(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2018년02월21일
(11) 등록번호 10-1830879
(24) 등록일자 2018년02월13일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 31/00 (2006.01) *B29C 70/42* (2006.01)
C01B 31/02 (2006.01)
(21) 출원번호 10-2012-7000857
(22) 출원일자(국제) 2010년07월01일
심사청구일자 2015년06월30일
(85) 번역문제출일자 2012년01월11일
(65) 공개번호 10-2012-0068809
(43) 공개일자 2012년06월27일
(86) 국제출원번호 PCT/US2010/040836
(87) 국제공개번호 WO 2011/003033
국제공개일자 2011년01월06일
(30) 우선권주장
61/222,431 2009년07월01일 미국(US)
(뒷면에 계속)
(56) 선행기술조사문헌
JP2008007387 A*
*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
바스프 에스이
독일 67056 루드비히스하펜 암 라인 칼-보쉬-슈트라쎄 38
(72) 발명자
페아버, 아론, 엠.
미국 워싱턴주 98105, 시애틀, 스위트 300, 100 노스이트스 노스레이크 웨이
코스탄티노, 헨리, 알.
미국 워싱턴주 98105, 시애틀, 스위트 300, 100 노스이트스 노스레이크 웨이
스캇, 윌리엄, 디.
미국 워싱턴주 98105, 시애틀, 스위트 300, 100 노스이트스 노스레이크 웨이
(74) 대리인
손민

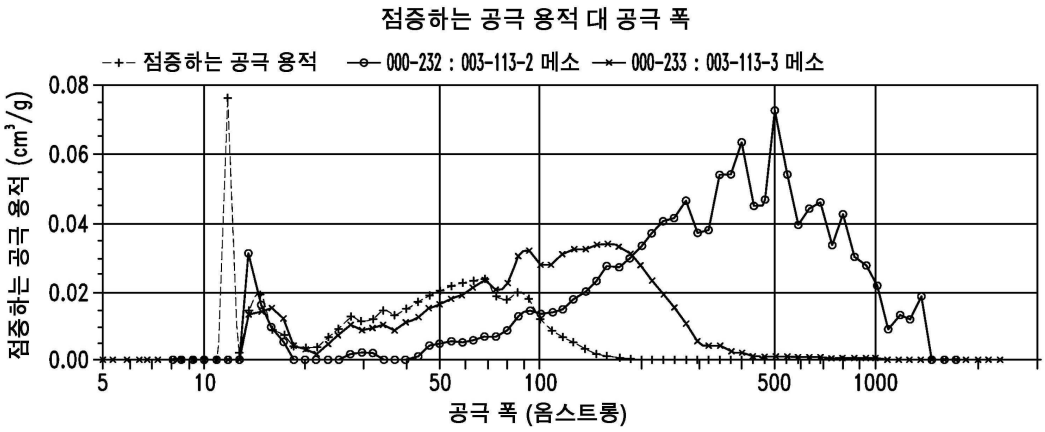
전체 청구항 수 : 총 24 항 심사관 : 최문정

(54) 발명의 명칭 **초고순도의 합성 탄소 물질**

(57) 요 약

본 발명은 일반적으로 큰 표면적 및 큰 다공성 둘 다를 갖는 초고순도의 합성 탄소 물질, 초고순도의 폴리머 겔, 및 이것을 함유하는 장치에 관한 것이다. 기술된 초고순도의 합성 탄소 물질은 다수의 장치에서, 예를 들어, 전기 이중층 전류용량 장치 및 배터리에서 유용성이 있다. 본 발명에는 또한 초고순도의 합성 탄소 물질 및 초고순도의 폴리머 겔을 제조하는 방법이 기술된다.

대 표 도



(30) 우선권주장
61/255,037 2009년10월26일 미국(US)
61/255,054 2009년10월26일 미국(US)
61/261,703 2009년11월16일 미국(US)

명 세 서

청구범위

청구항 1

양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때, 총 불순물 함량으로 11 내지 92 범위의 원자 번호를 갖는 원소를 500 ppm 미만 포함하며, 적어도 500 ㎡/g의 BET 비표면적을 포함하며, 50ppm 미만의 염소, 10ppm 미만의 칼륨, 30ppm 미만의 황 및 10ppm 미만의 니켈을 함유하는, 초고순도의 합성 탄소 물질.

청구항 2

제1항에 있어서, 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질인 탄소 물질.

청구항 3

제1항에 있어서, 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때 총 불순물 함량으로 11 내지 92 범위의 원자 번호를 갖는 원소를 200 ppm 미만 포함하는 탄소 물질.

청구항 4

제1항에 있어서, 탄소 물질의 회분 함량이 양자 유도된 x-선 방출 데이터로부터 계산된 것으로서 0.03 중량% 미만인 탄소 물질.

청구항 5

제1항에 있어서, 연소 분석 및 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때 적어도 95 중량%의 탄소를 포함하는 탄소 물질.

청구항 6

제1항에 있어서, 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때 3 ppm 미만의 철을 포함하는 탄소 물질.

청구항 7

제1항에 있어서, 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때 1 ppm 미만의 니켈을 포함하는 탄소 물질.

청구항 8

제1항에 있어서, 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때 5 ppm 미만의 황을 포함하는 탄소 물질.

청구항 9

제1항에 있어서, 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때 1 ppm 미만의 크롬을 포함하는 탄소 물질.

청구항 10

제1항에 있어서, 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때 1 ppm 미만의 구리를 포함하는 탄소 물질.

청구항 11

제1항에 있어서, 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정할 때 100 ppm 미만의 나트륨, 300 ppm 미만의 규소, 100 ppm 미만의 칼슘, 20 ppm 미만의 철, 140 ppm 미만의 구리, 5 ppm 미만의 크롬 및 5 ppm 미만의 아연을 포함하는 탄소 물질.

청구항 12

제1항에 있어서, 초고순도의 폴리머 크리오겔의 열분해된 물질을 포함하는 탄소 물질.

청구항 13

제1항에 있어서, 초고순도의 폴리머 크리오겔의 활성화된 물질을 포함하는 탄소 물질.

청구항 14

제1항에 있어서, 적어도 1500 ㎡/g의 BET 비표면적을 포함하는 탄소 물질.

청구항 15

제1항에 있어서, 적어도 0.7 cc/g의 공극 용적을 포함하는 탄소 물질.

청구항 16

제1항 내지 제15항 중 어느 한 항의 초고순도의 합성 탄소 물질을 포함하는 장치.

청구항 17

제16항에 있어서, a) 각각 초고순도의 합성 탄소 물질을 포함하는 양전극 및 음전극; b) 불활성 다공성 분리막; 및 c) 전해질을 포함하며, 여기에서 양전극과 음전극이 불활성 다공성 분리막에 의해서 분리되는 전기 이중층 캐패시터 (EDLC) 장치인 장치.

청구항 18

제16항에 있어서, 적어도 15 W/g의 중량 파워를 포함하는 EDLC 장치인 장치.

청구항 19

제16항에 있어서, 적어도 20.0 Wh/kg의 중량 에너지를 포함하는 EDLC 장치인 장치.

청구항 20

제16항에 있어서, 아세토니트릴 중의 테트라에틸암모늄-테트라플루오로보레이트의 1.8 M 전해질 용액 및 0.5 A/g의 전류 밀도를 이용하여 5 초 시상수로 2.7 V로부터 0.1 V로의 정전류 방전에 의해서 측정할 때, 적어도 25 F/g의 중량 전기용량을 포함하는 EDLC 장치인 장치.

청구항 21

제16항에 있어서, 배터리인 장치.

청구항 22

제21항에 있어서, 리튬/탄소 배터리, 아연/탄소 배터리, 리튬 공기 배터리 또는 납-산 배터리인 장치.

청구항 23

결합제 및 제1항 내지 제15항 중 어느 한 항의 초고순도의 합성 탄소 물질을 포함하는 전극.

청구항 24

제1항 내지 제15항 중 어느 한 항의 초고순도의 합성 탄소 물질을 제조하는 방법으로서, 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체를 휘발성 염기성 촉매의 존재 하에 산성 조건 하에서 반응시켜 초고순도의 폴리머 겔을 수득하는 것을 포함하는 방법.

청구항 25

삭제

청구항 26

삭제

청구항 27

삭제

청구항 28

삭제

청구항 29

삭제

청구항 30

삭제

청구항 31

삭제

청구항 32

삭제

청구항 33

삭제

청구항 34

삭제

청구항 35

삭제

청구항 36

삭제

청구항 37

삭제

청구항 38

삭제

청구항 39

삭제

청구항 40

삭제

청구항 41

삭제

청구항 42

삭제

청구항 43

삭제

청구항 44

삭제

청구항 45

삭제

청구항 46

삭제

청구항 47

삭제

청구항 48

삭제

청구항 49

삭제

청구항 50

삭제

청구항 51

삭제

청구항 52

삭제

청구항 53

삭제

청구항 54

삭제

청구항 55

삭제

청구항 56

삭제

청구항 57

삭제

청구항 58

삭제

청구항 59

삭제

청구항 60

삭제

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] **정부 권리의 진술**

[0002] 본 발명에 기술된 연구의 일부 자금은 미국 국방부에 의해 제공된 계약번호 W15P7T-09-C-S311로 미국 정부에 의해서 제공되었다. 미국 정부는 본 발명에서 일정한 권리를 가질 수 있다.

[0003] **관련 출원의 상호참조**

[0004] 본 출원은 2009년 7월 1일에 출원된 미국 가특허출원 제61/222,431호; 2009년 10월 26일에 출원된 미국 가특허출원 제61/255,037호; 2009년 10월 26일에 출원된 미국 가특허출원 제61/255,054호; 및 2009년 11월 16일에 출원된 미국 가특허출원 제61/261,703호 (이들은 모두 본 발명에 참고로 포함된다)의 35 U.S.C. §119(e)에 따르는 이익을 주장한다.

[0005] 본 발명은 일반적으로, 초고순도의 합성 탄소 물질, 그의 제조방법 및 이것을 함유하는 장치에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0006] 활성 탄소는 통상적으로 전기 저장 및 분배 장치에서 사용된다. 활성 탄소의 큰 표면적, 전도성 및 다공성은 다른 물질을 사용하는 장치보다 더 큰 에너지 밀도를 갖는 전기 장치의 디자인을 가능하게 한다. 전기 이중층 캐패시터 (EDLCs)가 이러한 장치의 예이다. EDLCs는 종종 활성 탄소 물질 및 적합한 전해질로부터 제조된 전극을 가지며, 더 통상적인 캐패시터와 비교하여 극도로 큰 에너지 밀도를 갖는다. EDLCs에 대한 전형적인 용도에는 무선 모뎀, 이동 전화, 디지탈 카메라 및 그 밖의 다른 휴대용 (hand-held) 전자장치와 같이 피크-파워 (peak-power) 기능 또는 데이터 전송을 위한 파워의 짧은 버스트 (burst)를 필요로 하는 장치에서 에너지 저장 및 분배가 포함된다. EDLCs는 또한 전기 자동차, 열차, 버스 등과 같은 전기 비히클에서 사용된다.

[0007] 배터리는 종종 활성 탄소 물질 (예를 들어, 양극 물질, 집전체 또는 전도성 증진제로서)을 함유하는 또 다른 통상적인 에너지 저장 및 분배 장치이다. 예를 들어, 리튬이 삽입된 탄소질 양극을 갖는 리튬/탄소 배터리는 유망한 에너지 저장 장치이다. 탄소-함유 배터리의 다른 타입은 공기 전극용 집전체로서 다공성 탄소를 사용하는 리튬 공기 배터리, 및 음극 (anode) 또는 양극 (cathode)에서 종종 탄소 첨가제를 포함하는 납-산 배터리를 포함한다. 배터리는 (EDLC의 높은 전류밀도와 비교하여) 낮은 전류밀도 전력을 필요로 하는 다수의 전자장치에서 사용된다.

[0008] EDLCs 및 탄소-기본 배터리의 한가지 알려진 한계는 고온, 고전압 조작, 반복된 충전/방전 사이클 및/또는 노화에 따른 성능의 감소이다. 이러한 감소된 성능은 전해질/전극 계면에서 전극의 파괴를 야기하는 탄소 전극 자체에서의 전해질 불순물 또는 불순물에 기인하였다. 따라서, EDLCs 및/또는 고순도 탄소 물질로부터 제조된 전극을 포함하는 배터리가 기존의 장치보다 더 큰 전압에서, 및 더 고온에서 더 장기간 동안 작동될 수 있는 것으로 제안되었다.

[0009] 비록 큰 표면적 및 큰 다공성 둘 다를 갖는 고순도 탄소 물질에 대한 필요성이 인식되었지만, 이러한 탄소 물질은 상업적으로 이용할 수 없고, 보고된 제조방법은 고성능 전기장치에 바람직한 고순도 탄소를 수득할 수 없다. 큰 표면적의 활성 탄소 물질을 생산하는 한가지 통상적인 방법은 기존의 탄소-함유 물질 (예를 들어, 코코넛 섬유 또는 타이어 고무)를 열분해시키는 것이다. 이것은 비교적 작은 표면적을 갖는 차르 (char)를 제공하고, 이것은 이어서 과-활성화되어 원하는 적용에 필요한 표면적 및 다공성을 갖는 물질을 생산할 수 있다. 이러한 접근방법은 본질적으로 전구체 물질의 기존의 구조에 의해서 제한되며, 전형적으로 낮은 공정 수율 및 1% 또는 그 이상의 회분 함량 (즉, 금속 불순물)을 갖는 탄소 물질을 제공한다.

[0010] 활성 탄소 물질은 또한, 화학적 활성화에 의해서 제조될 수도 있다. 예를 들어, 탄소-함유 물질을 산, 염기 또는 염 (예를 들어, 인산, 수산화칼륨, 수산화나트륨, 염화아연 등)으로 처리하고, 이어서 가열하여 활성 탄소 물질을 제공한다. 그러나, 이러한 화학적 활성화는 높은 레벨의 잔류 공정 불순물 (예를 들어, 금속)을 갖는 활성 탄소 물질을 생산한다.

[0011] 큰 표면적의 활성 탄소 물질을 생산하는 또 다른 접근방법은 탄소-함유 유기 빌딩 블럭 (building blocks) (예를 들어, 초고순도의 폴리머 겔)으로부터 합성 폴리머를 제조하는 것이다. 기존의 유기 물질에 의해서와 같이 합성적으로 제조된 폴리머를 열분해시키고, 활성화시켜 활성 탄소 물질을 생산한다. 상술한 전통적인 접근방법과 대조적으로, 합성적으로 제조된 폴리머의 고유 다공성은 활성화 단계 중에 더 적은 물질이 상실되기 때문에 더 큰 공정 수율을 제공한다. 그러나, 공지된 다른 방법으로부터 제조된 탄소 물질에 의해서와 같이 보고된 방법을 통해서 합성 폴리머로부터 제조된 활성 탄소 물질은 부적합한 레벨의 불순물 (예를 들어, 금속)을 함유한다.

[0012] 본 분야에서 상당한 진보가 이루어졌지만, 매우 순수한 탄소 물질뿐만 아니라 그들 제조하는 방법 및 그를 함유하는 장치에 대한 필요성은 계속되고 있다. 본 발명은 이들 필요성을 충족시키며, 추가의 관련된 이점을 제공한다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0013] **간단한 요약**

[0014] 일반적인 견지에서, 본 발명은 초고순도의 합성 탄소 물질 (ultrapure synthetic carbon materials) 뿐만 아니라 이러한 물질을 제조하는 방법 및 이를 함유하는 장치에 관한 것이다. 이러한 물질은 전기 저장 및 분배 장치와 관련한, 특히 EDLCs 및 배터리용 전극에서 사용하기 위한 적용성을 갖는다. 기존의 탄소 물질은 전극이 침지된 전해질의 파괴전압을 감소시키는 것으로 알려진 다양한 불순물 (예를 들어, 염소, 황, 금속 등)의 잔류 레벨을 함유한다. 따라서, 기존의 전극은 더 낮은 전압에서 작동되어야 하며, 본 발명의 초고순도의 합성 탄소 물질을 포함하는 장치보다 더 짧은 수명을 갖는다. 탄소 전극 내의 불순물은 또한 EDLC 또는 배터리 내의 다른 성분의 분해의 원인이 된다. 예를 들어, EDLC 내의 2 개의 탄소 전극을 분리시키는 다공성 막은 탄소 전극 내의 염소 또는 다른 불순물에 의해서 분해될 수 있다. 본 발명에 기술된 초고순도의 합성 탄소 물질은 어떤 공지의 탄소 물질보다도 상당히 더 순수하며, 따라서 다수의 전기 저장 및/또는 분배 장치의 작동을 개선시킨다.

[0015] 따라서, 한가지 구체예에서는 초고순도의 합성 탄소 물질이 기술된다. 초고순도의 합성 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 11 내지 92 범위의 원자 번호를 갖는 원소의 500 ppm 미만의 총 불순물 함량을 포함한다. 전술한 것의 또 다른 구체예에서, 탄소 물질은 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질이다.

[0016] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 11 내지 92 범위의 원자 번호를 갖는 원소의 200 ppm 미만의 총 불순물 함량을 포함한다.

[0017] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출 데이터로부터 계산된 것으로서 0.03% 미만, 예를 들어, 0.01% 미만의 회분 함량을 포함한다.

[0018] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 연소 분석 및 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 중량 기준으로 적어도 95%의 탄소를 포함한다.

[0019] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 3 ppm 미만의 철, 1 ppm 미만의 니켈, 5 ppm 미만의 황, 1 ppm 미만의 크롬 또는 1 ppm 미만의 구리를 포함한다.

[0020] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 100 ppm 미만의 나트륨, 300 ppm 미만의 규소, 50 ppm 미만의 황, 100 ppm 미만의 칼슘, 20 ppm 미만의 철, 10 ppm 미만의 니켈, 140 ppm 미만의 구리, 5 ppm 미만의 크롬 및 5 ppm 미만의 아연을 포함한다. 예를 들어, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 50 ppm 미만의 나트륨, 50 ppm 미만의 규소, 30 ppm 미만의 황, 10 ppm 미만의 칼슘, 2 ppm 미만의 철, 1 ppm 미만의 니켈, 1 ppm 미만의 구리, 1 ppm 미만의 크롬 및 1 ppm 미만의 아연을 포함한다.

[0021] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 연소 분석에 의해서 결정된 것으로서 3.0% 미만의 산소, 0.1% 미만의 질소 및 0.5% 미만의 수소를 포함한다. 예를 들어, 다른 특정한 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 연소 분석에 의해서 결정된

것으로서 1.0% 미만의 산소를 포함한다.

[0022] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 열분해된 초고순도의 폴리머 크리오겔 (cryogel)을 포함한다. 또 다른 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 활성화된 초고순도의 폴리머 크리오겔을 포함한다.

[0023] 일부의 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 적어도 1500 ㎡/g, 적어도 2000 ㎡/g 또는 적어도 2400 ㎡/g의 BET 비표면적으로 이루어진다.

[0024] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 적어도 0.7 cc/g의 공극 용적으로 이루어진다.

[0025] 또 다른 구체예에서는 초고순도의 폴리머 겔이 제공된다. 초고순도의 폴리머 겔은 탄소, 수소, 산소, 및 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 11 내지 92 범위의 원자 번호를 갖는 원소의 500 ppm 미만, 전형적으로는 200 ppm 미만의 총 불순물 함량으로 이루어진다.

[0026] 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 건조 초고순도의 폴리머 겔이다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 적어도 400 ㎡/g의 BET 비표면적으로 이루어진다.

[0027] 일부의 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 하나 또는 그 이상의 혼화성 용매, 하나 또는 그 이상의 페놀성 화합물, 하나 또는 그 이상의 알데히드 및 하나 또는 그 이상의 촉매를 혼합시킴으로써 제조된다. 예를 들어, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 물, 아세트산, 레조르시놀, 포름알데히드 및 아세트산 암모늄을 혼합시킴으로써 제조된다.

[0028] 기술된 탄소 물질의 이러한 고순도는 기술된 졸겔 방법 (sol gel process)에 기인할 수 있다. 본 출원인은 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체, 예를 들어, 페놀성 화합물 및 알데히드를 휘발성 염기성 촉매의 존재 하에 산성 조건 하에서 공중합시키면 초고순도의 폴리머 겔이 제공된다는 것을 발견하였다. 이것은 잔류 레벨의 금속 및/또는 다른 불순물뿐만 아니라 잔류 레벨의 반응 용매 및/또는 추출 용매를 포함하는 초고순도의 폴리머 겔을 제공하는 초고순도의 폴리머 겔의 제조를 위한 보고된 다른 방법과 대조적이다. 이들 불순한 초고순도의 폴리머 겔로부터, 예를 들어, 열분해 및/또는 활성화에 의한 탄소 물질의 제조는 역시 불순한 탄소 물질을 제공한다.

[0029] 기술된 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 초고순도의 폴리머 겔로부터 열분해에 의해서 및/또는 초고순도의 폴리머 겔의 활성화에 의해서 제조될 수 있다. 다음으로, 초고순도의 폴리머 겔은 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체를 휘발성 염기성 촉매의 존재 하에 산성 조건 하에서 반응시켜 초고순도의 폴리머 겔을 수득함으로써 제조될 수 있다.

[0030] 따라서, 한가지 구체예에서 본 발명은 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체를 휘발성 염기성 촉매의 존재 하에 산성 조건 하에서 반응시켜 초고순도의 폴리머 겔을 수득하는 것을 포함하여 초고순도의 합성 탄소 물질을 제조하는 방법을 제공한다. 추가의 구체예에서, 탄소 물질은 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질이다.

[0031] 다른 구체예에서, 상기 방법은 추가로 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체를 아세트산 및 물을 포함하는 용매 중에서 혼합시키는 것을 포함한다. 다른 구체예에서, 휘발성 염기성 촉매는 탄산암모늄, 중탄산암모늄, 아세트산 암모늄, 수산화암모늄, 또는 이들의 조합을 포함하고, 다른 구체예에서 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체는 레조르시놀 및 포름알데히드를 포함한다.

[0032] 일부의 다른 구체예에서, 상기 방법은 추가로,

[0033] (a) 초고순도의 폴리머 겔을 동결 건조시켜 초고순도의 폴리머 크리오겔을 수득하고;

[0034] (b) 상기 초고순도의 폴리머 크리오겔을 열분해시켜 열분해된 초고순도의 크리오겔을 수득하고;

[0035] (c) 상기 열분해된 초고순도의 크리오겔을 활성화시켜 초고순도의 합성 활성 탄소 물질을 수득하는 것을 포함한다.

[0036] 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 다수의 전기 저장 및 분배 장치에서 유용성을 갖는다. 초고순도, 큰 다공성 및 큰 표면적의 조합은 공지의 장치보다 탁월한 특성을 갖는 전기 저장 및 분배 장치의 제조를 가능하게 한다. 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 장치는 더 낮은 순도의 탄소로부터 제조된 동등한 장치보다 더 고온에서 더 장시간 동안 더 높은 전압에서 작동할 수 있다.

[0037] 따라서, 또 다른 구체예에서 본 발명은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 11 내지 92 범위의 원자 번호를 갖는 원소의 500 ppm 미만, 특히 200 ppm 미만의 총 불순물 함량으로 이루어진 초고순도의 합성 탄소 물질을 포함하는 장치를 제공한다. 예를 들어, 전술한 것의 일부의 다른 구체예에서 탄소 물질은 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질이다.

[0038] 일부의 추가의 구체예에서, 상기 장치는

[0039] a) 각각 초고순도의 합성 탄소 물질을 포함하는 양전극 및 음전극;

[0040] b) 불활성 다공성 분리막; 및

[0041] c) 전해질을 포함하고,

[0042] 양전극과 음전극이 불활성 다공성 분리막에 의해서 분리된 전기 이중층 캐패시터 (EDLC) 장치이다.

[0043] 일부의 추가 구체예에서, EDLC 장치는 적어도 15 W/g의 중량 파워 (gravimetric power), 적어도 10 W/cc의 용적 파워 (volumetric power), 적어도 20.0 Wh/kg의 중량 에너지 (gravimetric energy), 또는 적어도 10.0 Wh/ℓ의 용적 에너지로 이루어진다.

[0044] 일부의 다른 구체예에서, EDLC 장치는 아세토니트릴 중의 테트라에틸암모늄-테트라플루오로보레이트의 1.8 M 용액 전해질 및 0.5 A/g의 전류 밀도를 이용하여 5 초 시상수 (time constant)로 2.7 V 내지 0.1 V의 정전류 방전에 의해서 측정된 것으로서, 적어도 25 F/g의 중량 전기용량 (capacitance) 또는 적어도 20 F/cc의 용적 전기용량으로 이루어진다.

[0045] EDLC 장치의 일부의 다른 추가의 구체예에서, 탄소 물질의 회분 함량은 양자 유도된 x-선 방출 데이터로부터 계산된 것으로서 0.03% 미만, 특히 0.01% 미만이며, 일부의 다른 구체예에서 탄소 물질은 연소 분석 및 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 적어도 95%의 탄소를 포함한다.

[0046] EDLC 장치의 일부의 다른 구체예에서, 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 3 ppm 미만의 철, 1 ppm 미만의 니켈, 5 ppm 미만의 황, 1 ppm 미만의 크롬 또는 1 ppm 미만의 구리를 포함한다.

[0047] EDLC 장치의 또 다른 구체예에서, 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 100 ppm 미만의 나트륨, 300 ppm 미만의 규소, 100 ppm 미만의 칼슘, 50 ppm 미만의 황, 20 ppm 미만의 철, 10 ppm 미만의 니켈, 140 ppm 미만의 구리, 5 ppm 미만의 크롬 및 5 ppm 미만의 아연을 포함한다.

[0048] EDLC 장치의 일부의 다른 구체예에서, 탄소 물질은 활성화된 초고순도의 폴리머 크리오겔을 포함하며, EDLC 장치의 일부의 다른 구체예에서 탄소 물질은 적어도 1500 ㎡/g, 적어도 2000 ㎡/g 또는 적어도 2400 ㎡/g의 BET 비표면적으로 이루어진다.

[0049] 다른 특별한 구체예에서, 본 발명은 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 배터리, 예를 들어, 리튬/탄소 배터리, 아연/탄소 배터리, 리튬 공기 배터리 또는 납-산 배터리에 관한 것이다. 다른 구체예에서, 본 발명은 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 전극에 관한 것이다. 이러한 전극은 EDLCs 및 배터리와 같은 전기 저장 및 분배 장치에서 유용하다.

과제의 해결 수단

[0050] 이하의 설명에서, 특정의 구체적인 상세한 설명은 다양한 구체예의 철저한 이해를 제공하기 위해서 언급된 것이다. 그러나, 본 기술분야에서 숙련된 전문가는 본 발명이 이들 상세한 설명이 없이 실시될 수 있음을 이해할 것이다. 다른 경우에, 잘 알려진 구조는 구체예의 불필요하게 애매한 설명을 피하기 위해서 상세하게 나타내거나 기술되지 않는다. 문맥이 다른 식으로 요구하지 않는 한, 이하의 명세서 및 특허청구범위 전체에 걸쳐서 단어 "포함한다 (comprise)" 및 예를 들어 그의 변형 "포함한다 (comprises)" 및 "포함하는 (comprising)"는 개방형 포괄적 개념, 즉 "포함하나, 제한되지는 않는"것으로 이해되어야 한다. 또한, 본 명세서에서 제공된 제목은 단지 편의를 위한 것이며, 특허청구된 본 발명의 범위 또는 의미를 해석하는 것은 아니다.

[0051] 본 명세서 전체에 걸쳐서 "한가지 구체예" 또는 "구체예"에 대한 언급은 상기 구체예와 관련하여 기술된 특별한 특색, 구조 또는 특징이 적어도 하나의 구체예에 포함되는 것을 의미한다. 따라서, 본 명세서 전체에 걸쳐 다양한 위치에서 문구 "한가지 구체예에서" 또는 "구체예에서"가 존재하는 것은 반드시 모두 동일한 구체예를 나타내는 것은 아니다. 더구나, 특별한 특색, 구조 또는 특징은 하나 또는 그 이상의 구체예에서 어떤 적합한 방

식으로라도 조합될 수 있다. 또한, 본 명세서 및 첨부된 특허청구범위에서 사용된 것으로서, 단수 형태 "a", "an" 및 "the"는 문맥이 분명하게 다른 식으로 지시하지 않는 한은 복수 대상을 포함하는 것이다. 또한, 용어 "또는 (or)"은 일반적으로, 내용이 분명하게 다른 식으로 지시하지 않는 한은 "및/또는"을 포함하는 그의 개념으로 사용된다.

[0052] 정의

[0053] 본 명세서에서 사용된 것으로서, 문맥이 다른 식으로 지시하지 않는 한 다음의 용어들은 이하에 명시된 바와 같은 의미를 갖는다.

[0054] "탄소 물질"은 실질적으로 탄소로 이루어진 물질 또는 재료를 나타낸다. 탄소 물질은 무정형 및 결정성 탄소 물질 둘 다를 포함한다. 탄소 물질의 예로는 활성 탄소, 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 크리오겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 크세로겔 (xerogels), 열분해된 초고순도의 폴리머 에어로겔 (aerogels), 활성화된 건조 초고순도의 폴리머 겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 크리오겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 크세로겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 에어로겔 등이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다.

[0055] "무정형"은 그의 구성 원자, 분자 또는 이온이 규칙적인 반복성 패턴이 없이 무작위적으로 정렬된 물질, 예를 들어, 무정형 탄소 물질을 나타낸다. 무정형 물질은 약간의 국재화된 결정성 (즉, 규칙성)을 가질 수 있지만, 원자의 위치의 장거리 정렬 (long-range order)은 결여된다. 열분해 및/또는 활성화된 탄소 물질은 일반적으로 무정형이다.

[0056] "결정성"은 그의 구성 원자, 분자 또는 이온이 질서정연한 반복성 패턴으로 정렬된 물질을 나타낸다. 결정성 탄소 물질의 예로는 다이아몬드 및 그래핀 (graphene)이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다.

[0057] "합성"은 천연 공급원으로부터가 아니라 화학적 방법에 의해서 제조된 물질을 나타낸다. 예를 들어, 합성 탄소 물질은 전구체 물질로부터 합성되고, 천연 공급원으로부터 분리되지 않은 것이다.

[0058] "불순물" 또는 "불순물 원소"는 기본 물질의 화학적 조성과 상이한, 물질 내의 외래 물질 (예를 들어, 원소)을 나타낸다. 예를 들어, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내의 불순물은 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 탄소 이외의 다른 모든 원소 또는 원소의 조합을 나타낸다. 불순물 레벨은 전형적으로 ppm (parts per million)으로 표현한다.

[0059] "PIXE 불순물"은 11 내지 92 범위의 원자 번호를 갖는 모든 불순물 원소 (즉, 나트륨부터 우라늄까지)이다. 문구 "총 PIXE 불순물 함량" 및 "총 PIXE 불순물 레벨"은 둘 다 샘플, 예를 들어, 초고순도의 폴리머 겔, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 모든 PIXE 불순물의 합을 나타낸다. PIXE 불순물 농도 및 정체는 양자 유도된 x-선 방출 (PIXE)에 의해서 결정될 수 있다.

[0060] "초고순도"는 0.050% 미만의 총 PIXE 불순물 함량을 갖는 물질을 나타낸다. 예를 들어, "초고순도의 탄소 물질", "초고순도의 합성 탄소 물질" 또는 "초고순도의 합성 무정형 탄소 물질"은 0.050% (즉, 500 ppm) 미만의 총 PIXE 불순물 함량을 갖는 탄소 물질이다.

[0061] "회분 함량"은 물질을 높은 분해 온도에 적용한 후에 잔류하는 비휘발성 무기 물질을 나타낸다. 여기에서, 탄소 물질의 회분 함량은 비휘발성 원소가 예상된 연소 생성물 (즉, 옥사이드)로 완전히 전환되는 것으로 가정하여, 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 총 PIXE 불순물 함량으로부터 계산된다.

[0062] "폴리머"는 2 개 또는 그 이상의 구조적 반복 유니트로 이루어진 거대분자를 나타낸다.

[0063] "합성 폴리머 전구체 물질" 또는 "폴리머 전구체"는 합성 폴리머의 제조에 사용된 화합물을 나타낸다. 본 발명에 기술된 제조방법에서 사용될 수 있는 폴리머 전구체의 예로는 예를 들어, 메탄알 (포름알데히드); 에탄알 (아세트알데히드); 프로판알 (프로피온알데히드); 부탄알 (부티르알데히드); 글루코즈; 벤즈알데히드 및 신남알데히드와 같은 알데히드 (즉, HC(=O)R, 여기에서 R은 유기 그룹이다)가 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 그 밖의 다른 예시적인 폴리머 전구체에는 페놀과 같은 페놀성 화합물 및 디하이드록시 또는 트리하이드록시 벤젠과 같은 폴리하이드록시 벤젠, 예를 들어, 레조르시놀 (즉, 1,3-디하이드록시 벤젠), 카테콜, 하이드로퀴논 및 플로로글루시놀이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 2 개 또는 그 이상의 폴리하이드록시 벤젠의 혼합물이 또한 폴리머 전구체의 의미로 생각된다.

[0064] "모놀리식 (monolithic)"은 자연적으로는 미립체가 아닌 고체 삼차원 구조를 나타낸다.

[0065] "졸 (sol)"은 전구체 입자 (예를 들어, 폴리머 전구체)의 콜로이드성 현탁액을 나타내며, 용어 "겔"은 전구체

입자의 축합 또는 반응에 의해서 수득된 습윤된 삼차원적 다공성 네트워크를 나타낸다.

[0066] "폴리머 겔"은 네트워크 성분이 폴리머인 겔이며; 일반적으로 폴리머 겔은 합성 전구체 또는 폴리머 전구체로부터 형성된 폴리머로 이루어진 습윤된 (수성 또는 비-수성계) 삼차원적 구조이다.

[0067] "졸 겔"은 폴리머가 폴리머 전구체의 반응에 의해서 수득된 습윤된 삼차원적 다공성 네트워크를 형성하는 콜로이드성 현탁액인 폴리머 겔의 서브-클래스를 나타낸다.

[0068] "폴리머 하이드로겔" 또는 "하이드로겔"은 합성 전구체 또는 모노머에 대한 용매가 물 또는 물과 하나 또는 그 이상의 수-혼화성 용매의 혼합물인 폴리머 겔 또는 겔의 서브클래스를 나타낸다.

[0069] "RF 폴리머 하이드로겔"은 폴리머가 물 또는 물과 하나 또는 그 이상의 수-혼화성 용매의 혼합물 중에서 레조르시놀과 포름알데히드의 촉매화된 반응에 의해서 형성된 폴리머 겔의 서브-클래스를 나타낸다.

[0070] "산"은 용액의 pH를 저하시킬 수 있는 모든 물질을 나타낸다. 산에는 아레니우스 (Arrhenius), 브론스테드 (Bronsted) 및 루이스산이 포함된다. "고체 산 (solid acid)"은 용매에 용해되면 산성 용액을 생산하는 건조 또는 과립상 화합물을 나타낸다. 용어 "산성"은 산의 특성을 갖는 것을 의미한다.

[0071] "염기"는 용액의 pH를 상승시킬 수 있는 모든 물질을 나타낸다. 염기에는 아레니우스, 브론스테드 및 루이스 염기가 포함된다. "고체 염기"는 용매에 용해되면 염기성 용액을 생산하는 건조 또는 과립상 화합물을 나타낸다. 용어 "염기성"은 염기의 특성을 갖는 것을 의미한다.

[0072] "혼합 용매 시스템"은 2 개 또는 그 이상의 용매, 예를 들어, 2 개 또는 그 이상의 혼화성 용매로 이루어진 용매 시스템을 나타낸다. 이상 (binary) 용매 시스템 (즉, 2 개의 용매를 함유)의 예로는 물과 아세트산; 물과 포름산; 물과 프로피온산; 물과 부티르산 등이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 삼상 (ternary) 용매 시스템 (즉, 3 개의 용매를 함유)의 예로는 물, 아세트산 및 에탄올; 물, 아세트산 및 아세톤; 물, 아세트산 및 포름산; 물, 아세트산 및 프로피온산 등이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 본 발명은 2 개 또는 그 이상의 용매를 포함하는 모든 혼합 용매 시스템을 고려한다.

[0073] "혼화성"은 혼합물이 온도, 압력 및 조성의 특정한 범위에 걸쳐서 단일상을 형성하는 혼합물의 특성을 나타낸다.

[0074] "촉매"는 화학반응의 속도를 변화시키는 물질이다. 촉매는 촉매가 주기적으로 재생되도록 주기적 방식으로 반응에 참여한다. 본 발명은 나트륨을 함유하지 않는 촉매를 생각한다. 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 폴리머 겔의 제조에 사용된 촉매는 초고순도의 폴리머 겔을 형성하도록 폴리머 전구체의 중합반응을 촉진시키는 어떤 화합물이라도 될 수 있다. "휘발성 촉매"는 대기압 또는 그 이하에서 증발하는 경향을 갖는 촉매이다. 휘발성 촉매의 예로는 중탄산암모늄, 탄산암모늄, 수산화암모늄 및 이들의 조합과 같은 암모늄염이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다.

[0075] "용매"는 반응물 (예를 들어, 초고순도의 폴리머 전구체)을 용해 또는 현탁시키고, 반응이 일어날 수 있는 매질을 제공하는 물질을 나타낸다. 본 발명에 기술된 겔, 초고순도의 폴리머 겔, 초고순도의 합성 탄소 물질 및 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 제조에 유용한 용매의 예로는 물, 알콜 및 이들의 혼합물이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 알콜의 예로는 에탄올, t-부탄올, 메탄올 및 이들의 혼합물을 포함한다. 이러한 용매는 합성 초고순도의 폴리머 전구체 물질의 용해, 예를 들어, 페놀성 또는 알데히드 화합물의 용해에 유용하다. 또한, 일부의 공정에서 이러한 용매는 폴리머 하이드로겔의 용매 교환을 위해서 사용되며 (동결 및 건조시키기 전에), 여기에서 전구체, 예를 들어, 레조르시놀 및 포름알데히드의 중합반응으로부터의 용매는 순수한 알콜로 교환된다. 본 출원의 한가지 구체예에서, 크리오겔은 용매 교환을 포함하지 않는 공정에 의해서 제조된다.

[0076] "건조 겔" 또는 "건조 초고순도의 폴리머 겔"은 각각, 그들로부터 용매, 일반적으로 물 또는 물과 하나 또는 그 이상의 수-혼화성 용매의 혼합물이 실질적으로 제거된 겔 또는 초고순도의 폴리머 겔을 나타낸다.

[0077] "열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔"은 열분해되었지만 아직 활성화되지 않은 건조 초고순도의 폴리머 겔을 나타내는 한편, "활성화된 건조 초고순도의 폴리머 겔"은 활성화된, 건조 초고순도의 폴리머 겔을 나타낸다.

[0078] "크리오겔"은 동결건조에 의해서 건조된 건조 겔을 나타낸다. 유사하게, "초고순도의 폴리머 크리오겔"은 동결건조에 의해서 건조된 건조 초고순도의 폴리머 겔이다.

[0079] "RF 크리오겔" 또는 "RF 초고순도의 폴리머 크리오겔"은 각각, 동결건조에 의해서 건조된 건조 겔 또는 건조 초고순도의 폴리머 겔을 나타내며, 여기에서 겔 또는 초고순도의 폴리머 겔은 레조르시놀과 포름알데히드의 촉매

화된 반응으로부터 형성된다.

[0080] "열분해된 크리오겔" 또는 "열분해된 초고순도의 폴리머 크리오겔"은 각각, 열분해되었지만 아직 활성화되지 않은 크리오겔 또는 초고순도의 폴리머 크리오겔이다.

[0081] "활성화된 크리오겔" 또는 "활성화된 초고순도의 폴리머 크리오겔"은 각각, 활성 탄소 물질을 수득하도록 활성화된 크리오겔 또는 초고순도의 폴리머 크리오겔이다.

[0082] "크세로겔"은 예를 들어, 대기압 또는 그 이하에서 공기 건조에 의해서 건조된 건조 겔을 나타낸다. 유사하게, "초고순도의 폴리머 크세로겔"은 공기 건조에 의해서 건조된 건조 초고순도의 폴리머 겔이다.

[0083] "열분해된 크세로겔" 또는 "열분해된 초고순도의 폴리머 크세로겔"은 각각, 열분해되었지만 아직 활성화되지 않은 크세로겔 또는 초고순도의 폴리머 크세로겔이다.

[0084] "활성화된 크세로겔" 또는 "활성화된 초고순도의 폴리머 크세로겔"은 각각, 활성 탄소 물질을 수득하도록 활성화된 크세로겔 또는 초고순도의 폴리머 크세로겔이다.

[0085] "에어로겔"은 초임계 건조에 의해서, 예를 들어, 초임계 이산화탄소를 사용하여 건조된 건조 겔을 나타낸다. 유사하게, "초고순도의 폴리머 에어로겔"은 초임계 건조에 의해서 건조된 건조 초고순도의 폴리머 겔이다.

[0086] "열분해된 에어로겔" 또는 "열분해된 초고순도의 폴리머 에어로겔"은 각각, 열분해되었지만 아직 활성화되지 않은 에어로겔 또는 초고순도의 폴리머 에어로겔이다.

[0087] "활성화된 에어로겔" 또는 "활성화된 초고순도의 폴리머 에어로겔"은 각각, 활성 탄소 물질을 수득하도록 활성화된 에어로겔 또는 초고순도의 폴리머 에어로겔이다.

[0088] "유기 추출 용매"는 폴리머 전구체의 중합반응이 시작된 후에, 일반적으로 폴리머 하이드로겔의 중합반응이 완결된 후에 폴리머 하이드로겔에 첨가된 유기 용매를 나타낸다.

[0089] "급속 다방향성 동결 (rapid multi-directional freezing)"은 모놀리식 폴리머 겔로부터 폴리머 겔 입자를 생성시키고, 상기 폴리머 겔 입자를 적합한 냉매질에 적용함으로써 폴리머 겔을 동결시키는 방법을 나타낸다. 냉매질은 예를 들어, 액체 질소, 질소 가스, 또는 고체 이산화탄소일 수 있다. 급속 다방향성 동결 중에 얼음의 핵형성 (nucleation)은 얼음 결정 성장보다 우세하다. 적합한 냉매질은 예를 들어, 약 -10℃ 이하의 온도를 갖는 가스, 액체, 또는 고체일 수 있다. 대신으로, 적합한 냉매질은 약 -20℃ 이하의 온도를 갖는 가스, 액체 또는 고체일 수 있다. 대신으로, 적합한 냉용매는 약 -30℃ 이하의 온도를 갖는 가스, 액체 또는 고체일 수 있다.

[0090] "활성화시키다" 및 "활성화"는 각각 원료 물질 또는 탄화/열분해된 물질을 산화성 대기 (예를 들어, 이산화탄소, 산소 또는 스팀)에 노출시키는 중에 활성화 체류 온도에서 가열하여 "활성화된" 물질 (예를 들어, 활성화된 크리오겔 또는 활성 탄소 물질)을 생산하는 공정을 나타낸다. 활성화 공정은 일반적으로, 입자의 표면을 벗겨내어 증가된 표면적을 제공한다. 대신으로, 활성화는 화학적 수단에 의해서, 예를 들어, 탄소-함유 전구체 물질을 인산 등의 산 또는 수산화칼륨, 수산화나트륨 등의 염기 또는 염화아연 등의 염과 같은 화학물질로 함침시키고, 이어서 탄화시킴으로써 성취될 수도 있다. "활성화된"은 활성화의 공정을 겪은 물질 또는 재료, 예를 들어, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 나타낸다.

[0091] "탄화시키는", "열분해시키는", "탄화" 및 "열분해"는 각각 공정의 끝에 수집된 표적화된 물질이 주로 탄소가 되도록 탄소-함유 물질을 불활성 대기 (예를 들어, 아르곤 또는 질소) 하에, 또는 진공 하에 열분해 체류 온도에서 가열하는 공정을 나타낸다. "열분해된"은 열분해의 공정을 겪은 물질 또는 재료, 예를 들어, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 나타낸다.

[0092] "체류 온도"는 비교적 일정한 온도를 유지하도록 (즉, 온도를 상승시키지도 저하시키지도 않도록) 보존된, 공정의 일부분 동안의 로 (furnace)의 온도를 나타낸다. 예를 들어, 열분해 체류 온도는 열분해 동안의 로 (furnace)의 비교적 일정한 온도를 나타내고, 활성화 체류 온도는 활성화 동안의 로의 비교적 일정한 온도를 나타낸다.

[0093] "공극 (pore)"은 예를 들어, 활성 탄소, 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 크리오겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 크세로겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 에어로겔, 활성화된 건조 초고순도의 폴리머 겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 크리오겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 크세로겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 에어로겔 등과 같은 탄소 물질에서 표면의 구멍 또는 함몰부, 또는 터널을 나타낸다. 공극은 단일

터널일 수 있거나 구조 전체에 걸친 연속적 네트워크에서 다른 터널에 연결될 수 있다.

[0094] "공극 구조"는 활성 탄소 물질과 같은 탄소 물질 내의 내부 공극의 표면의 레이아웃을 나타낸다. 공극 구조의 성분에는 공극 크기, 공극 용적, 표면적, 밀도, 공극 크기 분포, 및 공극 길이가 포함된다. 일반적으로, 활성 탄소 물질의 공극 구조는 미세공극 (micropores) 및 메소공극 (mesopores)을 포함한다.

[0095] "메소공극"은 일반적으로, 약 2 나노미터 내지 약 50 나노미터의 직경을 갖는 공극을 나타내는 한편, 용어 "미세공극"은 약 2 나노미터 미만의 직경을 갖는 공극을 나타낸다.

[0096] "표면적"은 BET 기술에 의해서 측정가능한 물질의 총 비표면적을 나타낸다. 표면적은 전형적으로 m^2/g의 단위로 표현된다. BET (브루나우어 (Brunauer)/에메트 (Emmett)/텔러 (Teller)) 기술은 불활성 가스, 예를 들어, 질소를 사용하여 물질 상에 흡수된 가스의 양을 측정하며, 통상적으로 물질의 접근할 수 있는 표면적을 결정하기 위한 기술분야에서 사용된다.

[0097] 메소공극 및 미세공극과 관련하여 사용되는 경우에 "연결된"은 이러한 공극의 공간적 정향성 (spatial orientation)을 나타낸다.

[0098] "유효 길이"는 전해질로부터 염 이온을 수용하는데 이용될 수 있도록 충분한 직경을 갖는 공극의 길이의 부분을 나타낸다.

[0099] "조정할 수 있는 (tunable)"은 탄소 물질의 메소공극 및 미세공극 중의 어느 하나 또는 둘 다의 공극 크기, 공극 용적, 표면적, 밀도, 공극 크기 분포, 공극 길이 또는 이들의 조합을 상향 또는 하향 조정하는 능력을 나타낸다. 예를 들어, 조정가능성 (tunability)은 본 발명에 기술된 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질이 전극 물질로 사용되는 경우에 적절하게는, 표적화된 전해질 이온을 수용하도록 공극 크기를 조정하는 것을 나타낼 수 있다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 공극 구조는 조정될 수 있다. 예를 들어, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 제조시에 공극 구조의 조정은 초고순도의 폴리머 겔의 생산 시에 파라메터를 변화시키고; 초고순도의 폴리머 겔의 동결-건조 시에 파라메터를 변화시키고; 초고순도의 폴리머 크리오겔의 탄화 시에 파라메터를 변화시키고; 열분해된 초고순도의 폴리머 크리오겔의 활성화 시에 파라메터를 변화시키는 것을 포함한 (단, 이들로 제한되지 않는다) 다수의 방식으로 성취될 수 있다.

[0100] "전극"은 전기가 그것을 통해서 물체, 물질 또는 구역에 들어가거나 나가는 전도체를 나타낸다.

[0101] "결합제"는 결합제와 탄소를 혼합시킨 후에 생성된 혼합물이 시트, 펠릿, 디스크 또는 그 밖의 다른 형상으로 형성될 수 있도록 탄소의 개개 입자들을 함께 유지시킬 수 있는 물질을 나타낸다. 결합제의 비-배타적 예로는 예를 들어, PTFE (폴리테트라플루오로에틸렌, 테플론 (Teflon)), PFA (퍼플루오로알콕시 초고순도의 폴리머 수지, 또한 테플론으로도 알려짐), FEP (불소화된 에틸렌 프로필렌, 또한 테플론으로도 알려짐), ETFE (폴리에틸렌테트라플루오로에틸렌, 또한 테프젤 (Tefzel) 및 플루온 (Fluon)으로 판매됨), PVF (폴리비닐 플루오라이드, 테들라 (Tedlar)로 판매됨), ECTFE (폴리에틸렌클로로트리플루오로에틸렌, 할라 (Halar)로 판매됨), PVDF (폴리비닐리덴 플루오라이드, 키나르 (Kynar)로 판매됨), PCTFE (폴리클로로트리플루오로에틸렌, 켈-에프 (Kel-F) 및 CTFE로 판매됨), 트리플루오로에탄올 및 이들의 조합과 같은 플루오로초고순도의 폴리머가 포함된다.

[0102] "불활성 (inert)"은 전해질 내에서 활성이 없는 물질, 즉 상당한 양의 이온을 흡수하거나 화학적으로 변화, 예를 들어, 분해되지 않는 물질을 나타낸다.

[0103] "전도성"은 느슨하게 유지된 원자가 전자의 전달을 통해서 전자를 전도시키는 물질의 능력을 나타낸다.

[0104] "전해질"은 물질이 전기적으로 전도성이 되도록 유리 이온을 함유하는 물질을 의미한다. 전해질의 예로는 테트라알킬암모늄 염, 예를 들어, TEA TFB (테트라에틸암모늄 테트라플루오로보레이트), MTEATFB (메틸트리에틸암모늄 테트라플루오로보레이트), EMITFB (1 에틸-3-메틸이미다졸륨 테트라플루오로보레이트), 테트라에틸암모늄, 트리에틸암모늄 기본 염 또는 이들의 혼합물과 같은 용질과 함께 프로필렌 카보네이트, 에틸렌 카보네이트, 부틸렌 카보네이트, 디메틸 카보네이트, 메틸 에틸 카보네이트, 디에틸 카보네이트, 설폴란, 메틸설폴란, 아세토니트릴 또는 이들의 혼합물과 같은 용매를 포함하나, 이들로 제한되지 않는다. 일부의 구체예에서, 전해질은 약한 수성 황산 또는 수성 수산화나트륨과 같은 물-기본 산 또는 물-기본 염기 전해질일 수 있다.

[0105] A. 초고순도의 폴리머 겔 및 초고순도의 합성 탄소 물질

[0106] 한가지 구체예에서는, 초고순도의 합성 탄소 물질이 제공된다. 또 다른 구체예에서는, 초고순도의 합성 무정형

탄소 물질이 제공된다. 상기 언급한 바와 같이, 잔류 레벨의 다양한 불순물 (예를 들어, 염소, 황, 금속 등)을 갖는 탄소 물질을 포함하는 전극은 전극이 침지되는 전해질의 파괴 전압을 감소시키는 것으로 알려져 있다. 따라서, 이들 전극은 더 고순도의 탄소를 포함하는 장치보다 더 낮은 전압에서 작동되어야 하고, 더 짧은 수명을 갖는다. 탄소 전극 내의 불순물은 또한, EDLC 또는 배터리 내의 다른 성분들의 분해의 원인인 것으로 생각된다. 예를 들어, EDLC 내의 2 개의 탄소 전극을 분리시키는 다공성 막은 탄소 전극 내의 염소 또는 다른 불순물에 의해서 분해될 수 있다. 본 발명에 기술된 초고순도의 합성 탄소 물질 및 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 어떤 공지된 탄소 물질보다도 상당히 더 순수하며, 따라서 다수의 전기 저장 및/또는 분배 장치의 작동을 개선시키는 것으로 예상된다.

[0107] 기술된 탄소 물질의 이러한 고순도는 기술된 졸 겔 방법에 기인할 수 있다. 본 출원인은 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체, 예를 들어, 페놀성 화합물 및 알데히드를 휘발성 염기성 촉매의 존재 하에 산성 조건 하에서 공중합시키면 초고순도의 폴리머 겔이 제공된다는 것을 발견하였다. 이것은 잔류 레벨의 금속 및/또는 다른 불순물뿐만 아니라 잔류 레벨의 반응 용매 및/또는 추출 용매를 포함하는 폴리머 겔을 제공하는 폴리머 겔의 제조를 위한 보고된 다른 방법과 대조적이다. 이들 불순한 폴리머 겔로부터, 예를 들어, 열분해 및/또는 활성화에 의한 탄소 물질의 제조는 역시 불순한 탄소 물질을 제공한다.

[0108] 탄소 물질의 제조를 위한 공지된 방법과는 대조적으로, 기술된 초고순도의 폴리머 겔은 초고순도의 합성 탄소 물질 및 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 제조를 가능하게 한다. 예를 들어, 초고순도의 폴리머 겔은 불활성 대기 (예를 들어, 질소) 중에서 가열함으로써 열분해되어 큰 표면적 및 큰 공극 용적을 갖는 기술된 탄소 물질을 수득할 수 있다. 이들 탄소 물질은 불순물을 도입시키는 화학적 활성화 기술을 사용하지 않고 더 활성화되어 기술된 초고순도의 활성 탄소 물질을 수득할 수 있다. 이러한 물질은 다수의 전기 저장 및 분배 적용분야에서 유용성이 있다.

[0109] 기술된 방법에 의해서 제조된 탄소 물질은 초고순도일 뿐만 아니라, 이들은 또한 큰 다공성 및 큰 표면적과 같은 바람직한 물리적 특성을 포함한다. 초고순도와 마찬가지로, 기술된 탄소 물질의 큰 다공성 및 큰 표면적은 본 발명에 기술된 독특한 방법의 결과이다. 기술된 방법은 탄소 물질의 물리적 특성을 조절하기 위해서 다수의 공정 파라메터를 변화시킬 수 있다. 초고순도, 큰 다공성 및 큰 표면적의 조합은 공지의 장치에 비해서 탁월한 특성을 갖는 전기 저장 및 분배 장치의 제조를 가능하게 한다.

[0110] 기술된 초고순도의 폴리머 겔, 초고순도의 합성 탄소 물질 및 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 특성뿐만 아니라 이들의 제조방법은 이하에 더 상세하게 언급된다.

[0111] 1. 초고순도의 폴리머 겔

[0112] 초고순도의 폴리머 겔은 기술된 초고순도의 탄소 물질의 제조에 있어서의 중간체이다. 그 자체로서, 초고순도의 폴리머 겔의 물리적 및 화학적 특성은 초고순도의 탄소 물질의 특성에 기여한다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 예를 들어, 건조 초고순도의 폴리머 겔이며, 일부의 구체예에서 건조 초고순도의 폴리머 겔은 초고순도의 폴리머 크리오겔이다. 다른 구체예에서, 건조 초고순도의 폴리머 겔은 초고순도의 폴리머 크세로겔 또는 초고순도의 폴리머 에어로겔이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 페놀성 화합물 및 알데히드 화합물로부터 제조되며, 예를 들어, 한가지 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 레조르시놀 및 포름알데히드로부터 생산될 수 있다. 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 산성 조건 하에서 생산된다. 일부의 구체예에서, 산성도는 고체 산 화합물의 용해에 의해서, 반응 용매로서 산을 사용함으로써, 또는 용매 중의 하나가 산인 혼합 용매 시스템을 사용함으로써 제공될 수 있다. 초고순도의 폴리머 겔의 제조방법은 이하에 더 상세하게 기술된다.

[0113] 기술된 방법은 염기성 휘발성 촉매의 존재 하에서 폴리머 겔을 형성시키는 중합반응을 포함한다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 하나 또는 그 이상의 염을 포함하며, 예를 들어 일부의 구체예에서 하나 또는 그 이상의 염은 염기성 휘발성 염이다. 염기성 휘발성 염의 예로는 탄산암모늄, 중탄산암모늄, 아세트산암모늄, 수산화암모늄 및 이들의 조합이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 따라서, 일부의 구체예에서 본 발명은 탄산암모늄, 중탄산암모늄, 아세트산 암모늄, 수산화암모늄 및 이들의 조합을 포함하는 초고순도의 폴리머 겔을 제공한다. 추가의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 탄산암모늄을 포함한다. 다른 추가의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 아세트산 암모늄을 포함한다.

[0114] 본 발명에 기술된 관점 또는 변형 중의 어떤 것의 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 본질적으로 t-부탄올을 함유하지 않는다. 예를 들어, 한가지 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 1000 ppm 미만의 t-부탄올,

100 ppm 미만의 t-부탄올, 10 ppm 미만의 t-부탄올, 또는 1 ppm 미만의 t-부탄올을 함유한다.

[0115] 본 발명에 기술된 관점 또는 변형 중의 어떤 것의 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 본질적으로 아세톤을 함유하지 않는다. 예를 들어, 한가지 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 1000 ppm 미만의 아세톤, 100 ppm 미만의 아세톤, 10 ppm 미만의 아세톤, 또는 1 ppm 미만의 아세톤을 함유한다.

[0116] 초고순도의 폴리머 겔은 낮은 레벨의 불순물을 포함한다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 탄소, 수소 및 산소 및 1000 ppm 또는 그 미만의 총 PIXE 불순물 함량을 포함한다. 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔의 총 PIXE 불순물 함량은 1000 ppm 미만, 800 ppm미만, 500 ppm 미만, 300 ppm 미만, 200 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 25 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다.

[0117] 초고순도의 폴리머 겔은 또한, 이것으로부터 제조된 초고순도의 탄소 물질의 낮은 회분 함량에 기여할 수 있는 낮은 회분 함량을 포함할 수 있다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔의 회분 함량은 0.1% 내지 0.001%의 범위이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔의 회분 함량은 0.1% 미만, 0.08% 미만, 0.05% 미만, 0.03% 미만, 0.025% 미만, 0.01% 미만, 0.0075% 미만, 0.005% 미만 또는 0.001% 미만이다.

[0118] 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 500 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.08% 미만의 회분 함량을 갖는다. 추가의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 300 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.05% 미만의 회분 함량을 갖는다. 또 다른 추가의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 200 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.02% 미만의 회분 함량을 갖는다. 또 다른 추가의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 200 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.01% 미만의 회분 함량을 갖는다.

[0119] 상기 언급한 바와 같이, 불순물을 포함하는 폴리머 겔은 일반적으로 역시 불순물을 포함하는 탄소 물질을 제공한다. 따라서, 본 발명의 한가지 관점은 낮은 잔류 불순물을 갖는 초고순도의 폴리머 겔이다. 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 개개의 PIXE 불순물의 양은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 결정될 수 있다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 나트륨의 레벨은 1000 ppm 미만, 500 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만, 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 마그네슘의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만, 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 알루미늄의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만, 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 규소의 레벨은 500 ppm 미만, 300 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 20 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 인의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만, 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 황의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 30 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 염소의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 칼륨의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 칼슘의 레벨은 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 크롬의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 4 ppm 미만, 3 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 철의 레벨은 50 ppm 미만, 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 4 ppm 미만, 3 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 니켈의 레벨은 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 4 ppm 미만, 3 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 구리의 레벨은 140 ppm 미만, 100 ppm 미만, 40 ppm 미만, 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 4 ppm 미만, 3 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 아연의 레벨은 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 내에 존재하는 나트륨, 마그네슘, 알루미늄, 규소, 인, 황, 염소, 칼륨, 칼슘, 크롬, 철, 니켈, 구리 및 아연을 제외한 총 PIXE 불순물의 합계는 1000 ppm 미만, 500 pm 미만, 300 ppm 미만, 200 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 25 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 상기 언급한 바와 같이, 일부의 구체예에서 수소, 산소 및/또는 질소와 같은 다른 불순물은 10% 미만 내지 0.01% 미만까지의 범위의 레벨로 존재할 수 있다.

[0120] 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 양자 유도된 x-선 방출 분석의 검출 한계에 근접하거나 그 이하인

PIXE 불순물을 포함한다. 예를 들어, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 50 ppm 미만의 나트륨, 15 ppm 미만의 마그네슘, 10 ppm 미만의 알루미늄, 8 ppm 미만의 규소, 4 ppm 미만의 인, 3 ppm 미만의 황, 3 ppm 미만의 염소, 2 ppm 미만의 칼륨, 3 ppm 미만의 칼슘, 2 ppm 미만의 스칸듐, 1 ppm 미만의 티탄(titatanium), 1 ppm 미만의 바나듐, 0.5 ppm 미만의 크롬, 0.5 ppm 미만의 망간, 0.5 ppm 미만의 철, 0.25 ppm 미만의 코발트, 0.25 ppm 미만의 니켈, 0.25 ppm 미만의 구리, 0.5 ppm 미만의 아연, 0.5 ppm 미만의 갈륨, 0.5 ppm 미만의 게르마늄, 0.5 ppm 미만의 비소, 0.5 ppm 미만의 셀레늄, 1 ppm 미만의 브롬, 1 ppm 미만의 루비듐, 1.5 ppm 미만의 스트론튬, 2 ppm 미만의 이트륨, 3 ppm 미만의 지르코늄, 2 ppm 미만의 니오븀, 4 ppm 미만의 몰리브덴, 4 ppm 미만의 테크네튬, 7 ppm 미만의 루비듐, 6 ppm 미만의 로듐, 6 ppm 미만의 팔라듐, 9 ppm 미만의 은, 6 ppm 미만의 카드뮴, 6 ppm 미만의 인듐, 5 ppm 미만의 주석, 6 ppm 미만의 안티몬, 6 ppm 미만의 텔루륨, 5 ppm 미만의 요오드, 4 ppm 미만의 세슘, 4 ppm 미만의 바륨, 3 ppm 미만의 란탄, 3 ppm 미만의 세륨, 2 ppm 미만의 프라세오디뮴, 2 ppm 미만의 네오디뮴, 1.5 ppm 미만의 프로메튬, 1 ppm 미만의 사마륨, 1 ppm 미만의 유로퓸, 1 ppm 미만의 가돌리늄, 1 ppm 미만의 테르븀, 1 ppm 미만의 디스프로슘, 1 ppm 미만의 홀뮴, 1 ppm 미만의 에르븀, 1 ppm 미만의 툴륨, 1 ppm 미만의 이테르븀, 1 ppm 미만의 루테튬, 1 ppm 미만의 하프늄, 1 ppm 미만의 탄탈, 1 ppm 미만의 텅스텐, 1.5 ppm 미만의 레늄, 1 ppm 미만의 오스뮴, 1 ppm 미만의 이리듐, 1 ppm 미만의 백금, 1 ppm 미만의 은, 1 ppm 미만의 수은, 1 ppm 미만의 탈륨, 1 ppm 미만의 납, 1.5 ppm 미만의 비스무스, 2 ppm 미만의 토륨 또는 4 ppm 미만의 우라늄을 포함한다.

[0121] 일부의 특정한 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 100 ppm 미만의 나트륨, 300 ppm 미만의 규소, 50 ppm 미만의 황, 100 ppm 미만의 칼슘, 20 ppm 미만의 철, 10 ppm 미만의 니켈, 40 ppm 미만의 구리, 5 ppm 미만의 크롬 및 5 ppm 미만의 아연을 포함한다. 다른 특정한 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 50 ppm 미만의 나트륨, 100 ppm 미만의 규소, 30 ppm 미만의 황, 50 ppm 미만의 칼슘, 10 ppm 미만의 철, 5 ppm 미만의 니켈, 20 ppm 미만의 구리, 2 ppm 미만의 크롬 및 2 ppm 미만의 아연을 포함한다.

[0122] 다른 특정한 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 50 ppm 미만의 나트륨, 50 ppm 미만의 규소, 30 ppm 미만의 황, 10 ppm 미만의 칼슘, 2 ppm 미만의 철, 1 ppm 미만의 니켈, 1 ppm 미만의 구리, 1 ppm 미만의 크롬 및 1 ppm 미만의 아연을 포함한다.

[0123] 일부의 다른 특정한 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 100 ppm 미만의 나트륨, 50 ppm 미만의 마그네슘, 50 ppm 미만의 알루미늄, 10 ppm 미만의 황, 10 ppm 미만의 염소, 10 ppm 미만의 칼륨, 1 ppm 미만의 크롬 및 1 ppm 미만의 망간을 포함한다.

[0124] 기술된 방법은 큰 비표면적을 갖는 초고순도의 폴리머 겔을 제공한다. 이론적으로 속박되지는 않지만, 초고순도의 폴리머 겔의 표면적은 적어도 부분적으로 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 바람직한 표면적 특성에 기여하는 것으로 믿어진다. 표면적은 본 기술분야에서 숙련된 전문가에게 잘 알려진 BET 기술을 사용하여 측정될 수 있다. 본 발명에 기술된 관점 중의 어떤 것의 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 적어도 150 ㎡/g, 적어도 250 ㎡/g, 적어도 400 ㎡/g, 적어도 500 ㎡/g, 적어도 600 ㎡/g 또는 적어도 700 ㎡/g의 BET 비표면적을 갖는다.

[0125] 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 100 ㎡/g 내지 1000 ㎡/g의 BET 비표면적을 갖는다. 대신으로, 초고순도의 폴리머 겔은 150 ㎡/g 내지 700 ㎡/g 사이의 BET 비표면적을 갖는다. 대신으로, 초고순도의 폴리머 겔은 400 ㎡/g 내지 700 ㎡/g 사이의 BET 비표면적을 갖는다.

[0126] 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 0.10 g/cc 내지 0.60 g/cc의 탭밀도 (tap density)를 갖는다. 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 0.15 g/cc 내지 0.25 g/cc의 탭밀도를 갖는다. 본 발명의 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 적어도 150 ㎡/g의 BET 비표면적 및 0.60 g/cc 미만의 탭밀도를 갖는다. 대신으로, 초고순도의 폴리머 겔은 적어도 250 ㎡/g의 BET 비표면적 및 0.4 g/cc 미만의 탭밀도를 갖는다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 적어도 500 ㎡/g의 BET 비표면적 및 0.30 g/cc 미만의 탭밀도를 갖는다.

[0127] 본 발명에 기술된 관점 또는 변형 중의 어떤 것의 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 15% 미만, 13% 미만, 10% 미만, 5% 미만 또는 1% 미만의 잔류 수분 함량을 포함한다.

[0128] 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 총 공극 용적의 적어도 50%, 총 공극 용적의 적어도 75%, 총 공극 용적의 적어도 90% 또는 총 공극 용적의 적어도 99%를 구성하는 100 ㎚ 또는 그 이하의 공극의 분별 공극 용적(fractional pore volume)을 갖는다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 총 공극 용적의 적어도

50%, 총 공극 용적의 적어도 75%, 총 공극 용적의 적어도 90% 또는 총 공극 용적의 적어도 99%를 구성하는 20 ㎚ 또는 그 이하의 공극의 분별 공극 용적을 갖는다.

[0129] 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 총 공극 표면적의 적어도 50%, 총 공극 표면적의 적어도 75%, 총 공극 표면적의 적어도 90% 또는 총 공극 표면적의 적어도 99%를 구성하는 100 ㎚ 또는 그 이하의 공극의 분별 공극 표면적을 갖는다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 총 공극 표면적의 적어도 50%, 총 공극 표면적의 적어도 75%, 총 공극 표면의 적어도 90% 또는 총 공극 표면적의 적어도 99%를 구성하는 20 ㎚ 또는 그 이하의 공극의 분별 공극 표면적을 갖는다.

[0130] 초고순도의 폴리머 겔은 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체를 촉매적 조건 하에 적절한 용매 시스템 중에서 중합시킴으로써 제조될 수 있다. 따라서, 한가지 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 하나 또는 그 이상의 혼화성 용매, 하나 또는 그 이상의 페놀성 화합물, 하나 또는 그 이상의 알데히드 및 하나 또는 그 이상의 촉매를 혼합시킴으로써 제조된다. 예를 들어, 추가의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔은 물, 아세트산, 레조르시놀, 포름알데히드 및 아세트산 암모늄을 혼합시킴으로써 제조된다. 초고순도의 폴리머 겔의 제조방법은 이하에 더 상세하게 거론된다.

[0131] 2. 초고순도의 합성 탄소 물질

[0132] 상기 언급한 바와 같이, 본 발명은 초고순도인 (즉, 500 ppm 미만의 총 PIXE 불순물) 합성 탄소 물질에 관한 것이다. 일부의 구체예에서, 합성 초고순도의 탄소 물질은 무정형이다. 이론적으로 속박되는 것을 바라지는 않지만, 탄소 물질의 순도 및 특성은 그의 제조방법의 함수이며, 제조 파라메터의 변형은 상이한 특성을 갖는 탄소 물질을 수득할 것으로 믿어진다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔, 예를 들어, 열분해된 초고순도의 폴리머 크리오겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 크세로겔 또는 열분해된 초고순도의 폴리머 에어로겔이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 활성화된다 (즉, 초고순도의 합성 활성 탄소 물질). 예를 들어, 추가의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 활성화된 건조 초고순도의 폴리머 겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 크리오겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 크세로겔 또는 활성화된 초고순도의 폴리머 에어로겔이다.

[0133] 초고순도의 합성 탄소 물질 및 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 적은 총 PIXE 불순물을 포함한다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내의 총 PIXE 불순물 함량 (양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정됨)은 1000 ppm 미만이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내의 총 PIXE 불순물 함량은 800 ppm 미만, 500 ppm 미만, 300 ppm 미만, 200 ppm 미만, 150 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 25 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 전술한 것의 추가의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 크리오겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 크세로겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 에어로겔, 활성화된 건조 초고순도의 폴리머 겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 크리오겔, 활성화된 초고순도의 폴리머 크세로겔 또는 활성화된 초고순도의 폴리머 에어로겔이다.

[0134] 낮은 PIXE 불순물 함량 이외에도, 기술된 탄소 물질은 큰 총 탄소 함량을 포함한다. 탄소 이외에도, 초고순도의 합성 탄소 물질 및 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 또한 산소, 수소 및 질소를 포함할 수 있다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 중량/중량 기준으로 적어도 85% 탄소, 적어도 90% 탄소, 적어도 95% 탄소, 적어도 96% 탄소, 적어도 97% 탄소, 적어도 98% 탄소 또는 적어도 99% 탄소를 포함한다. 일부의 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 중량/중량 기준으로 10% 미만의 산소, 5% 미만의 산소, 3.0% 미만의 산소, 2.5% 미만의 산소, 1% 미만의 산소 또는 0.5% 미만의 산소를 포함한다. 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 중량/중량 기준으로 10% 미만의 수소, 5% 미만의 수소, 2.5% 미만의 수소, 1% 미만의 수소, 0.5% 미만의 수소 또는 0.1% 미만의 수소를 포함한다. 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 중량/중량 기준으로 5% 미만의 질소, 2.5% 미만의 질소, 1% 미만의 질소, 0.5% 미만의 질소, 0.25% 미만의 질소 또는 0.01% 미만의 질소를 포함한다. 기술된 탄소 물질의 산소, 수소 및 질소 함량은 연소 분석에 의해서 결정될 수 있다. 연소 분석에 의해서 원소 조성을 결정하는 기술은 본 기술분야에서 잘 알려져 있다.

[0135] 탄소 물질의 총 회분 함량은 일부의 구체예에서, 탄소 물질의 전기화학적 성능에 영향을 미칠 수 있다.

따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 회분 함량은 0.1% 내지 0.001%의 범위이며, 예를 들어, 일부의 특정한 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 회분 함량은 0.1% 미만, 0.08% 미만, 0.05% 미만, 0.03% 미만, 0.025% 미만, 0.01% 미만, 0.0075% 미만, 0.005% 미만 또는 0.001% 미만이다.

[0136] 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 500 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.08% 미만의 회분 함량을 갖는다. 추가의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 300 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.05% 미만의 회분 함량을 갖는다. 다른 추가의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 200 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.05% 미만의 회분 함량을 갖는다. 다른 추가의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 200 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.025% 미만의 회분 함량을 갖는다. 다른 추가의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 100 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.02% 미만의 회분 함량을 갖는다. 다른 추가의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 50 ppm 미만의 총 PIXE 불순물 함량 및 0.01% 미만의 회분 함량을 갖는다.

[0137] 기술된 탄소 물질 내에 존재하는 개개 PIXE 불순물의 양은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 결정될 수 있다. 개개 PIXE 불순물은 기술된 탄소 물질의 전반적인 전기화학적 성능에 다양한 방식으로 기여할 수 있다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 나트륨의 레벨은 1000 ppm 미만, 500 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 마그네슘의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 알루미늄의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 규소의 레벨은 500 ppm 미만, 300 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 20 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 인의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 황의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 30 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 염소의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 칼륨의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 칼슘의 레벨은 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 크롬의 레벨은 1000 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 4 ppm 미만, 3 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 철의 레벨은 50 ppm 미만, 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 4 ppm 미만, 3 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 니켈의 레벨은 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 4 ppm 미만, 3 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 일부의 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 구리의 레벨은 140 ppm 미만, 100 ppm 미만, 40 ppm 미만, 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 4 ppm 미만, 3 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는 아연의 레벨은 20 ppm 미만, 10 ppm 미만, 5 ppm 미만, 2 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질 내에 존재하는, 나트륨, 마그네슘, 알루미늄, 규소, 인, 황, 염소, 칼륨, 칼슘, 크롬, 철, 니켈, 구리 및 니켈을 제외한 모든 PIXE 불순물의 합은 1000 ppm 미만, 500 pm 미만, 300 ppm 미만, 200 ppm 미만, 100 ppm 미만, 50 ppm 미만, 25 ppm 미만, 10 ppm 미만 또는 1 ppm 미만이다. 상기 언급한 바와 같이, 일부의 구체예에서 수소, 산소 및/또는 질소와 같은 다른 불순물은 10% 미만으로부터 0.01% 미만까지의 범위의 레벨로 존재할 수 있다.

[0138] 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방

출 분석의 검출 한계에 가깝거나 그 이하인 PIXE 불순물을 포함한다. 예를 들어, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 50 ppm 미만의 나트륨, 15 ppm 미만의 마그네슘, 10 ppm 미만의 알루미늄, 8 ppm 미만의 규소, 4 ppm 미만의 인, 3 ppm 미만의 황, 3 ppm 미만의 염소, 2 ppm 미만의 칼륨, 3 ppm 미만의 칼슘, 2 ppm 미만의 스칸듐, 1 ppm 미만의 티탄 (titatanium), 1 ppm 미만의 바나듐, 0.5 ppm 미만의 크롬, 0.5 ppm 미만의 망간, 0.5 ppm 미만의 철, 0.25 ppm 미만의 코발트, 0.25 ppm 미만의 니켈, 0.25 ppm 미만의 구리, 0.5 ppm 미만의 아연, 0.5 ppm 미만의 갈륨, 0.5 ppm 미만의 게르마늄, 0.5 ppm 미만의 비소, 0.5 ppm 미만의 셀레늄, 1 ppm 미만의 브롬, 1 ppm 미만의 루비듐, 1.5 ppm 미만의 스트론튬, 2 ppm 미만의 이트륨, 3 ppm 미만의 지르코늄, 2 ppm 미만의 니오븀, 4 ppm 미만의 몰리브덴, 4 ppm 미만의 테크네튬, 7 ppm 미만의 루비듐, 6 ppm 미만의 로듐, 6 ppm 미만의 팔라듐, 9 ppm 미만의 은, 6 ppm 미만의 카드뮴, 6 ppm 미만의 인듐, 5 ppm 미만의 주석, 6 ppm 미만의 안티몬, 6 ppm 미만의 텔루륨, 5 ppm 미만의 요오드, 4 ppm 미만의 세슘, 4 ppm 미만의 바륨, 3 ppm 미만의 란탄, 3 ppm 미만의 세륨, 2 ppm 미만의 프라세오디뮴, 2 ppm 미만의 네오디뮴, 1.5 ppm 미만의 프로메튬, 1 ppm 미만의 사마륨, 1 ppm 미만의 유로퓸, 1 ppm 미만의 가돌리늄, 1 ppm 미만의 테르븀, 1 ppm 미만의 디스프로슘, 1 ppm 미만의 홀뮴, 1 ppm 미만의 에르븀, 1 ppm 미만의 툴륨, 1 ppm 미만의 이테르븀, 1 ppm 미만의 루테튬, 1 ppm 미만의 하프늄, 1 ppm 미만의 탄탈, 1 ppm 미만의 텅스텐, 1.5 ppm 미만의 레늄, 1 ppm 미만의 오스뮴, 1 ppm 미만의 이리듐, 1 ppm 미만의 백금, 1 ppm 미만의 은, 1 ppm 미만의 수은, 1 ppm 미만의 탈륨, 1 ppm 미만의 납, 1.5 ppm 미만의 비스무스, 2 ppm 미만의 토륨 또는 4 ppm 미만의 우라늄을 포함한다.

[0139] 일부의 특정한 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 양자 유도된 x-선 방출에 의해서 측정된 것으로서 100 ppm 미만의 나트륨, 300 ppm 미만의 규소, 50 ppm 미만의 황, 100 ppm 미만의 칼슘, 20 ppm 미만의 철, 10 ppm 미만의 니켈, 140 ppm 미만의 구리, 5 ppm 미만의 크롬 및 5 ppm 미만의 아연을 포함한다. 다른 특정한 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 50 ppm 미만의 나트륨, 30 ppm 미만의 황, 100 ppm 미만의 규소, 50 ppm 미만의 칼슘, 10 ppm 미만의 철, 5 ppm 미만의 니켈, 20 ppm 미만의 구리, 2 ppm 미만의 크롬 및 2 ppm 미만의 아연을 포함한다.

[0140] 다른 특정한 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 50 ppm 미만의 나트륨, 50 ppm 미만의 규소, 30 ppm 미만의 황, 10 ppm 미만의 칼슘, 2 ppm 미만의 철, 1 ppm 미만의 니켈, 1 ppm 미만의 구리, 1 ppm 미만의 크롬 및 1 ppm 미만의 아연을 포함한다.

[0141] 일부의 다른 특정한 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 100 ppm 미만의 나트륨, 50 ppm 미만의 마그네슘, 50 ppm 미만의 알루미늄, 10 ppm 미만의 황, 10 ppm 미만의 염소, 10 ppm 미만의 칼륨, 1 ppm 미만의 크롬 및 1 ppm 미만의 망간을 포함한다.

[0142] 기술된 탄소 물질은 큰 표면적을 갖는다. 이론적으로 속박되는 것을 바라지는 않지만, 이러한 큰 표면적은 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 장치로부터 수득된 큰 에너지 밀도에 기여할 수 있는 것으로 생각된다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 적어도 1000 ㎡/g, 적어도 1500 ㎡/g, 적어도 2000 ㎡/g, 적어도 2400 ㎡/g, 적어도 2500 ㎡/g, 적어도 2750 ㎡/g 또는 적어도 3000 ㎡/g의 BET 비표면적을 갖는다. 예를 들어, 전술한 것의 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 활성화된다.

[0143] 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 0.2 내지 0.6 g/cc, 0.3 내지 0.5 g/cc 또는 0.4 내지 0.5 g/cc의 탭밀도를 갖는다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 적어도 0.5 ㎤/g, 적어도 0.7 ㎤/g, 적어도 0.75 ㎤/g, 적어도 0.9 ㎤/g, 적어도 1.0 ㎤/g, 적어도 1.1 ㎤/g, 적어도 1.2 ㎤/g, 적어도 1.3 ㎤/g, 적어도 1.4 ㎤/g, 적어도 1.5 ㎤/g 또는 적어도 1.6 ㎤/g의 총 공극 용적을 갖는다.

[0144] 기술된 탄소 물질의 공극 크기 분포는 합성 무정형 탄소 물질의 전기화학적 성능에 영향을 미칠 수 있는 한가지 파라메터이다. 예를 들어, 특정의 전해질 이온을 수용하는 크기의 공극을 포함하는 탄소 물질이 EDLC 장치에서 특히 유용할 수 있다. 또한, 짧은 유효 길이 (즉, TEM에 의해서 측정된 것으로서 10 ㎚ 미만, 5 ㎚ 미만 또는 3 ㎚ 미만)를 갖는 메소공극을 포함하는 탄소 물질이 이온 수송을 증진시키고, 파워를 최대화시키는데 유용할 수 있다. 따라서, 한가지 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 총 공극 용적의 적어도 50%, 총 공극 용적의 적어도 75%, 총 공극 용적의 적어도 90% 또는 총 공극 용적의 적어도 99%를 구성하는 100 ㎚ 또는 그 이하의 공극의 분별 공극 용적을 갖는다. 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 총 공극 용적의 적어도 50%, 총 공극 용적의 적어도 75%,

총 공극 용적의 적어도 90% 또는 총 공극 용적의 적어도 99%를 구성하는 20 ㎚ 또는 그 이하의 공극의 분별 공극 용적을 갖는다.

[0145] 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 총 공극 표면적의 적어도 50%, 총 공극 표면적의 적어도 75%, 총 공극 표면의 적어도 90% 또는 총 공극 표면적의 적어도 99%를 구성하는 100 ㎚ 또는 그 이하의 공극의 분별 공극 표면적을 갖는다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 총 공극 표면적의 적어도 50%, 총 공극 표면적의 적어도 75%, 총 공극 표면의 적어도 90% 또는 총 공극 표면적의 적어도 99%를 구성하는 20 ㎚ 또는 그 이하의 공극의 분별 공극 표면적을 갖는다.

[0146] 본 발명의 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 본 발명에 기술된 방법에 의해서 제조되며, 예를 들어, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 본 발명에 기술된 바와 같이 건조 초고순도의 폴리머 겔을 열분해시키는 것을 포함하는 방법에 의해서 제조된다. 일부의 구체예에서, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔은 더 활성화되어 초고순도의 합성 활성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 수득한다. 기술된 탄소 물질의 제조방법은 이하에 더 상세하게 기술된다.

[0147] B. 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 제조

[0148] 한가지 구체예에는, 신규의 초고순도의 폴리머 겔을 제조하는 방법이 제공된다. 또 다른 구체예에서는, 초고순도의 합성 탄소 물질을 제조하는 방법이 제공되며, 예를 들어, 일부의 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질은 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질이다. 이러한 초고순도의 폴리머 겔 및 초고순도의 합성 탄소 물질은 이전에 보고된 방법에 의해서 수득될 수 없다. 일부의 추가의 구체예에서는, 초고순도의 합성 활성 탄소 물질을 제조하는 방법이 제공되며, 예를 들어, 초고순도의 합성 무정형 활성 탄소 물질이 제공된다. 기술된 방법의 다양한 구체예의 가변적 파라메터의 상세한 내용은 이하에 기술된다.

[0149] 1. 초고순도의 폴리머 겔의 제조

[0150] 초고순도의 폴리머 겔은 졸 겔 방법에 의해서 제조될 수 있다. 예를 들어, 초고순도의 폴리머 겔은 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체를 적절한 용매 중에서 공중합시킴으로써 제조될 수 있다. 한가지 구체예에서는, 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체를 산성 조건 하에서 공중합시킨다. 일부의 구체예에서, 제1 폴리머 전구체는 페놀성 화합물이고, 제2 폴리머 전구체는 알데히드 화합물이다. 한가지 구체예에서, 상기 방법의 페놀성 화합물은 레조르시놀, 카테콜, 하이드로퀴논, 플로로글루시놀, 페놀 또는 이들의 조합이고; 알데히드 화합물은 포름알데히드, 아세트알데히드, 프로피온알데히드, 부티르알데히드, 벤즈알데히드, 신남알데히드 또는 이들의 조합이다. 추가의 구체예에서, 페놀성 화합물은 레조르시놀, 페놀 또는 이들의 조합이고, 알데히드 화합물은 포름알데히드이다. 또한 추가의 구체예에서, 페놀성 화합물은 레조르시놀이고, 알데히드 화합물은 포름알데히드이다.

[0151] 졸 겔 중합방법은 일반적으로 촉매적 조건 하에서 수행된다. 따라서, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔을 제조하는 것은 촉매의 존재 하에서 하나 또는 그 이상의 폴리머 전구체를 공중합시키는 것을 포함한다. 일부의 구체예에서, 촉매는 염기성 휘발성 촉매를 포함한다. 예를 들어, 한가지 구체예에서 염기성 휘발성 촉매는 탄산암모늄, 중탄산암모늄, 아세트산 암모늄, 수산화암모늄 또는 이들의 조합을 포함한다. 추가의 구체예에서, 염기성 휘발성 촉매는 탄산암모늄이다. 또 다른 추가의 구체예에서, 염기성 휘발성 촉매는 아세트산 암모늄이다.

[0152] 페놀성 화합물에 대한 촉매의 몰비는 초고순도의 폴리머 겔의 최종 특성뿐만 아니라 이들로부터 제조된 초고순도의 합성 탄소 물질, 예를 들어, 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 최종 특성에 대해서 영향을 미칠 수 있다. 따라서, 일부의 구체예에서 이러한 촉매는 10:1 내지 2000:1의 페놀성 화합물:촉매의 몰비의 범위로 사용된다. 일부의 구체예에서, 이러한 촉매는 20:1 내지 200:1의 페놀성 화합물:촉매의 몰비의 범위로 사용될 수 있다. 예를 들어, 다른 구체예에서 이러한 촉매는 25:1 내지 100:1의 페놀성 화합물:촉매의 몰비의 범위로 사용될 수 있다.

[0153] 반응 용매는 초고순도의 폴리머 겔 및 합성 무정형 탄소 물질의 바람직한 특성을 수득하도록 변화될 수 있는 또 다른 공정 파라메터이다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔의 제조를 위한 용매는 물 및 혼화성 공용매의 혼합 용매 시스템이다. 예를 들어, 특정의 구체예에서 상기 용매는 수(water) 혼화성 산을 포함한다. 수 혼화성 산의 예로는 프로피온산, 아세트산 및 포름산이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 추가의 구체예에서, 상기 용매는 99:1, 90:10, 75:25, 50:50, 25:75, 10:90 또는 1:90의 물에 대한 수-혼화성 산의 비

율로 이루어진다. 다른 구체예에서, 산도는 고체 산을 반응 용매에 첨가함으로써 제공된다.

[0154] 전술한 것의 일부의 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔의 제조를 위한 용매는 산성이다. 예를 들어, 특정의 구체예에서 상기 용매는 아세트산을 포함한다. 예를 들어, 한가지 구체예에서 용매는 100% 아세트산이다. 다른 구체예에서는, 혼합 용매 시스템이 제공되며, 여기에서 용매 중의 하나는 산성이다. 예를 들어, 상기 방법의 한가지 구체예에서 용매는 아세트산 및 물을 포함하는 이상 용매이다. 추가의 구체예에서, 상기 용매는 99:1, 90:10, 75:25, 50:50, 25:75, 10:90 또는 1:90의 물에 대한 아세트산의 비로 이루어진다. 다른 구체예에서, 산도는 반응 용매에 고체 산을 첨가함으로써 제공된다.

[0155] 기술된 방법의 일부의 구체예는 동결건조 전에 용매 교환단계 (예를 들어, 물을 t-부탄올로 교환)를 포함하지 않는다. 예를 들어, 본 발명에 기술된 방법 중의 어떤 것의 한가지 구체예에서는 동결시키기 전에 초고순도의 폴리머 겔 또는 초고순도의 폴리머 겔 입자를 물로 세정한다. 한가지 구체예에서, 동결시키기 전의 상기 초고순도의 폴리머 겔 입자의 평균 직경은 25 ㎜ 미만, 예를 들어, 0.001 ㎜ 내지 25 ㎜이며; 대신으로, 동결시키기 전의 상기 초고순도의 폴리머 겔 입자의 평균 직경은 0.01 ㎜ 내지 15 ㎜, 예를 들어, 1.0 ㎜ 내지 15 ㎜이다. 일부의 예에서, 초고순도의 폴리머 겔 입자는 1 ㎜ 내지 10 ㎜이다. 추가의 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 입자는 약 -10℃ 이하, 예를 들어, 약 -20℃ 이하, 또는 대신으로 약 -30℃ 이하의 온도를 갖는 매질 중에 침지시킴으로써 동결된다. 예를 들어, 상기 매질은 액체 질소 또는 드라이 아이스 중의 에탄올 (또는 다른 유기 용매) 또는 다른 수단에 의해서 냉각된 에탄올일 수 있다. 일부의 구체예에서, 진공 하에서의 건조는 동결된 입자를 약 1400 mTorr 이하의 진공 압력에 적용시키는 것으로 이루어진다.

[0156] 초고순도의 폴리머 겔 입자를 급속 동결시키는 다른 방법이 또한 고안된다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 초고순도의 폴리머 겔 입자를 적합한 냉 고체, 예를 들어, 드라이 아이스 (고체 이산화탄소)와 공-혼합 (co-mingling)시키거나 물리적으로 혼합시킴으로써 급속 동결된다. 또 다른 방법은 그의 표면 상에 산포된 초고순도의 폴리머 겔 입자로부터 열을 급속하게 제거하도록 -60℃의 금속 플레이트를 갖는 블라스트 냉동기 (blast freezer)를 사용하는 것이다. 초고순도의 폴리머 겔 입자 내의 물을 급속히 냉각시키는 제3의 방법은 매우 빠르게 고진공 상태를 만듬으로써 입자를 순간 동결시키는 것이다 (진공의 정도는 평형 증기압에 상응하는 온도가 동결을 허용하도록 하는 것이다). 급속 동결을 위한 또 다른 방법은 초고순도의 폴리머 겔을 적합하게 냉각된 가스와 혼합시키는 것을 포함한다. 일부의 구체예에서, 냉 가스는 약 -10℃ 이하의 온도를 가질 수 있다. 일부의 구체예에서, 냉 가스는 약 -20 ℃ 이하의 온도를 가질 수 있다. 일부의 구체예에서, 냉 가스는 약 -30℃ 이하의 온도를 가질 수 있다. 또 다른 구체예에서, 상기 가스는 약 -196℃의 온도를 가질 수 있다. 예를 들어, 일부의 구체예에서 상기 가스는 질소이다.

[0157] 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 입자는 -20℃ 또는 그보다 낮은 온도에서 동결건조기 선반 (shelf) 상에서 동결된다. 예를 들어, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔 입자는 -30℃ 또는 그보다 낮은 온도에서 동결건조기 선반 상에서 동결된다. 일부의 다른 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔 모놀리스 (monolith)는 동결 해동 사이클 (실온으로부터 -20℃ 또는 그보다 낮은 온도로, 다시 실온으로), 입자를 생성시키기 위한 동결-해동된 겔의 물리적 파괴, 및 그 다음에는 추가의 동결건조 공정에 적용된다. 예를 들어, 일부의 구체예에서 초고순도의 폴리머 겔 모놀리스는 동결 해동 사이클 (실온으로부터 -30℃ 또는 그보다 낮은 온도로, 다시 실온으로), 입자를 생성시키기 위한 동결-해동된 겔의 물리적 파괴, 및 그 다음에는 추가의 동결건조 공정에 적용된다.

[0158] 본 발명에 기술된 방법의 일부의 구체예에서, 촉매에 대한 페놀성 전구체의 몰비는 약 10:1 내지 약 2000:1이거나, 촉매에 대한 페놀성 전구체의 몰비는 약 20:1 내지 약 200:1이다. 추가의 구체예에서, 촉매에 대한 페놀성 전구체의 몰비는 약 25:1 내지 약 100:1이다. 추가의 구체예에서, 촉매에 대한 페놀성 전구체의 몰비는 약 25:1 내지 약 50:1이다. 추가의 구체예에서, 촉매에 대한 페놀성 전구체의 몰비는 약 100:1 내지 약 50:1이다.

[0159] 폴리머 전구체 중의 하나가 레조르시놀이고, 또 다른 폴리머 전구체가 포름알데히드인 특정한 구체예에서, 레조르시놀 대 촉매 비는 생성된 초고순도의 폴리머 겔 및 합성 무정형 탄소 물질의 바람직한 특성을 수득하도록 변화될 수 있다. 본 발명에 기술된 방법의 일부의 구체예에서, 촉매에 대한 레조르시놀의 몰비는 약 10:1 내지 약 2000:1이거나, 촉매에 대한 레조르시놀의 몰비는 약 20:1 내지 약 200:1이다. 추가의 구체예에서, 촉매에 대한 레조르시놀의 몰비는 약 25:1 내지 약 100:1이다. 추가의 구체예에서, 촉매에 대한 레조르시놀의 몰비는 약 25:1 내지 약 50:1이다. 추가의 구체예에서, 촉매에 대한 레조르시놀의 몰비는 약 100:1 내지 약 50:1이다.

[0160] 초고순도의 폴리머 겔을 형성하기 위한 중합반응은 본 기술분야에서 설명된 다양한 수단에 의해서 수행될 수 있다. 예를 들어, 중합반응은 적합한 폴리머 전구체 물질을 일정한 기간 동안 적합한 촉매의 존재 하에서 배양함

으로써 성취될 수 있다. 중합반응을 위한 시간은 온도에 따라 몇 분 내지 몇 시간부터 며칠까지 범위의 기간일 수 있다 (온도가 높을수록 반응 속도는 더 빠르며, 따라서 더 짧은 시간이 필요하다). 중합 온도는 실온 내지 출발 용액의 비점에 근접하는 (단, 그보다는 낮은) 온도의 범위일 수 있다. 예를 들어, 상기 온도는 약 20℃ 내지 약 90℃의 범위일 수 있다. 하나의 폴리머 전구체가 레조르시놀이고, 하나의 폴리머 전구체는 포름알데히드인 특정한 구체예에서, 상기 온도는 약 20℃ 내지 약 100℃, 전형적으로는 약 25℃ 내지 약 90℃의 범위일 수 있다. 일부의 구체예에서, 중합반응은 적합한 합성 폴리머 전구체 물질을 촉매의 존재 하에 약 90℃에서 적어도 24 시간 동안 배양함으로써 성취될 수 있다. 일반적으로, 중합반응은 약 90℃에서 약 6 내지 약 24 시간 동안, 예를 들어, 약 90℃에서 약 18 내지 약 24 시간 동안에 성취될 수 있다.

[0161] 본 발명에 기술된 폴리머 전구체 물질에는 (a) 알콜, 페놀성 화합물, 및 그 밖의 다른 모노- 또는 폴리하이드록시 화합물, 및 (b) 알데히드, 케톤 및 이들의 조합이 포함된다. 이와 관련한 대표적인 알콜에는 직쇄 및 측쇄, 포화 및 불포화 알콜이 포함된다. 적합한 페놀성 화합물에는 디하이드록시 또는 트리하이드록시 벤젠과 같은 폴리하이드록시 벤젠이 포함된다. 대표적인 폴리하이드록시 벤젠에는 레조르시놀 (즉, 1,3-디하이드록시 벤젠), 카테콜, 하이드로퀴논, 및 플로로글루시놀이 포함된다. 2 개 또는 그 이상의 폴리하이드록시 벤젠의 혼합물이 또한 사용될 수도 있다. 페놀 (모노하이드록시 벤젠)이 또한 사용될 수도 있다. 대표적인 폴리하이드록시 화합물에는 글루코즈와 같은 당류, 및 만니톨과 같은 다른 폴리올이 포함된다. 이와 관련한 알데히드에는 다음의 화합물이 포함된다: 메탄알 (포름알데히드), 에탄알 (아세트알데히드), 프로판알 (프로피온알데히드), 부탄알 (부티르알데히드) 등과 같은 직쇄 포화 알데히드; 에테논 및 그 밖의 다른 케텐, 2-프로펜알 (아크릴알데히드), 2-부텐알 (크로톤알데히드), 3-부텐알 등과 같은 직쇄 불포화 알데히드; 측쇄 포화 및 불포화 알데히드; 및 벤즈알데히드, 살리실알데히드, 하이드로신남알데히드 등과 같은 방향족-타입 알데히드. 적합한 케톤에는 다음의 화합물이 포함된다: 프로파논 및 2-부타논 등과 같은 직쇄 포화 케톤; 프로페논, 2-부테논 및 3-부테논 (메틸 비닐 케톤) 등과 같은 직쇄 불포화 케톤; 측쇄 포화 및 불포화 케톤; 및 메틸 벤질 케톤 (페닐아세톤), 에틸 벤질 케톤 등과 같은 방향족-타입 케톤. 초고순도의 폴리머 전구체 물질은 또한, 상술한 전구체의 조합물일 수도 있다.

[0162] 일부의 구체예에서, 하나의 폴리머 전구체는 알콜-함유 종이고, 또 다른 폴리머 전구체는 카보닐-함유 종이다. 카보닐-함유 종 (예를 들어, 알데히드, 케톤 또는 이들의 조합물)과 반응한 알콜-함유 종 (예를 들어, 알콜, 페놀성 화합물 및 모노- 또는 폴리-하이드록시 화합물 또는 이들의 조합물)의 상대적 양은 실질적으로 변화할 수 있다. 일부의 구체예에서, 알데히드 종에 대한 알콜-함유 종의 비는 알콜-함유 종 내의 반응성 알콜 그룹의 총 몰수가 알데히드 종 내의 반응성 카보닐 그룹의 총 몰수와 대략 동일하도록 선택된다. 유사하게, 케톤 종에 대한 알콜-함유 종의 비는 알콜-함유 종 내의 반응성 알콜 그룹의 총 몰수가 케톤 종 내의 반응성 카보닐 그룹의 총 몰수와 대략 동일하도록 선택될 수 있다. 동일한 일반적 1:1 몰비는 카보닐-함유 종이 알데히드 종 및 케톤 종의 조합물로 이루어지는 경우에 잘 들어맞는다.

[0163] 초고순도의 폴리머 겔 형성 전의 수용액 내의 총 고체 함량은 변화될 수 있다. 물에 대한 레조르시놀의 중량비는 약 0.05 대 1 내지 약 0.70 대 1이다. 대신으로, 물에 대한 레조르시놀의 비는 약 0.15 대 1 내지 약 0.6 대 1이다. 대신으로, 물에 대한 레조르시놀의 비는 약 0.15 대 1 내지 약 0.35 대 1이다. 대신으로, 물에 대한 레조르시놀의 비는 약 0.25 대 1 내지 약 0.5 대 1이다. 대신으로, 물에 대한 레조르시놀의 비는 약 0.3 대 1 내지 약 0.4 대 1이다.

[0164] 본 발명에 기술된 초고순도의 폴리머 겔의 제조에 유용한 용매의 예로는 물 또는, 임의로 물을 추가로 함유하는, 예를 들어, 에탄올, t-부탄올, 메탄올 또는 이들의 혼합물과 같은 알콜이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 이러한 용매는 폴리머 전구체 물질의 용해, 예를 들어, 페놀성 화합물의 용해에 유용하다. 또한, 일부의 방법에서 이러한 용매는 (동결 및 건조 전에) 초고순도의 폴리머 겔 내에서 용매 교환을 위해 사용되며, 여기에서 전구체, 예를 들어, 레조르시놀 및 포름알데히드의 초고순도의 중합반응으로부터의 용매는 순수한 알콜로 교환된다. 본 출원의 한가지 구체예에서, 초고순도의 폴리머 겔은 용매 교환을 포함하지 않는 방법에 의해서 제조된다.

[0165] 초고순도의 폴리머 겔의 제조에 적합한 촉매는 전구체 물질의 모놀리식 초고순도의 폴리머로의 중합반응을 촉진시키는 휘발성 염기성 촉매를 포함한다. 상기 촉매는 또한 상술한 촉매의 다양한 조합을 포함할 수도 있다. 페놀성 화합물을 포함하는 구체예에서, 이러한 촉매는 20:1 내지 200:1의 페놀성 화합물:촉매의 몰비의 범위로 사용될 수 있다. 예를 들어, 일부의 특정한 구체예에서 이러한 촉매는 25:1 내지 100:1의 페놀성 화합물:촉매의 몰비의 범위로 사용될 수 있다.

[0166] 2. 초고순도의 폴리머 겔 입자의 생성

[0167] 모놀리식 초고순도의 폴리머 겔은 본 기술분야에서 공지된 다양한 기술에 따라 물리적으로 파괴되어 더 작은 입자를 생성시킬 수 있다. 생성된 초고순도의 폴리머 겔 입자는 일반적으로, 약 30 ㎜ 미만의 평균 직경, 예를 들어, 약 1 ㎜ 내지 약 25 ㎜ 또는 약 1 ㎜ 내지 약 5 ㎜ 또는 약 0.5 ㎜ 내지 약 10 ㎜의 크기 범위를 갖는다. 대신으로, 초고순도의 폴리머 겔 입자의 크기는 약 1 ㎜ 이하의 범위, 예를 들어, 약 10 내지 1000 미크론의 크기 범위일 수 있다. 모놀리식 물질로부터 초고순도의 폴리머 겔 입자를 생성시키는 기술에는 체질(sieving), 분쇄(grinding), 밀링(milling), 또는 이들의 조합과 같은 수동 또는 기계적 파괴방법이 포함된다. 이러한 방법은 본 기술분야에서 숙련된 전문가에게 잘 알려져 있다. 이와 관련하여 롤러(roller), 비드(bead) 및 볼밀(ball mills) 및 회전 파쇄기(rotary crushers) 및 본 기술분야에서 공지된 유사한 입자 생성장치와 같은 다양한 타입의 밀이 사용될 수 있다.

[0168] 특정한 구체예에서는 롤러 밀이 사용된다. 롤러 밀은 겔 입자의 크기를 점진적으로 감소시키는 3 개의 단계를 가질 것이다. 초고순도의 폴리머 겔은 일반적으로 '습윤' 물질에 대해서 매우 부서지기 쉬우며, 촉감이 축축하지 않다. 따라서, 이들은 이 접근방법을 사용하여 쉽게 밀링되지만, 각각의 단계의 폭은 반드시 표적화된 최종 메쉬를 달성하도록 적절하게 설정되어야 한다. 이러한 조정은 겔 레시페 (recipe) 및 메쉬 크기의 각각의 조합에 대해서 이루어지고 확인된다. 각각의 겔은 공지된 메쉬 크기의 체를 통해서 통과시킴으로써 밀링된다. 체질한 입자는 밀봉된 용기 내에서 일시적으로 저장될 수 있다.

[0169] 한가지 구체예에서는 회전 파쇄기가 사용된다. 회전 파쇄기는 약 1/8 인치의 스크린 메쉬 크기를 갖는다. 또 다른 구체예에서, 회전 파쇄기는 약 3/8 인치의 스크린 메쉬 크기를 갖는다. 또 다른 구체예에서, 회전 파쇄기는 약 5/8 인치의 스크린 메쉬 크기를 갖는다. 또 다른 구체예에서, 회전 파쇄기는 약 3/8 인치의 스크린 메쉬 크기를 갖는다.

[0170] 밀링은 본 기술분야에서 숙련된 전문가에게 잘 알려진 방법에 따라 실온에서 수행될 수 있다. 대신으로, 밀링은 극저온에서, 예를 들어, 초고순도의 폴리머 겔을 고체 이산화탄소 (드라이 아이스) 입자와 공-밀링함으로써 수행될 수 있다. 이 구체예에서, (a) 모놀리식 초고순도의 폴리머 겔로부터 입자를 생성시키고, (b) 초고순도의 폴리머 겔을 급속 다방향성 동결시키는 2 단계는 단일 공정에서 수행된다.

[0171] 3. 초고순도의 폴리머 겔의 급속 동결

[0172] 초고순도의 폴리머 겔 입자를 모놀리식 초고순도의 폴리머 겔로부터 형성시킨 후에, 초고순도의 폴리머 겔 입자의 동결은 상기에서 더욱 상세히 기술된 바와 같이 다방향성 방식으로 급속하게 수행된다. 예를 들어, 동결건조기에서 선반 동결시킴으로써 느리게 단일방향성 방식으로 동결시키는 것은 본 발명의 실시예에서 입증되는 바와 같이 매우 작은 표면적을 갖는 건조된 물질을 제공한다. 유사하게, 순간 동결 (즉, 극도의 진공상태가 되게 하여 초고순도의 폴리머 겔 입자를 급속 냉각시킴으로써 달성되는 동결)은 또한, 작은 표면적을 갖는 건조된 물질을 제공한다. 본 발명에 기술된 바와 같이, 다방향성 방식의 급속 동결은 물질의 온도를 적어도 약 -10℃ 또는 그 이하, 예를 들어, -20℃ 또는 그 이하, 또는 예를 들어, 적어도 약 -30℃ 또는 그 이하로 급속하게 저하시킴으로써 성취될 수 있다. 초고순도의 폴리머 겔 입자의 급속 동결은 얼음 결정의 광범하게 산포된 핵형성에 기인하여 입자 내에 미세한 얼음 결정 구조를 생성시키지만, 얼음 결정 성장을 위한 시간은 거의 남기지 않는다. 이것은 얼음 결정과 얼음 매트릭스로부터 반드시 배제되는 탄화수소 매트릭스 사이에서 큰 비표면적을 제공한다.

[0173] 결정 성장에 비해 핵형성을 촉진시키는 극도의 급속 동결의 개념은 혼합 용매 시스템에 적용될 수 있다. 한가지 구체예에서, 혼합 용매 시스템이 급속히 냉각됨에 따라서 우세한 용매 성분은 그의 평형 융점에서, 공용매(들)의 증가된 농도 및 부수적인 추가의 빙점 강하와 함께 결정화를 겪을 수 있다. 온도가 더 저하됨에 따라서, 공융(eutectic) 조성물에 도달할 때까지 우세한 용매의 증가된 결정화 및 공용매(들)의 농축이 일어나고, 이 시점에서 공융 조성물은 완전한 동결이 달성될 때까지 추가의 성분 농축이나 생성물 냉각이 없이 액체로부터 고체로의 이행을 겪는다. 물 및 아세트산 (이들은 순수한 물질로서 각각 0℃ 및 17℃의 빙점을 나타낸다)의 특정한 경우에, 공융 조성물은 약 59% 아세트산 및 41% 물로 이루어지며, 약 -27℃에서 동결한다. 따라서, 한가지 구체예에서 혼합 용매 시스템은 공융 조성물이고, 예를 들어, 한가지 구체예에서 혼합 용매 시스템은 59% 아세트산 및 41% 물을 포함한다.

[0174] 4. 초고순도의 폴리머 겔의 건조

[0175] 한가지 구체예에서, 미세한 얼음 매트릭스를 함유하는 동결된 초고순도의 폴리머 겔 입자는 물질의 붕괴를 피하

고, 건조된 생성물에서 미세한 표면 구조 및 다공성을 유지시키도록 디자인된 조건 하에서 동결건조된다. 동결건조의 상세한 내용은 여기에서 제공된다. 일반적으로, 건조는 생성물의 온도를 다른 경우라면 생성물 공극의 붕괴를 야기할 수 있는 온도 이하로 유지시키는 조건 하에서 이루어짐으로써 건조된 물질이 매우 큰 표면적을 유지할 수 있도록 한다.

[0176] 건조된 생성물에서 매우 큰 표면적을 갖는 것의 한가지 이점은 캐패시터, 에너지 저장 장치 및 그 밖의 다른 에너지-관련된 적용예의 제작을 위한 초고순도의 폴리머 겔의 개선된 유용성이다. 상이한 초고순도의 폴리머 겔 적용분야는 상이한 레벨의 미세공극 용적, 메소공극 용적, 표면적 및 공극 크기와 같은 공극 크기 분포에 있어서의 변화를 필요로 한다. 초고순도의 폴리머 겔의 다양한 공정 파라메터를 조정함으로써 큰 공극 용적은 원하는 적용분야에 따른 다수의 상이한 공극 크기에서 도달할 수 있다.

[0177] 최종 탄소 물질의 구조는 초고순도의 건조 폴리머 겔의 구조에 반영되며, 이것은 다시 초고순도의 폴리머 겔 특성에 의해서 입증된다. 이들 특징은 본 발명에 기술된 바와 같은 졸-겔 가공방법을 사용하여 초고순도의 폴리머 겔에서 생성될 수 있지만, 용매의 제거에 주의를 기울이지 않으면 구조는 보존되지 않는다. 초고순도의 폴리머 겔의 원래의 구조를 유지하고, 또한 동결공정의 조절을 기초로 하여 얼음 결정 형성에 의해 그의 구조를 변형시키는 것 둘 다가 중요하다. 일부의 구체예에서, 건조시키기 전에 초고순도의 폴리머 겔 내의 수성 함량은 약 50% 내지 약 99%의 범위이다. 특정의 구체예에서, 건조시키면 초고순도의 폴리머 크리오겔의 수성 함량은 약 10% 미만, 대신으로 약 5% 미만 또는 약 2.5% 미만이다.

[0178] 초고순도의 폴리머 하이드로겔에 대한 시차주사열량분석 (DSC) 데이터는 ~ -18℃에서 큰 발열현상을 나타낸다. 이들 데이터는 ~ 4 ㎚ 반경의 공극 내부에서의 물의 동결과 일치한다. 이들 발견은, 전류 적용을 목적으로 하는 매우 급속한 동결이 급속 동결률을 구성한다는 것 뿐만 아니라 감소의 정도는 물질이 적어도 -18℃ 이하가 되도록 하는 것임을 또한 시사한다.

[0179] DSC 데이터는 또한, 가온하면 약 -13℃의 개시점 및 약 -10℃의 중간점을 갖는 광범하고 복잡한 흡열거동이 있음을 나타낸다. 여기에서는 약 -2℃에서 열전이 및 약 +1℃에서 최종 용융이 있는 것 같다. 다양한 현상은 미세구조의 다양한 타입의 용융에 상응할 수 있다. 상기 데이터는 동결된 상태에서 미세 생성물 구조의 상실을 피하기 위해서 초기 (예를 들어, 일차) 건조 중의 생성물 온도는 -13℃ 이하로 유지되어야 함을 시사하다. 이것은 예를 들어, 건조 단계에서 성취되는데, 여기에서는 일차 건조 중에 열 전이가 전도가 아닌 대류에 의해서 지배되며, 따라서 승화 중의 생성물 온도는 챔버 압력과 평형에서의 얼음의 온도에 상응할 것이다.

[0180] 약 2250 미크론의 동결건조기 챔버 압력은 건조 생성물에서 약 -10℃의 일차 건조 온도를 제공한다. 약 2250 미크론 챔버 압력 또는 그보다 낮은 경우에서의 건조는 약 -10℃ 이하인 일차 건조 중의 생성물 온도를 제공한다. 추가의 예로서, 약 1500 미크론의 챔버 압력은 약 -15℃의 건조 생성물에서의 일차 건조 온도를 제공한다. 약 1500 미크론 챔버 압력 또는 그 이하에서의 건조는 일차 건조 중에 약 -15℃ 이하의 생성물 온도를 제공한다. 또 다른 추가의 예로서, 약 750 미크론의 챔버 압력은 건조 생성물에서 약 -20℃의 일차 건조 온도를 제공한다. 750 미크론 챔버 압력 또는 그 이하에서의 건조는 일차 건조 중에 약 -20℃ 이하인 생성물 온도를 제공한다. 또한 추가의 예로서, 약 300 미크론의 챔버 압력은 건조 생성물에서 약 -30℃의 일차 건조 온도를 제공한다. 300 미크론 챔버 압력 또는 그 이하에서의 건조는 일차 건조 중에 약 -30℃ 이하인 생성물 온도를 제공한다.

[0181] 5. 초고순도의 폴리머 겔의 열분해 및 활성화

[0182] 또 다른 구체예에서는, 본 발명에 기술된 건조 폴리머 겔의 열분해 및 활성화를 포함하는 초고순도의 합성 활성 탄소 물질, 예를 들어, 초고순도의 합성 활성 무정형 탄소 물질의 제조방법이 제공된다. 본 발명의 일부의 구체예에서는, 적어도 1000 ㎡/g, 적어도 1500 ㎡/g, 적어도 2000 ㎡/g, 적어도 2400 ㎡/g, 적어도 2500 ㎡/g 또는 적어도 3000 ㎡/g의 비표면적을 갖는 초고순도의 합성 활성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 활성 무정형 탄소 물질이 제공된다.

[0183] 일반적으로, 열분해 공정에서는 건조 초고순도의 폴리머 겔의 중량을 측정하고, 회전 가마 (rotary kiln) 내에 배치한다. 온도 램프 (ramp)를 분당 5℃로 설정하고, 체류 시간 및 체류 온도를 설정하고; 냉각 (cool down)은 로의 자연적 냉각속도에 의해서 결정된다. 전체 공정은 통상적으로 질소 환경과 같은 불활성 대기 하에서 수행된다. 그 후, 열분해된 샘플을 분리하여 중량을 측정한다. 그 밖의 다른 열분해 공정은 본 기술분야에서 숙련된 전문가에게 잘 알려져 있다.

[0184] 일부의 구체예에서, 열분해 체류 시간 (샘플이 원하는 온도에서 있는 기간)은 약 0 분 내지 약 120 분, 약 0 분

내지 약 60 분, 약 0 분 내지 약 30 분, 약 0 분 내지 약 10 분, 약 0 내지 5 분, 또는 약 0 내지 1 분이다.

[0185] 열분해는 또한 상술한 것보다 더 느리게 수행될 수도 있다. 예를 들어, 한가지 구체예에서 열분해는 약 120 내지 480 분에 걸쳐서 수행된다. 다른 구체예에서, 열분해는 약 120 내지 240 분에 걸쳐서 수행된다.

[0186] 일부의 구체예에서, 열분해 체류 온도는 약 650℃ 내지 1800℃의 범위이다. 다른 구체예에서, 열분해 체류 온도는 약 700℃ 내지 약 1200℃의 범위이다. 다른 구체예에서, 열분해 체류 온도는 약 850℃ 내지 약 1050℃의 범위이다. 다른 구체예에서, 열분해 체류 온도는 약 800℃ 내지 약 900℃의 범위이다.

[0187] 일부의 구체예에서, 열분해 체류 온도는 열분해의 과정 중에 변화된다. 한가지 구체예에서, 열분해는 각각의 구역에 대한 온도가 회전 가마 튜브의 유입구부터 유출 말단까지 순차적으로 감소되는 분리된 별개의 가열 구역을 갖는 회전 가마 내에서 수행된다. 한가지 구체예에서, 열분해는 각각의 구역에 대한 온도가 회전 가마 튜브의 유입구부터 유출 말단까지 순차적으로 증가하는 분리된 별개의 가열 구역을 갖는 회전 가마 내에서 수행된다. 한가지 구체예에서, 가열 구역의 유입 말단은 690℃로 설정하고, 가열 구역의 중간은 750℃로 설정하며, 가열 구역의 유출 말단은 850℃로 설정한다.

[0188] 활성화 시간 및 활성화 온도는 둘 다 생성된 활성 탄소 물질의 성능 뿐만 아니라 그의 제조비용에 큰 영향을 미친다. 활성화 온도 및 활성화 체류 시간을 증가시키는 것은 더 큰 활성화 백분율을 제공하며, 이것은 일반적으로 더 저온 및 더 짧은 체류 시간에 비해서 더 많은 물질의 제거에 해당한다. 활성화 온도는 또한, 탄소의 공극 구조를 변화시킬 수 있는데, 여기에서 더 낮은 온도는 더 미세다공성인 탄소를 제공하고, 더 높은 온도는 메소다공성을 제공한다. 이것은 더 고온에서 일어나는 활성화 가스 확산 제한 반응, 및 더 저온에서 일어나는 반응 동력학 구동된 반응의 결과이다. 더 큰 활성화 백분율은 종종 최종 활성 탄소의 성능을 증가시키지만, 이것은 또한 전반적인 수율을 감소시킴으로써 비용을 증가시킨다. 활성화의 레벨을 개선시키는 것은 더 작은 비용으로 더 큰 성능의 생성물을 달성하는 것과 관련있다.

[0189] 열분해된 초고순도의 폴리머 겔은 열분해된 초고순도의 폴리머 겔을 활성화제와 접촉시킴으로써 활성화될 수 있다. 대부분의 가스, 예를 들어, 산소를 함유하는 가스가 활성화에 적합하다. 활성화 가스의 비-제한적 예로는 이산화탄소, 일산화탄소, 스팀 및 산소가 포함된다. 활성화제는 또한 산, 염기 또는 염류 (예를 들어, 인산, 수산화칼륨, 수산화나트륨, 염화아연 등)와 같은 부식성 화학물질을 포함한다. 그 밖의 다른 활성화제는 본 기술분야에서 숙련된 전문가에게 공지되어 있다.

[0190] 일부의 구체예에서, 활성화 시간은 1 분 내지 48 시간이다. 다른 구체예에서, 활성화 시간은 1 분 내지 24 시간이다. 다른 구체예에서, 활성화 시간은 5 분 내지 24 시간이다. 다른 구체예에서, 활성화 시간은 1 시간 내지 24 시간이다. 추가의 구체예에서, 활성화 시간은 12 시간 내지 24 시간이다. 특정의 다른 구체예에서, 활성화 시간은 30 분 내지 4 시간이다. 일부의 추가의 구체예에서, 활성화 시간은 1 시간 내지 2 시간이다.

[0191] 일반적으로, 활성화 공정에서는 샘플의 중량을 측정하고, 자동화된 가스 조절 매니폴드 (manifold)가 분당 20℃의 비율로 램프에 대해 설정된 회전 가마 내에 넣는다. 일단 적절한 활성화 온도에 도달하면 이산화탄소를 가마 환경에 일정한 기간 동안 도입시킨다. 활성화가 일어난 후에, 이산화탄소는 질소로 대체시키고, 가마를 냉각시킨다. 공정의 말미에 샘플의 중량을 측정하여 활성화의 레벨을 평가한다. 그 밖의 다른 활성화 공정은 본 기술분야에서 숙련된 전문가에게 잘 알려져 있다. 본 발명에 기술된 구체예 중의 일부에서, 활성화 온도는 800℃ 내지 1300℃의 범위일 수 있다. 또 다른 구체예에서, 활성화 온도는 800℃ 내지 1050℃의 범위일 수 있다. 또 다른 구체예에서, 활성화 온도는 약 850℃ 내지 약 950℃의 범위일 수 있다. 본 기술분야에서 숙련된 전문가는 더 낮거나 더 높은 다른 활성화 온도가 사용될 수 있음을 인식할 것이다.

[0192] 활성화의 정도는 활성화 단계 중에 상실된 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔의 질량 퍼센트에 의해서 측정된다. 본 발명에 기술된 방법의 한가지 구체예에서, 활성화는 5% 내지 90%의 활성화도; 또는 10% 내지 80%의 활성화도로 이루어지며; 일부의 구체예에서, 활성화는 40% 내지 70%의 활성화도, 또는 45% 내지 65%의 활성화도로 이루어진다.

[0193] 큰 표면적의 초고순도의 합성 활성 탄소 물질의 생산을 위해 본 발명에 기술된 방법에서, 초고순도의 폴리머 겔은 이미 매우 다공성이며, 그의 초고순도의 폴리머 골격 내에, 열분해 및 활성화되면 메소공극 및 미세공극의 표적화된 혼합물을 함유하는 활성 탄소 물질을 생산할 수 있는 탄소성 구조를 함유하는 물질을 생산하도록 조작된다. 메소- 및 미세-공극의 적절한 표적화된 혼합물을 함유하는 초고순도의 폴리머 겔을 생산함으로써, 필요한 활성화의 양은 감소되고, 이에 의해서 수율을 개선시키고 비용을 감소시킨다. 또한, 중간체의 특성 (예를 들어, 공극 크기)을 조정하는 능력은 기존의 탄소 물질을 열분해 및 과-활성화시키는 더 전통적인 방법에 의해

서는 실현되지 않는 정도의 조정가능성을 도입시킨다. 예를 들어, 본 발명에 기술된 바와 같이 중간체의 공정 변수를 조작하는 것은 최종 탄소 나노구조에 대해 열분해 및 활성화 변수를 조정하는 전통적인 방법보다 더 큰 영향을 미친다.

[0194] 본 발명에 기술된 활성 탄소 물질에 대해 예상되는 큰 수요에 부합하도록 본 발명에 기술된 제조방법을 증대시키는 능력이 입증되었다. 공정의 3 개의 부분이 확인될 수 있다: 1) 전구체 초고순도의 폴리머 물질로부터의 초고순도의 중합반응; 2) 동결 건조; 및 3) 열분해/활성화. 한가지 구체예에서, 이들 단계의 각각은 3가지 기존 산업, 예를 들어, 각각 접착제 및 에폭시를 대상으로 하는 전문 화학약품 회사; 약제 및 식품 관련된 동결 건조 공급자; 및 저등급 활성 탄소 제조의 표준 제조장치를 사용하도록 증대될 수 있다.

[0195] 초기 졸 내의 촉매의 양 및 물의 백분율은 활성 탄소 물질의 최종 성능에 상당한 영향을 미치는 것으로 나타났다 (예를 들어, 슈퍼캐패시터 (supercapacitor)에서 사용되는 경우에). 다수의 공정 변수 및 이들 변수 사이의 상호작용은 공정의 연속적인 개선 (refinement)을 가능하게 하며, 최종 탄소 구조 상에서의 일부의 조절을 허용한다. 따라서, 한가지 구체예에서 본 발명은 공정 변수의 개선을 제공한다. 기술된 개선은 이전에 수득할 수 없었던 방식으로 최종 탄소 구조에 대한 조절을 발휘하는 능력을 제공한다.

[0196] 본 기술분야에서 사용된 공정 변수를 개선시키는 가장 통상적인 방법은 단지 한가지를 제외한 모든 가변적 상수를 유지시키고, 한가지 파라메터를 변화시키는 효과를 측정하는 것이다. 대신으로, 및 본 발명에 기술된 바와 같이, 통계학적 분석방법인 DFE Pro 소프트웨어 및 실험방법의 요인 디자인 (factorial design)의 조합을 사용하여 활성 탄소 물질을 제조하는 최적화된 방법을 얻도록 다수의 파라메터를 동시에 조직적으로 변화시켰다. 이러한 방법을 사용함으로써, 활성 탄소 물질의 구조와 관련된 광범한 종류의 상이한 측정기준 (metrics) (예를 들어, 표면적, 밀도, 공극 용적 등)에 대한 이들 변수의 영향을 평가한다. 초고순도의 합성 활성 탄소 물질이 슈퍼캐패시터에서 사용되는 경우에는, 추가의 성능 측정기준이 평가될 수 있다. 예를 들어, 전기용량, 밀도 및 파워 밀도가 평가될 수 있다.

[0197] C. 초고순도의 폴리머 겔 및 초고순도의 합성 탄소 물질의 특정화

[0198] 최종 초고순도의 합성 활성 탄소 물질, 초고순도의 합성 활성 무정형 탄소 물질, 건조 폴리머 겔, 및 열분해되었지만 활성화되지 않은 초고순도의 폴리머 겔의 구조적 특성은 본 기술분야에서 숙련된 전문가에게 공지된 방법인 17K에서의 질소 수착 (Nitrogen sorption)을 사용하여 측정될 수 있다. 가공된 초고순도의 합성 활성 탄소 물질의 최종 성능 및 특징이 중요하지만, 중간체 생성물 (건조 초고순도의 폴리머 겔, 및 열분해되었지만 활성화되지 않은 초고순도의 폴리머 겔 둘 다)이 또한, 특히 본 기술분야에서 숙련된 전문가에게 공지된 바와 같이 품질 조절의 관점에서, 평가될 수 있다. 마이크로메레틱스(Micromeretics) ASAP 2020을 사용하여 0.35 ㎚ 내지 50 ㎚의 공극 크기 분포를 나타내는 상세한 미세공극 및 메소공극 분석을 수행한다. 상기 시스템은 1 ㎚ 이하의 범위에서 공극 크기 분포의 큰 분해를 가능하게 하는, 10^{-7} atm의 압력에서 출발하는 질소 등온선을 제공한다. 소프트웨어 생성된 보고는 밀도범함수 이론 (Density Functional Theory (DFT)) 방법을 이용하여 공극 크기 분포, 표면적 분포, 총표면적, 총 공극 용적, 및 특정 공극 크기 범위에서의 공극 용적과 같은 특성을 계산한다.

[0199] 일부의 구체예에서, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔은 약 100 내지 약 1200 ㎡/g의 표면적을 갖는다. 다른 구체예에서, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔은 약 500 내지 약 800 ㎡/g의 표면적을 갖는다. 다른 구체예에서, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔은 약 500 내지 약 600 ㎡/g의 표면적을 갖는다.

[0200] 일부의 구체예에서, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔은 약 0.1 내지 약 1.0 cc/g의 탭밀도를 갖는다. 다른 구체예에서, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔은 약 0.3 내지 약 0.6 cc/g의 탭밀도를 갖는다. 다른 구체예에서, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔은 약 0.35 내지 약 0.45 cc/g의 탭밀도를 갖는다.

[0201] D. 초고순도의 폴리머 겔의 공극 크기 및 그 밖의 다른 특성의 조정

[0202] 잘-특정화된 합성 전구체로부터 합성된 본 발명의 초고순도의 탄소 물질은 석탄, 피치, 코코넛 등과 같은 천연 공급원으로부터 유래하는 활성 탄소와는 상이하다. 이것은 부분적으로, 이들이 주의해서 전디자인되고 실행된 공정 조절에 의해서 미세공극 및 메소공극 구조 및 화학 둘 다에서 조정될 수 있다는 사실에 기인한다. 추가로, 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 탄소 물질은 소정의 적용분야에 대해 (예를 들어, 슈퍼캐패시터 또는 다른 에너지 저장장치에서 사용하는 경우에) 최적화될 수 있는 다공성 구조를 함유할 수 있다. 탄소 나노구조를 조정하는 능력에 의해서 전통적인 활성 탄소로부터의 전류 성능 데이터를 초과하는 성능이 수득된다. 중요한 변수에는 큰 접근가능한 표면적, 전해질 염 확산을 위한 짧은 미세공극, 및 비전류용량을 증

진시키기 위한 소모된 공극 용적의 최소화가 포함된다.

[0203] 공정 변수의 조작은 원하는 적용분야에 적합한 특성을 갖는 초고순도의 합성 활성 탄소 물질의 생산을 허용한다. 따라서, 한가지 구체예에서는 초고순도의 폴리머 겔, 건조 초고순도의 폴리머 겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔 및 초고순도의 합성 활성 탄소 물질의 생산을 위한 공정 변수를 최적화하는 방법이 제공된다. 공정 파라메터의 최적화를 위한 한가지 방법은 실험 전략의 디자인을 포함한다. 이 전략을 사용하여, 다수의 공정 변수 (예를 들어, 8 개까지의 변수)의 영향을 비교적 적은 실험에 의해서 조사할 수 있다. 상기의 실험 디자인으로부터 수득된 데이터를 사용하여 초고순도의 폴리머 겔, 건조 초고순도의 폴리머 겔, 열분해된 초고순도의 폴리머 겔, 및 활성 초고순도의 폴리머 크리오겔에서 특정한 특성을 수득하도록 공정 변수를 조작할 수 있다. 예를 들어, 일부의 구체예에서 바람직한 생성물 특징을 수득하도록 조작된 공정 파라메터는 다음으로부터 선택된다: 레조르시놀/촉매 비, 레조르시놀/물 비, 동결 단계에서의 입자 크기, 퀀칭 (Quench) 온도, 열분해 시간, 열분해 온도, 활성화 온도, 및 활성화 시간 및 이들의 조합.

[0204] 일부의 구체예에서, 테트라메틸암모늄 (TMA) 양이온과 함께 전기화학적 시험 전지의 세트가 이용된다. 테트라에틸암모늄 (TEA) 이온은 직경이 0.69 nm인 반면에, 테트라메틸암모늄 이온은 직경이 단지 0.57 nm이다. 각각의 양이온은 직경이 0.46 nm인 테트라플루오로보레이트 (TFB) 음이온과 짝을 이룬다. 이들 다양한 이온의 크기는 상술한 공극 크기 범위에서 일부의 광선을 발산한다. 미세공극이 짧고, 비틀려 있지 않은 한, 이들은 공극 직경보다 더 작은 이온을 받아들인다. 전류용량 및 에너지 밀도를 증가시키는 한가지 방법은 이온을 탄소 네트워크 내에서 가능한 한 다수의 공극 내로 들어가도록 하는 것이다. 예를 들어, 0.5 nm보다 작은 공극은 TFB 음이온을 받아들이지만, TEA 또는 TMA 양이온은 어떤 것도 받아들이지 않는다. 0.5 nm 내지 0.65 nm 사이의 공극은 TMA 양이온을 받아들이지만 TEA는 받아들이지 않고, 0.65 nm보다 더 큰 공극은 TEA 이온을 받아들일 것이다. 이 개념은, 탄소 물질을 공극 크기보다 작은 이온만을 허용하는 체로 생각하는 이온 체질 원리 (ion sieving theory)를 요약한 것이다. TMATFB 대 TEATFB 전해질을 함유하는 전지의 음극 및 양극 상에서 나타나는 전류용량 및 이에 따른 에너지 밀도에 있어서의 차이의 평가는 특정의 공극 크기 범위 내에서의 공극 용적의 중요성에 대한 통찰을 제공한다.

[0205] 공정 변수의 조작은 선택된 전해질 시스템에 적합한 공극 크기 분포를 갖는 초고순도의 합성 활성 탄소의 생산을 허용한다. 예를 들어, TEA 이온에 적합한 공극 크기에 집중된, 대략 0.8 nm에서 미세공극 피크를 갖는 탄소 음극이 생산될 수 있다. DFE Pro 소프트웨어의 출력자료를 기초로 하여, 공정 세팅은 일차 성능 측정기준으로서 설정된 0.7-1.0 nm 사이의 표면적 및 공극 용적을 갖는 공극에 대해서 가장 통계학적으로 유의적인 이들 변수를 기초로 선택된다. 변수의 상호작용 및 다중-변수 '등고선 지도 (contour maps)'를 사용하여 상기 명시된 범위 이상에서 또는 그 범위 밖에서 사용된 세팅들 사이에 있는 공정 세팅을 외삽한다. 이러한 과제의 공극 크기 필요조건을 부합시키기 위한 표적화된 공정 변수를 결정한 후에, 활성 탄소 크리오겔과 같은 초고순도의 합성 활성 탄소의 배취는 이들 세팅을 사용하는 것을 기초로 생산된다. 그 후, 음극 물질은 공극 크기 분포 분석을 위한 ASAP 2020 및 밀도범함수 이론을 사용해서 특정화하여 0.7-1.0 nm의 규정된 범위 내에서 큰 용적 및 표면적 피크의 존재를 확인한다.

[0206] 유사하게, 0.6-0.8 nm의 상이한 공극 크기 범위를 여전히 본 발명에 기술된 동일한 방법을 사용하면서, TMA 양이온을 위한 공극 크기 조정을 위한 표적으로 사용한다. 또한, 추가로 상기 방법을 TFB 음이온에 상응하는 0.6 nm 미만의 공극 크기 분포를 갖는 탄소를 생산하는데 사용할 수 있다.

[0207] 음극 및 양극에서 탄소의 그램당 발생된 전류용량을 변화시키는 것은 음이온 및 양이온에 대해서 부합된 용량을 갖는 전하-균형 전지의 생산을 가능하게 한다. 이 방법은 전해질의 이온에 대해 적절한 크기를 갖지 않는 공극을 생성시키는 것과 연관된 비용을 감소시키면서 전반적인 전지의 에너지 밀도를 개선시킨다.

[0208] 또한, 본 발명에 기술된 방법에 따라 탄소는 다수의 전해질 이온에 대해서 표적화된 공극 크기 분포를 가지고 대량-생산될 수 있다. 본 발명에 기술된 공극 크기의 범위는 검토한 특정 시스템을 위해서 선택되었지만, 본 발명에 기술된 방법에 따라 다른 범위가 생산될 수 있다. 예를 들어, 데이터는 ASAP 2020 소프트웨어 생성된 보고서로부터 추출될 수 있으며, 실험의 DFE Pro 디자인은 모든 크기의 공극에 대한 적절한 조정 파라메터를 표시하도록 변경될 수 있다. 특별한 파라메터가 본 발명에 기술되지 않을 수 있지만, 실험방법의 요인 디자인은 본 기술분야에서 숙련된 전문가가 표적화된 피크 공극 크기를 생성시키기 위한 조정을 할 수 있도록 한다.

[0209] 이들 결과의 분석은 다수의 상이한 식견을 제공한다. 공지된 디멘션 (dimensions)의 염 이온을 사용하여 최대 전류용량을 발생시키는 공지된 미세공극 크기 피크를 갖는 음극 또는 양극의 능력을 검토하는 것은 작용하는 이온의 유효 크기 및 어떤 공극 크기가 어떤 이온을 걸러내는지에 대한 정보를 제공한다. 공극 용적 데이터 뿐만

아니라 본 발명에 기술된 시스템의 전류용량 데이터의 사용은 더 큰 테트라에틸암모늄 양이온 대 더 작은 테트라메틸암모늄 양이온 또는 테트라플루오로보레이트 음이온에 의한 전류용량을 발생하도록 하는데 필요한 최소 공극 크기의 확인을 제공한다. 전극으로 사용하기 위한 하나의 표적화된 탄소 물질은, 다른 범위의 공극 용적은 최소화시키면서 동시에 공극 벽의 표면에 전기흡착하기엔 공극이 너무 작은 경우에 미세공극 피크가 역치 바로 위인 시스템이다.

[0210] 성능 측정기준으로서 특정한 범위 내의 공극 용적과 함께 사용되는 경우에, 실험 방법의 요인 디자인은 해당 공극 크기 범위에서 공극 용적을 최대화시키기 위해서 공정 파라메터를 어떻게 조정하는지를 나타낸다.

[0211] 전해질 이온이 전기장의 부재 하에 비속박 용매 (unconstrained solvent) 내에서 유리 상태인 경우에, 이들은 전형적으로, 그들의 전하와 균형을 이루는 용매 이온에 의해서 둘러싸인다. 강한 전기장 및 공극 내부의 비좁은 공간에도 불구하고 이것은 여전히 어느 정도까지 일어나는 것으로 예상된다. 각각의 이온은 그 자체를 용매화된 상태로 유지시키는 상이한 경향을 가지며, 따라서 강한 용매화를 위해서는 더 크고, 약한 용매화를 위해서는 더 작은 상이한 유효 크기를 갖는다. 상술한 이온 체질 시험은 이들 염이 용매화된 상태로 유지되는 정도, 및 따라서 어떤 공극 크기가 적절한지를 평가한다.

[0212] 상기 언급한 바와 같이, 나노구조 탄소 전극의 에너지 밀도를 최대화시키는 한가지 방법은 해당 전극의 표면에 전기흡착된 이온을 위해서 적절한 크기의 공극을 생산하는 것이다. 음이온에 대해서 이상적인 공극 크기 분포 및 양이온에 대해서 이상적인 또 다른 공극 크기 분포를 갖는 활성 탄소는 다른 경우에 사용된 대칭 전지의 전류용량 및 에너지 밀도를 초과할 수 있는 비대칭 전지에서 조립된다.

[0213] <u>E. 건조 초고순도의 폴리머 겔 및 초고순도의 합성 탄소 물질의 용도</u>

[0214] 초고순도의 합성 탄소 물질, 예를 들어, 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 안정한 큰 표면적의 미세- 및 메소다공성 구조를 필요로 하는 장치에서 사용될 수 있다. 기술된 탄소 물질에 대한 적용예에는 다음이 포함되나, 이들로 제한되지 않는다: 에너지 저장 및 분배 장치, 울트라캐패시터 (ultracapacitor) 전극, 슈도캐패시터 (pseudocapacitor) 전극, 배터리 전극, 납 산 배터리 전극, 리튬-공기 전극 및 아연-공기 전극을 포함한 가스 확산 전극, 리튬 이온 배터리 및 캐패시터 (예를 들어, 양극 물질로서), 전기화학적 시스템에서 다른 활성 물질을 위한 전도성 집전기/스캐폴드, 나노구조 물질 지지체 스캐폴드, 고체상 가스 저장 (예를 들어, H_2 및 CH_4 저장), 염수 (salt water)의 전기용량성 탈이온화 (capacitive deionization), 독 제어 및 조절된 약물 방출을 포함한 생물의학적 적용, 공기 여과, 물 여과, 화학적 여과, 촉매적 컨버터, 단열, 크로마토그래피 패킹 (packing), 흡착제, 및 수소 저장 또는 연료전지 전극과 같은 다른 촉매적 기능을 위한 탄소-기본 스캐폴드 지지체 구조.

[0215] 기술된 탄소 물질은 또한 하이브리드 전기 비히클, 헤비 하이브리드 (heavy hybrids), 모든 전기 드라이브 비히클, 크레인 (crane), 포크리프트 (forklifts), 엘리베이터, 전기 레일, 하이브리드 기관차 및 전기 자전거와 같은 운동 에너지 수확 적용분야에서도 사용될 수 있다. 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 또한 다음과 같은 전기적 백업 (back-up) 적용분야에서 사용될 수 있다: UPS, 데이터 센터 브릿지 파워 (data center bridge power), 전압 딥 (dip) 보상, 전기 브레이크 작동기, 전기 도어 작동기, 전자기기, 텔레콤 타워 (telecom tower) 브릿지 파워. 본 발명의 초고순도의 합성 활성 탄소가 유용할 수 있는 펄스 파워 (pulse power)를 필요로 하는 적용예에는 보드넷 (boardnet) 안정화, 휴대전화, PDAs, 카메라 플래쉬, 전자 완구를 포함하는 전자기기, 풍력 터빈 블레이드 피치 (wind turbine blade pitch) 작동기, 파워 품질/ 파워 컨디쇼닝/주파수 조절, 전기 과급기가 포함되나, 이들로 제한되지 않는다. 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질의 또 다른 용도는 자동차 출발 및 정지 시스템, 파워 툴 (power tools), 회중전등 (flashlights), 개인용 전자기기, 자급형 태양 동력 조명 시스템, RFID 칩 및 시스템, 서베이 (survey) 장치 파워를 위한 윈드필드 디벨로퍼 (windfield developers), 센서, 펄스 레이저 시스템 및 페이저 (phasers)에서의 사용을 포함한다.

[0216] 기술된 탄소 물질은 또한, 높은 순도가 중요한 적용분야, 예를 들어, 의료, 전자, 화학적 분석, 멤스 (mems) (미세기계), 및 생물학적 분야의 적용분야에서 사용될 수 있다. 모든 종류의 화학적 및 전기화학적 센서 또는 검출기는 불순물로 인한 방해를 덜 겪거나 불순물에 의해서 야기되거나 촉진된 부반응(side reaction)을 덜 겪을 것이다. 예로는 공기 중의 불순물 (폭발성, 유해 화학물질, 합성 노즈 (synthetic noses)), 또는 유기물질과 같은 물 중의 불순물 또는 유기 액체 중의 물 불순물이 있다.

[0217] 탄소의 산/염기 성질은 대부분 화학흡착된 산소를 포함한 불순물의 함수이다. 따라서, 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 탄소 물질의 산/염기 성질을 조절하는 것이 바람직한 적용분야에서 유용하다.

[0218] 탄소는 물질의 화학적 생산에 있어서의 반응물질로, 및 물질의 전기화학적 생산 시의 전극으로 사용된다. 따라서, 기술된 탄소 물질은 고순도 물질, 특히 금속의 화학적 및 전기화학적 생산에 있어서의 유용성을 갖는다. 기술된 탄소 물질은 또한, 아연-산화망간 배터리 (통상적인 회중전등 배터리) 및 아연-할로겐 배터리에서 전극으로 사용될 수 있으며, 전기전도성 접착제 및 밀봉재로 사용하기 위해서, 및 방사선 누출을 최소화시키기 위해서 탄소-초고순도의 폴리머 복합체 내에 혼입시킬 수 있다.

[0219] 본 발명에 기술된 건조 초고순도의 폴리머 겔은 다수의 적용분야에서 유용성을 갖는다. 예를 들어, 건조 초고순도의 폴리머 겔은 목재 접착제 (예를 들어, 합판 또는 파티클 보드 (particle board)), 고무에 대한 본딩 텍스타이틀 (bonding textitles) 및 금속 (예를 들어, 고무 타이어), 여과 매질, 유전 절연체, 단열재로서, 및 복합 물질 (예를 들어, 유리 섬유 및 탄소 섬유 등)에서 수지로서 유용하다.

[0220] 1. 울트라캐패시터 장치

[0221] EDLCs는 그들의 에너지 저장 요소로서 전해질 용액 내에 침지된 전극을 사용한다. 전형적으로, 전해질 내에 침지되고, 전해질로 함침된 다공성 분리막은 전극이 서로 접촉하지 않도록 하여 전극들 사이에서 직접적인 전자 전류 흐름을 방지하는 것을 보장한다. 동시에, 다공성 분리막은 이온 전류가 전해질을 통해 전극들 사이에서 양방향으로 흐르도록 함으로써 전극과 전해질 사이의 계면에서 전하의 이중층이 형성되도록 한다.

[0222] 전위가 EDLC의 한 쌍의 전극 사이에 적용되면, 전해질 내에 존재하는 이온은 반대로-하전된 전극의 표면으로 유인되고, 전극 쪽으로 이동한다. 이렇게 하여 반대로-하전된 이온의 층이 생성되고, 각각의 전극 표면 가까이에서 유지된다. 전기 에너지는 이들 이온층과 상응하는 전극 표면의 전하층 사이의 전하 분리층에 저장된다. 실제로, 전하 분리층은 본질적으로 정전기 캐패시터로서 작용한다. 정전기 에너지는 또한, 전위에 의해서 유도된 전기장의 영향 하에 전해질 용액의 분자의 배향 및 정렬을 통해서 EDLCS 내에 저장될 수 있다. 그러나, 이러한 에너지 저장의 모드는 이차적이다.

[0223] 초고순도의 합성 탄소 물질, 예를 들어, 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 EDLCS는 큰 파워가 바람직한 다양한 전자 장치에서 사용될 수 있다. 따라서, 한가지 구체예에서는 초고순도의 합성 탄소 물질을 포함하는 전극이 제공된다. 또 다른 구체예에서는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 전극이 제공된다. 추가의 구체예에서, 전극은 초고순도의 합성 활성 탄소 물질, 예를 들어, 초고순도의 합성 활성 무정형 탄소 물질을 포함한다. 추가의 구체예에서는, 초고순도의 합성 탄소 물질을 포함하는 전극을 포함하는 울트라캐패시터가 제공된다. 전술한 것의 추가의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질은 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질, 예를 들어, 초고순도의 합성 활성 무정형 탄소 물질이다.

[0224] 기술된 탄소 물질은 다수의 전자 장치, 예를 들어, 디지탈 스틸 카메라 (digital still cameras), 노트북 PCs, 의료 장치, 위치 추적장치, 자동차 장치, 컴팩트 플래쉬 장치 (compact flash devices), 이동전화, PCMCIA 카드, 휴대용 장치, 및 디지탈 뮤직 플레이어와 같은 무선 소비자 및 상업용 장치에서 유용성을 갖는다. 울트라캐패시터는 또한, 굴착기 및 그 밖의 다른 배토 장치 (earth moving equipment), 포크리프트, 쓰레기 운반차, 포트용 크레인, 및 버스, 자동차 및 열차와 같은 건설 및 수송 시스템과 같은 중장비에서 사용된다.

[0225] 한가지 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터 장치는 적어도 10 W/g, 적어도 15 W/g, 적어도 20 W/g, 적어도 25 W/g, 적어도 30 W/g 또는 적어도 35 W/g의 중력 파워 (gravimetric power)를 포함한다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터 장치는 적어도 5 W/cc, 적어도 10 W/cc, 적어도 15 W/cc 또는 적어도 20 W/cc의 용적 파워 (volumetric power)를 포함한다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터 장치는 적어도 2.5 Wh/kg, 적어도 5.0 Wh/kg, 적어도 7.5 Wh/kg, 적어도 10 Wh/kg, 적어도 12.5 Wh/kg, 적어도 15.0 Wh/kg, 적어도 17.5 Wh/kg, 적어도 20.0 Wh/kg, 적어도 22.5 wh/kg 또는 적어도 25.0 Wh/kg의 중량 에너지를 포함한다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 울트라캐패시터 장치는 적어도 1.5 Wh/ℓ, 적어도 3.0 Wh/ℓ, 적어도 5.0 Wh/ℓ, 적어도 7.5 Wh/ℓ, 적어도 10.0 Wh/ℓ, 적어도 12.5 Wh/ℓ, 적어도 15 Wh/ℓ, 적어도 17.5 Wh/ℓ 또는 적어도 20.0 Wh/ℓ의 용적 에너지를 포함한다.

[0226] 전술한 것의 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터 장치의 중량 파워, 용적 파워, 중량 에너지 및 용적 에너지는 아세토니트릴 중의 테트라에틸암모늄-테트라플루오로보레이트의 1.0 M 용액 (AN 중의 1.0 M TEATFB) 전해질 및 0.5 초 시상수를 사용하여 2.7 V 내지 1.89 V의 정전류 방전에 의해서 측정된다.

[0227] 한가지 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터 장치는 적어도 25 W/g의 중량 파워, 적어도 10.0 W/cc의 용적 파워, 적어도 5.0 Wh/kg의 중량 에너지 및 적어도 3.0 Wh/ℓ의 용적 에너지를 포함한다.

[0228] 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터 장치는 적어도 15 W/g의 중량 파워, 적어도 10.0 W/cc의 용적 파워, 적어도 20.0 Wh/kg의 중량 에너지 및 적어도 12.5 Wh/ℓ의 용적 에너지를 포함한다.

[0229] 한가지 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터 장치는 적어도 15 F/g, 적어도 20 F/g, 적어도 25 F/g, 적어도 30 F/g 또는 적어도 35 F/g의 중량 전기용량 (gravimetric capacitance)을 포함한다. 또 다른 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터 장치는 적어도 10 F/cc, 적어도 15 F/cc, 적어도 18 F/cc, 적어도 20 F/cc, 적어도 22 F/cc 또는 적어도 25 F/cc의 용적 전기용량을 포함한다. 전술한 것의 일부의 구체예에서, 중량 전기용량 및 용적 전기용량은 아세토니트릴 중의 테트라에틸암모늄-테트라플루오로보레이트의 1.8 M 용액 (AN 중의 1.8 M TEATFB) 전해질 및 0.5 A/g, 1.0 A/g, 4.0 A/g 또는 8.0 A/g의 전류 밀도를 사용하여 5-초 시상수로 2.7 V 내지 0.1 V의 정전류 방전에 의해 측정된다.

[0230] 한가지 구체예에서, 본 발명은 본 발명에 기술된 것과 같은 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터를 제공하며, 여기에서 전압 유지기간 (voltage hold period) 후에 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터의 원래의 전류용량 (즉, 전압 유지에 적용되기 전의 전류용량)의 감소율은 공지된 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터의 원래의 전류용량의 감소율보다 작다. 한가지 구체예에서, 65℃에서 24 시간 동안 2.7 V에서 전압 유지시킨 후에 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터에 대해 잔류하는 원래의 전류용량의 퍼센트는 적어도 90%, 적어도 80%, 적어도 70%, 적어도 60%, 적어도 50%, 적어도 40%, 적어도 30%, 적어도 20% 또는 적어도 10%이다. 전술한 것의 추가의 구체예에서, 전압 유지기간 후에 잔류하는 원래의 전류용량의 퍼센트는 0.5 A/g, 1 A/g, 4 A/g 또는 8 A/g의 전류 밀도에서 측정된다.

[0231] 또 다른 구체예에서, 본 발명은 본 발명에 기술된 것과 같은 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터를 제공하며, 여기에서 반복 전압 사이클링 (repeated voltage cycling) 후에 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터의 원래의 전류용량의 감소율은 동일한 조건에 적용된 공지의 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터의 원래의 전류용량의 감소율보다 작다. 예를 들어, 한가지 구체예에서 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터에 대해 잔류하는 원래의 전류용량의 퍼센트는 4 A/g의 전류 밀도에서 2 V 내지 1 V 사이의 사이클링을 포함한 1000, 2000, 4000, 6000, 8000, 또는 1000 전압 사이클링 현상 후에, 공지된 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터에 대해 잔류하는 원래의 전류용량의 퍼센트보다 크다. 또 다른 구체예에서, 4 A/g의 전류 밀도에서 2 V 내지 1 V 사이의 사이클링을 포함한 1000, 2000, 4000, 6000, 8000, 또는 1000 전압 사이클링 현상 후에 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 울트라캐패시터에 대해 잔류하는 원래의 전류용량의 퍼센트는 적어도 90%, 적어도 80%, 적어도 70%, 적어도 60%, 적어도 50%, 적어도 40%, 적어도 30%, 적어도 20% 또는 적어도 10%이다.

[0232] 상기 언급한 바와 같이, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 울트라캐패시터 장치 내에 혼입될 수 있다. 일부의 구체예에서, 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 질소 대기 하에서 작동하는 라보밀 제트밀 (Labomill jetmill)을 사용하여 약 10 미크론의 평균 입자 크기로 밀링된다. 이론적으로 구속되기를 바라지는 않지만, 이러한 미세한 입자 크기는 입자-대-입자 전도성을 증진시킬 뿐만 아니라 매우 얇은 시트 전극의 생산을 가능하게 하는 것으로 믿어진다. 제트밀은 본질적으로 고압 질소에 의해서 추진되는 디스크 형상의 챔버 내부에서 탄소를 회전시킴으로써 그 자체에 대항하여 탄소를 분쇄한다. 더 큰 입자가 공급되면 원심력은 그들은 챔버의 외부로 밀어내고; 이들이 서로에 대해서 분쇄됨으로써 입자는 중심 쪽으로 이동하고 여기에서 이들이 적절한 디멘션에 도달하면, 이들은 결국 분쇄 챔버로부터 배출된다.

[0233] 추가의 구체예에서, 제트 밀링한 후에 탄소는 섬유상 테플론 (Teflon) 결합제 (3 중량%)와 블렌딩하여 입자들을 시트 내에서 함께 유지시킨다. 탄소 테플론 혼합물은 균일한 점조도 (consistency)에 도달할 때까지 반죽한다. 그 후, 혼합물은 50 미크론의 최종 두께를 제공하는 고압 롤러-형성기 (roller-former)를 사용하여 시트로 롤링시킨다. 이들 전극을 디스크로 펀칭하고, 무수 아르곤 대기 하에서 195℃로 가열하여 물 및/또는 그 밖의 다른

공기중 오염물질을 제거한다. 전극의 중량을 측정하고, 그들의 디멘션은 캘리퍼스 (calipers)를 사용하여 측정한다.

[0234] EDLCs의 탄소 전극은 적절한 전해질 용액으로 습윤된다. 본 발명의 장치에서 사용하기 위한 전해질 용액에서 사용하기 위한 용매의 예로는 프로필렌 카보네이트, 에틸렌 카보네이트, 부틸렌 카보네이트, 디메틸 카보네이트, 메틸 에틸 카보네이트, 디에틸 카보네이트, 설포란, 메틸설포란 및 아세토니트릴이 포함되나 이들로 제한되지 않는다. 이러한 용매는 일반적으로 TEATFB (테트라에틸암모늄 테트라플루오로보레이트)와 같은 테트라알킬암모늄 염; TEMATFB (트리-에틸, 메틸암모늄 테트라플루오로보레이트); EMITFB (1-에틸-3-메틸이미다졸륨 테트라플루오로보레이트), 테트라메틸암모늄 또는 트리에틸암모늄 기본 염을 포함한 용질과 혼합된다. 추가로, 전해질은 약황산 또는 수산화칼륨과 같은 수성 산 또는 염기 전해질일 수 있다.

[0235] 일부의 구체예에서, 전극은 아세토니트릴 중의 테트라에틸암모늄-테트라플루오로보레이트의 1.0 M 용액 (AN 중의 1.0 M TEATFB) 전해질로 습윤된다. 다른 구체예에서, 전극은 프로필렌 카보네이트 중의 테트라에틸암모늄-테트라플루오로보레이트의 1.0 M 용액 (PC 중의 1.0 M TEATFB) 전해질로 습윤된다. 이들은 연구 및 산업에서 모두 사용되는 통상적인 전해질이며, 장치 성능을 평가하기 위한 기준으로 생각된다. 다른 구체예에서, 대칭 탄소-탄소 (C-C) 캐패시터는 불활성 대기 하에서, 예를 들어, 아르곤 글로브 박스 (Argon glove box) 내에서 조립되며, 30 미크론 두께의 NKK 다공성 막이 분리막으로 작용한다. 일단 조립되면, 샘플은 샘플의 다공성에 따라 20 분 또는 그 이상 동안 전해질에 액침시킬 수 있다.

[0236] 일부의 구체예에서, 전류용량 및 파워 출력은 다양한 전압 (1.0-2.5 V 최대 전압의 범위)에서의 사이클릭 전압측정 (CV), 대시간전위차법 (CP) 및 임피던스 (impedance) 분광법 및 생물학적 VMP3 전기화학적 워크스테이션 (workstation) 상에서의 전류 레벨 (1-10 mA)을 사용하여 측정한다. 이 구체예에서, 전류용량은 하기 수학식을 사용하여 포텐시오그램 (potentiogram)의 방전곡선으로부터 계산할 수 있다:

수학식 1

[0237]
$$C = \frac{I \times \Delta t}{\Delta V}$$

[0238] 여기에서 I는 전류 (A)이며, ΔV는 전압 강하이고, Δt는 시간 차이이다. 이 구체예에서 시험 캐패시터는 대칭적 탄소-탄소 (C-C) 전극이기 때문에, 비전류용량은 다음 수학식으로부터 결정된다:

수학식 2

[0239]
$$C_s = 2C/m_e$$

[0240] 여기에서 m_e는 단일 전극의 질량이다. 비에너지 및 파워는 하기 수학식을 사용하여 결정할 수 있다:

수학식 3

[0241]
$$E_s = \frac{1}{4}\frac{CV_{max}^2}{m_e}$$

수학식 4

[0242] $$P_s = E_s/4ESR$$

[0243] 여기에서 C는 측정된 전류용량이고, V_{max}는 최대 시험 전압이며, ESR은 방전의 초기에서 전압 강하로부터 수득된 등가 직렬 저항 (equivalent series resistance)이다. ESR은 대신으로, 임피던스 분광법으로부터 유도될 수 있다.

[0244] 2. 배터리

[0245] 기술된 탄소 물질은 또한, 다수의 배터리 타입에서 전극으로서의 유용성을 갖는다. 한가지 이러한 배터리는 금속 공기 배터리, 예를 들어, 리튬 공기 배터리이다. 리튬 공기 배터리는 일반적으로, 양전극과 음전극 사이에 삽입된 전해질을 포함한다. 양전극은 일반적으로 산화리튬 또는 과산화리튬과 같은 리튬 화합물을 포함하며, 산소를 산화시키거나 환원시키는 작용을 한다. 음전극은 일반적으로 리튬 이온을 흡수하고 방출하는 탄소성 물질을 포함한다. 슈퍼캐패시터의 경우와 같이, 고순도 탄소 물질을 포함하는 리튬 공기 배터리와 같은 배터리는 공지의 탄소 물질을 포함하는 배터리보다 탁월할 것으로 예상된다. 따라서, 한가지 구체예에서 본 발명은 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 금속 공기 배터리, 예를 들어, 리튬 공기 배터리를 제공한다.

[0246] 다수의 다른 배터리, 예를 들어, 아연-탄소 배터리, 리튬/탄소 배터리, 납산 배터리 등은 또한, 고순도 탄소 물질에 의해서 더 잘 작동하는 것으로 예상된다. 본 기술분야에서 숙련된 전문가는 고순도 탄소의 효과를 볼 수 있는 다른 특정한 타입의 탄소 함유 배터리를 알 수 있을 것이다. 따라서, 또 다른 구체예에서 본 발명은 본 발명에 기술된 것과 같은 초고순도의 합성 탄소 물질 또는 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질을 포함하는 배터리, 특히 아연/탄소, 리튬/탄소 배터리 또는 납산 배터리를 제공한다.

도면의 간단한 설명

[0247] 도면에서, 동일한 참조번호는 유사한 요소를 나타낸다. 도면에서 요소의 크기 및 상대적 위치는 반드시 스케일에 따라 도시되지는 않으며, 이들 요소 중의 일부는 임의로 도면의 독해성을 개선시키도록 확대되고 배치된다. 또한, 도시된 요소의 특별한 형상은 특별한 요소의 실제 형상에 관한 어떤 정보를 알리기 위한 것은 아니며, 단지 도면에서의 인지의 용이성을 위해서 선택되었다.

도 1은 100% 아세트산 용매로부터 생산된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔에 관한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다.

도 2는 90:10 아세트산:물 용매로부터 생산된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔에 관한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다.

도 3은 50:50 아세트산:물 용매로부터 생산된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔에 관한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다.

도 4는 25:75 아세트산:물 용매로부터 생산된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔에 관한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다.

도 5는 10:90 아세트산:물 용매로부터 생산된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔에 관한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다.

도 6은 RS=0.3 및 변화하는 레벨의 아세트산 및 암모늄염으로부터 생산된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔에 관한 비표면적 대 pH의 플롯 (plot)이다.

도 7A 및 7B는 각각 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔 및 열분해된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔의 점증하는 공극 용적의 플롯이다.

도 8A 및 8B는 각각 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔 및 열분해된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔의 점증하는 공극 용적의 플롯이다.

도 9A 및 9B는 각각 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔 및 열분해된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔의 점증하는 공극 용적의 플롯이다.

도 10A 및 10B는 각각 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔 및 열분해된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔의 점증하는 공극 용적의 플롯이다.

도 11A 및 11B는 각각 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔 및 열분해된 RF 초고순도의 폴리머 크리오겔의 점증하는 공극 용적의 플롯이다.

도 12는 다양한 초고순도의 합성 활성 탄소 물질에 관한 비표면적 대 활성화 중량 손실을 도시한 것이다.

도 13은 초고순도의 합성 활성 탄소 물질의 점증하는 공극 용적의 플롯이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0248] **실시예**

[0249] 이하의 실시예에 기술된 초고순도의 폴리머 겔, 크리오겔, 열분해된 크리오겔, 및 초고순도의 합성 무정형 탄소 물질은 본 발명에 기술된 방법에 따라 제조되었다. 화학물질들은 상업적 공급원으로부터 시약 등급의 순도 또는 그 이상으로 입수하였으며, 더 정제하지 않고 공급자로부터 받은 대로 사용하였다.

[0250] 다른 식으로 나타내지 않는 한, 이하의 조건이 일반적으로 사용되었다. 페놀성 화합물 및 알데히드를 촉매의 존재 하에 이상 용매 시스템 중에서 반응시켰다. 알데히드에 대한 페놀성 화합물의 몰비는 전형적으로 0.5 내지 1이었다. 반응액을 밀봉된 유리 앰플 내에서 90℃로 적어도 24 시간 동안, 또는 겔화가 완료될 때까지 배양하였다. 생성된 초고순도의 폴리머 하이드로겔은 물은 함유하였지만 유기 용매는 함유하지 않았으며; 물의 t-부탄올과 같은 유기 용매로의 용매 교환에 적용되지 않았다. 그 후, 초고순도의 폴리머 하이드로겔 모놀리스는 예를 들어, 밀링함으로써 물리적으로 붕괴시켜 약 30 ㎜ 미만의 평균 직경을 갖는 초고순도의 폴리머 하이드로겔 입자를 형성시켰다. 다른 식으로 언급되지 않은 한, 상기 입자는 다음으로, 일반적으로 냉 유체 (예를 들어, 액체 질소 또는 에탄올/드라이 아이스) 내에 침지시킴으로써 급속 동결시키고, 동결건조시켰다. 일반적으로, 동결건조기 선반은 동결건조기 선반 위에 동결된 초고순도의 폴리머 하이드로겔 입자를 함유하는 트레이를 부하시키기 전에 -50℃로 전-냉각시켰다. 동결건조를 위한 챔버 압력은 전형적으로 50 내지 1000 mTorr의 범위이고, 선반 온도는 +10 내지 +25℃의 범위였다. 대신으로, 선반 온도는 예를 들어, 0 내지 +10℃의 범위로 더 낮게 설정될 수 있다. 대신으로, 선반 온도는 예를 들어, 25 내지 +40℃의 범위로 더 높게 설정될 수 있다.

[0251] 건조 초고순도의 폴리머 하이드로겔은 전형적으로, 실시예에 명시된 바와 같이 일정 시간 동안 800-1200℃ 범위의 온도에서 질소 대기 하에 가열함으로써 열분해시켰다. 활성화 조건은 일반적으로, 열분해된 초고순도의 폴리머 하이드로겔을 실시예에 명시된 바와 같이 일정 시간 동안 900-1000℃ 범위의 온도에서 CO_2 대기 하에 가열하는 것으로 이루어졌다. 구체적인 열분해 및 활성화 조건은 이하의 실시예에 기술된 바와 같다.

[0252] 실시예 1

[0253] 100% 아세트산 용액으로부터 RF 겔의 생산

[0254] 일련의 RF 겔은 "순수한" 아세트산 (즉, 무수물)으로부터 제조되었다. 3 개의 샘플은 다양한 레벨의 탄산암모늄("촉매"로써)을 사용하여 생산되었다: 0, 및 ~100 및 ~25 R/C. 이들 샘플을 손으로 파쇄하여 입자를 생성시키고, 액체 질소 중에 침지시킴으로써 동결시키고, 동결건조시켰다. 이들 제제 및 이들의 비표면적의 요약은 표 1에 제시된다. 3 개의 샘플 모두는 모놀리식이고, 색상이 오렌지색이었다. 색상 강도는 탄산암모늄을 함유하는 이들 샘플에 대해서 더 컸다. 3 개의 샘플의 비표면적은 597 내지 644 ㎡/g이었다.

[0255] 도 1은 이들 샘플에 대한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다. 촉매가 없이 제조된 샘플은 약 100 내지 1000 Å의 넓은 피크 및 약 14 Å에서의 이차 피크와 함께 약 185 Å의 DFT 평균 공극 크기를 가졌다 (또한, 이들 사이에 비교적 공극 용적은 없었다). 반대로, 촉매가 첨가됨에 따라서 주된 넓은 피크는 분포가 더 작은 공극 폭 쪽으로의 이동을 나타내었다 (여기에서는 또한 약 12 내지 16 Å에서 이차 피크가 있었다). 약 100 및 약 25 R/C 탄산암모늄을 함유하는 샘플에 대한 DFT 평균 공극 크기는 각각 약 78 Å 및 45 Å이었다. 흥미롭게도, 이들 후자의 샘플은 300 Å 이상의 공극이 비교적 없었다.

표 1

[0256] 100% 아세트산 용액으로부터 생산된 겔의 요약 (포름알데히드의 첨가 전에 물이 첨가되지 않음)

샘플	R/S	R/C	최종 pH	겔화 조건	건조 겔 비표면적 (m^2/g)
003-113-2	0.3	∞	2.0	O/N @ 90℃	644
003-113-3	0.3	95	1.9		597
003-113-4	0.3	25	2.1		605
약어: R/S = 용매에 대한 레조르시놀의 비 (g/mℓ로); R/C = 촉매에 대한 레조르시놀의 비 (g/g로); O/N = 밤새, 전형적으로 약 18 시간					

[0257] 실시예 2

[0258] 90:10 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로부터 RF 겔의 생산

[0259] 시스템 내에 소량의 물을 첨가하는 것의 효과를 검사하기 위해서, 일련의 RF 겔을 90:10 vol:vol 비의 아세트산:물의 혼합 용매로부터 생산하였다 (포름알데히드의 첨가 전에). 3 개의 샘플은 다양한 레벨의 탄산암모늄을 사용하여 생산하였다: 0, 및 ~100 및 ~25 R/C. 이들 샘플을 손으로 파쇄하여 입자를 생성시키고, 액체 질소 중에 침지시킴으로써 동결시키고, 동결건조시켰다. 이들 제제 및 이들의 비표면적의 요약은 표 2에 제시된다. 3 개의 샘플 모두는 모놀리식이고, 색상이 오렌지색이었다. 색상 강도는 탄산암모늄을 함유하는 이들 샘플에 대해서 더 컸다. 3 개의 샘플의 비표면적은 586 내지 653 m^2/g이었다.

[0260] 도 2는 이들 샘플에 대한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다. 촉매가 없이 제조된 샘플은 약 100 내지 1000 Å의 넓은 피크 및 약 11 Å 및 13 Å에서의 이차 피크와 함께 약 160 Å의 DFT 평균 공극 크기를 가졌다 (또한, 이들 사이에 비교적 공극 용적은 없었다). 반대로, 촉매가 첨가됨에 따라서 주된 넓은 피크는 분포가 더 작은 공극 폭 쪽으로의 이동을 나타내었다 (여기에서는 또한 약 12 Å 내지 15 Å의 범위에 걸쳐서 이차 피크가 있었다). 약 100 및 약 25 R/C 탄산암모늄을 함유하는 샘플에 대한 DFT 평균 공극 크기는 각각 약 59 Å 및 39 Å이었다. 전반적으로, 90:10 아세트산:물 샘플에 대한 경향은 레조르시놀이 상술한 바와 같이 일차적으로 100% 아세트산에 용해된 경우에 관찰된 것과 유사하였다.

표 2

[0261] 50:50 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로부터 생산된 RF 겔의 요약 (포름알데히드의 첨가 전)

샘플	R/S	R/C	최종 pH	겔화 조건	건조 겔 비표면적 (m^2/g)
003-113-6	0.3	∞	1.3	O/N @ 90℃	653
003-113-7	0.3	100	1.9		599
003-113-8	0.3	25	2.1		586
약어: R/S = 용매에 대한 레조르시놀의 비 (g/mℓ로); R/C = 촉매에 대한 레조르시놀의 비 (g/g로); O/N = 밤새, 전형적으로 약 18 시간					

[0262] 실시예 3

[0263] 50:50 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로부터 RF 겔의 생산

[0264] 물을 첨가하는 것의 효과를 더 검사하기 위해서, 일련의 RF 겔을 50:50 아세트산:물로부터 생산하였다 (포름알데히드의 첨가 전에). 3 개의 샘플은 다양한 레벨의 탄산암모늄을 사용하여 생산하였다: 0, 및 ~100 및 ~25 R/C. 네 번째 샘플은 아세트산 암모늄을 ~25 R/C의 비로 첨가하여 제조하였다. 이들 샘플을 손으로 파쇄하여 입자를 생성시키고, 액체 질소 중에 침지시킴으로써 동결시키고, 동결건조시켰다.

[0265] 이들 제제 및 이들의 비표면적의 요약은 표 3에 제시된다. 4 개의 샘플 모두는 모놀리식이고, 색상이 오렌지색이었다. 색상 강도는 탄산암모늄 또는 아세트산 암모늄을 함유하는 이들 샘플에 대해서 더 컸다. 4 개의 샘플의 비표면적은 560 내지 693 m^2/g이었다.

[0266] 도 3은 이들 샘플에 대한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다. 촉매가 없이 제조된 샘플은 약 100 내지 1000 Å의 넓은 피크 및 약 14 Å에서의 이차 피크와 함께 약 193 Å의 DFT 평균 공극 크기를 가졌다 (또한, 이들 사이에 비교적 공극 용적은 없었다). 반대로, 촉매가 첨가됨에 따라서 주된 넓은 피크는 분포가 더 작은 공극 폭 쪽으로의 이동을 나타내었다 (여기에서는 또한 약 10 Å 내지 14 Å에서 이차 피크가 있었다). 약 100

및 약 25 R/C 탄산암모늄을 함유하는 샘플에 대한 DFT 평균 공극 크기는 각각 약 79 Å 및 32 Å이었다. 약 25 R/C 아세트산 암모늄을 함유하는 샘플에 대한 DFT 평균 공극 크기는 약 33 Å이었다. 전반적으로, 50:50 아세트산:물 샘플에 대한 경향은 레조르시놀이 상술한 바와 같이 일차적으로 100% 아세트산 또는 90:10 아세트산:물에 용해된 경우에 관찰된 것과 유사하였다.

표 3

[0267] 50:50 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로부터 생산된 RF 겔의 요약 (포름알데히드의 첨가 전)

샘플	R/S	R/C	최종 pH	겔화 조건	건조 겔 비표면적 (m^2/g)
003-117-1	0.3	∞	1.4	O/N @ 90℃	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 (아세트산 암모늄)	0.3	24	2.4		560
약어: R/S = 용매에 대한 레조르시놀의 비 (g/mℓ로); R/C = 촉매에 대한 레조르시놀의 비 (g/g로); O/N = 밤새, 이 경우에 추가의 샘플은 추가로 1일 동안 배양하여 총 약 36 시간이 되었다. 비표면적이 평균 및 표준 편차로 제공되는 경우에, 값은 2 데이터 점으로부터 계산된다.					

[0268] 실시예 4

[0269] 25:75 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로 RF 겔의 생산

[0270] 다음 시스템은 주로 물, 특히 25:75 아세트산:물로 이루어졌다 (포름알데히드의 첨가 전에). 3 개의 샘플은 다양한 레벨의 탄산암모늄을 사용하여 생산되었다: 0, 및 ~100 및 ~25 R/C. 네 번째 샘플은 ~25 R/C의 비로 아세트산 암모늄을 첨가함으로써 제조되었다. 이들 샘플을 손으로 파쇄하여 입자를 생성시키고, 액체 질소 내에 침지시킴으로써 동결시키고, 동결건조시켰다.

[0271] 이들 제제 및 이들의 비표면적의 요약은 표 4에 제시된다. 10:1 및 1:1의 더 낮은 R/C 비로 아세트산 암모늄을 사용하여 생산된 추가의 샘플이 또한 표에 포함된다. 촉매의 부재 하에서 제조된 샘플은 색상이 밝은 오렌지색이었으며, 건조시킨 후에 크리오겔은 약 340 m^2/g의 비표면적을 가졌다. 탄산암모늄 또는 아세트산 암모늄을 함유하는 이들 샘플은 색상이 더 어두워졌으며 (특히, 100 R/C 샘플의 경우), 또한 자연적으로는 덜 탁한 것으로 나타났다. 그러나, 아세트산 암모늄의 최고 레벨, 즉 R/C 1:1에서 생산된 샘플은 점조도에 있어서 매우 점토와 유사하고 습윤되었으며, 극도로 작은 표면적을 나타내었다. 촉매가 없는 이들 계열의 크리오겔에 비해서, 탄산나트륨 또는 나트륨 아세테이트를 25:1 내지 100:1의 R/C로 함유하는 것은 700 m^2/g 이상의 훨씬 더 큰 비표면적을 가졌다. 10 및 1의 R/C로 아세트산 암모늄을 사용하여 제조된 샘플은 각각 약 427 m^2/g 및 3.4 m^2/g의 더 작은 표면적을 제공하였다.

[0272] 도 4는 이들 샘플 중의 일부에 대한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다. 촉매가 없이 제조된 샘플은 1000 Å의 공극 폭 상에서 상당한 점증 공극 용적 및 약 13 Å에서의 이차 피크와 함께 약 100 내지 1000 Å 이상에서 넓은 피크를 가졌으며, BHJ 흡착 평균 공극 폭은 193 Å이었다. 약 100 R/C 탄산암모늄의 첨가는 분포를 상당히 이동시켰지만, DFT 흡착 평균 공극 크기는 촉매가 없이 관찰된 것과 유사하였다 (약 200 Å). 약 25 R/C 탄산암모늄 또는 아세트산 암모늄을 함유하는 샘플은 분포를 더 작은 공극 폭 쪽으로 이동시켜서 각각 약 92 Å 및 104 Å의 DFT 평균 공극 크기를 제공하였다. 모든 샘플은 약 12 내지 16 Å의 공극 폭 범위에 걸친 점증하는 공극 용적에서 피크를 나타내었다.

표 4

[0273] 25:75 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로부터 생산된 RF 겔의 요약 (포름알데히드의 첨가 전)

샘플	R/S	R/C	최종 pH	겔화 조건	건조 겔 비표면적 (m^2/g)

003-118-1	0.3	∞	2.3		469
003-118-2	0.3	97	2.9		722
003-118-3	0.3	25	3.3		724
003-118-4 (아세트산 암모늄)	0.3	24	3.1	O/N @ 90℃	728
003-127-3 (아세트산 암모늄)	0.3	10	3.5		427
003-127-4 (아세트산 암모늄)	0.3	1	3.9		3.4
약어: R/S = 용매에 대한 레조르시놀의 비 (g/㎖로); R/C = 촉매에 대한 레조르시놀의 비 (g/g로); O/N = 밤새, 전형적으로 약 18 시간					

[0274] 실시예 5

[0275] 10:90 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로 RF 겔의 생산

[0276] 샘플의 유사한 계열을 10:90 아세트산:물을 사용하여 제조하였다 (포름알데히드의 첨가 전에). 3 개의 샘플은 다양한 레벨의 탄산암모늄을 사용하여 생산하였다: 0, 및 ~100 및 ~25 R/C. 네 번째 샘플은 ~25 R/C의 비로 아세트산 암모늄을 첨가하여 제조하였다. 이들 샘플을 손으로 파쇄하여 입자를 생성시키고, 액체 질소 중에 침지시킴으로써 동결시키고, 동결건조시켰다.

[0277] 이들 제제 및 이들의 비표면적의 요약은 표 5에 제시된다. 촉매가 없이 제조된 이 계열의 샘플은 시각적으로는 다소 모놀리식이었지만 점조도에 있어서는 매우 점토와 유사하고 습윤되었으며, 매우 밝은 오렌지 색상이었다. 건조시키면, 상기 물질은 < 1 ㎡/g의 극도로 작은 표면적을 나타내었다. 암모늄염을 갖는 샘플은 색상이 더 어두워졌고, 덜 탁한 것으로 나타났다. 이들 샘플은 또한, 크리오겔에서 훨씬 더 큰 비표면적을 나타내었다. 또한, 암모늄염이 더 큰 레벨에 대해서 비표면적이 증가하는 경향이 있었다.

[0278] 도 5는 암모늄염을 포함하는 이 계열로부터의 샘플에 대한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다. 3 가지 샘플 모두에 대해서 분포는 더 큰 양의 촉매의 존재 하에서 분포가 매우 약간 이동하는 경향을 가지고 유사하였다. 특히, BHJ 흡착 평균 공극 폭은 R/C 25:1 탄산암모늄 및 아세트산 암모늄의 존재 하에서 각각 187 Å 및 201 Å인 것과 비교하여 탄산암모늄 R/C 100:1의 존재 하에서 338 Å이었다.

표 5

[0279] 10:90 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로부터 생산된 RF 겔의 요약 (포름알데히드의 첨가 전)

샘플	R/S	R/C	최종 pH	겔화 조건	건조 겔 비표면적 (㎡/g)
003-116-3	0.3	∞	2.2		0.5
003-116-1	0.3	99	2.9	O/N @ 90℃	327±10
003-116-2	0.3	25	3.6		429
03-116-4	0.3	24	3.2		539±175
약어: R/S = 용매에 대한 레조르시놀의 비 (g/㎖로); R/C = 촉매에 대한 레조르시놀의 비 (g/g로); O/N = 밤새, 전형적으로 약 18 시간					

[0280] 실시예 6

[0281] 1:99 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로부터 RF 겔의 생산

[0282] 또한, 물에 대한 아세트산의 더 작은 비, 즉 1:99를 검사하였다 (포름알데히드의 첨가 전에). 3 개의 샘플은 다양한 레벨의 탄산암모늄을 사용하여 생산하였다: 0, 및 ~100 및 ~25 R/C. 네 번째 샘플은 ~25 R/C의 비로 아세트산 암모늄을 첨가하여 제조하였다. 이들 샘플을 손으로 파쇄하여 입자를 생성시키고, 액체 질소 중에 침지시킴으로써 동결시키고, 동결건조시켰다.

[0283] 이들 제제 및 이들의 비표면적의 요약은 표 6에 제시된다. 모든 샘플은 점조도에 있어서 점토와 유사하고 습윤되었다. 촉매가 없이 제조된 샘플은 1.5 ㎡/g의 극도로 작은 표면적을 나타내었다. 더 큰 양의 아세트산으로 생산된 샘플과 비교하여, 이 계열의 샘플은 일반적으로 색상이 더 밝은 오렌지색이고, 자연적으로는 탁하였다. 암모늄염이 첨가된 샘플은 140 내지 278 ㎡/g의 범위의 적당하게 큰 비표면적을 나타내었지만, 일반적으로 더

큰 아세트산 함량에서 제조된 샘플에 대해서 수득된 값보다 더 작았다.

표 6

[0284] 1:99 아세트산:물 (vol:vol) 용액으로부터 생산된 RF 겔의 요약 (포름알데히드의 첨가 전)

샘플	R/S	R/C	최종 pH	겔화 조건	건조 겔 비표면적 (㎡/g)
003-119-1	0.3	∞	2.9	O/N @ 90℃	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
약어: R/S = 용매에 대한 레조르시놀의 비 (g/㎖로); R/C = 촉매에 대한 레조르시놀의 비 (g/g로); O/N = 밤새, 전형적으로 약 18 시간					

[0285] 실시예 7

[0286] 다양한 RF 겔에 대한 pH와 표면 특징 사이의 관계

[0287] 모든 샘플에 대한 비표면적 대 pH의 플롯은 도 6에 제시된다. 알 수 있는 바와 같이, 여기에는 pH가 감소함에 따라 더 큰 비표면적 쪽으로의 일반적 경향이 있었다. 그러나, 주목할 만한 예외는 샘플 003-116-3 및 003-119-1 (이들은 검사한 두가지 최저 아세트산 함량으로부터 생산된 물질이며, 어떤 암모늄염도 함유하지 않는다), 및 샘플 003-127-4 (이것은 25% 아세트산 및 검사한 아세트산 암모늄의 최고량, R/C=1로부터 제조되었다)이다. pH 대 DFT 흡착 평균 공극 폭의 유사한 플롯은 식별할 수 있는 어떤 경향도 나타내지 않는다. 따라서, pH 단독으로는 RF 초고순도의 폴리머 겔에서의 공극 폭 분포를 조정하기 위한 조절 변수인 것으로 보이지 않으며, 반드시 첨가된 촉매, 이 경우에는 염기성 암모늄염, 특히 카보네이트 또는 아세테이트의 양 (및 타입)과 함께 고려되어야 한다.

[0288] 실시예 8

[0289] 25:75 아세트산:물 및 0.6의 RS 비로부터 RF 겔의 생산

[0290] 표 7은 25:75 아세트산:물로부터 생산된 RF 초고순도의 폴리머 겔에 대한 데이터를 제시하며, 이 경우에 RS는 비교적 높은, 즉 0.6이다. 이 계열의 샘플은 경질의 모놀리식이었으며, 암모늄염을 갖는 샘플은 어떤 암모늄염도 존재하지 않는 상응하는 초고순도의 폴리머 겔 (271 ㎡/g의 비표면적)에 비해서 현저하게 더 큰 비표면적 (591 내지 612 ㎡/g)을 나타내었다.

표 7

[0291] 25:75 아세트산:물 (vol:vol) 용액 (포름알데히드의 첨가 전), 및 RS=0.6으로부터 생산된 RF 겔의 요약

샘플	R/S	R/C	최종 pH	겔화 조건	건조 겔 비표면적 (㎡/g)
006-048-1	0.6	∞	2.9	72 시간 @ 90℃	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
약어: R/S = 용매에 대한 레조르시놀의 비 (g/㎖로); R/C = 촉매에 대한 레조르시놀의 비 (g/g로)					

[0292] 실시예 9

[0293] RF 초고순도의 폴리머 겔의 열분해

[0294] 상기 언급된 것들로부터 8 개의 샘플을 열분해시켰다. 이들 샘플의 상세한 내용은 표 8에 제공된다. 표에서 모든 샘플은 900℃에서 60 분의 체류 시간 동안 배양함으로써 열분해시켰다. 열분해로 인한 중량 손실은 53±3%였다. 일반적으로, 열분해된 겔의 비표면적은 열분해 전의 건조 초고순도의 폴리머 겔에 대한 것과 유사하였다.

표 8

[0295] 열분해된 샘플의 요약

샘플	건조 겔 비표면적 (m^2/g)	열분해 중량 손실 (%)	열분해된 겔 비표면적 (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

[0296] 열분해된 겔에서 공극 크기 분포는 열분해 전의 건조 초고순도의 폴리머 겔에 대한 분포와 연관되었다. 구체적으로, 여기에서는 점증하는 공극 용적 대 공극 폭이 더 작은 공극 폭 쪽으로 이동하는 경향이 있었다. 예를 들어, 도 7은 열분해하기 전 (도 7a) 및 후 (도 7b)에 샘플 003-117-2에 대한 점증하는 공극 용적 대 공극 폭을 나타낸다. 전반적인 분포는 유사하였고 열분해 후에 더 작은 공극 폭 쪽으로의 약간의 이동이 있었음을 알 수 있다.

[0297] 추가의 예는 각각 샘플 003-117-4, 003-118-2, 003-118-3, 및 003-118-4에 대한 도 8, 도 9, 도 10 및 도 11에 제공된다. 각각의 경우에, 열분해된 샘플 (도 8b, 9b, 10b, 및 11b)에서의 공극 폭 분포는 열분해 전의 건조 초고순도의 폴리머 겔을 반영한다 (및 더 작은 공극 폭 쪽으로 약간 하향 이동이 있다) (도 8a, 9a, 10a, 및 11a). 이들 데이터는 건조 초고순도의 폴리머 겔에서의 조정가능성이 열분해된 물질에 대한 조정가능성으로 이전되는 것을 나타내는 데 있어서 중요하다.

[0298] 실시예 10

[0299] 초고순도의 합성 활성 탄소 물질의 제조

[0300] 초고순도의 합성 활성 탄소 물질은 열분해된 샘플로부터 제조되었다. 생산된 초고순도의 합성 활성 탄소 물질의 요약은 표 9에 제시된다. 활성화 공정 중의 중량 손실 퍼센트 대 비표면적의 플롯은 도 12에 도시된다. 알 수 있는 바와 같이, 여기에는 활성화 중량 손실이 증가함에 따라서 비표면적이 증가하는 경향이 있었다. 여기에서는 열분해된 물질에서 더 큰 비표면적을 갖는 샘플이 소정의 활성화 중량 손실의 경우에 활성 탄소에서 더 큰 비표면적을 갖는 경향이 있다는 경향이 관찰되었다. 이들 데이터는 큰 비표면적의 초고순도의 합성 활성 탄소 물질이 본 발명에 기술된 초고순도의 폴리머 겔 제제로부터 생산될 수 있음을 보여준다.

표 9

[0301] 활성 탄소 샘플의 요약

샘플	열분해된 겔 비표면적 (m^2/g)	활성화 조건	활성화 (총) 중량 손실 (%)	활성 탄소 비표면적 (m^2/g)
003-116-4 AC	743	20 분 900℃	13	910
003-116-4 AC2		110 분 900℃	87	2895
003-117-1 AC	697	90 분 900℃	40	1565
003-117-3 AC	548	45 분 900℃	38	1245
003-117-3 AC2		90 분 900℃	98	2906
003-117-4 AC	573	45 분 1000℃	41	1808
003-118-4 AC	689±24	100 분 900℃	25	1203
003-118-4 AC2		45 분 1000℃	83	2716

[0302] 여기에 기술된 RF 초고순도의 폴리머 겔로부터 생산된 활성 탄소에 대한 공극 용적 분포의 예는 도 13에 제시된다. 이 경우에, 초고순도의 합성 활성 탄소, 즉 003-118-AC2는 열분해된 샘플을 반영하는 공극 용적 분포를 나타낸다 (참조: 도 11). 이들 데이터는 초고순도의 폴리머 겔에서 공극 및 표면 특징을 조정하는 능력이 초고순도의 폴리머 겔로부터 생산된 초고순도의 합성 열분해 및 초고순도의 합성 활성 탄소 물질에서 상기 특징을 조정하는 능력으로 이동될 수 있음을 나타내는데 있어서 중요하다.

[0303] 실시예 11

[0304] 건조 초고순도의 폴리머 겔의 제조

[0305] 본 발명에 기술된 방법에 따라 초고순도의 폴리머 겔은 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄으로부터 제조하였다. 그 후, 이 물질을 겔화가 이루어지도록 하는 상승된 온도에 배치하여 초고순도의 폴리머 겔을 생성시켰다. 초고순도의 폴리머 겔 입자를 초고순도의 폴리머 겔로부터 생성시켜, 4750 미크론 메쉬 체를 통해서 통과시켰으며, 상기 초고순도의 폴리머 겔 입자는 액체 질소에 침지시킴으로써 동결시키고, 3 내지 7 g/in^{2}의 부하율로 동결건조 트레이 내에 부하시키고, 동결건조시켰다. 건조까지의 시간 (생성물이 선반 온도의 2℃ 이내에 도달하는 시간으로부터 추론됨)은 동결건조기 선반 상의 생성물 부하량과 연관되었다.

[0306] 건조 겔의 표면적은 마이크로메리틱스 (Micromeritics) 표면적 및 다공성 분석기 (모델 TriStar II)를 사용하는 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 500 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0307] 실시예 12

[0308] 건조 초고순도의 폴리머 겔로부터 초고순도의 열분해 합성 탄소 물질의 생산

[0309] 실시예 11에 기술된 바와 같은 건조 겔을 200 ℓ/h 속도의 질소 가스 흐름과 함께 850℃의 회전로 (3.75 in 내부 직경을 갖는 알루미나 튜브)를 통해 통과시킴으로써 열분해시켰다. 열분해에 의한 중량 손실은 약 52%였다.

[0310] 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. 표준 BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 600 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0311] 실시예 13

[0312] 초고순도의 합성 활성 탄소의 생산

[0313] 실시예 12에 기술된 바와 같은 열분해된 합성 탄소 물질을 30 ℓ/분의 CO_2 유속에서 900℃의 회전로 (2.75 in 내부 직경을 갖는 알루미나 튜브)를 통해서 수회 통과시킴으로써 활성화시켜 약 45%의 총 중량 손실을 제공하였다.

[0314] 초고순도의 합성 활성 탄소의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 1600 내지 2000 ㎡/g의 범위였다.

[0315] 실시예 14

[0316] 젯트 밀링에 의한 초고순도의 합성 활성 탄소의 미분화 (micronization)

[0317] 실시예 13으로부터의 초고순도의 합성 활성 탄소를 젯트 풀버라이저 미크론 매스터 (Jet Pulverizer Micron Master) 2 인치 직경 젯트 밀을 사용하여 젯트 밀링하였다. 조건은 시간당 약 0.7 lbs의 초고순도의 합성 활성 탄소, 분당 약 20 scf의 질소 가스 흐름 및 약 100 psi 압력이었다. 젯트 밀링 후의 평균 입자 크기는 약 8 내지 10 미크론이었다.

[0318] 실시예 15

[0319] 건조 초고순도의 폴리머 겔의 제조

[0320] 본 발명에 기술된 방법에 따라 초고순도의 폴리머 겔을 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄으로부터 제조하였다. 그 후, 물질을 겔화가 이루어지도록 하는 상승된 온도에 배치하여 초고순도의 폴리머 겔을 생성시켰다. 초고순도의 폴리머 겔 입자를 초고순도의 폴리머 겔로부터 생성시키고 4750 미크론 메쉬 체를 통해서 통과시켰으며, 상기 초고순도의 폴리머 겔 입자는 액체 질소에 침지시킴으로써 동결시키고, 3 내지 7 g/in^{2}의 부하율로 동결건조 트레이에 부하시키고, 동결건조시켰다. 건조까지의 시간 (생성물이 선반 온도의 2℃ 이내에 도달하는 시간으로부터 추론됨)은 동결건조기 선반 상의 생성물 부하량과 연관되었다.

[0321] 건조 겔의 표면적은 마이크로메리틱스 표면적 및 다공성 분석기 (모델 TriStar II)를 사용하는 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 500 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0322] 실시예 16

[0323] 건조 초고순도의 폴리머 겔로부터 초고순도의 열분해 합성 탄소 물질의 생산

[0324] 실시예 15에 기술된 바와 같은 건조 겔을 200 ℓ/h 속도의 질소 가스 흐름에서 850℃의 회전로 (3.75 인치 내부 직경을 갖는 석영 튜브)를 통해서 통과시킴으로써 열분해시켰다. 열분해에 의한 중량 손실은 약 51%였다.

[0325] 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. 표준 BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 600 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0326] 실시예 17

[0327] 초고순도의 합성 활성 탄소의 제조

[0328] 실시예 16에 기술된 바와 같은 열분해된 합성 탄소 물질을 6.7 ℓ/분의 CO_2 유속 하에 실리카 튜브 (3.75 인치 내부 직경) 내에서 900℃로 배양함으로써 활성화시켜 약 54%의 최종 중량 손실 (출발 열분해된 탄소와 비교하여)을 달성하였다.

[0329] 건조 겔의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 1600 내지 2000 ㎡/g의 범위였다.

[0330] 실시예 18

[0331] 초고순도의 합성 활성 탄소 및 비교용 탄소의 순도 분석

[0332] 초고순도의 합성 활성 탄소 샘플을 양자 유도된 x-선 방출 (PIXE)에 의해서 그들의 불순물 함량에 대해 검사하였다. PIXE는 샘플 내의 원자를 여기시켜 특징적인 X-선을 생성시키고, 이것을 검출하여 그들의 강도를 확인하고 정량화함으로써 동시 원소 분석을 하기 위한 산업-표준 고감도 및 정밀 측정방법이다. PIXE는 11 내지 92 범위의 원자 번호를 갖는 모든 원소 (즉, 나트륨부터 우라늄까지)를 검출할 수 있다.

[0333] 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 합성 활성 탄소뿐만 아니라 비교 목적의 다른 활성 탄소에 대한 PIXE 불순물 (Imp.) 데이터는 표 10에 제시된다. 샘플 1은 실시예 13의 초고순도의 합성 활성 탄소이며, 샘플 2는 실시예 14의 초고순도의 합성 미분화 활성 탄소이고, 샘플 3은 실시예 17의 초고순도의 합성 활성 탄소이며, 샘플 4는 실시예 35의 초고순도의 합성 활성 탄소이고, 샘플 5는 실시예 38의 초고순도의 합성 활성 탄소이며, 샘플 6은 Kansai Coke and Chemicals Co., Ltd. (Kakogawa, Japan)로부터 입수한 "MSP-20"으로 표시된 활성 탄소이고, 샘플 7은 Kuraray Chemical Co. (Osaka, Japan)로부터 입수한 "YP-50F(YP-17D)"로 표시된 활성 탄소이다.

[0334] 표 10에서 볼 수 있는 바와 같이, 본 발명에 따르는 초고순도의 합성 활성 탄소는 다른 공지의 활성 탄소 샘플과 비교하여 더 작은 PIXE 불순물 함량 및 더 작은 회분 함량을 갖는다.

표 10

[0335] 초고순도의 합성 활성 탄소 및 비교용 탄소의 순도 분석

불순물	불순물 농도 (PPM)						
	샘플 1	샘플 2	샘플 3	샘플 4	샘플 5	샘플 6	샘플 7
Na	ND*	ND	ND	ND	ND	353.100	ND
Mg	ND	ND	ND	ND	ND	139.000	ND
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
총 (회분 %)	104.190 (0.018)	134.697 (0.025)	35.676 (<0.007)	31.010 (0.006)	31.44 (0.006)	805.142 (0.13)	1024.198 (0.16)
*ND = PIXE 분석에 의해서 검출되지 않음.							

[0336] 실시예 19

[0337] 초고순도의 합성 활성 탄소의 전기화학적 성능

[0338] 실시예 13의 초고순도의 합성 활성 탄소 (즉, 샘플 #1)를 그의 전기화학적 성능에 대해서, 특히 EDLC에서 전극 물질로서의 그의 성능에 대해서 분석하였다. 전극, EDLC, 및 그들의 시험에 대한 구체적인 상세한 사항은 이하에 기술된다.

[0339] 캐패시터 전극은 99 중량부의 탄소 입자 (평균 입자 크기 5-15 미크론) 및 1 중량부의 테플론으로 이루어졌다. 탄소 및 테플론은, 테플론이 잘 분포되고, 복합체가 약간의 물리적 일체성을 갖게 될 때까지 유발 및 유봉에서 곤죽으로 만들었다. 혼합한 후에, 복합체를 약 50 미크론 두께의 평평한 시트로 롤링시켰다. 직경이 약 1.59 ㎝인 전극 디스크를 시트로부터 펀칭하였다. 전극을 드라이 박스에 부착된 진공 오븐 내에 배치하고, 195℃에서 12 시간 동안 가열하였다. 이렇게 하여 전극 제조 중에 대기로부터 흡착된 물을 제거하였다. 건조시킨 후에 전극을 실온으로 냉각시키고, 오븐 내의 대기를 아르곤으로 충전시키고, 전극을 드라이 박스 내로 이동시켜 여기에서 캐패시터를 제조하였다.

[0340] 탄소 전극을 1 인치 (2.54 ㎝) 직경 탄소-코팅된 알루미늄 호일 디스크, 및 알루미늄에 열밀봉된 50 미크론 두께의 폴리에틸렌 개스킷 링에 의해서 형성된 공동(cavity) 내에 배치하였다. 그 후, 제2 전극을 동일한 방식으로 제조하였다. 아세토니트릴 중의 1.8 M 테트라에틸렌 암모늄 테트라플루오로보레이트를 포함하는 전해질의 2 방울을 각각의 전극에 첨가하였다. 각각의 전극을 0.825 인치 직경의 다공성 폴리프로필렌 분리막으로 덮었다. 2 개의 전극의 절반을 서로 마주하는 분리막과 함께 샌드위치시키고, 전체 구조를 함께 가열 압착시켰다.

[0341] 완료되면, 캐패시터는 정전위 (potentiostat)/함수 발생기 (function generator)/주파수 응답 분석기를 사용하는 전기적 시험을 준비하였다. 전류용량은 전류 펄스를 기지의 지속기간 동안 적용하고, 생성된 전압 프로파일을 측정하는 것을 포함하는 정전류 방전 방법에 의해서 측정되었다. 소정의 시간 및 종결 전압을 선택함으로써 전류용량은 수학식 C = It/ΔV로부터 계산되었으며, 여기에서 C = 전류용량, I = 전류, t = 원하는 전압에 도달하는 시간, 및 ΔV = 초기 및 최종 전압 사이의 전압 차이이다. 2 개의 탄소 전극의 중량 및 용적을 기초로 한 비전류용량은 전류용량을 각각 중량 및 용적으로 나누어줌으로써 수득되었다. 이 데이터는 2.7 내지 1.89 V 사이의 방전에 대하여 표 11에 보고한다.

표 11

[0342] 전류용량 성능 파라메터의 요약

전류용량 성능 파라메터	측정된 값
중량 파워*	13.1 W/g
용적 파워*	8.7 W/cc
중량 에너지*	4.8 Wh/kg
용적 에너지*	3.2 Wh/리터
중량 전류용량 @ RC=5**	22 F/g
용적 전류용량 @ RC=5**	15 F/cc
중량 전류용량 @ RC=20‡	27 F/g
용적 전류용량 @ RC=20‡	18 F/cc
* 0.5 초 시상수에서 AN 중의 TEATFB를 사용하여 2.7 내지 1.89 볼트의 정전류 방전에 의함. ** 5-초 시상수에서 2.7 내지 0.1 V의 정전류 방전에 의함. ‡ 20-초 시상수에서 2.7 내지 0.1 V의 정전류 방전에 의함.	

[0343] 실시예 20

[0344] 초고순도의 합성 활성 탄소의 제조

[0345] 실시예 12에 기술된 바와 같은 열분해된 합성 탄소 물질을 15 ℓ/분의 CO_2 유속 하에 실리카 튜브 (3.75 인치 내부 직경) 내에서 900℃로 배양함으로써 활성화시켜 약 55%의 최종 중량 손실 (출발 열분해된 탄소와 비교하여)을 달성하였다.

[0346] 건조 겔의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 2000 ㎡/g의 범위였다. 초고순도의 합성 활성 탄소의 공극 용적 (Dv50)은 약 1.8 ㎚의 공극 크기에서 측정되었다. 초고순도의 합성 활성 탄소의 공극 용적 (Dv5)은 약 0.5 ㎚의 공극 크기에서 측정되었다. 초고순도의 합성 활성 탄소의 측정된 총 공극 용적은 1.42 ㏄/g이었다.

[0347] 실시예 21

[0348] 초고순도의 합성 활성 탄소의 미분화

[0349] 실시예 20으로부터의 초고순도의 합성 활성 탄소를 젯트 풀버라이저 미크론 매스터 2 인치 직경 젯트 밀을 사용하여 젯트 밀링하였다. 조건은 시간당 약 0.7 lbs의 초고순도의 합성 활성 탄소, 분당 약 20 scf의 질소 가스 흐름 및 약 100 psi 압력이었다. 젯트 밀링 후의 평균 입자 크기 (Dv50)는 약 6 미크론이었다. 젯트 밀링 후의 Dv95는 약 19 미크론이었다. 초고순도의 합성 활성 탄소의 측정된 총 회분 함량은 0.008%였다. 초고순도의 합성 활성 탄소의 측정된 탭밀도는 0.22 g/㏄였다.

[0350] 실시예 22

[0351] 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 전기 이중층 캐패시터 장치

[0352] 실시예 21의 초고순도의 합성 활성 탄소가 이하에 기술되는 바와 같이 전기 이중층 캐패시터 장치를 위한 전극 물질로 사용되었다.

[0353] 캐패시터 전극은 99 중량부의 탄소 입자 (평균 입자 크기 5-15 미크론) 및 1 중량부의 테플론으로 이루어졌다. 탄소 및 테플론은, 테플론이 잘 분포되고, 복합체가 약간의 물리적 일체성을 갖게 될 때까지 유발 및 유봉에서 곤죽으로 만들었다. 혼합한 후에, 복합체를 약 50 미크론 두께의 평평한 시트로 롤링시켰다. 직경이 약 1.59 ㎝인 전극 디스크를 시트로부터 펀칭하였다. 전극을 드라이 박스에 부착된 진공 오븐 내에 배치하고, 195℃에서 12 시간 동안 가열하였다. 이렇게 하여 전극 제조 중에 대기로부터 흡착된 물을 제거하였다. 건조시킨 후에 전극을 실온으로 냉각시키고, 오븐 내의 대기를 아르곤으로 충전시키고, 전극을 드라이 박스 내로 이동시켜 여기에서 캐패시터를 제조하였다.

[0354] 탄소 전극을 1 인치 (2.54 ㎝) 직경 탄소-코팅된 알루미늄 호일 디스크, 및 알루미늄에 열밀봉된 50 미크론 두께의 폴리에틸렌 개스킷 링에 의해서 형성된 공동 내에 배치하였다. 그 후, 제2 전극을 동일한 방식으로 제조하였다. 아세토니트릴 중의 1.8 M 테트라에틸렌 암모늄 테트라플루오로보레이트를 포함하는 전해질의 2 방울을 각각의 전극에 첨가하였다. 각각의 전극을 0.825 인치 직경의 다공성 폴리프로필렌 분리막으로 덮었다. 2 개의 전극의 절반을 서로 마주하는 분리막과 함께 샌드위치시키고, 전체 구조를 함께 가열 압착시켰다.

[0355] 실시예 23

[0356] 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 전기 이중층 캐패시터 장치의 전기화학적 성능

[0357] 실시예 22에 기술된 장치를 정전위/함수 발생기/주파수 응답 분석기를 사용하는 전기적 시험에 적용하였다. 전류용량은 전류 펄스를 기지의 지속기간 동안 적용하고, 시간의 경과에 따라 생성된 전압 프로파일을 측정하는 것을 포함하는 정전류 방전 방법에 의해서 측정되었다. 소정의 시간 및 종결 전압을 선택함으로써 전류용량은 수학식 C = It/ΔV로부터 계산되었으며, 여기에서 C = 전류용량, I = 전류, t = 원하는 전압에 도달하는 시간, 및 ΔV = 초기 및 최종 전압 사이의 전압 차이이다. 2 개의 탄소 전극의 중량 및 용적을 기초로 한 비전류용량은 전류용량을 각각 중량 및 용적으로 나누어줌으로써 수득되었다. 이 데이터는 2.7 내지 1.89 V 사이의 방전에 대하여 표 12에 보고한다.

표 12

[0358] 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 EDLC의 전류용량 성능 파라메터

전류용량 성능 파라메터	측정된 값
중량 파워*	28.8 W/g
용적 파워*	14.4 W/cc
중량 에너지*	7.4 Wh/kg
용적 에너지*	3.7 Wh/리터
중량 전류용량 @ RC=5**	28 F/g
용적 전류용량 @ RC=5**	14 F/cc
중량 전류용량 @ RC=20‡	29 F/g
용적 전류용량 @ RC=20‡	14 F/cc
* 0.5 초 시상수에서 AN 중의 TEATFB를 사용하여 2.7 내지 1.89 볼트의 정전류 방전에 의함. ** 5-초 시상수에서 2.7 내지 0.1 V의 정전류 방전에 의함. ‡ 20-초 시상수에서 2.7 내지 0.1 V의 정전류 방전에 의함.	

[0359] 실시예 24

[0360] 상업적으로 입수할 수 있는 활성 탄소를 포함하는 전기 이중층 캐패시터 장치의 전기화학적 성능

[0361] 비교를 위해서, 장치는 또한 2개의 다른 상업적으로 입수할 수 있는 활성 탄소로부터 제작되었다: 샘플 #6 및 샘플 #7. 이들 비교용 탄소에 대한 중량 및 용적 파워 및 중량 및 용적 에너지 성능 데이터는 2.7 내지 1.89 V 사이의 방전에 대하여 표 13에 보고한다.

표 13

[0362] 비교용 탄소에 대한 전류용량 성능 파라메터

전류용량 성능 파라메터	측정된 값 샘플 6	측정된 값 샘플 7
중량 파워*	11.2 W/g	7.7 W/g
용적 파워*	7.2 W/cc	6.2 W/cc
중량 에너지*	3.5 Wh/kg	3.0 Wh/kg
용적 에너지*	2.2 Wh/리터	2.4 Wh/리터
* 0.5 초 시상수에서 아세토니트릴 (AN) 중의 TEATFB를 사용하여 2.7 내지 1.89 볼트의 정전류 방전에 의함.		

[0363] 실시예 25

[0364] 전압 유지 조건 하에서 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 장치와 비교하여 상업적으로 이용할 수 있는 활성 탄소를 포함하는 전기 이중층 캐패시터 장치의 전기화학적 성능

[0365] 비교를 위해서, 장치는 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 합성 활성 탄소, 또는 상업적으로 입수할 수 있는 활성 탄소 샘플 #6으로부터 제작되었다. 초고순도의 합성 활성 탄소는 이하에 기술된 바와 같이 생산되었다.

[0366] 초고순도의 합성 활성 탄소 샘플 #8은 본 발명에 기술된 방법 (즉, 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄)에 따라 제조된 RF 초고순도의 폴리머 겔로부터 생산되었으며, 이것을 동결, 해동시키고, 약 -30℃의 동결건조기 선반 상에서 재-동결시킨 다음에 진공 하에서 건조시켰다. 그 후, 본 발명에 기술된 방법과 일치되는 것으로서 건조 초고순도의 폴리머 겔을 질소 가스 하에 850℃에서 열분해시키고, 이어서 CO_2 가스 흐름 하의 950℃에서 활성화시켰다. 이렇게 생산된 초고순도의 합성

활성 탄소는 약 0.42 g/㎤의 탭밀도, 약 1836 ㎡/g의 비표면적, 약 0.95 ㎤/g의 총 공극 용적, 총 공극 용적에 비해서 20 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극의 경우에 약 54%의 분별 공극 용적, 총 공극 용적에 비해서 100 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 82%의 분별 공극 용적, 총 공극 표면적에 비해서 20 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 81%의 분별 공극 표면적, 및 총 공극 표면적에 비해서 100 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 97%의 분별 공극 표면적을 가졌다.

[0367] 초고순도의 합성 활성 탄소 샘플 #9는 본 발명에 기술된 방법 (즉, 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄)에 따라 제조된 RF 초고순도의 폴리머 겔로부터 생산되었으며, 이것은 RF 초고순도의 폴리머 겔 입자를 액체 질소에 액침시킴으로써 동결시키고, 진공 하에서 건조시킨 다음에, 각각 650℃, 850℃ 및 850℃의 온도로 설정된 3 개의 고온 구역 (hot zone)을 갖는 로를 가로지르는 온도로 회전로에서 열분해시키고, 이 물질을 본 발명에 기술된 방법과 일치되는 것으로서 질소 가스 흐름 하에서 열분해에 적용하고, 이어서 CO_2 가스 흐름 하의 950℃에서 활성화시켰다. 초고순도의 합성 활성 탄소는 약 0.42 g/㎤의 탭밀도, 약 2148 ㎡/g의 비표면적, 약 0.93 ㎤/g보다 큰 총 공극 용적, 총 공극 용적에 비해서 20 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극의 경우에 약 72%의 분별 공극 용적, 총 공극 용적에 비해서 100 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 99%보다 큰 분별 공극 용적, 총 공극 표면적에 비해서 20 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 80%의 분별 공극 표면적, 및 총 공극 표면적에 비해서 100 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 99%의 분별 공극 표면적을 가졌다.

[0368] 상기 장치를 65℃에서 24 시간 동안 2.7 V에서의 전압 유지에 적용하였다. 그 후, 상기 장치를 0.5 A/g, 1 A/g, 4 A/g, 및 8 A/g의 전류 밀도에서 2.7 내지 1.89 V 사이의 정전류 방전으로부터 그들의 전류용량에 대해 시험하였다 (아세토니트릴 용매, TEATFB 전해질).

[0369] 전압 유지 공정 전에 비해서 잔류하는 상대적 중량 전류용량에 대한 데이터는 표 14 (샘플 #6) 및 표 15 및 표 16 (각각 초고순도의 합성 활성 탄소 샘플 8 및 9)에 제시된다. 이들 데이터는 상업적으로 입수할 수 있는 활성 탄소에 대한 전압 유지 공정 후에 용적 전류용량의 극적인 감소를 나타낸다. 반대로, 초고순도의 합성 활성 탄소를 함유하는 장치에 대한 성능의 감소는 훨씬 더 작았다.

표 14

[0370] 샘플 #6에 대한 전류용량 성능 파라메터

샘플	전류 밀도 (A/g)	전압 유지 전의 전류용량 %	전압 유지 후의 전류용량 %
샘플 #6	0.5	100%	69%
	1	100%	60%
	4	100%	20%
	8	100%	0.6%

표 15

[0371] 초고순도의 합성 활성 탄소 #8에 대한 전류용량 성능 파라메터

샘플	전류 밀도 (A/g)	전압 유지 전의 전류용량 %	전압 유지 후의 전류용량 %
초고순도의 합성 활성 탄소 #8	0.5	100%	91%
	1	100%	87%
	4	100%	58%
	8	100%	18%

표 16

[0372] 초고순도의 합성 탄소 #9에 대한 전류용량 성능 파라메터

샘플	전류 밀도 (A/g)	전압 유지 전의 전류용량 %	전압 유지 후의 전류용량 %
초고순도의 합성 활성 탄소 #9	0.5	100%	89%
	1	100%	85%
	4	100%	68%
	8	100%	54%

[0373] 실시예 26

[0374] 전압 유지 조건 하에서 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 장치와 비교하여 상업적으로 이용할 수 있는 활성 탄소를 포함하는 전기 이중층 캐패시터 장치의 전기화학적 성능

[0375] 비교를 위해서, 장치는 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 합성 활성 탄소, 또는 상업적으로 입수할 수 있는 활성 탄소 샘플 #6으로부터 제작되었다. 초고순도의 합성 활성 탄소는 이하에 기술된 바와 같이 생산되었다.

[0376] 초고순도의 합성 활성 탄소 샘플 #10은 본 발명에 기술된 방법 (즉, 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄)에 따라 제조된 RF 초고순도의 폴리머 겔로부터 생산되었으며, 이것을 약 -50℃의 동결건조기 선반 상에서 동결시킨 다음에 진공 하에서 건조시켰다. 그 후, 본 발명에 기술된 방법과 일치되는 것으로서 건조 초고순도의 폴리머 겔을 질소 가스 하에 850℃에서 열분해시키고, 이어서 CO_2 가스 흐름 하의 900℃에서 활성화시켰다. 이렇게 생산된 초고순도의 합성 활성 탄소는 약 0.307 g/㎤의 탭밀도, 약 1600 ㎡/g의 비표면적, 약 1.02 ㎤/g의 총 공극 용적, 총 공극 용적에 비해서 2 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극의 경우에 약 59%의 분별 공극 용적, 총 공극 용적에 비해서 10 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 76%의 분별 공극 용적, 총 공극 표면적에 비해서 2 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 94%의 분별 공극 표면적, 및 총 공극 표면적에 비해서 10 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 98%의 분별 공극 표면적을 가졌다.

[0377] 상기 장치를 실온에서 25 시간 동안 3.5 V에서의 전압 유지에 적용하였다. 그 후, 상기 장치를 1, 10, 50 mA의 정전류에서 3.5 내지 0.1 V 사이의 정전류 방전으로부터 그들의 전류용량에 대해 시험하였다 (프로필렌 카보네이트 용매, TEATFB 전해질).

[0378] 전압 유지 공정 전에 비해서 잔류하는 상대적 용적 전류용량에 대한 데이터는 표 17 (샘플 #6) 및 표 18 (초고순도의 합성 활성 탄소 샘플 #10)에 제시된다. 이들 데이터는 상업적으로 입수할 수 있는 활성 탄소에 대한 전압 유지 공정 후에 용적 전류용량의 극적인 감소를 나타낸다. 반대로, 초고순도의 합성 활성 탄소를 함유하는 장치에 대한 성능의 감소는 훨씬 더 작았다.

표 17

[0379] 샘플 #6에 대한 전류용량 성능 파라메터

샘플	방전 전류 (mA)	전압 유지 전의 전류용량 %	전압 유지 후의 전류용량 %
샘플 #6	1	100%	59%
	10	100%	63%
	50	100%	3%

표 18

[0380] 초고순도의 합성 활성 탄소 샘플 #10에 대한 전류용량 성능 파라메터

샘플	방전 전류 (mA)	전압 유지 전의 전류용량 %	전압 유지 후의 전류용량 %
초고순도의 합성 활성 탄소 #10	1	100%	101%
	10	100%	72%
	50	100%	59%

[0381] 실시예 27

[0382] 사이클링 조건 하에서 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 장치와 비교하여 상업적으로 이용할 수 있는 활성 탄소를 포함하는 전기 이중층 캐패시터 장치의 전기화학적 성능

[0383] 비교를 위해서, 장치는 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 합성 활성 탄소 물질, 또는 상업적으로 입수할 수 있는 활성 탄소 샘플 #6으로부터 제작되었다. 이들 상업적으로 입수할 수 있는 탄소에 대한 중량 및 용적 파워 및 중량 및 용적 에너지 성능 데이터는 2.7 내지 1.89 V 사이의 방전에 대해서 표 13에 제시된다. 초고순도의 합성 활성 탄소는 이하에 기술된 바와 같이 생산되었다.

[0384] 초고순도의 합성 활성 탄소 샘플 #11은 본 발명에 기술된 방법 (즉, 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄)에 따라 제조된 RF 초고순도의 폴리머 겔로부터 생산되었으며, 이것을 본 발명에 기술된 방법과 일치되는 것으로서 입자로 분쇄하고, 약 -30℃의 동결건조기 선반 상에서 동결시키고, 진공 하에서 건조시킨 다음에 질소 가스 하에 850℃에서 열분해시키고, 이어서 CO_2 가스 흐름 하의 900℃에서 활성화시켰다. 상기 초고순도의 합성 활성 탄소는 약 0.28 g/㎤의 탭밀도, 약 1754 ㎡/g의 비표면적, 약 1.15 ㎤/g의 총 공극 용적, 총 공극 용적에 비해서 20 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극의 경우에 약 53%의 분별 공극 용적, 총 공극 용적에 비해서 100 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 76%의 분별 공극 용적, 총 공극 표면적에 비해서 20 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 91%의 분별 공극 표면적, 및 총 공극 표면적에 비해서 100 ㎚ 또는 그 미만의 직경을 갖는 공극에 대해 약 99%의 분별 공극 표면적을 가졌다.

[0385] 상기 장치를 2 V 내지 1 V 사이에서 수 천회의 사이클링 현상에 적용시켰다 (아세토니트릴 용매, TEATFB 전해질). 데이터는 본 발명에 기술된 바와 같은 초고순도의 합성 활성 탄소 샘플 #11이 3000 사이클 후에 그의 원래의 전류용량의 99.78%를 보유함을 입증한다. 데이터는 정확하게 동일한 방식으로 제조된 샘플 #6 전극이 2600 사이클 후에 그의 원래의 전류용량의 단지 97.11%만을 보유하였음을 입증한다. 100%로부터 99.78%로의 분해는 두 가지 경우 모두에서 거의 완벽하게 선형이며, 따라서 이것이 10,000 사이클 이상까지 추정되면 초고순도의 탄소는 그의 원래의 전류용량의 99.25%를 보유할 것이며, 샘플 #8 캐패시터는 그의 원래의 전류용량의 단지 88.89%를 보유할 것이다. 이것은 초고순도의 합성 탄소가 샘플 #6과는 반대로 처음 수천 사이클 중에 실질적으로 더 안정함을 나타낸다 (ACN 중에서 2 V 내지 1 V에서 4 A/g으로의 사이클링 데이터). 알 수 있는 바와 같이, 초고순도의 합성 탄소는 비-초고순도의 탄소에 비해서 사이클링 후에 전류용량의 극적으로 개선된 보유를 나타낸다.

[0386] 실시예 28

[0387] 건조 초고순도의 폴리머 겔의 제조

[0388] 본 발명에 기술된 방법에 따라 초고순도의 폴리머 겔은 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄으로부터 제조되었다. 그 후, 상기 물질을 겔화가 이루어지도록 하는 상승된 온도에 배치하여 초고순도의 폴리머 겔을 생성시켰다. 초고순도의 폴리머 겔 입자를 초고순도의 폴리머 겔로부터 생성시키고, 부식 저항성 스테인레스 스틸 블레이드 및 5/8" 스크린이 갖추어진 스테드만 오로라 파쇄기 (Stedman Aurora crusher)를 통해서 통과시켰다. 초고순도의 폴리머 겔 입자는 액체 질소에 침지시킴으로써 동결시키고, 3 내지 7 g/in^2의 부하율로 동결건조 트레이 내에 부하시키고, 동결건조시켰다. 건조까지의 시간 (생성물이 선반 온도의 2℃ 이내에 도달하는 시간으로부터 추론됨)은 동결건조기 선반 상의 생성물 부하량과 연관되었다.

[0389] 건조 겔의 표면적은 마이크로메리틱스 표면적 및 다공성 분석기 (모델 TriStar II)를 사용하는 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 500 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0390] 실시예 29

[0391] 건조 초고순도의 폴리머 겔로부터 초고순도의 열분해 합성 탄소 물질의 생산

[0392] 실시예 28에 기술된 바와 같은 건조 겔을 4,250 ℓ/h 속도의 질소 가스 흐름과 함께 680 내지 850℃ 구배 고온 구역에서 0.7 kg/h로 회전로 (내부 직경이 4.18 인치인 멀라이트 라이너 (mullite liner)를 갖는 금속 튜브)를 통해 통과시킴으로써 열분해시켰다. 열분해에 의한 중량 손실은 약 50% 내지 52%였다.

[0393] 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. 표준 BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 600 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0394] 실시예 30

[0395] 초고순도의 합성 활성 탄소의 제조

[0396] 실시예 29에 기술된 바와 같은 열분해된 합성 탄소 물질을 6.7 ℓ/분의 CO_2 유속 하에 석영 튜브 (3.75 인치 내부 직경) 내에서 900℃로 배양함으로써 활성화시켜 약 55%의 최종 중량 손실 (출발 열분해된 탄소와 비교하여)을 달성하였다.

[0397] 활성 탄소 물질의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 2500 ㎡/g의 범위였다. 초고순도의 합성 활성 탄소의 공극 용적 (Dv50)은 약 1.8 ㎚의 공극 크기에서 측정되었다. 초고순도의 합성 활성 탄소의 공극 용적 (Dv5)은 약 0.5 ㎚의 공극 크기에서 측정되었다. 초고순도의 합성 활성 탄소의 측정된 총 공극 용적은 1.07 cc/g이었다.

[0398] 실시예 31

[0399] 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 전기 이중층 캐패시터 장치

[0400] 실시예 30의 초고순도의 합성 활성 탄소를 이하에 기술한 바와 같이 전기 이중층 캐패시터 장치를 위한 전극 물질로 사용하였다.

[0401] 캐패시터 전극은 97 중량부의 탄소 입자 (평균 입자 크기 5-15 미크론) 및 3 중량부의 테플론으로 이루어졌다. 탄소 및 테플론은, 테플론이 잘 분포되고, 복합체가 약간의 물리적 일체성을 갖게 될 때까지 유발 및 유봉에서 곤죽으로 만들었다. 혼합한 후에, 복합체를 약 50 미크론 두께의 평평한 시트로 롤링시켰다. 직경이 약 1.59 ㎝인 전극 디스크를 시트로부터 펀칭하였다. 전극을 드라이 박스에 부착된 진공 오븐 내에 배치하고, 195℃에서 12 시간 동안 가열하였다. 이렇게 하여 전극 제조 중에 대기로부터 흡착된 물을 제거하였다. 건조시킨 후에 전극을 실온으로 냉각시키고, 오븐 내의 대기를 아르곤으로 충전시키고, 전극을 드라이 박스 내로 이동시켜 여기에서 캐패시터를 제조하였다.

[0402] 표준 2325 스테인레스 스틸 코일 전지 부품이 코인 전지 조립체에서 사용되었다. 0.625 인치 직경의 탄소 코팅된 알루미늄 디스크가 양성 캡에서 접촉 저항성 리듀서 (contact resistance reducer)로서 사용되었다. 알루미늄 디스크 상부의 0.625 인치 직경 탄소 전극을 아세토니트릴 중의 1.0 M 테트라에틸렌 암모늄 테트라플루오로보레이트를 포함하는 전해질 몇 방울로 포화시켰다. 그 후, NKK, Inc.로부터의 0.825 인치의 2 피스 (piece)의 셀룰로즈 기본 다공성 분리막을 탄소 디스크 상에 배치하였다. 다음으로, 두 번째 피스의 탄소 전극을 분리막 상에 배치하고, 추가로 1 방울의 전해질을 첨가하여 상부 표면을 습윤시켰다. 그 후에, 제2 탄소 코팅된 알루미늄 접촉 저항성 리듀서를 전극 상에 놓았다. 그 후, 하나의 스테인레스 스페이서 (spacer) 및 스프링 (spring)을 연속적으로 배치하고, 전체 스택 (stack)을 폴리프로필렌 그로밋 (grommet)을 사용하여 음성 캡으로 덮었다. 그 후, 전체 전지 스택을 유압 작동된 크림퍼 (crimper) 상에 올려놓고 최대 압력으로 1 분 동안 크림핑하여 밀봉된 코인 전지를 형성시켰다.

[0403] 실시예 32

[0404] 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 전기 이중층 캐패시터 장치의 전기화학적 성능

[0405] 실시예 31에 기술된 장치를 정전위/함수 발생기/주파수 응답 분석기를 사용하는 전기적 시험에 적용하였다. 전류용량은 전류 펄스를 기지의 지속기간 동안 적용하고, 시간의 경과에 따라 생성된 전압 프로파일을 측정하는 것을 포함하는 정전류 방전 방법에 의해서 측정되었다. 소정의 시간 및 종결 전압을 선택함으로써 전류용량은 수학식 C = It/ΔV로부터 계산되었으며, 여기에서 C = 전류용량, I = 전류, t = 원하는 전압에 도달하는 시간, 및 ΔV = 초기 및 최종 전압 사이의 전압 차이이다. 2 개의 탄소 전극의 중량 및 용적을 기초로 한 비전류용량

은 전류용량을 각각 중량 및 용적으로 나누어줌으로써 수득되었다. 이 데이터는 2.7 내지 1.89 V 사이의 방전에 대하여 표 19에 보고한다.

표 19

[0406] 초고순도의 합성 활성 탄소를 포함하는 EDLC의 전류용량 성능 파라메터

전류용량 성능 파라메터	측정된 값
중량 파워*	16.9 W/g
용적 파워*	11.7 W/cc
중량 에너지*	20.6 Wh/kg
용적 에너지*	14.3 Wh/리터
중량 전류용량 @ 0.5 A/g	30.5 F/g
용적 전류용량 @ 0.5 A/g	21.4 F/cc
중량 전류용량 @ 1.0 A/g	29.6 F/g
용적 전류용량 @ 1.0 A/g	20.8 F/cc
중량 전류용량 @ 4.0 A/g	24.6 F/g
용적 전류용량 @ 4.0 A/g	17.2 F/cc
중량 전류용량 @ 8.0 A/g	18.7 F/g
용적 전류용량 @ 8.0 A/g	13.1 F/cc
* AN 중의 TEATFB를 사용하여 2.7 내지 1.89 볼트의 정전류 방전에 의함.	

[0407] 실시예 33

[0408] 건조 초고순도의 폴리머 겔의 제조

[0409] 본 발명에 기술된 방법에 따라 초고순도의 폴리머 겔은 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄으로부터 제조하였다. 그 후, 이 물질을 겔화가 이루어지도록 하는 상승된 온도에 배치하여 초고순도의 폴리머 겔을 생성시켰다. 초고순도의 폴리머 겔 입자를 초고순도의 폴리머 겔로부터 생성시켜, 4750 미크론 메쉬 체를 통해서 통과시켰으며, 상기 초고순도의 폴리머 겔 입자는 3 내지 7 g/in^{2}의 부하율로 동결건조 트레이 내에 부하시키고, 약 -40℃로 전-냉각된 동결건조 선반 상에서 동결시키고, 동결건조시켰다. 건조까지의 시간 (생성물이 선반 온도의 2℃ 이내에 도달하는 시간으로부터 추론됨)은 동결건조기 선반 상의 생성물 부하량과 연관되었다.

[0410] 건조 겔의 표면적은 마이크로메리틱스 표면적 및 다공성 분석기 (모델 TriStar II)를 사용하는 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 500 내지 600 ㎡/g의 범위였다.

[0411] 실시예 34

[0412] 건조 초고순도의 폴리머 겔로부터 초고순도의 열분해 합성 탄소 물질의 생산

[0413] 실시예 11에 기술된 바와 같은 건조 겔을 200 ℓ/h 속도의 질소 가스 흐름과 함께 850℃의 회전로 (3.75 in 내부 직경을 갖는 석영 튜브)를 통해 통과시킴으로써 열분해시켰다. 열분해에 의한 중량 손실은 약 52%였다.

[0414] 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. 표준 BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 500 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0415] 실시예 35

[0416] 초고순도의 합성 활성 탄소의 생산

[0417] 실시예 12에 기술된 바와 같은 열분해된 합성 탄소 물질을 400 ℓ/h의 CO_2 유속 하에서 900℃의 회전로 (3.75 in 내부 직경을 갖는 석영 튜브)를 통해서 배취식 공정으로 활성화시켜 약 45%의 총 중량 손실을 제공하였다.

[0418] 초고순도의 합성 활성 탄소의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 1600 내지 2000 ㎡/g의 범위였다. 이 탄소를 여기에서는 샘플 4로 칭할 것이다.

[0419] 실시예 36

[0420] 건조 초고순도의 폴리머 겔의 제조

[0421] 본 발명에 기술된 방법에 따라 초고순도의 폴리머 겔을 물 및 아세트산 (75:25)으로 이루어진 이상 용매 시스템, 레조르시놀, 포름알데히드, 및 아세트산 암모늄으로부터 제조하였다. 그 후, 물질을 겔화가 이루어지도록 하는 상승된 온도에 배치하여 초고순도의 폴리머 겔을 생성시켰다. 초고순도의 폴리머 겔 입자를 초고순도의 폴리머 겔로부터 생성시키고 4750 미크론 메쉬 체를 통해서 통과시켰으며, 상기 초고순도의 폴리머 겔 입자는 3 내지 7 g/in^2의 부하율로 동결건조 트레이에 부하시키고, 약 -40℃로 전-냉각된 동결건조기 선반 상에서 동결시키고, 동결건조시켰다. 건조까지의 시간 (생성물이 선반 온도의 2℃ 이내에 도달하는 시간으로부터 추론됨)은 동결건조기 선반 상의 생성물 부하량과 연관되었다.

[0422] 건조 겔의 표면적은 마이크로메리틱스 표면적 및 다공성 분석기 (모델 TriStar II)를 사용하는 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 500 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0423] 실시예 37

[0424] 건조 초고순도의 폴리머 겔로부터 초고순도의 열분해 합성 탄소 물질의 생산

[0425] 실시예 11에 기술된 바와 같은 건조 겔을 200 ℓ/h 속도의 질소 가스 흐름에서 850℃의 회전로 (3.75 인치 내부 직경을 갖는 석영 튜브)를 통해서 통과시킴으로써 열분해시켰다. 열분해에 의한 중량 손실은 약 52%였다.

[0426] 열분해된 건조 초고순도의 폴리머 겔의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. 표준 BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 500 내지 700 ㎡/g의 범위였다.

[0427] 실시예 38

[0428] 초고순도의 합성 활성 탄소의 제조

[0429] 실시예 12에 기술된 바와 같은 열분해된 합성 탄소 물질을 400 ℓ/h의 CO_2 유속 하에서 900℃의 회전로 (3.75 인치 내부 직경을 갖는 석영 튜브)를 통해서 배취식 공정으로 활성화시켜 약 44%의 최종 중량 손실을 제공하였다.

[0430] 초고순도의 합성 활성 탄소의 표면적은 표면적 및 다공성 분석기를 사용한 질소 표면 분석에 의해서 검사하였다. BET 방법을 사용하여 측정된 비표면적은 약 1600 내지 2000 ㎡/g의 범위였다. 이 탄소를 여기에서는 샘플 5로 칭할 것이다.

[0431] 실시예 39

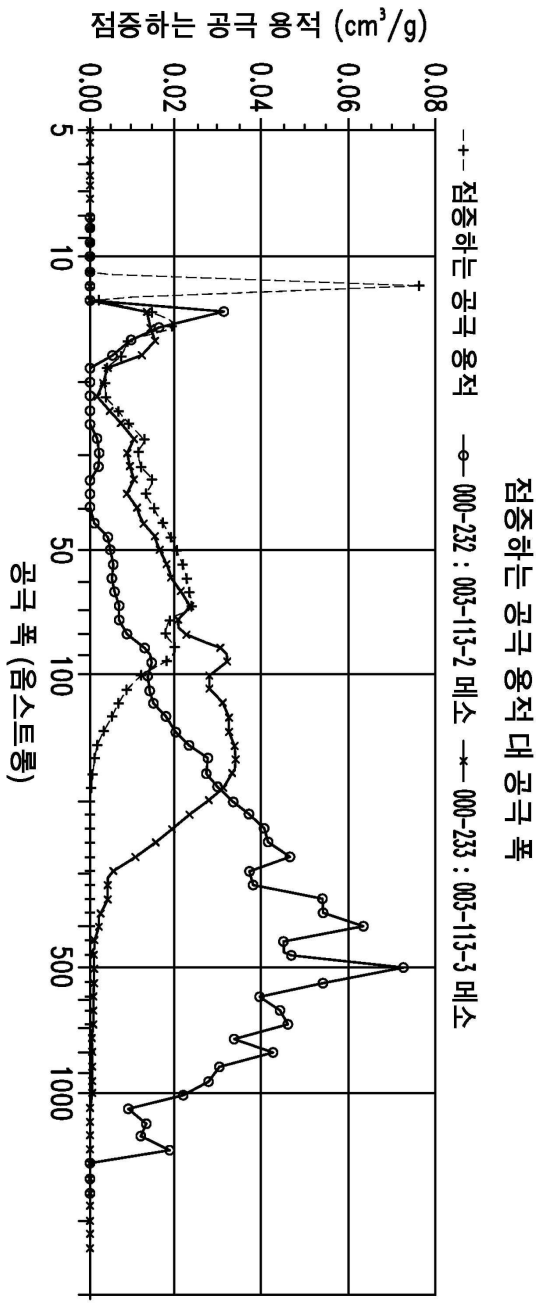
[0432] 초고순도의 합성 활성 탄소에 대한 H, N, O의 측정

[0433] 샘플 1로 나타낸 합성 활성 탄소 물질을 Elemental Analysis, Inc. (Lexington, KY)에서 H, N 및 O에 대해 분석하였다. 이 데이터는 수소 함량이 0.25%였고, 질소 함량이 0.21%였으며, 산소 함량이 0.53%였음을 나타내었다.

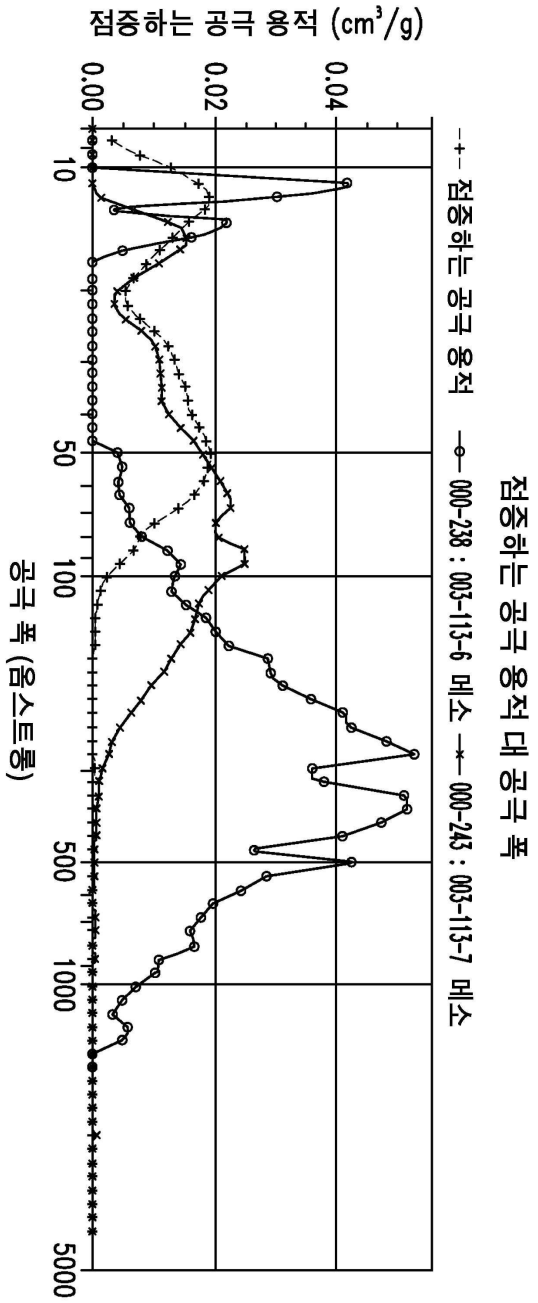
[0434] 상술한 다양한 구체예를 조합하여 추가의 구체예를 제공할 수 있다. 본 명세서에서 인용되고/되거나 출원 데이터 시트에 열거된 모든 미국 특허, 미국 특허출원 공개, 미국 특허출원, 해외 특허, 해외 특허출원 및 비-특허 문헌은 온전히 참고로 본 발명에 포함된다. 구체예의 양상은 필요에 따라, 다양한 특허, 출원 및 공개의 개념을 이용하여 변형시켜 추가의 구체예를 제공할 수 있다. 이들 및 그 밖의 다른 변화는 상기의 상세한 설명에 비추어 구체예에 대하여 이루어질 수 있다. 일반적으로, 이하의 특허청구범위에서 사용된 용어는 특허청구범위를 명세서 및 특허청구범위에 기술된 특정의 구체예로 제한하는 것으로 이해되지는 않아야 하며, 이러한 특허청구범위가 권리를 갖는 전체 범위의 등가물과 함께 모든 가능한 구체예를 포함하는 것으로 이해되어야 한다. 따라서, 특허청구범위는 명세서로 제한되지 않는다.

도면

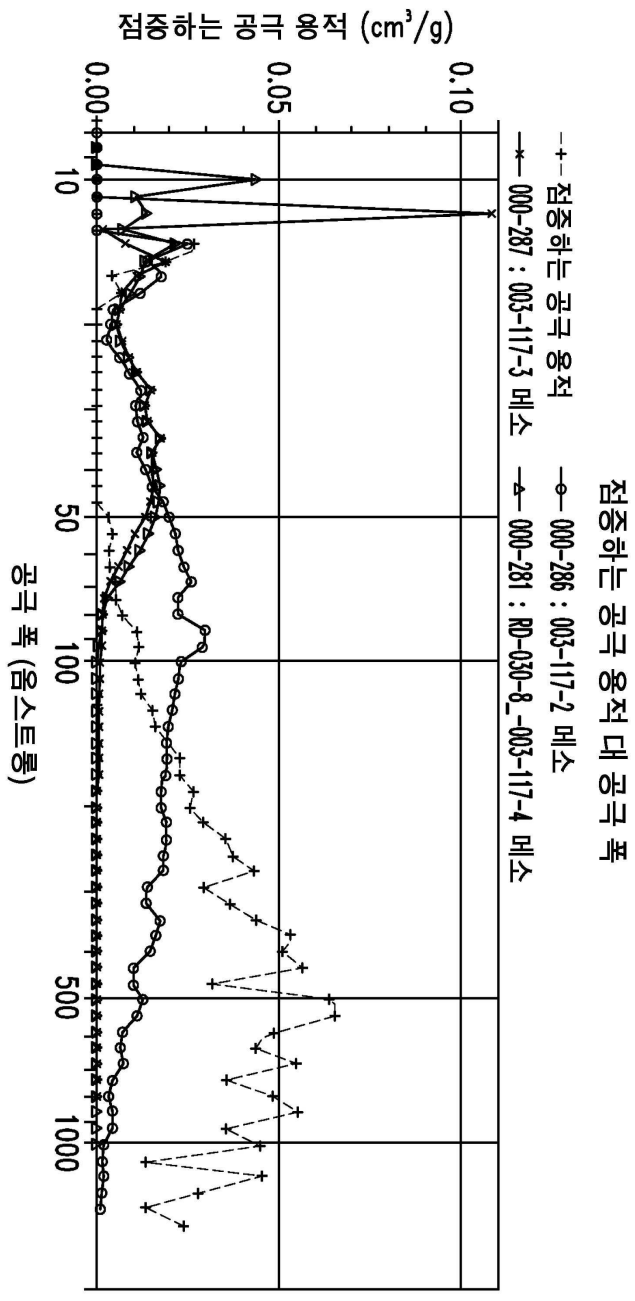
도면1


점증하는 공극 용적 대 공극 폭
점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.02
0.04
0.06
0.08
5
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롱)
점증하는 공극 용적
000-232 : 003-113-2 메소
000-233 : 003-113-3 메소

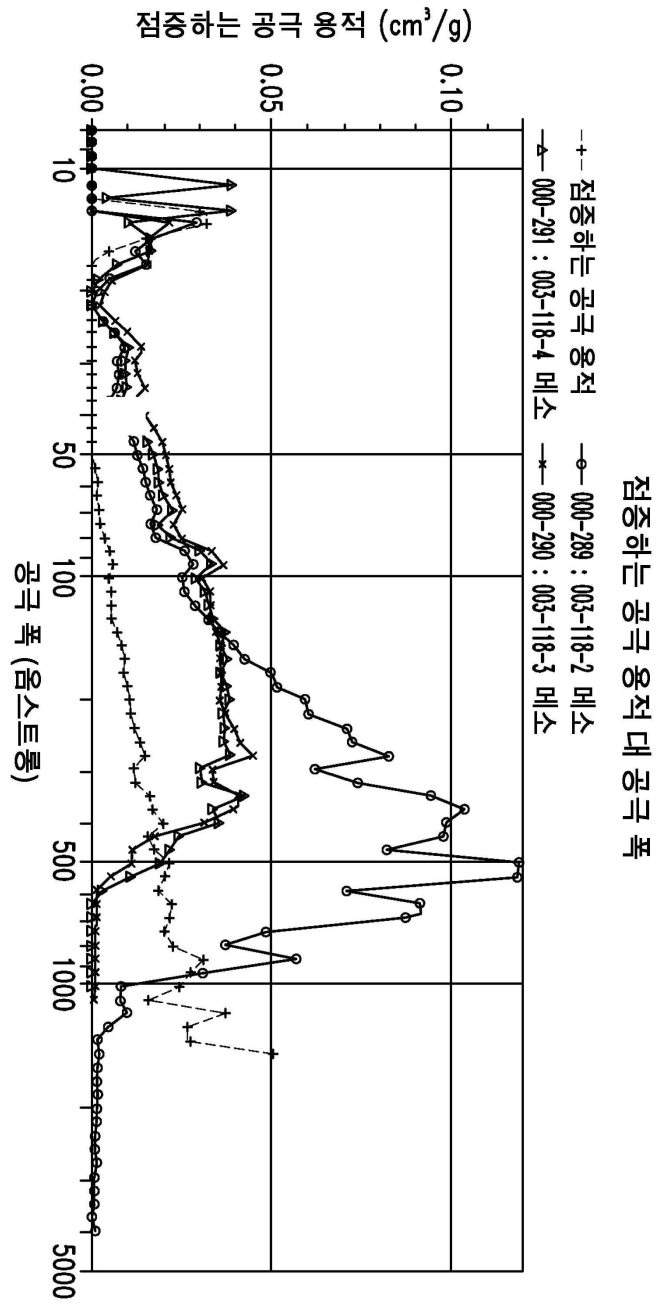
도면2


점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.02
0.04
10
50
100
500
1000
5000
공극 폭 (옹스트롱)
점증하는 공극 용적 대 공극 폭
점증하는 공극 용적
000-238 : 003-113-6 메소
000-243 : 003-113-7 메소

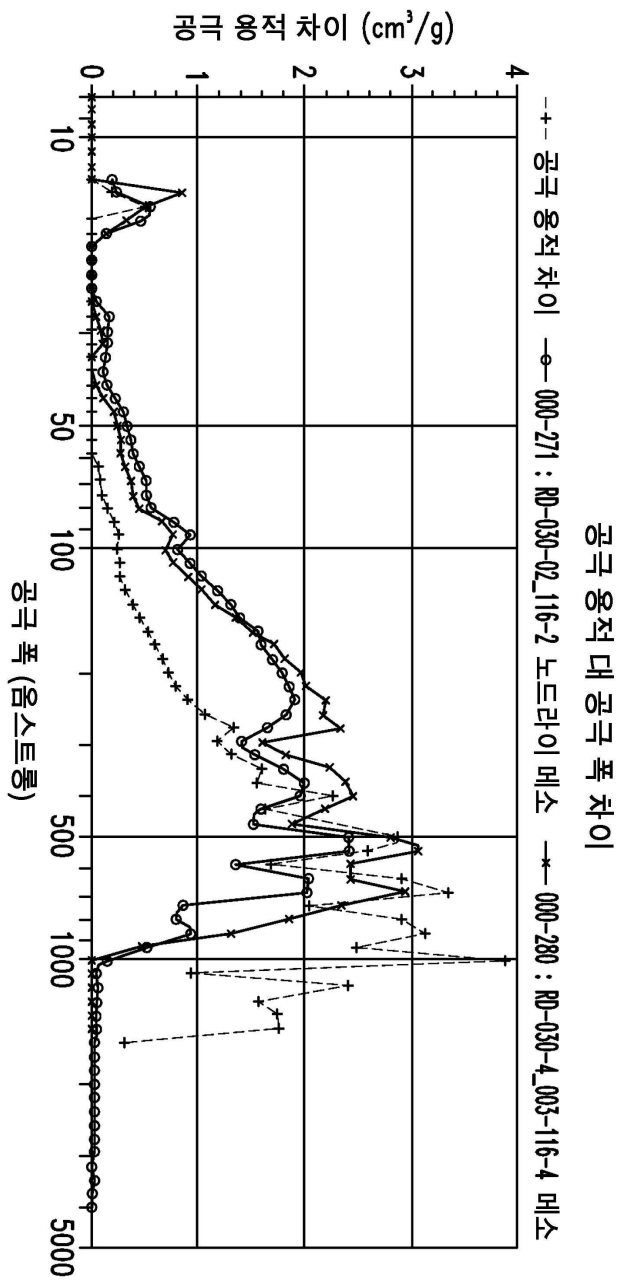
도면3


점증하는 공극 용적 대 공극 폭
점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.05
0.10
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롱)
점증하는 공극 용적
000-286 : 003-117-2 메소
000-287 : 003-117-3 메소
000-281 : RD-030-8_-003-117-4 메소

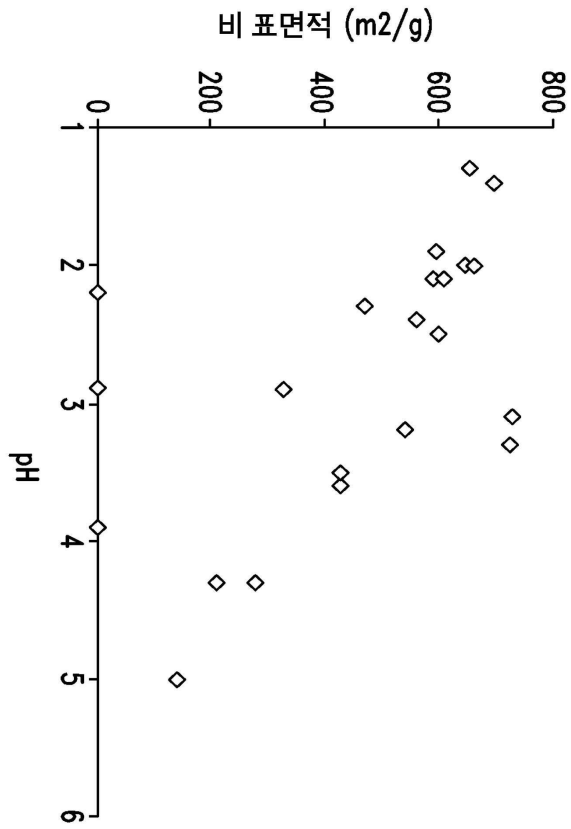
도면4


점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.05
0.10
10
50
100
500
1000
5000
공극 폭 (옹스트롬)
점증하는 공극 용적 대 공극 폭
점증하는 공극 용적
000-289 : 003-118-2 메소
000-291 : 003-118-4 메소
000-290 : 003-118-3 메소

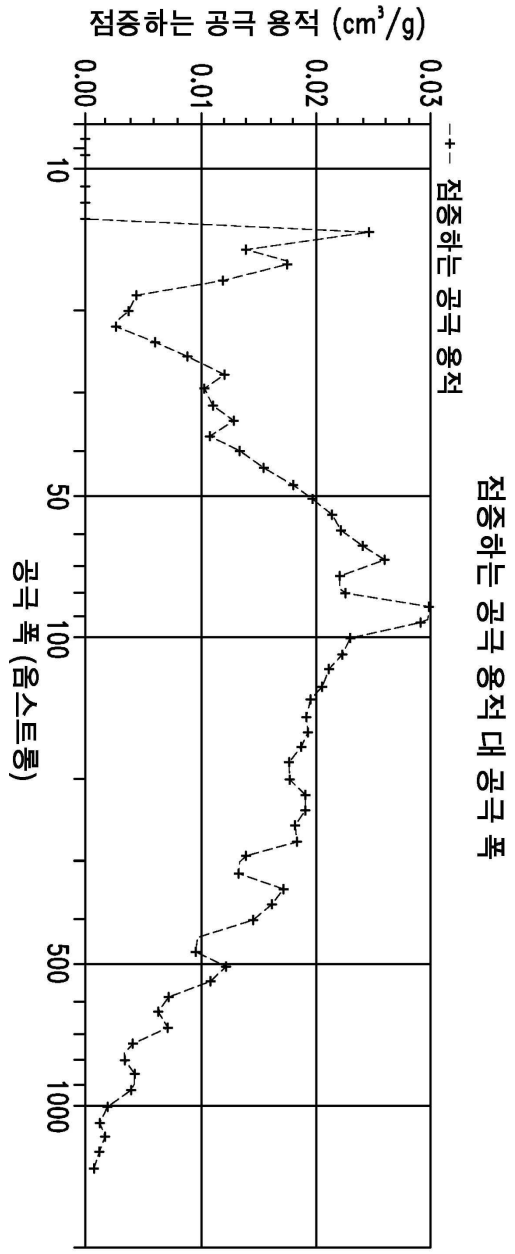
도면5


공극 용적 대 공극 폭 차이
공극 용적 차이 (cm³/g)
공극 폭 (옴스트롱)
공극 용적 차이
000-271 : RD-030-02_116-2 노드라이 메소
000-280 : RD-030-4_003-116-4 메소
0
1
2
3
4
10
50
100
500
1000
5000

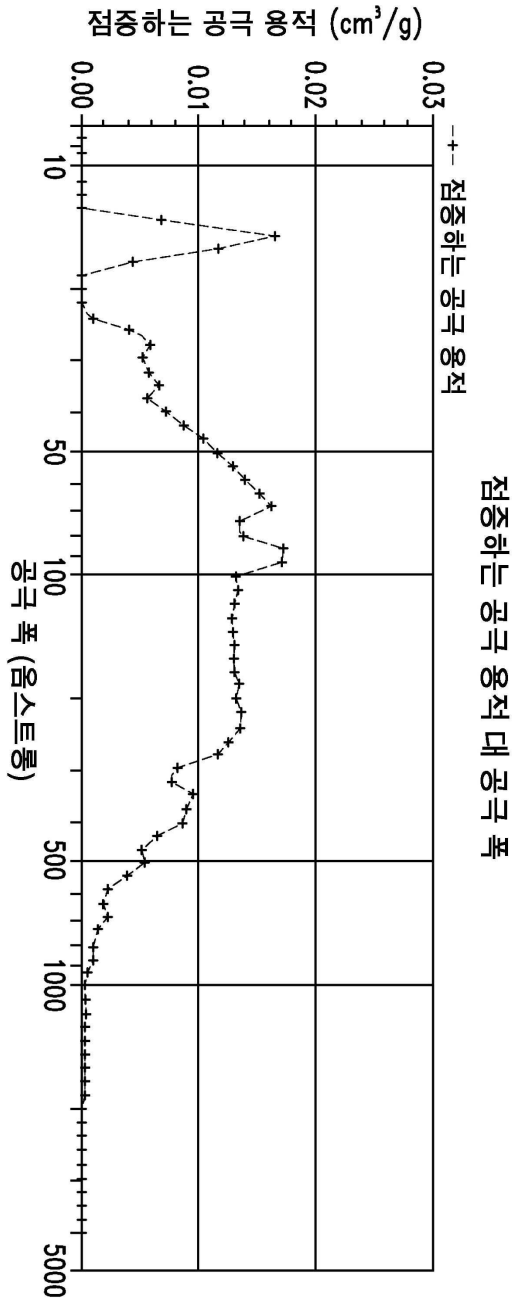
도면6



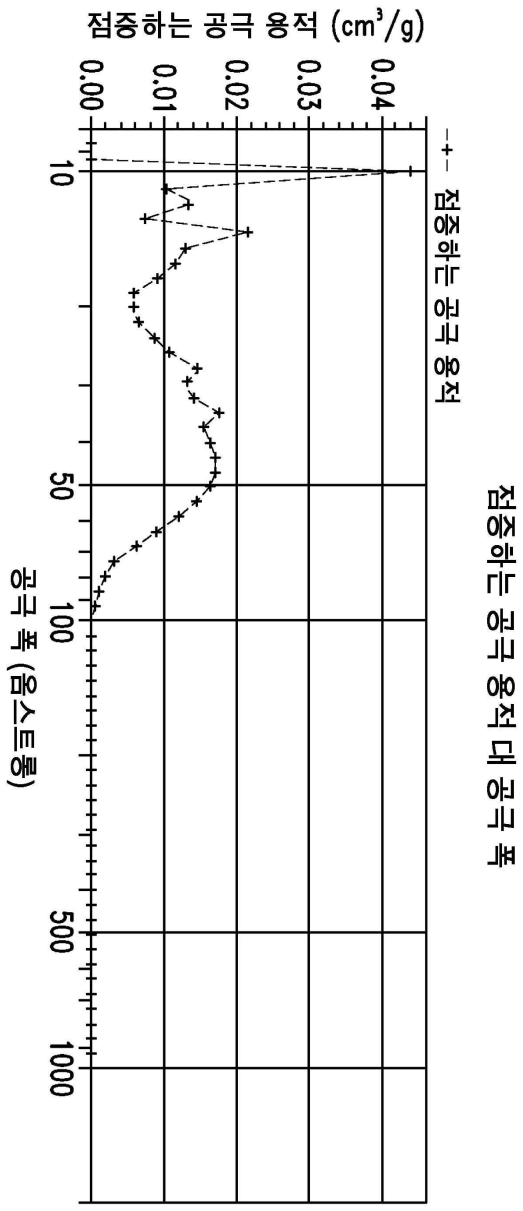
도면7a


점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.01
0.02
0.03
점증하는 공극 용적
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롬)
점증하는 공극 용적 대 공극 폭

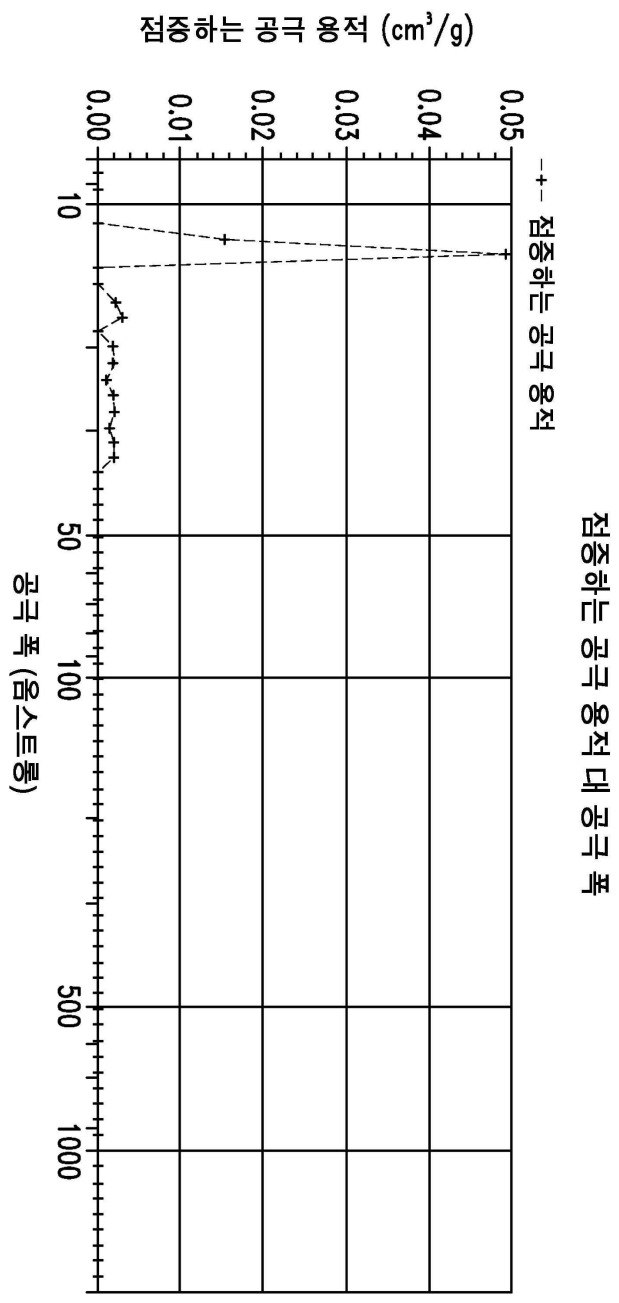
도면7b


점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.01
0.02
0.03
10
50
100
500
1000
5000
공극 폭 (옴스트롱)
점증하는 공극 용적
점증하는 공극 용적 대 공극 폭

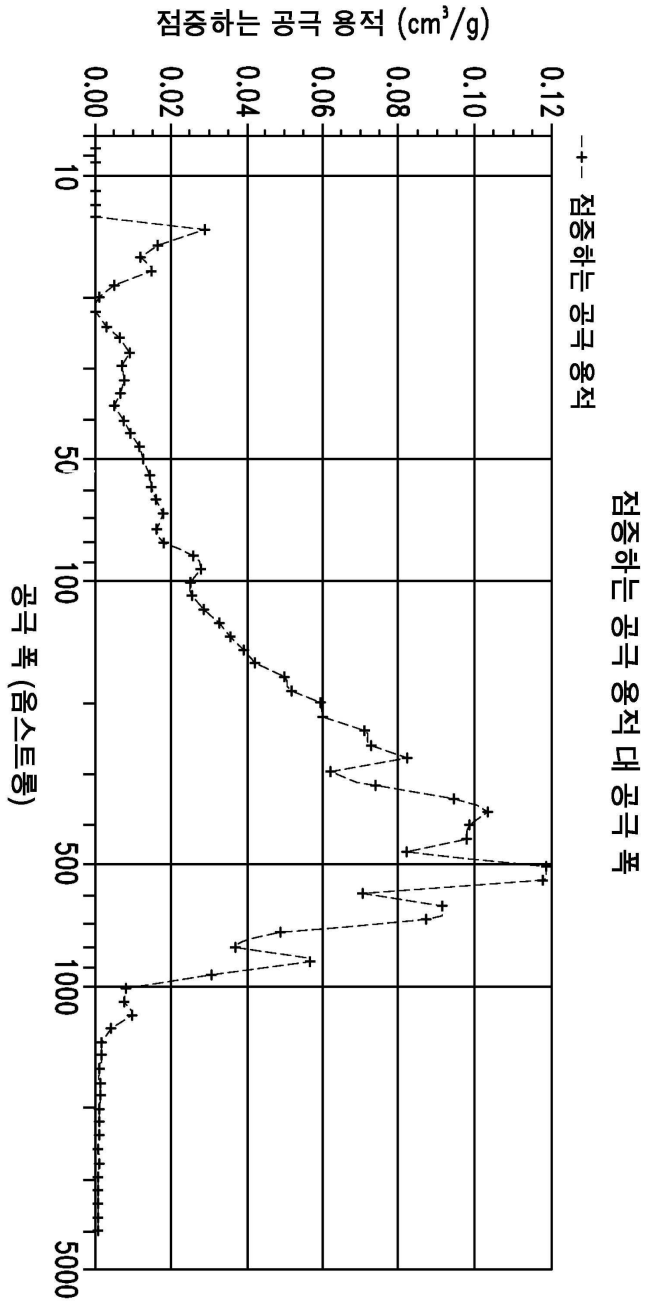
도면8a


점중하는 공극 용적 (cm^3/g)
0.00
0.01
0.02
0.03
0.04
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롱)
점중하는 공극 용적
점중하는 공극 용적 대 공극 폭

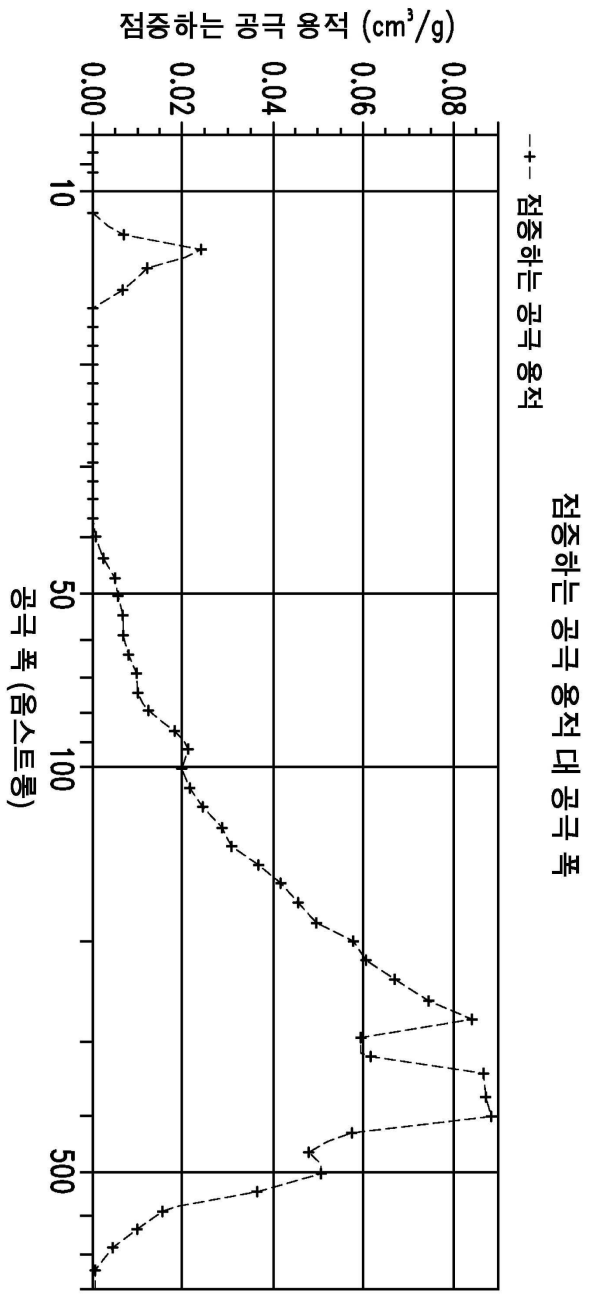
도면8b


점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.01
0.02
0.03
0.04
0.05
점증하는 공극 용적
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롬)
점증하는 공극 용적 대 공극 폭

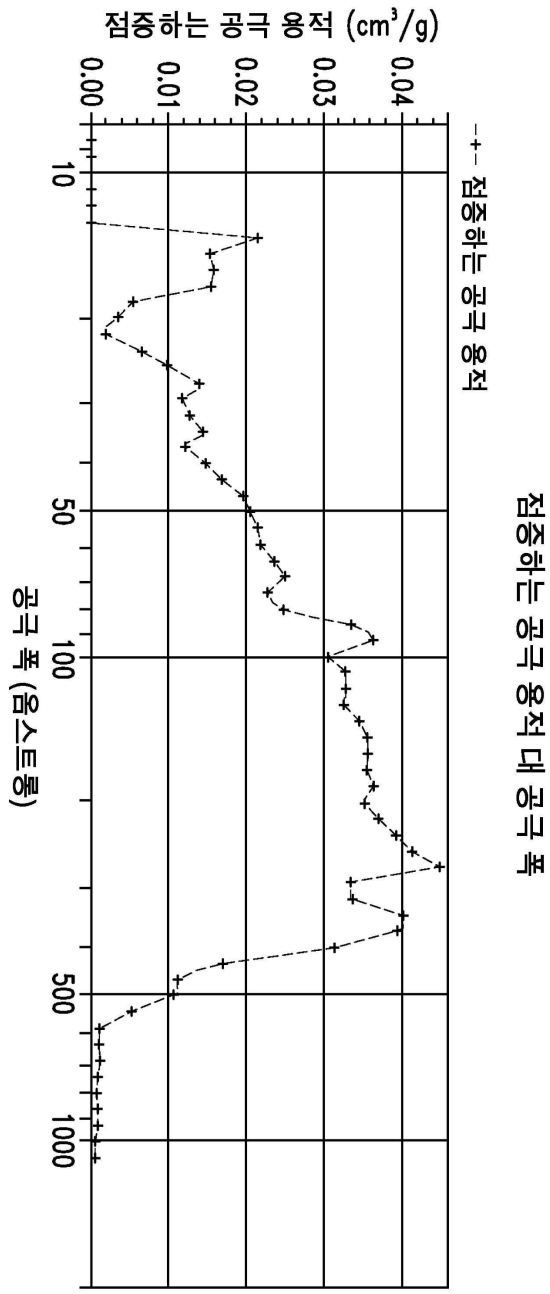
도면9a


점중하는 공극 용적 (cm^3/g)
0.00
0.02
0.04
0.06
0.08
0.10
0.12
10
50
100
500
1000
5000
공극 폭 (옹스트롱)
점중하는 공극 용적
점중하는 공극 용적 대 공극 폭

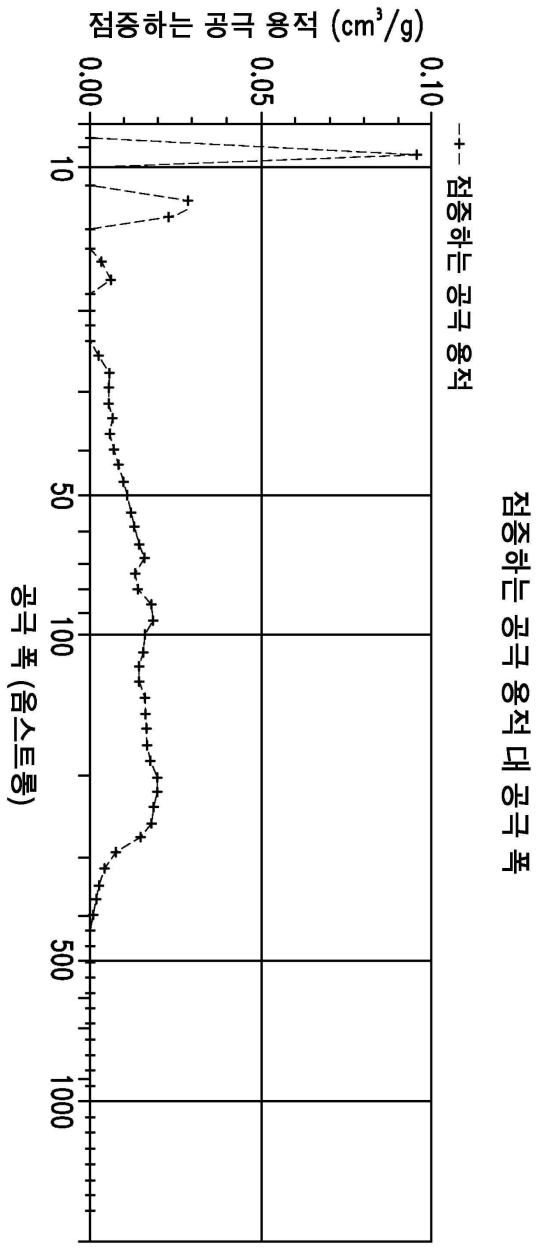
도면9b


점증하는 공극 용적 대 공극 폭
점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.02
0.04
0.06
0.08
10
50
100
500
공극 폭 (옹스트롬)
점증하는 공극 용적

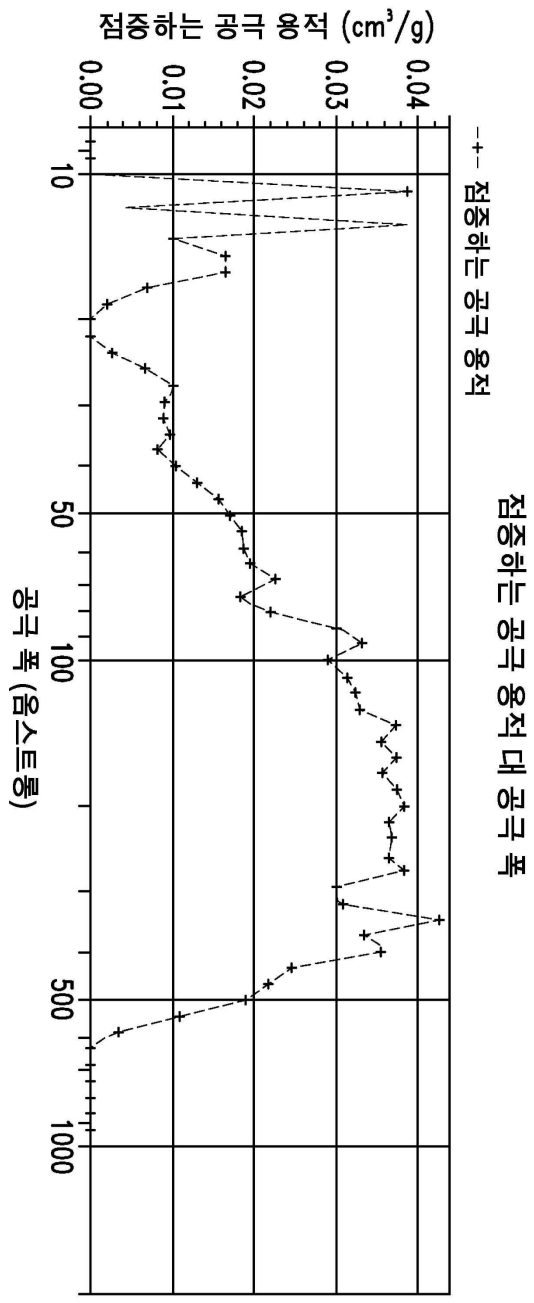
도면10a


점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.01
0.02
0.03
0.04
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롱)
점증하는 공극 용적
점증하는 공극 용적 대 공극 폭

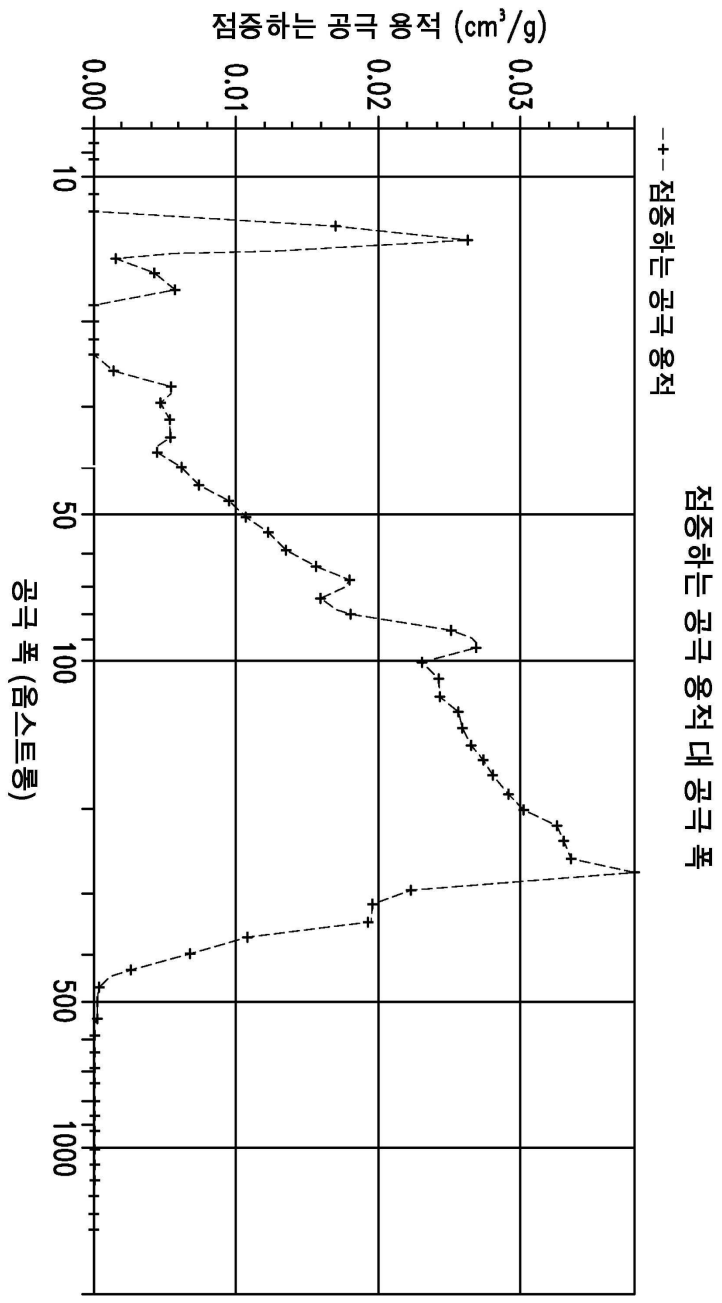
도면10b


점중하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.05
0.10
점중하는 공극 용적
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롱)
점중하는 공극 용적 대 공극 폭

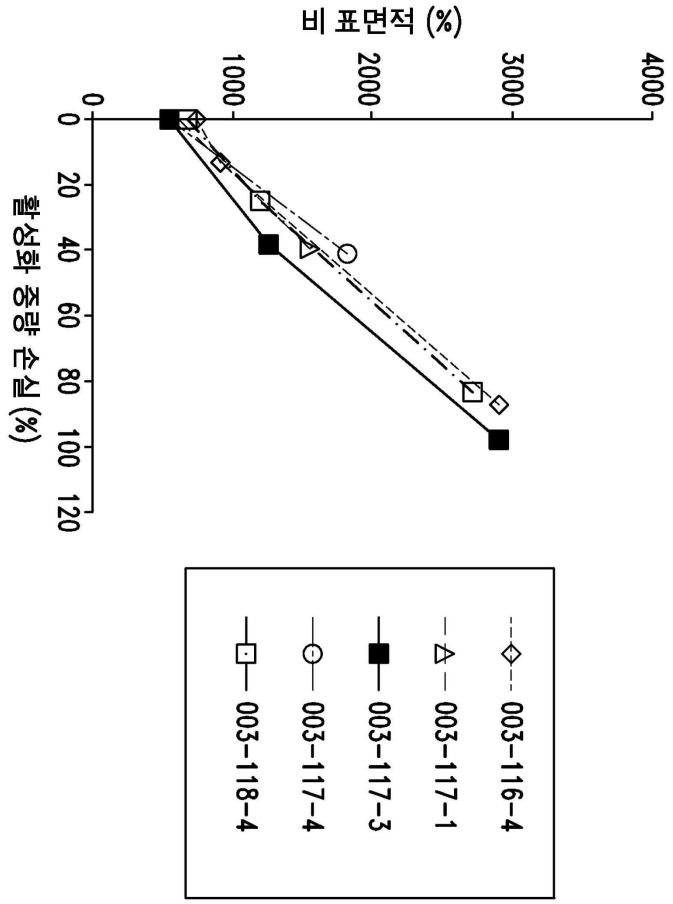
도면11a


점증하는 공극 용적 (cm^3/g)
0.00
0.01
0.02
0.03
0.04
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롱)
점증하는 공극 용적
점증하는 공극 용적 대 공극 폭

도면11b


점증하는 공극 용적 (cm³/g)
0.00
0.01
0.02
0.03
10
50
100
500
1000
공극 폭 (옹스트롬)
점증하는 공극 용적
점증하는 공극 용적 대 공극 폭

도면12


비 표면적 (%)
0
1000
2000
3000
4000
활성화 중량 손실 (%)
0
20
40
60
80
100
120
003-116-4
003-117-1
003-117-3
003-117-4
003-118-4

도면13

