

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第2部門第1区分

【発行日】令和5年2月20日(2023.2.20)

【国際公開番号】WO2020/230530

【出願番号】特願2021-519323(P2021-519323)

【国際特許分類】

B 0 1 J 27/24(2006.01)

B 0 1 J 37/08(2006.01)

C 2 5 B 1/04(2021.01)

C 2 5 B 9/00(2021.01)

C 2 5 B 11/052(2021.01)

C 2 5 B 11/054(2021.01)

C 2 5 B 11/091(2021.01)

10

【F I】

B 0 1 J 27/24 M

B 0 1 J 37/08

C 2 5 B 1/04

C 2 5 B 9/00 A

C 2 5 B 11/052

C 2 5 B 11/054

C 2 5 B 11/091

20

【手続補正書】

【提出日】令和5年2月9日(2023.2.9)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

30

【特許請求の範囲】

【請求項1】

金属硫化物と、測定用X線にCuのK線を用いたX線回折法により得られるX線回折パターンで、 $2\theta = (16.0 \pm 0.5)^\circ$ および $2\theta = (27.8 \pm 0.5)^\circ$ に回折ピークを示すCおよびNからなる化合物とを含み、

触媒中において、前記CおよびNからなる化合物は、前記金属硫化物を鞘状に被覆していることを特徴とする触媒。

【請求項2】

金属硫化物と、 $-C_3N_4$ とを含み、

触媒中において、前記 $-C_3N_4$ は、前記金属硫化物を鞘状に被覆していることを特

40

徴とする触媒。

【請求項3】

前記金属硫化物として硫化ニッケルを含有する請求項1または2に記載の触媒。

【請求項4】

前記硫化ニッケルとして、NiSおよびNi₃S₂を含有する請求項3に記載の触媒。

【請求項5】

硫化ニッケルと、測定用X線にCuのK線を用いたX線回折法により得られるX線回折パターンで、 $2\theta = (16.0 \pm 0.5)^\circ$ および $2\theta = (27.8 \pm 0.5)^\circ$ に回折ピークを示すCおよびNからなる化合物とを含む材料で構成され、

前記硫化ニッケルとして、NiSおよびNi₃S₂を含有することを特徴とする触媒。

50

【請求項 6】

触媒中において、前記 C および N からなる化合物は、前記硫化ニッケルの表面に付着した形態で含まれている請求項 5 に記載の触媒。

【請求項 7】

硫化ニッケルと、 $-C_3N_4$ とを含む材料で構成され、前記硫化ニッケルとして、 NiS および Ni_3S_2 を含有することを特徴とする触媒。

【請求項 8】

触媒中において、前記 $-C_3N_4$ は、前記金属硫化物の表面に付着した形態で含まれている請求項 7 に記載の触媒。

【請求項 9】

10 mA / cm² の電流密度での酸素生成に要する過電圧が 150 mV 以下である請求項 1 ないし 8 いずれか 1 項に記載の触媒。

【請求項 10】

請求項 1 ないし 9 のいずれか 1 項に記載の触媒を含むことを特徴とする電極。

【請求項 11】

電極は、水電解用電極である請求項 10 に記載の電極。

【請求項 12】

電極は、酸素発生用触媒電極である請求項 10 または 11 に記載の電極。

【請求項 13】

請求項 11 の電極を用いて水を電解することを特徴とする水電解方法。

【請求項 14】

金属材料とチオ尿素とを共存させた状態で熱処理を施す工程を有し、
金属硫化物と、測定用 X 線に Cu の K 線を用いた X 線回折法により得られる X 線回折パターンで、 $2\theta = (16.0 \pm 0.5)^\circ$ および $2\theta = (27.8 \pm 0.5)^\circ$ に回折ピークを示す C および N からなる化合物とを含む材料で構成された触媒を得ることを特徴とする触媒の製造方法。

【請求項 15】

金属材料とチオ尿素とを共存させた状態で熱処理を施す工程を有し、
金属硫化物と、 $-C_3N_4$ とを含む材料で構成された触媒を得ることを特徴とする触媒の製造方法。

【請求項 16】

前記金属材料と前記チオ尿素とを接触させた状態で熱処理を施す請求項 14 または 15 に記載の触媒の製造方法。

【請求項 17】

前記金属材料を前記チオ尿素の粉末中に埋没させた状態で熱処理を施す請求項 14 ないし 16 のいずれか 1 項に記載の触媒の製造方法。

【請求項 18】

前記熱処理を複数回施す請求項 16 または 17 に記載の触媒の製造方法。

【請求項 19】

前記金属材料は、ニッケルである請求項 14 ないし 18 のいずれか 1 項に記載の触媒の製造方法。

【請求項 20】

管状炉を用いて、前記熱処理を行う請求項 14 ないし 19 のいずれか 1 項に記載の触媒の製造方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0006

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0006】

10

20

30

40

50

このような目的は、下記(1)～(20)に記載の本発明により達成される。

(1) 金属硫化物と、測定用X線にCuのK線を用いたX線回折法により得られるX線回折パターンで、 $2\theta = (16.0 \pm 0.5)^\circ$ および $2\theta = (27.8 \pm 0.5)^\circ$ に回折ピークを示すCおよびNからなる化合物とを含み、

触媒中において、前記CおよびNからなる化合物は、前記金属硫化物を鞘状に被覆していることを特徴とする触媒。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】削除

10

【補正の内容】

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0008】

(2) 金属硫化物と、-C₃N₄とを含み、

触媒中において、前記-C₃N₄は、前記金属硫化物を鞘状に被覆していることを特徴とする触媒。

20

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0010

【補正方法】変更

【補正の内容】

30

【0010】

(3) 前記金属硫化物として硫化ニッケルを含有する上記(1)または(2)に記載の触媒。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0011

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0011】

(4) 前記硫化ニッケルとして、NiSおよびNi₃S₂を含有する上記(3)に記載の触媒。

40

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0012

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0012】

(5) 硫化ニッケルと、測定用X線にCuのK線を用いたX線回折法により得られるX線回折パターンで、 $2\theta = (16.0 \pm 0.5)^\circ$ および $2\theta = (27.8 \pm 0.5)^\circ$ に回折ピークを示すCおよびNからなる化合物とを含む材料で構成され、

50

前記硫化ニッケルとして、NiSおよびNi₃S₂を含有することを特徴とする触媒。

(6) 触媒中において、前記CおよびNからなる化合物は、前記硫化ニッケルの表面に付着した形態で含まれている上記(5)に記載の触媒。

(7) 硫化ニッケルと、-C₃N₄とを含む材料で構成され、

前記硫化ニッケルとして、NiSおよびNi₃S₂を含有することを特徴とする触媒。

(8) 触媒中において、前記-C₃N₄は、前記金属硫化物の表面に付着した形態で含まれている上記(7)に記載の触媒。

(9) 10 mA / cm²の電流密度での酸素生成に要する過電圧が150 mV以下である上記(1)ないし(8)のいずれかに記載の触媒。

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0013

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0013】

(10) 上記(1)ないし(9)のいずれかに記載の触媒を含むことを特徴とする電極。

【手続補正10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0014

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0014】

(11) 電極は、水電解用電極である(10)に記載の電極。

【手続補正11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0015

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0015】

(12) 電極は、酸素発生用触媒電極である上記(10)または(11)に記載の電極。

【手続補正12】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0016】

(13) 上記(11)の電極を用いて水を電解することを特徴とする水電解方法。

【手続補正13】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0017

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0017】

(14) 金属材料とチオ尿素とを共存させた状態で熱処理を施す工程を有し、金属硫化物と、測定用X線にCuのK線を用いたX線回折法により得られるX線回折パターンで、 $2\theta = (16.0 \pm 0.5)^\circ$ および $2\theta = (27.8 \pm 0.5)^\circ$ に回折ピークを示すCおよびNからなる化合物とを含む材料で構成された触媒を得ることを特徴とする触媒の製造方法。

10

20

30

40

50

【手続補正 14】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0018

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0018】

(15) 金属材料とチオ尿素とを共存させた状態で熱処理を施す工程を有し、金属硫化物と、 $-C_3N_4$ とを含む材料で構成された触媒を得ることを特徴とする触媒の製造方法。

(16) 前記金属材料と前記チオ尿素とを接触させた状態で熱処理を施す上記(14)または(15)に記載の触媒の製造方法。 10

【手続補正 15】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0019】

(17) 前記金属材料を前記チオ尿素の粉末中に埋没させた状態で熱処理を施す上記(14)ないし(16)のいずれかに記載の触媒の製造方法。

(18) 前記熱処理を複数回施す上記(16)または(17)に記載の触媒の製造方法。 20

【手続補正 16】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0020】

(19) 前記金属材料は、ニッケルである上記(14)ないし(18)のいずれかに記載の触媒の製造方法。

【手続補正 17】 30

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0021

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0021】

(20) 管状炉を用いて、前記熱処理を行う上記(14)ないし(19)のいずれかに記載の触媒の製造方法。

40

50