



República Federativa do Brasil
Ministério da Economia
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(11) PI 1011793-8 B1



(22) Data do Depósito: 01/07/2010

(45) Data de Concessão: 17/11/2020

(54) Título: MATERIAL DE CARBONO AMORFO SINTÉTICO ULTRAPURO, GEL DE POLÍMERO ULTRAPURO, DISPOSITIVO, ELETRODO E MÉTODO PARA A FABRICAÇÃO DO MATERIAL DE CARBONO

(51) Int.Cl.: C01B 32/00; C01B 32/05; C01B 32/318; H01G 11/24; H01G 11/32; (...).

(52) CPC: C01B 32/00; C01B 32/05; C01B 32/318; H01G 11/24; H01G 11/32; (...).

(30) Prioridade Unionista: 01/07/2009 US 61/222.431; 16/11/2009 US 61/261.703; 26/10/2009 US 61/255.037; 26/10/2009 US 61/255.054.

(73) Titular(es): BASF SE.

(72) Inventor(es): AARON M. FEATHER; HENRY R. CONSTANTINO; WILLIAM D. SCOTT.

(86) Pedido PCT: PCT US2010040836 de 01/07/2010

(87) Publicação PCT: WO 2011/003033 de 06/01/2011

(85) Data do Início da Fase Nacional: 29/12/2011

(57) Resumo: MATERIAIS DE CARBONOS SINTÉTICOS ULTRAPUROS Trata-se de materiais de carbono sintéticos ultrapuros que têm tanto alta área de superfície como alta porosidade, géis de polímero ultrapuros apresentados entram utilidade em inúmeros dispositivos, por exemplo, em dispositivos de capacitância de dupla camada elétricos e baterias. Os métodos para a fabricação de materiais de carbono sintéticos ultrapuros e géis de polímero ultrapuros também são apresentados.

“MATERIAL DE CARBONO AMORFO SINTÉTICO ULTRAPURO, GEL DE POLÍMERO ULTRAPURO, DISPOSITIVO, ELETRODO E MÉTODO PARA A FABRICAÇÃO DO MATERIAL DE CARBONO”

Declaração de direitos do governo

[001]O financiamento parcial do trabalho descrito no presente documento foi fornecido pelo governo dos E.U.A. sob o contrato nº. W15P7T-09-C-S311, fornecido pelo departamento de defesa. O governo dos E.U.A. pode ter determinados direitos nesta invenção.

Referências cruzadas aos pedidos relacionados

[002]O presente pedido reivindica o benefício sob o código dos Estados Unidos 35 §119(e) do pedido de patente provisório U.S. nº. 61/222.431, depositado em 1 de julho de 2009; pedido de patente provisório U.S. nº. 61/255.037, depositado em 26 outubro de 2009; pedido de patente provisório U.S. nº. 61/255.054, depositado em 26 de outubro de 2009; e pedido de patente provisório U.S. nº. 61/261.703, depositado em 16 de novembro de 2009; todos os quais estão aqui incorporados a título de referência, em suas totalidades.

Fundamentos

Campo da técnica

[003]A presente invenção refere-se geralmente a materiais de carbono sintéticos ultrapuros, métodos para a fabricação dos mesmos e dispositivos que contêm os mesmos.

Descrição da técnica relacionada

[004]O carbono ativado é comumente empregado em dispositivos de armazenamento elétrico e distribuição. A alta área de superfície, condutividade e porosidade do carbono ativado permite o projeto de dispositivos elétricos que tem densidade de energia maior do que os dispositivos que empregam outros materiais. Os capacitores elétricos de dupla camada (EDLCs) consistem em um exemplo de tais dispositivos.

Os EDLCs têm muitas vezes eletrodos preparados a partir de um material de carbono ativado e um eletrólito adequado, e têm uma densidade de energia extremamente alta comparada com os capacitores mais comuns. Os usos típicos para EDLCs incluem distribuição e armazenamento de energia em dispositivos que exigem curtas rajadas de energia para transmissões de dados, ou funções de energia de pico, tais como modems sem fio, telefones móveis, câmeras digitais e outros dispositivos eletrônicos de mão. Os EDLCs também são comumente usados em veículos elétricos, tais como ônibus, trens, carros elétricos e similares.

[005]As baterias consistem em outro dispositivo de distribuição e armazenamento de energia que muitas vezes contêm um material de carbono ativado (por exemplo, como material de ânodo, coletor de corrente ou potencializador de condutividade). Por exemplo, as baterias de lítio/carbono que têm um ânodo carbonáceo intercalado com lítio representam um dispositivo de armazenamento de energia promissor. Outros tipos de baterias que contêm carbono incluem baterias de ar-lítio, as quais utilizam o carbono poroso como o coletor de corrente para o eletrodo de ar, e baterias de ácido-chumbo que muitas vezes incluem aditivos de carbono no ânodo ou catodo. As baterias são empregadas em qualquer um dos inúmeros dispositivos eletrônicos que exigem energia elétrica de baixa densidade de corrente (conforme comparado com uma alta densidade de corrente dos EDLC's).

[006]Uma limitação conhecida dos EDLCs e de baterias à base de carbono consiste no desempenho reduzido em alta temperatura, operação de alta voltagem, ciclos de carga/descarga repetidos e/ou sob envelhecimento. Este desempenho reduzido tem sido atribuído às impurezas ou impureza do eletrólito no próprio eletrodo de carbono, que causam a ruptura do eletrodo na interface de eletrólito/eletrodo. Deste modo, tem sido sugerido que os EDLCs e/ou baterias que compreendem eletrodos preparados a partir de materiais de carbono de pureza maior poderiam ser operados em voltagens maiores e por períodos de tempo mais longos em temperaturas maiores

do que os dispositivos existentes.

[007]Embora a necessidade por materiais de carbono de pureza maior que tem tanto a alta área de superfície como a alta porosidade tenha sido reconhecida, tal material de carbono não está comercialmente disponível e nenhum método de preparação relatado é capaz de produzir o carbono de alta pureza desejado para os dispositivos elétricos de alto desempenho. Um método comum para a produção de materiais de carbono ativado de alta área de superfície consiste em pirolisar um material contendo carbono existente (por exemplo, fibras de coco ou borracha de pneu). Isto resulta em uma carbonização com área de superfície relativamente baixa que ser subsequentemente superativada para produzir um material com a área de superfície e porosidade necessárias para a aplicação desejada. Tal abordagem é inerentemente limitada pela estrutura existente do material precursor e resulta tipicamente em baixos rendimentos do processo e um material de carbono que tem um teor de cinzas (isto é, impurezas de metal) de 1% ou maior.

[008]Os materiais de carbono ativado também podem ser preparados por meio de ativação química. Por exemplo, o tratamento de um material contendo carbono com um ácido, base ou sal (por exemplo, ácido fosfórico, hidróxido de potássio, hidróxido de sódio, cloreto de zinco, etc.) seguido pelo aquecimento resulta em um material de carbono ativado. No entanto, tal ativação química produz materiais de carbono ativado com um alto nível de impurezas residuais do processo (por exemplo, metais).

[009]Outra abordagem para a produção de materiais de carbono ativado de alta área de superfície consiste em preparar um polímero sintético a partir de elementos fundamentais orgânicos contendo carbono (por exemplo, um gel de polímero ultrapuro). Conforme com os materiais orgânicos existentes, os polímeros sinteticamente preparados são pirolisados e ativados para produzir um material de carbono ativado. Em contraste com a abordagem tradicional descrita acima, a porosidade

intrínseca do polímero sinteticamente preparado resulta em maiores rendimentos do processo devido ao fato de que menos material é perdido durante a etapa de ativação. No entanto, conforme com os materiais de carbono preparados a partir outros métodos conhecidos, os materiais de carbono ativado preparados a partir de polímeros sintéticos através dos métodos relatados contêm níveis inadequados de impurezas (por exemplo, metais).

[0010]Embora tenham sido feitos avanços significantes no campo, continua a existir uma necessidade na técnica por materiais de carbono altamente puros, assim como por métodos de fabricação dos mesmos e dispositivos que contêm os mesmos. A presente invenção satisfaz estas necessidades e fornece vantagens relacionadas adicionais.

Breve sumário

[0011]Em termos gerais, a presente invenção é direcionada a materiais de carbono sintéticos ultrapuros, assim como a métodos para a fabricação de tais materiais e a dispositivos que contêm os mesmos. Tais materiais encontram aplicação no contexto de dispositivos de distribuição e armazenamento elétrico, particularmente, para o uso em eletrodos para EDLCs e baterias. Os materiais de carbono existentes contêm níveis residuais de diversas impurezas (por exemplo, cloro, enxofre, metais, etc.) os quais são conhecidos por diminuir a tensão de ruptura do eletrólito no qual os eletrodos são imersos. Deste modo, os eletrodos existentes precisam ser operados em voltagens menores e têm uma expectativa de vida mais curta do que os dispositivos que compreendem os materiais de carbono sintéticos ultrapuros desta invenção. As impurezas em eletrodos de carbono também contribuem para a degradação outros componentes dentro de um EDLC ou bateria. Por exemplo, a membrana porosa que separa os dois eletrodos de carbono em um EDLC pode ser degradada pelo cloro ou outras impurezas dentro do eletrodo de carbono. Os materiais de carbono sintéticos ultrapuros apresentados no presente documento são significativamente mais puros do

que quaisquer materiais de carbono conhecidos e, deste modo, aperfeiçoam a operação de qualquer quantidade de dispositivos de distribuição e/ou armazenamento elétrico.

[0012]Conseqüentemente, em uma modalidade, é apresentado um material de carbono sintético ultrapuro. O material de carbono sintético ultrapuro compreende um teor de impureza total de menos que 500 ppm de elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa a partir de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton. Em outra modalidade do mencionado anteriormente, o material de carbono consiste em um material de carbono amorfo sintético ultrapuro.

[0013]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende um teor de impureza total de menos que 200 ppm de elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa a partir de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

[0014]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende um teor de cinzas de menos que 0,03%, por exemplo, menos que 0,01%, conforme calculado a partir da emissão de raios x induzida por próton data.

[0015]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende ao menos 95% de carbono em peso, conforme medido por meio da análise de combustão e emissão de raios x induzida por próton.

[0016]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 3 ppm de ferro, menos que 1 ppm de níquel, menos que 5 ppm de enxofre, menos que 1 ppm de cromo ou menos que 1 ppm de cobre, conforme medido por meio da emissão de raios

x induzida por próton.

[0017]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 100 ppm de sódio, menos que 300 ppm de silício, menos que 50 ppm de enxofre, menos que 100 ppm de cálcio, menos que 20 ppm de ferro, menos que 10 ppm de níquel, menos que 140 ppm de cobre, menos que 5 ppm de cromo e menos que 5 ppm de zinco, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton. Por exemplo, em algumas modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 50 ppm de sódio, menos que 50 ppm de silício, menos que 30 ppm de enxofre, menos que 10 ppm de cálcio, menos que 2 ppm de ferro, menos que 1 ppm de níquel, menos que 1 ppm de cobre, menos que 1 ppm de cromo e menos que 1 ppm de zinco, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

[0018]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 3,0% de oxigênio, menos que 0,1% de nitrogênio e menos que 0,5% de hidrogênio, conforme determinado por meio da análise de combustão. Por exemplo, em outras modalidades específicas, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 1,0% de oxigênio, conforme determinado por meio da análise de combustão.

[0019]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende um criogel de polímero ultrapuro pirolisado. Enquanto que em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende um criogel de polímero ultrapuro ativado.

[0020]Em algumas outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma área de

superfície específica BET de ao menos 1500 m²/g, ao menos 2000 m²/g ou ao menos 2400 m²/g.

[0021]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende um volume de poro de ao menos 0,7 cc/g.

[0022]Em outra modalidade, é fornecido um gel de polímero ultrapuro. O gel de polímero ultrapuro compreende carbono, hidrogênio, oxigênio e um teor de impureza total de menos que 500 ppm e, tipicamente, menos que 200 ppm, de elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa a partir de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

[0023]Em algumas modalidades, o gel de polímero ultrapuro consiste em um gel de polímero ultrapuro seco. Em outra modalidade, o gel de polímero ultrapuro compreende uma área de superfície específica BET de ao menos 400 m²/g.

[0024]Em algumas outras modalidades, o gel de polímero ultrapuro é preparado por meio da mistura de um ou mais solventes miscíveis, um ou mais compostos fenólicos, um ou mais aldeídos e um ou mais catalisadores. Por exemplo, em algumas modalidades, o gel de polímero ultrapuro é preparado por meio da mistura de água, ácido acético, resorcinol, formaldeído e acetato de amônio.

[0025]Esta alta pureza dos materiais de carbono apresentados pode ser atribuída ao processo sol-gel apresentado. Os requerentes têm descoberto que quando um ou mais precursores de polímero, por exemplo, um composto fenólico e um aldeído, são co-polimerizados sob condições ácidas na presença de um catalisador básico volátil, um gel de polímero ultrapuro se origina. Isto é em contraste com outros métodos relatados para a preparação de géis de polímero ultrapuros que resultam em géis de polímero ultrapuros que compreendem níveis residuais de metais e/ou outras impurezas, assim como níveis residuais de solvente de reação e/ou solvente de extração. A preparação de materiais de carbono a partir destes géis de polímero ultrapuros

impuros, por exemplo, por meio de pirólise e/ou ativação, resulta em materiais de carbono que também são impuros.

[0026]O material de carbono amorfo sintético ultrapuro apresentado pode ser feito a partir do gel de polímero ultrapuro por meio da pirólise e/ou ativação do gel de polímero ultrapuro. O gel de polímero ultrapuro, por sua vez, pode ser feito por meio da reação de um ou mais precursores de polímero sob condições ácidas na presença de um catalisador básico volátil para se obter um gel de polímero ultrapuro.

[0027]Conseqüentemente, em uma modalidade, a presente descrição fornece um método para a fabricação de um material de carbono sintético ultrapuro, o método que compreende reagir um ou mais precursores de polímero sob condições ácidas na presença de um catalisador básico volátil para se obter um gel de polímero ultrapuro. Em uma modalidade adicional, o material de carbono consiste em um material de carbono amorfo sintético ultrapuro.

[0028]Em outras modalidades, o método compreende, adicionalmente, misturar o um ou mais precursores de polímero em um solvente que compreende ácido acético e água. Em outras modalidades, o catalisador básico volátil compreende carbonato de amônio, bicarbonato de amônio, acetato de amônio, hidróxido de amônio, ou combinações dos mesmos, e em outras modalidades, o um ou mais precursores de polímero compreendem resorcinol e formaldeído.

[0029]Em algumas outras modalidades, o método compreende, adicionalmente:

(a) secar por congelamento o gel de polímero ultrapuro para se obter um criogel de polímero ultrapuro;

(b) pirolisar o criogel de polímero ultrapuro para se obter um criogel ultrapuro pirolisado; e

(c) ativar o criogel ultrapuro pirolisado para se obter o material de carbono sintético ultrapuro ativado.

[0030]O material de carbono amorfo sintético ultrapuro encontra utilidade em inúmeros dispositivos de distribuição e armazenamento elétrico. A combinação de ultrapureza, alta porosidade e alta área de superfície permite a preparação de dispositivos de distribuição e armazenamento elétrico que têm propriedades superiores aos dispositivos conhecidos. Os dispositivos que compreendem o material de carbono amorfo sintético ultrapuro são capazes de operação em voltagens maiores por períodos de tempo mais longos em temperaturas maiores do que os dispositivos comparáveis preparados a partir de carbono de pureza inferior.

[0031]Conseqüentemente, em outra modalidade, a presente descrição fornece um dispositivo que compreende um material de carbono sintético ultrapuro, em que o material de carbono sintético ultrapuro compreende um teor de impureza total de menos que 500 ppm, particularmente, 200 ppm, de elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa a partir de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton. Por exemplo, em algumas outras modalidades do mencionado anteriormente, o material de carbono consiste em um material de carbono amorfo sintético ultrapuro.

[0032]Em algumas modalidades adicionais, o dispositivo consiste em um dispositivo de capacitor de dupla camada elétrico (EDLC) que compreende:

a) um eletrodo positivo e um eletrodo negativo, em que cada um dentre o eletrodo positivo e o eletrodo negativo compreende o material de carbono sintético ultrapuro;

b) um separador poroso inerte; e

c) um eletrólito;

em que o eletrodo positivo e o eletrodo negativo são separados pelo separador poroso inerte.

[0033]Em algumas modalidades adicionais, o dispositivo EDLC compreende uma potência gravimétrica de ao menos 15 W/g, uma potência volumétrica de ao

menos 10 W/cc, uma energia gravimétrica de ao menos 20,0 Wh/kg ou uma energia volumétrica de ao menos 10,0 Wh/litro.

[0034]Em algumas outras modalidades, o dispositivo EDLC compreende uma capacitância gravimétrica de ao menos 25 F/g ou uma capacitância volumétrica de ao menos 20 F/cc, conforme medido por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 V a 0,1 V com uma constante de tempo de 5 segundos empregando uma solução 1,8M de tetrafluoroborato de tetraetilamônio em eletrólito de acetonitrila e uma densidade de corrente de 0,5 A/g.

[0035]Em algumas outras modalidades adicionais do dispositivo EDLC, o teor de cinzas do material de carbono é menor que 0,03%, particularmente, menor que 0,01%, conforme calculado a partir dos dados de emissão de raios x induzida por próton, e em algumas outras modalidades, o material de carbono compreende ao menos 95% de carbono, conforme medido por meio da análise de combustão e emissão de raios x induzida por próton.

[0036]Em algumas outras modalidades do dispositivo EDLC, o material de carbono compreende menos que 3 ppm de ferro, menos que 1 ppm de níquel, menos que 5 ppm de enxofre, menos que 1 ppm de cromo ou menos que 1 ppm de cobre, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

[0037]Em mais outras modalidades do dispositivo EDLC, o material de carbono compreende menos que 100 ppm de sódio, menos que 300 ppm de silício, menos que 100 ppm de cálcio, menos que 50 ppm de enxofre, menos que 20 ppm de ferro, menos que 10 ppm de níquel, menos que 140 ppm de cobre, menos que 5 ppm de cromo e menos que 5 ppm de zinco, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

[0038]Em algumas outras modalidades do dispositivo EDLC, o material de carbono compreende um criogel de polímero ultrapuro ativado, e em algumas outras modalidades do dispositivo EDLC, o material de carbono compreende uma área de

superfície específica BET de ao menos 1500 m²/g, ao menos 2000 m²/g ou ao menos 2400 m²/g.

[0039]Em outras modalidades particulares, a presente descrição está direcionada a uma bateria, por exemplo, uma bateria de lítio/carbono, bateria de zinco/carbono, bateria de ar de lítio ou bateria de ácido-chumbo, que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro, conforme apresentado no presente documento. Em outras modalidades, a presente descrição está direcionada a um eletrodo que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro, conforme apresentado no presente documento. Tais eletrodos são úteis em dispositivos de distribuição e armazenamento elétrico, tais como EDLCs e baterias.

Breve descrição dos desenhos

[0040]Nas figuras, os números de referência idênticos identificam os elementos similares. Os tamanhos e posições relativas dos elementos nas figuras não são necessariamente desenhados em escala e alguns destes elementos são arbitrariamente ampliados e posicionados para aperfeiçoar a legibilidade da figura. Adicionalmente, os formatos particulares dos elementos conforme desenhados não se destinam a transmitir qualquer informação relacionada ao formato atual dos elementos particulares, e têm sido selecionadas somente para a facilidade de reconhecimento nas figuras.

[0041]A Figura 1 mostra volume de poro versus largura de poro crescente para criogéis de polímero ultrapuros RF produzidos a partir de solvente de ácido acético a 100%.

[0042]A Figura 2 descreve volume de poro versus largura de poro crescente para criogéis de polímero ultrapuros RF produzidos a partir de solvente de ácido acético:água 90:10.

[0043]A Figura 3 descreve volume de poro versus largura de poro crescente

para criogéis de polímero ultrapuros RF produzidos a partir de solvente de ácido acético:água50:50.

[0044]A Figura 4 apresenta volume de poro versus largura de poro crescente para criogéis de polímero ultrapuros RF produzidos a partir de solvente de ácido acético:água25:75.

[0045]A Figura 5 apresenta volume de poro versus largura de poro crescente para criogéis de polímero ultrapuros RF produzidos a partir de solvente de ácido acético:água 10:90.

[0046]A Figura 6 é um gráfico de área de superfície específica versus pH para criogéis de polímero ultrapuros RF produzidos a partir de RS=0,3 e níveis variados de ácido acético e sais de amônio.

[0047]As Figuras 7A e 7B são gráficos de volume de poro crescente de um criogel de polímero ultrapuro RF e um criogel de polímero ultrapuro RF pirolisado, respectivamente.

[0048]As Figuras 8A e 8B são gráficos de volume de poro crescente de um criogel de polímero ultrapuro RF e um criogel de polímero ultrapuro RF pirolisado, respectivamente.

[0049]As Figuras 9A e 9B são gráficos de volume de poro crescente de um criogel de polímero ultrapuro RF e um criogel de polímero ultrapuro RF pirolisado, respectivamente.

[0050]As Figuras 10A e 10B são gráficos de volume de poro crescente de um criogel de polímero ultrapuro RF e um criogel de polímero ultrapuro RF pirolisado, respectivamente.

[0051]As Figuras 11A e 11B são gráficos de volume de poro crescente de um criogel de polímero ultrapuro RF e um criogel de polímero ultrapuro RF pirolisado, respectivamente.

[0052]A Figura 12 descreve a área de superfície específica versus perda de

peso de ativação para diversos materiais de carbono ativado sintéticos ultrapuros.

[0053]A Figura 13 é um gráfico de volume de poro crescente de um material de carbono sintético ultrapuro ativado.

Descrição detalhada

[0054]Na seguinte descrição, determinados detalhes específicos são apresentados a fim de fornecer um entendimento completo de diversas modalidades. No entanto, um elemento versado na técnica irá compreender que a invenção pode ser praticada sem estes detalhes. Em outros casos, as estruturas bem conhecidas não têm sido mostradas ou descritas em detalhes para evitar o obscurecimento de maneira desnecessária das descrições das modalidades. Exceto onde o contexto exige o contrário, por todo o relatório descritivo e reivindicações que se seguem, a palavra “compreender” e variações da mesma, tais como, “compreende” e “que compreende” devem ser interpretadas em um sentido inclusivo e irrestrito, isto é, como “que inclui, mas não se limita a”. Adicionalmente, os cabeçalhos fornecidos no presente documento são somente por conveniência e não interpretam o escopo ou significado da invenção reivindicada.

[0055]A referência por todo este relatório descritivo a “uma (1) modalidade” ou “uma modalidade” significa que um recurso, estrutura ou característica particular descrita em conexão com a modalidade é incluída em ao menos uma modalidade. Deste modo, as aparências das frases “em uma (1) modalidade” ou “em uma modalidade” em diversos lugares por todo este relatório descritivo não estão necessariamente todas se referindo à mesma modalidade. Adicionalmente, os recursos, estruturas ou características particulares podem ser combinadas em qualquer maneira adequada em uma ou mais modalidades. Além disso, para uso neste relatório descritivo e nas reivindicações em anexo, as formas singulares “um” e “o” incluem os referentes plurais, exceto onde o conteúdo indica claramente o contrário. Deve-se observar também que o termo “ou” é geralmente empregado em seu sentido que inclui “e/ou”, exceto

onde o conteúdo indica claramente o contrário.

Definições

[0056] Para uso no presente documento, e exceto onde o conteúdo indica o contrário, os seguintes termos têm os significados conforme especificado abaixo.

[0057] “Material de carbono” se refere a um material ou substância compreendida substancialmente de carbono. Os materiais de carbono incluem tanto materiais de carbono amorfos como cristalinos. Os exemplos de materiais de carbono incluem, mas não se limitam a, carbono ativado, géis de polímero ultrapuros seco pirolisado, criogéis de polímero ultrapuros pirolisado, xerogéis de polímero ultrapuros pirolisado, aerogéis de polímero ultrapuros pirolisado, géis de polímero ultrapuros seco ativado, criogéis de polímero ultrapuros ativado, xerogéis de polímero ultrapuros ativado, aerogéis de polímero ultrapuros ativado, e similares.

[0058] “Amorfo” se refere a um material, por exemplo, um material de carbono amorfo, cujos átomos, moléculas ou íons constituintes são dispostos de maneira aleatória sem um padrão de repetição regular. Os materiais amorfos podem ter alguma cristalinidade localizada (isto é, regularidade), mas carecem de ordem de longo alcance das posições dos átomos. Os materiais de carbono pirolisados e/ou ativados são geralmente amorfos.

[0059] “Cristalino” se refere a um material cujos átomos, moléculas ou íons constituintes são dispostos em um padrão de repetição ordenada. Os exemplos de materiais de carbono cristalinos incluem, mas não se limitam a, diamante e grafeno.

[0060] “Sintético” se refere a uma substância que tem sido preparada por meio químico em vez de a partir de uma fonte natural. Por exemplo, um material de carbono sintético consiste em um material que é sintetizado a partir de materiais precursores e não é isolado a partir de fontes naturais.

[0061] “Impureza” ou “elemento de impureza” se refere a uma substância estranha (por exemplo, um elemento) dentro de um material que se difere a partir da

composição química do material de base. Por exemplo, uma impureza em um material de carbono sintético ultrapuro ou um material de carbono amorfo sintético ultrapuro se refere a qualquer elemento ou combinação de elementos, além do carbono, que está presente no material de carbono sintético ultrapuro ou no material de carbono amorfo sintético ultrapuro. Os níveis de impureza são tipicamente expressos em partes por milhão (ppm).

[0062]“Impureza de PIXE” consiste em qualquer elemento de impureza que tem um número atômico que se situa em uma faixa a partir de 11 a 92 (isto é, a partir de sódio a urânio). As frases “teor de impureza de PIXE total” e “nível de impureza de PIXE total” se referem, ambas, à soma de todas as impurezas de PIXE presentes em uma amostra, por exemplo, um gel de polímero ultrapuro, um material de carbono sintético ultrapuro ou um material de carbono amorfo sintético ultrapuro. As concentrações e identidades de impureza de PIXE podem ser determinadas pela emissão de raios x induzida por próton (PIXE).

[0063]“Ultrapuro” se refere a uma substância que tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 0,050%. Por exemplo, um “material de carbono ultrapuro”, “material de carbono sintético ultrapuro” ou “material de carbono amorfo sintético ultrapuro” consiste em um material de carbono que tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 0,050% (isto é, 500 ppm).

[0064]“Teor de cinzas” se refere à matéria inorgânica não-volátil que permanece após submeter uma substância a uma alta temperatura de decomposição. No presente documento, o teor de cinzas de um material de carbono é calculado a partir do teor de impureza de PIXE total, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton, presumindo que os elementos não-voláteis são completamente convertidos para produtos de combustão esperados (isto é, óxidos).

[0065]“Polímero” se refere a uma macromolécula compreendida de duas ou mais unidades de repetição estruturais.

[0066]"Material precursor de polímero sintético" ou "precursor de polímero" se refere aos compostos usados na preparação de um polímero sintético. Os exemplos de precursores de polímero que podem ser usados nas preparações apresentadas no presente documento incluem, mas não se limitam a, aldeídos (isto é, HC(=O)R , onde R é um grupo orgânico), tais como, por exemplo, metanal (formaldeído); etanal (acetaldéído); propanal (propionaldeído); butanal (butiraldeído); glicose; benzaldeído e cinnamalaldeído. Outros precursores de polímero exemplificadores incluem, mas não se limitam a, compostos fenólicos, tais como fenol e polihidróxi benzenos, tais como dihidróxi ou trihidróxi benzenos, por exemplo, resorcinol (isto é, 1,3-dihidróxi benzeno), catecol, hidroquinona e floroglucinol. As misturas de dois ou mais polihidróxi benzenos também são consideradas dentro do significado de precursor de polímero.

[0067]"Monolítico" se refere a uma estrutura tridimensional sólida que não é particulado em natureza.

[0068]"Sol" se refere a uma suspensão coloidal de partículas de precursor (por exemplo, precursores de polímero) e o termo "gel" se refere a uma rede porosa tridimensional úmida obtida por meio da condensação ou reação das partículas de precursor.

[0069]"Gel de polímero" se refere a um gel em que o componente de rede consiste em um polímero; geralmente um gel de polímero consiste em uma estrutura tridimensional úmida (com base aquosa ou não-aquosa) compreendida de um polímero formado a partir de precursores sintéticos ou precursores de polímero.

[0070]"Sol gel" se refere a uma subclasse de gel de polímero onde o polímero consiste em uma suspensão coloidal que forma uma rede porosa tridimensional úmida obtida por meio da reação dos precursores de polímero.

[0071]"Hidrogel de polímero" ou "hidrogel" se refere a uma subclasse de gel de polímero ou gel em que o solvente para os precursores sintéticos ou monômeros consiste em água ou misturas de água e um ou mais solventes miscíveis em água.

[0072]“Hidrogel de polímero RF” se refere a uma subclasse de gel de polímero em que o polímero foi formado a partir da reação catalisada de resorcinol e formaldeído em água ou misturas de água e um ou mais solventes miscíveis em água.

[0073]“Ácido” se refere a qualquer substância que é capaz de reduzir o pH de uma solução. Os ácidos incluem ácidos Arrhenius, Brønsted e Lewis. Um “ácido sólido” se refere a um composto seco ou granular que rende uma solução ácida quando dissolvido em um solvente. O termo “ácido” significa que tem as propriedades de um ácido.

[0074]“Base” se refere a qualquer substância que é capaz de aumentar o pH de uma solução. As bases incluem bases Arrhenius, Brønsted e Lewis. Uma “base sólida” se refere a um composto seco ou granular que rende solução básica quando dissolvido em um solvente. O termo “básico” significa que tem as propriedades de uma base.

[0075]“Sistema de solvente misturado” se refere a um sistema de solvente compreendido de dois ou mais solventes, por exemplo, dois ou mais solventes miscíveis. Os exemplos de sistema de solventes binário (isto é, que contêm dois solventes) incluem, mas não se limitam a: água e ácido acético; água e ácido fórmico; água e ácido propiônico; água e ácido butírico, e similares. Os exemplos de sistema de solventes ternário (isto é, que contêm três solventes) incluem, mas não se limitam a: água, ácido acético e etanol; água, ácido acético e acetona; água, ácido acético e ácido fórmico; água, ácido acético e ácido propiônico; e similares. A presente invenção considera todos os sistemas de solvente misturado que compreendem dois ou mais solventes.

[0076]“Miscíveis” se refere à propriedade de uma mistura em que a mistura forma uma única fase sobre determinadas faixas de temperatura, pressão e composição.

[0077]“Catalisador” consiste em uma substância que altera a taxa de uma

reação química. Os catalisadores participam em uma reação de uma maneira cíclica, de tal modo que o catalisador seja regenerado de maneira cíclica. A presente descrição considera os catalisadores que são livres de sódio. O catalisador usado na preparação de um gel de polímero ultrapuro, conforme descrito no presente documento, pode consistir em qualquer composto que facilita a polimerização dos precursores de polímero para formar um gel de polímero ultrapuro. Um “catalisador volátil” consiste em um catalisador que tem uma tendência a vaporizar em pressão atmosférica ou abaixo. Os catalisadores voláteis exemplificadores incluem, mas não se limitam a, sais de amônio, tais como, bicarbonato de amônio, carbonato de amônio, hidróxido de amônio, e combinações dos mesmos.

[0078]“Solvente” se refere a uma substância que dissolve ou suspende os reagentes (por exemplo, precursores de polímero ultrapuro) e fornece um meio no qual uma reação pode ocorrer. Os exemplos de solventes úteis na preparação dos géis, géis de polímero ultrapuros, materiais de carbono sintéticos ultrapuros e materiais de carbono amorfo sintéticos ultrapuros apresentados no presente documento incluem, mas não se limitam a, água, alcoóis e misturas dos mesmos. Os alcoóis exemplificadores incluem etanol, t-butanol, metanol e misturas dos mesmos. Tais solventes são úteis para a dissolução dos materiais precursores de polímero sintéticos ultrapuros, por exemplo, a dissolução de um composto fenólico ou aldeído. Além disso, em alguns processos, tais solventes são empregados para a troca de solvente em um hidrogel de polímero (antes do congelamento e secagem), em que o solvente a partir da polimerização dos precursores, por exemplo, resorcinol e formaldeído, é trocado por um álcool puro. Em uma modalidade do presente pedido, um criogel é preparado por meio de um processo que não inclui a troca de solvente.

[0079]“Gel seco” ou “gel de polímero ultrapuro seco” se refere a um gel ou gel de polímero ultrapuro, respectivamente, a partir do qual o solvente, geralmente água, ou mistura de água e um ou mais solventes miscíveis em água, tem sido

substancialmente removido.

[0080]“gel de polímero ultrapuro seco pirolisado” se refere a um gel de polímero ultrapuro seco que tem sido pirolisado, mas não ativado ainda, enquanto que um “gel de polímero ultrapuro seco ativado” se refere a um gel de polímero ultrapuro seco que tem sido ativado.

[0081]“Criogel” se refere a um gel seco que tem sido seco por meio da secagem por congelamento. De forma análoga, um “criogel de polímero ultrapuro” consiste em um gel de polímero ultrapuro seco que tem sido seco por meio da secagem por congelamento.

[0082]“Criogel RF” ou “criogel de polímero ultrapuro RF” se refere a um gel seco ou gel de polímero ultrapuro seco, respectivamente, que tem sido seco por meio de secagem por congelamento, em que o gel ou gel de polímero ultrapuro foi formado a partir da reação catalisada de resorcinol e formaldeído.

[0083]“Criogel pirolisado” ou “criogel de polímero ultrapuro pirolisado” consiste em um criogel ou criogel de polímero ultrapuro, respectivamente, que tem sido pirolisado, mas não ativado ainda.

[0084]“Criogel ativado” ou “criogel de polímero ultrapuro ativado” consiste em um criogel ou criogel de polímero ultrapuro, respectivamente, que tem sido ativado para se obter o material de carbono ativado.

[0085]“Xerogel” se refere a um gel seco que tem sido seco por meio de secagem por ar, por exemplo, em pressão atmosférica ou abaixo. De forma análoga, um “xerogel de polímero ultrapuro” consiste em um gel de polímero ultrapuro seco que tem sido seco por meio de secagem por ar.

[0086]“Xerogel pirolisado” ou “xerogel de polímero ultrapuro pirolisado” consiste em um xerogel ou xerogel de polímero ultrapuro, respectivamente, que tem sido pirolisado, mas não ativado ainda.

[0087]“Xerogel ativado” ou “xerogel de polímero ultrapuro ativado” consiste

em um xerogel ou xerogel de polímero ultrapuro, respectivamente, que tem sido ativado para se obter o material de carbono ativado.

[0088]“Aerogel” se refere a um gel seco que tem sido seco por meio de secagem supercrítica, por exemplo, com o uso de dióxido de carbono supercrítico. De forma análoga, um “aerogel de polímero ultrapuro” consiste em um gel de polímero ultrapuro seco que tem sido seco por meio de secagem supercrítica.

[0089]“Aerogel pirolisado” ou “aerogel de polímero ultrapuro pirolisado” consiste em um aerogel ou aerogel de polímero ultrapuro, respectivamente, que tem sido pirolisado, mas não ativado ainda.

[0090]“Aerogel ativado” ou “aerogel de polímero ultrapuro ativado” consiste em um aerogel ou aerogel de polímero ultrapuro, respectivamente, que tem sido ativado para se obter o material de carbono ativado.

[0091]“Solvente de extração orgânico” se refere a um solvente orgânico adicionado a um hidrogel de polímero depois que a polimerização dos precursores de polímero tiver começado, geralmente depois que a polimerização do hidrogel de polímero estiver completa.

[0092]“Congelamento multi-direcional rápido” se refere ao processo de congelamento de um gel de polímero por meio da criação de partículas de gel de polímero a partir de um gel de polímero monolítico, e submetendo as ditas partículas de gel de polímero a um meio adequadamente frio. O meio frio pode consistir, por exemplo, em nitrogênio líquido, gás de nitrogênio, ou dióxido de carbono sólido. Durante o congelamento multi-direcional rápido, a nucleação de gelo domina o crescimento de cristal de gelo. O meio adequadamente frio pode consistir, por exemplo, em um gás, líquido ou sólido com uma temperatura abaixo de cerca de -10 °C. Alternativamente, o meio adequadamente frio pode consistir em um gás, líquido ou sólido com uma temperatura abaixo de cerca de -20 °C. Alternativamente, o meio adequadamente frio pode consistir em um gás, líquido ou sólido com uma temperatura abaixo de cerca de -30 °C

[0093]"Ativar" e "ativação" se refere, cada, ao processo de aquecimento de uma matéria-prima ou substância carbonizada/pirolisada em uma temperatura de permanência de ativação durante a exposição a atmosferas oxidantes (por exemplo, dióxido de carbono, oxigênio ou vapor) para produzir uma substância "ativada" (por exemplo, criogel ativado ou material de carbono ativado). O processo de ativação resulta geralmente em uma remoção de superfície das partículas, resultando em uma área de superfície aumentada. Alternativamente, a ativação pode ser realizada por meio químicos, por exemplo, por meio da impregnação de materiais precursores contendo carbono com produtos químicos, tais como ácidos como ácido fosfórico ou bases como hidróxido de potássio, hidróxido de sódio ou sais como cloreto de zinco, seguida pela carbonização. "Ativado" se refere a um material ou substância, por exemplo, um material de carbono sintético ultrapuro ou um material de carbono amorfo sintético ultrapuro, o qual tem se submetido ao processo de ativação.

[0094]"Carbonizar", "pirolisar", "carbonização" e "pirólise" se referem, cada um, ao processo de aquecimento de uma substância contendo carbono em uma temperatura de permanência de pirólise em uma atmosfera inerte (por exemplo, argônio ou nitrogênio) ou em um vácuo, de tal modo que o material visado coletado no fim do processo consista principalmente em carbono. "Pirolisado" se refere a um material ou substância, por exemplo, um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro, o qual tem se submetido ao processo de pirólise.

[0095]"Temperatura de permanência" se refere à temperatura do forno durante a parte do processo que é reservada para manter uma temperatura relativamente constante (isto é, nem aumentando e nem diminuindo a temperatura). Por exemplo, a temperatura de permanência de pirólise se refere à temperatura relativamente constante do forno durante a pirólise e a temperatura de permanência de ativação se refere à temperatura relativamente constante do forno durante a ativação.

[0096]"Poro" se refere a uma abertura ou depressão na superfície, ou um túnel

em um material de carbono, tal como, por exemplo, carbono ativado, géis de polímero ultrapuros seco pirolisado, criogéis de polímero ultrapuros pirolisado, xerogéis de polímero ultrapuros pirolisado, aerogéis de polímero ultrapuros pirolisado, géis de polímero ultrapuros seco ativado, criogéis de polímero ultrapuros ativado, xerogéis de polímero ultrapuros ativado, aerogéis de polímero ultrapuros ativado, e similares. Um poro pode consistir em um único túnel ou conectado a outros túneis em uma rede contínua por toda a estrutura.

[0097]"Estrutura de poro" se refere ao layout da superfície dos poros internos dentro de um material de carbono, tal como, um material de carbono ativado. Os componentes da estrutura de poro incluem tamanho de poro, volume de poro, área de superfície, densidade, distribuição de tamanho de poro e comprimento de poro. Geralmente, a estrutura de poro do material de carbono ativado compreende microporos e mesoporos.

[0098]"Mesoporo" se refere geralmente a poros que têm um diâmetro entre cerca de 2 nanômetros e cerca de 50 nanômetros, enquanto que o termo "microporo" se refere a poros que têm um diâmetro menor que cerca de 2 nanômetros.

[0099]"Área de superfície" se refere à área de superfície específica total de uma substância mensurável pela técnica de BET. A área de superfície é tipicamente expressa em unidades de m^2/g . A técnica de BET (Brunauer/Emmett/Teller) emprega um gás inerte, por exemplo, nitrogênio, para medir a quantidade de gás absorvido em um material e é comumente usada na técnica para determinar a área de superfície acessível de materiais.

[00100]"Conectado", quando usado em referência a mesoporos e microporos, se refere à orientação espacial de tais poros.

[00101]"Comprimento eficaz" se refere à parte do comprimento do poro que é de diâmetro suficiente de tal modo que seja disponível a aceitar íons de sal a partir do eletrólito.

[00102]"Ajustável" se refere a uma capacidade de ajustar para cima e para baixo o tamanho de poro, volume de poro, área de superfície, densidade, distribuição de tamanho de poro, comprimento de poro, ou combinações dos mesmos, de cada ou tanto os mesoporos como microporos de um material de carbono. Por exemplo, a ajustabilidade pode se referir ao ajuste de tamanho de poro para acomodar os íons de eletrólito visados, conforme adequado, quando os materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros descritos no presente documento são empregados como materiais de eletrodo. Em algumas modalidades, a estrutura de poro de um material de carbono sintético ultrapuro ou um material de carbono amorfo sintético ultrapuro pode ser ajustada. Por exemplo, na preparação de um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro, o ajuste da estrutura de poro pode ser realizado em uma série de maneiras, que incluem, mas não se limitam a, variar os parâmetros na produção de um gel de polímero ultrapuro; variar os parâmetros na secagem por congelamento do gel de polímero ultrapuro; variar os parâmetros na carbonização do criogel de polímero ultrapuro; e variar os parâmetros na ativação do criogel de polímero ultrapuro pirolisado.

[00103]"Eletrodo" se refere a um condutor através do qual a eletricidade entra ou sai de um objeto, substância ou região.

[00104]"Aglutinante" se refere a um material capaz de reter partículas individuais de carbono em conjunto de tal modo que, após a mistura de um aglutinante e carbono em conjunto, a mistura resultante possa ser formada em lâminas, pellets, discos ou outros formatos. Os exemplos não-exclusivos de aglutinantes incluem polímeros de fluoroultrapuro, tais como, por exemplo, PTFE (politetrafluoroetileno, Teflon), PFA (resina de polímero ultrapuro de perfluoroalcoxi, também conhecida como Teflon), FEP (etileno propileno fluorado, também conhecido como Teflon), ETFE (polietilenotetrafluoroetileno, vendido como Tefzel e Fluon), PVF (fluoreto de polivinil, vendido como Tedlar), ECTFE (polietilenoclorotrifluoroetileno, vendido como Halar),

PVDF (fluoreto de polivinilideno, vendido como Kynar), PCTFE (policlorotrifluoroetileno, vendido como Kel-F e CTFE), trifluoroetanol e combinações dos mesmos.

[00105]"Inerte" se refere a um material que não é ativo no eletrólito, isto é, não absorve uma quantidade significativa de íons ou não se altera quimicamente, por exemplo, degrada.

[00106]"Condutor" se refere à capacidade de um material em conduzir elétrons através da transmissão de elétrons de valência retidos de maneira livre.

[00107]"Eletrólito" significa uma substância que contém íons livre de tal modo que a substância seja eletricamente condutora. Os exemplos de eletrólitos incluem, mas não se limitam a, solventes, tais como carbonato de propileno, carbonato de etileno, carbonato de butileno, carbonato de dimetila, metil etil carbonato, carbonato de dietila, sulfolano, metilsulfolano, acetonitrila, ou misturas dos mesmos, em combinação com solutos, tais como, sais de tetralquilamônio, tais como TEA TFB (tetrafluoroborato de tetraetilamônio), MTEATFB (tetrafluoroborato de metiltrietilamônio), EMITFB (tetrafluoroborato de 1 etil-3-metilimidazólio), tetraetilamônio, sais à base de trietilamônio ou misturas dos mesmos. Em algumas modalidades, o eletrólito pode consistir em um eletrólito de ácido à base de água ou de base à base de água, tal como ácido sulfúrico aquoso brando ou hidróxido de potássio aquoso.

[00108]A. Géis de polímero ultrapuros e material de carbono sintético ultrapuro

[00109]Em uma modalidade, é fornecido um material de carbono sintético ultrapuro. Em outra modalidade, é fornecido um material de carbono amorfo sintético ultrapuro. Conforme discutido acima, os eletrodos que compreendem materiais de carbono que têm níveis residuais de diversas impurezas (por exemplo, cloro, enxofre, metais, etc.) são conhecidos por diminuir a tensão de ruptura do eletrólito no qual os eletrodos são imersos. Deste modo, estes eletrodos precisam ser operados em voltagens menores e têm uma expectativa de vida menor do que os dispositivos que

compreendem carbono de pureza maior. Acredita-se que as impurezas em eletrodos de carbono também contribuem para a degradação outros componentes dentro de um EDLC ou bateria. Por exemplo, a membrana porosa que separa os dois eletrodos de carbono em um EDLC pode ser degradada por cloro ou outras impurezas dentro do eletrodo de carbono. Os materiais de carbono sintéticos ultrapuros e materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros apresentados no presente documento são significativamente mais puros do que quaisquer materiais de carbono conhecidos e espera-se, deste modo, que aperfeiçoem a operação de qualquer quantidade de dispositivos de distribuição e/ou armazenamento elétrico.

[00110]Esta alta pureza dos materiais de carbono apresentados pode ser atribuída ao processo sol-gel apresentado. Os requerentes têm descoberto que quando um ou mais precursores de polímero, por exemplo, um composto fenólico e um aldeído, são co-polimerizados sob condições ácidas na presença de um catalisador básico volátil, um gel de polímero ultrapuro se origina. Isto é em contraste com outros métodos relatados para a preparação de géis de polímero que resultam em géis de polímero que compreendem níveis residuais de metais e/ou outras impurezas, assim como níveis residuais de solvente de reação e/ou solvente de extração. A preparação de materiais de carbono a partir destes géis de polímero impuros, por exemplo, por meio de pirólise e/ou ativação, resulta em materiais de carbono que também são impuros.

[00111]Ao contrário dos métodos conhecidos para a preparação de materiais de carbono, os géis de polímero ultrapuros apresentados permitem a preparação de materiais de carbono sintéticos ultrapuros e materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros. Por exemplo, os géis de polímero ultrapuros podem ser pirolisado por meio do aquecimento em uma atmosfera inerte (por exemplo, nitrogênio) para render os materiais de carbono apresentados que compreendem uma alta área de superfície e alto volume de poro. Estes materiais de carbono podem ser adicionalmente ativados

sem o uso de técnicas de ativação química – as quais introduzem impurezas – para se obter os materiais de carbono ativados ultrapuros apresentados. Tais materiais encontram utilidade em inúmeras aplicações de armazenamento elétrico e distribuição.

[00112]Os materiais de carbono preparados por meio do método apresentado não são somente ultrapuros, também compreendem propriedades físicas desejáveis, tais como alta porosidade e alta área de superfície. Como com a ultrapureza, a alta porosidade e alta área de superfície dos materiais de carbono apresentados consiste em um resultado do processo único apresentado no presente documento. O processo apresentado permite a variação de uma série de parâmetros do processo para controlar as propriedades físicas dos materiais de carbono. A combinação de ultrapureza, alta porosidade e alta área de superfície permite a preparação de dispositivos de distribuição e armazenamento elétrico que têm propriedades superiores aos dispositivos conhecidos.

[00113]As propriedades dos géis de polímero ultrapuros, materiais de carbono sintéticos ultrapuros e materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros apresentados, assim como os métodos para sua preparação são discutidas em maiores detalhes abaixo.

1. Géis de polímero ultrapuros

[00114]Os géis de polímero ultrapuros são intermediários na preparação dos materiais de carbono ultrapuros apresentados. Como tal, as propriedades físicas e químicas dos géis de polímero ultrapuros contribuem para as propriedades dos materiais de carbono ultrapuros. Conseqüentemente, em algumas modalidades, o gel de polímero ultrapuro consiste em um gel de polímero ultrapuro seco, por exemplo, em algumas modalidades, o gel de polímero ultrapuro seco consiste em um criogel de polímero ultrapuro. Em outras modalidades, o gel de polímero ultrapuro seco consiste em um xerogel de polímero ultrapuro ou um aerogel de polímero ultrapuro. Em algumas modalidades, os géis de polímero ultrapuros são preparados a partir de

compostos fenólicos e compostos de aldeído, por exemplo, em uma modalidade, os géis de polímero ultrapuros podem ser produzidos a partir de resorcinol e formaldeído. Em outras modalidades, os géis de polímero ultrapuros são produzidos sob condições ácidas. Em algumas modalidades, a acidez pode ser fornecida por meio da dissolução de um composto de ácido sólido, mediante o emprego de um ácido como o solvente de reação ou mediante o emprego de um sistema de solvente misturado onde um dos solventes consiste em um ácido. A preparação dos géis de polímero ultrapuros é descrita em maiores detalhes abaixo.

[00115]O processo apresentado compreende a polimerização para formar um gel de polímero na presença de um catalisador volátil básico. Conseqüentemente, em algumas modalidades, o gel de polímero ultrapuro compreende um ou mais sais, por exemplo, em algumas modalidades, o um ou mais sais consistem em sais voláteis básicos. Os exemplos de sais voláteis básicos incluem, mas não se limitam a, carbonato de amônio, bicarbonato de amônio, acetato de amônio, hidróxido de amônio, e combinações dos mesmos. Conseqüentemente, em algumas modalidades, a presente descrição fornece um gel de polímero ultrapuro que compreende carbonato de amônio, bicarbonato de amônio, acetato de amônio, hidróxido de amônio, ou combinações dos mesmos. Em modalidades adicionais, o gel de polímero ultrapuro compreende carbonato de amônio. Em outras modalidades adicionais, o gel de polímero ultrapuro compreende acetato de amônio.

[00116]Em uma modalidade de qualquer um dos aspectos ou variações descritas no presente documento, o gel de polímero ultrapuro é essencialmente livre de t-butanol. Por exemplo, em uma modalidade, o gel de polímero ultrapuro contém menos que 1000 ppm de t-butanol, menos que 100 ppm de t-butanol, menos que 10 ppm de t-butanol, ou menos que 1 ppm de t-butanol.

[00117]Em outra modalidade de qualquer um dos aspectos ou variações descritas no presente documento, o gel de polímero ultrapuro é essencialmente livre de

acetona. Por exemplo, em uma modalidade, o gel de polímero ultrapuro contém menos que 1000 ppm de acetona, menos que 100 ppm de acetona, menos que 10 ppm de acetona, ou menos que 1 ppm de acetona.

[00118]Os géis de polímero ultrapuros compreendem baixos níveis de impurezas. Deste modo, em algumas modalidades, o gel de polímero ultrapuro compreende carbono, hidrogênio e oxigênio e um teor de impureza de PIXE total de 1000 ppm ou menos. Em outras modalidades, o teor de impureza de PIXE total do gel de polímero ultrapuro é menor que 1000 ppm, menor que 800 ppm, menor que 500 ppm, menor que 300 ppm, menor que 200 ppm, menor que 100 ppm, menor que 50 ppm, menor que 25 ppm, menor que 10 ppm, menor que 5 ppm ou menor que 1 ppm.

[00119]Os géis de polímero ultrapuros também podem compreender baixo teor de cinzas, o qual pode contribuir para o baixo teor de cinzas de um material de carbono ultrapuro preparado a partir dos mesmos. Deste modo, em algumas modalidades, o teor de cinzas do gel de polímero ultrapuro se situa em uma faixa a partir de 0,1% a 0,001%. Em outras modalidades, o teor de cinzas do gel de polímero ultrapuro é menor do que 0,1%, menor do que 0,08%, menor do que 0,05%, menor do que 0,03%, menor do que 0,025%, menor do que 0,01%, menor do que 0,0075%, menor do que 0,005% ou menor do que 0,001%.

[00120]Em outras modalidades, o gel de polímero ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 500 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,08%. Em uma modalidade adicional, o gel de polímero ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 300 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,05%. Em outra modalidade adicional, o gel de polímero ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 200 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,02%. Em outra modalidade adicional, o gel de polímero ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 200 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,01%.

[00121]Conforme observado acima, os géis de polímero que compreendem impurezas rendem geralmente materiais de carbono que também compreendem impurezas. Conseqüentemente, um aspecto da presente descrição consiste em um gel de polímero ultrapuro com baixas impurezas residuais. A quantidade de impurezas de PIXE individuais presentes no gel de polímero ultrapuro pode ser determinada por meio da emissão de raios x induzida por próton. Em algumas modalidades, o nível de sódio presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 500 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de magnésio presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de alumínio presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de silício presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 500 ppm, menor do que 300 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de fósforo presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de enxofre presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 30 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de cloro presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de potássio presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em outras modalidades, o nível de cálcio

presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de cromo presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 4 ppm, menor do que 3 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em outras modalidades, o nível de ferro presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 50 ppm, menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 4 ppm, menor do que 3 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em outras modalidades, o nível de níquel presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 4 ppm, menor do que 3 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas outras modalidades, o nível de cobre presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 140 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 40 ppm, menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 4 ppm, menor do que 3 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em mais outras modalidades, o nível de zinco presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em mais outras modalidades, a soma de todas as impurezas de PIXE, que excluem sódio, magnésio, alumínio, silício, fósforo, enxofre, cloro, potássio, cálcio, cromo, ferro, níquel, cobre e zinco, presente no gel de polímero ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 500 ppm, menor do que 300 ppm, menor do que 200 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 25 ppm, menor do que 10 ppm ou menor do que 1 ppm. Conforme observado acima, em algumas modalidades, outras impurezas, tais como, hidrogênio, oxigênio e/ou nitrogênio podem estar presentes em níveis que se situam em uma faixa a partir de menos que 10% a menos que 0,01%.

[00122]Em algumas modalidades, os géis de polímero ultrapuros

compreendem impurezas de PIXE próximo ou abaixo do limite de detecção da análise de emissão de raios x induzida por próton. Por exemplo, em algumas modalidades, os géis de polímero ultrapuros compreendem menos que 50 ppm de sódio, menos que 15 ppm de magnésio, menos que 10 ppm de alumínio, menos que 8 ppm de silício, menos que 4 ppm de fósforo, menos que 3 ppm de enxofre, menos que 3 ppm de cloro, menos que 2 ppm de potássio, menos que 3 ppm de cálcio, menos que 2 ppm de escândio, menos que 1 ppm de titânio, menos que 1 ppm de vanádio, menos que 0,5 ppm de cromo, menos que 0,5 ppm de manganês, menos que 0,5 ppm de ferro, menos que 0,25 ppm de cobalto, menos que 0,25 ppm de níquel, menos que 0,25 ppm de cobre, menos que 0,5 ppm de zinco, menos que 0,5 ppm de gálio, menos que 0,5 ppm de germânio, menos que 0,5 ppm de arsênico, menos que 0,5 ppm de selênio, menos que 1 ppm de bromo, menos que 1 ppm de rubídio, menos que 1,5 ppm de estrôncio, menos que 2 ppm de ítrio, menos que 3 ppm zircônio, menos que 2 ppm de nióbio, menos que 4 ppm de molibdênio, menos que 4 ppm de tecnécio, menos que 7 ppm de rubídio, menos que 6 ppm de ródio, menos que 6 ppm de paládio, menos que 9 ppm de prata, menos que 6 ppm de cádmio, menos que 6 ppm de índio, menos que 5 ppm de estanho, menos que 6 ppm de antimônio, menos que 6 ppm de telúrio, menos que 5 ppm de iodo, menos que 4 ppm de cério, menos que 4 ppm de bário, menos que 3 ppm de lantânio, menos que 3 ppm de cério, menos que 2 ppm de praseodímio, menos que 2 ppm de neodímio, menos que 1,5 ppm de promécio, menos que 1 ppm de samário, menos que 1 ppm de európio, menos que 1 ppm de gadolínio, menos que 1 ppm de térbio, menos que 1 ppm de disprósio, menos que 1 ppm de hólmio, menos que 1 ppm de érbio, menos que 1 ppm de túlio, menos que 1 ppm de itérbio, menos que 1 ppm de lutécio, menos que 1 ppm de háfnio, menos que 1 ppm de tântalo, menos que 1 ppm de tungstênio, menos que 1,5 ppm de rênio, menos que 1 ppm de ósmio, menos que 1 ppm de irídio, menos que 1 ppm de platina, menos que 1 ppm de prata, menos que 1 ppm de mercúrio, menos que 1 ppm de tálio, menos que

1 ppm de chumbo, menos que 1,5 ppm de bismuto , menos que 2 ppm de tório, ou menos que 4 ppm de urânio.

[00123]Em algumas modalidades específicas, o gel de polímero ultrapuro compreende menos que 100 ppm de sódio, menos que 300 ppm de silício, menos que 50 ppm de enxofre, menos que 100 ppm de cálcio, menos que 20 ppm de ferro, menos que 10 ppm de níquel, menos que 40 ppm de cobre, menos que 5 ppm de cromo e menos que 5 ppm de zinco. Em outras modalidades específicas, o gel de polímero ultrapuro compreende menos que 50 ppm de sódio, menos que 100 ppm de silício, menos que 30 ppm de enxofre, menos que 50 ppm de cálcio, menos que 10 ppm de ferro, menos que 5 ppm de níquel, menos que 20 ppm de cobre, menos que 2 ppm de cromo e menos que 2 ppm de zinco.

[00124]Em outras modalidades específicas, o gel de polímero ultrapuro compreende menos que 50 ppm de sódio, menos que 50 ppm de silício, menos que 30 ppm de enxofre, menos que 10 ppm de cálcio, menos que 2 ppm de ferro, menos que 1 ppm de níquel, menos que 1 ppm de cobre, menos que 1 ppm de cromo e menos que 1 ppm de zinco.

[00125]Em algumas outras modalidades específicas, o gel de polímero ultrapuro compreende menos que 100 ppm de sódio, menos que 50 ppm de magnésio, menos que 50 ppm de alumínio, menos que 10 ppm de enxofre, menos que 10 ppm de cloro, menos que 10 ppm de potássio, menos que 1 ppm de cromo e menos do que 1 ppm de manganês.

[00126]O método apresentado produz um gel de polímero ultrapuro que compreende uma alta área de superfície específica. Sem se ater pela teoria, acredita-se que a área de superfície do gel de polímero ultrapuro contribua, ao menos em parte, para as propriedades desejáveis de área de superfície dos materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros. A área de superfície pode ser medida com o uso da técnica de BET bem conhecidas pelos elementos versados na técnica. Em uma modalidade

de qualquer um dos aspectos apresentados no presente documento, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície específica BET de ao menos 150 m²/g, ao menos 250 m²/g, ao menos 400 m²/g, ao menos 500 m²/g, ao menos 600 m²/g ou ao menos 700 m²/g.

[00127]Em uma modalidade, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície específica BET de 100 m²/g a 1000 m²/g. Alternativamente, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície específica BET de entre 150 m²/g e 700 m²/g. Alternativamente, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície específica BET de entre 400 m²/g e 700 m²/g.

[00128]Em uma modalidade, o gel de polímero ultrapuro tem uma densidade compactada a partir de 0,10 g/cc a 0,60 g/cc. Em uma modalidade, o gel de polímero ultrapuro tem uma densidade compactada a partir de 0,15 g/cc a 0,25 g/cc. Em uma modalidade da presente descrição, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície específica BET de ao menos 150 m²/g e uma densidade compactada de menos que 0,60 g/cc. Alternadamente, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície específica BET de ao menos 250 m²/g e uma densidade compactada de menos que 0,4 g/cc. Em outra modalidade, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície específica BET de ao menos 500 m²/g e uma densidade compactada de menos que 0,30 g/cc.

[00129]Em outra modalidade de qualquer um dos aspectos ou variações apresentadas no presente documento, o gel de polímero ultrapuro compreende um teor de água residual de menos que 15%, menos que 13%, menos que 10%, menos que 5% ou menos que 1%.

[00130]Em uma modalidade, o gel de polímero ultrapuro tem um volume de poro fracionário de poros em ou abaixo de 100 nm que compreende ao menos 50% do volume de poro total, ao menos 75% do volume de poro total, ao menos 90% do volume de poro total ou ao menos 99% do volume de poro total. Em outra modalidade,

o gel de polímero ultrapuro tem um volume de poro fracionário de poros em ou abaixo 20 nm que compreende ao menos 50% do volume de poro total, ao menos 75% do volume de poro total, ao menos 90% do volume de poro total ou ao menos 99% do volume de poro total.

[00131]Em uma modalidade, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície de poro fracionária de poros em ou abaixo de 100 nm que compreende ao menos 50% da área de superfície de poro total, ao menos 75% da área de superfície de poro total, ao menos 90% da área de superfície de poro total ou ao menos 99% da área de superfície de poro total. Em outra modalidade, o gel de polímero ultrapuro tem uma área de superfície de poro fracionária de poros em ou abaixo de 20 nm que compreende ao menos 50% da área de superfície de poro total, ao menos 75% da área de superfície de poro total, ao menos 90% da superfície de poro total ou ao menos 99% da área de superfície de poro total.

[00132]Os géis de polímero ultrapuros podem ser preparados por meio da polimerização de um ou mais precursores de polímero em um sistema de solvente adequado sob condições catalíticas. Conseqüentemente, em uma modalidade, o gel de polímero ultrapuro é preparado por meio da mistura de um ou mais solventes miscíveis, um ou mais compostos fenólicos, um ou mais aldeídos e um ou mais catalisadores. Por exemplo, em uma modalidade adicional, o gel de polímero ultrapuro é preparado por meio da mistura de água, ácido acético, resorcinol, formaldeído e acetato de amônio. A preparação de géis de polímeros ultrapuros é discutida em maiores detalhes abaixo.

2. Materiais de carbono sintéticos ultrapuros

[00133]Conforme observado acima, esta invenção é direcionada a um material de carbono sintético que é ultrapuro (isto é, menos que 500 ppm das impurezas de PIXE totais). Em algumas modalidades, o material de carbono ultrapuro sintético é amorfo. Embora não se atendo à teoria, acredita-se que a pureza e as propriedades

dos materiais de carbono consistam em uma função de seu método de preparação, e a variação dos parâmetros de preparação pode render materiais de carbono que têm diferentes propriedades. Conseqüentemente, em algumas modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro consiste em um gel de polímero ultrapuro seco pirolisado, por exemplo, um criogel de polímero ultrapuro pirolisado, um xerogel de polímero ultrapuro pirolisado ou um aerogel de polímero ultrapuro pirolisado. Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é ativado (isto é, um material de carbono sintético ultrapuro ativado). Por exemplo, em modalidades adicionais, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro consiste em um gel de polímero ultrapuro seco ativado, um criogel de polímero ultrapuro ativado, um xerogel de polímero ultrapuro ativado ou um aerogel de polímero ultrapuro ativado.

[00134]O material de carbono sintético ultrapuro e material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreendem baixas impurezas de PIXE totais. Deste modo, em algumas modalidades, o teor de impureza de PIXE total no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro (conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton) é menor do que 1000 ppm. Em outras modalidades, o teor de impureza de PIXE total no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 800 ppm, menor do que 500 ppm, menor do que 300 ppm, menor do que 200 ppm, menor do que 150 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 25 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm ou menor do que 1 ppm. Em modalidades adicionais do mencionado anteriormente, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro consiste em um gel de polímero ultrapuro seco pirolisado, um criogel de polímero ultrapuro pirolisado, um xerogel de polímero ultrapuro pirolisado, um aerogel de polímero ultrapuro pirolisado, um gel de polímero

ultrapuro seco ativado, um criogel de polímero ultrapuro ativado, um xerogel de polímero ultrapuro ativado ou um aerogel de polímero ultrapuro ativado.

[00135]Em adição ao baixo teor de impureza de PIXE, os materiais de carbono apresentados compreendem alto teor de carbono total. Em adição ao carbono, o material de carbono sintético ultrapuro e material de carbono amorfo sintético ultrapuro também pode compreender oxigênio, hidrogênio e nitrogênio. Em algumas modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende ao menos 85% de carbono, ao menos 90% de carbono, ao menos 95% de carbono, ao menos 96% de carbono, ao menos 97% de carbono, ao menos 98% de carbono ou ao menos 99% de carbono em uma base de peso/peso. Em algumas outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 10% de oxigênio, menos que 5% de oxigênio, menos que 3,0% de oxigênio, menos que 2,5% de oxigênio, menos que 1% de oxigênio ou menos que 0,5% de oxigênio em uma base de peso/peso. Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 10% de hidrogênio, menos que 5% de hidrogênio, menos que 2,5% de hidrogênio, menos que 1% de hidrogênio, menos que 0,5% de hidrogênio ou menos que 0,1% de hidrogênio em uma base de peso/peso. Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 5% de nitrogênio, menos que 2,5% de nitrogênio, menos que 1% de nitrogênio, menos que 0,5% de nitrogênio, menos que 0,25% de nitrogênio ou menos que 0,01% de nitrogênio em uma base de peso/peso. O teor de oxigênio, hidrogênio e nitrogênio dos materiais de carbono apresentados pode ser determinado por meio da análise de combustão. As técnicas para a determinação da composição elementar por meio da análise de combustão são bem conhecidas na técnica.

[00136]O teor de cinzas total de um material de carbono pode ter, em alguns

casos, um efeito sobre o desempenho eletroquímico de um material de carbono. Conseqüentemente, em algumas modalidades, o teor de cinzas do material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro se situa em uma faixa a partir de 0,1% a 0,001%, por exemplo, em algumas modalidades específicas, o teor de cinzas do material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 0,1%, menor do que 0,08%, menor do que 0,05%, menor do que 0,03%, menor do que 0,025%, menor do que 0,01%, menor do que 0,0075%, menor do que 0,005% ou menor do que 0,001%.

[00137]Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 500 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,08%. Em modalidades adicionais, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 300 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,05%. Em outras modalidades adicionais, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 200 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,05%. Em outras modalidades adicionais, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 200 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,025%. Em outras modalidades adicionais, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 100 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,02%. Em outras modalidades adicionais, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro tem um teor de impureza de PIXE total de menos que 50 ppm e um teor de cinzas de menos que 0,01%.

[00138]A quantidade de impurezas de PIXE individuais presente nos materiais de carbono apresentados pode ser determinada por meio da emissão de raios x

induzida por próton. As impurezas de PIXE individuais podem contribuir de diferentes maneiras para o desempenho eletroquímico geral dos materiais de carbono apresentados. Deste modo, em algumas modalidades, o nível de sódio presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 500 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de magnésio presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de alumínio presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de silício presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 500 ppm, menor do que 300 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de fósforo presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de enxofre presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 30 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de cloro presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de potássio presente no material de carbono sintético

ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, ou menor do que 1 ppm. Em outras modalidades, o nível de cálcio presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas modalidades, o nível de cromo presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 4 ppm, menor do que 3 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em outras modalidades, o nível de ferro presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 50 ppm, menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 4 ppm, menor do que 3 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em outras modalidades, o nível de níquel presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 4 ppm, menor do que 3 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em algumas outras modalidades, o nível de cobre presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 140 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 40 ppm, menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 4 ppm, menor do que 3 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em mais outras modalidades, o nível de zinco presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 20 ppm, menor do que 10 ppm, menor do que 5 ppm, menor do que 2 ppm ou menor do que 1 ppm. Em mais outras modalidades, a soma de todas as impurezas de PIXE, que excluem sódio, magnésio, alumínio, silício, fósforo, enxofre, cloro, potássio, cálcio, cromo, ferro, níquel, cobre e

zinco, presente no material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é menor do que 1000 ppm, menor do que 500 ppm, menor do que 300 ppm, menor do que 200 ppm, menor do que 100 ppm, menor do que 50 ppm, menor do que 25 ppm, menor do que 10 ppm ou menor do que 1 ppm. Conforme observado acima, em algumas modalidades, outras impurezas, tais como, hidrogênio, oxigênio e/ou nitrogênio podem estar presentes em níveis que se situam em uma faixa a partir de menos que 10% a menos que 0,01%.

[00139]Em algumas modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende impurezas de PIXE próximo ou abaixo do limite de detecção da análise de emissão de raios x induzida por próton. Por exemplo, em algumas modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 50 ppm de sódio, menos que 15 ppm de magnésio, menos que 10 ppm de alumínio, menos que 8 ppm de silício, menos que 4 ppm de fósforo, menos que 3 ppm de enxofre, menos que 3 ppm de cloro, menos que 2 ppm de potássio, menos que 3 ppm de cálcio, menos que 2 ppm de escândio, menos que 1 ppm de titânio, menos que 1 ppm de vanádio, menos que 0,5 ppm de cromo, menos que 0,5 ppm de manganês, menos que 0,5 ppm de ferro, menos que 0,25 ppm de cobalto, menos que 0,25 ppm de níquel, menos que 0,25 ppm de cobre, menos que 0,5 ppm de zinco, menos que 0,5 ppm de gálio, menos que 0,5 ppm de germânio, menos que 0,5 ppm de arsênico, menos que 0,5 ppm de selênio, menos que 1 ppm de bromo, menos que 1 ppm de rubídio, menos que 1,5 ppm de estrôncio, menos que 2 ppm de ítrio, menos que 3 ppm de zircônio, menos que 2 ppm de nióbio, menos que 4 ppm de molibdênio, menos que 4 ppm, tecnécio, menos que 7 ppm de rubídio, menos que 6 ppm de ródio, menos que 6 ppm de paládio, menos que 9 ppm de prata, menos que 6 ppm de cádmio, menos que 6 ppm de índio, menos que 5 ppm de estanho, menos que 6 ppm de antimônio, menos que 6 ppm de telúrio, menos que 5 ppm de iodo, menos que 4 ppm de

césio, menos que 4 ppm de bário, menos que 3 ppm de lantânio, menos que 3 ppm de cério, menos que 2 ppm de praseodímio, menos que 2 ppm, neodímio, menos que 1,5 ppm de promécio, menos que 1 ppm de samário, menos que 1 ppm de európio, menos que 1 ppm de gadolínio, menos que 1 ppm de térbio, menos que 1 ppm de disprósio, menos que 1 ppm de hólmio, menos que 1 ppm de érbio, menos que 1 ppm de túlio, menos que 1 ppm de itérbio, menos que 1 ppm de lutécio, menos que 1 ppm de háfnio, menos que 1 ppm de tântalo, menos que 1 ppm de tungstênio, menos que 1,5 ppm de rênio, menos que 1 ppm de ósmio, menos que 1 ppm de irídio, menos que 1 ppm de platina, menos que 1 ppm de prata, menos que 1 ppm de mercúrio, menos que 1 ppm de tálio, menos que 1 ppm de chumbo, menos que 1,5 ppm de bismuto , menos que 2 ppm de tório, ou menos que 4 ppm de urânio.

[00140]Em algumas modalidades específicas, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 100 ppm de sódio, menos que 300 ppm de silício, menos que 50 ppm de enxofre, menos que 100 ppm de cálcio, menos que 20 ppm de ferro, menos que 10 ppm de níquel, menos que 140 ppm de cobre, menos que 5 ppm de cromo e menos que 5 ppm de zinco, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton. Em outras modalidades específicas, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 50 ppm de sódio, menos que 30 ppm de enxofre, menos que 100 ppm de silício, menos que 50 ppm de cálcio, menos que 10 ppm de ferro, menos que 5 ppm de níquel, menos que 20 ppm de cobre, menos que 2 ppm de cromo e menos que 2 ppm de zinco.

[00141]Em outras modalidades específicas, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 50 ppm de sódio, menos que 50 ppm de silício, menos que 30 ppm de enxofre, menos que 10 ppm de cálcio, menos que 2 ppm de ferro, menos que 1 ppm de níquel, menos que 1 ppm de cobre, menos que 1 ppm de cromo e menos que 1 ppm de zinco.

[00142]Em algumas outras modalidades específicas, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende menos que 100 ppm de sódio, menos que 50 ppm de magnésio, menos que 50 ppm de alumínio, menos que 10 ppm de enxofre, menos que 10 ppm de cloro, menos que 10 ppm de potássio, menos que 1 ppm de cromo e menos do que 1 ppm de manganês.

[00143]Os materiais de carbono apresentados compreendem uma alta área de superfície. Embora não se atendo à teoria, acredita-se que tal alta área de superfície possa contribuir para a alta densidade de energia obtida a partir de dispositivos que compreendem o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro. Conseqüentemente, em alguma modalidade, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma área de superfície específica BET de ao menos 1000 m²/g, ao menos 1500 m²/g, ao menos 2000 m²/g, ao menos 2400 m²/g, ao menos 2500 m²/g, ao menos 2750 m²/g ou ao menos 3000 m²/g. Por exemplo, em algumas modalidades do mencionado anteriormente, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é ativado.

[00144]Em outra modalidade, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro tem uma densidade compactada entre 0,2 e 0,6 g/cc, entre 0,3 e 0,5 g/cc ou entre 0,4 e 0,5 g/cc. Em outra modalidade, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro tem um volume de poro total de ao menos 0,5 cm³/g, ao menos 0,7 cm³/g, ao menos 0,75 cm³/g, ao menos 0,9 cm³/g, ao menos 1,0 cm³/g, ao menos 1,1 cm³/g, ao menos 1,2 cm³/g, ao menos 1,3 cm³/g, ao menos 1,4 cm³/g, ao menos 1,5 cm³/g ou ao menos 1,6 cm³/g.

[00145]A distribuição de tamanho de poro dos materiais de carbono apresentados consiste em um parâmetro que pode ter um efeito sobre o desempenho eletroquímico dos materiais de carbono amorfos sintéticos. Por exemplo, um material de

carbono que compreende poros dimensionados para acomodar íons de eletrólito específicos pode ser particularmente útil em dispositivos EDLC. Além disso, os materiais de carbono que compreendem mesoporos com um comprimento eficaz curto (isto é, menos que 10 nm, menos que 5 nm ou menos que 3 nm, conforme medido por TEM) podem ser úteis para otimizar o transporte de íon e maximizar a potência. Conseqüentemente, em uma modalidade, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende um volume de poro fracionário de poros em ou abaixo de 100 nm que compreende ao menos 50% do volume de poro total, ao menos 75% do volume de poro total, ao menos 90% do volume de poro total ou ao menos 99% do volume de poro total. Em outras modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende um volume de poro fracionário de poros em ou abaixo de 20 nm que compreende ao menos 50% do volume de poro total, ao menos 75% do volume de poro total, ao menos 90% do volume de poro total ou ao menos 99% do volume de poro total.

[00146]Em outra modalidade, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma área de superfície de poro fracionária de poros em ou abaixo de 100 nm que compreende ao menos 50% da área de superfície de poro total, ao menos 75% da área de superfície de poro total, ao menos 90% da área de superfície de poro total ou ao menos 99% da área de superfície de poro total. Em outra modalidade, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma área de superfície de poro fracionária de poros em ou abaixo de 20 nm que compreende ao menos 50% da área de superfície de poro total, ao menos 75% da área de superfície de poro total, ao menos 90% da área de superfície de poro total ou ao menos 99% da área de superfície de poro total.

[00147]Em outra modalidade da presente descrição, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é preparado por

meio de um método apresentado no presente documento, por exemplo, em algumas modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é preparado por meio de um método que compreende pirolisar um gel de polímero ultrapuro seco conforme apresentado no presente documento. Em algumas modalidades, o gel de polímero ultrapuro pirolisado é, adicionalmente, ativado para se obter um material de carbono sintético ultrapuro ativado ou um material de carbono amorfo sintético ultrapuro. Os métodos para a preparação dos materiais de carbono apresentados são descritos em maiores detalhes abaixo.

B. Preparação de materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros

[00148]Em uma modalidade, é fornecido um método para a preparação de novos géis de polímero ultrapuros. Em outra modalidade, é fornecido um método para a preparação de materiais de carbono sintéticos ultrapuros, por exemplo, em algumas modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro consiste em um material de carbono amorfo sintético ultrapuro. Tais géis de polímero ultrapuros e materiais de carbono sintéticos ultrapuros não podem ser obtidos por meio dos métodos relatados anteriormente. Em algumas modalidades adicionais, é fornecido um método para a preparação de materiais de carbono ativados sintéticos ultrapuros, por exemplo, os materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros ativado. Os detalhes dos parâmetros do processo variáveis das diversas modalidades dos métodos apresentados são descritas abaixo.

1. Preparação de géis de polímero ultrapuros

[00149]Os géis de polímero ultrapuros podem ser preparados por meio de um processo sol-gel. Por exemplo, o gel de polímero ultrapuro pode ser preparado por meio da co-polimerização de um ou mais precursores de polímero em um solvente adequado. Em uma modalidade, o um ou mais precursores de polímero são co-poli-merizados sob condições ácidas. Em algumas modalidades, um primeiro precursor de polímero consiste em um composto fenólico e um segundo precursor de polímero

consiste em um composto de aldeído. Em uma modalidade do método, o composto fenólico consiste em resorcinol, catecol, hidroquinona, floroglucinol, fenol, ou uma combinação dos mesmos; e o composto de aldeído consiste em formaldeído, acetaldeído, propionaldeído, butiraldeído, benzaldeído, cinnamaldeído, ou uma combinação dos mesmos. Em uma modalidade adicional, o composto fenólico consiste em resorcinol, fenol ou uma combinação dos mesmos, e o composto de aldeído consiste em formaldeído. Em ainda outras modalidades, o composto fenólico consiste em resorcinol e o composto de aldeído consiste em formaldeído.

[00150]O processo de polimerização sol gel é geralmente executado sob condições catalíticas. Conseqüentemente, em algumas modalidades, a preparação do gel de polímero ultrapuro compreende a co-polimerização de um ou mais precursores de polímero na presença de um catalisador. Em algumas modalidades, o catalisador compreende um catalisador volátil básico. Por exemplo, em uma modalidade, o catalisador volátil básico compreende carbonato de amônio, bicarbonato de amônio, acetato de amônio, hidróxido de amônio, ou combinações dos mesmos. Em uma modalidade adicional, o catalisador volátil básico consiste em carbonato de amônio. Em outra modalidade adicional, o catalisador volátil básico consiste em acetato de amônio.

[00151]A razão molar do catalisador para o composto fenólico pode ter um efeito sobre as propriedades finais do gel de polímero ultrapuro, assim como as propriedades finais dos materiais de carbono sintéticos ultrapuros, por exemplo, os materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros preparados a partir do mesmo. Deste modo, em algumas modalidades tais catalisadores são utilizados na faixa de razões molares de 10:1 a 2000:1 de composto fenólico:catalisador. Em algumas modalidades, tais catalisadores podem ser usados na faixa de razões molares de 20:1 a 200:1 de composto fenólico:catalisador. Por exemplo, em outras modalidades, tais catalisadores podem ser usados na faixa de razões molares de 25:1 a 100:1 de composto fenólico:catalisador.

[00152]O solvente de reação consiste em outro parâmetro do processo que pode ser variado para se obter as propriedades desejadas dos géis de polímero ultrapuros e materiais de carbono amorfos sintéticos. Em algumas modalidades, o solvente para a preparação do gel de polímero ultrapuro consiste em um sistema de solvente misturado de água e um co-solvente miscível. Por exemplo, em determinadas modalidades, o solvente compreende um ácido miscível em água. Os exemplos de ácidos miscíveis em água incluem, mas não se limitam a, ácido propiônico, ácido acético e ácido fórmico. Em modalidades adicionais, o solvente compreende uma razão de ácido miscível em água para água de 99:1, 90:10, 75:25, 50:50, 25:75, 10:90 ou 1:90. Em outras modalidades, a acidez é fornecida mediante a adição de um ácido sólido ao solvente de reação.

[00153]Em algumas outras modalidades do mencionado anteriormente, o solvente para a preparação do gel de polímero ultrapuro é ácido. Por exemplo, em determinadas modalidades, o solvente compreende ácido acético. Por exemplo, em uma modalidade, o solvente consiste em 100% de ácido acético. Em outras modalidades, um sistema de solvente misturado é fornecido, em que um dos solventes é ácido. Por exemplo, em uma modalidade do método, o solvente consiste em um solvente binário que compreende ácido acético e água. Em modalidades adicionais, o solvente compreende uma razão de ácido acético para água de 99:1, 90:10, 75:25, 50:50, 25:75, 10:90 ou 1:90. Em outras modalidades, a acidez é fornecida mediante a adição de um ácido sólido ao solvente de reação.

[00154]Algumas modalidades do método apresentado não compreendem uma etapa de troca de solvente (por exemplo, troca de t-butanol por água) antes da liofilização. Por exemplo, em uma modalidade de qualquer um dos métodos descritos no presente documento, antes do congelamento, as partículas de gel de polímero ultrapuro ou gel de polímero ultrapuro são enxaguadas com água. Em uma modalidade, o diâmetro médio das ditas partículas de gel de polímero ultrapuro antes do

congelamento é menor do que 25 mm, por exemplo, entre 0,001 mm e 25 mm; alternadamente, o diâmetro médio das ditas partículas de gel de polímero ultrapuro antes do congelamento é entre 0,01 mm e 15 mm, por exemplo, entre 1,0 mm e 15 mm. Em alguns exemplos, as partículas de gel de polímero ultrapuro são entre 1 mm e 10 mm. Em modalidades adicionais, as partículas de gel de polímero ultrapuro são congeladas através da imersão em um meio que tem uma temperatura abaixo cerca de -10°C , por exemplo, abaixo cerca de -20°C , ou alternativamente abaixo cerca de -30°C . Por exemplo, o meio pode consistir em nitrogênio líquido ou etanol (ou outro solvente orgânico) em gelo seco ou etanol resfriado por outro meio. Em algumas modalidades, a secagem sob vácuo compreende submeter as partículas congeladas a uma pressão de vácuo abaixo cerca de 1400 mTorr.

[00155] Outros métodos de congelar rapidamente as partículas de gel de polímero ultrapuro também são considerados. Em outra modalidade, o gel de polímero ultrapuro é rapidamente congelado por meio da co-mistura ou mistura física de partículas de gel de polímero ultrapuro com um sólido frio adequado, por exemplo, gelo seco (dióxido de carbono sólido). Outro método consiste em utilizar um congelador rápido com uma placa de metal a -60°C para remover rapidamente o calor a partir das partículas de gel de polímero ultrapuro dispersas sobre sua superfície. Um terceiro método de resfriar rapidamente a água em uma partícula de gel de polímero ultrapuro consiste em congelar instantaneamente a partícula mediante a atração de um alto vácuo de maneira muito rápida (o grau de vácuo é de tal modo que a temperatura que corresponde à pressão de vapor de equilíbrio permita o congelamento). Mais outro método para o congelamento rápido compreende misturar um gel de polímero ultrapuro com um gás adequadamente resfriado. Em algumas modalidades, o gás frio pode ter uma temperatura abaixo cerca de -10°C . Em algumas modalidades, o gás frio pode ter uma temperatura abaixo cerca de -20°C . Em algumas modalidades, o gás frio pode ter uma temperatura abaixo cerca de -30°C . Em mais outras

modalidades, o gás pode ter uma temperatura de cerca de -196°C . Por exemplo, em algumas modalidades, o gás consiste em nitrogênio.

[00156]Em outras modalidades, as partículas de gel de polímero ultrapuro são congeladas em uma prateleira do liofilizador em uma temperatura de -20°C ou menor. Por exemplo, em algumas modalidades, as partículas de gel de polímero ultrapuro são congeladas na prateleira do liofilizador a uma temperatura de -30°C ou menor. Em algumas outras modalidades, o monólito de gel de polímero ultrapuro é submetido a um ciclo de congelamento/descongelamento (a partir da temperatura ambiente a -20°C ou menor e de volta para temperatura ambiente), ruptura física do gel congelado/descongelado para criar as partículas e, então, o processamento de liofilização adicional. Por exemplo, em algumas modalidades, o monólito de gel de polímero ultrapuro é submetido a um ciclo de congelamento/descongelamento (a partir da temperatura ambiente a -30°C ou menos e de volta para temperatura ambiente), a ruptura física do gel congelado/descongelado para criar as partículas e, então, processamento de liofilização adicional.

[00157]Em algumas modalidades dos métodos descritos no presente documento, a razão molar de precursor fenólico para catalisador é a partir de cerca de 10:1 a cerca de 2000:1 ou a razão molar de precursor fenólico para catalisador é a partir de cerca de 20:1 a cerca de 200:1. Em modalidades adicionais, a razão molar de precursor fenólico para catalisador é a partir de cerca de 25:1 a cerca de 100:1. Em modalidades adicionais, a razão molar de precursor fenólico para catalisador é a partir de cerca de 25:1 a cerca de 50:1. Em modalidades adicionais, a razão molar de precursor fenólico para catalisador é a partir de cerca de 100:1 a cerca de 50:1.

[00158]Na modalidade específica, em que um dos precursores de polímero consiste em resorcinol e o outro precursor de polímero consiste em formaldeído, a razão de resorcinol para catalisador pode ser variada para se obter as propriedades desejadas do gel de polímero ultrapuro resultantes e materiais de carbono amorfos

sintéticos. Em algumas modalidades dos métodos descritos no presente documento, a razão molar de resorcinol para catalisador é a partir de cerca de 10:1 a cerca de 2000:1 ou a razão molar de resorcinol para catalisador é a partir de cerca de 20:1 a cerca de 200:1. Em modalidades adicionais, a razão molar de resorcinol para catalisador é a partir de cerca de 25:1 a cerca de 100:1. Em modalidades adicionais, a razão molar de resorcinol para catalisador é a partir de cerca de 25:1 a cerca de 50:1. Em modalidades adicionais, a razão molar de resorcinol para catalisador é a partir de cerca de 100:1 a cerca de 50:1.

[00159]A polimerização para formar um gel de polímero ultrapuro pode ser completa por meio de diversos meios descritos na técnica. Por exemplo, a polimerização pode ser completa por meio da incubação de materiais precursores de polímero adequados na presença de um catalisador adequado por um período de tempo. O tempo para a polimerização pode consistir em um período que se situa em uma faixa a partir de minutos ou horas a dias, dependendo da temperatura (quanto maior a temperatura mais rápida a taxa de reação rate e, correspondentemente, mais curto o tempo exigido). A polimerização temperatura pode se situar em uma faixa a partir da temperatura ambiente a uma temperatura que se aproxima (mas menor do que) o ponto de ebulição da solução de partida. Por exemplo, a temperatura pode se situar em uma faixa a partir de cerca de 20 °C a cerca de 90 °C. Na modalidade específica, em que um precursor de polímero consiste em resorcinol e um precursor de polímero consiste em formaldeído, a temperatura pode se situar em uma faixa a partir de cerca de 20 °C a cerca de 100 °C, tipicamente, a partir de cerca de 25°C a cerca de 90°C. Em algumas modalidades, a polimerização pode ser completa por meio da incubação de materiais precursores de polímero sintético adequados na presença de um catalisador por ao menos 24 horas a cerca de 90 °C. Geralmente, a polimerização pode ser completa em entre cerca de 6 e cerca de 24 horas a cerca de 90 °C, por exemplo, entre cerca de 18 e cerca de 24 horas a cerca de 90 °C.

[00160] Os materiais precursores de polímero conforme apresentado no presente documento incluem (a) alcoóis, compostos fenólicos e outros compostos de mono- ou polihidróxi e (b) aldeídos, cetonas, e combinações dos mesmos. Os alcoóis representativos neste contexto incluem alcoóis saturados e insaturados, ramificados e de cadeia linear. Os compostos fenólicos adequados incluem polihidróxi benzeno, tal como um dihidróxi ou trihidróxi benzeno. Os polihidróxi benzenos representativos incluem resorcinol (isto é, 1,3-dihidróxi benzeno), catecol, hidroquinona e floroglucinol. As misturas de dois ou mais polihidróxi benzenos também podem ser usadas. O fenol (monohidróxi benzeno) também pode ser usado. Os compostos de polihidróxi representativos incluem açúcares, tais como glicose, e outros polióis, tais como manitol. Os aldeídos neste contexto incluem: aldeídos saturados de cadeia linear, tais como metanal (formaldeído), etanal (acetaldeído), propanal (propionaldeído), butanal (butiraldeído), e similares; aldeídos insaturados de cadeia linear, tais como etenona e outros cetenos, 2-propenal (acrilaldeído), 2-butenal (crotonaldeído), 3 butenal, e similares; aldeídos ramificados saturados e insaturados; e aldeídos do tipo aromático, tais como benzaldeído, salicilaldeído, hidrocinalaldeído, e similares. As cetonas adequadas incluem: cetonas saturadas de cadeia linear, tais como propanona e 2 butanona, e similares; cetonas insaturadas de cadeia linear, tais como propenona, 2 butenona, e 3-butenona (metil vinil cetona) e similares; cetonas insaturadas e saturadas ramificadas; e cetonas do tipo aromático, tais como metil benzil cetona (fenilacetona), etil benzil cetona, e similares. Os materiais precursores de polímero ultrapuros também podem consistir em combinações dos precursores descritos acima.

[00161] Em algumas modalidades, um precursor de polímero consiste em uma espécie contendo álcool e o outro precursor de polímero consiste em uma espécie contendo carbonila. As quantidades relativas de espécie contendo álcool (por exemplo, alcoóis, compostos fenólicos e compostos de mono- ou poli- hidróxi ou combinações dos mesmos) reagidas com a espécie contendo carbonila (por exemplo,

aldeídos, cetonas ou combinações dos mesmos) podem variar substancialmente. Em algumas modalidades, a razão de espécie contendo álcool para espécie de aldeído é selecionada de modo que os moles totais dos grupos álcool reativos na espécie contendo álcool sejam aproximadamente os mesmos que os moles totais de grupos carbonila reativos na espécie de aldeído. Semelhantemente, a razão de espécie contendo álcool para espécie de cetona pode ser selecionada de modo que os moles totais de grupos álcool reativos na espécie contendo álcool seja aproximadamente os mesmos que os moles totais de grupos carbonila reativos na espécie de cetona. A mesma razão molar 1:1 geral é verdadeira quando a espécie contendo carbonila compreende uma combinação de uma espécie de aldeído e uma espécie de cetona.

[00162]O teor de sólidos total na solução aquosa antes da formação do gel de polímero ultrapuro pode ser variado, A razão de peso de resorcinol para água é a partir de cerca de 0,05 a 1 a cerca de 0,70 a 1. Alternativamente, a razão de resorcinol para água é a partir de cerca de 0,15 a 1 a cerca de 0,6 a 1. Alternativamente, a razão de resorcinol para água é a partir de cerca de 0,15 a 1 a cerca de 0,35 a 1. Alternativamente, a razão de resorcinol para água é a partir de cerca de 0,25 a 1 a cerca de 0,5 a 1. Alternativamente, a razão de resorcinol para água é a partir de cerca de 0,3 a 1 a cerca de 0,4 a 1.

[00163]Os exemplos de solventes úteis na preparação dos géis de polímero ultrapuros apresentados no presente documento incluem, mas não se limitam a, água ou álcool, tal como, por exemplo, etanol, t butanol, metanol ou misturas destes, opcionalmente, com água. Tais solventes são úteis para a dissolução dos materiais precursores de polímero, por exemplo, a dissolução do composto fenólico. Além disso, em alguns processos, tais solventes são empregados para a troca de solvente no gel de polímero ultrapuro (antes do congelamento e secagem), em que o solvente a partir da polimerização ultrapura dos precursores, por exemplo, resorcinol e formaldeído, é trocado por um álcool puro. Em uma modalidade do presente pedido, um gel de

polímero ultrapuro é preparado por meio de um processo que não inclui a troca de solvente.

[00164]Os catalisadores adequados na preparação de géis de polímero ultrapuros incluem catalisadores básicos voláteis que facilitam a polimerização dos materiais precursores em um polímero ultrapuro monolítico. O catalisador também pode compreender diversas combinações dos catalisadores descritos acima. Nas modalidades que compreendem compostos fenólicos, tais catalisadores podem ser usados na faixa de razões molares de 20:1 a 200:1 de composto fenólico:catalisador. Por exemplo, em algumas modalidades específicas, tais catalisadores podem ser usados na faixa de razões molares de 25:1 a 100:1 de composto fenólico:catalisador.

[00165]2. Criação de partículas de gel de polímero ultrapuro

[00166]Um gel de polímero monolítico ultrapuro pode ser fisicamente rompido para criar partículas menores de acordo com diversas técnicas conhecidas na técnica. As partículas de gel de polímero ultrapuro resultantes têm geralmente um diâmetro médio de menos que cerca de 30 mm, por exemplo, na faixa de tamanho de cerca de 1 mm a cerca de 25 mm, ou entre cerca de 1 mm a cerca de 5 mm ou entre cerca de 0,5 mm a cerca de 10 mm. Alternativamente, o tamanho das partículas de gel de polímero ultrapuro pode ser na faixa abaixo de cerca de 1 mm, por exemplo, na faixa de tamanho de cerca de 10 a 1000 microns. As técnicas para a criação de partículas de gel de polímero ultrapuro a partir de material monolítico incluem os métodos de ruptura de máquina ou manual, tais como peneiração, trituração, moagem, ou combinações dos mesmos. Tais métodos são bem conhecidos pelos elementos versados na técnica. Os diversos tipos de moinhos podem ser empregados neste contexto, tal como moinhos de cilindro, esfera e bolas e trituradores giratórios e equipamentos de criação de partícula similares conhecidos na técnica.

[00167]Em uma modalidade específica, um moinho de cilindros é empregado. Um moinho de cilindros tem três estágios para reduzir gradualmente o tamanho das

partículas de gel. Os géis de polímero ultrapuros são geralmente muito frágeis para um material 'molhado' e não são úmidos ao toque. Conseqüentemente, são facilmente moídos com o uso desta abordagem, no entanto, a largura de cada estágio precisa se ajustada adequadamente para alcançar a malha final visada. Este ajuste é feito e validado para cada combinação de fórmula de gel e tamanho de malha. Cada gel é moído através da passagem através de uma peneira de tamanho de malha conhecido. As partículas peneiradas podem ser temporariamente armazenadas em recipientes vedados.

[00168]Em uma modalidade, um triturador giratório é empregado. O triturador giratório tem um tamanho de malha de peneira de cerca de 0,31 centímetros (1/8 de polegada). Em outra modalidade, o triturador giratório tem um tamanho de malha de peneira de cerca de 0,95 centímetros (3/8 de polegada). Em outra modalidade, o triturador giratório tem um tamanho de malha de peneira de cerca de 1,58 centímetros (5/8 de polegada). Em outra modalidade, o triturador giratório tem um tamanho de malha de peneira de cerca de 0,95 centímetros (3/8 de polegada).

[00169]A moagem pode ser completa em temperatura ambiente de acordo com os métodos bem conhecidos pelos elementos versados na técnica. Alternativamente, a moagem pode ser completa de maneira criogênica, por exemplo, por meio da co-moagem do gel de polímero ultrapuro com partículas de dióxido de carbono sólido (gelo seco). Nesta modalidade, as duas etapas de (a) criação de partículas a partir do gel de polímero monolítico ultrapuro e (b) congelamento rápido multi-direcional do gel de polímero ultrapuro são completas em um único processo.

3. Congelamento rápido de géis de polímero ultrapuros

[00170]Depois que as partículas de gel de polímero ultrapuro são formadas a partir do gel de polímero monolítico ultrapuro, o congelamento das partículas de gel de polímero ultrapuro é completa rapidamente e em um modo multi-direcional, conforme descrito em maiores detalhes acima. O congelamento lento e um modo

unidirecional, por exemplo, por meio do congelamento de prateleira em um liofilizador, resulta em material seco que tem uma área de superfície muito baixa conforme evidenciado em um exemplo no presente documento. Semelhantemente, o congelamento rápido (isto é, o congelamento que é completo por meio do resfriamento rápido das partículas de gel de polímero ultrapuro mediante a atração de um vácuo profundo) também resulta em um material seco que tem uma baixa área de superfície. Conforme apresentado no presente documento, o congelamento rápido em um modo multi-direcional pode ser completo mediante a redução rapidamente da temperatura do material a ao menos cerca de -10°C ou menos, por exemplo, -20°C ou menos, ou, por exemplo, a ao menos cerca de -30°C ou menos. O congelamento rápido das partículas de gel de polímero ultrapuro cria uma estrutura de cristal de gelo fina dentro das partículas devido à nucleação difundida de cristais de gelo, mas deixa pouco tempo para o crescimento de cristal de gelo. Isto fornece uma alta área de superfície específica entre os cristais de gelo e a matriz de hidrocarboneto, o qual é necessariamente excluído da matriz de gelo.

[00171]O conceito de congelamento extremamente rápido para promover a nucleação sobre o crescimento de cristal pode ser aplicado aos sistemas de solvente misturado. Em uma modalidade, à medida que o sistema de solvente misturado é rapidamente resfriado, o componente de solvente que predomina será submetido à cristalização em sua temperatura de fusão de equilíbrio, com a concentração aumentada do(s) co-solvente(s) e depressão do ponto de congelamento adicional concomitante. À medida que a temperatura é, adicionalmente, reduzida, existe a cristalização aumentada do solvente predominante e a concentração do(s) co-solvente(s) até que a composição eutética seja alcançada, em tal ponto a composição eutética se submete à transição a partir de líquido para sólido sem concentração de componente adicional nem resfriamento de produto até que o congelamento completo é alcançado. No caso específico de água e ácido acético (que como substâncias puras exibem

pontos de congelamento de 0 °C e 17 °C, respectivamente), a composição eutética é compreendida de aproximadamente 59% de ácido acético e 41% de água e congela a cerca de – 27 °C. Conseqüentemente, em uma modalidade, o sistema de solvente misturado consiste na composição eutética, por exemplo, em uma modalidade, o sistema de solvente misturado compreende 59% de ácido acético e 41% de água.

4. Secagem de géis de polímero ultrapuros

[00172]Em uma modalidade, as partículas de gel de polímero ultrapuro congeladas contendo uma matriz de gelo fina são liofilizadas sob condições projetadas para evitar o colapso do material e manter a estrutura de superfície fina e a porosidade no produto seco. Os detalhes das condições da liofilização são fornecidas no presente documento. Geralmente, a secagem é completa sob condições onde a temperatura do produto é mantida abaixo de uma temperatura que iria de outra forma resultar em colapso dos poros do produto, possibilitando, assim, que o material seco retenha uma área de superfície extremamente alta.

[00173]Um benefício de se ter uma área de superfície extremamente alta no produto seco consiste na utilidade aperfeiçoada do gel de polímero ultrapuro para o propósito de fabricação de capacitores, dispositivos de armazenamento de energia, e outras aplicações relacionadas à energia. Diferentes aplicações de gel de polímero ultrapuro exigem variações na distribuição de tamanho de poro, tal como diferentes níveis de volume de microporo, volume de mesoporo, área de superfície e tamanho de poro. Mediante o ajuste de diversos parâmetros de processamento do gel de polímero ultrapuro, os altos volumes de poro podem ser alcançados em muitos tamanhos de poro diferentes dependendo da aplicação desejada.

[00174]A estrutura do material de carbono final é refletida na estrutura do gel seco de polímero ultrapuro que, por sua vez, é estabelecida pelas propriedades do gel de polímero ultrapuro. Estas características podem ser criadas no gel de polímero ultrapuro com o uso de uma abordagem de processamento sol-gel, conforme descrito

no presente documento, mas se não for tomado cuidado na remoção do solvente, então, a estrutura não é conservada. É de interesse tanto reter a estrutura original do gel de polímero ultrapuro como modificar sua estrutura com a formação de cristal de gelo com base no controle do processo de congelamento. Em algumas modalidades, antes da secagem, o teor aquoso do gel de polímero ultrapuro se situa na faixa de cerca de 50% a cerca de 99%. Em determinadas modalidades, sob a secagem, o teor aquoso do criogel de polímero ultrapuro é menor do que cerca de 10%, alternadamente, menor que cerca de 5% ou menor que cerca de 2,5%.

[00175]Os dados de calorimetria diferencial de varredura (DSC) para um hidrogel de polímero ultrapuro demonstra um grade evento exotérmico a $\sim -18^{\circ}\text{C}$. Estes dados são consistentes com o congelamento da água dentro de um poro de $\sim 4\text{ nm}$ de raio. Estas descobertas indicam que o congelamento extremamente rápido da aplicação atual não somente constitui uma taxa de congelamento rápida, mas também que a extensão da diminuição é de tal modo que o material é levado a abaixo de ao menos -18°C .

[00176]Os dados de DSC também demonstram que, sob o aquecimento, existe um comportamento endotérmico complexo e amplo. com o início de cerca de -13°C e um ponto médio de cerca de -10°C . Parece existir uma transição térmica a cerca de -2°C e fusão final a cerca de $+1^{\circ}\text{C}$. Os diversos eventos podem corresponder à fusão de diferentes tipos de microestruturas. Os dados sugerem que, a fim de evitar a perda de estrutura fina do produto no estado congelado, a temperatura do produto durante a secagem inicial (por exemplo, primária) deveria ser mantida abaixo de -13°C . Isto é completo, por exemplo, em uma etapa de secagem onde a transferência de calor durante a secagem primária é dominada pela convecção e na condução, deste modo, a temperatura do produto durante a sublimação deveria corresponder à temperatura do gel em equilíbrio com a pressão da câmara.

[00177]Uma pressão da câmara do liofilizador de cerca de 2250 microns

resulta em uma temperatura de secagem primária no produto de secagem de cerca de -10°C . A secagem em um caso de pressão da câmara de cerca de 2250 microns ou menor fornece uma temperatura do produto durante a secagem primária que não é maior do que cerca de -10°C . Como uma ilustração adicional, uma pressão da câmara de cerca de 1500 microns resulta em uma temperatura de secagem primária no produto de secagem de cerca de -15°C . A secagem a cerca de 1500 microns de pressão da câmara ou menor fornece uma temperatura do produto durante a secagem primária que não é maior do que cerca de -15°C . Como mais uma ilustração adicional, uma pressão da câmara de cerca de 750 microns resulta em uma temperatura de secagem primária no produto de secagem de cerca de -20°C . A secagem em 750 microns de pressão da câmara ou menor fornece uma temperatura do produto durante a secagem primária que não é maior do que cerca de -20°C . Como mais outra ilustração, uma pressão da câmara de cerca de 300 microns resulta em uma temperatura de secagem primária no produto de secagem de cerca de -30°C . A secagem a 300 microns de pressão da câmara ou menor fornece uma temperatura do produto durante a secagem primária que não é maior do que cerca de -30°C .

5. Pirólise e ativação de géis de polímero ultrapuros

[00178]Em outra modalidade, é fornecido um método para a fabricação de um material de carbono sintético ultrapuro ativado, por exemplo, um material de carbono amorfo ativado sintético ultrapuro, que compreende a pirólise e a ativação de um gel seco de polímero apresentado no presente documento. Em algumas modalidades da presente descrição, é fornecido um material de carbono sintético ultrapuro ativado ou material de carbono amorfo ativado sintético ultrapuro que tem uma área de superfície específica de ao menos 1000 m^2/g , ao menos 1500 m^2/g , ao menos 2000 m^2/g , ao menos 2400 m^2/g , ao menos 2500 m^2/g ou ao menos 3000 m^2/g .

[00179]Geralmente, no processo de pirólise, os géis de polímero ultrapuros secos são pesados e colocados em um forno rotativo. A rampa de temperatura é

ajustada a 5°C por minuto, o tempo de permanência e a temperatura de permanência são ajustados; o resfriamento é determinado pela taxa de resfriamento natural do forno. Todo o processo é usualmente executado sob uma atmosfera inerte, tal como uma ambiente de nitrogênio. As amostras pirolisadas são, então, removidas e pesadas. Outros processos de pirólise são bem conhecidos pelos elementos versados na técnica.

[00180]Em algumas modalidades, o tempo de permanência de pirólise (o período de tempo durante o qual a amostra fica na temperatura desejada) é a partir de cerca de 0 minutos a cerca de 120 minutos, a partir de cerca de 0 minutos a cerca de 60 minutos, a partir de cerca de 0 minutos a cerca de 30 minutos, a partir de cerca de 0 minutos a cerca de 10 minutos, a partir de cerca de 0 a 5 minutos ou a partir de cerca de 0 a 1 minuto.

[00181]A pirólise também pode ser realizada de maneira mais lenta do que descrito acima. Por exemplo, em uma modalidade, a pirólise é realizada em cerca de 120 a 480 minutos. Em outras modalidades, a pirólise é realizada em cerca de 120 a 240 minutos.

[00182]Em algumas modalidades, a temperatura de permanência de pirólise se situa em uma faixa a partir de cerca de 650 °C a 1800 °C. Em outras modalidades, a temperatura de permanência de pirólise se situa em uma faixa a partir de cerca de 700 °C a cerca de 1200 °C. Em outras modalidades, a temperatura de permanência de pirólise se situa em uma faixa a partir de cerca de 850 °C a cerca de 1050 °C. Em outras modalidades, a temperatura de permanência de pirólise se situa em uma faixa a partir de cerca de 800°C a cerca de 900°C.

[00183]Em algumas modalidades, a temperatura de permanência de pirólise é variada durante o curso da pirólise. Em uma modalidade, a pirólise é realizada em um forno rotativo com zonas de aquecimento distintas separadas, a temperatura para cada zona é seqüencialmente diminuída a partir da extremidade de entrada à

extremidade de saída do tubo do forno rotativo. Em uma modalidade, a pirólise é realizada em um forno rotativo com zonas de aquecimento distintas separadas, a temperatura para cada zona é seqüencialmente aumentada a partir da extremidade de entrada à extremidade de saída do tubo do forno rotativo. Em uma modalidade, a extremidade de entrada da zona de aquecimento é ajustada a 690 °C, o meio da zona de aquecimento é ajustado a 750 °C e a extremidade de saída da zona de aquecimento é ajustada a 850 °C.

[00184]O tempo de ativação e a temperatura de ativação têm, ambos, um grande impacto sobre o desempenho do material de carbono ativado resultante, assim como o custo de fabricação do mesmo. O aumento da temperatura de ativação e do tempo de permanência de ativação resulta em maiores porcentagens de ativação, as quais correspondem geralmente à remoção de mais material comparado a temperaturas menores e tempos de permanência mais curtos. A temperatura de ativação também pode alterar a estrutura de poro do carbono onde as menores temperaturas resultam em mais carbono microporoso e as temperaturas mais altas resultam em mesoporosidade. Isto é um resultado da reação limitada pela difusão de gás de ativação que ocorrer em temperaturas mais altas e reações acionadas por cinética de reação que ocorrem em temperatura mais baixa. A porcentagem de ativação maior muitas vezes aumenta o desempenho do carbono ativado final, mas também aumenta o custo mediante a redução do rendimento total. O aperfeiçoamento do nível de ativação corresponde à obtenção de um produto de desempenho maior em um custo menor.

[00185]Os géis de polímero ultrapuros pirolisados podem ser ativados ao colocar em contato o gel de polímero ultrapuro pirolisado com um agente de ativação. Muitos gases são adequados para a ativação, por exemplo, os gases que contêm oxigênio. Os exemplos não-limitadores de gases de ativação incluem dióxido de carbono, monóxido de carbono, vapor e oxigênio. Os agentes de ativação também podem incluir produtos químicos corrosivos, tais como ácidos, bases ou sais (por exemplo,

ácido fosfórico, hidróxido de potássio, hidróxido de sódio, cloreto de zinco, etc.). Outros agentes de ativação são conhecidos elementos versados na técnica.

[00186]Em algumas modalidades, o tempo de ativação é entre 1 minuto e 48 horas. Em outras modalidades, o tempo de ativação é entre 1 minuto e 24 horas. Em outras modalidades, o tempo de ativação é entre 5 minutos e 24 horas. Em outras modalidades, o tempo de ativação é entre 1 hora e 24 horas. Em modalidades adicionais, o tempo de ativação é entre 12 horas e 24 horas. Em determinadas outras modalidades, o tempo de ativação é entre 30 minutos e 4 horas. Em algumas modalidades adicionais, o tempo de ativação é entre 1 hora e 2 horas.

[00187]Geralmente, no processo de ativação, as amostras são pesadas e colocadas em um forno rotativo, para o qual o coletor de controle de gás automatizado é ajustado para aumentar em uma taxa de 20 °C por minuto. O dióxido de carbono é introduzido ao ambiente do forno por um período de tempo logo que a temperatura de ativação adequada tem sido alcançada. Depois que a ativação tiver ocorrido, o dióxido de carbono é substituído por nitrogênio e o forno é resfriado. As amostras são pesadas no final do processo para avaliar o nível de ativação. Outros processos de ativação são bem conhecidos pelos elementos versados na técnica. Em algumas das modalidades apresentadas no presente documento, as temperaturas de ativação podem se situar em uma faixa a partir de 800 °C a 1300 °C. Em outra modalidade, as temperaturas de ativação podem se situar em uma faixa a partir de 800 °C a 1050 °C. Em outra modalidade, as temperaturas de ativação podem se situar em uma faixa a partir de cerca de 850°C a cerca de 950 °C. Um elemento versado na técnica irá reconhecer que outras temperaturas de ativação, menores ou maiores, podem ser empregadas.

[00188]O grau de ativação é medido em termos da porcentagem de massa do gel de polímero ultrapuro seco pirolisado que é perdida durante a etapa de ativação. Em uma modalidade dos métodos descritos no presente documento, a ativação

compreende um grau de ativação a partir de 5% a 90%; ou um grau de ativação a partir de 10% a 80%; em alguns casos, a ativação compreende um grau de ativação a partir de 40% a 70%, ou um grau de ativação a partir de 45% a 65%.

[00189]Nos métodos apresentados no presente documento para a produção de materiais de carbono ativados sintéticos ultrapuros de alta área de superfície, o gel de polímero ultrapuro é projetado para produzir um material que já é altamente poroso e contém dentro de sua estrutura de polímero ultrapuro uma estrutura carbônica que, quando pirolisada e ativada, irá produzir um material de carbono ativado que contém uma mistura visada de mesoporos e microporos. Mediante a produção de gel de polímero ultrapuro com a mistura visada adequada de meso- e micro-poros, a quantidade de ativação exigida é reduzida, aperfeiçoando, assim, o rendimento e reduzindo o custo. Além disso, a capacidade de ajustar as propriedades (por exemplo, o tamanho de poro) dos intermediários introduz um grau de ajustabilidade que não tem sido realizado por uma abordagem mais tradicional de pirólise e superativação de material de carbono existente. Por exemplo, a manipulação das variáveis do processamento dos intermediários, conforme descrito no presente documento, tem um impacto mais importante sobre a nanoestrutura do carbono final do que os métodos tradicionais de ajuste de variáveis da pirólise e ativação.

[00190]Tem sido demonstrada a capacidade de desenvolver uma abordagem de fabricação, conforme apresentado no presente documento, para atender a alta demanda esperada para os materiais de carbono ativados apresentados no presente documento. Três partes do processo podem ser identificadas: 1) a polimerização ultrapura a partir de materiais precursores de polímero ultrapuro; 2) secagem por congelamento; e 3) pirólise/ativação. Em uma modalidade, cada uma destas etapas podem ser desenvolvidas empregando equipamentos de fabricação padrão de três indústrias existentes, por exemplo, as companhias químicas especializadas que trabalham com adesivos e epóxis; os fornecedores de secagem por congelamento

farmacêuticos e relacionados a alimentos; e fabricantes de carbono ativado de baixo grau, respectivamente.

[00191]Tem sido mostrado que a quantidade de catalisador e a porcentagem de água no sol inicial têm um impacto significativo sobre o desempenho final do material de carbono ativado (por exemplo, quando usado em um supercapacitor). O grande número de variáveis do processo e a interação entre estas variáveis possibilita o refinamento contínuo do processo e permite algum controle sobre a estrutura de carbono final. Conseqüentemente, em uma modalidade, a presente descrição fornece o refinamento das variáveis do processo. Os refinamentos apresentados resultam em uma capacidade de exercer controle sobre a estrutura de carbono final de uma maneira que era impossível de se obter anteriormente.

[00192]A abordagem mais comum de refinar as variáveis do processo usadas na técnica consiste em manter todas menos uma variável constante e determinar o efeito de variação deste um parâmetro. Alternadamente, e conforme descrito no presente documento, a combinação de métodos de análise estatística, DFE Pro Software, e um projeto fatorial de aproximação de experimentos, foram usados para variar sistematicamente múltiplos parâmetros de maneira simultânea para se obter um processo otimizado para a preparação de material de carbono ativado. Com o uso desta abordagem, é avaliado o impacto de cada uma destas variáveis em uma faixa de diferentes medidas (por exemplo, área de superfície, densidade, volume de poro, etc.) relacionadas à estrutura do material de carbono ativado. Quando o material de carbono sintético ultrapuro ativado é empregado em um supercapacitor, as medidas de desempenho adicionais podem ser avaliadas. Por exemplo, a capacitância, densidade e densidade energética podem ser avaliadas.

C.Caracterização de géis de polímero ultrapuros e materiais de carbono sintéticos ultrapuros

[00193]As propriedades estruturais do material de carbono sintético ultrapuro

ativado final, material de carbono amorfo ativado sintético ultrapuro, géis de polímero secos e os géis de polímero ultrapuros pirolisados, mão não-ativados, podem ser medidas com o uso de absorção de nitrogênio a 17K, um método conhecido pelos elementos versados na técnica. O desempenho final e as características do material de carbono sintético ultrapuro ativado acabado é importante, mas os produtos intermediários (tanto o gel de polímero ultrapuro seco como o gel de polímero ultrapuro pirolisado, mas não ativado,), também podem ser avaliados, particularmente, a partir de um ponto de vista de controle de qualidade, conforme conhecido pelos elementos versados na técnica. A Micromeritics ASAP 2020 é usada para executar a análise detalhada de microporo e mesoporo, a qual revela a distribuição de tamanho de poro a partir de 0,35 nm a 50 nm. O sistema produz uma isoterma de nitrogênio que começa em uma pressão de 10 a 7 atm, a qual possibilita as distribuições de tamanho de poro de alta resolução na sub faixa de 1 nm. Os relatórios gerados pelo software utilizam um método de teoria funcional de densidade (DFT) para calcular as propriedades, tais como distribuições de tamanho de poro, distribuições de área de superfície, área de superfície total, volume de poro total e volume de poro dentro de determinadas faixas de tamanho de poro.

[00194]Em algumas modalidades, os géis de polímero ultrapuros pirolisados têm uma área de superfície a partir de cerca de 100 a cerca de 1200 m²/g. Em outras modalidades, os géis de polímero ultrapuros pirolisados têm uma área de superfície a partir de cerca de 500 a cerca de 800 m²/g. Em outras modalidades, os géis de polímero ultrapuros pirolisados têm uma área de superfície a partir de cerca de 500 a cerca de 600 m²/g.

[00195]Em algumas modalidades, os géis de polímero ultrapuros pirolisados têm uma densidade compactada a partir de cerca de 0,1 a cerca de 1,0 cc/g. Em outras modalidades, os géis de polímero ultrapuros pirolisados têm uma densidade compactada a partir de cerca de 0,3 a cerca de 0,6 cc/g. Em outras modalidades, os

géis de polímero ultrapuros pirolisados têm uma densidade compactada a partir de cerca de 0,35 a cerca de 0,45 cc/g.

D. Ajuste do tamanho de poro e outras propriedades de géis de polímero ultrapuros

[00196]Os materiais de carbono ultrapuros apresentados sintetizados a partir de precursores sintéticos bem caracterizados são diferentes do carbono ativado a partir de fontes naturais, tais como carvão, piche, cocos, etc. Isto se deve, em parte, ao fato de que podem ser ajustados tanto em estrutura de microporo e mesoporo como química por meio de controles de processamento executado e cuidadosamente pré-projetados. Adicionalmente, um material de carbono ultrapuro, conforme descrito no presente documento, pode conter uma estrutura porosa que pode ser otimizada para uma determinada aplicação (por exemplo, quando usado em um supercapacitor ou outro dispositivo de armazenamento de energia). Com a capacidade de ajustar a nanoestrutura do carbono, é alcançado o desempenho que excede os dados de desempenho atual de carbonos ativados tradicionais. As variáveis importantes incluem grande área de superfície acessível, microporos curtos para a difusão de sal eletrolítico e minimização de volume de poro gasto para otimizar a capacitância específica.

[00197]A manipulação das variáveis do processo permite a produção de materiais de carbono ativados sintéticos ultrapuros que têm as propriedades que se adequam à aplicação desejada. Conseqüentemente, em uma modalidade, é fornecido um método de otimização das variáveis do processo para a produção de géis de polímero ultrapuros, géis de polímero ultrapuros secos, géis de polímero ultrapuros pirolisados e materiais de carbono ativados sintéticos ultrapuros. Uma abordagem para a otimização dos parâmetros do processo compreende um projeto de estratégia de experimentos. Com o uso desta estratégia, a influência de múltiplas variáveis do processo (por exemplo, até 8 variáveis) pode ser estudada com relativamente poucos experimentos. Os dados obtidos a partir do projeto de experimentos podem ser usados para

manipular as variáveis do processo para se obter propriedades específicas nos géis de polímero ultrapuros, géis de polímero ultrapuros secos, géis de polímero ultrapuros pirolisados e criogéis de polímero ultrapuros ativados. Por exemplo, em algumas modalidades, os parâmetros do processo que são manipulados para se obter as características do produto desejadas são selecionados a partir de: Razão de Resorcinol/Catalisador, razão de Resorcinol/Água, Tamanho de partícula na Etapa de congelamento, Temperatura de arrefecimento, Tempo de pirólise, Temperatura de pirólise, Temperatura de ativação e Tempo de ativação, e combinações dos mesmos.

[00198]Em algumas modalidades, um conjunto de células de teste eletroquímico são utilizadas com um cátion de tetrametilamônio (TMA). Enquanto que o íon de tetraetilamônio (TEA) tem 0,69 nm de diâmetro, o íon de tetrametilamônio tem somente 0,57 nm de diâmetro. Cada cátion é emparelhado com um ânion de tetrafluoroborato (TFB) que tem 0,46 nm de diâmetro. Os tamanhos destes diversos íons esclarecem alguma coisa sobre as faixas de tamanho de poro descritas acima. Contanto que os microporos sejam curtos e não tortuosos, admitem íons menores do que o diâmetro do poro. Uma forma na qual a capacitância e a densidade de energia são aumentadas consiste em permitir íons tanto em poros como possível na rede de carbono. Por exemplo, os poros menores do que 0,5 nm admitem o ânion de TFB, mas nenhum dos cátions de TEA ou TMA. Os poros entre 0,5 nm e 0,65 nm admitem cátions de TMA, mas não TEA e os poros maiores do que 0,65 nm irão admitir os íons de TEA. Este conceito resume a teoria de peneiração de íon, onde o material de carbono é considerado uma peneira que irá permitir somente íons menores do que o tamanho de poro. A avaliação da diferença em capacitância e, conseqüentemente, em densidade de energia desenvolvida sobre os ânodos e catodos de células que contêm TMA/TFB versus eletrólitos de TEA/TFB fornece uma idéia da importância do volume de poros dentro de determinada faixa de tamanho de poro.

[00199]A manipulação das variáveis do processo permite a produção de

carbonos ativados sintéticos ultrapuros que têm uma distribuição de tamanho de poro que se adéqua ao sistema de eletrólito escolhido. Por exemplo, pode ser produzido um ânodo de carbono que tem um pico de microporo em torno de 0,8 nm, o qual é centralizado em um tamanho de poro que acomoda um íon de TEA. Com base na saída do DFE Pro Software, as configurações do processo são selecionadas com base naquelas variáveis que consistem nas mais estatisticamente significantes para os poros que têm volume de poro e área de superfície entre 0,7 a 1,0 nm ajustada conforme as medidas de desempenho primárias. A interação de variáveis e 'mapas de contorno' de múltiplas variáveis são usadas para extrapolar as configurações do processo que se encontram entre as configurações usadas acima e fora da faixa especificada. Após a determinação das variáveis do processo visadas para atender a exigência de tamanho de poro desta tarefa, o lote de carbono ativado sintético ultrapuro, tal como o criogel de carbono ativado, é produzido com base no uso destas configurações. O material de ânodo é, então, caracterizado com o uso do ASAP 2020 e teoria funcional de densidade para a análise de distribuição de tamanho de poro para confirmar a existência de um alto pico de volume e área de superfície dentro da faixa prescrita de 0,7 a 1,0 nm.

[00200]De forma análoga, uma faixa de tamanho de poro diferente, 0,6 a 0,8 nm, é usada como o alvo para o ajuste do tamanho de poro para cátions de TMA, ainda com o uso da mesma abordagem descrita no presente documento. Mais adicionalmente, a abordagem pode ser usada para produzir os carbonos que têm uma distribuição de tamanho de poro, menor do que 0,6 nm, que corresponde aos ânions de TFB.

[00201]A variação da capacitância desenvolvida por grama de carbono no ânodo e catodo possibilita a produção de uma célula de carga equilibrada com uma capacidade correspondente para ânions e cátions. Esta abordagem aperfeiçoa a densidade de energia da célula total, enquanto que reduz o custo associado com a criação

de poros que não dimensionados exatamente para os íons do eletrólito.

[00202]Além disso, de acordo com os métodos apresentados no presente documento, os carbonos podem ser produzidos em massa com uma distribuição de tamanho de poro visada para qualquer número de íons de eletrólito. As faixas de tamanhos de poro descritas no presente documento foram escolhidas para os sistemas particulares estudados, no entanto, outras faixas podem ser produzidas de acordo com os métodos apresentados no presente documento. Por exemplo, os dados podem ser extraídos a partir dos relatórios gerados pelo ASAP 2020 e o projeto de experimentos DFE Pro pode ser alterado para exibir os parâmetros de ajuste adequado para os poros de qualquer tamanho. Embora os parâmetros particulares possam não ter sido apresentados no presente documento, o projeto fatorial de aproximação de experimentos possibilita que um elemento versado na técnica faça ajustes para gerar o tamanho de poro de pico visado.

[00203]A análise destes resultados fornece uma série de diferentes conhecimentos. O estudo da capacidade de um ânodo ou catodo com um pico de tamanho de poro conhecido em desenvolver a capacitância máxima com o uso de um íon de sal de dimensões conhecidas fornece as informações sobre o tamanho eficaz de íons em movimento e qual tamanho de poro peneira tais íons. O uso dos dados de volume de poro, assim como os dados de capacitância dos sistemas apresentados no presente documento fornece a identificação do tamanho de poro mínimo necessário para desenvolver a capacitância com um cátion de tetraetilamônio maior versus o cátion de tetrametilamônio menor ou um ânion de tetrafluoroborato. Um material de carbono visado para o uso como um eletrodo consiste em um sistema onde o pico de microporo fica logo acima do limiar quando os poros são pequenos demais para permitir que um íon se absorva eletricamente à superfície da parede do poro, enquanto que ao mesmo tempo minimiza o volume de poro em outras faixas.

[00204]A abordagem de projeto fracional de experimento, quando usada com

o volume de poro em uma faixa específica conforme uma medida de desempenho, indica como ajustar os parâmetros do processo para maximizar o volume de poro naquela faixa de tamanho de poro.

[00205]Quando os íons de eletrólito são livres em um solvente ilimitado na ausência de campo elétrico, são tipicamente circundados por íons do solvente que servem para equilibrar sua carga. Espera-se que isto ocorra ainda até certo grau não obstante o forte campo elétrico e o espaço apertado dentro dos poros. Cada íon tem uma propensão diferente dirigida a manter si próprio solvatado e, por conseguinte, tem um tamanho eficaz diferente maior para a solvatação forte e menor para a solvatação fraca. O estudo de peneiração de íon descrito acima avalia o grau ao qual estes sais permanecem solvatados e, por conseguinte, qual o tamanho que os poros são adequados.

[00206]Conforme mencionado acima, uma forma de maximizar a densidade de energia de um eletrodo de carbono de nanoestrutura consiste em produzir poros do tamanho correto para os íons absorvidos eletricamente à superfície deste eletrodo. Um carbono ativado com uma distribuição de tamanho de poro que é ideal para o ânion e outra que é ideal para o cátion são reunidos em uma célula assimétrica capaz de exceder a capacitância e a densidade de energia de células simétricas usadas em outro lugar.

E. Uso de géis de polímero ultrapuros secos e material de carbono sintético ultrapuro

[00207]Os materiais de carbono sintéticos ultrapuros, por exemplo, os materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros podem ser usados em dispositivos que exigem estrutura estável micro- e mesoporoso de alta área de superfície. Os exemplos de aplicações para os materiais de carbono apresentados incluem, mas não se limitam a: dispositivos de armazenamento de energia e distribuição, eletrodos de ultracapacitor, eletrodos de pseudocapacitor, eletrodos de bateria, eletrodos de bateria de ácido-

chumbo, eletrodos de difusão de gás, que inclui eletrodos de ar de lítio e eletrodos de ar de zinco, baterias e capacitores de íon de lítio (por exemplo, como material de catodo), coletores de correntes/estruturas condutoras para outros materiais ativos em sistemas eletroquímicos, estruturas de suporte de material de nanoestrutura, armazenamento de gás de estado sólido (por exemplo, armazenamento de H_2 e CH_4), desionização capacitiva de água salgada, aplicações biomédicas que inclui controle de veneno e liberação de fármaco controlada, filtração de ar, filtração de água, filtração química, conversores catalíticos, isolamento térmico, embalagem cromatográfica, absorventes e como uma estrutura de suporte de estrutura à base de carbono para outras funções catalíticas, tais como armazenamento de hidrogênio ou eletrodos de célula de combustível.

[00208] Os materiais de carbono apresentados também podem ser empregados em aplicações de coleta de energia cinética, tais como: veículos elétricos híbridos, híbridos pesados, todos os veículos de acionamento elétrico, guindastes, empilhadeiras, elevadores, trilho elétrico, locomotivas híbridas e bicicletas elétricas. Os materiais de carbono amorfo sintéticos ultrapuros também podem ser empregados em aplicações de reserva elétrica, tais como: UPS, ponte de energia de centro de dados, compensação de queda de voltagem, atuadores de freio elétrico, atuadores de porta elétrica, eletrônicos, ponte de energia de torre de telecomunicações. As aplicações que exigem energia de pulso na qual os carbonos ativados sintéticos ultrapuros desta descrição podem ser úteis incluem, mas não se limitam a: estabilização de quadro elétrico de rede, eletrônicos que incluem telefones celulares, PDAs, flashes de câmera, brinquedos eletrônicos, atuadores de passo de pá de turbina eólica, regulação de condicionamento/frequência de energia/qualidade de energia, super-carregador elétrico. Mais outros usos dos materiais de carbono amorfo sintéticos ultrapuros incluem o uso em sistemas automotivos de parada e partida, ferramentas de energia, lanternas, eletrônicos pessoais, sistemas de iluminação alimentados por luz solar

independentes, sistemas e circuitos integrados RFID, desenvolvedores de campo eólico para inspeção de energia de dispositivo, sensores, sistemas a laser de pulso e programadores de fase.

[00209]Os materiais de carbono apresentados também podem ser usados em aplicações onde a alta pureza é crítica, por exemplo, aplicações nos campos médico, eletrônico, análise química, mems (micromáquinas) e biológico. Os sensores ou detectores químicos e eletroquímicos de todos os tipos iriam experimentar menos interferência das impurezas ou experimentar menos reações colaterais causadas ou catalisadas por impurezas. Os exemplos consistem em impurezas no ar (explosivos, produtos químicos perigosos, narizes sintéticos, ou impurezas na água, tais como produtos orgânicos ou impurezas da água em líquidos orgânicos.

[00210]A natureza de ácido/base do carbono consiste amplamente em uma função de impurezas que incluem o oxigênio quimicamente absorvido. Deste modo, os materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros são úteis em aplicações onde o controle da natureza de ácido/base do material de carbono é desejado.

[00211]O carbono é usado como um reagente na produção química de materiais e como um eletrodo na produção eletroquímica de materiais. Deste modo, os materiais de carbono apresentados encontram utilidade na produção eletroquímica e química de materiais de alta pureza, especialmente, metais. O material de carbono apresentado também pode ser empregado como um eletrodo em baterias de óxido de zinco-manganês (baterias de lanternas comuns) e baterias de zinco-halogênio e incorporado em compósitos de polímero de carbono ultrapuros para o uso como adesivos e selos eletricamente condutores e para minimização de vazamento de radiação.

[00212]Os géis de polímero ultrapuros secos apresentados no presente documento encontram utilidade em inúmeras aplicações. Por exemplo, os géis de polímero ultrapuros secos são úteis como adesivos de madeira (por exemplo, para lâmina de aglomerado ou compensado), metais e tecidos de ligação para borracha (por exemplo,

pneus de borracha), meios de filtragem, isolamento dielétrico, isolamento térmico e como uma resina em materiais compósitos (por exemplo, fibra de vidro e fibra de carbono, etc.)

1. Dispositivos ultracapacitores

[00213]Os EDLCs utilizam eletrodos imersos em uma solução de eletrólito como seu elemento de armazenamento de energia. Tipicamente, um separador poroso imerso em e impregnado com o eletrólito assegura que os eletrodos não entrem em contato um com o outro, evitando o fluxo de corrente eletrônica diretamente entre os eletrodos. Ao mesmo tempo, o separador poroso permite que correntes iônicas fluam através do eletrólito entre os eletrodos em ambas as direções, formando, assim, camadas duplas de cargas nas interfaces entre os eletrodos e o eletrólito.

[00214]Quando o potencial elétrico é aplicado entre um par de eletrodos de um EDLC, os íons que existem dentro do eletrólito são fixados às superfícies dos eletrodos com carga oposta, e migram em direção aos eletrodos. Uma camada de íons com carga oposta é, deste modo, criada e mantida próxima a cada superfície do eletrodo. A energia elétrica é armazenada nas camadas de separação de carga entre estas camadas iônicas e as camadas de carga das superfícies de eletrodo correspondentes. De fato, as camadas de separação de carga se comporta essencialmente como capacitores eletrostáticos. A energia eletrostática também pode ser armazenada nos EDLCs através da orientação e alinhamento de moléculas da solução eletrolítica sob a influência do campo elétrico induzido pelo potencial. Este modo de armazenamento de energia, no entanto, é secundário.

[00215]Os EDLCs que compreendem o material de carbono sintético ultrapuro, por exemplo, o material de carbono amorfo sintético ultrapuro, podem ser empregados em diversos dispositivos eletrônicos onde a alta potência é desejada. Conseqüentemente, em uma modalidade, é fornecido um eletrodo que compreende os materiais de carbono sintéticos ultrapuros. Em outra modalidade, é fornecido um

eletrodo que compreende materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros. Em uma modalidade adicional, o eletrodo compreende o material de carbono sintético ultrapuro ativado, por exemplo, o material de carbono amorfo ativado sintético ultrapuro. Em uma modalidade adicional, é fornecido um ultracapacitor que compreende um eletrodo que compreende os materiais de carbono sintéticos ultrapuros. Em uma modalidade adicional do mencionado anteriormente, o material de carbono sintético ultrapuro consiste em um material de carbono amorfo sintético ultrapuro, por exemplo, um material de carbono amorfo ativado sintético ultrapuro.

[00216]Os materiais de carbono apresentados encontram utilidade em inúmeros dispositivos eletrônicos, por exemplo, dispositivos sem fio para o consumidor e comerciais, tais como câmeras fotográficas digitais, PCs do tipo notebook, dispositivos médicos, dispositivos de rastreamento de local, dispositivos automotivos, dispositivos de compact flash, telefones móveis, cartões PCMCIA, dispositivos portáteis e tocadores de música digital. Os ultracapacitores também são empregados em equipamentos pesados, tais como: escavadores e outros equipamentos de movimento de terra, empilhadeiras, caminhões de lixo, guindastes para portos e construção e sistemas de transporte, tais como ônibus, automóveis e trens.

[00217]Em uma modalidade, um dispositivo ultracapacitor que compreende o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma potência gravimétrica de ao menos 10 W/g, ao menos 15 W/g, ao menos 20 W/g, ao menos 25 W/g, ao menos 30 W/g ou ao menos 35 W/g. Em outra modalidade, um dispositivo ultracapacitor que compreende o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma potência volumétrica de ao menos 5 W/cc, ao menos 10 W/cc, ao menos 15 W/cc ou ao menos 20 W/cc. Em outra modalidade, um dispositivo ultracapacitor que compreende o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma energia gravimétrica de ao menos 2,5 Wh/kg, ao

menos 5,0 Wh/kg, ao menos 7,5 Wh/kg, ao menos 10 Wh/kg, ao menos 12,5 Wh/kg, ao menos 15,0 Wh/kg, ao menos 17,5 Wh/kg, ao menos 20,0 Wh/kg, ao menos 22,5 Wh/kg ou ao menos 25,0 Wh/kg. Em outra modalidade, um dispositivo ultracapacitor que compreende o carbono ativado sintético ultrapuro compreende uma energia volumétrica de ao menos 1,5 Wh/litro, ao menos 3,0 Wh/litro, ao menos 5,0 Wh/litro, ao menos 7,5 Wh/litro, ao menos 10,0 Wh/litro, ao menos 12,5 Wh/litro, ao menos 15 Wh/litro, ao menos 17,5 Wh/litro ou ao menos 20,0 Wh/litro.

[00218]Em algumas modalidades do mencionado anteriormente, a potência gravimétrica, potência volumétrica, energia gravimétrica e energia volumétrica de um dispositivo ultracapacitor que compreende o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro são medidas por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 V a 1,89 V que emprega uma solução 1,0 M de tetrafluoroborato de tetraetilamônio em eletrólito de acetonitrila (1,0 M de TEATFB em AN) e uma constante de tempo de 0,5 segundos.

[00219]Em uma modalidade, um dispositivo ultracapacitor que compreende o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma potência gravimétrica de ao menos 25 W/g, uma potência volumétrica de ao menos 10,0 W/cc, uma energia gravimétrica de ao menos 5,0 Wh/kg e uma energia volumétrica de ao menos 3,0 Wh/L.

[00220]Em outra modalidade, um dispositivo ultracapacitor que compreende o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma potência gravimétrica de ao menos 15 W/g, uma potência volumétrica de ao menos 10,0 W/cc, uma energia gravimétrica de ao menos 20,0 Wh/kg e uma energia volumétrica de ao menos 12,5 Wh/L.

[00221]Em uma modalidade, um dispositivo ultracapacitor que compreende o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma capacitância gravimétrica de ao menos 15 F/g, ao menos 20

F/g, ao menos 25 F/g, ao menos 30 F/g ou ao menos 35 F/g. Em outra modalidade, um dispositivo ultracapacitor que compreende o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro compreende uma capacitância volumétrica de ao menos 10 F/cc, ao menos 15 F/cc, ao menos 18 F/cc, ao menos 20 F/cc, ao menos 22F/cc ou ao menos 25 F/cc. Em algumas modalidades do mencionado anteriormente, a capacitância gravimétrica e a capacitância volumétrica são medidas por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 V a 0,1 V com uma constante de tempo de 5 segundos e que emprega uma solução 1,8M de tetrafluoroborato de tetraetilamônio em eletrólito de acetonitrila (1,8 M de TEATFB em AN) e uma densidade de corrente de 0,5 A/g, 1,0 A/g, 4,0 A/g ou 8,0 A/g.

[00222]Em uma modalidade, a presente descrição fornece ultracapacitores que compreendem um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro, conforme apresentado no presente documento, em que a porcentagem de diminuição na capacitância original (isto é, a capacitância antes de ser submetida à retenção de voltagem) do ultracapacitor que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro após o período de retenção de voltagem é menor do que a porcentagem de diminuição na capacitância original de um ultracapacitor que compreende os materiais de carbono conhecidos. Em uma modalidade, a porcentagem de capacitância original restante para um ultracapacitor que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro após a retenção de voltagem a 2,7 V por 24 horas a 65 °C é de ao menos 90%, ao menos 80%, ao menos 70%, ao menos 60%, ao menos 50%, ao menos 40%, ao menos 30% ao menos 20% ou ao menos 10%. Em modalidades adicionais do mencionado anteriormente, a porcentagem da capacitância original restante após o período de retenção de voltagem é medida em uma densidade de corrente de 0,5 A/g, 1 A/g, 4 A/g ou 8 A/g.

[00223]Em outra modalidade, a presente descrição fornece ultracapacitores

que compreendem um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro, conforme apresentado no presente documento, em que a porcentagem de diminuição na capacitância original do ultracapacitor que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro após o ciclo de voltagem repetido é menor do que a porcentagem de diminuição na capacitância original de um ultracapacitor que compreende os materiais de carbono conhecidos submetidos às mesmas condições. Por exemplo, em uma modalidade, a porcentagem da capacitância original restante para um ultracapacitor que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro é maior do que a porcentagem de capacitância original restante para um ultracapacitor que compreende os materiais de carbono conhecidos após 1000, 2000, 4000, 6000, 8000 ou 1000 eventos de ciclo de voltagem que compreendem ciclo entre 2 V e 1V em uma densidade de corrente de 4 A/g. Em outra modalidade, a porcentagem de capacitância original restante para um ultracapacitor que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro após 1000, 2000, 4000, 6000, 8000, ou 1000 eventos de ciclo de voltagem que compreendem ciclo entre 2 V e 1V em uma densidade de corrente de 4 A/g, é de ao menos 90%, ao menos 80%, ao menos 70%, ao menos 60%, ao menos 50%, ao menos 40%, ao menos 30% ao menos 20% ou ao menos 10%.

[00224]Conforme observado acima, o material de carbono sintético ultrapuro e o material de carbono amorfo sintético ultrapuro podem ser incorporados em dispositivos ultracapacitores. Em algumas modalidades, o material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro são moídos a um tamanho de partícula médio de cerca de 10 microns com o uso de um moinho a jato Labomill que opera em uma atmosfera de nitrogênio. Sem se ater a teoria, acredita-se que este tamanho de partícula fino otimize a condutividade de partícula para partícula, assim como possibilita a produção de eletrodos de lâmina muito fina. O moinho a jato

essencialmente esfrega o carbono contra si mesmo ao girar o mesmo dentro de uma câmara em formato de disco propulsionada por nitrogênio de alta pressão. À medida que as partículas maiores são alimentadas, a força centrífuga empurra-as para fora da câmara; à medida que se esfregam umas contra as outras, as partículas migram em direção ao centro onde eventualmente saem da câmara de trituração, uma vez que têm alcançado as dimensões adequadas.

[00225]Em modalidades adicionais, após a moagem a jato, o carbono é misturado com um aglutinante de Teflon fibroso (3% em peso) para manter as partículas em conjunto em uma lâmina. A mistura de carbono e Teflon é amassada até que uma consistência uniforme seja alcançada. Então, a mistura é laminada em lâminas com o uso de um molde de cilindros de alta pressão que resulta em uma espessura final de 50 microns. Estes eletrodos são perfurados em discos e aquecidos a 195 °C sob uma atmosfera de argônio seco para remover a água e/ou outros contaminantes aerotransportados. Os eletrodos são pesados e suas dimensões medidas com o uso de calibradores.

[00226]Os eletrodos de carbono dos EDLCs são umedecidos com uma solução de eletrólito adequada. Os exemplos de solventes para o uso em soluções de eletrólito para o uso nos dispositivos do presente pedido incluem, mas não se limitam a, carbonato de propileno, carbonato de etileno, carbonato de butileno, carbonato de dimetila, metil etil carbonato, carbonato de dietila, sulfolano, metilsulfolano e acetonitrila. Tais solventes são geralmente misturados com soluto, que inclui, sais de tetraquilamônio, tais como TEATFB (tetrafluoroborato de tetraetilamônio); TEMATFB (tetrafluoroborato de tri-etil,metilamônio); EMITFB (tetrafluoroborato de 1-etil-3-metilimidazolio), sais à base de tetrametilamônio ou trietilamônio. Adicionalmente, o eletrólito pode consistir em ácido à base de água ou eletrólito de base, tal como ácido sulfúrico brando ou hidróxido de potássio.

[00227]Em algumas modalidades, os eletrodos são umedecidos com uma

solução 1,0 M de tetrafluoroborato de tetraetilamônio em eletrólito de acetonitrila (1,0 M de TEATFB em AN). Em outras modalidades, os eletrodos são umedecidos com uma solução 1,0 M de eletrólito de tetrafluoroborato de tetraetilamônio em carbonato de propileno (1,0 M de TEATFB em PC). Estes são os eletrólitos comuns usados tanto na pesquisa como na indústria e são considerados padrão para a avaliação do desempenho do dispositivo. Em outras modalidades, os capacitores simétricos de carbono-carbono (C-C) são montados sob uma atmosfera inerte, por exemplo, em uma caixa de luvas de argônio, e uma membrana porosa NKK de 30 micron de espessura serve como o separador. Uma vez montados, as amostras podem ser ensopadas no eletrólito por 20 minutos ou mais, dependendo da porosidade da amostra.

[00228]Em algumas modalidades, a capacitância e a saída de energia são medidas com o uso de voltametria cíclica (CV), cronopotenciometria (CP) e espectroscopia de impedância em diversas voltagens (faixas a partir de 1,0 a 2,5 V de voltagem máxima) e níveis de corrente (a partir de 1-10 mA) em uma estação de trabalho eletroquímico VMP3 biológico. Nesta modalidade, a capacitância pode ser calculada a partir da curva de descarga do potenciograma com o uso da fórmula:

$$\text{Equação 1} \quad C = \frac{I \times \Delta t}{\Delta V}$$

onde I é a corrente (A) e ΔV é a queda de voltagem, Δt é a diferença de tempo. Devido ao fato de que nesta modalidade o capacitor de teste consiste em um eletrodo de carbono-carbono (C-C) simétrico, a capacitância específica é determinada a partir de:

$$\text{Equação 2} \quad C_s = 2C/m_e$$

onde m_e é a massa de um único eletrodo. A energia e potência específica podem ser determinadas com o uso de:

$$\text{Equação 3} \quad E_s = \frac{1}{4} \frac{CV_{\max}^2}{m_e}$$

$$\text{Equação 4} \quad P_s = E_s/4ESR$$

onde C é a capacitância medida, V_{\max} é a voltagem de teste máxima e ESR

é a resistência de série equivalente obtida a partir da queda de voltagem no início da descarga. A ESR pode ser alternadamente derivada a partir da espectroscopia de impedância.

2. Baterias

[00229]Os materiais de carbono apresentados também encontram utilidade como eletrodos em inúmeros tipos de baterias. Tal bateria consiste na bateria de ar de metal, por exemplo, baterias de ar de lítio. As baterias de ar de lítio compreendem geralmente um eletrólito interposto entre os eletrodos positivos e os eletrodos negativos. O eletrodo positivo compreende geralmente um composto de lítio, tal como óxido de lítio ou peróxido de lítio e serve para oxidar ou reduzir o oxigênio. O eletrodo negativo compreende geralmente uma substância carbonácea que absorve e libera íons de lítio. Como com os supercapacitores, espera-se que as baterias, tais como, as baterias de ar de lítio, que compreendem materiais de carbono de pureza maior sejam superiores às baterias que compreendem os materiais de carbono conhecidos. Conseqüentemente, em uma modalidade, a presente invenção fornece uma bateria de ar de metal, por exemplo, uma bateria de ar de lítio, que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro conforme apresentado no presente documento.

[00230]Também se espera que as inúmeras outras baterias, por exemplo, baterias de zinco-carbono, baterias de lítio/carbono, baterias de ácido-chumbo, e similares, se desempenhem melhor com os materiais de carbono de pureza maior. Um elemento versado na técnica irá reconhecer que outros tipos específicos de baterias contendo carbono irão se beneficiar do carbono de pureza maior. Conseqüentemente, em outra modalidade, a presente invenção fornece uma bateria, em particular, uma bateria de zinco/carbono, uma bateria de lítio/carbono ou uma bateria de ácido-chumbo que compreende um material de carbono sintético ultrapuro ou material de carbono amorfo sintético ultrapuro conforme apresentado no presente documento.

EXEMPLOS

[00231] Os géis de polímero ultrapuros, criogéis, criogéis pirolisados e materiais de carbono amorfos sintéticos ultrapuros, apresentados nos seguintes exemplos, foram preparados de acordo com os métodos apresentados no presente documento. Os produtos químicos foram obtidos a partir de fontes comerciais em pureza de grau de reagente ou melhor e foram usados conforme recebido a partir do fornecedor sem purificação adicional.

[00232] Exceto onde indicado em contrário, as seguintes condições foram geralmente empregadas. O composto fenólico e aldeído foram reagidos na presença de um catalisador em um sistema de solvente binário. A razão molar do composto fenólico para aldeído foi tipicamente de 0,5 a 1. A reação foi deixada para incubada em uma ampola de vidro vedada a 90 °C por ao menos 24 horas ou até que a gelificação fosse completa. O hidrogel de polímero ultrapuro resultante continha água, mas nenhum solvente orgânico; e não foi submetido à troca de solvente de água por um solvente orgânico, tal como t-butanol. O monólito de hidrogel de polímero ultrapuro foi, então, fisicamente rompido, por exemplo, por meio de moagem, para formar partículas de hidrogel de polímero ultrapuro que têm um diâmetro médio de menos que cerca de 30 mm. Exceto onde indicado em contrário, as partículas foram, então, rapidamente congeladas, geralmente por meio de imersão em um fluido frio (por exemplo, nitrogênio líquido ou etanol/gelo seco) e liofilizadas. Geralmente, a prateleira do liofilizador foi pré-resfriada a -50 °C antes do carregamento de uma bandeja contendo as congeladas partículas de hidrogel de polímero ultrapuro sobre a prateleira do liofilizador. A pressão da câmara para a liofilização se situou tipicamente na faixa de 50 a 1000 mTorr e a temperatura da prateleira se situou na faixa de +10 a +25 °C. Alternativamente, a temperatura da prateleira pode ser ajustada mais baixa, por exemplo, na faixa de 0 a +10 °C. Alternativamente, a temperatura da prateleira pode ser ajustada mais alta, por exemplo, na faixa de 25 a +40 °C.

[00233]O hidrogel de polímero ultrapuro seco foi tipicamente pirolisado por meio do aquecimento em uma atmosfera de nitrogênio em temperaturas que se situam em uma faixa a partir de 800 a 1200 °C por um período de tempo conforme especificado nos exemplos. As condições de ativação compreenderam geralmente o aquecimento de um hidrogel de polímero ultrapuro pirolisado em uma atmosfera de CO₂ em temperaturas que se situam em uma faixa a partir de 900 a 1000 °C por um período de tempo conforme especificado nos exemplos. As condições específicas de pirólise e ativação foram conforme descrito nos seguintes exemplos.

Exemplo 1

Produção de géis RF a partir da solução de ácido acético a 100%

[00234]Uma série de géis RF foi feita a partir de ácido acético “puro” (isto é, anidro). Três amostras foram produzidas com níveis variados de carbonato de amônio (como “catalisador”): nenhum, ~100 e ~25 R/C. Estas amostras foram esmagadas com as mãos para criar partículas, congeladas por meio de imersão em nitrogênio líquido e liofilizadas. Um sumário destas formulações e suas áreas de superfície específicas é apresentado na tabela 1. Todas as três amostras eram monolíticas e de cor laranja. A intensidade da cor foi maior para aquelas amostras que contêm carbonato de amônio. A área de superfície específica das três amostras foram entre 597 e 644 m²/g.

[00235]A Figura 1 apresenta o volume de poro crescente versus largura de poro para estas amostras. A amostra preparado sem catalisador tinha um tamanho de poro médio DFT de cerca de 185 Å, com um pico amplo entre cerca de 100 e 1000 Å, e um pico secundário em cerca de 14 Å (e era relativamente desprovida de volume de poro intercalado). Em contrapartida, à medida que catalisador foi adicionado, o pico amplo principal demonstrou um deslocamento na distribuição em direção a larguras de poro menores (também houve um pico secundário em cerca de 12 a 16 Å). O tamanho de poro médio DFT para as amostras que contêm cerca de 100 e cerca de 25

R/C de carbonato de amônio foi de cerca de 78 Å e 45 Å, respectivamente. De forma interessante, estas últimas amostras eram relativamente desprovidas de poros acima de 300 Å.

Tabela 1

Sumário de géis produzidos a partir da solução de ácido acético a 100% (nenhuma água adicionado antes da adição de formaldeído)

Amostra	R/S	R/C	pH final	Condições de gelificação	Área de superfície específica de gel seco (m ² /g)
003-113-2	0,3	∞	2,0	O/N @ 90 °C	644
003-113-3	0,3	95	1,9		597
003-113-4	0,3	25	2,1		605

Abreviações: R/S = razão de resorcinol para solvente (em g/mL); R/C = razão de resorcinol para catalisador (em g/g); O/N = de um dia para o outro, tipicamente, cerca de 18 horas.

Exemplo 2

Produção de géis RF a partir de Solução de Ácido acético:Água (vol:vol) de 90:10

[00236]Com a finalidade de examinar o efeito da adição de uma pequena quantidade de água no sistema, uma série de géis RF foram produzidos a partir de um solvente misturado de ácido acético:água em uma razão de 90:10 de vol:vol (antes da adição de formaldeído). Três amostras foram produzidas com níveis variados de carbonato de amônio: nenhum, ~100 e ~25 R/C. Estas amostras foram esmagadas com as mãos para criar partículas, congeladas por meio de imersão em nitrogênio líquido e liofilizadas.

[00237]Um sumário destas formulações e suas áreas de superfície específicas são apresentados na Tabela 2. Todas as três amostras eram monolíticas e de cor laranja. A intensidade da cor foi maior para aquelas amostras que contêm carbonato

de amônio. A área de superfície específica das três amostras foi entre 586 e 653 m²/g.

[00238]A Figura 2 apresenta o volume de poro crescente versus largura de poro para estas amostras. A amostra preparada sem catalisador teve um tamanho de poro médio DFT de cerca de 160 Å, com um pico amplo entre cerca de 100 e 1000 Å e picos secundários em cerca de 11 Å e 13 Å (e era relativamente desprovida de volume de poro intercalado). Em contrapartida, à medida que o catalisador foi adicionado, o pico amplo principal demonstrou um deslocamento na distribuição em direção a larguras de poro menores (também houve picos secundários sobre a faixa de cerca de 12 Å a 15 Å). O tamanho de poro médio DFT para as amostras que contêm cerca de 100 e cerca de 25 R/C de carbonato de amônio foi de cerca de 59 Å e 39 Å, respectivamente. Em geral, as tendências para as amostras de ácido acético:água 90:10 foram similares às aquelas observadas para o caso onde o resorcinol foi inicialmente dissolvido em ácido acético a 100% discutido acima.

Tabela 2

Sumário de géis RF produzidos a partir da solução de ácido acético:água 50:50 (vol:vol) (antes da adição de formaldeído)

Amostra	R/S	R/C	pH final	Condições de gelificação	Área de superfície específica de gel seco (m ² /g)
003-113-6	0,3	∞	1,3	O/N @ 90 °C	653
003-113-7	0,3	100	1,9		599
003-113-8	0,3	25	2,1		586

Abreviações: R/S = razão de resorcinol para solvente (em g/mL); R/C = razão de resorcinol para catalisador (em g/g); O/N = de um dia para o outro, tipicamente, cerca de 18 horas.

Exemplo 3

Produção de géis RF a partir da solução de Ácido acético:Água 50:50 (vol:vol)

[00239]Para examinar adicionalmente o efeito da adoção de água, uma série de géis RF foram produzidos a partir de ácido acético:água 50:50 (antes da adição de formaldeído). Três amostras foram produzidas com níveis variados de carbonato de amônio: nenhum, ~100 e ~25 R/C. Uma quarta amostra foi feita com a adição de acetato de amônio em uma razão de ~ 25 R/C. Estas amostras foram esmagadas com as mãos para criar partículas, congeladas por meio de imersão em nitrogênio líquido e liofilizadas.

[00240]Um sumário destas formulações e suas áreas de superfície específicas são apresentados na Tabela 3. Todas as quatro amostras eram monolíticas e de cor laranja. A intensidade da cor foi maior para aquelas amostras que contêm carbonato de amônio ou acetato de amônio. A área de superfície específica das quatro amostras foi entre 560 e 693 m²/g.

[00241]A Figura 3 apresenta o volume de poro crescente versus largura de poro para estas amostras. A amostra preparada sem catalisador teve um tamanho de poro médio DFT de cerca de 193 Å, com um pico amplo entre cerca de 100 e 1000 Å e um pico secundário em cerca de 14 Å (e era relativamente desprovida de volume de poro intercalado). Em contrapartida, à medida que o catalisador foi adicionado, o pico amplo principal demonstrou um deslocamento na distribuição em direção a larguras de poro menores (também houve um pico secundário em cerca de 10 Å a 14 Å). O tamanho de poro médio DFT para as amostras que contêm cerca de 100 e cerca de 25 R/C de carbonato de amônio foi de cerca de 79 Å e 32 Å, respectivamente. O tamanho de poro médio DFT para a amostra que contém cerca de 25 R/C de acetato de amônio foi de cerca de 33 Å. Em geral, as tendências para as amostras de ácido acético:água 50:50 foram similares às aquelas observadas para o caso onde o resorcinol foi inicialmente dissolvido em ácido acético a 100% ou ácido acético:água 90:10, conforme discutido acima.

Sumário de géis RF produzidos a partir da solução de ácido acético:água 50:50 (vol:vol) (antes da adição de formaldeído)

Amostra	R/S	R/C	pH final	Condições de gelificação	Área de superfície específica de gel seco (m ² /g)
003-117-1	0,3	∞	1,4	O/N @ 90 °C	693±27
003-117-2	0,3	95	2,0		663±23
003-117-3	0,3	25	2,5		600±40
003-117-4 (Acetato de amônio)	0,3	24	2,4		560

Abreviações: R/S = razão de resorcinol para solvente (em g/mL); R/C = razão de resorcinol para catalisador (em g/g); O/N = de um dia para o outro, neste caso, as amostras adicionais foram incubadas por um dia adicional, resultando em um tempo total de cerca de 36 h. Onde as áreas de superfície específicas são dadas como desvio padrão e médio, os valores são calculados a partir de dois pontos de dados.

Exemplo 4

Produção de géis RF a partir da solução de Ácido acético:Água 25:75 (vol:vol)

[00242]O seguinte sistema foi compreendido predominantemente de água, especificamente, ácido acético:água 25:75 (antes da adição de formaldeído). Três amostras foram produzidas com níveis variados de carbonato de amônio: nenhum, ~100 e ~25 R/C. Uma quarta amostra foi feita com a adição de acetato de amônio em uma razão de ~ 25 R/C. Estas amostras foram esmagadas com as mãos para criar partículas, congeladas por meio de imersão em nitrogênio líquido e liofilizadas.

[00243]Um sumário destas formulações e suas áreas de superfície específicas são apresentados na Tabela 4. As amostras adicionais que foram produzidas com acetato de amônio em razões de R/C menores de 10:1 e 1:1 também são incluídas na

tabela. A amostra preparada na ausência de catalisador era de cor laranja clara e, após a secagem, o criogel tinha uma área de superfície específica de cerca de 340 m²/g. Aquelas amostras que contêm carbonato de amônio ou acetato de amônio eram de cor mais escura (em particular, para as amostras de 100 R/C) e também pareceram menos turvas em natureza. No entanto, a amostra produzida no nível de acetato de amônio maior, isto é, R/C 1:1 foi muito semelhante à argila e úmido em consistência, e exibiu uma área de superfície extremamente baixa. Comparado com o criogel nesta série desprovida de catalisador, aqueles contendo carbonato de sódio ou acetato de sódio em R/C de 25:1 a 100:1 tiveram uma área de superfície específica muito maior acima de 700 m²/g. As amostras preparadas com acetato de amônio em R/C de 10 e 1 produziram uma área de superfície menor de cerca de 427 m²/g e 3,4 m²/g, respectivamente.

[00244]A Figura 4 apresenta o volume de poro crescente versus largura de poro para algumas destas amostras. A amostra preparada sem catalisador teve um pico amplo entre cerca de 100 e acima de 1000 Å com volume de poro crescente substancial acima da largura de poro de 1000 Å, e um pico secundário em cerca de 13 Å, e uma largura de poro média de absorção BHJ foi de 193 Å. A adição de cerca de 100 R/C de carbonato de amônio deslocou a distribuição significativamente, embora o tamanho de poro médio de absorção de DFT fosse similar àquele observado sem o catalisador (cerca de 200 Å). As amostras contendo cerca de 25 R/C de carbonato de amônio ou acetato de amônio exibiu um deslocamento na distribuição em direção a larguras de poro menores, resultando em tamanho de poro médio DFT de cerca de 92 Å e 104 Å, respectivamente. Todas as amostras exibiu picos em volume de poro crescente sobre a faixa de largura de poro de cerca de 12 a 16 Å.

Tabela 4

Sumário de géis RF produzidos a partir da solução de ácido acético:água 25:75 (vol:vol) (antes da adição de formaldeído)

Amostra	R/S	R/C	pH final	Condições de gelificação	Área de superfície específica de gel seco (m ² /g)
003-118-1	0,3	∞	2,3	O/N @ 90 °C	469
003-118-2	0,3	97	2,9		722
003-118-3	0,3	25	3,3		724
003-118-4 (Acetato de amônio)	0,3	24	3,1		728
003-127-3 (Acetato de amônio)	0,3	10	3,5		427
003-127-4 (Acetato de amônio)	0,3	1	3,9		3,4

Abreviações: R/S = razão de resorcinol para solvente (em g/mL); R/C = razão de resorcinol para catalisador (em g/g); O/N = de um dia para o outro, tipicamente, cerca de 18 horas.

Exemplo 5

Produção de géis RF a partir da solução de Ácido acético:Água 10:90 (vol:vol)

[00245] Uma série análoga de amostras foi preparada em ácido acético:água 10:90 (antes da adição de formaldeído). Três amostras foram produzidas com níveis variados de carbonato de amônio: nenhum, ~100 e ~25 R/C. Uma quarta amostra foi feita com a adição de acetato de amônio em uma razão de ~ 25 R/C. Estas amostras foram esmagadas com as mãos para criar partículas, congeladas por meio de imersão

em nitrogênio líquido e liofilizadas.

[00246]Um sumário destas formulações e suas áreas de superfície específicas são apresentados na tabela 5. A amostra preparada nesta série sem catalisador foi visualmente um pouco monolítica, mas muito semelhante à argila e úmida em consistência, e de cor laranja muito clara. Sob a secagem, o material exibiu uma área de superfície extremamente baixa de $< 1 \text{ m}^2/\text{g}$. As amostras com sais de amônio eram de cor mais escura e pareceram menos turvas. Estas amostras também exibiram uma área de superfície específica muito maior no criogel. Além disso, houve uma tendência para o aumento da área de superfície específica para os níveis maiores de sais de amônio.

[00247]A Figura 5 apresenta o volume de poro crescente versus largura de poro para as amostras a partir desta série que incluiu um sal de amônio. A distribuição para todas as três amostras foi similar, com uma tendência em direção a um deslocamento muito menor na distribuição na presença de quantidade maior de catalisador. Especificamente, na presença de carbonato de amônio R/C 100:1, a largura de poro média de absorção de BHJ foi de 338 \AA , comparado com 187 \AA e 201 \AA na presença de R/C 25:1 de carbonato de amônio e acetato de amônio, respectivamente.

Tabela 5

Sumário de géis RF produzidos a partir da solução de ácido acético:água 10:90 (vol:vol) (antes da adição de formaldeído)

Amostra	R/S	R/C	pH final	Condições de gelificação	Área de superfície específica de gel seco (m^2/g)
003-116-3	0,3	∞	2,2	O/N @ 90°C	0,5
003-116-1	0,3	99	2,9		327 ± 10
003-116-2	0,3	25	3,6		429
03-116-4	0,3	24	3,2		539 ± 175

Abreviações: R/S = razão de resorcinol para solvente (em g/mL); R/C = razão de resorcinol para catalisador (em g/g); O/N = de um dia para o outro, tipicamente, cerca de 18 h.

Exemplo 6

Produção de géis RF a partir da solução de Ácido acético:Água 1:99 (vol:vol)

[00248]Mais outra razão menor de ácido acético para água foi estudada, ou seja, 1:99 (antes da adição de formaldeído). Três amostras foram produzidas com níveis variados de carbonato de amônio: nenhum, ~100 e ~25 R/C. Uma quarta amostra foi feita com a adição de acetato de amônio em uma razão de ~ 25 R/C. Estas amostras foram esmagadas com as mãos para criar partículas, congeladas por meio de imersão em nitrogênio líquido e liofilizadas.

[00249]Um sumário destas formulações e suas áreas de superfície específicas são apresentados na tabela 6. Todas as amostras foram semelhantes à argila e úmidas em consistência. A amostra preparada sem catalisador exibiu uma área de superfície extremamente baixa de 1,5 m²/g. Comparado com as amostras produzidas em quantidades maiores de ácido acético, as amostras nesta série eram geralmente de cor laranja clara e de natureza turva. As amostras onde um sal de amônio foi adicionado exibiram área de superfície específica moderadamente alta, na faixa de 140 a 278 m²/g, mas geralmente menor do que os valores obtidos para as amostras preparadas em teor de ácido acético maior.

Tabela 6

Sumário de géis RF produzidos a partir da solução de ácido acético:água 1:99 (vol:vol) (antes da adição de formaldeído)

Amostra	R/S	R/C	pH final	Condições de gelificação	Área de superfície específica de gel seco (m ² /g)
003-119-1	0,3	∞	2,9	O/N @ 90 °C	1,5

003-119-2	0,3	101	4.3		210
003-119-3	0,3	25	5,0		140
03-119-4	0,3	24	4.3		278

Abreviações: R/S = razão de resorcinol para solvente (em g/mL); R/C = razão de resorcinol para catalisador (em g/g); O/N = de um dia para o outro, tipicamente, cerca de 18 horas.

Exemplo 7

Relação entre características de pH e superfície para diversos géis RF

[00250] Uma gráfico da área de superfície específica versus pH para todas as amostras é apresentado na Figura 6. Conforme pode ser observado, houve uma tendência geral em direção à área de superfície específica maior à medida que o pH diminui. No entanto, as exceções notáveis são as amostras 003-116-3 e 003-119-1 (as quais consistem em materiais produzidos a partir dos dois teores de ácido acético menores estudados e não contêm quaisquer sais de amônio), e a amostra 003-127-4 (a qual foi produzida a partir do ácido acético a 25% e a quantidade maior de acetato de amônio estudada, R/C=1). Um gráfico similar de pH versus largura de poro média de absorção de DFT não reflete qualquer tendência discernível. Portanto, o pH sozinho não parece consistir em uma variável de controle para o ajuste da distribuição de largura de poro no gel de polímero ultrapuro RF, e precisa ser considerado junto com a quantidade (e tipo) de catalisador adicionado, neste caso, sais de amônio básicos, especificamente, carbonato ou acetato.

Exemplo 8

Produção de géis RF a partir de Ácido acético:Água 25:75 e Razão RS de 0,6

[00251] A tabela 7 apresenta os dados para géis de polímero ultrapuros RF que foram produzidos a partir de ácido acético:água 25:75, e neste caso, a RS é relativamente alta, ou seja, 0,6. As amostras nesta série eram duras e monolíticas e as amostras com sais de amônio exibiram área de superfície específica notavelmente

maior (591 a 612 m²/g) comparada com o gel de polímero ultrapuro correspondente sem qualquer sal de amônio (área de superfície específica de 271 m²/g).

Tabela 7

Sumário de géis RF produzidos a partir da solução de ácido acético:água 25:75 (vol:vol) (antes da adição de formaldeído), e RS =0,6

Amostra	R/S	R/C	pH final	Condições de gelificação	Área de superfície específica de gel seco (m ² /g)
006-048-1	0,6	∞	2,9	72 h @ 90 °C	271
006-048-2	0,6	100	3,6		612
006-048-3	0,6	25	4,1		595
006-048-4	0,6	25	3,9		591

Abreviações: R/S = razão de resorcinol para solvente (em g/mL); R/C = razão de resorcinol para catalisador (em g/g).

Exemplo 9

Pirólise de géis de polímero ultrapuros RF

[00252]Oito amostras a partir daquelas discutidas acima foram pirolisadas. Os detalhes destas amostras são fornecidas na Tabela 8. Todas as amostras na tabela foram pirolisadas através de incubação a 900 °C por um tempo de permanência de 60 min. A perda de peso sob pirólise foi de 53±3%. Em geral, a área de superfície específica do gel pirolisado foi similar àquela do gel de polímero ultrapuro seco antes da pirólise.

Tabela 8

Sumário de amostras pirolisadas

Amostra	Área de superfície específica de gel seco (m ² /g)	Perda de peso sob pi-rólise (%)	Área de superfície específica de gel pirolisado (m ² /g)
---------	---	---------------------------------	---

003-116-4 PC	539±179	56	743
003-117-1 PC	693±27	57	697
003-117-2 PC	663±23	57	699
003-117-3 PC	600±40	56	548
003-117-4 PC	560	56	573
003-118-2 PC	722	52	705±24
003-118-3 PC	724	52	702
003-118-4 PC	728	51	689±24

[00253]A distribuição de tamanho de poro no gel pirolisado foi relacionada àquela para o gel de polímero ultrapuro seco antes da pirólise. Especificamente, houve uma tendência em direção a um deslocamento no volume de poro crescente versus largura de poro em direção a larguras de poro menores. Por exemplo, a Figura 7 mostra o gráfico de volume de poro crescente versus largura de poro para a amostra 003-117-2 antes (Figura 7 A) e depois (Figura 7B) da pirólise. Pode ser observado que a distribuição em geral foi similar, com um ligeiro deslocamento em direção à largura de poro menor após a pirólise.

[00254]Os exemplos adicionais são fornecidos na Figura 8, Figura 9, Figura 10 e Figura 11 para as amostras 003-117-4, 003-118-2, 003-118-3 e 003-118-4, respectivamente. Em cada caso, a distribuição de largura de poro na amostra pirolisada (Figuras 8B, 9B, 10B e 11 B) é refletora do gel de polímero ultrapuro seco antes da pirólise (e ligeiramente deslocada para baixo em direção a larguras de poro menores) (Figuras 8A, 9A, 10A e 11A). Estes dados são importantes para mostrar que a ajustabilidade no gel de polímero ultrapuro seco é transmitida para a ajustabilidade para o material pirolisado.

Exemplo 10

Preparação de materiais de carbono ativados sintéticos ultrapuros

[00255]O material de carbono sintético ultrapuro ativado foi preparado a partir das amostras pirolisadas. Um sumário dos carbonos ativados sintéticos ultrapuros produzidos é apresentado na Tabela 9. Um gráfico da porcentagem de perda de peso durante o processo de ativação versus a área de superfície específica é representado na Figura 12. Conforme pode ser observado, houve uma tendência de aumento da área de superfície específica com o aumento da perda de peso de ativação. Houve uma tendência observada que as amostras com alta área de superfície específica no material pirolisado tenderam a ter uma área de superfície específica maior no carbono ativado para uma determinada perda de peso de ativação. Estes dados mostram que os carbonos ativados sintéticos ultrapuros de alta área de superfície específica podem ser produzidos a partir das formulações de gel de polímero ultrapuro descritas no presente documento.

Tabela 9

Sumário de amostras de carbono ativado

Amostra	Área de superfície específica de gel pirolisado (m ² /g)	Condições de ativação	Perda de peso de ativação (Total) (%)	Área de superfície específica de carbono ativado (m ² /g)
003-116-4 AC	743	20 min. 900 °C	13	910
003-116-4 AC2		110 min. 900 °C	87	2895
003-117-1 AC	697	90 min. 900 °C	40	1565
003-117-3 AC	548	45 min. 900 °C	38	1245
003-117-3 AC2		90 min. 900 °C	98	2906
003-117-4 AC	573	45 min. 1000 °C	41	1808

003-118-4 AC	689±24	100 min. 900 °C	25	1203
003-118-4 AC2		45 min. 1000 °C	83	2716

[00256]Um exemplo da distribuição de volume de poro para o carbono ativado produzido a partir dos géis de polímero ultrapuros RF descritos no presente documento é apresentado na Figura 13. Neste caso, o carbono ativado sintético ultrapuro, ou seja, 003-118-AC2, exibe uma distribuição de volume de poro que é refletora da amostra pirolisada (vide Figura 11). Estes dados são importantes para mostrar que a capacidade de ajustar as características de poro e superfície no gel de polímero ultrapuro serão transmitidas para uma capacidade de ajustar as características nos materiais de carbono ativados sintéticos ultrapuros e pirolisados ultrapuros sintéticos produzidos a partir dos géis de polímero ultrapuros.

Exemplo 11

Preparação de gel de polímero ultrapuro seco

[00257]De acordo com os métodos apresentados no presente documento, um gel de polímero ultrapuro foi preparado a partir de um sistema de solvente binário compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído, e acetato de amônio. O material foi, então, colocado em temperatura elevada para permitir a gelificação para criar um gel de polímero ultrapuro. As partículas de gel de polímero ultrapuro foram criadas a partir do gel de polímero ultrapuro e passadas através de uma peneira de malha de 4750 microns, e as ditas partículas de gel de polímero ultrapuro foram congeladas por meio de imersão em nitrogênio líquido, e carregadas em uma bandeja de liofilização em um carregamento de 3 a 7 g/polegada quadrada (g/6,45 cm²) e liofilizadas. O tempo para secagem (conforme deduzido a partir do tempo para o produto reagir dentro de 2 °C de temperatura de prateleira) foi relacionado ao

carregamento de produto sobre a prateleira do liofilizador.

[00258]A área de superfície do gel seco foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de porosidade e área de superfície Micrometrics (modelo TriStar II). A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 500 a 700 m²/g.

Exemplo 12

Produção de material de carbono sintético pirolisado ultrapuro a partir de gel de polímero ultrapuro seco

[00259]O gel seco, conforme descrito no exemplo 11, foi pirolisado mediante a passagem através de um forno rotativo (tubo de alumina com 3,75 de diâmetro interno) a 850°C com um fluxo de gás de nitrogênio de taxa de 200 L/h. A perda de peso sob pirólise foi de cerca de 52%.

[00260]A área de superfície do gel de polímero ultrapuro seco pirolisado foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET padrão foi na faixa de cerca de 600 a 700 m²/g.

Exemplo 13

Produção de carbono ativado sintético ultrapuro

[00261]O material de carbono sintético pirolisado, conforme descrito no exemplo 12, foi ativado por meio de múltiplas passagens através de um forno rotativo (tubo de alumina com 2,75 de diâmetro interno) a 900 °C sob uma taxa de fluxo de CO₂ de 30 L/min., resultando em uma perda de peso total de cerca de 45%.

[00262]A área de superfície do carbono ativado sintético ultrapuro foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 1600 a 2000 m²/g.

Exemplo 14

Micronização de carbono ativado sintético ultrapuro através de moagem a jato

[00263]O carbono ativado sintético ultrapuro a partir do Exemplo 13 foi moído a jato com o uso de um moinho a jato de 5,1 centímetros (2 polegadas) de diâmetro Jet Pulverizer Micron Master. As condições eram de cerca de 0,7 lbs de carbono ativado sintético ultrapuro por hora, fluxo de gás de nitrogênio de cerca de 20 scf por min. e cerca de 100 psi de pressão. O tamanho de partícula médio após a moagem a jato foi de cerca de 8 a 10 microns.

Exemplo 15

Preparação de gel de polímero ultrapuro seco

[00264]De acordo com os métodos apresentados no presente documento, um gel de polímero ultrapuro foi preparado a partir de um sistema de solvente binário compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído e acetato de amônio. O material foi, então, colocado em temperatura elevada para permitir a gelificação para criar um gel de polímero ultrapuro. As partículas de gel de polímero ultrapuro foram criadas a partir do gel de polímero ultrapuro e passadas através da peneira de malha de 4750 microns, as ditas partículas de gel de polímero ultrapuro foram congeladas por meio de imersão em nitrogênio líquido e carregadas em uma bandeja de liofilização em um carregamento de 3 a 7 g/polegada quadrada (g/6,45 cm²), e liofilizadas. O tempo para secagem (conforme deduzido a partir do tempo para o produto reagir dentro de 2 °C de temperatura de prateleira) foi relacionado ao carregamento de produto sobre a prateleira do liofilizador.

[00265]A área de superfície do gel seco foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de porosidade e área de superfície Micrometrics (modelo TriStar II). A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 500 a 700 m²/g.

Exemplo 16

Produção de material de carbono sintético pirolisado ultrapuro a partir do gel

de polímero ultrapuro seco

[00266]O gel seco, conforme descrito no exemplo 15, foi pirolisado mediante a passagem através de um forno rotativo (tubo de quartzo com um diâmetro interno de 9,5 centímetros (3,75 polegadas)) a 850 °C com um fluxo de gás de nitrogênio de taxa de 200 L/h. A perda de peso sob pirólise foi de cerca de 51%.

[00267]A área de superfície do gel de polímero ultrapuro seco pirolisado foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET padrão foi na faixa de cerca de 600 a 700 m²/g.

Exemplo 17

Preparação de carbono ativado sintético ultrapuro

[00268]O material de carbono sintético pirolisado, conforme descrito no exemplo 16, foi ativado por meio de incubação a 900 °C em um tubo de sílica (diâmetro interno de 9,5 centímetros (3,75 polegadas)) com taxa de fluxo de CO₂ de 6,7 L/min., para alcançar uma perda de peso final (comparada com o carbono pirolisado de partida) de cerca de 54 %.

[00269]A área de superfície do gel seco foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 1600 a 2000 m²/g.

Exemplo 18

Análise de pureza de Carbono ativado sintético ultrapuro & Carbonos de comparação

[00270]As amostras de carbono ativado sintético ultrapuro foram examinadas acerca de seu teor de impureza através da emissão de raios x induzida por próton (PIXE). A PIXE consiste em uma medição padrão da indústria precisa e altamente sensível para a análise elementar simultânea por meio da excitação dos átomos em

uma amostra para produzir raios X característicos que são detectados e suas intensidades identificadas e quantificadas. A PIXE é capaz da detecção de todos os elementos com os números atômicos que se situam em uma faixa a partir de 11 a 92 (isto é, a partir de sódio a urânio).

[00271]Os dados de impureza de PIXE (Imp.) para os carbonos ativados sintéticos ultrapuros, conforme apresentado no presente documento, assim como outros carbonos ativados para propósitos de comparação, são apresentados na Tabela 10. A amostra 1 consiste no carbono ativado sintético ultrapuro do Exemplo 13, a amostra 2 consiste no carbono ativado micronizado sintético ultrapuro do Exemplo 14, a amostra 3 consiste no carbono ativado sintético ultrapuro do Exemplo 17, a amostra 4 consiste no carbono ativado sintético ultrapuro do Exemplo 35, a amostra 5 consiste no carbono ativado sintético ultrapuro do Exemplo 38, a amostra 6 consiste em um carbono ativado denominado “MSP-20” obtido junto a Kansai Coke and Chemicals Co., Ltd. (Kakogawa, Japão), a amostra 7 consiste em um carbono ativado denominado “YP-50F(YP-17D)” obtido junto a Kuraray Chemical Co. (Osaka, Japão).

[00272]Conforme observado na Tabela 10, os carbonos ativados sintéticos ultrapuros de acordo com a presente descrição têm um teor de impureza de PIXE menor e um teor de cinzas menor, conforme comparado com outras amostras de carbono ativado conhecidas.

Tabela 10

Análise de pureza de Carbono ativado sintético ultrapuro & Carbonos de comparação

Impureza	Concentração de impureza (PPM)						
	Amostra 1	Amostra 2	Amostra 3	Amostra 4	Amostra 5	Amostra 6	Amostra 7
Na	ND*	ND	ND	ND	ND	353,100	ND
Mg	ND	ND	ND	ND	ND	139.000	ND

Impureza	Concentração de impureza (PPM)						
	Amostra 1	Amostra 2	Amostra 3	Amostra 4	Amostra 5	Amostra 6	Amostra 7
Al	ND	ND	ND	ND	ND	63,850	38.941
Si	53,840	92,346	25,892	17,939	23,602	34,670	513,517
P	ND	ND	ND	ND	ND	ND	59,852
S	ND	ND	ND	ND	ND	90,110	113,504
Cl	ND	ND	ND	ND	ND	28,230	9,126
K	ND	ND	ND	ND	ND	44,210	76,953
Ca	21,090	16,971	6,141	9,299	5,504	ND	119,804
Cr	ND	ND	ND	ND	ND	4,310	3,744
Mn	ND	ND	ND	ND	ND	ND	7,552
Fe	7,582	5,360	1,898	2,642	1,392	3,115	59,212
Ni	4,011	3,389	0,565	ND	ND	36,620	2,831
Cu	16,270	15,951	ND	ND	ND	7,927	17,011
Zn	1,397	0,680	1,180	1,130	0,942	ND	2,151
Total (% de cinzas)	104,190 (0,018)	134,697 (0,025)	35,676 (<0,007)	31,010 (0,006)	31,44 (0,006)	805,142 (0,13)	1024,19 8 (0,16)

* ND= não detectado pela análise de PIXE

Exemplo 19

Desempenho eletroquímico do carbono ativado sintético ultrapuro

[00273]O carbono ativado sintético ultrapuro do Exemplo 13 (isto é, a amostra nº. 1) foi analisado acerca de seu desempenho eletroquímico, especificamente, acerca de seu desempenho como um material de eletrodo em um EDLC. Os detalhes específicos em relação à fabricação de eletrodos, EDLC e seu teste são descritos abaixo.

[00274]Os eletrodos de capacitor compreendeu 99 partes em peso de partículas de carbono (tamanho de partícula médio de 5 a 15 microns) e 1 parte em peso de Teflon. O carbono e Teflon foram mastigados em um pilão e morteiro até que o Teflon fosse bem distribuído e o compósito tivesse alguma integridade física. Após a mistura, o compósito foi laminado em uma lâmina plana, de aproximadamente 50 microns de espessura. Os discos de eletrodo, aproximadamente 1,59 cm de diâmetro, foram perfurados na lâmina. Os eletrodos foram colocados em um forno a vácuo fixado a uma caixa seca e aquecidos por 12 horas a 195 °C. Este removeu a água absorvida a partir da atmosfera durante a preparação do eletrodo. Após a secagem, os eletrodos foram deixados resfriar a temperatura ambiente, a atmosfera no forno foi preenchida com argônio e os eletrodos foram movidos para a caixa seca onde os capacitores foram feitos.

[00275]Um eletrodo de carbono foi colocado em uma cavidade formada por um disco de folha de alumínio revestida com carbono de 1 polegada (2,54 cm) de diâmetro e um anel de vedação de polietileno de 50 micron de espessura, o qual tem sido vedado por calor ao alumínio. Um segundo eletrodo foi, então, preparado da mesma forma. Duas gotas de eletrólito que compreende 1,8 M de tetrafluoroborato de tetraetileno amônio em acetonitrila foram adicionadas a cada eletrodo. Cada eletrodo foi coberto com um separador de polipropileno poroso de 2,1 centímetros (0,825 polegadas) de diâmetro. As duas metades de eletrodo foram dispostas em sanduiche em conjunto os separadores voltados um para o outro e toda a estrutura foi prensada a quente em conjunto.

[00276]Quando completo, o capacitor estava pronto para o teste elétrico com um analisador de gerador/resposta de frequência de potenciostato/função. A capacitância foi medida por meio de um método de descarga de corrente constante, que compreende aplicar um pulso de corrente por uma duração conhecida e medir o perfil de voltagem resultante. Mediante a escolha de um determinado tempo e voltagem

final, a capacitância foi calculada a partir do seguinte $C = It/\Delta V$, onde C = capacitância, I = corrente, t = tempo para alcançar a voltagem desejada e ΔV = a diferença de voltagem entre a voltagem final e inicial. A capacitância específica com base no peso e volume dos dois eletrodos de carbono foi obtida mediante a divisão da capacitância pelo peso e volume, respectivamente. Estes dados são relatados na Tabela 11 para descarga entre 2,7 e 1,89V.

Tabela 11

Sumário de parâmetros de desempenho de capacitância

Parâmetros de desempenho de capacitância	Valor medido
Potência gravimétrica *	13,1 W/g
Potência volumétrica *	8,7 W/cc
Energia gravimétrica *	4,8 Wh/kg
Energia volumétrica *	3,2 Wh/litro
Capacitância gravimétrica @ RC=5 **	22 F/g
Capacitância volumétrica @ RC=5 **	15 F/cc
Capacitância gravimétrica @ RC=20 ‡	27 F/g
Capacitância volumétrica @ RC=20 ‡	18 F/cc

* Por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 a 1,89 volts com TEATFB em AN, constante de tempo de 0,5 segundos.

** Por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 a 0,1V, constante de tempo de 5 segundos.

‡ Por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 a 0,1V, constante de tempo de 20 segundos.

Exemplo 20

Preparação de carbono ativado sintético ultrapuro

[00277]O material de carbono sintético pirolisado, conforme descrito no

exemplo 12, foi ativado por meio de incubação a 900 °C em um tubo de sílica (diâmetro interno de 9,5 centímetros (3,75 polegadas)) com taxa de fluxo de CO₂ de 15 L/min., para alcançar uma perda de peso final (comparado com o carbono pirolisado de partida) de cerca de 55%.

[00278]A área de superfície do gel seco foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 2000 m²/g. O volume de poro (Dv50) medido do carbono ativado sintético ultrapuro foi em um tamanho de poro de cerca de 1,8 nm. O volume de poro (Dv5) medido do carbono ativado sintético ultrapuro foi em um tamanho de poro de cerca de 0,5 nm. O volume de poro total medido do carbono ativado sintético ultrapuro foi de 1,42 cc/g.

Exemplo 21

Micronização de carbono ativado sintético ultrapuro

[00279]O carbono ativado sintético ultrapuro a partir do Exemplo 20 foi moído a jato com o uso de um moinho a jato de 5,1 centímetros (2 polegadas) de diâmetro Jet Pulverizer Micron Master. As condições foram de cerca de 0,7 lbs de carbono ativado sintético ultrapuro por hora, fluxo de gás de nitrogênio de cerca de 20 scf por min. e cerca de 100 psi de pressão. O tamanho de partícula médio (Dv50) após a moagem a jato foi de cerca de 6 microns. O Dv95 após a moagem a jato foi de cerca de 19 microns. O teor de cinzas total medido do carbono ativado sintético ultrapuro foi de 0,008%. A densidade compactada medida do carbono ativado sintético ultrapuro foi de 0,22 g/cc.

Exemplo 22

Dispositivo capacitor de dupla camada elétrico que compreende carbono ativado sintético ultrapuro

[00280]O carbono ativado sintético ultrapuro do Exemplo 21 foi usado como

um material de eletrodo para um dispositivo capacitor de dupla camada elétrico, conforme descrito abaixo.

[00281]Os eletrodos de capacitor compreenderam 99 partes em peso de partículas de carbono (tamanho de partícula médio de 5 a 15 microns) e 1 parte em peso de Teflon. O carbono e Teflon foram mastigados em um pilão e morteiro até que o Teflon fosse bem distribuído e o compósito tivesse alguma integridade física. Após a mistura, o compósito foi laminado em uma lâmina plana, de aproximadamente 50 microns de espessura. Os discos de eletrodo, aproximadamente 1,59 cm de diâmetro, foram perfurados da lâmina. Os eletrodos foram colocados em um forno a vácuo fixado a uma caixa seca e aquecidos por 12 horas a 195 °C. Este removeu a água absorvida a partir da atmosfera durante a preparação do eletrodo. Após a secagem, os eletrodos foram deixados resfriar a temperatura ambiente, a atmosfera no forno foi preenchida com argônio e os eletrodos foram movidos para a caixa seca onde os capacitores foram feitos.

[00282]Um eletrodo de carbono foi colocado em uma cavidade formada por um disco de folha de alumínio revestida com carbono de 1 polegada (2,54 cm) de diâmetro e um anel de vedação de polietileno de 50 micron de espessura, o qual tem sido vedado por calor ao alumínio. Um segundo eletrodo foi, então, preparado da mesma forma. Duas gotas de eletrólito que compreende 1,8 M de tetrafluoroborato de tetraetileno amônio em acetonitrila foram adicionadas a cada eletrodo. Cada eletrodo foi coberto com um separador de polipropileno poroso de 2,1 centímetros (0,825 polegadas) de diâmetro. As duas metades de eletrodo foram dispostas em sanduiche em conjunto os separadores voltados um para o outro e toda a estrutura foi prensada a quente em conjunto.

Exemplo 23

Desempenho eletroquímico de um dispositivo capacitor de dupla camada elétrico que compreende carbono ativado sintético ultrapuro

[00283]O dispositivo descrito no Exemplo 22 foi submetido ao teste elétrico com um analisador de gerador/resposta de frequência de potenciostato/função. A capacitância foi medida por meio de um método de descarga de corrente constante, que compreende aplicar um pulso de corrente por uma duração conhecida e medir o perfil de voltagem resultante. Mediante a escolha de um determinado tempo e voltagem final, a capacitância foi calculada a partir do seguinte $C = It/\Delta V$, onde C = capacitância, I = corrente, t = tempo para alcançar a voltagem desejada e ΔV = a diferença de voltagem entre a voltagem final e inicial. A capacitância específica com base no peso e volume dos dois eletrodos de carbono foi obtida mediante a divisão da capacitância pelo peso e volume, respectivamente. Estes dados são relatados na Tabela 11 para descarga entre 2,7 e 1,89V.

Tabela 12

Parâmetros de desempenho de capacitância de um EDLC que compreende carbono ativado sintético ultrapuro

Parâmetros de desempenho de capacitância	Valor medido
Potência gravimétrica *	28,8 W/g
Potência volumétrica *	14,4 W/cc
Energia gravimétrica *	7,4 Wh/kg
Energia volumétrica *	3,7 Wh/litro
Capacitância gravimétrica @ RC=5 **	28 F/g
Capacitância volumétrica @ RC=5 **	14 F/cc
Capacitância gravimétrica @ RC=20 ‡	29 F/g
Capacitância volumétrica @ RC=20 ‡	14 F/cc

* Por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 a 1,89 volts com TEATFB em AN, constante de tempo de 0,5 segundos.

** Por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 a 0,1V,

constante de tempo de 5 segundos.

‡ Por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 a 0,1V, constante de tempo de 20 segundos.

Exemplo 24

Desempenho eletroquímico de dispositivos capacitores de dupla camada elétrico que compreendem carbono ativado disponível comercialmente

[00284]Para comparação, os dispositivos também foram construídos a partir de dois outros carbonos ativados disponíveis comercialmente: amostra nº. 6 e amostra nº. 7. Os dados de desempenho de potência volumétrica e gravimétrica e energia volumétrica e gravimétrica para estes carbonos comparadores são apresentados na Tabela 13 para descarga entre 2,7 e 1,89V.

Tabela 13

Parâmetros de desempenho de capacitância para carbonos comparadores

Parâmetros de desempenho de capacitância	Valor medido Amostra 6	Valor medido Amostra 7
Potência gravimétrica *	11,2 W/g	7,7 W/g
Potência volumétrica *	7,2 W/cc	6,2 W/cc
Energia gravimétrica *	3,5 Wh/kg	3,0 Wh/kg
Energia volumétrica *	2,2 Wh/litro	2,4 Wh/litro

* Por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 a 1,89 volts com TEATFB em acetonitrila (AN), constante de tempo de 0,5 segundos.

Exemplo 25

Desempenho eletroquímico de dispositivos capacitores de dupla camada elétrico que compreendem carbono ativado disponível comercialmente conforme comparado com o dispositivo que compreende carbono ativado sintético ultrapuro sob condições de retenção de voltagem

[00285]Para comparação, os dispositivos foram construídos a partir de carbono

ativado sintético ultrapuro, conforme apresentado no presente documento, ou um carbono ativado disponível comercialmente, a amostra no. 6. O carbono ativado sintético ultrapuro foi produzido conforme descrito abaixo.

[00286]A amostra no. 8 de carbono ativado sintético ultrapuro foi produzida a partir de um gel de polímero ultrapuro RF preparado de acordo com os métodos apresentados (isto é, sistema de solvente binário compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído e acetato de amônio) que foi congelado/descongelado, re-congelado em uma prateleira do liofilizador a cerca de -30°C e, então, seco sob vácuo. O gel de polímero ultrapuro seco foi, então, pirolisado a 850°C sob gás de nitrogênio seguido pela ativação a 950°C sob fluxo de gás de CO_2 , em consonância com os processos descritos no presente documento. O carbono ativado sintético ultrapuro assim produzido teve uma densidade compactada de cerca de $0,42\text{ g/cm}^3$, uma área de superfície específica de cerca de $1836\text{ m}^2/\text{g}$, um volume de poro total de cerca de $0,95\text{ cm}^3/\text{g}$, um volume de poro fracionário de cerca de 54% para poros com diâmetro de 20 nm ou menos em relação ao volume de poro total, um volume de poro fracionário de cerca de 82% para poros com um diâmetro de 100 nm ou menos em relação ao volume de poro total, uma superfície de poro fracionária de cerca de 81% for poros com um diâmetro de 20 nm ou menos em relação à superfície de poro total e uma área de superfície de poro fracionária de cerca de 97% para poros com um diâmetro de 100 nm ou menos em relação à área de superfície de poro total.

[00287]A amostra no. 9 de carbono ativado sintético ultrapuro foi produzida a partir de um gel de polímero ultrapuro RF preparado de acordo com os métodos apresentados (isto é, sistema de solvente binário compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído e acetato de amônio) que foi congelado mediante a submersão de partículas de gel de polímero ultrapuro RF em nitrogênio líquido, secagem sob vácuo e, então, pirólise em um forno rotativo com a temperatura através do forno com três zonas quentes ajustadas a temperaturas a partir de 650°C , 850°C e 850°C , respectivamente, e o material foi submetido a pirólise sob fluxo de gás de nitrogênio, seguida pela ativação a 950°C sob

fluxo de gás de CO₂, em consonância com os processos descritos no presente documento. O carbono ativado sintético ultrapuro tinha uma densidade compactada de cerca de 0,42 g/cm³, uma área de superfície específica de cerca de 2148 m²/g, um volume de poro total maior do que cerca de 0,93 cm³/g, um volume de poro fracionário de cerca de 72% para poros com um diâmetro de 20 nm ou menos em relação ao volume de poro total, um volume de poro fracionário de cerca de mais que 99% para poros com um diâmetro de 100 nm ou menos em relação ao volume de poro total, uma superfície de poro fracionária de cerca de 80% para poros com um diâmetro de 20 nm ou menos em relação à superfície de poro total, e uma área de superfície de poro fracionária de mais do que cerca de 99% para poros com um diâmetro de 100 nm ou menos em relação à área de superfície de poro total.

[00288]Os dispositivos foram submetidos a uma retenção de voltagem a 2,7 V por 24 horas a 65 C°. Os dispositivos foram, então, testados acerca de sua capacitância a partir de uma descarga de corrente constante entre 2,7 e 1,89 V em densidades de corrente de 0,5 A/g, 1 A/g, 4 A/g e 8 A/g (solvente de acetonitrila, eletrólito de TEATFB).

[00289]Os dados para a capacitância gravimétrica relativa restante, conforme comparado com antes do processo de retenção de voltagem, são apresentados na Tabela 14 (amostra no. 6) e Tabela 15 e Tabela 16 (para as amostras de carbono ativado sintético ultrapuro 8 e 9, respectivamente). Os dados mostram uma diminuição dramática na capacitância volumétrica após o processo de retenção de voltagem para o carbono ativado disponível comercialmente. Em contrapartida, a diminuição no desempenho para o dispositivo contendo carbono ativado sintético ultrapuro foi muito menor.

Tabela 14

Parâmetros de desempenho de capacitância para a amostra nº. 6

Amostra	Densidade de corrente (A/g)	% de capacitância antes da retenção de voltagem	% de capacitância após a retenção de voltagem
Amostra nº. 6	0,5	100%	69%
	1	100%	60%
	4	100%	20%
	8	100%	0,6%

Tabela 15

Parâmetros de desempenho de capacitância para carbono ativado sintético ultrapuro nº. 8

Amostra	Densidade de corrente (A/g)	% de capacitância antes da retenção de voltagem	% de capacitância após a retenção de voltagem
Carbono ativado sintético ultrapuro nº. 8	0,5	100%	91%
	1	100%	87%
	4	100%	58%
	8	100%	18%

Tabela 16

Parâmetros de desempenho de capacitância para carbono sintético ultrapuro nº. 9

Amostra	Densidade de corrente (A/g)	% de capacitância antes da retenção de voltagem	% de capacitância após a retenção de voltagem
Carbono ativado sintético ultrapuro	0,5	100%	89%
	1	100%	85%

Amostra	Densidade de corrente (A/g)	% de capacitância antes da retenção de voltagem	% de capacitância após a retenção de voltagem
nº. 9	4	100%	68%
	8	100%	54%

Exemplo 26

Desempenho eletroquímico de dispositivos capacitores de dupla camada elétrico que compreendem carbono ativado disponível comercialmente conforme comparado com o dispositivo que compreende carbono ativado sintético ultrapuro sob condições de retenção de voltagem

[00290]Para comparação, os dispositivos foram construídos a partir de carbono ativado sintético ultrapuro, conforme apresentado no presente documento, ou um carbono ativado disponível comercialmente: Amostra no. 6. O carbono ativado sintético ultrapuro foi produzido conforme descrito abaixo.

[00291]O carbono ativado sintético ultrapuro Amostra no. 10 foi produzido a partir de um gel de polímero ultrapuro RF, preparado de acordo com os métodos apresentados (isto é, o sistema de solvente binário compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído e acetato de amônio), que foi congelado em uma prateleira do liofilizador a cerca de -50 °C e, então, seco sob vácuo. O gel de polímero ultrapuro seco foi, então, pirolisado a 850°C sob gás de nitrogênio, seguido pela ativação a 900°C sob fluxo de gás CO₂, em consonância com os processos descritos no presente documento. O carbono ativado sintético ultrapuro assim produzido tinha uma densidade compactada de cerca de 0,307 g/cm³, uma área de superfície específica de cerca de 1600 m²/g, um volume de poro total de cerca de 1,02 cm³/g, um volume de poro fracionário de cerca de 59% para poros com diâmetro de 2 nm ou menos em relação ao volume de poro total, um volume de poro fracionário de cerca de 76% para poros com um diâmetro de 10 nm ou menos em relação

ao volume de poro total, uma área de superfície de poro fracionária de cerca de 94% para poros com um diâmetro de 2 nm ou menos em relação à superfície de poro total e uma área de superfície de poro fracionária de cerca de 98% para poros com um diâmetro de 10 nm ou menos em relação à área de superfície de poro total.

[00292] Os dispositivos foram submetidos a uma retenção de voltagem a 3,5V por 25 horas em temperatura ambiente. Os dispositivos foram, então, testados acerca de sua capacitância a partir de uma descarga de corrente constante entre 3,5 e 0,1 V em correntes constantes de 1, 10, 50 mA (solvente de carbonato de propileno, eletrólito de TEATFB).

[00293] Os dados para a capacitância volumétrica relativa restante, conforme comprado com antes do processo de retenção de voltagem, são apresentados na Tabela 17 (para amostra no. 6) e Tabela 18 (para carbono ativado sintético ultrapuro Amostra no. 10). Os dados mostram uma diminuição dramática na capacitância volumétrica após o processo de retenção de voltagem para o carbono ativado disponível comercialmente. Em contrapartida, a diminuição no desempenho para o dispositivo que contém carbono ativado sintético ultrapuro foi muito menor.

Tabela 17

Parâmetros de desempenho de capacitância para a Amostra nº. 6

Amostra	Corrente de descarga (mA)	% de capacitância antes da retenção de voltagem	% de capacitância após a retenção de voltagem
Amostra nº. 6	1	100%	59%
	10	100%	63%
	50	100%	3%

Tabela 18

Parâmetros de desempenho de capacitância para carbono ativado sintético ultrapuro Amostra nº. 10

Amostra	Corrente de descarga (mA)	% de capacitância antes da retenção de voltagem	% de capacitância após a retenção de voltagem
Carbônio ativado sintético ultrapuro nº. 10	1	100%	101%
	10	100%	72%
	50	100%	59%

Exemplo 27

Desempenho eletroquímico de dispositivos capacitores de dupla camada elétrico que compreendem carbono ativado disponível comercialmente conforme comparado com dispositivo que compreende carbono ativado sintético ultrapuro sob condições de ciclo

[00294]Para comparação, os dispositivos foram construídos a partir de materiais de carbono ativados sintéticos ultrapuros conforme apresentado no presente documento ou um carbono ativado disponível comercialmente: Amostra no. 6. Os dados de desempenho de potência volumétrica e gravimétrica e energia volumétrica e gravimétrica para estes carbonos disponíveis comercialmente são apresentados na Tabela 13 para descarga entre 2,7 e 1,89V. O carbono ativado sintético ultrapuro foi produzido conforme descrito abaixo.

[00295]O carbono ativado sintético ultrapuro Amostra no. 11 foi produzido a partir de um gel de polímero ultrapuro RF, preparado de acordo com os métodos apresentados (isto é, sistema de solvente binário compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído e acetato de amônio), que foi triturado em partículas, congelado em uma prateleira do liofilizador a cerca de -30 °C, seco sob vácuo e, então, pirolisado a 850 °C sob gás de nitrogênio, seguido pela ativação a 900 °C sob fluxo de gás CO₂, em consonância com os processos descritos no presente documento. O carbono ativado sintético ultrapuro

tinha uma densidade compactada de cerca de 0,28 g/cm³, uma área de superfície específica de cerca de 1754 m²/g, um volume de poro total de cerca de 1,15 cm³/g, um volume de poro fracionário de cerca de 53% para poros com um diâmetro de 20 nm ou menos em relação ao volume de poro total, um volume de poro fracionário de cerca de 76% para poros com um diâmetro de 100 nm ou menos em relação ao volume de poro total, uma superfície de poro fracionária de cerca de 91% para poros com um diâmetro de 20 nm ou menos em relação à superfície de poro total e uma área de superfície de poro fracionária de cerca de 99% para poros com um diâmetro de 100 nm ou menos em relação à área de superfície de poro total.

[00296]Os dispositivos foram submetidos a diversos mil eventos de ciclos entre 2 V e 1 V (solvente de acetonitrila, eletrólito de TEATFB). Os dados demonstram que o carbono ativado sintético ultrapuro Amostra no. 11, conforme apresentado no presente documento, retém 99,78% de sua capacitância original após 3000 ciclos. Os dados demonstram que o eletrodo de Amostra no. 6 preparado exatamente da mesma maneira tem retido somente 97,11% de sua capacitância original após 2600 ciclos. A degradação a partir de 100% a 99,78% é quase perfeitamente linear em ambos os casos e, então, se extrapolar além de 10.000 ciclos, o carbono ultrapuro iria reter 99,25% se sua capacitância original e o capacitor de Amostra no. 8 iria reter somente 88,89% de sua capacitância original. Isto indica que o carbono sintético ultrapuro é substancialmente mais estável nos primeiros diversos mil ciclos em oposição à Amostra no. 6 (dados de ciclo em 4A/g entre 2V e 1V em ACN). Conforme pode ser observado, o carbono sintético ultrapuro exibe uma retenção dramaticamente aperfeiçoada de capacitância após os ciclos, comparado com os carbonos não-ultrapuros.

Exemplo 28

Preparação de gel de polímero ultrapuro seco

[00297]De acordo com os métodos apresentados no presente documento, um gel de polímero ultrapuro foi preparado a partir de um sistema de solvente binário

compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído e acetato de amônio. O material foi, então, colocado em temperatura elevada para permitir a gelificação para criar um gel de polímero ultrapuro. As partículas de gel de polímero ultrapuro foram criadas a partir do gel de polímero ultrapuro e passadas através de um triturador Stedman Aurora equipado com lâminas de aço inoxidável resistentes a corrosão e tela de 5/8" (1,58 cm). As partículas de gel de polímero ultrapuro foram congeladas por meio de imersão em nitrogênio líquido e carregadas em uma bandeja de liofilização em um carregamento de 3 a 7 g/polegada quadrada (g/6,45 cm²), e liofilizadas. O tempo para secagem (conforme deduzido a partir do tempo para o produto reagir dentro de 2 °C de temperatura de prateleira) foi relacionado ao carregamento de produto sobre a prateleira do liofilizador.

[00298]A área de superfície do gel seco foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de porosidade e área de superfície Micrometrics (modelo TriStar II). A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 500 a 700 m²/g.

Exemplo 29

Produção de material de carbono sintético pirolisado ultrapuro a partir de gel de polímero ultrapuro seco

[00299]O gel seco conforme descrito no exemplo 28 foi pirolisado mediante a passagem através de um forno rotativo (tubo de metal com revestimento de mulita com 10,6 centímetros (4,18 polegadas) de diâmetro interno) em 0,7 kg/h em zonas quentes de gradiente de 680 a 850 °C com um fluxo de gás de nitrogênio de taxa de 4.250 L/h. A perda de peso sob pirólise foi cerca de 50% a 52%.

[00300]A área de superfície do gel de polímero ultrapuro seco pirolisado foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET padrão foi na faixa de cerca de 600 a 700 m²/g.

Exemplo 30

Preparação de carbono ativado sintético ultrapuro

[00301]O material de carbono sintético pirolisado conforme descrito no exemplo 29 foi ativado por meio de incubação a 900 °C em um tubo de quartzo (diâmetro interno de 9,5 centímetros (3,75 polegadas)) com taxa de fluxo de CO₂ de 6,7 L/min., para alcançar uma perda de peso final (comparado com o carbono pirolisado de partida) de cerca de 55%.

[00302]A área de superfície do material de carbono ativado foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 2500 m²/g. O volume de poro medido (Dv50) do carbono ativado sintético ultrapuro foi em um tamanho de poro de cerca de 1,8 nm. O volume de poro medido (Dv5) do carbono ativado sintético ultrapuro foi em um tamanho de poro de cerca de 0,5 nm. O volume de poro medido total do carbono ativado sintético ultrapuro foi de 1,07 cc/g.

Exemplo 31

Dispositivo capacitor de dupla camada elétrico que compreende carbono ativado sintético ultrapuro

[00303]O carbono ativado sintético ultrapuro do Exemplo 30 foi usado como um material de eletrodo para um dispositivo capacitor de dupla camada elétrico, conforme descrito abaixo.

[00304]Os eletrodos de capacitor compreenderam 97 partes em peso de partículas de carbono (tamanho de partícula médio 5 a 15 microns) e 3 partes em peso de Teflon. O carbono e Teflon foram mastigados em um pilão e morteiro até que o Teflon fosse bem distribuído e o compósito tivesse alguma integridade física. Após a mistura, o compósito foi laminado em uma lâmina plana, de aproximadamente 50 microns de espessura. Os discos de eletrodo, aproximadamente 1,59 cm de diâmetro, foram perfurados da lâmina. Os eletrodos foram colocados em um forno a vácuo fixado a uma caixa seca e aquecidos por 12

horas a 195 °C. Este removeu a água absorvida a partir da atmosfera durante a preparação do eletrodo. Após a secagem, os eletrodos foram deixados resfriar a temperatura ambiente, a atmosfera no forno foi preenchida com argônio e os eletrodos foram movidos para a caixa seca onde os capacitores foram feitos.

[00305]As partes de célula tipo moeda de aço inoxidável padrão 2325 foram usadas na montagem de célula tipo moeda. Um disco de alumínio revestido com carbono de 1,6 centímetros (0,625 polegadas) de diâmetro foi usado como um redutor de resistência de contato na tampa positiva. Um eletrodo de carbono de 1,6 centímetros (0,625 polegadas) de diâmetro no topo do disco de alumínio foi saturado com várias gotas de eletrólito que compreende 1,0 M de tetrafluoroborato de tetraetileno amônio em acetonitrila. Duas peças de separador poroso à base de celulose com 2,1 centímetros (0,825 polegadas), disponível junto a NKK, Inc., foram, então, colocadas no topo do disco de carbono. Em seguida, a segunda peça de eletrodo de carbono foi colocada sobre o separador e mais uma gota de eletrólito foi adicionada para umedecer a superfície de topo. Depois disso, o segundo redutor de resistência de contato de alumínio revestido com carbono foi colocado sobre o eletrodo. Então, um espaçador e mola inoxidável foram colocados seqüencialmente e toda a pilha foi coberta na tampa negativa com um ilhó de polipropileno. Toda a pilha da célula foi, então, colocada sobre uma prensa operada por pressão hidráulica e prensada por 1 minuto em pressão total para formar uma célula tipo moeda vedada.

Exemplo 32

Desempenho eletroquímico de um dispositivo capacitor de dupla camada elétrico que compreende carbono ativado sintético ultrapuro

[00306]O dispositivo descrito no Exemplo 31 foi submetido ao teste elétrico com um analisador de gerador/resposta de frequência de potenciostato/função. A capacitância foi medida por meio de um método de descarga de corrente constante, que compreende aplicar um pulso de corrente por uma duração conhecida e medir o perfil de voltagem resultante no decorrer do tempo. Mediante a escolha de um determinado

tempo e voltagem final, a capacitância foi calculada a partir do seguinte $C = It/\Delta V$, onde C = capacitância, I = corrente, t = tempo para alcançar a voltagem desejada e ΔV = a diferença de voltagem entre a voltagem inicial e final. A capacitância específica com base no peso e volume dos dois eletrodos de carbono foi obtida mediante a divisão da capacitância pelo peso e volume, respectivamente. Estes dados são relatados na Tabela 19 para descarga entre 2,7 e 1,89V.

Tabela 19

Parâmetros de desempenho de capacitância de um EDLC que compreende carbono ativado sintético ultrapuro

Parâmetros de desempenho de capacitância	Valor medido
Potência gravimétrica *	16,9 W/g
Potência volumétrica *	11,7 W/cc
Energia gravimétrica *	20,6 Wh/kg
Energia volumétrica *	14,3 Wh/litro
Capacitância gravimétrica @ 0,5 A/g	30,5 F/g
Capacitância volumétrica @ 0,5 A/g	21,4 F/cc
Capacitância gravimétrica @ 1,0 A/g	29,6 F/g
Capacitância volumétrica @ 1,0 A/g	20,8 F/cc
Capacitância gravimétrica @ 4,0 A/g	24,6 F/g
Capacitância volumétrica @ 4,0 A/g	17,2 F/cc
Capacitância gravimétrica @ 8,0 A/g	18,7 F/g
Capacitância volumétrica @ 8,0 A/g	13,1 F/cc

* Por meio da descarga de corrente constante a partir de 2,7 a 1,89 volts com TEATFB em AN.

Exemplo 33

Preparação de gel de polímero ultrapuro seco

[00307]De acordo com os métodos apresentados no presente documento, um gel de polímero ultrapuro foi preparado a partir de um sistema de solvente binário compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído e acetato de amônio. O material foi, então, colocado em temperatura elevada para permitir a gelificação para criar um gel de polímero ultrapuro. As partículas de gel de polímero ultrapuro foram criadas a partir do gel de polímero ultrapuro e passadas através da peneira de malha de 4750 microns, as ditas partículas de gel de polímero ultrapuro foram carregadas em uma bandeja de liofilização em um carregamento de 3 a 7 g/polegada quadrada (g/6,45 cm²), congeladas em uma prateleira de liofilizador que foi pré-resfriada a cerca de -40 °C, e liofilizadas. O tempo para secagem (conforme deduzido a partir do tempo para o produto reagir dentro de 2 °C de temperatura de prateleira) foi relacionado ao carregamento de produto sobre a prateleira do liofilizador.

[00308]A área de superfície do gel seco foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de porosidade e área de superfície Micrometrics (modelo TriStar II). A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 500 a 600 m²/g.

Exemplo 34

Produção de material de carbono sintético pirolisado ultrapuro a partir de gel de polímero ultrapuro seco

[00309]O gel seco conforme descrito no exemplo 11 foi pirolisado mediante a passagem através de um forno rotativo (tubo de quartzo com 3,75 de diâmetro interno) a 850°C com um fluxo de gás de nitrogênio de taxa de 200 L/h. A perda de peso sob pirólise foi cerca de 52%.

[00310]A área de superfície do gel de polímero ultrapuro seco pirolisado foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET padrão foi na faixa de cerca de 500 a 700 m²/g.

Exemplo 35

Produção de carbono ativado sintético ultrapuro

[00311]O material de carbono sintético pirolisado conforme descrito no exemplo 12 foi ativado em um processo de lote através de um forno rotativo (tubo de quartzo com 3,75 de diâmetro interno) a 900 °C sob uma taxa de fluxo de CO₂ de 400 L/h, resultando em uma perda de peso total de cerca de 45%.

[00312]A área de superfície do carbono ativado sintético ultrapuro foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 1600 a 2000 m²/g. Este carbono será mencionado no presente documento como Amostra 4.

Exemplo 36

Preparação de gel de polímero ultrapuro seco

[00313]De acordo com os métodos apresentados no presente documento, um gel de polímero ultrapuro foi preparado a partir de um sistema de solvente binário compreendido de água e ácido acético (75:25), resorcinol, formaldeído e acetato de amônio. O material foi, então, colocado em temperatura elevada para permitir a gelificação para criar um gel de polímero ultrapuro. As partículas de gel de polímero ultrapuro foram criadas a partir do gel de polímero ultrapuro e passadas através da peneira de malha de 4750 microns, as ditas partículas de gel de polímero ultrapuro foram carregadas em uma bandeja de liofilização em um carregamento de 3 a 7 g/polegada quadrada (g/6,45 cm²), congeladas em uma prateleira de liofilizador que foi pré-resfriada a cerca de -40 °C e liofilizadas. O tempo para secagem (conforme deduzido a partir do tempo para o produto reagir dentro de 2 °C de temperatura de prateleira) foi relacionado ao carregamento de produto sobre a prateleira do liofilizador.

[00314]A área de superfície do gel seco foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de porosidade e área de

superfície Micrometrics (modelo TriStar II). A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 500 a 700 m²/g.

Exemplo 37

Produção de material de carbono sintético pirolisado ultrapuro a partir de gel de polímero ultrapuro seco

[00315]O gel seco conforme descrito no exemplo 11 foi pirolisado mediante a passagem através de um forno rotativo (tubo de quartzo com 3,75 de diâmetro interno) a 850 °C com um fluxo de gás de nitrogênio de taxa de 200 L/h. A perda de peso sob pirólise foi cerca de 52%.

[00316]A área de superfície do gel de polímero ultrapuro seco pirolisado foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET padrão foi na faixa de cerca de 500 a 700 m²/g.

Exemplo 38

Produção de carbono ativado sintético ultrapuro

[00317]O material de carbono sintético pirolisado conforme descrito no exemplo 12 foi ativado em um processo de lote através de um forno rotativo (tubo de quartzo com 3,75 de diâmetro interno) a 900 °C sob uma taxa de fluxo de CO₂ de 400 L/h, resultando em uma perda de peso total de cerca de 44%.

[00318]A área de superfície do carbono ativado sintético ultrapuro foi examinada por meio da análise de superfície de nitrogênio com o uso de um analisador de área de superfície e porosidade. A área de superfície específica medida com o uso da abordagem BET foi na faixa de cerca de 1600 a 2000 m²/g. Este carbono será mencionado no presente documento como Amostra 5.

Exemplo 39

Medição de H, N, O para carbono ativado sintético ultrapuro

[00319]O material de carbono ativado sintético identificado como Amostra 1

foi analisado acerca de H, N e O em Elemental Analysis, Inc. (Lexington, KY). Os dados mostraram que o teor de hidrogênio foi de 0,25%, o teor de nitrogênio foi de 0,21% e o teor de oxigênio foi de 0,53%.

[00320]As diversas modalidades descritas acima podem ser combinadas para fornecer modalidades adicionais. Todas as patentes U.S., publicações de pedido de patente U.S., pedidos de patente U.S., patentes estrangeiras, pedidos de patente estrangeiros e publicações de não-patente mencionadas neste relatório descritivo e/ou relacionadas na folha de dados do pedido estão aqui incorporadas a título de referência, em suas totalidades. Os aspectos das modalidades podem ser modificados, se necessário, para empregar os conceitos das diversas patentes, pedidos e publicações para fornecer outras modalidades adicionais. Estas e outras alterações podem ser feitas nas modalidades à luz da descrição detalhada acima. Em geral, nas seguintes reivindicações, os termos usados não deveriam ser interpretados para limitar as reivindicações às modalidades específicas apresentadas no relatório descritivo e nas reivindicações, mas deveriam ser interpretados para incluir tais possíveis modalidades junto com o escopo completo de equivalentes no qual tais reivindicações são intituladas. Conseqüentemente, as reivindicações não são limitadas pelas descrições.

REIVINDICAÇÕES

1. Material de carbono amorfo sintético ultrapuro, **caracterizado** pelo fato de ser preparado a partir de um polímero de gel ultrapuro, compreendendo um teor de impureza total de menos que 500 ppm de elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton, ou em que o teor de impureza total é menor do que 300 ppm, ou preferencialmente menor do que 100 ppm, ou mais preferencialmente menor do que 50 ppm, em que o material de carbono compreende uma área de superfície específica BET de pelo menos 1500 a 2000 m²/g, e em que o material de carbono compreende um volume de poro de pelo menos 0,5 cc/g.

2. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende uma área de superfície específica BET de pelo menos 1600 a 2000 m²/g.

3. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o teor de cinzas do material de carbono é menor do que 0,03%, conforme calculado a partir dos dados de emissão de raios x induzida por próton, ou em que o teor de cinzas é menor do que 0,1%, ou preferencialmente menor do que 0,005%, ou mais preferencialmente menor do que 0,001%.

4. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende menos que 3 ppm de ferro, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton, ou em que o material de carbono compreende menos que 1 ppm de níquel, ou em que o material de carbono compreende menos que 5 ppm de enxofre, ou em que o material de carbono compreende menos que 1 ppm de cromo, ou em que o material de carbono compreende menos que 1 ppm de cobre.

5. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1 ou 2, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende

menos que 100 ppm de sódio, menos que 300 ppm de silício, menos que 50 ppm de enxofre, menos que 100 ppm de cálcio, menos que 20 ppm de ferro, menos que 10 ppm de níquel, menos que 140 ppm de cobre, menos que 5 ppm de cromo e menos que 5 ppm de zinco, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

6. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende menos que 50 ppm de sódio, menos que 50 ppm de silício, menos que 30 ppm de enxofre, menos que 10 ppm de cálcio, menos que 2 ppm de ferro, menos que 1 ppm de níquel, menos que 1 ppm de cobre, menos que 1 ppm de cromo e menos que 1 ppm de zinco, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

7. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende menos que 3,0% de oxigênio, menos que 0,1% de nitrogênio e menos que 0,5% de hidrogênio, conforme determinado por meio da análise de combustão.

8. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende menos que 1,0% de oxigênio, conforme determinado por meio da análise de combustão.

9. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende um criogel de polímero ultrapuro pirolisado.

10. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende um criogel de polímero ultrapuro ativado.

11. Material de carbono, de acordo com a reivindicação 1, **caracterizado** pelo fato de que o material de carbono compreende um volume de poro de pelo menos 0,7 cc/g, ou pelo menos 1,0 cc/g, ou pelo menos 1,4 cc/g, ou pelo menos 1,6 cc/g.

12. Gel de polímero ultrapuro para produção de um material de carbono conforme definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 11, **caracterizado** pelo fato de que compreende carbono, hidrogênio, oxigênio e um teor de impureza total de menos que 500 ppm de elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

13. Gel de polímero ultrapuro, de acordo com a reivindicação 12, **caracterizado** pelo fato de que o gel de polímero ultrapuro compreende um teor de impureza total de menos que 200 ppm de elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton.

14. Dispositivo capacitor de dupla camada elétrico (EDLC), **caracterizado** pelo fato de que compreende:

a) um eletrodo positivo e um eletrodo negativo, em que cada um dentre o eletrodo positivo e o eletrodo negativo compreende o material de carbono sintético ultrapuro conforme definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 11, em que o material de carbono sintético ultrapuro compreende um teor de impureza total de menos que 500 ppm de elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton, uma área de superfície específica BET de pelo menos 1500 a 2000 m²/g, e um volume de poro de pelo menos 0,5 cc/g;

b) um separador poroso inerte; e

c) um eletrólito;

em que o eletrodo positivo e o eletrodo negativo são separados pelo separador poroso inerte.

15. Eletrodo, **caracterizado** pelo fato de que compreende um material de carbono conforme definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 11, e um ligante, em que o material de carbono compreende um teor de impureza total de menos que 500 ppm de

elementos que têm números atômicos que se situam em uma faixa de 11 a 92, conforme medido por meio da emissão de raios x induzida por próton, uma área de superfície específica BET de pelo menos 1500 a 2000 m²/g, e em que o material de carbono compreende um volume de poro de pelo menos 0,5 cc/g.

16. Método para a fabricação de um material de carbono, conforme definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 11, **caracterizado** pelo fato de que o método compreende reagir um ou mais precursores de polímero, compreendendo compostos fenólicos e compostos de aldeído sob condições ácidas na presença de um catalisador básico volátil para se obter um gel de polímero ultrapuro, e compreendendo adicionalmente:

(a) secar por congelamento o gel de polímero ultrapuro para se obter um criogel de polímero ultrapuro;

(b) pirolisar o criogel de polímero ultrapuro para se obter um criogel ultrapuro pirolisado; e

(c) ativar o criogel ultrapuro pirolisado para se obter um material de carbono sintético ultrapuro ativado.

17. Método, de acordo com a reivindicação 16, **caracterizado** pelo fato de que os precursores de polímero compreendem resorcinol e formaldeído, as condições ácidas compreendem ácido acético e água, ou em que o catalisador básico volátil compreende carbonato de amônio, bicarbonato de amônio, acetato de amônio, hidróxido de amônio, ou combinações dos mesmos.

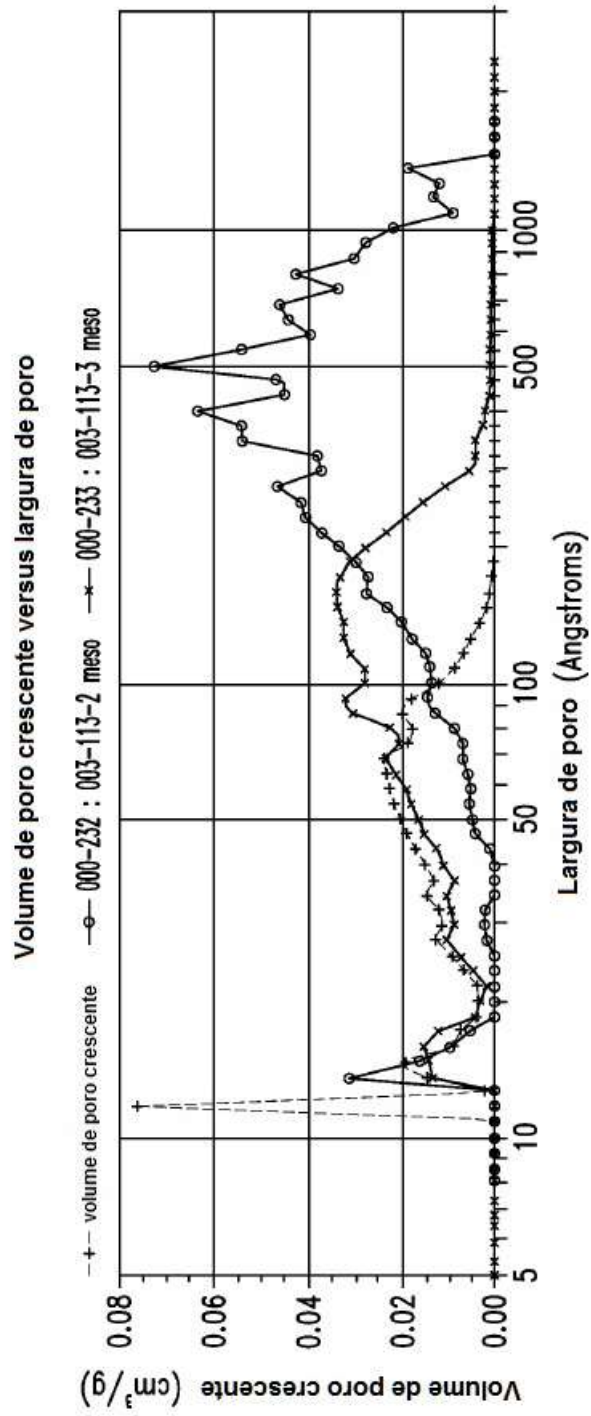


FIG. 1

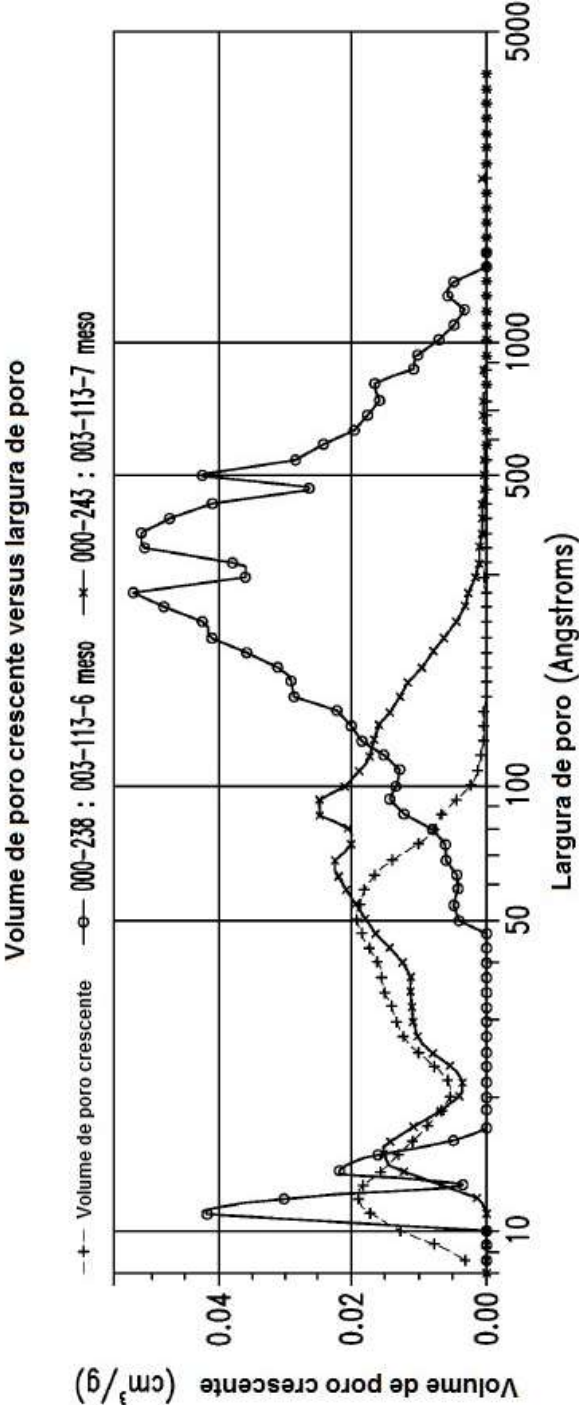


FIG. 2

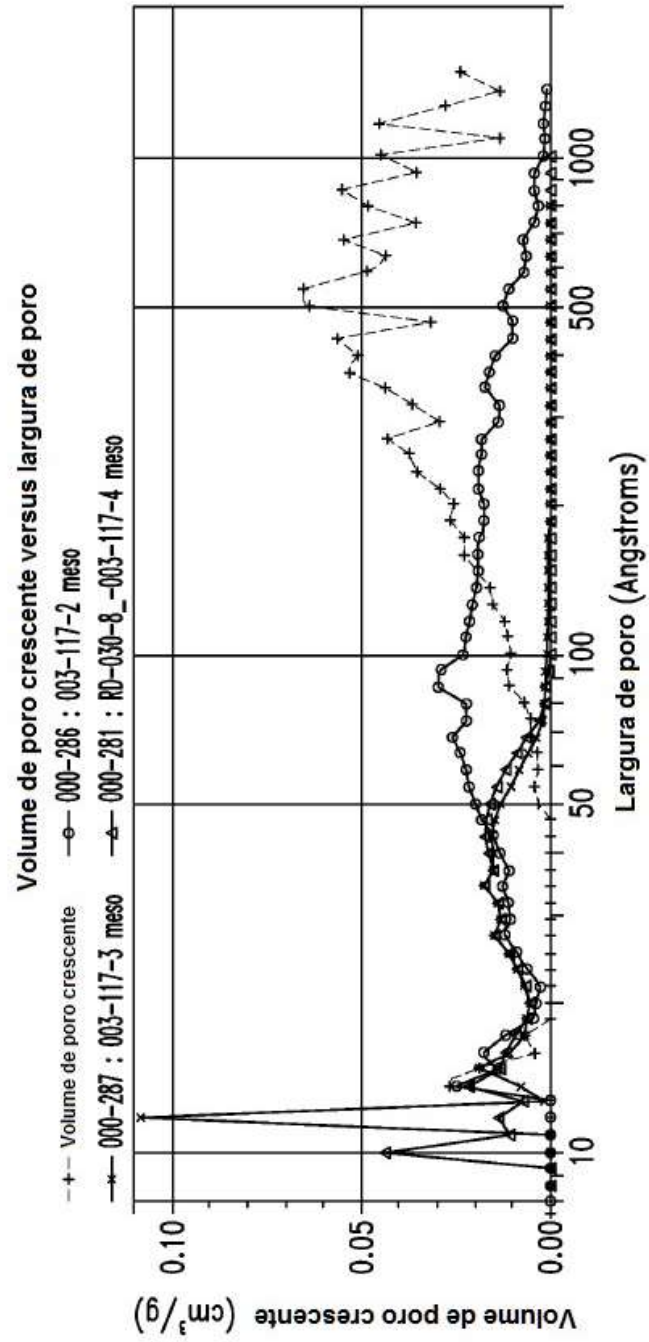


FIG. 3

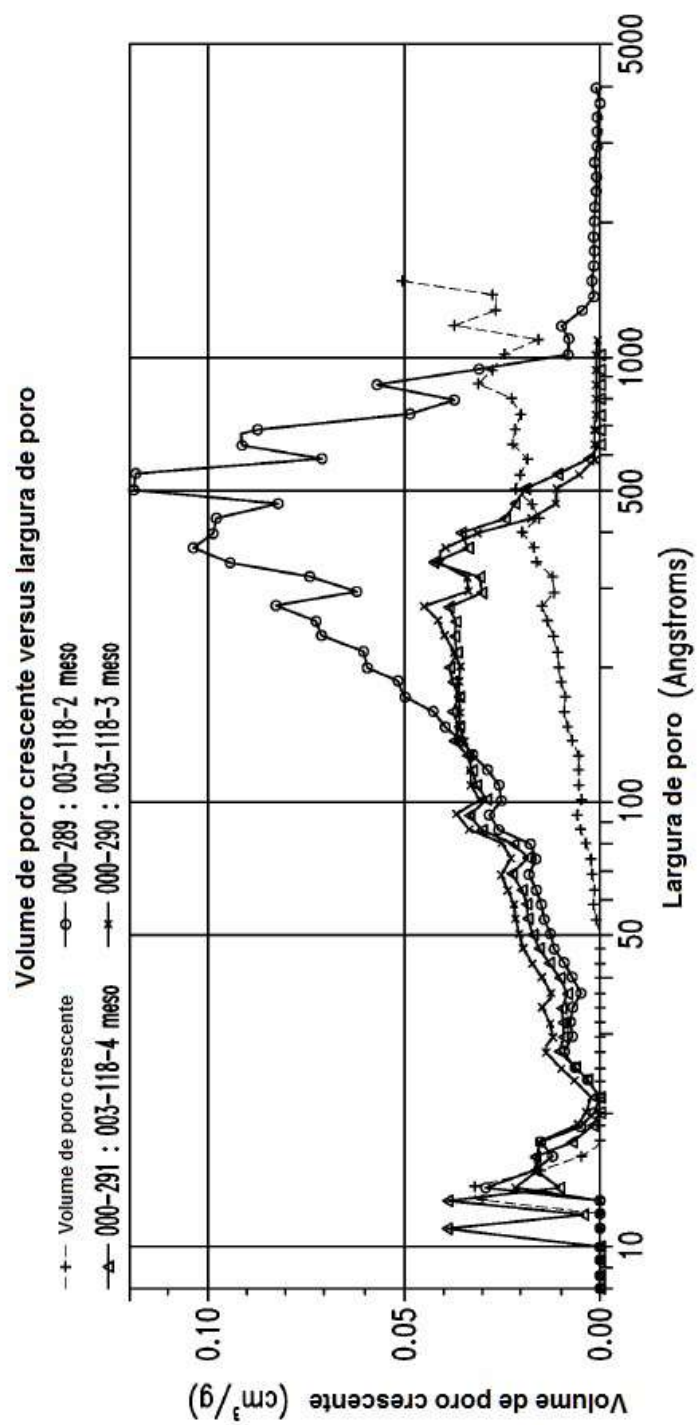


FIG. 4

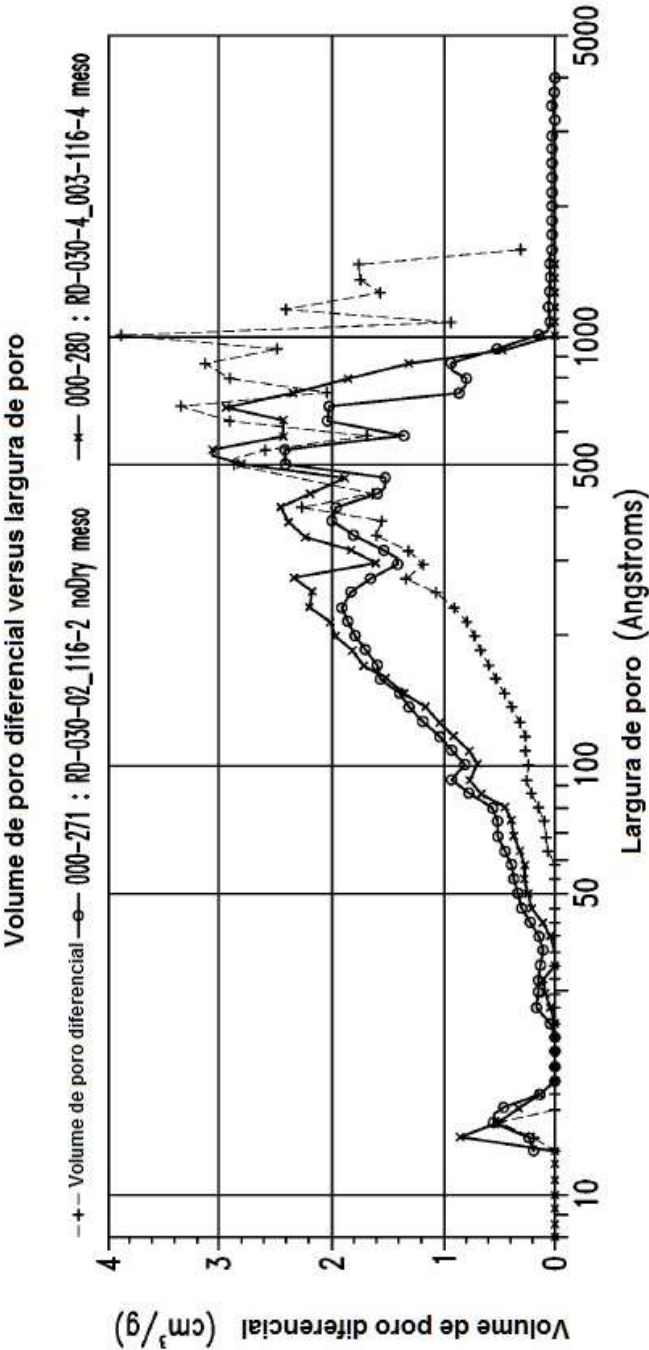


FIG. 5

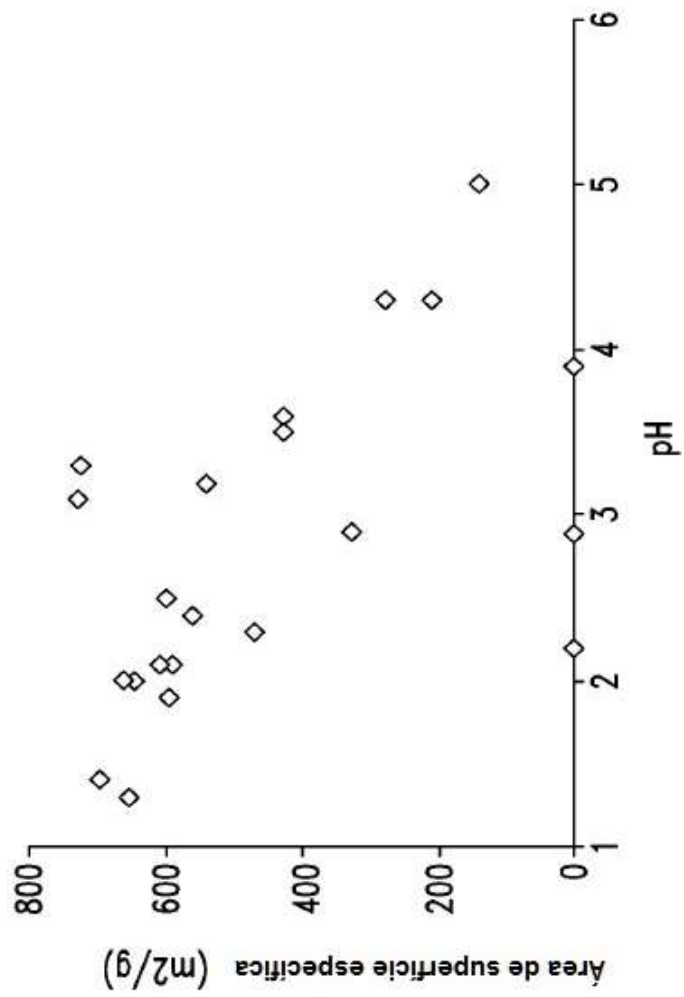
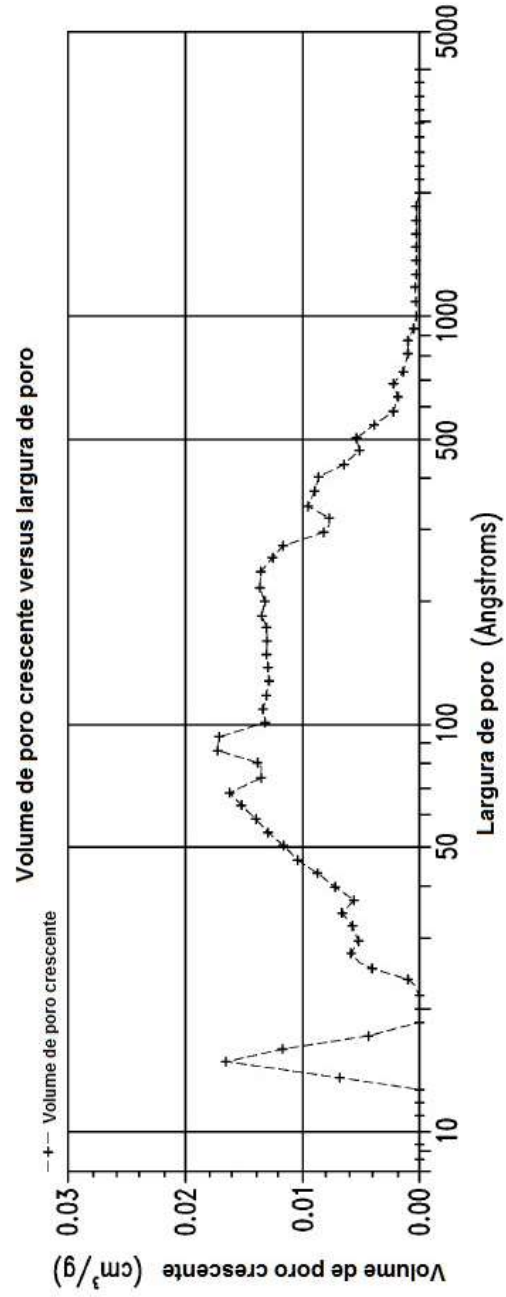
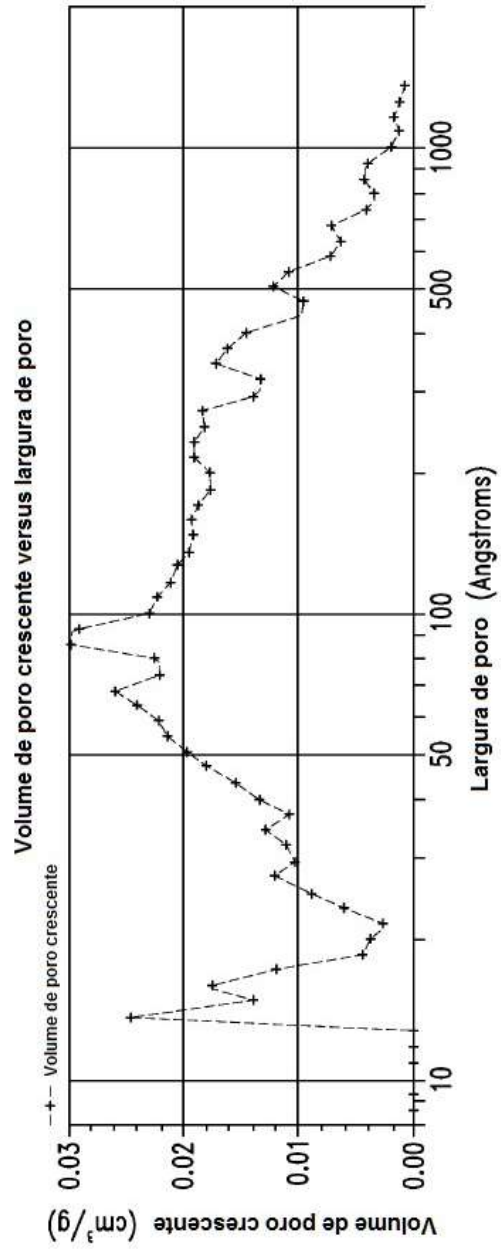
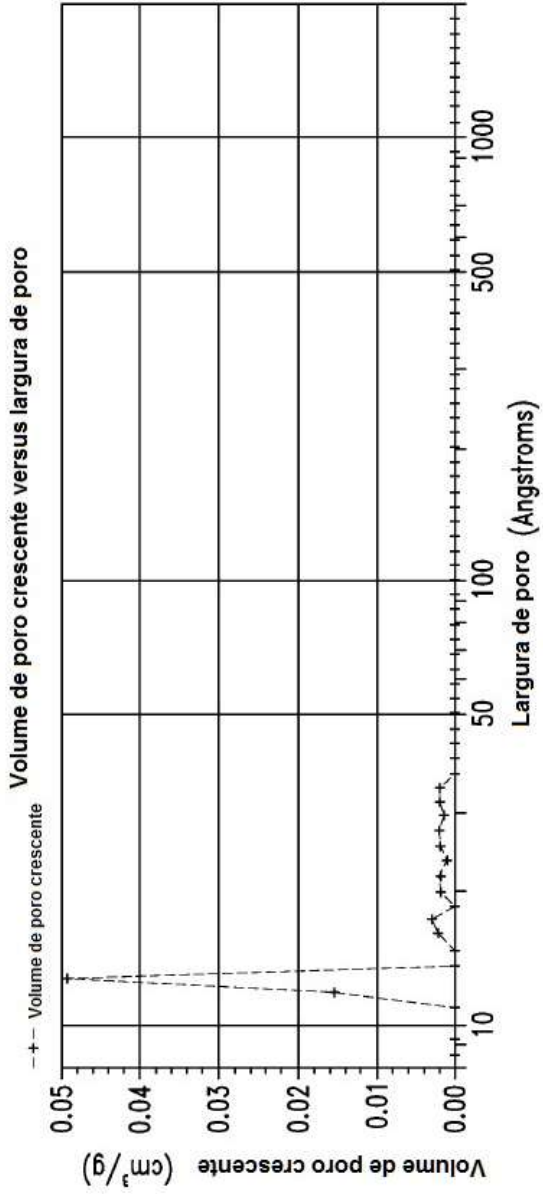
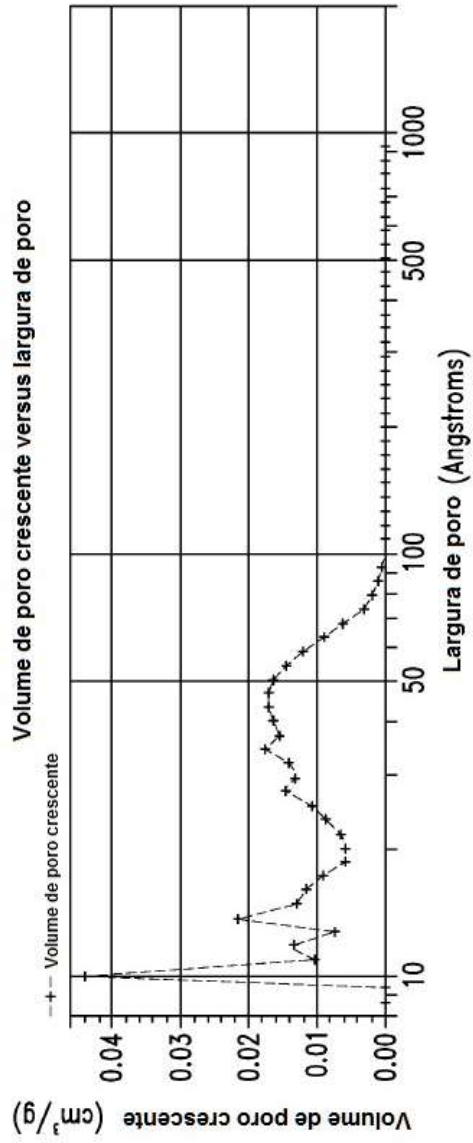


FIG. 6





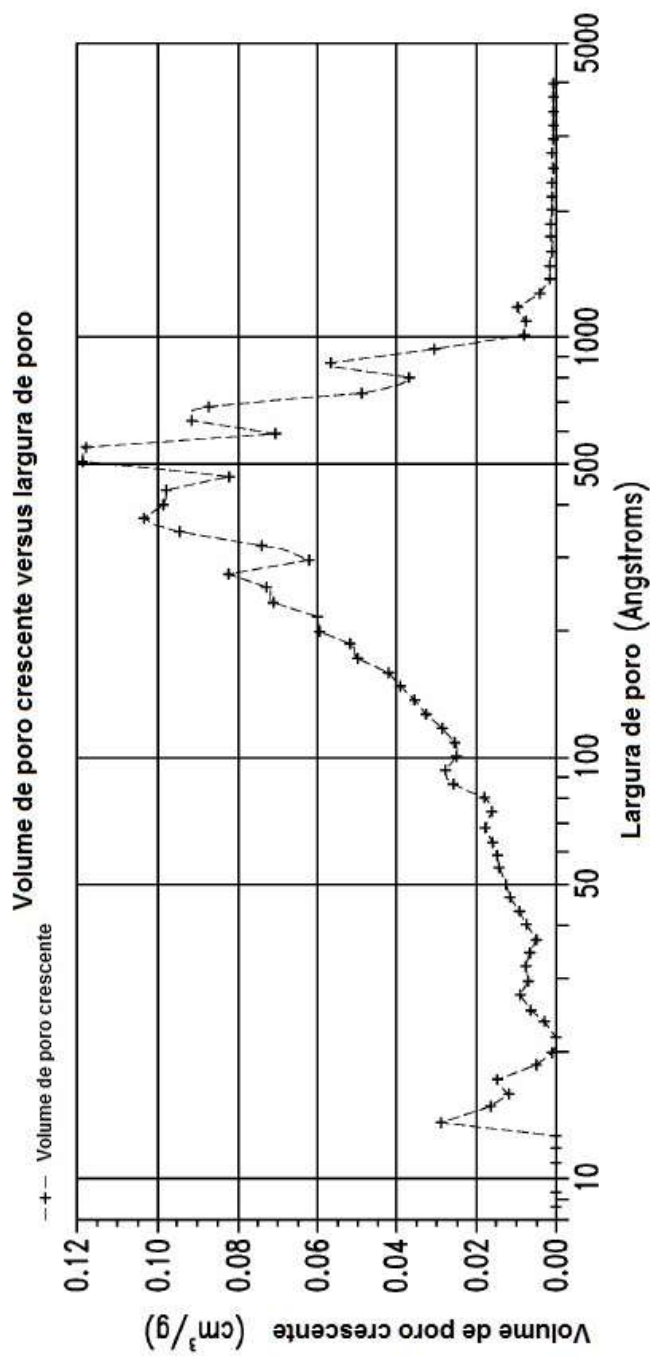


FIG. 9A

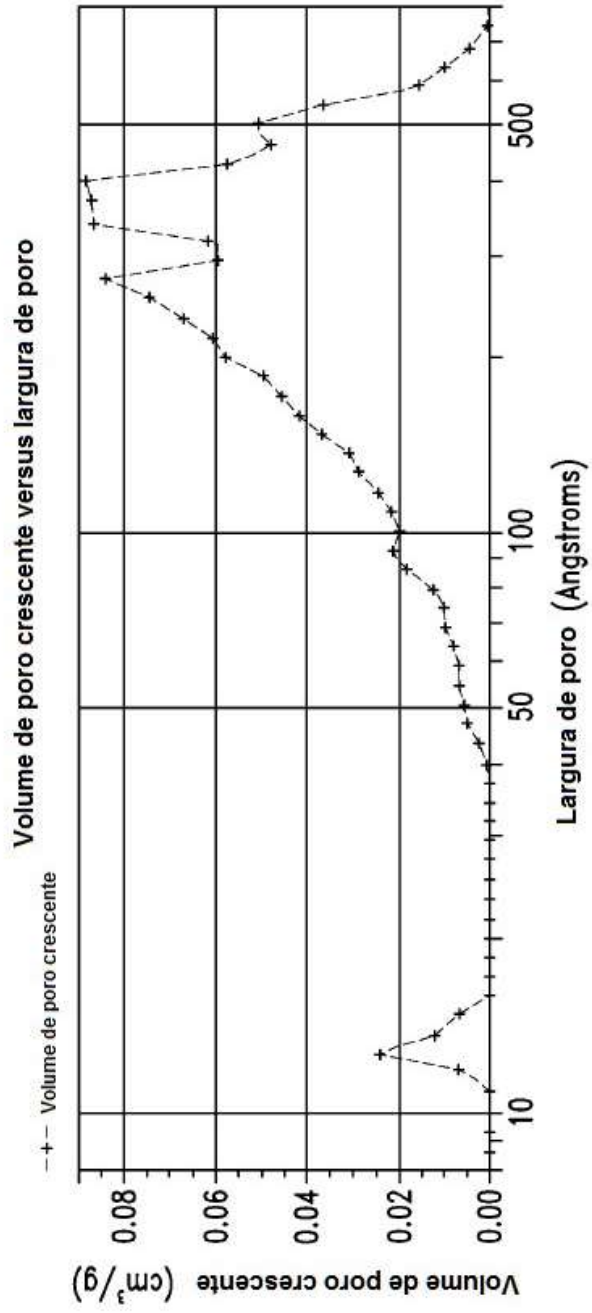
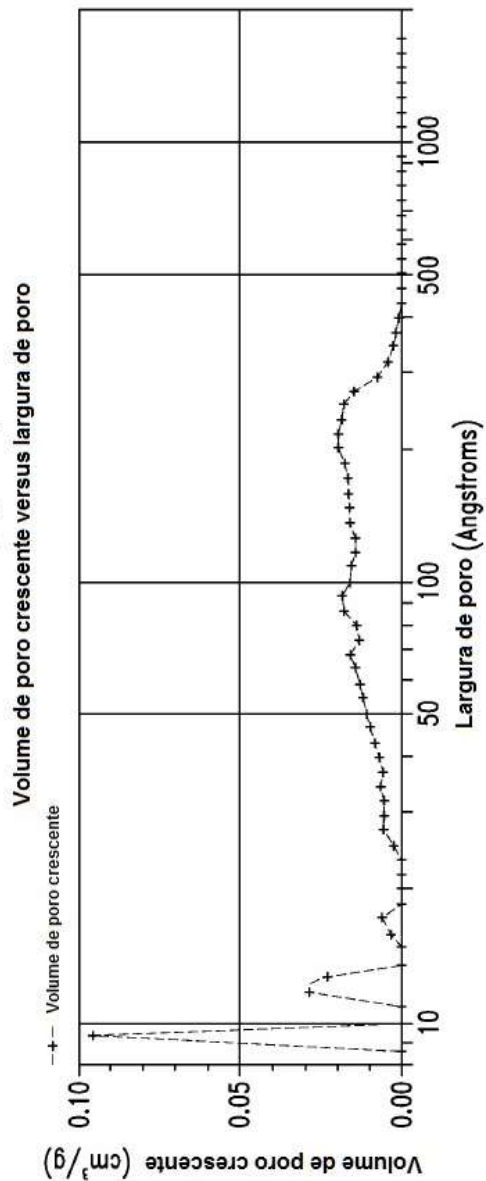
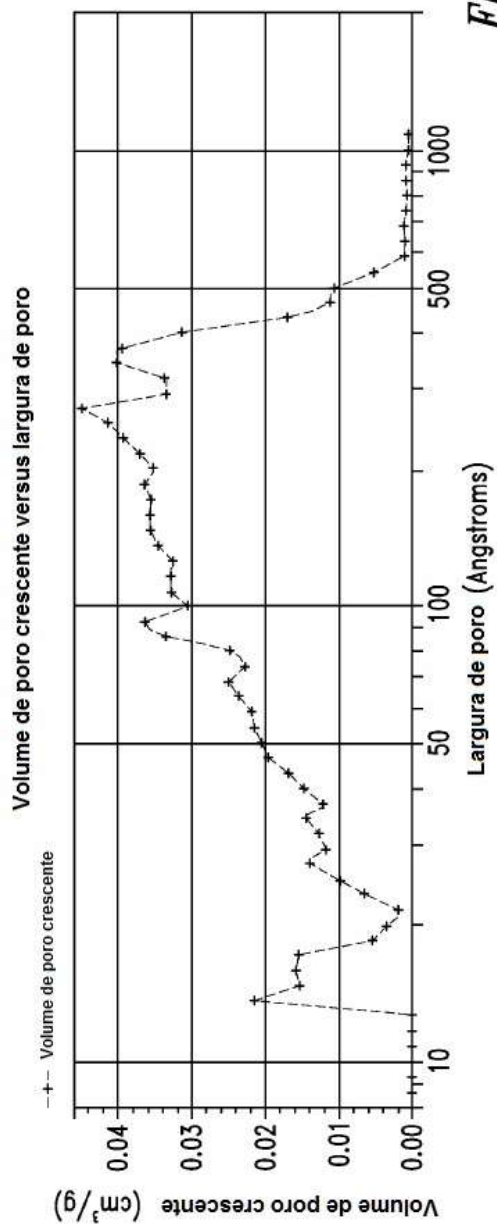


FIG. 9B



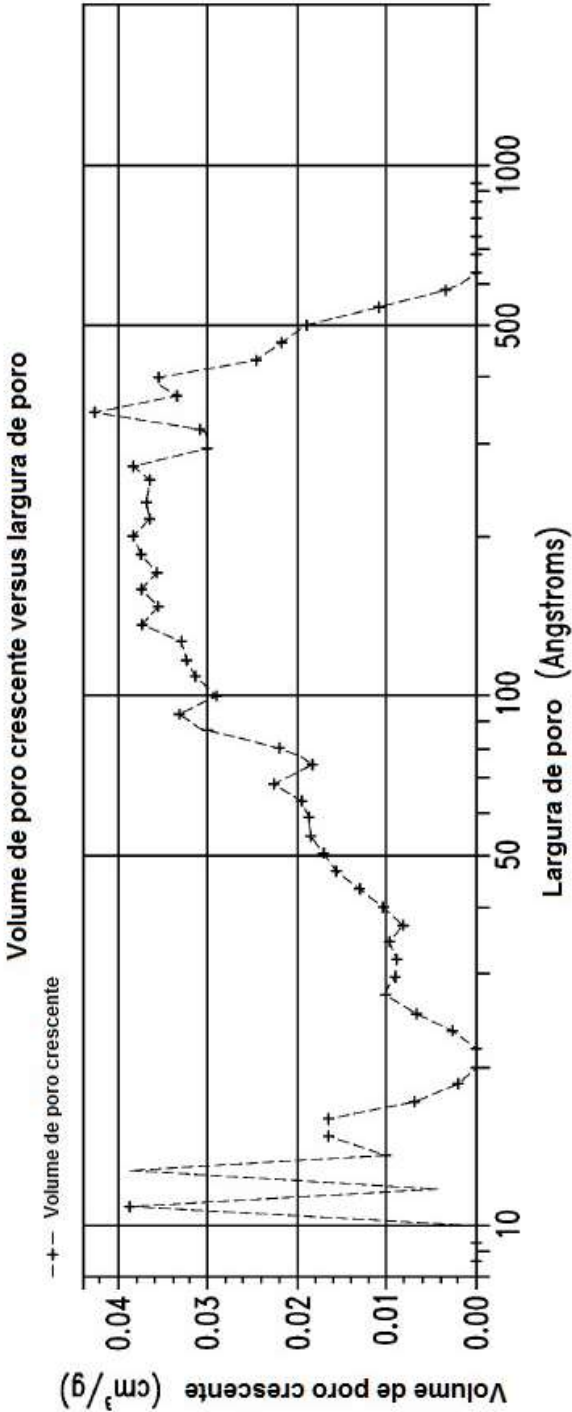


FIG. 11A

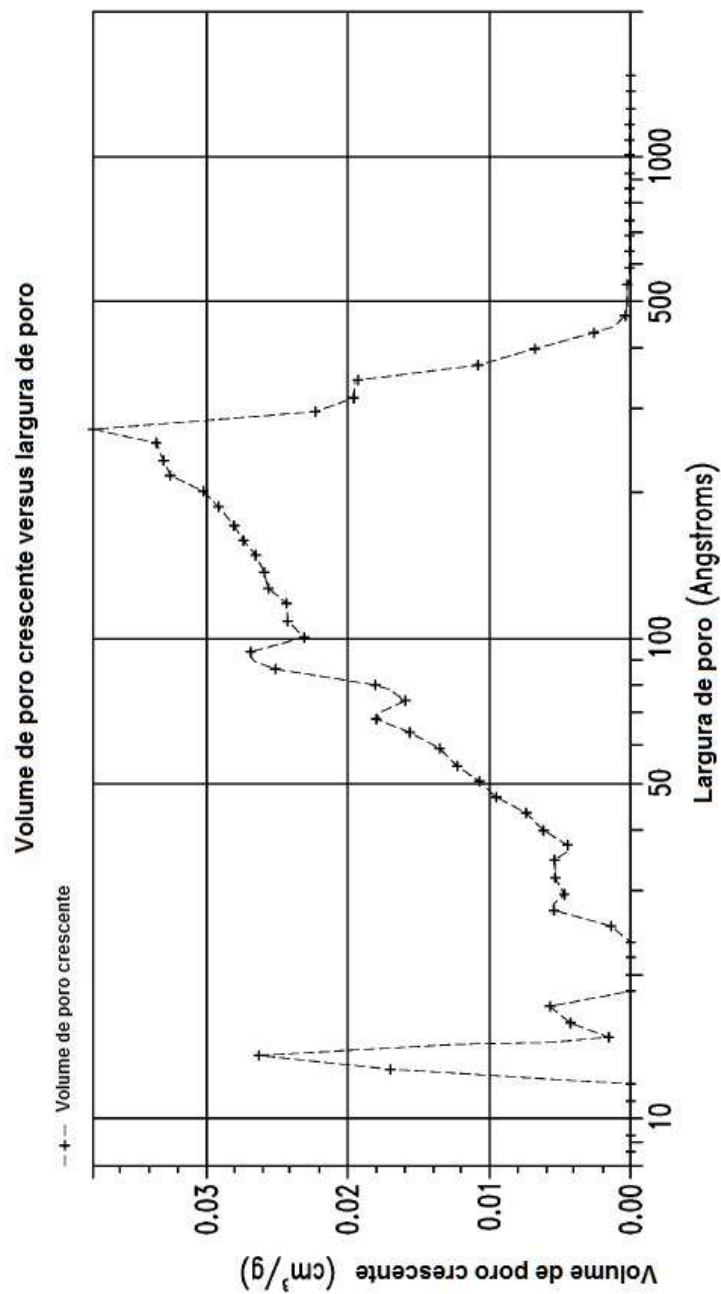


FIG. 11B

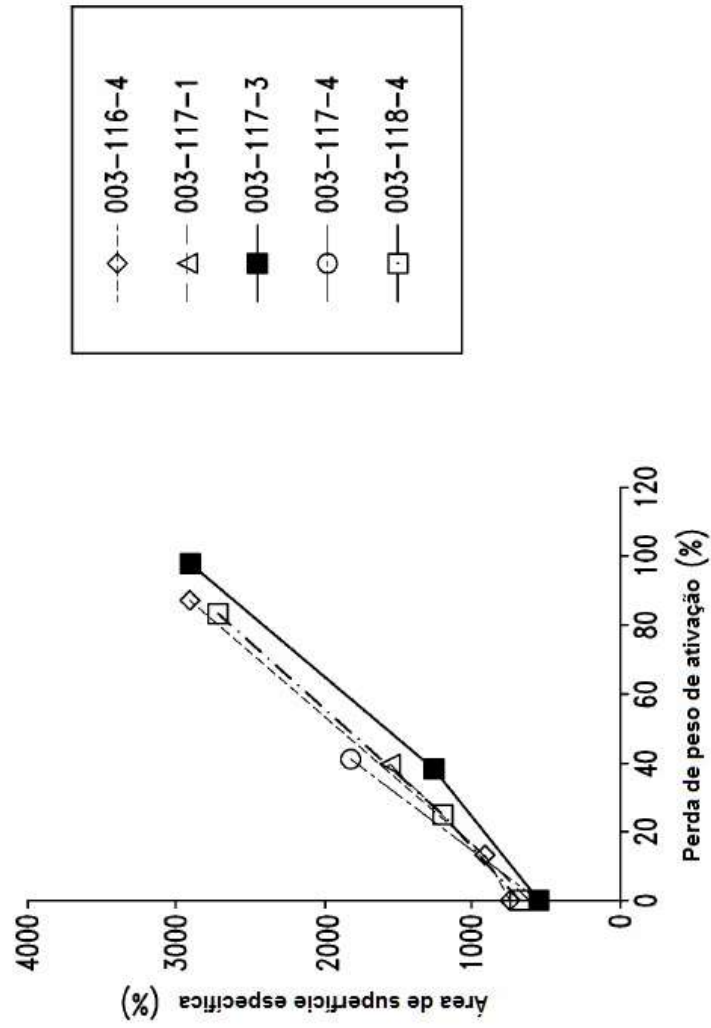
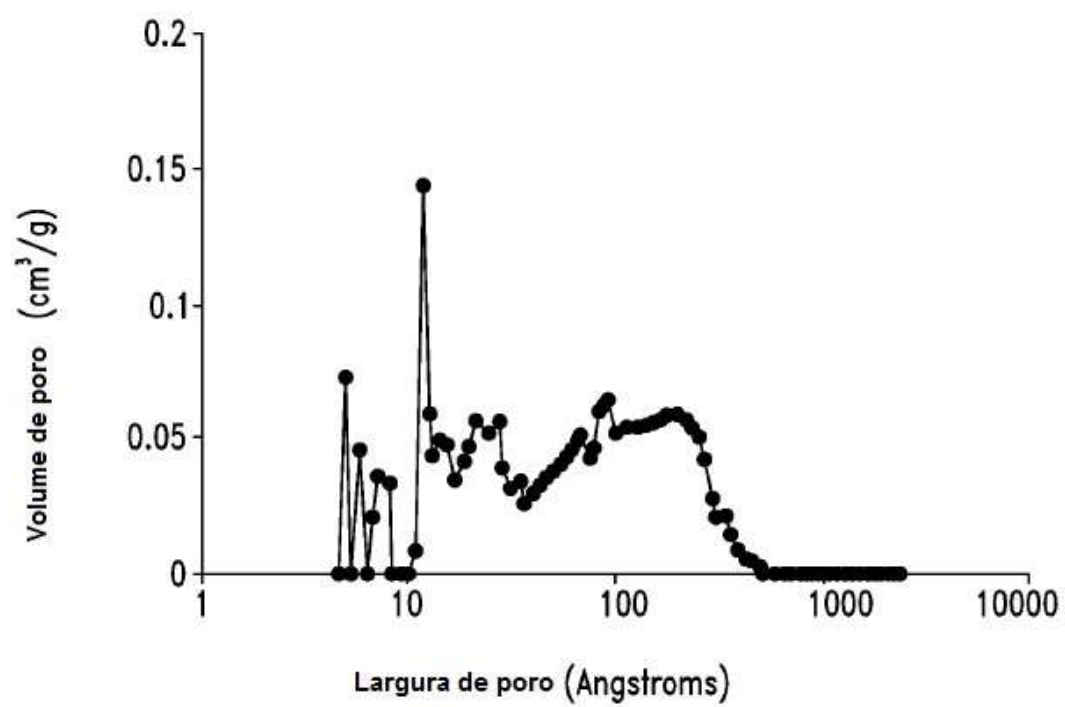


FIG. 12

*FIG. 13*