(19) **Bundesrepublik Deutschland**
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 699 33 126 T2** 2007.08.02

(12) # Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) **EP 1 100 849 B1**
(21) Deutsches Aktenzeichen: **699 33 126.9**
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US99/16581**
(96) Europäisches Aktenzeichen: **99 937 378.0**
(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2000/005312**
(86) PCT-Anmeldetag: **22.07.1999**
(87) Veröffentlichungstag der PCT-Anmeldung: **03.02.2000**
(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **23.05.2001**
(97) Veröffentlichungstag der Patenterteilung beim EPA: **06.09.2006**
(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **02.08.2007**

(51) Int Cl.[8]: ***C09C 1/56*** (2006.01)

(30) Unionspriorität:
93984 P **24.07.1998** **US**

(84) Benannte Vertragsstaaten:
AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LI, LU, MC, NL, PT, SE

(73) Patentinhaber:
Cabot Corp., Boston, Mass., US

(74) Vertreter:
Fuchs Patentanwälte, 81545 München

(72) Erfinder:
MEHOS, John, Gregory, Westford, MA 01886, US;
TU, Hairuo, Burlington, MA 01803, US

(54) Bezeichnung: **Verfahren zur Herstellung von mit Silika beschichteten Kohlenstoffprodukten**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft Silika-beschichtete Kohlenstoffprodukte und Verfahren zur Herstellung von Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukten. Vorzugsweise werden Kohlenstoffprodukte wie Ruß ohne Bildung freistehender Silikapartikel mit Silika beschichtet. Die vorliegende Erfindung stellt auch ein Mittel bereit, während der Herstellung von Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukten Metallkationen zu entfernen.

[0002] Ruße finden breite Verwendung als Pigmente, Füllstoffe und Verstärkungsmittel beim Zusammensetzen und Herstellen von elastomeren Verbindungen, die in der Herstellung von Reifen verwendet werden. Sie werden im Allgemeinen in einem Reaktor vom Furnace-Typ durch Pyrolysieren eines Kohlenwasserstoffausgangsmaterials mit heißen Verbrennungsgasen hergestellt, wobei Verbrennungsprodukte erzeugt werden, die partikulären Ruß enthalten. Ruß liegt in Form von Aggregaten vor. Die Aggregate wiederum sind aus Rußpartikeln gebildet. Ruße werden im Allgemeinen aufgrund analytischer Eigenschaften charakterisiert, einschließlich, jedoch nicht darauf beschränkt, der Partikelgröße und der spezifischen Oberfläche, der Aggregatgröße, der Form und der Verteilung und der chemischen und physikalischen Eigenschaften der Oberfläche. Die Eigenschaften von Rußen werden im Allgemeinen durch Tests bestimmt, die dem Fachmann bekannt sind. Zum Beispiel ist die Oberflächenstickstoffadsorption (gemessen mittels des ASTM Testverfahrens D3037 – Methode A) eine Messung der spezifischen Oberfläche. Dibutylphthalatabsorption von zerstoßenem (crushed) (CDBP) und nicht zerstoßenem (DBP) Ruß (gemessen mittels der ASTM Testverfahren D3493-86 bzw. D2414-93) betreffen die Aggregatstruktur. Die Eigenschaften eines gegebenen Rußes hängen von den Herstellungsbedingungen ab und können modifiziert werden, beispielsweise durch Verändern von Temperatur, Druck, Ausgangsmaterial, Verweilzeit, Quench-Temperatur, Durchsatz und anderer Parameter.

[0003] Bei der Herstellung von Reifen ist zur Gestaltung der Lauffläche und anderer Teile des Reifens üblicherweise der Einsatz rußhaltiger Verbindungen erwünscht. Für eine geeignete Laufflächenverbindung wird beispielsweise ein Elastomer eingesetzt, das so kompundiert ist, dass es bei verschiedenen Temperaturen einen hohen Abriebwiderstand und ein gutes Hysteresegleichgewicht aufweist. Ein Reifen, der einen hohen Abriebwiderstand aufweist, ist erwünscht, da der Abriebwiderstand proportional zur Haltbarkeit des Reifens ist. Die physikalischen Eigenschaften des Rußes können den Abriebwiderstand und die Hysterese der Laufflächenverbindung direkt beeinflussen. Im Allgemeinen verleiht ein Ruß mit einer großen Oberfläche und einer kleinen Partikelgröße der Laufflächenverbindung hohen Abriebwiderstand und Hysterese. Die Ladung des Rußes beeinflusst den Abriebwiderstand der elastomeren Verbindungen ebenfalls. Der Abriebwiderstand nimmt mit zunehmender Ladung zu, zumindest bis zu einem optimalen Punkt, über den hinaus der Abriebwiderstand tatsächlich wieder abnimmt.

[0004] Die Hysterese einer elastomeren Verbindung steht in Relation zu der unter zyklischer Deformation dissipierten Energie. Mit anderen Worten, die Hysterese einer elastomeren Verbindung steht in Relation zur Differenz zwischen der zum Deformieren des Elastomeren aufgewendeten Energie und der Energie, die freigesetzt wird, wenn es seinen ursprünglichen undeformierten Zustand wiedergewinnt. Die Hysterese ist durch einen Dielektrizitätsverlust, tan δ, charakterisiert, der ein Verhältnis des Verlustmoduls zum Speichermodul ist (d. h. des Viskositätsmoduls zum Elastizitäsmodul). Reifen, die mit einer Reifenlaufflächenverbindung hergestellt sind, die gemessen bei höheren Temperaturen, beispielsweise 40°C oder höher, eine geringere Hysterese aufweist, weisen einen verminderten Rollwiderstand auf, was wiederum zu einem verminderten Brennstoffverbrauch des Fahrzeugs, bei dem der Reifen verwendet wird, führt. Gleichzeitig führt eine Reifenlauffläche mit einem bei niedriger Temperatur, beispielsweise 0° oder niedriger, gemessenen höheren Hysteresewert zu einem Reifen mit hoher Nasstraktion und Rutschfestigkeit, was die Fahrsicherheit erhöht. Somit kann man bei einer Reifenlaufflächenverbindung, die bei hohen Temperaturen eine niedrige Hysterese und bei niedrigen Temperaturen eine hohe Hysterese zeigt, davon sprechen, dass sie ein gutes Hysteresegleichgewicht aufweist.

[0005] Silika wird ebenfalls als ein Verstärkungsmittel (oder Füllstoff) für Elastomere verwendet. Die Verwendung von Silika alleine als ein Verstärkungsmittel für Elastomere führt jedoch zu einem schlechten Verhalten im Vergleich zu den Ergebnissen, die mit Ruß alleine als Verstärkungsmittel erhalten werden. Es wird theorisiert, dass eine starke Füllstoff-Füllstoff-Wechselwirkung und eine schwache Füllstoff-Elastomer-Wechselwirkung für das schlechte Verhalten des Silikas verantwortlich ist. Die Silika-Elastomer-Wechselwirkung kann durch chemisches Binden der beiden mit einem chemischen Kopplungsmittel wie beispielsweise Bis-(3-triethoxysilylpropyl)-tetrasulfan (TESPT), das im Handel von Witco, USA als A-1210 und von Degussa AG, Deutschland, als Si-69 erhältlich ist, verbessert werden. Kopplungsmittel wie TESPT bilden eine chemische Verknüpfung zwischen dem Elastomer und dem Silika, wodurch das Silika an das Elastomer gekoppelt wird.

[0006] Wenn das Silika an das Elastomer chemisch gekoppelt wird, werden bestimmte Verhaltenseigenschaften der resultierenden Elastomerzusammensetzung verbessert. Wenn sie in Fahrzeugreifen eingearbeitet werden, stellen solche elastomeren Verbindungen ein verbessertes Hysteresegleichgewicht bereit. Elastomerverbindungen, die Silika als primäres Verstärkungsmittel enthalten, zeigen jedoch eine geringe Wärmeleitfähigkeit, hohen elektrischen Widerstand, hohe Dichte und schlechte Verarbeitbarkeit.

[0007] Wenn Ruß alleine als Verstärkungsmittel in elastomeren Zusammensetzungen verwendet wird, koppelt es nicht chemisch an das Elastomer, jedoch stellt die Rußoberfläche viele Stellen für eine Wechselwirkung mit dem Elastomer bereit. Obwohl die Verwendung eines Kopplungsmittels mit Ruß eine gewisse Verbesserung im Verhalten elastomerer Zusammensetzungen bereitstellen kann, ist die Verbesserung nicht vergleichbar mit derjenigen, die erhalten wird, wenn ein Kopplungsmittel mit Silika verwendet wird.

[0008] Ein Verfahren, um die Eigenschaften von Ruß zu verbessern, so dass seine Eigenschaften mit denjenigen von Silika vergleichbar sind, ist die Beschichtung des Rußes mit Silika. Ein Verfahren wird in der japanischen ungeprüften Patentveröffentlichung (Kokai) Nr. 63-63755 beschrieben. Der Ruß wird in Wasser dispergiert, anschließend auf einen pH von 10 bis 11 eingestellt und die Temperatur wird bei mindestens 70°C gehalten. Während dieser Zeit wird eine verdünnte Natriumsilikatlösung zugegeben. Dann wird durch Senken des pH auf 6,5 bis 7 das Natriumsilikat hydrolysiert, was bewirkt, dass amorphes Silika auf der Oberfläche der Rußpartikel haftet oder sich auf diesen niederschlägt. Die Aufschlämmung wird dann abfiltriert und die beschichteten Rußpartikel werden gewaschen, um zu versuchen, aufgelöstes Natrium zu entfernen. Die Silikabeschichteten Ruße werden dann getrocknet. Ein ähnliches Verfahren zur Herstellung einer mit Silika behandelten Rußoberfläche, welches das Dispergieren von Ruß in Wasser, Umsetzen eines Metallsilikats und einer Säure in der Dispersion und anschließendes Bringen des pHs der Dispersion auf nicht mehr als 7 umfasst, ist ausführlich im europäischen Patent Nr. 0 799 867 beschrieben. Aus dem UK Patent Nr. 972,626 und dem US Patent Nr. 5,679,728 geht hervor, dass derartige Silika-beschichtete Ruße in Kautschukformulierungen verwendet werden können. In der WO 98/13428 sind ebenfalls Silika-beschichtete Ruße beschrieben, die in elastomeren Zusammensetzungen enthalten sein können.

[0009] Ein Nachteil eines solchen Verfahrens zur Herstellung eines Silika-beschichteten Rußes ist die Wahrscheinlichkeit, dass freistehende Silikapartikel gebildet werden. Natriumsilikatlösungen enthalten sowohl Kieselsäure als auch Silikapartikel, hauptsächlich mit einem Durchmesser von 2–3 nm, wobei jedoch einige 5–10 nm Durchmesser groß sein können. Da der pH erniedrigt ist, tendieren größere Silikapartikel dazu, noch größer zu werden und kleine Partikel dazu, zu verschwinden. Es gibt daher eine hohe Wahrscheinlichkeit, dass zusätzlich zu Silika-beschichtetem Ruß eine große Anzahl von freistehenden Silikapartikeln vorliegt. Freistehendes Silika ist unerwünscht, da Füllstoff-Füllstoff-Wechselwirkungen in Kautschukverbindungen dann hoch sind, was eine Verschlechterung des Verhaltens von Reifenlaufflächenverbindungen verursacht.

[0010] Ein anderer Nachteil des in Kokai Nr. 63-63755 beschriebenen Verfahrens ist, dass der Silika-beschichtete Ruß filtriert und gewaschen werden muss, um zu versuchen, aufgelöstes Natrium zu entfernen, das in Form von Dinatriumoxid (Na_2O) oder Natriumhydroxid (NaOH) vorliegt, welche beide korrosiv sind. Aufgrund der kleinen Partikelgröße sind Rußaufschlämmungen schwierig zu filtrieren und Filtrationsschritte zum Isolieren des Silika-beschichteten Rußes sind zeitaufwändig und kostspielig.

ZUSAMMENFASSUNG DER VORLIEGENDEN ERFINDUNG

[0011] In einer erfindungsgemäßen Ausführungsform betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Herstellung eines Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukts. Das Verfahren umfasst das In-Kontakt-Bringen eines wässerigen Mediums und eines Kohlenstoffprodukts mit einer Lösung, die ein Silikat umfasst, das weniger als etwa 750 ppm Metallionen aufweist, und zwar für einen Zeitraum und bei einer Temperatur, die ausreichen, um das Silika-beschichtete Kohlenstoffprodukt zu bilden. Vorzugsweise ist das wässerige Medium eine wässerige Aufschlämmung, die das Kohlenstoffprodukt enthält.

[0012] In einer anderen erfindungsgemäßen Ausführungsform betrifft die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Herstellung eines Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukts, in dem ein wässeriges Medium und ein Kohlenstoffprodukt mit einer Lösung in Kontakt gebracht werden, welche Monokieselsäure umfasst, und zwar für einen Zeitraum und bei einer Temperatur, die zur Bildung eines Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukts ausreichen.

[0013] Die vorliegende Erfindung betrifft auch ein Verfahren zur Herstellung eines Silikabeschichteten Kohlenstoffprodukts, das umfasst, dass Metallionen in einer Lösung, welche Metallsilikat umfasst, durch Wasser-

stoffionen ausgetauscht werden und dass ein wässeriges Medium und ein Kohlenstoffprodukt mit der Lösung für einen Zeitraum und bei einer Temperatur, welche zur Bildung eines Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukts ausreichen, in Kontakt gebracht werden.

[0014] Die vorliegende Erfindung betrifft auch eine Vielzahl von Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukten, wobei jedes Silika-beschichtete Kohlenstoffprodukt im Wesentlichen und gleichförmig mit Silika beschichtet ist, und die Vielzahl der Silika-beschichteten Produkte im Wesentlichen in Abwesenheit freier Silikapartikel und/oder Metallionen vorliegen.

[0015] Sowohl die vorstehende allgemeine Beschreibung als auch die folgende ausführliche Beschreibung sind lediglich beispielhaft und dienen der Erläuterung und sollen die vorliegende Erfindung, so wie sie beansprucht wird, näher erklären.

KURZE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

[0016] Fig. 1 ist ein Mikrophotogramm eines veraschten Silika-beschichteten Rußes in 200.000-facher Vergrößerung.

[0017] Fig. 2 ist ein Mikrophotogramm, das eine veraschte Probe eines zweiten Silikabeschichteten Rußes in 200.000-facher Vergrößerung zeigt.

AUSFÜHRLICHE BESCHREIBUNG DER VORLIEGENDEN ERFINDUNG

[0018] Im Allgemeinen betrifft die vorliegende Erfindung Verfahren zur Herstellung eines Silikabeschichteten Kohlenstoffprodukts und darüber hinaus betrifft sie Silika-beschichtete Kohlenstoffprodukte, welche vorzugsweise auf dem Kohlenstoffprodukt eine gleichförmigere Silikabeschichtung bereitstellen, wobei vorzugsweise im Wesentlichen keine freien Silikapartikel vorliegen.

[0019] Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung kann das Kohlenstoffprodukt Ruß, Graphitpulver, eine Graphitfaser, eine Kohlenstofffaser, ein Kohlenstofftuch bzw. -gewebe, ein glasartiges Kohlenstoffprodukt, und ein aktiviertes Kohlenstoffprodukt, wie beispielsweise aktivierter Kohlenstoff, Aktivkohle, und Gemische davon sein. Fein zerteilte Formen der zuvor genannten sind bevorzugt. Vorzugsweise ist das Kohlenstoffprodukt Ruß.

[0020] Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung kann das Kohlenstoffprodukt auch ein Aggregat sein, welches eine Kohlenstoffphase und eine Phase mit siliziumhaltigen Spezies umfasst, wie es in den US Patenten Nr. 08/446,141 und 08/446,142 und der PCT-Veröffentlichung Nr. WO 96/37547 beschrieben ist. Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung kann das Kohlenstoffprodukt auch ein Aggregat sein, welches eine Phase mit metallhaltigen Spezies und eine Kohlenstoffphase umfasst, wie die in der US Anmeldung Nr. 08/828,785 beschriebenen, welche hiermit durch Bezugnahme in ihrer Gesamtheit aufgenommen wird.

[0021] Jedes der Kohlenstoffprodukte kann ein oder mehrere organische Gruppen aufweisen, die auf dem Kohlenstoffprodukt gebunden sind. Beispiele für solche organischen Gruppen umfassen organische Gruppen, die eine aromatische Gruppe oder eine C_1-C_{12}-Alkylgruppe umfassen, die vorzugsweise auf dem bzw. an das Kohlenstoffprodukt direkt gebunden sind. Organische Gruppen, welche die Wasserdispergierbarkeit des Kohlenstoffproduktes fördern, sind besonders bevorzugt, beispielsweise organische Gruppen, die eine aromatische Gruppe mit einer ionischen oder ionisierbaren Gruppe umfassen. Spezielle Beispiele für solche ionischen und ionisierbaren Gruppen umfassen, sind jedoch nicht darauf beschränkt, Sulfonsäuregruppen oder ein Salz davon, Sulfinsäuregruppen oder ein Salz davon, Carbonsäuregruppen oder ein Salz davon, Phosphonsäuregruppen oder ein Salz davon oder eine quaternäre Ammonium- oder Phosphoniumgruppe. Spezielle Beispiele für organische Gruppen sind in den PCT-Veröffentlichungen Nr. WO 96/18696, WO 96/18688, und WO 96/18695 und den US Patenten Nr. 5,554,739, 5,571,311, 5,630,868; 5,672,198; 5,707,432; 5,713,988; 5,803,959; 5,895,522; 5,885,335; 5,851,280 und 5,698,016 beschrieben.

[0022] Wenn das Silika-beschichtete Kohlenstoffprodukt, wie Ruß, in Reifen verwendet werden sollen, beispielsweise in einer Formulierung für Reifenlaufflächen, ist es bevorzugt, dass das Kohlenstoffprodukt ein Ruß ist und eine Stickstoffoberfläche von etwa 90 bis etwa 250 m^2/g und eine äußere Oberfläche oder t-Fläche von etwa 90 bis etwa 150 m^2/g aufweist. Die t-Oberfläche wird gemäß der Probenherstellung und dem Messverfahren bestimmt, welches in ASTM D3037 – Methode A für Stickstoffoberflächen beschrieben ist. Für diese Messung wird die Stickstoffadsorptionsisotherme bis zu 0,55 relativem Druck verlängert. Der relative Druck ist der Druck (P) dividiert durch den Sättigungsdruck (P_0) (der Druck, bei dem der Stickstoff kondensiert). Die Di-

cke der Adsorptionsschicht (t_L) wird dann mittels der Beziehung berechnet:

$$t_L = \frac{13.99}{\sqrt{0.034 - \log\left(\frac{P}{P_0}\right)}}$$

[0023] Das Volumen des adsorbierten Stickstoffs wird dann gegen t_L aufgetragen. Dann wird durch die Datenpunkte für Werte zwischen 3,9 und 6,2 Angström eine Gerade gelegt. Die t-Fläche wird aus der Steigung der Geraden wie folgt erhalten:

t-Fläche (m^2/g) = 15,47 × Steigung

[0024] Der Ruß weist vorzugsweise eine DBP-Absorption von etwa 90 bis etwa 180 ml/100 g auf. Obwohl die Bereiche der Stickstoffoberfläche und der t-Fläche für Ruße repräsentativ sind, welche für Reifenlaufflächenverbindungen verwendet werden, ist die Erfindung nicht auf Rußfüllstoffe mit diesen Spezifikationen beschränkt.

[0025] Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung kann das Kohlenstoffprodukt allgemein jede Stickstoffoberfläche, Parameter und/oder äußere Oberfläche oder t-Fläche aufweisen.

[0026] Bezüglich der Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukte werden wässeriges Medium (z. B. Wasser) und ein Kohlenstoffprodukt in Kontakt gebracht mit einer Lösung, die mindestens ein Silikat enthält, wobei das Silikat weniger als etwa 750 ppm Metallionen enthält. Die wässerigen Medien und das Kohlenstoffprodukt werden für einen Zeitraum und bei einer Temperatur, die zur Bildung der erfindungsgemäßen Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukte ausreichend sind, mit der Lösung, die das Silikat enthält, in Kontakt gebracht. Die wässerigen Medien können das Kohlenstoffprodukt enthalten und können somit in Form einer wässerigen Aufschlämmung vorliegen. Bezüglich der wässerigen Aufschlämmung kann jede beliebige Menge an Kohlenstoffprodukt vorliegen, solange eine wässerige Aufschlämmung aufrecht gehalten wird. Vorzugsweise können in der wässerigen Aufschlämmung von etwa 1 % bis etwa 20 Gew.-% eines Kohlenstoffprodukts vorliegen, bevorzugter von etwa 2 Gew.-% bis etwa 7 Gew.-%, und am meisten bevorzugt können etwa 5 Gew.-% eines Kohlenstoffprodukts in der wässerigen Aufschlämmung vorliegen, wobei die restlichen Prozent Wasser oder eine Flüssigkeit auf Wasserbasis sind.

[0027] Wie zuvor bereits angegeben wurde, können die wässerigen Medien und das Kohlenstoffprodukt separat zugegeben werden oder mit der Lösung, die das Silikat enthält, in Kontakt gebracht werden. Beispielsweise kann das Kohlenstoffprodukt in einen Pelletisierer gegeben und Wasser separat zugefügt werden. Darüber hinaus kann die Lösung, die das Silikat enthält, ebenfalls zu jeder beliebigen Zeit zugefügt werden. Bei einem solchen Verfahren kann die Menge des Kohlenstoffprodukts jede beliebige Menge sein, solange ausreichend wässeriges Medium, beispielsweise Wasser, vorliegt, um die Beschichtung des Kohlenstoffprodukts mit der das Silikat enthaltenden Lösung zu ermöglichen. Beispielsweise können Mengen bis zu 50 Gew.-% Kohlenstoff, bezogen auf das Gewicht sämtlicher vorliegender Komponenten, in einem solchen Pelletisiervorgang verwendet werden. Die Wassermengen, die üblicherweise beim Pelletisieren von Kohlenstoffprodukten verwendet werden, können ausreichen, um die erfindungsgemäßen Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukte zu bilden, sobald die das Silikat enthaltende Lösung zugegeben ist. Typische Mengen können von etwa 100 bis etwa 150 Teilen Wasser pro 100 Teilen Kohlenstoffprodukt umfassen.

[0028] Außer dem Kohlenstoffprodukt können andere Bestandteile in der wässerigen Aufschlämmung vorliegen, wie beispielsweise Dispergiermittel, Surfactants, Stabilisatoren und Puffermittel. Die verschiedenen optionalen Bestandteile können in herkömmlichen Mengen vorliegen und das Vorliegen eines Surfactants kann dabei helfen, das Kohlenstoffprodukt in den wässerigen Medien dispergierbarer zu machen, damit eine gleichförmige Beschichtung des Silikas auf dem Kohlenstoffprodukt erhalten wird. Das Vorliegen eines Surfactants kann nicht notwendig sein, wenn ein Kohlenstoffprodukt verwendet wird, welches eine organische Gruppe enthält oder eine organische Gruppe gebunden aufweist, die das Kohlenstoffprodukt für die Zwecke der vorliegenden Erfindung in den wässerigen Medien ausreichend dispergierbar macht.

[0029] Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung kann die Temperatur des wässerigen Mediums, und vorzugsweise der Aufschlämmung jede Temperatur sein, die es ermöglicht, dass sich Silika bildet und das Kohlenstoffprodukt beschichtet. Vorzugsweise beträgt die Temperatur des wässerigen Mediums und des Kohlenstoffprodukts mindestens 70°C, bevorzugter beträgt sie von etwa 70°C bis etwa 100°C, und am meisten be-

vorzugt von etwa 80°C bis etwa 85°C. Obwohl das wässerige Medium oder die Aufschlämmung jeden beliebigen pH aufweisen kann, ist es darüber hinaus bevorzugt, dass das wässerige Medium oder die Aufschlämmung einen pH von etwa 4 bis etwa 10, und bevorzugter von etwa 4 bis etwa 7 aufweist. Der pH des wässerigen Mediums oder der Aufschlämmung kann unter Verwendung einer Base oder Säure auf jeden gewünschten pH eingestellt werden, was dem Fachmann bekannt ist. Vorzugsweise wird eine Säure oder Base zum Einstellen des pHs verwendet, die frei von Metallkomponenten ist, beispielsweise Verbindungen auf Ammoniakbasis.

[0030] Das Silikat ist im Wesentlichen frei von Metallionen, weist weniger als etwa 750 ppm Metallionen auf, und vorzugsweise etwa 500 ppm oder weniger und noch bevorzugter von etwa 10 ppm bis etwa 350 ppm, und am meisten bevorzugt liegen vernachlässigbare Mengen oder gar keine Metallionen vor. Vorzugsweise ist das Silikat eine Kieselsäure, die auch ionische siliziumhaltige Spezies wie $HSiO_3^-$ und SiO_3^{2-} umfasst. Andere Formen von siliziumhaltigen Spezies können ebenfalls vorliegen. Vorzugsweise ist das Silikat eine Monokieselsäure. Ebenfalls kann im Allgemeinen Wasser als Teil der das Silikat enthaltenden Lösung vorliegen.

[0031] Die Lösung, die das Silikat enthält und die weniger als etwa 750 ppm Metallionen aufweist, kann auf vielfältige Weise hergestellt werden. Vorzugsweise wird in einem separatem Gefäß ein Metallsilikat, beispielsweise Natriumsilikat oder Kaliumsilikat mit einem stark sauren kationischen Austauscherharz in Kontakt gebracht, das die Metallkationen des Silikats austauscht und das Silikat in Form eines Silikats zurücklässt, in dem im Wesentlichen keine Metallionen vorliegen, beispielsweise in Form einer Monokieselsäure und/oder ionischer Spezies davon. Im Wesentlichen tauscht das stark saure kationische Austauscherharz die Metallionen durch Wasserstoffionen aus.

[0032] Vorzugsweise ist das Metallsilikat ein wasserlösliches Metallsilikat und bevorzugter Natriumsilikat oder Kaliumsilikat. Darüber hinaus ist es bevorzugt, dass das Metallsilikat Siliziumdioxid (SiO_2) in etwa 1 Gew.-% bis etwa 30 Gew.-%, und bevorzugter von etwa 3 Gew.-% bis etwa 5 Gew.-% enthält. Es ist ebenfalls bevorzugt, dass das Verhältnis Siliziumdioxid zu Dinatriumoxid etwa 3,2 oder weniger beträgt und bevorzugter weniger als etwa 2,5 beträgt, was durch Verwendung einer Base, beispielsweise Ammoniak oder Natriumhydroxid, erreicht werden kann, was ebenfalls dazu führt, dass die Lösung, die das Silikat umfasst, einen pH von größer als etwa 12 und bevorzugter etwa 12,5 aufweist. Wenn solche Bedingungen erreicht sind, wird ein Hauptteil der Polysiloxan-Spezies in der Lösung, die das Silikat enthält, vorzugsweise verschwinden und die Lösung enthält Kieselsäure ($Si(OH)_4$) und ionische siliziumhaltige Spezies, welche $HSiO_3^-$ und SiO_3^{2-} enthalten. Bei solchen bevorzugten Bedingungen liegt im Allgemeinen im Wesentlichen das gesamte Silizium in einer monomeren Form vor. In einer anderen erfindungsgemäßen Ausführungsform liegen Polysiloxane vor, die zur Bildung eines Gemisches aus einem Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukt in Kombination mit Silika führen können, die bestimmte nützliche Eigenschaften aufweisen können.

[0033] Beispiele für geeignete Kationenaustauscherharze umfassen, sind jedoch nicht auf diese beschränkt, HGR-W2 Dowex von Dow Chemical Company, USA, und Amberlite von Rohm und Haas Company, USA. Während des Kationenaustausches, wenn mehr Metallionen mit Wasserstoffionen getauscht werden, wird der pH des Silikats gesenkt, wodurch ionische Silika-Spezies eliminiert werden und zusätzliche Monokieselsäure bilden. Im Allgemeinen ist die bei diesen Verfahren gebildete Monokieselsäurelösung übersättigt und bildet durch Kondensation oder Niederschlagen auf einer Oberfläche Polysiloxan. Demgemäß liegt die übersättigte Monokieselsäure in einer Form vor, die vorteilhafterweise das Kohlenstoffprodukt auf seiner Oberfläche mit Silika beschichten wird.

[0034] Es ist bevorzugt, die Polysiloxan-Spezies, die in der Lösung, die das Metallsilikat enthält, vorliegen können, zu entfernen oder zu eliminieren, bevor die Lösung mit einem stark sauren kationischen Austauscherharz in Kontakt gebracht wird.

[0035] Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung können die Metallsilikatlösung und das wässerige Medium oder die Aufschlämmung, die das Kohlenstoffprodukt enthalten, auch gleichzeitig durch das Ionenaustauscherharz geleitet werden, oder alternativ kann die Metallsilikatlösung separat durch ein Ionenaustauscherharz geleitet werden und dann mit dem wässerigen Medium oder der Aufschlämmung, welche die Kohlenstoffprodukte enthalten, in Kontakt gebracht werden. Die Art und Weise, in der die wässerigen Medien oder die Aufschlämmung, welche die Kohlenstoffprodukte enthalten, mit der Lösung in Kontakt gebracht wird, welche das Silikat enthält, das weniger als etwa 750 ppm Metallionen aufweist, kann jede beliebige sein, beispielsweise Zusammenmischen der wässerigen Medien oder Aufschlämmung mit der Lösung durch Rühren oder andere mechanische Mittel oder beliebige andere Mittel, mit denen zwei Lösungen miteinander in Kontakt gebracht werden können.

[0036] Mit dem erfindungsgemäßen Verfahren kann die Morphologie des das Kohlenstoffprodukt beschichtenden Silikas kontrolliert werden, indem der pH der wässerigen Medien oder Aufschlämmung, die das Kohlenstoffprodukt enthalten, kontrolliert wird. Wenn der pH des wässerigen Mediums oder der Aufschlämmung etwa 7 oder niedriger ist, wird beispielsweise das Silika im Allgemeinen in Form einer dünnen Beschichtung vorliegen, die das Kohlenstoffprodukt ganz oder teilweise beschichtet. Wenn der pH des wässerigen Mediums oder der Aufschlämmung 7 oder größer ist, liegt das Silika andererseits im Allgemeinen im Form kleiner Partikel vor, die um das Kohlenstoffprodukt herum aggregieren, beispielsweise Partikel, die eine Größe von etwa 5 bis etwa 10 mm und bevorzugter von etwa 7 bis etwa 8 mm Größe aufweisen. In jedem Fall weist das Silika, das das Kohlenstoffprodukt beschichtet, eine im Wesentlichen gleichförmige Natur auf und es werden jegliche freien Silikapartikel, die dieselbe Größe aufweisen wie die vorliegenden Kohlenstoffprodukte vermieden, wobei bevorzugt oder im Wesentlichen die Gegenwart jeglicher freien Silikapartikel vermieden wird.

[0037] Bei den erfindungsgemäßen Verfahren sind die Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukte im Wesentlichen frei von Metallionen wie Natrium und somit werden notwendige Waschschritte zum Entfernen der Metallionen vermieden. Die einmal gebildeten Silikabeschichteten Kohlenstoffprodukte können aus den wässerigen Medien oder der Aufschlämmung durch Isolierungsmittel wie Filtration entfernt werden und anschließend getrocknet werden oder die Aufschlämmung kann in einen Sprühtrockner eingespeist werden, um die Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukte von dem Wasser abzutrennen.

[0038] Jedes geeignete Elastomer kann mit den Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukten zusammengesetzt werden, um elastomere Verbindungen bereitzustellen. Solche Elastomere umfassen, sind jedoch nicht auf diese beschränkt, Homo- oder Copolymere von 1,3-Butadien, Styrol, Isopren, Isobutylen, 2,3-Dimethyl-1,3-butadien, Acrylnitril, Ethylen und Propylen. Das Elastomer weist vorzugsweise eine Glasübergangstemperatur (Tg), gemessen mittels Differenzialscanningkolorimetrie (DSC) im Bereich von etwa –120°C bis etwa 0°C auf. Beispiele umfassen, sind jedoch nicht auf diese beschränkt, Styrol-Butadienkautschuk (SBR), Naturkautschuk, Polybutadien, Polyisopren und ihre ölgestreckten Derivate. Beliebige Mischungen der vorstehenden können ebenfalls verwendet werden.

[0039] Unter den Kautschuken, die zur Verwendung in der vorliegenden Erfindung geeignet sind, sind Naturkautschuk und seine Derivate wie chlorierter Kautschuk. Die Silikabeschichteten Kohlenstoffprodukte können auch mit künstlichen Kautschuken verwendet werden wie beispielsweise: Copolymere von etwa 10 bis etwa 70 Gew.-% Styrol und von etwa 90 bis etwa 30 Gew.-% Butadien, wie Copolymere aus 19 Teilen Styrol und 81 Teilen Butadien, einem Copolymer aus 30 Teilen Styrol und 70 Teilen Butadien, einem Co-polymer von 43 Teilen Styrol und 57 Teilen Butadien, und einem Copolymer von 50 Teilen Styrol und 50 Teilen Butadien; Polymere und Copolymere von konjugierten Dienen wie Polybutadien, Polyisopren, Polychloropren, und dergleichen, und Copolymeren von solchen konjugierten Dienen wie einem Ethylengruppen enthaltendem Copolymer, das damit co-polymerisierbar ist, wie Styrol, Methylstyrol, Chlorstyrol, Acrylnitril, 2-Vinylpyridin, 5-Methyl-2-vinylpyridin, 5-Ethyl-2-vinylpyridin, 2-Methyl-5-vinylpyridin, alkyl-substituierte Acrylate, Vinylketon, Methylisopropenylketon, Methylvinylether, alphaMethylencarbonsäuren und die Ester und Amide davon wie Acrylsäure und Dialkylacrylsäureamid; ebenfalls zur Verwendung hierin geeignet sind Copolymere von Ethylen und anderen hohen alpha-Olefinen wie Propylen, Buten-1 und Penten-1.

[0040] Die erfindungsgemäßen Kautschukzusammensetzungen können daher ein Elastomer, Härtungsmittel, Verstärkungsfüllstoffe, ein Kopplungsmittel und gegebenenfalls verschiedene Verarbeitungshilfen, Ölstreckmittel und Antidegradantien enthalten. Zusätzlich zu den zuvor genannten Beispielen kann das Elastomer ein Polymer (z. B. Homopolymere, Copolymere und Terpolymere) sein, das aus 1,3-Butadien, Styrol, Isopren, Isobutylen, 2,3-Dimethyl-1,3-butadien, Acrylnitril, Ethylen, Propylen, und dergleichen hergestellt sind, ist jedoch nicht auf diese beschränkt. Es ist bevorzugt, dass diese Elastomeren einen Glasübergangspunkt (Tg), gemessen mittels DSC, zwischen –120°C und 0°C aufweisen. Beispiele für solche Elastomere umfassen Poly(butadien), Poly(styrol-cobutadien) und Poly(isopren).

[0041] In der vorliegenden Erfindung enthaltene elastomere Zusammensetzungen umfassen, sind jedoch nicht auf diese beschränkt, vulkanisierte Zusammensetzungen (VR), thermoplastische Vulkanisate (TPV), thermoplastische Elastomere (TPE) und thermoplastische Polyolefine (TPO). TPV, TPE und TPO-Materialien werden darüber hinaus durch ihre Fähigkeit klassifiziert, ohne Verlust der Leistungsdaten mehrere Male extrudiert und gegossen werden zu können.

[0042] Die elastomeren Zusammensetzungen können ein oder mehrere Härtungsmittel enthalten, beispielsweise Schwefel, Schwefeldonoren, Aktivatoren, Beschleuniger, Peroxide und andere Systeme, die verwendet werden, um eine Vulkanisation der Elastomerzusammensetzung zu bewirken.

[0043] Die resultierenden elastomeren Verbindungen, die die erfindungsgemäßen Silikabeschichteten Kohlenstoffprodukte enthalten und gegebenenfalls ein oder mehrere Kopplungsmittel enthalten, können für verschiedene elastomere Produkte eingesetzt werden wie beispielsweise für Laufflächenverbindungen, Basisgummiverbindungen, Seitenwandverbindungen, Verbindungen für gummierte Stahlgewebe (wire skim), Innenfutterverbindungen, Wulste, Apexe, sämtliche Verbindungen, die in der Karkasse und anderen Komponenten für Fahrzeugreifen eingesetzt werden, Industriekautschukprodukte, Abdichtungen, Zahnriemen, Kraftübertragungsriemen und andere Kautschukwaren.

[0044] Die vorliegende Erfindung wird durch die folgenden Beispiele näher erläutert, die für die vorliegende Erfindung jedoch lediglich beispielhaft sein sollen.

BEISPIELE

Beispiel 1

[0045] In ein mit einem mechanischen Rührer und einem Heizmantel ausgestattetes 2-Liter-Glasgefäß wurden 380 g entionisiertes (DI) Wasser gegeben. Der Rührer wurde angestellt und das Wasser wurde auf 80–85°C erhitzt. Dann wurden 20 g flockiger Ruß, der eine t-Fläche von 135 m^2/g und einen crushed DBP von 106 ml/100 g aufwies, vorsichtig zugegeben, wobei eine Rußaufschlämmung hergestellt wurde, die 5 Gew.-% Ruß und 95 Gew.-% Wasser enthielt.

[0046] In einem separaten Glasgefäß wurden 14,4 g Natriumsilikatlösung (Sodium Silicate N, hergestellt von PQ Corporation, USA) zugegeben, welche 28,7% SiO_2 und 8,9 Gew.-% Na_2O enthielt. Die Silikatlösung wurde dann mit 165 g entionisiertem Wasser verdünnt. Um die Polysiloxanmoleküle aus der Lösung zu entfernen, wurde der pH durch Zugabe von 3,8 g NaOH auf 12,6 erhöht.

[0047] Es wurden zwei Ionenaustauschsäulen hergestellt, indem 110 ml HGR-W2 Dowex Harz jeweils in zwei Glassäulen mit einem Durchmesser von 19 mm gegeben wurden. Unter Verwendung einer peristaltischen Masterflexpumpe wurde die verdünnte Silikalösung dann durch die stark saure Kationenaustauschersäule mit einer Geschwindigkeit von gleich 7 g/Min durchgepumpt. Nach fünf Minuten wurde die Silikazufuhr unterbrochen und entionisiertes Wasser bei einer Geschwindigkeit von gleich 7 g/Min fünf Minuten lang in die Säule geleitet. Die verdünnte Silikalösung und das entionisierte Wasser wurden abwechselnd auf solche Weise zugeführt, bis die halbe Silikalösung zugeführt worden war, worauf die Vorgehensweise unter Verwendung der zweiten stark sauren Kationenaustauschersäule wiederholt wurde. Als die Kieselsäure aus der Ionenaustauschersäule zu der Rußaufschlämmung zugegeben wurde, fiel der pH der Silika-beschichteten Rußaufschlämmung von 7 auf etwa 4,7.

[0048] Wenn sämtliches Silika durch das Kationenharz durchgeleitet war, wurde die Aufschlämmung, welche Silika-beschichtete Rußpartikel enthielt, erhitzt und weitere zwei Stunden lang gerührt. Die Aufschlämmung wurde dann abfiltriert und die nassen Silikabeschichteten Rußpartikel wurden ofengetrocknet.

[0049] Die t-Fläche des Silika-beschichteten Rußes wurde zu gleich 122 m^2/g gemessen, wobei die Abnahme der Oberfläche darin begründet ist, dass die ursprünglichen Rußpartikel nun mit Silika beschichtet waren und daher größer mit geringerer spezifischer Oberfläche waren.

[0050] Eine Probe von Silika-beschichtetem Ruß wurde zwölf Stunden lang in einen Hochtemperaturofen gegeben, wobei eine Asche zurückblieb, die lediglich aus Silika bestand und keinen Kohlenstoff enthielt. Die veraschte Probe wurde unter Verwendung eines JEOL-JEM-1200EX Mikroskops geprüft. Fig. 1 zeigt einen Teil der veraschten Probe in 200.000-facher Vergrößerung. Die Bilder zeigen gebogene Kanten mit einem 15-nm-Radius, was beweist, dass das Silika als eine Beschichtung der Rußpartikel vorlag, bevor die Probe verascht wurde. Die Stickstoffoberfläche der Asche wurde gemessen und wurde gleich 631 m^2/g gefunden, was einen sehr kleinen charakteristischen Durchmesser in der Größenordnung von 4 Nanometern nahelegt.

[0051] Eine 5-g-Probe von Silika-beschichtetem Ruß wurde mit 100 ml 10% Vol/Vol HF eine Stunde lang extrahiert. Der Siliziumgehalt und die Stickstoffoberfläche und die t-Fläche wurden vor und nach der HF-Behandlung gemessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 1 angegeben.

Tabelle 1

HF-Behandlung

Beispiel	t-Fläche (m^2/g)	Stickstoffoberfläche (m^2/g)
Ursprünglicher Silika-beschichteter Ruß	122	198
HF-behandelter Silika-beschichteter Ruß	132	186

[0052] Die in Tabelle 1 angegebenen Daten zeigen, dass die 5-Fläche der Füllstoffpartikel abnahm, wenn das Silika entfernt wird. Die Daten beweisen, dass ein Silika-beschichteter Ruß mit größerem Durchmesser und geringerer spezifischer Oberfläche hergestellt wurde. Die Stickstoffoberfläche nahm geringfügig ab, was zeigt, dass der Silika-beschichtete Rußfüllstoff eine größere Porosität als der ursprüngliche silikafreie Rußfüllstoff aufwies.

Beispiel 2

[0053] Eine zweite Probe von Silika-beschichtetem Ruß wurde auf dieselbe Weise wie in Beispiel 1 hergestellt, mit der Ausnahme, dass vor der Zufuhr der Monokieselsäure zu der Rußlösung der pH der ursprünglichen Rußaufschlämmung unter Verwendung einer verdünnten NaOH-Lösung auf 10 eingestellt wurde. Als die Kieselsäure zu der Rußaufschlämmung zugegeben wurde, wurden geringe Mengen NaOH-Lösung zugegeben, um den pH der Aufschlämmung zwischen 7 und 10 zu halten. Der durch dieses Verfahren hergestellte Silika-beschichtete Ruß wurde dann mit entionisiertem Wasser gespült und in einem Ofen getrocknet.

[0054] Eine Probe des zweiten Silika-beschichteten Rußes wurde verascht und unter dem Mikroskop untersucht. Fig. 2 zeigt einen Teil der veraschten Probe in 200.000-facher Vergrößerung. Die Bilder zeigen Silikaaggregate mit einem Durchmesser von ca. 8 mm, was beweist, dass das Silika den viel größeren Ruß als Aggregate beschichtet hatte. Die Stickstoffoberfläche der Asche wurde bestimmt und es wurde gefunden, dass sie gleich 353 m^2/g betrug, was einen sehr geringen charakteristischen Durchmesser in der Größenordnung von 8 Nanometern nahelegt.

[0055] Eine 5-g-Probe des Silika-beschichteten Rußes wurde mit 100 ml 10% Vol/Vol HF eine Stunde lang extrahiert. Der Siliziumgehalt und die Stickstoffoberfläche und die t-Fläche wurden vor und nach der HF-Behandlung gemessen. Die Ergebnisse sind in Tabelle 2 angegeben.

Tabelle 2

HF-Behandlung

Beispiel	t-Fläche (m^2/g)	Stickstoffoberfläche (m^2/g)
Ursprünglicher Silika-beschichteter Ruß	175	220
HF-behandelter Silika-beschichteter Ruß	131	185

[0056] Die Daten in Tabelle 2 zeigen, dass die Oberfläche der Füllstoffpartikel zunimmt, wenn das Silika entfernt wird. Die Daten beweisen, dass ein makroporöser Füllstoff hergestellt wurde, dessen Poren aus gegenüberliegenden Silikapartikeln gebildet werden.

[0057] Viele Variationen der vorliegenden Erfindung ergeben sich für den Fachmann im Lichte der obigen ausführlichen Beschreibung. Das Verfahren kann beispielsweise zur Herstellung beschichteter Ruße eingesetzt werden, die geeignet sind für Pigmente, Toner und dergleichen. Sämtliche Modifikationen gehören zum beabsichtigten Umfang der Ansprüche.

[0058] Andere Ausführungsformen der vorliegenden Erfindung ergeben sich für den Fachmann beim Lesen der Beschreibung und bei der Durchführung der hier beschriebenen vorliegenden Erfindung. Die Beschreibung und die Beispiele sollen lediglich beispielhaft sein, wobei der tatsächliche Umfang und Inhalt der Erfindung durch die folgenden Patentansprüche angegeben wird.

Patentansprüche

1. Verfahren zum Herstellen eines Silika-beschichteten Kohlenstoffproduktes, umfassend das In-Kontakt-Bringen eines wässerigen Mediums und eines Kohlenstoffprodukts mit einer Lösung, die ein Silikat umfasst, für einen Zeitraum und bei einer Temperatur, die ausreichen, um das Silika-beschichtete Kohlenstoffprodukt zu bilden, wobei die Lösung weniger als etwa 750 ppm Metallionen aufweist.

2. Verfahren nach Anspruch 1, wobei das Kohlenstoffprodukt Ruß, Graphitpulver, eine Graphitfaser, eine Kohlenstofffaser, ein Kohlenstofftuch, ein glasartiges Kohlenstoffprodukt, ein aktiviertes Kohlenstoffprodukt, ein aktiviertes Holzkohleprodukt oder Gemische davon ist.

3. Verfahren nach Anspruch 1, wobei das Kohlenstoffprodukt Ruß ist.

4. Verfahren nach Anspruch 1, wobei das Kohlenstoffprodukt ein Aggregat ist, das eine Kohlenstoffphase und eine Phase, die eine siliziumhaltige Spezies enthält, umfasst.

5. Verfahren nach Anspruch 1, wobei das Kohlenstoffprodukt ein Aggregat ist, das eine Kohlenstoffphase und eine Phase mit metallhaltiger Spezies umfasst.

6. Verfahren nach Anspruch 1, wobei an das Kohlenstoffprodukt mindestens eine organische Gruppe gebunden ist.

7. Verfahren nach Anspruch 1, wobei an das Kohlenstoffprodukt mindestens eine organische Gruppe gebunden ist, die mit einer ionischen oder ionisierbaren Gruppe substituiert ist.

8. Verfahren nach Anspruch 1, wobei an das Kohlenstoffprodukt mindestens eine organische Gruppe gebunden ist, die eine aromatische Gruppe oder eine C_1-C_{12}-Alkylgruppe umfasst, die gegebenenfalls mit einer ionischen oder ionisierbaren Gruppe substituiert sind, wobei die aromatische Gruppe oder die eine C_1-C_{12}-Alkylgruppe an das Kohlenstoffprodukt direkt gebunden ist.

9. Verfahren nach Anspruch 8, wobei das Kohlenstoffprodukt Ruß ist.

10. Verfahren nach Anspruch 1, wobei das wässerige Medium und das Kohlenstoffprodukt in Form einer wässrigen Aufschlämmung vorliegen, welche das Kohlenstoffprodukt umfasst.

11. Verfahren nach Anspruch 10, wobei die wässerige Aufschlämmung darüber hinaus ein Surfactant, ein Puffermittel oder beides umfasst.

12. Verfahren nach Anspruch 10, wobei die wässerige Aufschlämmung einen pH von etwa 7 oder niedriger aufweist.

13. Verfahren nach Anspruch 10, wobei die wässerige Aufschlämmung einen pH von 7 oder höher aufweist.

14. Verfahren nach Anspruch 1, wobei die Temperatur der wässrigen Medien und der Lösung nach der Vereinigung mindestens etwa 70°C beträgt.

15. Verfahren nach Anspruch 1, wobei die Lösung, die ein Silikat umfasst, das weniger als etwa 750 ppm Metallionen aufweist, gebildet wird, indem eine Lösung, die ein Metallsilikat umfasst, durch ein stark saures Kationenaustauscherharz geleitet wird.

16. Verfahren nach Anspruch 15, wobei der pH der Lösung, die ein Metallsilikat umfasst, mindestens etwa 12 beträgt.

17. Verfahren nach Anspruch 1, darüber hinaus umfassend das Isolieren des Silikabeschichteten Kohlen-

stoffprodukts aus den wässerigen Medien.

18. Verfahren nach Anspruch 15, wobei das Metallsilikat von etwa 1 bis etwa 30 Gew.-% des SiO_2 umfasst.

19. Verfahren nach Anspruch 15, wobei die Lösung, die ein Metallsilikat umfasst, ein Verhältnis von Siliziumdioxid zu Dinatriumoxid von weniger als etwa 2,5 aufweist.

20. Verfahren nach Anspruch 15, wobei die Lösung, die ein Metallsilikat umfasst, ein Verhältnis von Siliziumdioxid zu Dinatriumoxid von etwa 3,2 oder weniger aufweist.

21. Verfahren nach Anspruch 10, wobei in der wässrigen Aufschlämmung von etwa 1 Gew.-% bis etwa 20 Gew.-% Kohlenstoffprodukt vorliegen.

22. Verfahren nach Anspruch 10, wobei in der wässerigen Aufschlämmung etwa 5 Gew.-% Kohlenstoffprodukt vorliegen.

23. Verfahren zur Herstellung eines Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukts, umfassend das In-Kontakt-Bringen eines wässerigen Mediums und eines Kohlenstoffprodukts mit einer Lösung, die Monokieselsäure umfasst, für einen Zeitraum und eine Temperatur, die zur Bildung des Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukts ausreichen.

24. Verfahren zum Herstellen eines Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukts, umfassend das Austauschen von Metallionen in einer Lösung, die Metallsilikat umfasst, gegen Wasserstoffionen, und In-Kontakt-Bringen eines wässrigen Mediums und eines Kohlenstoffprodukts mit der Lösung für einen Zeitraum und eine Temperatur, die zur Bildung eines Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukts ausreichen.

25. Verfahren nach Anspruch 24, wobei das Austauschen der Metallionen gleichzeitig mit dem In-Kontakt-Bringen des wässerigen Mediums mit der Lösung stattfindet.

26. Eine Mehrzahl Silika-beschichteter Kohlenstoffprodukte, wobei jedes Silikabeschichtete Kohlenstoffprodukt im Wesentlichen und gleichförmig mit Silika beschichtet ist und keine freien Silikapartikel vorliegen, die dieselbe Größe als die Kohlenstoffprodukte aufweisen.

27. Mehrzahl Silika-beschichteter Kohlenstoffprodukte nach Anspruch 26, wobei die Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukte weniger als etwa 750 ppm Metallionen umfassen.

28. Verfahren nach Anspruch 1, wobei die Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukte teilweise beschichtet sind.

29. Verfahren nach Anspruch 1, wobei die Silika-beschichteten Kohlenstoffprodukte vollständig mit Silika beschichtet sind.

30. Verfahren nach Anspruch 1, wobei das Kohlenstoffprodukt, das wässerige Medium und die Lösung zusammen oder getrennt einer Pelletisiervorrichtung zugegeben werden.

31. Verfahren nach Anspruch 30, wobei das Kohlenstoffprodukt in einer Menge von etwa 1% bis etwa 50%, bezogen auf das Gesamtgewicht, vorliegt.

Es folgen 2 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

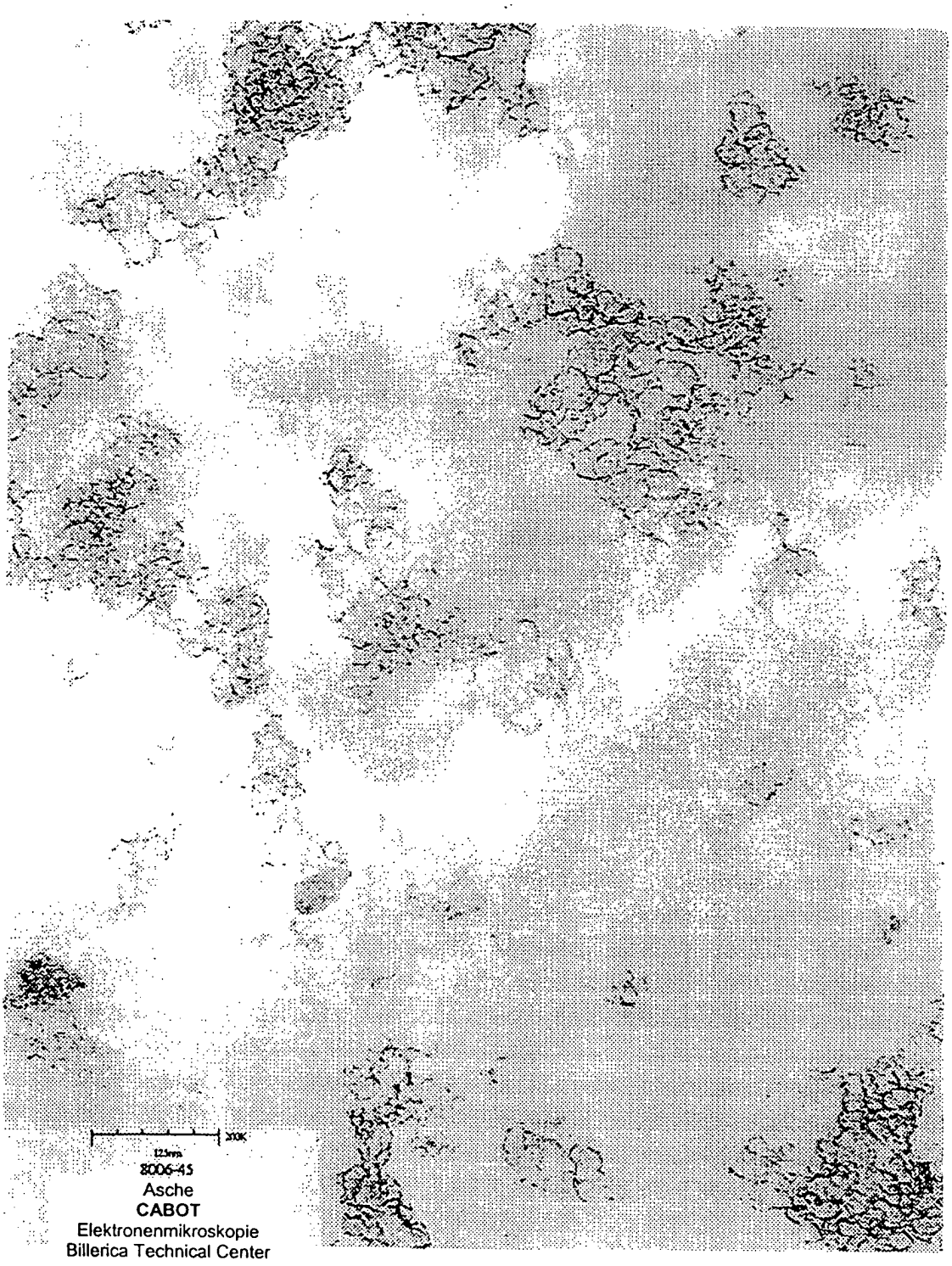


FIG. 1

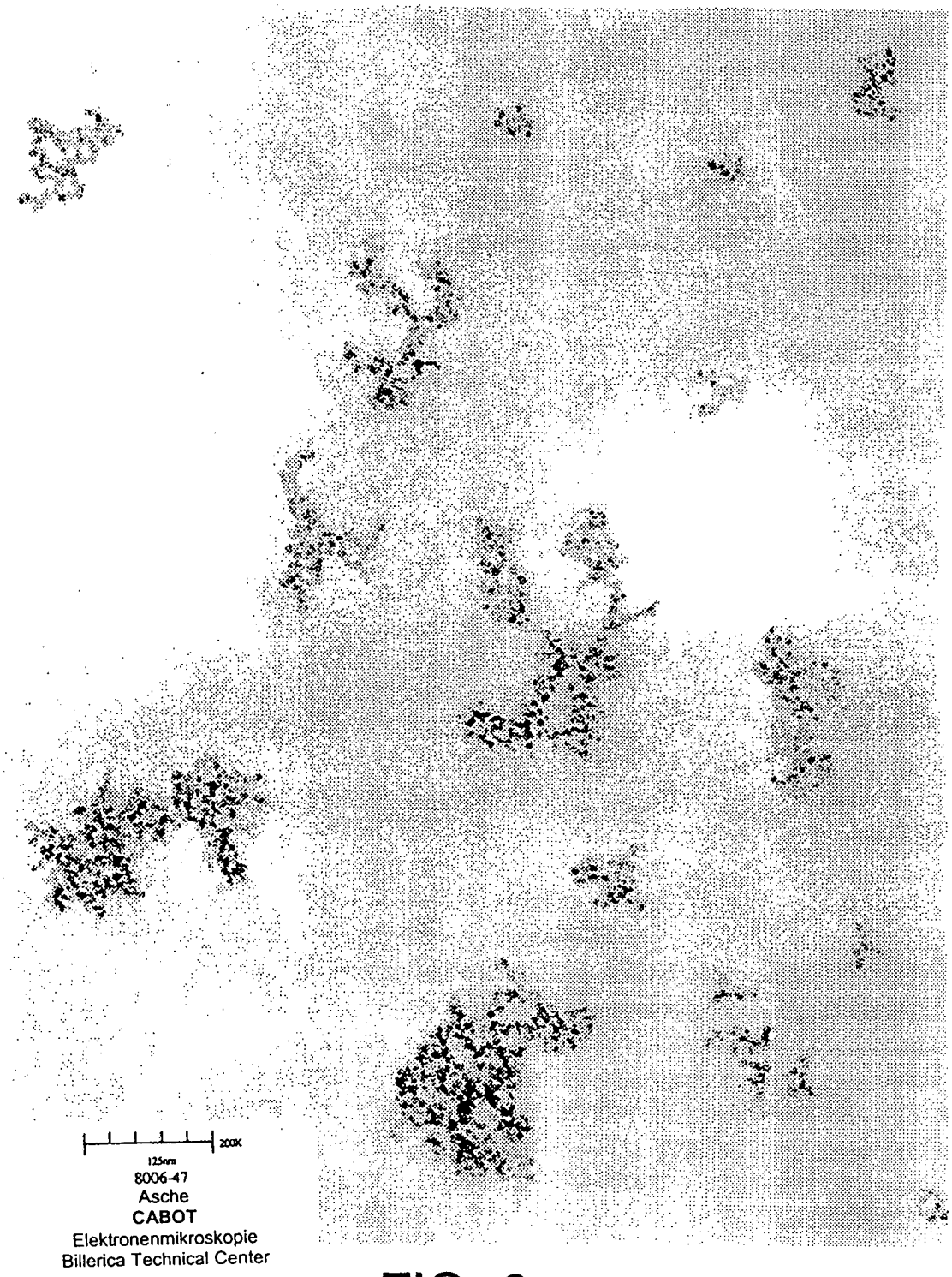

200K
125nm
8006-47
Asche
CABOT
Elektronenmikroskopie
Billerica Technical Center

FIG. 2