請求項 1 から 10 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 12】

前記電解質が、炭酸プロピレンまたはアセトニトリルを含む、請求項 1 から 11 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 13】

前記電解質が、塩基性溶液である、請求項 1 から 12 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 14】

前記遷移金属窒化物が、超臨界アンモニア中で合成される、請求項 1 から 13 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 15】

第1の電極および第2の電極を有する電気エネルギー蓄積装置であって、前記電極の少なくとも1つが、

(a) 反応器において1つまたは複数の遷移金属を含有する1つまたは複数の原料物質を供給することと、

(b) 前記反応器においてアンモニアを供給することと、

(c) 前記原料物質と前記アンモニアとの間の反応を増強させる触媒剤を任意選択で供給することと、

(d) 前記反応器を加熱し、前記アンモニアの超臨界状態を達成することと

を含む方法によって合成された遷移金属窒化物粒子を使用して形成される、電気エネルギー蓄積装置。

【請求項 16】

前記触媒剤が、Li、Na、K、Ca、Mg および Al から選択される少なくとも1つを含有する、請求項 15 に記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 17】

前記反応器が、Ni - Cr ベースの合金から作製されたものである、請求項 15 または請求項 16 に記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 18】

前記反応器を、132 または 132 より高い温度に加熱する、請求項 15 から 17 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 19】

前記反応器が、密封され、加熱したアンモニアにより自己加圧されるバッチ反応器である、請求項 15 から 18 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 20】

前記反応器が、合成の間に前記原料物質、前記アンモニア、もしくは前記触媒剤の供給またはガス、生成物、もしくは副生成物の排出を可能とするセミバッチ反応器である、請求項 15 から 18 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 21】

前記遷移金属が、V である、請求項 15 から 20 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 22】

前記原料物質が、金属バナジウム、酸化バナジウム、五酸化バナジウム、メタバナジウム酸アンモニウム、またはその 1 つもしくは複数の混合物である、請求項 15 から 21 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 23】

粒径が 10 nm 未満である、請求項 15 から 22 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 24】

前記粒子の比表面積が、 $10 \text{ m}^2 / \text{g}$  超である、請求項 15 から 23 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 25】

前記粒子の表面が酸化されている、請求項 23 から 24 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 26】

前記遷移金属窒化物が、ハロゲン不純物を含有しない、請求項 1 から 25 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【請求項 27】

前記遷移金属窒化物が 1 ppm 未満のハロゲン化物不純物を含有する、請求項 1 から 25 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0014

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0014】

本発明によって提供される超臨界アンモニア中で遷移金属窒化物を合成する新規な方法において、遷移金属を含有する原料物質を、アンモニアおよび触媒剤と一緒に高压反応器に供給する。還元剤として作用する触媒剤は、アルカリ金属、アルカリ土類金属またはアルミニウムから選択される。次いで、反応器を 132 または 132 超で加熱し、アンモニアの超臨界状態を達成する。反応器は、加熱によってアンモニアの自己加圧を達成するために典型的には密封される。しかし、供給源、触媒剤またはアンモニアのさらなる給送を可能とする半開放の反応器がまた使用可能である。触媒した超臨界アンモニアの高い反応性は、通常の方法より低い温度にて遷移金属を窒化するのに非常に有効であり、した

がって、例えば、より高温で粒子を焼結する工程より小さな粒径の触媒粒子を生成する。

本発明の好ましい実施形態において、例えば以下の項目が提供される。

(項目1)

(a) アノード電極；

(b) カソード電極；

(c) 前記アノード電極と前記カソード電極との間のセパレーター；

(d) 前記アノード電極と前記カソード電極との間の電解質

を含む、電気エネルギー蓄積装置であって、

少なくとも1つの電極が、無視できる量のハロゲン化物不純物を有する、遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物を含有する、電気エネルギー蓄積装置。

(項目2)

前記アノード電極およびカソード電極の両方が、前記無視できる量のハロゲン化物不純物を有する、前記遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物を含有する、項目1に記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目3)

前記遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物が、アルカリ金属添加剤をさらに含有する、項目1または項目2に記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目4)

前記アルカリ金属添加剤が、Li、Na、およびKからなる群から選択される少なくとも1つのアルカリ金属を含む、項目3に記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目5)

前記アノード電極、前記カソード電極、前記セパレーター、および前記電解質を封入するハウジングの外側に露出した、各電極に接続した電気端子をさらに含む、項目1から4のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目6)

前記アノード電極、前記セパレーター、および前記カソード電極の複数のセットのスタックをさらに含み、前記スタックは、前記電解質を有するハウジング中に封入されており、電気端子は、最外側の電極に接続しており、かつ前記ハウジングの外側に露出している、項目1から4のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目7)

前記電極が、金属箔上に形成された、遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物の粒子を含有する多孔性膜を含む、項目1から6のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目8)

前記多孔性膜が、10重量パーセント超の遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の混合物を含有する、項目7に記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目9)

金属箔をさらに含み、前記金属箔は、アルミニウムを含む、項目7または項目8に記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目10)

前記遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の前記混合物の粒子が、 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 超の比表面積を有する、項目1から9のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目11)

前記遷移金属窒化物または遷移金属窒化物の前記混合物の粒子が、100nm未満のサイズを有する、項目1から10のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目12)

前記遷移金属窒化物が、窒化バナジウムを含む、項目1から11のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目13)

前記電解質が、炭酸プロピレンまたはアセトニトリルを含む、項目1から12のいずれか

に記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目14)

前記電解質が、塩基性溶液である、項目1から13のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目15)

前記遷移金属窒化物が、超臨界アンモニア中で合成される、項目1から14のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目16)

第1の電極および第2の電極を有する電気エネルギー蓄積装置であって、前記電極の少なくとも1つが、

(a) 反応器において1つまたは複数の遷移金属を含有する1つまたは複数の原料物質を供給することと、

(b) 前記反応器においてアンモニアを供給することと、

(c) 前記原料物質と前記アンモニアとの間の反応を増強させる触媒剤を任意選択で供給することと、

(d) 前記反応器を加熱し、前記アンモニアの超臨界状態を達成することと

を含む方法によって合成された遷移金属窒化物粒子を使用して形成される、電気エネルギー蓄積装置。

(項目17)

前記触媒剤が、Li、Na、K、Ca、MgおよびAlから選択される少なくとも1つを含有する、項目16に記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目18)

前記反応器が、Ni-Crベースの合金から作製されたものである、項目16または項目17に記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目19)

前記反応器を、132 または132 より高い温度に加熱する、項目16から18のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目20)

前記反応器が、密封され、加熱したアンモニアにより自己加圧されるバッチ反応器である、項目16から19のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目21)

前記反応器が、合成の間に前記原料物質、前記アンモニア、もしくは前記触媒剤の供給またはガス、生成物、もしくは副生成物の排出を可能とするセミバッチ反応器である、項目16から19のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目22)

前記遷移金属が、Vである、項目16から21のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目23)

前記原料物質が、金属バナジウム、酸化バナジウム、五酸化バナジウム、メタバナジウム酸アンモニウム、またはその1つもしくは複数の混合物である、項目16から22のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目24)

粒径が10nm未満である、項目16から23のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目25)

前記粒子の比表面積が、 $10\text{ m}^2/\text{g}$ 超である、項目16から24のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

(項目26)

前記粒子の表面が酸化されている、項目24から25のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。

( 項目 2 7 )

前記粒子が、ハロゲン不純物を含有しない、項目 2 4 から 2 6 のいずれかに記載の電気エネルギー蓄積装置。