

【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3部門第1区分

【発行日】令和2年10月1日(2020.10.1)

【公表番号】特表2018-512355(P2018-512355A)

【公表日】平成30年5月17日(2018.5.17)

【年通号数】公開・登録公報2018-018

【出願番号】特願2017-544897(P2017-544897)

【国際特許分類】

C 01 B 32/21 (2017.01)

H 01 M 4/587 (2010.01)

H 01 M 4/36 (2006.01)

【F I】

C 01 B 32/21

H 01 M 4/587

H 01 M 4/36 C

【誤訳訂正書】

【提出日】令和2年8月18日(2020.8.18)

【誤訳訂正1】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0166

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0166】

同じ黒鉛材料(合成黒鉛No.1又はSG-1)を用いて実験を行ったが、モノマー源(アセチレン、HMDSO、両方)、システム圧力、及びプラズマ出力を、アルゴンなどのガスの存在下又は非存在下で変化させた。

【表1】

表1a：合成黒鉛の表面改質のためのプロセス条件(ナノ粒子のプラズマ蒸着)

試料	励起ガス (sccm)	追加ガス (sccm)	モノマー (sccm)	システム圧力 (mbar)	プラズマ出力 (W)
SG-1 (出発物質)					
	アルゴン		アセチレン		
GR178	250		250	1.50	800
	アルゴン		HMDSO		
GR68	250		250	2.50	1000
	アルゴン	アセチレン	HMDSO		
GR67	250	125	125	2.50	1000
		アセチレン	HMDSO		
GR69		250	250	2.50	1000
	アルゴン	アセチレン	DVTMDSO		
GR77	250	125	125	2.50	1000
	アルゴン		TES		
GR168	250		250	1.50	1000

【誤訳訂正2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0167

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0167】

得られた表面改質黒鉛をSEMで観察し、そのBET SSA、SD-OES、XPS、タップ密度、及び流動性係数の点で性状解析した。結果を以下の表に要約する。

【表2】

表1b：ナノ粒子表面改質黒鉛の性状解析

試料	BET SSA	SD-OES	タップ密度	流動性係数		XPS分析	
	TRISTAR 3000			RST-XS		シグマプローブ	
	(m ² /g)	[wt%]	[g/cm ³]	[-]		原子比(表面) [-]	
	Si			標準偏差	O/C	Si/C	
SG-1 (出発物質)	7.8	-	0.57	3.4	0.1	0.02	0
GR178				8.9	0.2	0.04	0
GR68	7.1	0.5	0.7	10.3	0.0	0.10	0.43
GR67	8.3	0.5	0.68	11.1	0.8	0.14	0.42
GR69	7.0	0.5	0.71	9.1	0.8	0.14	0.38
GR77	8.6	0.6	0.7	10.4	0.4	0.11	0.33
GR168				10.5	0.0	0.13	0.56

【誤訳訂正3】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

炭素質コア粒子と、前記炭素質コア粒子の表面に付着したナノ粒子とを含み、前記炭素質コア粒子の表面上の前記ナノ粒子が、プラズマポリマーの形態である、粒子状の表面改質炭素質材料。

【請求項2】

前記炭素質コア粒子が、天然又は合成黒鉛、剥離黒鉛、カーボンブラック、石油系又は石炭系コークス、グラフェン、グラフェン繊維、カーボンナノチューブを含むナノチューブ（このナノチューブは単一層ナノチューブ（SWNT）、多層ナノチューブ（MWNT）、又はこれらの組み合わせである）、フラーレン、ナノ黒鉛、又はこれらの組み合わせから選択される材料を含む、請求項1に記載の表面改質炭素質材料。

【請求項3】

前記炭素質コア粒子の表面上の前記ナノ粒子が、炭素、ケイ素、又はこれらの組み合わせを含み、場合により前記ナノ粒子が水素、窒素、酸素、硫黄、及び／又はフッ素をさらに含む、請求項1又は2に記載の炭素質材料。

【請求項4】

前記ナノ粒子の原料モノマーが以下から選択される、請求項1～3のいずれか1項に記載の表面改質炭素質材料：

（i）メタン、エタン、エチレン、アセチレン、プロパン、プロピレン、重油、廃油、熱分解燃料油、他の炭化水素、又はこれらの組み合わせ；

(i i) 植物脂肪、菜種油、又は他の有機分子、；
 (i i i) シロキサン、シラン、ヘキサメチルジシロキサン (H M D S O) 、ジビニルテトラメチルジシロキサン (D V T M D S O) 、トリエチルシラン (T E S) 、又は他のケイ素化合物、
 (i v) C_2F_6 、 C_3F_8 、又は他のハロゲン化炭素、
 (v) リン化合物；又は
 (v i) これらの組み合わせ。

【請求項 5】

第 1 及び第 2 の種のナノ粒子を含み、ここで第 1 の種は、場合により少量の水素、窒素、酸素、及び / 又は硫黄を有する炭素から本質的になり、そして第 2 の種は、場合により少量の水素、炭素、窒素、酸素、及び / 又は硫黄を有するケイ素から本質的になる、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の表面改質炭素質材料。

【請求項 6】

i) スパーク放電発光分光法 (S D - O E D) により測定されるケイ素のバルク含有量が、少なくとも約 0 . 3 0 重量 % であり、

i i) X 線光電子分光法 (X P S) により測定される前記炭素質コア粒子の表面におけるケイ素と炭素の原子比 (S i / C) が、少なくとも約 0 . 2 5 であり、

i i i) X 線光電子分光法 (X P S) により測定される前記炭素質コア粒子の表面における酸素と炭素の原子比 (O / C) が、少なくとも約 0 . 0 3 0 である、請求項 5 に記載の炭素質材料。

【請求項 7】

流動性係数 f_f が少なくとも 3 . 5 であり、

場合により、流動性係数 f_{f_c} で表される流動性が、前記ナノ粒子が欠如した炭素質コア粒子の流動性係数よりも大きく、前記炭素質コア粒子の表面上にナノ粒子を含む炭素質材料が、炭素質コア粒子の表面上に前記ナノ粒子が欠如した炭素質コア粒子の流動性係数より、少なくとも約 5 0 % 高い、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の表面改質炭素質材料。

【請求項 8】

前記炭素質コア粒子の表面上に前記ナノ粒子が欠如した炭素質コア粒子のタップ密度と比較して、約 1 0 % 上昇している見かけの (スコット) 密度及び / 又はタップ密度を有する、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の表面改質炭素質材料。

【請求項 9】

単独の又は任意に組み合わせた、以下のパラメータの 1 つ以上によりさらに特徴付けられる、請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の表面改質炭素質材料：

i) 1 ~ 1 0 0 0 n m の範囲の結晶サイズ L_c (X R D により測定される L_c (0 0 2)) ;
 i i) 1 ~ 1 0 0 0 n m の結晶サイズ L_a (ラマン分光法により測定される) ;
 i i i) 0 . 1 ~ 1 0 0 0 との間の L_c / L_a 比 ;
 i v) 0 . 3 3 5 4 n m ~ 0 . 5 0 0 0 n m の間の $c / 2$ 層間距離 ;
 (v) 約 0 . 5 m² / g ~ 8 0 0 m² / g の B E T S S A ;
 (v i) 約 1 0 0 μ m 未満の D_{90} で表される粒度分布 (P S D) ; 及び / 又は
 (v i i) 表面改質炭素質材料の 1 ~ 5 0 % (w / w) であるナノ粒子 ;
 (v i i i) 約 1 0 0 0 (m l / 1 0 0 g) 未満の吸油価。

【請求項 10】

リチウムイオン電池用負極材料を製造するための、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の表面改質炭素質材料の使用。

【請求項 11】

天然又は合成黒鉛、剥離黒鉛、カーボンブラック、コークス、グラフェン、グラフェン繊維；カーボンナノチューブを含むナノチューブ (ナノチューブは単一層ナノチューブ (S W N T) 、多層ナノチューブ (M W N T) 、又はこれらの組み合わせである) ；フラー

レン、ナノ黒鉛、他の炭素質材料、他の粒子状炭素質材料、又はこれらの組合せとの混合物中の、請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の粒子状のナノ粒子表面改質炭素質材料を含む組成物。

【請求項 1 2】

請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の表面改質炭素質材料を活物質として含むリチウムイオン電池の負極；又は

電池の負極中に、請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の表面改質炭素質材料を含むリチウムイオン電池；又は

前記リチウムイオン電池を含む電気自動車、ハイブリッド電気自動車、もしくはエネルギー貯蔵セル。

【請求項 1 3】

請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の表面改質炭素質材料を含む複合材料又は導電性ポリマー、又は

請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の粒子状の表面改質炭素質材料を含むヒートシンク材料、又は

請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の粒子状の表面改質炭素質材料及び液体を含む分散物。

【請求項 1 4】

炭素質コア粒子の表面にナノ粒子を付着させることを含み、前記ナノ粒子が、0～200 の温度においてプラズマ強化化学蒸着 (PECVD) により炭素質コア粒子の表面に付着されており、

前記ナノ粒子の原料モノマーが、

(i) メタン、エタン、エチレン、アセチレン、プロパン、プロピレン、重油、廃油、熱分解燃料油、他の炭化水素、又はこれらの組み合わせ；

(ii) 植物脂肪、菜種油、又は他の有機分子；

(iii) シロキサン、シラン、ヘキサメチルジシロキサン (HMDSO)、ジビニルテトラメチルジシロキサン (DVTMDSO)、トリエチルシラン (TES)、又は他のケイ素化合物；

(iv) C₂F₆、C₃F₈又は他のハロゲン化炭素；

(v) リン化合物；

より選択され、

場合により少なくとも 2 つの異なるモノマーが、プラズマ反応器に添加され、

場合により、前記炭素質コア粒子が、天然又は合成黒鉛、剥離黒鉛、カーボンブラック、石油系又は石炭系コークス、グラフェン、グラフェン繊維；カーボンナノチューブを含むナノチューブ（このナノチューブは単一層ナノチューブ (SWNT)、多層ナノチューブ (MWNT)、又はこれらの組み合わせである）、フラーレン、ナノ黒鉛、又はこれらの組み合わせから選択される材料を含み、さらに場合により、前記炭素質コア粒子が、約 1～1000 μm の D₅₀ を有する PSD を示す、請求項 1～9 のいずれか 1 項に記載の粒子状の表面改質炭素質材料の製造方法。

【請求項 1 5】

少なくとも 2 つの異なるモノマーが、プラズマ反応器に添加される、請求項 1 4 に記載の方法。

【請求項 1 6】

非等温プラズマの生成のために、特に自由電荷キャリア及び励起中性種の生成のために電気的ガス放電が使用されるプラズマ領域を介して、ガス流が誘導され、ナノ粒子の形成のための出発物質として機能するガス状モノマーが、プラズマ領域の前又はプラズマ領域内でガス流に混合され、そして、自由電荷キャリア及び励起中性種がプラズマ領域内で直接使用されて、ガス状モノマーが化学的に反応性の状態にされ、均質な化学反応に付され、その結果、気相からの化学的分離によりナノ粒子が形成され

炭素質コア粒子流及び／又はガス状炭素質コア粒子流がガス流及び／又は重力の影響下

で導かれる処理領域において、ナノ粒子は、2つの粒子タイプの衝突により炭素質コア粒子の表面に付着される、請求項14又は15に記載の方法。