

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6860219号  
(P6860219)

(45) 発行日 令和3年4月14日(2021.4.14)

(24) 登録日 令和3年3月30日(2021.3.30)

(51) Int. Cl.

F |

CO 1 B 33/18 (2006.01)  
CO 1 B 32/05 (2017.01)

CO 1 B 33/18  
CO 1 B 32/05

E

### 譜求項の数 3 外国語出願 (全 43 頁)

(21) 出願番号	特願2018-193701 (P2018-193701)
(22) 出願日	平成30年10月12日 (2018.10.12)
(65) 公開番号	特開2019-81689 (P2019-81689A)
(43) 公開日	令和1年5月30日 (2019.5.30)
審査請求日	平成30年12月14日 (2018.12.14)
(31) 優先権主張番号	17001780.0
(32) 優先日	平成29年10月27日 (2017.10.27)
(33) 優先権主張国・地域又は機関	歐州特許庁 (EP)

前置審查

(73) 特許権者 503342524  
　　ヘレウス クワルツグラス ゲーエムベー  
　　ハー ウント コンパニー カーゲー  
　　ドイツ連邦共和国、 63450 ハナウ  
　　、 クアルツストラーセ 8  
(74) 代理人 100116872  
　　弁理士 藤田 和子  
(72) 発明者 ピハン ザシャ  
　　ドイツ国 63743 アシャッフェンブ  
　　ルク ペートーヴェンシュトラッセ 45  
(72) 発明者 ベッカー ヨルク  
　　ドイツ国 61194 ニダタール ヴァ  
　　ルトシュトラッセ 16

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】適合後の細孔構造を含む多孔質製品の製造

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

多孔質二酸化ケイ素材料を作製するための製造方法（100）であって、以下の工程（101～105）：

a) 供給材料組成物を、供給位置における、反応バーナーの火炎から形成された反応ゾーン（305）内に供給する工程であって、前記供給材料組成物は液体もしくは気体またはその両方である、工程と、

b) 前記反応ゾーン(305)内の前記供給材料組成物を、化学反応によって第1の複数の粒子に反応させる工程と。

c) 前記第1の複数の粒子を基材(301)の基材表面(302)上に堆積させ、それによって前記基材表面(302)に重なる20個以下の層の形態で、細孔構造を有する多孔質二酸化ケイ素材料(309)を得る工程と、

d) 前記基材表面(302)から前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)を少なくとも部分的に除去した後、粒子状にし、前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)の細孔構造を修飾し、それによってさらなる細孔構造を有する多孔質二酸化ケイ素材料を得る工程と、

6) 前記修飾が、前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)の熱処理を含み、

f) 前記多孔質二酸化ケイ素材料を分解する工程と、

をこの順で含む、製造方法（100）。

【請求項2】

前記熱処理が、以下・

a . 前記熱処理における最大温度が、工程 a ) ~ d )において達する前記基材表面の最大温度より高い、

b . 前記熱処理が、

i ) 前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)の温度を1100~1400の範囲の温度まで増加させる工程、

ii ) 前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)の温度を、100~2000分の範囲の時間、1100~1400の範囲の温度に保持する工程、および

iii ) 前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)の温度を1000未満に減少させる工程を含む、

c . 除去した前記多孔質二酸化ケイ素材料の温度が、前記熱処理において2~10/10分の範囲の速度で増加する、

のうちの1つ以上を満たす、請求項1に記載の製造方法(100)。

### 【請求項3】

I . 請求項1の工程a)~工程f)を行って、前記多孔質二酸化ケイ素材料を製造し、前記多孔質二酸化ケイ素材料を得る工程と、

II . 前記多孔質二酸化ケイ素材料を炭素源(606)と接触させる工程と、

III . 前記炭素源(606)を少なくとも部分的に炭化し、それによって前記多孔質二酸化ケイ素材料および炭素を含む前駆体を得る工程と、

IV . 前記前駆体から前記多孔質二酸化ケイ素材料を少なくとも部分的に除去し、それによって多孔質炭素製品を得る工程と

を含む、多孔質炭素製品を調製する方法。

20

### 【発明の詳細な説明】

#### 【技術分野】

#### 【0001】

本発明は、概して、多孔質二酸化ケイ素材料の製造方法及び多孔質二酸化ケイ素材料；多孔質炭素製品の製造方法及び多孔質炭素製品；多孔質炭素製品を含む装置；電極における多孔質炭素製品の使用；並びに多孔質炭素製品の製造における多孔質二酸化ケイ素材料の使用に関する。

#### 【背景技術】

#### 【0002】

30

炭素を成形するためにネガとして作用するテンプレートを使用して多孔質炭素材料を製造する方法は従来技術において知られている。その従来技術において、炭素材料は、実質的にテンプレート材料の構造によって規定される細孔構造によって特徴付けられる。テンプレートは、例えば、酸化ケイ素から作ることができる。従来技術において知られている酸化ケイ素テンプレートを製造する方法は、いわゆるゾル-ゲル法である。酸化ケイ素を調製するためのゾル-ゲル手段は当業者に周知である。例えば、ゾルゲル法によるモノリシックシリカ体の製造は特許文献1に記載されている。

#### 【0003】

さらに、従来技術において知られている多孔質炭素材料はカーボンブラックである。カーボンブラックは、FCCタール、コールタール、エチレンクラッキングタール、および植物油由来の少量物などの重質石油製品の不完全燃焼によって製造される。このようなカーボンブラックの製造方法は、例えば、特許文献2に開示されている。多孔質炭素の用途は、一般に、細孔構造の特性に基づく。公知の用途は、電極材料を通るイオンおよび電子の同時輸送が必要とされるリチウムイオン電池などの電極；高活性表面積および細孔アクセシビリティが必要とされる触媒；ならびに燃料の輸送および導電性が必要とされる燃料電池である。

40

#### 【先行技術文献】

#### 【特許文献】

#### 【0004】

#### 【特許文献1】米国特許第06514454 B1号

50

【特許文献 2】米国特許第 0 7 6 5 5 2 0 9 B 2 号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

概して、本発明の目的は、先行技術から生じる欠点を少なくとも部分的に克服することである。本発明の目的は、改良された多孔質炭素材料を提供することである。本発明の別の目的は、改良された炭素材料を製造するのに適したテンプレート材料を提供することである。本発明のさらに別の目的は、多孔質炭素材料の製造方法であって、多孔質炭素材料の細孔径分布を規定するための自由度が高い、製造方法を提供することである。本発明の目的は、実施することが容易である多孔質二酸化ケイ素製品の製造方法を提供することである。

10

【0006】

本発明の目的は、より高いエネルギー効率を有する多孔質二酸化ケイ素製品の製造方法を提供することである。

【0007】

本発明の目的は、実施することが容易である多孔質炭素製品の製造方法を提供することである。

【0008】

本発明の目的は、より高いエネルギー効率を有する多孔質炭素製品の製造方法を提供することである。

20

【0009】

本発明の目的は、増加した均質性を有する多孔質二酸化ケイ素製品の製造方法を提供することである。

【0010】

本発明の目的は、より均一な細孔径分布を有する多孔質二酸化ケイ素製品の製造方法を提供することである。

【0011】

本発明の目的は、より高度に制御可能な細孔径分布を有する多孔質二酸化ケイ素製品の製造方法を提供することである。

30

【0012】

本発明の目的は、より均一な粒径分布を有する多孔質二酸化ケイ素製品の製造方法を提供することである。

【0013】

本発明の目的は、より高度に制御可能な粒径分布を有する多孔質二酸化ケイ素製品の製造方法を提供することである。

【0014】

本発明の目的は、増加した均質性を有する多孔質炭素製品の製造方法を提供することである。

【0015】

本発明の目的は、より均質な細孔径分布を有する多孔質炭素製品の製造方法を提供することである。

40

【0016】

本発明の目的は、より高度に制御可能な細孔径分布を有する多孔質炭素製品の製造方法を提供することである。

【0017】

本発明の目的は、より均質な粒径分布を有する多孔質炭素製品の製造方法を提供することである。

【0018】

本発明の目的は、より高度に制御可能な粒径分布を有する多孔質炭素製品の製造方法を提供することである。

50

**【0019】**

本発明の目的は、電気特性が改良された、電気化学電池、好ましくはリチウムイオン電池を提供することである。

**【0020】**

本発明の目的は、より高度に制御可能な電気特性を有する、電気化学電池、好ましくはリチウムイオン電池を提供することである。

**【0021】**

本発明の目的は、改良された電気特性を有する電極を提供することである。

**【0022】**

本発明の目的は、より高度に制御可能な電気特性を有する電極を提供することである。 10

**【0023】**

本発明の目的は、改良された触媒特性、特に活性部位への改良された接近性（アクセス）を有する多孔質触媒材料を提供することである。

**【0024】**

本発明の目的は、より高度に制御可能な触媒特性、特により高度に制御可能な触媒選択性を有する多孔質触媒材料を提供することである。

**【課題を解決するための手段】****【0025】**

上記目的の少なくとも1つに対する寄与は独立請求項によってなされる。従属請求項は、上述の目的の少なくとも1つを解決するためにも役立つ本発明の好ましい実施形態を提供する。 20

**【0026】****| 1 | 以下の工程（101～105）：**

a ) 供給材料組成物を、供給位置における反応ゾーン（305）内に供給する工程であって、前記供給材料組成物は液体もしくは気体またはその両方である、工程と、  
b ) 前記反応ゾーン（305）内の前記供給材料組成物を、化学反応によって第1の複数の粒子に反応させる工程と、

c ) 前記第1の複数の粒子を基材（301）の基材表面（302）上に堆積させ、それによって前記基材表面（302）に重なる20個以下、好ましくは10個以下、より好ましくは5個以下、より好ましくは3個以下、より好ましくは1～2個、より好ましくは1個の層の形態で、細孔構造を有する多孔質二酸化ケイ素材料（309）を得る工程と、  
d ) 前記基材表面（302）から多孔質二酸化ケイ素材料（309）を少なくとも部分的に除去する工程と、

e ) 前記多孔質二酸化ケイ素材料（309）の細孔構造を修飾し、それによってさらなる細孔構造を有する多孔質二酸化ケイ素材料を得る工程と  
を含む、製造方法（100）。

**【0027】**

一態様において、工程d)は工程e)に先行する。別の態様において、工程e)は工程d)に先行する。

**【0028】****| 2 | 工程c)において、以下：**

a . 基材（301）は、0.1～10.0m／分の範囲、好ましくは0.5～8.0m／分の範囲、より好ましくは1.0～6m／分の範囲の接線速度で回転する、  
b . 供給位置から基材表面（302）までの距離は、1～300cmの範囲、好ましくは5～250cmの範囲、より好ましくは10～200cmの範囲である、  
のうちの1つまたは両方が満たされる、実施形態|1|に記載の製造方法（100）。

**【0029】**

| 3 | 工程e)が、前記多孔質二酸化ケイ素材料（309）の熱処理を含む、実施形態|1|または|2|に記載の製造方法（100）。

**【0030】**

50

20

30

40

50

## | 4 | 前記熱処理が、以下：

a . 前記熱処理における最大温度が、工程 a ) ~ d )において達する前記基材表面の最大温度より高い、好ましくは少なくとも 10 高い、より好ましくは少なくとも 20 高い、より好ましくは少なくとも 30 高い、

## b . 前記熱処理が、

i ) 前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)の温度を 1100 ~ 1400 の範囲、または 1100 ~ 1150 の範囲、または 1150 ~ 1200 の範囲、または 1200 ~ 1250 の範囲、または 1250 ~ 1300 の範囲、または 1300 ~ 1350 の範囲、または 1350 ~ 1400 の範囲；好ましくは 1150 ~ 1250 の範囲、または 1150 ~ 1200 の範囲、または 1200 ~ 1250 の範囲の温度まで増加させる工程、

i i ) 前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)の温度を、100 ~ 200 分、または 100 ~ 300 分、または 300 ~ 500 分、または 500 ~ 800 分、または 800 ~ 1500 分、または 1500 ~ 2000 分の範囲の時間、1100 ~ 1400 の範囲、または 1100 ~ 1150 の範囲、または 1150 ~ 1200 の範囲、または 1200 ~ 1250 の範囲、または 1250 ~ 1300 の範囲、または 1300 ~ 1350 の範囲、または 1350 ~ 1400 の範囲の温度に保持する工程、および

i i i ) 前記多孔質二酸化ケイ素材料(309)の温度を 1000 未満、好ましくは 900 未満、より好ましくは 800 未満に減少させる工程を含む、

c . 除去した前記多孔質二酸化ケイ素材料の温度が、前記熱処理において 2 ~ 10 / 分の範囲、好ましくは 3 ~ 8 / 分の範囲、より好ましくは 4 ~ 7 / 分の範囲の速度で増加する、

のうちの 1 つ以上を満たす、実施形態 | 3 | に記載の製造方法(100)。

## 【0031】

この実施形態の一態様において、工程 d ) は工程 e ) に先行する。この態様において、工程 e ) はバッチプロセスとして実施されることが好ましい。

## 【0032】

この実施形態の好ましい態様において、b . i ) における温度範囲は、b . i i ) における温度範囲と同じである。この実施形態の好ましい態様において、温度範囲および時間の以下の組み合わせが選択肢 b . において利用される：300 ~ 500 分間、1150 ~ 1200 、または 500 ~ 800 分間、1150 ~ 1200 、または 800 ~ 1500 分間、1150 ~ 1200 、または 300 ~ 500 分間、1200 ~ 1250 、または 500 ~ 800 分間、1200 ~ 1250 、または 800 ~ 1500 分間、1200 ~ 1250 。

## 【0033】

この実施形態の一態様において、工程 i i i ) における冷却は、受動冷却のみによって、好ましくは周囲温度での静置によって実施される。

## 【0034】

## | 5 | 工程 e ) において、第 1 の細孔構造の修飾が、以下：

- a . 多孔質二酸化ケイ素材料(309)の細孔径分布の幅の減少、
- b . 多孔質二酸化ケイ素材料(309)の多孔率の減少、
- c . 多孔質二酸化ケイ素材料(309)の全細孔体積の減少、

d . 多孔質二酸化ケイ素材料(309)の多峰性細孔径分布のモードの数の少なくとも 1 つのモードの減少

のうちの 1 つ以上を含む、先行する実施形態のいずれかに記載の製造方法(100)。

## 【0035】

上記の基準の各々を組み合わせて、この実施形態の 1 つの態様を形成することができる。以下の基準の組み合わせが、この実施形態の好ましい態様である：a 、 b 、 c 、 d 、 a b 、 a c 、 a d 、 b c 、 b d 、 c d 、 a b c 、 a b d 、 a c d 、 b c d および a b c d ；好ましくは a b c または a b c d 、より好ましくは a b c d 。さらなる実施形態において

10

20

30

40

50

、工程 e ) における細孔構造の修飾は、ピークをより狭くすることによって、もしくはピーク値を変化させることのいずれかによって、またはその両方によって、細孔径分布におけるピークを修飾することを含む。この実施形態の 1 つの態様において、ピークは同時に狭められ、そのピーク値が移動される。

#### 【 0 0 3 6 】

| 6 | 工程 d ) の後に、多孔質二酸化ケイ素材料 ( 3 0 9 ) が分解される、先行する実施形態のいずれかに記載の製造方法 ( 1 0 0 ) 。

#### 【 0 0 3 7 】

この実施形態の好ましい態様において、分解は、破碎、粉碎、フライス加工、空気ブレード切断、および電気力学的破碎、好ましくは破碎からなる群から選択される 1 つまたは複数を含む。多孔質二酸化ケイ素材料を分解するためのエネルギーは、例えば、超音波源から、機械的にまたは他の方法で提供され得る。10

#### 【 0 0 3 8 】

この実施形態の一態様において、分解は修飾工程 e ) に先行する。別の態様において、分解は修飾工程 e ) の後に行われる。

#### 【 0 0 3 9 】

| 7 | 工程 c ) において、多孔質二酸化ケイ素材料 ( 3 0 9 ) の 2 0 個以下の層の厚さは、 1 0 ~ 5 0 0  $\mu\text{m}$  の範囲である、先行する実施形態のいずれかに記載の製造方法 ( 1 0 0 ) 。20

#### 【 0 0 4 0 】

さらなる実施形態において、 2 0 個以下の層の 1 つ以上、好ましくは全ての各々は、 5 ~ 1 5 0  $\mu\text{m}$  の範囲、好ましくは 1 0 ~ 5 0  $\mu\text{m}$  の範囲、より好ましくは 1 5 ~ 2 5  $\mu\text{m}$  の範囲の厚さを有する。一部の場合、層は、最大で約 2 0 0  $\mu\text{m}$  の厚さを有してもよい。

#### 【 0 0 4 1 】

一実施形態において、 2 0 個以下の層の 1 つ以上、好ましくは全ての各々は 5 ~ 1 5 0  $\mu\text{m}$  の範囲の厚さを有し、基材表面は 0 . 6 m / 分 ~ 2 0 m / 分の範囲の接線速度で動く。20

#### 【 0 0 4 2 】

別の実施形態において、 2 0 個以下の層の 1 つ以上、好ましくは全ての各々は 1 3 ~ 2 4  $\mu\text{m}$  の範囲の厚さを有し、基材表面は 2 . 5 m / 分 ~ 5 m / 分の範囲の接線速度で動く。30

#### 【 0 0 4 3 】

| 8 | 工程 b ) において、化学反応が熱分解もしくは加水分解またはその両方である、先行する実施形態のいずれかに記載の製造方法 ( 1 0 0 ) 。

#### 【 0 0 4 4 】

| 9 | 先行する実施形態のいずれか一つに記載の製造方法によって得られる多孔質二酸化ケイ素材料。

#### 【 0 0 4 5 】

さらなる実施形態において、多孔質二酸化ケイ素材料は、先行する実施形態のいずれか一つに記載の方法によって得られる。40

#### 【 0 0 4 6 】

| 1 0 | 以下の基準 :

a ) 1 0 ~ 1 0 0 0 0 n m の範囲の直径を有する細孔について、 0 . 3 ~ 5 . 9 c m <sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0 . 6 ~ 5 c m <sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0 . 8 ~ 3 . 0 c m <sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、

b ) 2 ~ 2 . 3 g / c m <sup>3</sup> の範囲、好ましくは 2 . 0 5 ~ 2 . 2 5 g / c m <sup>3</sup> の範囲、より好ましくは 2 . 1 ~ 2 . 2 g / c m <sup>3</sup> の範囲の材料密度、

c ) 0 . 4 ~ 1 . 5 g / c m <sup>3</sup> の範囲、好ましくは 0 . 5 ~ 1 . 2 g / c m <sup>3</sup> の範囲、より好ましくは 0 . 6 ~ 0 . 9 g / c m <sup>3</sup> の範囲のかさ密度、

d ) 0 . 1 5 ~ 0 . 8 5 の範囲、好ましくは 0 . 3 ~ 0 . 8 の範囲、より好ましくは 0 . 5 ~ 0 . 7 の範囲のかさ密度。50

. 55 ~ 0 . 75 の範囲の多孔率、  
e ) 5 ~ 140 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは 7 ~ 130 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましく  
は 10 ~ 110 m<sup>2</sup> / g の範囲の BET - SSA に従った全比表面積、  
f ) 0 ~ 20 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは 0 ~ 10 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは 0  
. 1 ~ 5 m<sup>2</sup> / g の範囲の 2 nm 未満の細孔径を有する細孔の比表面積、  
g )  
i ) 20 ~ 100 nm の範囲、好ましくは 30 ~ 90 nm の範囲、より好ましくは 4  
0 ~ 80 nm の範囲の D<sub>10</sub>、  
i i ) 150 ~ 1000 nm の範囲、好ましくは 200 ~ 900 nm の範囲、より好  
ましくは 300 ~ 800 nm の範囲の D<sub>50</sub>、および 10  
i i i ) 2000 ~ 5000 nm の範囲、好ましくは 2300 ~ 4700 nm の範囲  
、より好ましくは 2600 ~ 4300 nm の範囲の D<sub>90</sub>、  
を特徴とする、10 ~ 10000 の範囲の決定した細孔径分布、  
h ) 1900 ~ 4980 nm の範囲、好ましくは 2210 ~ 4670 nm の範囲、より好ましくは 2520 ~ 4260 nm の範囲の D<sub>90</sub> と D<sub>10</sub> との差を特徴とする 10 ~ 1  
0000 nm の範囲の決定した細孔径分布、  
i ) 1 : 20 ~ 1 : 250 の範囲、好ましくは 1 : 26 ~ 1 : 157 の範囲、より好ましくは 1 : 33 ~ 1 : 108 の範囲の D<sub>10</sub> : D<sub>90</sub> の比を特徴とする 10 ~ 10000  
nm の範囲の決定した細孔径分布、  
j ) 10 ~ 100 nm の範囲の細孔径を有する細孔について、0 . 01 ~ 0 . 2 cm<sup>3</sup>  
/ g の範囲、好ましくは 0 . 01 ~ 0 . 1 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0 . 02 ~  
0 . 1 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、20  
k ) 100 nm 超および 1000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、0 . 1 ~ 2  
. 0 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0 . 5 ~ 1 . 5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0  
. 5 ~ 1 . 3 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、ならびに  
l ) 1000 nm 超および 10000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、0 . 0  
1 ~ 1 . 0 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0 . 02 ~ 0 . 8 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0 . 02 ~ 0 . 1 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積  
のうちの 1 つ以上を満たす多孔質二酸化ケイ素材料。

【0047】 30  
| 11 |  
I . 実施形態 | 9 | もしくは実施形態 | 10 | またはその両方に記載の多孔質二酸化ケイ素材料を提供する工程と、  
II . 多孔質二酸化ケイ素材料を炭素源 (606) と接触させる工程と、  
III . 炭素源 (606) を少なくとも部分的に炭化し、それによって多孔質二酸化ケイ素材料および炭素を含む前駆体を得る工程と、  
IV . 前駆体から多孔質二酸化ケイ素材料を少なくとも部分的に除去し、それによって多孔質炭素製品を得る工程と  
を含む、多孔質炭素製品を調製する方法。

【0048】 40  
多孔質炭素製品を調製するさらなる方法は、  
I . 実施形態 | 1 | の工程 a ) 、 b ) 、 c ) および e ) を実施することによって多孔質二酸化ケイ素材料を提供する工程と、  
II . 多孔質二酸化ケイ素材料を炭素源 (606) と接触させる工程と、  
III . 炭素源 (606) を少なくとも部分的に炭化し、それによって多孔質二酸化ケイ素材料および炭素を含む前駆体を得る工程と、  
IV . 前駆体から多孔質二酸化ケイ素材料を少なくとも部分的に除去し、それによって多孔質炭素製品を得る工程と  
を含む。  
【0049】 50

この実施形態の一態様において、炭素源と接触した二酸化ケイ素材料は、工程ⅠⅠと工程ⅠⅡとの間に基材表面から少なくとも部分的に除去される。

#### 【0050】

この実施形態の一態様において、前駆体は、工程ⅠⅢとⅤとの間に基材表面から少なくとも部分的に除去される。この態様は、炭素源がコールタールピッチである場合、特に好ましい。

#### 【0051】

この実施形態のさらなる態様は、炭素源と接触している二酸化ケイ素材料、前駆体、炭素製品からなる群から選択される1つ以上の分解を含む。

#### 【0052】

実施形態|2|～|8|の方法に関連して導入された特徴もまた、この実施形態に利用されてもよい。

10

#### 【0053】

|12| 実施形態|11|に記載の方法(100)によって得られる多孔質炭素製品。好ましくは、多孔質炭素製品は、実施形態|13|～|22|に導入された特徴の1つ以上を満たす。

#### 【0054】

|13| 以下の基準：

A) 1.5～2.3 g/cm<sup>3</sup>の範囲、好ましくは1.6～2.2 g/cm<sup>3</sup>の範囲、より好ましくは1.7～2.1 g/cm<sup>3</sup>の範囲の材料密度、

20

B) 0.2～1.2 g/cm<sup>3</sup>の範囲、好ましくは0.3～1.1 g/cm<sup>3</sup>の範囲、より好ましくは0.4～1.0 g/cm<sup>3</sup>の範囲のかさ密度、

C) 0.4～0.9の範囲、好ましくは0.45～0.85の範囲、より好ましくは0.5～0.8の範囲の多孔率、

D) 20～800 m<sup>2</sup>/gの範囲、好ましくは30～750 m<sup>2</sup>/gの範囲、より好ましくは40～700 m<sup>2</sup>/gの範囲のBET-SSAに従った全比表面積、

E) 0～400 m<sup>2</sup>/gの範囲、好ましくは0～300 m<sup>2</sup>/gの範囲、より好ましくは1～250 m<sup>2</sup>/gの範囲の2 nm未満の細孔径を有する細孔の比表面積、

F)

a. 20～100 nmの範囲、好ましくは30～90 nmの範囲、より好ましくは40～80 nmの範囲のD<sub>10</sub>、

30

b. 50～1000 nmの範囲、好ましくは60～900 nmの範囲、より好ましくは70～800 nmの範囲のD<sub>50</sub>、および

c. 2000～9000 nmの範囲、好ましくは2500～8500 nmの範囲、より好ましくは3000～8000 nmの範囲のD<sub>90</sub>を特徴とする10～10000 nmの決定した細孔径分布、

G) 1900～8980 nmの範囲、好ましくは2410～8470 nmの範囲、より好ましくは2920～7960 nmの範囲のD<sub>90</sub>とD<sub>10</sub>との差を特徴とする10～10000 nmの範囲の決定した細孔径分布、

H) 1:20～1:450の範囲、好ましくは1:28～1:283の範囲、より好ましくは1:38～1:200の範囲のD<sub>10</sub>:D<sub>90</sub>の比を特徴とする10～10000 nmの範囲の決定した細孔径分布、

40

I) 10～100 nmの範囲の細孔径を有する細孔について、0.20～2.50 cm<sup>3</sup>/gの範囲、好ましくは0.3～2.4 cm<sup>3</sup>/gの範囲、より好ましくは0.4～2.3 cm<sup>3</sup>/gの範囲の累積細孔体積、

J) 100 nm超および1000 nm以下の細孔径を有する細孔について、0.20～2.50 cm<sup>3</sup>/gの範囲、好ましくは0.3～2.4 cm<sup>3</sup>/gの範囲、より好ましくは0.4～2.3 cm<sup>3</sup>/gの範囲の累積細孔体積、ならびに

K) 1000 nm超および10000 nm以下の細孔径を有する細孔について、0.01～1.00 cm<sup>3</sup>/gの範囲、好ましくは0.05～0.9 cm<sup>3</sup>/gの範囲、より好

50

ましくは $0.1 \sim 0.8 \text{ cm}^3 / \text{g}$ の範囲の累積細孔体積  
のうちの1つ以上を満たす多孔質炭素製品。

### 【0055】

| 14 | 以下の基準：

A)  $1.6 \sim 2.1 \text{ g / cm}^3$  の範囲、好ましくは $1.7 \sim 2.05 \text{ g / cm}^3$  の範囲  
、より好ましくは $1.8 \sim 2.0 \text{ g / cm}^3$  の範囲の材料密度、

B)  $0.05 \sim 0.7 \text{ g / cm}^3$  の範囲、好ましくは $0.08 \sim 0.6 \text{ g / cm}^3$  の範囲  
、より好ましくは $0.1 \sim 0.5 \text{ g / cm}^3$  の範囲のかさ密度、

C)  $0.5 \sim 0.9$  の範囲、好ましくは $0.6 \sim 0.9$  の範囲、より好ましくは $0.7 \sim 0.9$  の範囲の多孔率、

D)  $20 \sim 80 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲、好ましくは $30 \sim 60 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲、より好ましく  
は $40 \sim 55 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲のBET-SSAに従った全比表面積、

E)  $5 \sim 25 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲、好ましくは $7 \sim 18 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲、より好ましくは $8 \sim 12 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲の $2 \text{ nm}$ 未満の細孔径を有する細孔の比表面積、

F)

a.  $20 \sim 150 \text{ nm}$  の範囲、好ましくは $40 \sim 100 \text{ nm}$  の範囲、より好ましくは  
 $50 \sim 65 \text{ nm}$  の $D_{10}$ 、

b.  $300 \sim 800 \text{ nm}$  の範囲、好ましくは $400 \sim 750 \text{ nm}$  の範囲、より好ましくは $450 \sim 700 \text{ nm}$  の範囲の $D_{50}$ 、および

c.  $500 \sim 7000 \text{ nm}$  の範囲、好ましくは $700 \sim 6500 \text{ nm}$  の範囲、より好ましくは $800 \sim 6000 \text{ nm}$  の範囲の $D_{90}$

を特徴とする $10 \sim 10000 \text{ nm}$  の決定した細孔径分布、

G)  $350 \sim 6980 \text{ nm}$  の範囲、好ましくは $600 \sim 6460 \text{ nm}$  の範囲、より好ましくは $735 \sim 5950 \text{ nm}$  の範囲の $D_{90}$ と $D_{10}$ との差を特徴とする $10 \sim 10000 \text{ nm}$  の範囲の決定した細孔径分布、

H)  $1:3 \sim 1:350$  の範囲、好ましくは $1:7 \sim 1:163$  の範囲、より好ましくは $1:12 \sim 1:120$  の範囲の $D_{10}:D_{90}$ の比を特徴とする $10 \sim 10000 \text{ nm}$  の範囲の決定した細孔径分布、

I)  $10 \sim 100 \text{ nm}$  の範囲の細孔径を有する細孔について、 $0.05 \sim 0.45 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲、好ましくは $0.10 \sim 0.35 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲、より好ましくは $0.15 \sim 0.25 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲の累積細孔体積、

J)  $100 \text{ nm}$ 超および $1000 \text{ nm}$ 以下の細孔径を有する細孔について、 $0.70 \sim 1.60 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲、好ましくは $0.80 \sim 1.40 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲、より好ましくは $0.95 \sim 1.25 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲の累積細孔体積、ならびに

K)  $1000 \text{ nm}$ 超および $10000 \text{ nm}$ 以下の細孔径を有する細孔について、 $0.05 \sim 1.5 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲、好ましくは $0.1 \sim 1.2 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲、より好ましくは $0.15 \sim 1.05 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲の累積細孔体積

のうちの1つ以上を満たす多孔質炭素製品。

### 【0056】

| 15 | 以下の基準：

A)  $1.5 \sim 2.3 \text{ g / cm}^3$  の範囲、好ましくは $1.6 \sim 2.27 \text{ g / cm}^3$  の範囲  
、より好ましくは $2.1 \sim 2.25 \text{ g / cm}^3$  の範囲の材料密度、

B)  $0.15 \sim 0.8 \text{ g / cm}^3$  の範囲、好ましくは $0.17 \sim 0.7 \text{ g / cm}^3$  の範囲  
、より好ましくは $0.2 \sim 0.6 \text{ g / cm}^3$  の範囲のかさ密度、

C)  $0.5 \sim 0.95$  の範囲、好ましくは $0.6 \sim 0.8$  の範囲、より好ましくは $0.7 \sim 0.9$  の範囲の多孔率、

D)  $10 \sim 50 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲、好ましくは $12 \sim 40 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲、より好ましく  
は $15 \sim 30 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲のBET-SSAに従った全比表面積、

E)  $0 \sim 3 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲、好ましくは $0 \sim 2 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲、より好ましくは $0 \sim 1 \text{ m}^2 / \text{g}$  の範囲の $2 \text{ nm}$ 未満の細孔径を有する細孔の比表面積、

10

20

30

40

50

F )

d . 20 ~ 200 nm の範囲、好ましくは 30 ~ 150 nm の範囲、より好ましくは 40 ~ 100 nm の範囲の  $D_{10}$  、

e . 300 ~ 550 nm の範囲、好ましくは 350 ~ 500 nm の範囲、より好ましくは 400 ~ 450 nm の範囲の  $D_{50}$  、および

f . 1000 ~ 8000 nm の範囲、好ましくは 3000 ~ 7000 nm の範囲、より好ましくは 5000 ~ 6000 nm の範囲の  $D_{90}$  、

を特徴とする 10 ~ 1000 nm の決定した細孔径分布、

G ) 800 ~ 7980 nm の範囲、好ましくは 2850 ~ 6970 nm の範囲、より好ましくは 4900 ~ 5960 nm の範囲の  $D_{90}$  と  $D_{10}$  との差を特徴とする 10 ~ 1000 nm の範囲の決定した細孔径分布、

H ) 1 : 5 ~ 1 : 400 の範囲、好ましくは 1 : 20 ~ 1 : 233 の範囲、より好ましくは 1 : 50 ~ 1 : 150 の範囲の  $D_{10}$  :  $D_{90}$  の比を特徴とする 10 ~ 10000 nm の範囲の決定した細孔径分布、

I ) 10 ~ 1000 nm の範囲の細孔径を有する細孔について、0 . 05 ~ 0 . 15 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0 . 06 ~ 0 . 12 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0 . 08 ~ 0 . 10 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、

J ) 100 nm 超および 1000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、0 . 6 ~ 1 . 4 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0 . 7 ~ 1 . 3 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0 . 8 ~ 1 . 2 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、ならびに

1000 nm 超および 10000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、0 . 02 ~ 0 . 5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0 . 03 ~ 0 . 45 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0 . 05 ~ 0 . 40 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積

のうちの 1 つ以上を満たす多孔質炭素製品。

#### 【0057】

| 16 | 以下の基準 :

A ) 1 . 35 ~ 2 . 0 g / cm<sup>3</sup> の範囲、好ましくは 1 . 40 ~ 1 . 90 g / cm<sup>3</sup> の範囲、より好ましくは 1 . 45 ~ 1 . 85 g / cm<sup>3</sup> の範囲の材料密度、

B ) 0 . 08 ~ 0 . 5 g / cm<sup>3</sup> の範囲、好ましくは 0 . 09 ~ 0 . 4 g / cm<sup>3</sup> の範囲、より好ましくは 0 . 1 ~ 0 . 3 g / cm<sup>3</sup> の範囲のかさ密度、

C ) 0 . 6 ~ 0 . 95 の範囲、好ましくは 0 . 7 ~ 0 . 90 の範囲、より好ましくは 0 . 70 ~ 0 . 85 の範囲の多孔率、

D ) 300 ~ 600 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは 350 ~ 580 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは 400 ~ 530 m<sup>2</sup> / g の範囲の BET - SSA に従った全比表面積、

E ) 200 ~ 400 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは 225 ~ 375 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは 250 ~ 350 m<sup>2</sup> / g の範囲の 2 nm 未満の細孔径を有する細孔の比表面積

、

F )

g . 20 ~ 100 nm の範囲、好ましくは 25 ~ 80 nm の範囲、より好ましくは 30 ~ 65 nm の  $D_{10}$  、

h . 100 ~ 450 nm の範囲、好ましくは 150 ~ 400 nm の範囲、より好ましくは 200 ~ 385 nm の範囲の  $D_{50}$  、および

i . 450 ~ 7000 nm の範囲、好ましくは 600 ~ 6500 nm の範囲、より好ましくは 1000 ~ 6000 nm の範囲の  $D_{90}$

を特徴とする 10 ~ 10000 nm の決定した細孔径分布、

G ) 350 ~ 6980 nm の範囲、好ましくは 520 ~ 6475 nm の範囲、より好ましくは 935 ~ 5970 nm の範囲の  $D_{90}$  と  $D_{10}$  との差を特徴とする 10 ~ 10000 nm の範囲の決定した細孔径分布、

H ) 1 : 5 ~ 1 : 350 の範囲、好ましくは 1 : 8 ~ 1 : 260 の範囲、より好ましくは 1 : 15 ~ 1 : 200 の範囲の  $D_{10}$  :  $D_{90}$  の比を特徴とする 10 ~ 10000 nm

10

20

30

40

50

の範囲の決定した細孔径分布、

I ) 10 ~ 100 nm の範囲の細孔径を有する細孔について、0.2 ~ 0.8 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.3 ~ 0.7 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0.4 ~ 0.6 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、

J ) 100 nm 超および 1000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、1.4 ~ 2.1 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 1.6 ~ 2.0 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 1.8 ~ 1.9 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、ならびに

K ) 1000 nm 超および 10000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、0.1 ~ 0.5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.12 ~ 0.35 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0.15 ~ 0.25 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積

のうちの 1 つ以上を満たす多孔質炭素製品。

#### | 17 | 以下の基準：

A ) 1.6 ~ 2.05 g / cm<sup>3</sup> の範囲、好ましくは 1.65 ~ 2.00 g / cm<sup>3</sup> の範囲、より好ましくは 1.7 ~ 1.95 g / cm<sup>3</sup> の範囲の材料密度、

B ) 0.08 ~ 0.5 g / cm<sup>3</sup> の範囲、好ましくは 0.09 ~ 0.4 g / cm<sup>3</sup> の範囲、より好ましくは 0.1 ~ 0.3 g / cm<sup>3</sup> の範囲のかさ密度、

C ) 0.6 ~ 0.95 の範囲、好ましくは 0.65 ~ 0.92 の範囲、より好ましくは 0.7 ~ 0.9 の範囲の多孔率、

D ) 30 ~ 90 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは 40 ~ 80 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは 50 ~ 70 m<sup>2</sup> / g の範囲の BET - SSA に従った全比表面積、

E ) 0 ~ 10 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは 0 ~ 7 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは 0 ~ 5 m<sup>2</sup> / g の範囲の 2 nm 未満の細孔径を有する細孔の比表面積、

#### F )

j . 15 ~ 100 nm の範囲、好ましくは 20 ~ 80 nm の範囲、より好ましくは 25 ~ 65 nm の範囲の D<sub>10</sub> 、

k . 100 ~ 450 nm の範囲、好ましくは 150 ~ 410 nm の範囲、より好ましくは 200 ~ 380 nm の範囲の D<sub>50</sub> 、および

l . 400 ~ 6000 nm の範囲、好ましくは 450 ~ 5000 nm の範囲、より好ましくは 500 ~ 4000 nm の範囲の D<sub>90</sub>

を特徴とする 10 ~ 10000 nm の決定した細孔径分布、

G ) 300 ~ 5985 nm の範囲、好ましくは 370 ~ 4980 nm の範囲、より好ましくは 435 ~ 3975 nm の範囲の D<sub>90</sub> と D<sub>10</sub> との差を特徴とする 10 ~ 10000 nm の範囲の決定した細孔径分布、

H ) 1 : 4 ~ 1 : 400 の範囲、好ましくは 1 : 6 ~ 1 : 250 の範囲、より好ましくは 1 : 8 ~ 1 : 160 の範囲の D<sub>10</sub> : D<sub>90</sub> の比を特徴とする 10 ~ 10000 nm の範囲の決定した細孔径分布、

I ) 10 ~ 100 nm の範囲の細孔径を有する細孔について、0.2 ~ 0.6 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.25 ~ 0.5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0.3 ~ 0.4 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、

J ) 100 nm 超および 1000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、1.2 ~ 2.3 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 1.3 ~ 2.2 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 1.5 ~ 2.0 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、ならびに

K ) 1000 nm 超および 10000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、0.05 ~ 1.5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.07 ~ 1.3 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0.1 ~ 1.1 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積

のうちの 1 つ以上を満たす多孔質炭素製品。

#### | 18 | 以下の基準：

A ) 1.4 ~ 1.8 g / cm<sup>3</sup> の範囲、好ましくは 1.45 ~ 1.7 g / cm<sup>3</sup> の範囲、より好ましくは 1.50 ~ 1.65 g / cm<sup>3</sup> の範囲の材料密度、

B ) 0.05 ~ 0.6 g / cm<sup>3</sup> の範囲、好ましくは 0.07 ~ 0.55 g / cm<sup>3</sup> の

10

20

30

40

50

範囲、より好ましくは0.1~0.5 g / cm<sup>3</sup>の範囲のかさ密度、

C) 0.5~0.9の範囲、好ましくは0.6~0.8の範囲、より好ましくは0.6~0.7の範囲の多孔率、

D) 15~65 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは20~55 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは25~45 m<sup>2</sup> / g の範囲のBET-SSAに従った全比表面積、

E) 0~30 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは2~20 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは5~15 m<sup>2</sup> / g の範囲の2 nm未満の細孔径を有する細孔の比表面積、

F)

m. 20~60 nmの範囲、好ましくは25~50 nmの範囲、より好ましくは30~40 nmの範囲のD<sub>10</sub>、

n. 250~400 nmの範囲、好ましくは275~360 nmの範囲、より好ましくは295~335 nmの範囲のD<sub>50</sub>、および

o. 500~700 nmの範囲、好ましくは550~650 nmの範囲、より好ましくは580~620 nmの範囲のD<sub>90</sub>

を特徴とする10~10000 nmの決定した細孔径分布、

G) 440~680 nmの範囲、好ましくは500~625 nmの範囲、より好ましくは540~590 nmの範囲のD<sub>90</sub>とD<sub>10</sub>との差を特徴とする10~10000 nmの範囲の決定した細孔径分布、

H) 1:8~1:35の範囲、好ましくは1:11~1:26の範囲、より好ましくは1:15~1:21の範囲のD<sub>10</sub>:D<sub>90</sub>の比を特徴とする10~10000 nmの範囲の決定した細孔径分布、

I) 10~100 nmの範囲の細孔径を有する細孔について、0.20~0.60 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは0.25~0.5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは0.30~0.40 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、

J) 100 nm超および1000 nm以下の細孔径を有する細孔について、0.20~0.70 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは0.25~0.60 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは0.30~0.50 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、ならびに

K) 1000 nm超および10000 nm以下の細孔径を有する細孔について、0.10~0.50 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは0.15~0.40 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは0.20~0.30 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積

のうちの1つ以上を満たす多孔質炭素製品。

| 19 | 以下の基準：

A) 1.40~1.80 g / cm<sup>3</sup> の範囲、好ましくは1.45~1.75 g / cm<sup>3</sup> の範囲、より好ましくは1.50~1.70 g / cm<sup>3</sup> の範囲の材料密度、

B) 0.05~0.6 g / cm<sup>3</sup> の範囲、好ましくは0.07~0.55 g / cm<sup>3</sup> の範囲、より好ましくは0.1~0.5 g / cm<sup>3</sup> の範囲のかさ密度、

C) 0.6~0.9の範囲、好ましくは0.65~0.85の範囲、より好ましくは0.7~0.8の範囲の多孔率、

D) 350~550 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは370~500 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは400~440 m<sup>2</sup> / g の範囲のBET-SSAに従った全比表面積、

E) 180~350 m<sup>2</sup> / g の範囲、好ましくは210~320 m<sup>2</sup> / g の範囲、より好ましくは230~290 m<sup>2</sup> / g の範囲の2 nm未満の細孔径を有する細孔の比表面積、

F)

p. 15~50 nmの範囲、好ましくは17~42 nmの範囲、より好ましくは20~35 nmの範囲のD<sub>10</sub>、

q. 150~300 nmの範囲、好ましくは180~250 nmの範囲、より好ましくは200~225 nmの範囲のD<sub>50</sub>、および

r. 330~470 nmの範囲、好ましくは350~450 nmの範囲、より好ましくは380~420 nmの範囲のD<sub>90</sub>

10

20

30

40

50

を特徴とする 10 ~ 10000 nm の決定した細孔径分布、

G ) 280 ~ 455 nm の範囲、好ましくは 308 ~ 433 nm の範囲、より好ましくは 345 ~ 400 nm の範囲の  $D_{9,0}$  と  $D_{1,0}$  との差を特徴とする 10 ~ 10000 nm の範囲の決定した細孔径分布、

H ) 1 : 7 ~ 1 : 31 の範囲、好ましくは 1 : 8 ~ 1 : 26 の範囲、より好ましくは 1 : 11 ~ 1 : 21 の範囲の  $D_{1,0} : D_{9,0}$  の比を特徴とする 10 ~ 10000 nm の範囲の決定した細孔径分布、

I ) 10 ~ 100 nm の範囲の細孔径を有する細孔について、0.8 ~ 1.6 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.9 ~ 1.5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 1.0 ~ 1.4 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、

J ) 100 nm 超および 1000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、0.4 ~ 1.0 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.5 ~ 0.9 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0.6 ~ 0.8 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積、ならびに

K ) 1000 nm 超および 10000 nm 以下の細孔径を有する細孔について、0.05 ~ 0.5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.08 ~ 0.35 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0.10 ~ 0.25 cm<sup>3</sup> / g の範囲の累積細孔体積

のうちの 1 つ以上を満たす多孔質炭素製品。

#### 【0058】

| 20 | 多孔質炭素製品が、以下：

a . 水銀圧入ポロシメトリーによって測定して、50 nm 超から 1000 nm 以下の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_1$  、

b . 水銀圧入ポロシメトリーによって測定して、10 nm から 50 nm の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_2$  、

c . BJH - BET によって測定して、0 nm 超から 6 nm 以下の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_3$  、

d . BJH - BET によって測定して、2 nm 以下の細孔径を有する細孔の体積  $P_4$  、

e . BJH - BET によって測定して、0 nm から 10 nm 未満の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_5$  、

f . 総体積  $P_S = P_1 + P_2 + P_5$

を有する複数の細孔を含み、

以下の基準：

i .  $P_1$  が 0.1 ~ 2.5 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.2 ~ 2.4 cm<sup>3</sup> / g の範囲、より好ましくは 0.3 ~ 2.3 cm<sup>3</sup> / g の範囲であり、

ii .  $P_1 / P_S$  が少なくとも 0.1、好ましくは少なくとも 0.15、より好ましくは少なくとも 0.2 であり、

iii .  $P_2$  が 0.01 ~ 1 cm<sup>3</sup> / g の範囲、好ましくは 0.05 ~ 0.9 cm<sup>3</sup> / g、より好ましくは 0.1 ~ 0.8 cm<sup>3</sup> / g の範囲であり、

iv .  $P_4$  が 0.1 cm<sup>3</sup> / g 未満、好ましくは 0.08 cm<sup>3</sup> / g 未満、より好ましくは 0.6 cm<sup>3</sup> / g 未満であり、

v .  $P_3$  が 0 cm<sup>3</sup> / g から 0.5 cm<sup>3</sup> / g 以下、好ましくは 0 cm<sup>3</sup> / g ~ 0.45 cm<sup>3</sup> / g、より好ましくは 0.01 cm<sup>3</sup> / g ~ 0.4 cm<sup>3</sup> / g の範囲であり、

vi .  $P_2 / P_S$  が 0.01 ~ 0.5、好ましくは 0.02 ~ 0.45、より好ましくは 0.05 ~ 0.4 の範囲であり、

vii .  $P_1 / P_S$  が少なくとも 0.65、好ましくは少なくとも 0.67、より好ましくは少なくとも 0.7 であり、 $P_2 / P_S$  が 0.02 ~ 0.25、好ましくは 0.04 ~ 0.22、より好ましくは 0.1 ~ 0.2 の範囲であり、 $P_3 / P_S$  が 0.10 未満、好ましくは 0.8 未満、より好ましくは 0.7 未満であり、

viii .  $P_3 / P_2$  が 0 ~ 0.2、好ましくは 0 ~ 0.15、より好ましくは 0.01 ~ 0.12 の範囲であり、

ix .  $P_3 / P_2$  が 0.3 ~ 0.7、好ましくは 0.33 ~ 0.67、より好ましくは

10

20

30

40

50

0.35～0.65の範囲である、

のうちの1つ以上を満たす、実施形態 | 12 | ~ | 19 | のいずれか一つに記載の多孔質炭素製品。

### 【0059】

| 21 | 多孔質炭素製品が、以下：

a . 水銀圧入ポロシメトリーによって測定して、50 nm超から1000 nm以下の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_1$  、

b . 水銀圧入ポロシメトリーによって測定して、10 nm～50 nmの範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_2$  、

c . B J H - B E T によって測定して、0 nm超から6 nm以下の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_3$  、

d . B J H - B E T によって測定して、2 nm以下の細孔径を有する細孔の体積  $P_4$  、

e . B J H - B E T によって測定して、0 nmから10 nm未満の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_5$  、

f . 総体積  $P_S = P_1 + P_2 + P_5$

を有する複数の細孔を含むモノリシック炭素体であり、

以下の基準：

i .  $P_1$  が0.1～10 cm<sup>3</sup> / gの範囲、好ましくは0.15～8 cm<sup>3</sup> / gの範囲、より好ましくは0.2～7 cm<sup>3</sup> / gの範囲であり、

i i .  $P_1 / P_S$  が少なくとも0.1、好ましくは少なくとも0.15、より好ましくは少なくとも0.2であり、

i i i .  $P_2$  が0.01～1 cm<sup>3</sup> / gの範囲、好ましくは0.05～0.9 cm<sup>3</sup> / gの範囲、より好ましくは0.1～0.8 cm<sup>3</sup> / gの範囲であり、

i v .  $P_4$  が0.1 cm<sup>3</sup> / g未満、好ましくは0.9 cm<sup>3</sup> / g未満、より好ましくは0.8 cm<sup>3</sup> / g未満であり、

v .  $P_3$  が0 cm<sup>3</sup> / gから0.5 cm<sup>3</sup> / g以下、好ましくは0 cm<sup>3</sup> / g～0.45 cm<sup>3</sup> / g、より好ましくは0.01 cm<sup>3</sup> / g～0.4 cm<sup>3</sup> / gの範囲であり、

v i .  $P_2 / P_S$  が0.01～0.5、好ましくは0.05～0.45、より好ましくは0.1～0.4の範囲であり、

v i i .  $P_1 / P_S$  が少なくとも0.65、好ましくは少なくとも0.67、より好ましくは少なくとも0.7であり、 $P_2 / P_S$  が0.02～0.25、好ましくは0.04～0.22、より好ましくは0.05～0.20の範囲であり、 $P_3 / P_S$  が0.10未満、好ましくは0.09未満、より好ましくは0.08未満であり、

v i i i .  $P_3 / P_2$  が0～0.2、好ましくは0～0.19、より好ましくは0.01～0.18の範囲であり、

i x .  $P_3 / P_2$  が0.3～0.7、好ましくは0.33～0.67、より好ましくは0.35～0.65の範囲である、

のうちの1つ以上を満たす、実施形態 | 12 | ~ | 19 | のいずれか一つに記載の多孔質炭素製品。

### 【0060】

| 22 | 多孔質炭素製品が、以下：

a . 水銀圧入ポロシメトリーによって測定して、50 nm超から1000 nm以下の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_1$  、

b . 水銀圧入ポロシメトリーによって測定して、10 nm～50 nmの範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_2$  、

c . B J H - B E T によって測定して、0 nm超から6 nm以下の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_3$  、

d . B J H - B E T によって測定して、2 nm以下の細孔径を有する細孔の体積  $P_4$  、

e . B J H - B E T によって測定して、0 nmから10 nm未満の範囲の細孔径を有する細孔の体積  $P_5$  、

f . 総体積  $P_S = P_1 + P_2 + P_5$   
を有する複数の細孔を含むモノリシック炭素体であり、

以下の基準：

i .  $P_1$  が  $0.1 \sim 1.0 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲、好ましくは  $0.15 \sim 8 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲  
、より好ましくは  $0.2 \sim 7 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲であり、

i i .  $P_1 / P_S$  が少なくとも  $0.1$  、好ましくは少なくとも  $0.15$  、より好ましく  
は少なくとも  $0.2$  であり、

i i i .  $P_2$  が  $0.01 \sim 1 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲、好ましくは  $0.05 \sim 0.9 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲  
、より好ましくは  $0.1 \sim 0.8 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲であり、

i v .  $P_4$  が  $0.1 \text{ cm}^3 / \text{g}$  未満、好ましくは  $0.9 \text{ cm}^3 / \text{g}$  未満、より好ましく  
は  $0.8 \text{ cm}^3 / \text{g}$  未満であり、10

v .  $P_3$  が  $0 \text{ cm}^3 / \text{g}$  から  $0.5 \text{ cm}^3 / \text{g}$  以下、好ましくは  $0 \text{ cm}^3 / \text{g} \sim 0.4$   
 $5 \text{ cm}^3 / \text{g}$  、より好ましくは  $0.01 \text{ cm}^3 / \text{g} \sim 0.4 \text{ cm}^3 / \text{g}$  の範囲であり、

v i .  $P_2 / P_S$  が  $0.01 \sim 0.5$  、好ましくは  $0.05 \sim 0.45$  、より好ましく  
は  $0.1 \sim 0.4$  の範囲であり、

v i i .  $P_1 / P_S$  が少なくとも  $0.65$  、好ましくは少なくとも  $0.67$  、より好ましく  
は少なくとも  $0.7$  であり、 $P_2 / P_S$  が  $0.02 \sim 0.25$  、好ましくは  $0.04$   
 $\sim 0.22$  、より好ましくは  $0.05 \sim 0.20$  の範囲であり、 $P_3 / P_S$  が  $0.10$  未  
満、好ましくは  $0.09$  未満、より好ましくは  $0.08$  未満であり、

v i i i .  $P_3 / P_2$  が  $0 \sim 0.2$  、好ましくは  $0 \sim 0.19$  、より好ましくは  $0.0$   
 $1 \sim 0.18$  の範囲であり、20

i x .  $P_3 / P_2$  が  $0.3 \sim 0.7$  、好ましくは  $0.33 \sim 0.67$  、より好ましくは  
 $0.35 \sim 0.65$  の範囲である、

のうちの1つ以上を満たす、実施形態 | 12 | ~ | 19 | のいずれか一つに記載の多孔質  
炭素製品。

#### 【0061】

| 23 | 実施形態 | 12 | ~ | 22 | のいずれか一つに記載の多孔質炭素製品を含む  
装置。

#### 【0062】

| 24 | 電極の総重量に基づいて、 $0.1 \sim 1.0 \text{ wt\%}$  の範囲、好ましくは  $0.3 \sim$   
 $8 \text{ wt\%}$  の範囲、より好ましくは  $0.5 \sim 6 \text{ wt\%}$  の範囲の多孔質炭素製品を含む電極を  
備える、実施形態 | 23 | に記載の装置。30

#### 【0063】

| 25 | 装置が電気化学装置である、実施形態 | 23 | または | 24 | に記載の装置  
。

#### 【0064】

| 26 | 電極における実施形態 | 12 | ~ | 22 | のいずれか一つに記載の多孔質炭  
素製品の使用。

#### 【0065】

| 27 | 多孔質炭素製品が、電極の総重量に基づいて、 $0.1 \sim 1.0 \text{ wt\%}$  の範囲、  
好ましくは  $0.3 \sim 8 \text{ wt\%}$  の範囲、より好ましくは  $0.5 \sim 6 \text{ wt\%}$  の範囲で電極に存  
在する、実施形態 | 26 | に記載の使用。40

#### 【0066】

| 28 | 多孔質炭素材料(800)の製造における実施形態 | 9 | または実施形態 |  
10 | に記載の多孔質二酸化ケイ素材料の使用。

#### 【0067】

好ましくは、工程a)において、供給材料組成物は、 $\text{k g} / \text{分}$  の供給速度で反応ゾーン  
に供給される。供給速度は、好ましくは、機器セットアップの規模に合わせて当業者によ  
って選択される。さらに好ましくは、工程c)において、第1の複数の粒子の  $0.5 \sim 0$   
 $.95$  、好ましくは  $0.6 \sim 0.9$  、より好ましくは  $0.7 \sim 0.85$  の割合が基材表面50

上に堆積され、それによって多孔質二酸化ケイ素材料が得られる。さらに好ましくは、工程 c )において、多孔質二酸化ケイ素材料が、ある堆積速度 (kg / 分) で得られ、ここで、堆積速度と供給速度との比は、0.02 ~ 0.2、好ましくは 0.1 ~ 0.2、より好ましくは 0.17 ~ 0.19 の範囲である。

**【図面の簡単な説明】**

**【0068】**

【図 1】多孔質製品を製造するための本発明による方法のフローチャート図である。

【図 2】多孔質製品を製造するための本発明による別の方法のフローチャート図である。

【図 3】方法の工程 a ) ~ c ) を実施するための設定の断面スキームである。

【図 4】図 1 による方法を実施するための設定の断面スキームである。

10

【図 5】多孔質炭素材料を製造するための本発明による方法のフローチャート図である。

【図 6】図 6 a ) は、本発明による多孔質二酸化ケイ素材料の断面の概略図であり、図 6 b ) は、多孔質二酸化ケイ素材料および炭素源を含む前駆体の断面の概略図である。

【図 7】多孔質製品を製造するための本発明による別の方法の工程 g ) に適用される加熱プロファイルを示す図である。

【図 8】本発明による多孔質炭素材料の SEM 記録である。

【図 9】図 9 a ) は、本発明の方法による除去した多孔質二酸化ケイ素材料の細孔構造を示す図である。図 9 b ) は、図 9 a ) の除去した多孔質二酸化ケイ素材料から得られた多孔質材料の細孔構造を示す図である。

【図 10】さらに図 1 による方法を示すフローチャート図である。

20

【図 11】単一の基材表面上の 3 つの堆積点および 3 つの除去点を示す概略図である。

**【発明を実施するための形態】**

**【0069】**

以下では、「テンプレート」という用語が、多孔質二酸化ケイ素材料を指すために使用され、したがって、テンプレートに関連する開示は、除去工程 d ) の前または後、多孔質二酸化ケイ素材料のサイズを減少させるための任意の方法の前または後、および修飾工程 e ) の前または後に、多孔質二酸化ケイ素材料に適用することができる。好ましくは、「テンプレート」という用語は、修飾工程 e ) において既に修飾されている多孔質二酸化ケイ素材料を指す。

**【0070】**

30

**供給材料組成物 / 出発材料の化学反応**

反応ゾーンは、好ましくは、基材表面に向けられている、少なくとも 1 個の反応バーナー、好ましくは少なくとも 2 個の反応バーナー、より好ましくは少なくとも 3 個の反応バーナー、より好ましくは少なくとも 5 個の反応バーナー、最も好ましくは少なくとも 10 個の反応バーナーの火炎から好ましくは形成される。好ましくは、反応ゾーンは、少なくとも 1 列、好ましくは少なくとも 2 列、より好ましくは少なくとも 3 列に配置された複数の反応バーナーから形成される。この場合、異なる列の反応バーナーは、互いにオフセットして配置されることが好ましい。別の好ましい実施形態では、反応ゾーンは、少なくとも 1 つの直線状バーナー、好ましくは少なくとも 2 つの直線状バーナー、より好ましくは少なくとも 3 つの直線状バーナーから形成される。この場合、各直線状バーナーは複数の火炎を一列で提供する。好ましい反応バーナーは前後に移動し、好ましくは基材表面までの距離を一定に保つ。好ましくは、複数の反応バーナーは単一のバーナー供給口に配置され、バーナー供給口は前後に移動する。

40

**【0071】**

二酸化ケイ素の 1 つより多い層が基材表面上に堆積される一実施形態では、二酸化ケイ素は、好ましくは 2 列以上のバーナーによって、2 つ以上の位置で基材表面上に堆積される。この実施形態の特定の態様では、二酸化ケイ素は 2 つ以上の位置に堆積され、単一の層がそれぞれの位置に堆積される。

**【0072】**

テンプレートの調製方法は、好ましくは、中間粒子またはいわゆる一次粒子を得るため

50

に、1つまたは複数の熱分解および／または加水分解工程を含む。これらの一次粒子、またはそれらの凝集によって形成されるいわゆる二次粒子は、基板表面上への堆積に適合されなければならない。第1の複数の粒子は、一次粒子もしくは二次粒子、または両方の混合物であってもよい。

#### 【0073】

熱分解および／または加水分解は、高温で、好ましくは出発材料中の化学結合を切断するように適合された温度で実施されることが好ましい。一実施形態において、熱分解および／または加水分解は、約250より高い温度、好ましくは約300より高い温度、より好ましくは約400より高い温度、さらにより好ましくは約600より高い温度、最も好ましくは約700より高い温度で実施される。通常、熱分解および／または加水分解は断熱火炎温度まで行われる。この温度は供給材料組成に依存し、通常3100未満である。10

#### 【0074】

供給材料組成物と同義語として称される出発材料は、好ましくは液相もしくは気相またはその両方である。供給材料組成物は、好ましくは、一次粒子を含むケイ素を提供するのに適している、1つ以上のケイ素源を含むことが好ましい。一次粒子を含む好ましいケイ素は、中性一次粒子または荷電一次粒子、好ましくは中性一次粒子からなる群から選択される1種以上である。この文脈における好ましい中性一次粒子は、ケイ素原子および酸化ケイ素からなる群から選択される1種以上であり、好ましくは酸化ケイ素、より好ましくはSiO<sub>2</sub>である。好ましいケイ素源は有機または無機である。好ましい無機ケイ素源は、シロキサン、ハロゲン化ケイ素、シランおよびケイ酸からなる群から選択される1種以上である。好ましい有機ケイ素源は、有機シラン、好ましくはアルキルシラン；シラノール；シロキシド；シロキサン；シリルエーテル；シラニリデン（silanylidene）；シレンおよびシロールからなる群から選択される1種以上；好ましくはアルキルシラン、シリルエーテルおよびシリルエステルからなる群から選択される1種以上；より好ましくはアルキルシランである。20

#### 【0075】

この文脈における好ましいシロキサンは、線状シロキサンおよび環状シロキサンからなる群から選択される1種以上である。この文脈における好ましい線状シロキサンは、シリコーンまたはその誘導体、ジシロキサン、ヘキサメチルジシロキサン、ポリジメチルシロキサン、ポリメチルヒドロシロキサン、およびポリシリコーン-15からなる群から選択される1種以上である。この文脈における好ましい環状シロキサンは、オクタメチルシクロテトラシロキサン、デカメチルシクロペンタシロキサン、およびドデカメチルシクロヘキサシロキサン、好ましくはオクタメチルシクロテトラシロキサンからなる群から選択される1種以上である。30

#### 【0076】

この文脈における好ましいハロゲン化ケイ素は、SiF<sub>4</sub>、SiCl<sub>4</sub>、およびSiBr<sub>4</sub>からなる群から選択される1種以上であり；好ましくはSiCl<sub>4</sub>およびSiBr<sub>4</sub>からなる群から選択される1種以上であり；より好ましくはSiCl<sub>4</sub>である。一実施形態において、供給材料は、好ましくは一般形態Si<sub>n</sub>X<sub>2n+2</sub>の高次ハロゲン化ケイ素を含み、式中、nは1より大きい整数であり、好ましくは2～20の範囲、より好ましくは3～15の範囲、最も好ましくは4～10の範囲であり、Xはハロゲン化物、好ましくはF、ClおよびBrから選択される1種以上であり、より好ましくはClおよびBrから選択される1種以上であり、最も好ましくはClである。この文脈における好ましい高次ハロゲン化ケイ素は、Si<sub>2</sub>Cl<sub>6</sub>、Si<sub>3</sub>Cl<sub>8</sub>、Si<sub>4</sub>Cl<sub>10</sub>、Si<sub>5</sub>Cl<sub>12</sub>、Si<sub>6</sub>Cl<sub>14</sub>、Si<sub>7</sub>Cl<sub>16</sub>およびSi<sub>8</sub>Cl<sub>18</sub>からなる群から選択される1種以上、好ましくはSi<sub>2</sub>Cl<sub>6</sub>である。好ましいアルキルハロゲン化ケイ素は、好ましくはメチル、エチル、プロピル、ブチルおよびベンチルからなる群から選択されるアルキル基、好ましくはメチルおよびエチルからなる群から選択される1つまたは複数、より好ましくはメチルと置換される1つまたは複数のハロゲン原子を有する。4050

## 【0077】

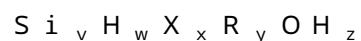
この文脈における好ましいアルキルシランは、一般式  $\text{SiH}_x\text{R}_{4-x}$  (式中、 $x$  は 0 ~ 3 の範囲の数であり； $R$  はアルキル基であり、分子中の  $R$  は互いに同一であっても異なっていてもよい) を有する 1 種以上の化合物である。この文脈における好ましいアルキル基  $R$  は、メチル、エチル、プロピル、ブチルおよびペンチルからなる群から選択される 1 つまたは複数であり、好ましくはメチルおよびエチルからなる群から選択される 1 つまたは複数であり、より好ましくはメチルである。この文脈における好ましいアルキルシランは、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_4$ 、 $\text{SiH}(\text{CH}_3)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{CH}_3)_2$ 、 $\text{SiH}_3(\text{CH}_3)$ 、 $\text{Si}(\text{C}_2\text{H}_5)_4$ 、 $\text{SiH}(\text{C}_2\text{H}_5)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{C}_2\text{H}_5)_2$ 、 $\text{SiH}_3(\text{C}_2\text{H}_5)$ 、 $\text{Si}(\text{C}_3\text{H}_7)_4$ 、 $\text{SiH}(\text{C}_3\text{H}_7)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{C}_3\text{H}_7)_2$ 、 $\text{SiH}_3(\text{C}_3\text{H}_7)$ 、 $\text{Si}(\text{C}_4\text{H}_9)_4$ 、 $\text{SiH}(\text{C}_4\text{H}_9)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{C}_4\text{H}_9)_2$ 、 $\text{SiH}_3(\text{C}_4\text{H}_9)$  からなる群から選択される 1 つまたは複数；好ましくは、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_4$ 、 $\text{Si}(\text{C}_2\text{H}_5)_4$ 、 $\text{Si}(\text{C}_3\text{H}_7)_4$  および  $\text{Si}(\text{C}_4\text{H}_9)_4$  からなる群から選択される 1 つまたは複数である。一実施形態において、供給原料は、好ましくは、式  $\text{Si}_n\text{H}_y\text{R}_z$  を有する高次アルキルシランを含み、式中、 $n$  は 1 より大きい整数、好ましくは 2 ~ 20 の範囲、より好ましくは 3 ~ 15 の範囲、最も好ましくは 4 ~ 10 の範囲であり、 $y$  および  $z$  の和は  $2 * n + 2$  であり、 $z$  は 1 以上である。  
10

## 【0078】

好ましいシリルエーテルは、一般式  $\text{SiH}_x\text{R}_y(\text{OR})_z$  を有する 1 種以上の化合物であり、式中、 $x$  および  $y$  は 0 ~ 3 の範囲の数であり； $z$  は 1 ~ 4 の範囲の数であり； $x$ 、 $y$  および  $z$  の和は 4 であり； $R$  はアルキル基であり、ここで、分子中の  $R$  は互いに同一であっても異なっていてもよい。この文脈における好ましいアルキル基  $R$  は、メチル、エチル、プロピル、ブチルおよびペンチルからなる群から選択される 1 つまたは複数であり；好ましくはメチルおよびエチルからなる群から選択される 1 つまたは複数であり；より好ましくはメチルである。この文脈における好ましいシリルエーテルは、 $\text{Si}(\text{OCH}_3)_4$ 、 $\text{SiH}(\text{OCH}_3)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{OCH}_3)_2$ 、 $\text{SiH}_3(\text{OCH}_3)$ 、 $\text{Si}(\text{OC}_2\text{H}_5)_4$ 、 $\text{SiH}(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{OC}_2\text{H}_5)_2$ 、 $\text{SiH}_3(\text{OC}_2\text{H}_5)$ 、 $\text{Si}(\text{OC}_3\text{H}_7)_4$ 、 $\text{SiH}(\text{OC}_3\text{H}_7)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{OC}_3\text{H}_7)_2$ 、 $\text{SiH}_3(\text{OC}_3\text{H}_7)$ 、 $\text{Si}(\text{OC}_4\text{H}_9)_4$ 、 $\text{SiH}(\text{OC}_4\text{H}_9)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{OC}_4\text{H}_9)_2$ 、 $\text{SiH}_3(\text{OC}_4\text{H}_9)$ 、 $\text{Si}(\text{OCH}_3)_4$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)(\text{OCH}_3)_3$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_2(\text{OCH}_3)_2$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_3(\text{OCH}_3)$ 、 $\text{Si}(\text{OCH}_3)_4$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)(\text{OC}_2\text{H}_5)_3$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_2(\text{OC}_2\text{H}_5)_2$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_3(\text{OC}_2\text{H}_5)$ 、 $\text{Si}(\text{OC}_3\text{H}_7)_4$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_2(\text{OC}_3\text{H}_7)_2$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_3(\text{OC}_3\text{H}_7)$ 、 $\text{Si}(\text{OC}_4\text{H}_9)_4$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)(\text{OC}_4\text{H}_9)_3$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_2(\text{OC}_4\text{H}_9)_2$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_3(\text{OC}_4\text{H}_9)$  からなる群から選択される 1 つまたは複数；好ましくは  $\text{SiH}_3(\text{OCH}_3)_3$ 、 $\text{SiH}_2(\text{OCH}_3)_2$ 、 $\text{SiH}(\text{OCH}_3)_3$ 、 $\text{Si}(\text{OCH}_3)_4$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_3(\text{OCH}_3)_3$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)_2(\text{OCH}_3)_2$ 、 $\text{Si}(\text{CH}_3)(\text{OCH}_3)_3$  からなる群から選択される 1 つまたは複数であり；好ましくは  $\text{Si}(\text{CH}_3)_2(\text{OCH}_3)_2$  または  $\text{SiH}_2(\text{OCH}_3)_2$  である。一実施形態では、供給材料は、好ましくは式  $\text{Si}_n\text{H}_x\text{R}_y(\text{OR})_z$  (式中、 $n$  は 1 より大きい整数であり、好ましくは 2 ~ 20 の範囲であり、より好ましくは 3 ~ 15 の範囲であり、最も好ましくは 4 ~ 10 の範囲であり、 $z$  は 1 つまたは複数であり、 $x$ 、 $y$  および  $z$  の和は  $2 * n + 2$  である) を有する高次シリルエーテルを含む。  
20  
30  
40

## 【0079】

本発明の一実施形態では、出発材料は、一般化学式：



を有するケイ素源を含み、

式中、 $v$ 、 $w$ 、 $x$ 、 $y$  および  $z$  は正の整数であり；

$v$  は正の整数、好ましくは 1 ~ 20 の範囲、より好ましくは 1 ~ 15 の範囲、さらによ

り好ましくは1～10の範囲、最も好ましくは1であり；

w、x、yおよびzの和は $2^*x + 2$ であり；

Rは、好ましくは、アルキル、アルケニル、エステルおよびアルコキシ；好ましくはアルキルまたはアルコキシからなる群から選択される有機部分であり；ここで、分子中のRは互いに同一であっても異なっていてもよい；

Xは、ハロゲン；好ましくはF、Cl、BrまたはI；より好ましくはCl、BrまたはI；最も好ましくはClであり；ここで、分子中のXは互いに同一であっても異なっていてもよい。

#### 【0080】

一実施形態では、出発材料は、熱分解および／または加水分解のためのエネルギーを提供するための燃料を含む。好ましい燃料は、水素および有機化合物からなる群から選択される1つまたは複数であり；好ましくは水素である。この文脈における好ましい有機化合物は、アルカン、アルケン、アルキン、ケトン、アルデヒドおよびエステルからなる群から選択される1つまたは複数であり；好ましくはアルカンまたはアルケンであり；より好ましくはアルカンである。この文脈における好ましいアルカンは、メタン、エタン、プロパン、ブタンおよびペンタンからなる群から選択される1つまたは複数であり、好ましくはメタンである。この文脈における好ましいアルケンは、エテン、プロペン、ブテンおよびペンテンからなる群より選択される1つまたは複数である。好ましいアルキンは、アセチレンとも称されるエチエンである。

#### 【0081】

出発材料は、燃料からエネルギーを解放し、SiO<sub>2</sub>種の生成を可能にする両方のために、酸素を含むことが好ましい。出発材料の相対量、出発材料の圧力、ならびに熱分解および／または加水分解の温度は、本発明の有益な特性を促進するために、当業者によって選択することができる。

#### 【0082】

##### 堆積プロセス

本発明による方法の工程c)において、第1の複数の粒子の粒子は、基材の基材表面上に堆積される。第1の複数の粒子の粒子は反応ゾーンにおける上記の化学反応から得られる。好ましくは、第1の複数の粒子は複数の無機粒子である。好ましい無機粒子は酸化ケイ素粒子である。好ましい酸化ケイ素はSiO<sub>2</sub>である。本明細書全体を通して、第1の複数の粒子は、すすまたはすす粒子とも呼ばれる。ここで、「すす」という用語は、加水分解、熱分解、またはその両方から得られる微細粒子に関する。しかしながら、すすという用語は、必ずしも炭素粒子を指すとは限らない。代わりに、好ましいすす粒子は酸化ケイ素粒子である。

#### 【0083】

好ましくは、一次粒子は、核形成及びその後の成長プロセスを介して、反応ゾーン内の気相から得られる。好ましくは、一次粒子は、5～500nm、好ましくは20～400nm、より好ましくは50～250nmの範囲の平均粒径を特徴とする。

#### 【0084】

基板表面上に堆積させるために、一次粒子は、一次粒子が生成される位置から基材表面までの反応ゾーンを横切る距離を覆わなければならない。一次粒子は、基材表面へ向かう途中で、反応ゾーンと相互作用する。このために、および相互作用の程度に応じて、一次粒子は好ましくは凝集して二次粒子を形成する。そのときに、一次粒子の凝集物としての二次粒子は異なる数の一次粒子を含む。したがって、二次粒子は約5～約5000nmの範囲の粒径を含むかなり広い粒径分布を特徴とする。二次粒子は多孔質である。ここで、二次粒子は、凝集した一次粒子の間にメソ細孔を含む。メソ細孔は、2～100nm、好ましくは10～80nm、より好ましくは30～70nmの範囲の平均細孔サイズを特徴とする。

#### 【0085】

さらに、好ましい二次粒子は、BET-SSAによる比表面積が5～140m<sup>2</sup>/g、

10

20

30

40

50

好ましくは  $6 \sim 30 \text{ m}^2 / \text{g}$ 、より好ましくは  $7 \sim 15 \text{ m}^2 / \text{g}$  であることを特徴とする。

#### 【 0 0 8 6 】

二次粒子は基材表面上に堆積される。ここで、基材表面は、好ましくは、容器の表面、ドームの表面、幾何学的本体の側面、プレートの表面およびフィルタの表面、またはそれらの少なくとも 2 つの組み合わせからなる群から選択されるものである。容器の好ましい表面は、容器の内面もしくは外面またはその両方である。好ましい幾何学的本体はプリズムである。好ましいプリズムは円柱である。

#### 【 0 0 8 7 】

好ましくは、多孔質二酸化ケイ素材料は、 $10 \sim 500 \mu\text{m}$ 、好ましくは  $20 \sim 100 \mu\text{m}$ 、より好ましくは  $20 \sim 50 \mu\text{m}$  の範囲の多孔質二酸化ケイ素材料の全厚さまで基板表面上に形成される。

#### 【 0 0 8 8 】

基材表面の温度は好ましくは制御される。基材表面の温度を制御することは、基材表面の温度を測定すること、基材表面を加熱すること、および基材表面を冷却すること、またはそれらの少なくとも 2 つの組み合わせからなる群から選択されるものを含む。好ましくは、基材表面の温度を制御することにより、多孔質二酸化ケイ素材料がその全体積にわたって焼結されることが防がれる。基材表面上の第 1 の複数の粒子を部分的に焼結するために、第 1 の複数の粒子は、好ましくは反応バーナーによって加熱される。しかしながら、好ましい実施形態において、基材表面上の第 1 の複数の粒子はさらなる加熱源によって加熱される。好ましいさらなる加熱源は少なくとも 1 つのさらなるバーナーを含む。別の好ましいさらなる加熱源は基材表面の裏側に配置される。好ましくは、基材は、さらなる加熱源を含む、中空体、好ましくは中空円柱である。別の好ましいさらなる加熱源は赤外線エミッタである。好ましくは、基材は、 $500 \sim 1200$ 、より好ましくは  $500 \sim 750$ 、最も好ましくは  $550 \sim 650$  の範囲の温度を有する。上記段落で提供される技術的特徴は、第 1 の複数の粒子の粒子が基材表面上に多孔質二酸化ケイ素材料の正確に 1 つの層を形成する実施形態に関して特に好ましい。

#### 【 0 0 8 9 】

好ましくは、基材表面上の多孔質二酸化ケイ素材料の表面は、 $800 \sim 1500$ 、好ましくは  $900 \sim 1400$ 、より好ましくは  $1000 \sim 1300$  の範囲の温度を有し、多孔質二酸化ケイ素材料の表面は反応ゾーンに面する。

#### 【 0 0 9 0 】

基材表面上に形成される多孔質二酸化ケイ素材料は、凝集物の形態の第 1 の複数の粒子の粒子を含む。ここで、凝集物は上記のメソ細孔を含む。凝集物の間に、多孔質二酸化ケイ素材料はマクロ細孔を含む。マクロ細孔は、好ましくは  $0.1 \sim 1.0 \mu\text{m}$ 、好ましくは  $0.2 \sim 0.9 \mu\text{m}$ 、より好ましくは  $0.4 \sim 0.6 \mu\text{m}$  の範囲の平均細孔径を特徴とする。

#### 【 0 0 9 1 】

好ましくは、多孔質二酸化ケイ素材料は、多孔質二酸化ケイ素材料の材料密度の  $10 \sim 40\%$ 、好ましくは  $20 \sim 35\%$ 、より好ましくは  $22 \sim 30\%$  の範囲の相対密度を有する。前述の相対密度を有する多孔質二酸化ケイ素材料は、第 1 の複数の粒子の粒子が基材表面上に多孔質二酸化ケイ素材料の正確に 1 つの層を形成する実施形態に関して特に好ましい。

#### 【 0 0 9 2 】

ここで、材料密度は細孔を除く多孔質二酸化ケイ素材料の密度である。多孔質二酸化ケイ素材料の相対密度は、好ましくは、基材表面の温度、基材表面上のさらなる熱処理の間の多孔質二酸化ケイ素材料の温度、および基材表面上の多孔質二酸化ケイ素材料に作用する機械的圧、またはそれらの少なくとも 2 つの組み合わせからなる群から選択されるものによって調節される。メソ細孔および異なるレベルのマクロ細孔を含む多孔質二酸化ケイ素材料はまた、階層的多孔性もしくは階層的細孔径分布、またはその両方を有するとも称

10

20

30

40

50

される。ここで、マクロ細孔は、好ましくは、多孔質二酸化ケイ素材料に開放細孔率を提供する。したがって、マクロ細孔は、好ましくは、多孔質二酸化ケイ素材料全体にわたって相互接続されたチャネルの系を提供する。本発明による方法の工程 c ) で得られる好ましい多孔質二酸化ケイ素材料は、多峰性細孔径分布を特徴とする。好ましい多峰性細孔径分布は、2 ~ 10 モード、好ましくは 2 ~ 8 モード、より好ましくは 2 ~ 6 モード、最も好ましくは 2 ~ 4 モードを含む。

#### 【 0 0 9 3 】

特に好ましい実施形態において、多孔質二酸化ケイ素材料は、基材表面上に、基材表面と重なる正確に 1 つの層の形態で得られる。多孔質二酸化ケイ素材料の層、好ましくは多孔質二酸化ケイ素材料の各層は、好ましくは 10 ~ 500  $\mu\text{m}$ 、好ましくは 20 ~ 100  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは 20 ~ 50  $\mu\text{m}$  の範囲の層厚さを特徴とする。多孔質二酸化ケイ素材料の好ましい層は、0 . 3 ~ 1 . 25 g / cm<sup>3</sup>、好ましくは 0 . 4 ~ 1 . 2 g / cm<sup>3</sup>、より好ましくは 0 . 5 ~ 1 . 1 g / cm<sup>3</sup>、最も好ましくは 0 . 5 ~ 0 . 7 g / cm<sup>3</sup> の範囲のかさ密度を有する。ここで、かさ密度は、多孔質二酸化ケイ素材料の材料および細孔を含む多孔質二酸化ケイ素材料の密度である。さらに好ましい実施形態において、多孔質二酸化ケイ素材料の層、好ましくは多孔質二酸化ケイ素材料の各層は、1 ~ 10  $\mu\text{m}$ 、より好ましくは 3 ~ 5  $\mu\text{m}$  の範囲の層厚さを特徴とする。

#### 【 0 0 9 4 】

本発明による方法の工程 d ) において、多孔質二酸化ケイ素材料は基材表面から少なくとも部分的に除去される。好ましくは、多孔質二酸化ケイ素材料はガス流によって基材表面から除去される。ここで、ガス流は、好ましくは、多孔質二酸化ケイ素材料の裏側に向付けられ、裏側は基材表面に面する。好ましいガス流は空気流である。このような空気流は、エアナイフまたはエアブレードとしても知られている。別の好ましい実施形態によれば、多孔質二酸化ケイ素材料はソリッドブレードまたはソリッドエッジによって基材表面から除去される。好ましいソリッドブレード / エッジは、金属もしくはセラミック、またはその両方から作られる。ここで、好ましい金属はステンレス鋼である。

#### 【 0 0 9 5 】

特定の実施形態において、多孔質材料のサイズを減少することが好ましい。サイズを減少するための多孔質材料は、二酸化ケイ素材料、多孔質二酸化ケイ素材料、前駆体、または多孔質炭素製品からなる群から選択される 1 つまたは複数であってもよい。減少は第 2 の複数の粒子を提供する。好ましくは、多孔質材料がサイズ減少ゾーンにおいてサイズが減少され、サイズ減少ゾーンは基材表面から少なくとも部分的に空間的に分離される。好ましくは、サイズ減少ゾーンは、サイズ減少ゾーンと基材表面との間の遮蔽によって基材表面から少なくとも部分的に分離される。好ましくは、サイズ減少ゾーンを基材表面から空間的に分離することにより、サイズ減少ゾーンからのダストによる反応ゾーンの汚染が軽減される。好ましくは、多孔質材料は、切断、破断および破碎、またはそれらの少なくとも 2 つの組み合わせからなる群から選択されるものによってサイズが減少される。好ましくは、多孔質材料は、サイズ減少装置においてサイズが減少され、サイズ減少装置は、好ましくは、少なくとも 2 つの回転ローラーを含み、それらの間に多孔質材料が供給される。好ましくは、ローラーは特徴付けられた表面を含む。好ましくは、サイズ減少装置は、サイズ減少装置において多孔質二酸化ケイ素材料のサイズを減少させることによって得られる第 2 の複数の粒子が可能な限り狭い粒径分布を特徴とするように設計される。

#### 【 0 0 9 6 】

好ましくは、1 つの多孔質二酸化ケイ素材料または複数の多孔質二酸化ケイ素材料の場合、第 2 の複数の粒子の粒子は、第 1 の複数の粒子の粒子の粒径より大きい、好ましくは二次粒子の粒径より大きい粒径を特徴とする。好ましくは、第 2 の複数の粒子の粒子は非球形である。好ましい非球形粒子は、ロッドもしくはフレークまたはその両方である。好ましくは、第 2 の複数の粒子の粒子の厚さは、基材表面上の多孔質二酸化ケイ素材料の厚さ以下である。さらに、第 2 の複数の粒子の好ましい粒子は、少なくとも 5 、好ましくは少なくとも 10 の寸法比を特徴とする。

10

20

30

40

50

**【 0 0 9 7 】**

第2の複数の粒子の好ましい粒子は、 $10 \sim 500 \mu\text{m}$ 、好ましくは $20 \sim 100 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $20 \sim 50 \mu\text{m}$ の範囲の厚さを特徴とする。

**【 0 0 9 8 】**

好ましくは、第2の複数の粒子の粒子は、可能な限り高い表面積対体積比を特徴とする。好ましくは、第2の複数の粒子の粒子は、開放細孔を示す切断表面もしくは破壊表面またはその両方を含む。

**【 0 0 9 9 】**

特に好ましい実施形態において、本発明による方法の少なくとも工程 a ) ~ d ) は連続的に実施される。ここで、好ましい基材表面は回転している。好ましい回転基材表面は、回転体の表面、コンベアベルトの表面、またはその両方である。好ましい回転体は直円柱である。好ましくは、基材は、その長手方向軸の周りを回転する。その場合、基材表面は、好ましくは、円筒形基材の外側面である。基材表面は、好ましくは、基材表面から多孔質二酸化ケイ素材料を容易に除去できる材料から作られる。好ましくは、基材表面の材料は、多孔質二酸化ケイ素材料が基材表面上で受ける温度では、多孔質二酸化ケイ素材料に接合しない。好ましい基材は、内側材料で作られた内側部分と、外側材料で作られた外側部分とを含む。ここで、基材表面は外側部分の表面である。好ましい内側材料は金属である。好ましい金属は鋼である。好ましい鋼はステンレス鋼である。好ましい外側材料はセラミックである。好ましいセラミック外側材料は炭化ケイ素である。特に好ましい実施態様において、基材は回転円柱である。円柱は、その長手方向軸の周りを回転する。ここで、基材表面は回転円柱の外側面である。好ましい回転円柱は中空円柱である。10

**【 0 1 0 0 】**

本発明の好ましい実施形態において、分解工程により、非球形粒子が生じる。この実施形態の一態様において、非球形粒子はフレークもしくはロッドまたはその両方である。好ましい非球形粒子は、少なくとも 5、好ましくは少なくとも 10 の寸法比を特徴とする。好ましい非球形粒子は、 $10 \sim 500 \mu\text{m}$ 、好ましくは $20 \sim 100 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $20 \sim 50 \mu\text{m}$ の範囲の厚さによって特徴付けられる。20

**【 0 1 0 1 】**

本発明による方法 1 の好ましい実施形態 10 において、その方法は、その先行する実施形態のいずれかに従って設計され、方法の工程 e ) は、除去された多孔質二酸化ケイ素材料を熱処理することを含む。好ましい熱処理は焼結である。30

**【 0 1 0 2 】**

本発明の好ましい実施形態において、方法の工程 c ) において、基材は、 $0.1 \sim 10$  . 0 m / 分、好ましくは $0.5 \sim 9.5$  m / 分、より好ましくは $1.0 \sim 8.5$  m / 分、最も好ましくは $2.0 \sim 7.0$  m / 分の範囲の接線速度で回転する。好ましい基材表面は円柱の外側面である。したがって、好ましい基材は円柱である。別の好ましい実施形態において、方法の工程 c ) において、基材の接線速度は、基材表面上に 1 つより多い層の形態の多孔質二酸化ケイ素材料を得るように調整され、層は一定の厚さによって特徴付けられる。したがって、好ましくは、基材の接線速度は、方法の工程 c ) において、好ましくは $0.1 \sim 10.0$  m / 分、より好ましくは $0.5 \sim 9.5$  m / 分、より好ましくは $1.0 \sim 8.5$  m / 分、最も好ましくは $2.0 \sim 7.0$  m / 分の範囲内で減少する。40

**【 0 1 0 3 】**

本発明の好ましい実施形態において、供給位置から基材表面までの距離は、 $1 \sim 300$  cm、好ましくは $5 \sim 250$  cm、より好ましくは $10 \sim 200$  cm、より好ましくは $10 \sim 150$  cm、最も好ましくは $30 \sim 100$  cm の範囲である。

**【 0 1 0 4 】**

本発明の好ましい実施形態において、基材は、内部体積を囲む中空体である。

**【 0 1 0 5 】**

本発明の好ましい実施形態において、方法の工程 c ) において、基材の温度は内部体積内から制御される。基材の温度の好ましい制御は加熱もしくは冷却またはその両方である50

。好ましくは、基材は、方法の工程 d ) における除去を容易にするために冷却される。基材の好ましい冷却は空気流による冷却である。

#### 【 0 1 0 6 】

本発明の好ましい実施形態において、基材は第 1 の線熱膨張率を特徴とし、多孔質二酸化ケイ素材料はさらなる線熱膨張率を特徴とし、第 1 の線熱膨張率とさらなる線熱膨張率との差の絶対値は、 $1.90 \cdot 10^{-5}$  から  $2.00 \cdot 10^{-5}$  1 / K、好ましくは  $1.93 \cdot 10^{-5}$  から  $1.97 \cdot 10^{-5}$  1 / K、より好ましくは  $1.94 \cdot 10^{-5}$  から  $1.96 \cdot 10^{-5}$  1 / K の範囲である。好ましくは、第 1 の線熱膨張率は、さらなる線熱膨張率よりも大きい。

#### 【 0 1 0 7 】

本発明の好ましい実施形態において、方法の工程 d ) において、多孔質二酸化ケイ素材料の少なくとも部分的な除去は、多孔質二酸化ケイ素材料を気体流もしくはエッジまたはその両方と接触させることを含む。好ましくは、多孔質二酸化ケイ素材料は、エアナイフもしくはエアブレードまたはその両方を使用して基材表面から除去される。好ましいエッジは、ナイフ、ブレード、およびスクレーパのエッジ、またはそれらの少なくとも 2 つの組み合わせからなる群から選択されるものであり、それらは、好ましくは、金属もしくはセラミックまたはその両方から作製される。好ましい金属はステンレス鋼である。

#### 【 0 1 0 8 】

##### テンプレートの活性化

任意選択で、テンプレートは、テンプレートの表面に化学官能性を導入するために、特に炭素源を含浸させる前に処理されてもよい。好ましくは、適合された多孔質二酸化ケイ素材料はこのように処理される。

#### 【 0 1 0 9 】

一実施形態において、テンプレートは、その表面の疎水性を増加させるためにシランで処理される。この文脈において好ましいシランは、一般式  $\text{SiH}_x\text{R}_{4-x}$  を有する化合物である（式中、 $x$  は 0 ~ 4 の範囲の整数であり； R はアルキル基であり、分子中の R は互いに同じであっても異なっていてもよい）。この文脈における好ましいアルキル基 R は、メチル、エチル、プロピル、ブチルおよびペンチルからなる群から選択される 1 つまたは複数であり、好ましくはメチルおよびエチルからなる群から選択される 1 つまたは複数であり；より好ましくはメチルである。

#### 【 0 1 1 0 】

別の実施形態において、テンプレートは、シロキサン、シラザン、および任意の他の有機材料からなる群から選択される 1 つまたは複数で処理される。

#### 【 0 1 1 1 】

##### 炭素源

炭素源は、テンプレートを接触させ、好ましくは含浸させ、炭化時に炭素体を形成するのに適している。好ましい炭素源は、炭素、炭化で少なくとも部分的に除去されるさらなる元素、および任意選択でヘテロ中心として炭化で炭素体に少なくとも部分的に残るさらなる元素を含む。

#### 【 0 1 1 2 】

一実施形態において、炭素源は、炭素源を含む 1 つまたは複数の芳香族系を含む。好ましい芳香族系は、方法の工程 h ) で得られる多孔質炭素製品における炭素シートの形成に寄与する。好ましい芳香族系は、1 つもしくは複数の芳香族環および / または 1 つもしくは複数の二重芳香族環および / または 1 つもしくは複数の三重芳香族環および / または 4 つ以上の芳香族環から形成される 1 つもしくは複数の構造単位を含む。好ましい芳香族系は、ピッチ、ナフトール、またはそれらの少なくとも 2 つの組み合わせからなる群から選択される。好ましいピッチは、石油ピッチもしくは中間相ピッチまたはその両方である。この実施形態の一態様において、芳香族系は、液体、固体であるか、または溶液中に存在する。この文脈における好ましい溶媒は、クロロホルムおよび / または THF である。

#### 【 0 1 1 3 】

10

20

30

40

50

一実施形態では、炭素源は1種以上の非芳香族炭素源を含む。好ましい非芳香族炭素源は、糖、好ましくは、サッカロース、グルコースおよびフルクトースからなる群から選択される1種以上である。この実施形態の一態様において、非芳香族炭素源は、液体、固体であるか、または溶液中に存在する。この文脈における好ましい溶媒は水である。

#### 【0114】

一実施形態において、炭素源は、1種以上の芳香族系および1種以上の非芳香族炭素源を含む。

#### 【0115】

好ましい実施形態において、炭素源は複数の炭素源粒子である。好ましい複数の炭素源粒子は、0.5～12μm、好ましくは1～12μm、より好ましくは2～9μm、より好ましくは2.5～5μmの範囲のD<sub>5</sub>；2～30μm、好ましくは11～25μm、より好ましくは12～20μm、より好ましくは12～17μmの範囲のD<sub>50</sub>；および5～80μm、好ましくは50～80μm、より好ましくは55～75μm、より好ましくは57～70μmの範囲のD<sub>95</sub>；または少なくとも2つのそれらの組み合わせからなる群から選択されるものを有する粒径分布を特徴とする。別の好ましい複数の炭素源粒子は、0.5～12μm、好ましくは0.5～10μm、より好ましくは0.5～6μm、より好ましくは1～4μmの範囲のD<sub>5</sub>；2～30μm、好ましくは2～20μm、より好ましくは2～12μm、より好ましくは3～8μmの範囲のD<sub>50</sub>；および5～80μm、好ましくは5～25μm、より好ましくは5～20μm、より好ましくは8～15μmの範囲のD<sub>95</sub>；またはそれらの少なくとも2つの組み合わせからなる群から選択されるものを有する粒径分布を特徴とする。10

#### 【0116】

本発明の一実施形態において、多孔質二酸化ケイ素材料は、溶融炭素源、すなわち、周囲温度および圧力で固体であるが、接触温度では溶融される炭素源と接触する。この文脈における溶融材料は、好ましくは軟化した固体または粘性液体または液体である。この実施形態の一態様において、溶融炭素源はコールタールルピッチである。この実施形態の一態様において、溶融炭素源は20 の温度および1バールの圧力で固体である。この実施形態の一態様において、溶融炭素源は、室温で高粘性液体であるものである。この実施形態の炭素源は、周囲温度で多孔質材料に導入することができないか、または少なくとも、周囲温度で多孔質材料に容易かつ効果的に導入することができない。加熱すると、炭素源は、軟化および／または溶融により多孔質材料に導入することができる。この実施形態の一態様において、炭素源を融解するための熱がテンプレート内の残留熱として提供される。この残留熱は、二酸化ケイ素堆積工程、もしくは多孔質二酸化ケイ素材料を加熱する工程、またはその両方から得ることができる。この実施形態の一態様において、炭素源は、280 から 420 の範囲、好ましくは300 から 400 の範囲、より好ましくは320 から 380 の範囲の温度で溶融される。30

#### 【0117】

一実施形態において、二酸化ケイ素材料は、溶媒に溶解した炭素源と接触する。この文脈で言及されるいくつかの溶媒は、水および有機溶媒である。この実施形態の一態様において、炭素源は水中に溶解した糖である。この実施形態の別の態様において、炭素源は有機溶媒に溶解される。この実施形態の一態様において、溶媒は揮発性であり、炭化工程で利用される温度よりも低い蒸発温度を有する。40

#### 【0118】

炭素源が溶媒に溶解しない実施形態は、炭素源が溶媒に溶解する実施形態よりも好ましい。特に、炭素源が有機溶媒に溶解される実施形態は、あまり好ましくない。

#### 【0119】

##### 接触 / 含浸

炭素源は、好ましくは液体流によって、テンプレートの細孔を少なくとも部分的に占めるように、テンプレート、好ましくは多孔質二酸化ケイ素材料と接触する。この工程は含浸とも称される。50

## 【0120】

本発明の実施形態において、炭素源が、好ましくは、液体、溶液、または溶融物の形態で、炭素源の液体流によってテンプレートの未占有体積の少なくとも一部に導入されることが好ましい。

## 【0121】

一実施形態において、炭素源は溶融物としてテンプレートに導入される。炭素源は、好ましくは、粒子の形態でテンプレートと混合され、炭素源を溶融するために加熱される。加熱の温度は、炭素源の融点によって決定されるべきである。

## 【0122】

含浸は、好ましくは、浸漬、スピニング、およびポンピングからなる群から選択される 10 1つまたは複数の工程を含む。

## 【0123】

一実施形態において、2つ以上、好ましくは3つ以上、より好ましくは4つ以上の含浸工程が実施され、好ましくは1つ以上の炭化工程が組み入れられる。

## 【0124】

## 炭化

炭素源は、少なくとも部分的に炭化される。炭素源を炭化することにより、グラファイト系炭素、グラファイト様炭素および非グラファイト系炭素、またはそれらの少なくとも 20 2つの組み合わせからなる群から選択されるものが得られる。ここで、好ましい非グラファイト炭素はターボストラティック炭素である。非グラファイト系炭素は、グラファイトとは異なる炭素の修飾体である。

## 【0125】

本発明による方法の好ましい実施形態において、炭化は、炭素源から非グラファイト炭素を得ることを含み、後続の方法の工程において、グラファイトは、グラファイト化によって非グラファイト炭素から得られる。

## 【0126】

テンプレートを炭素源と接触させている間、炭素源は好ましくは温度 $T_a$ を有する。好ましくは、 $T_a$ は、10～500、より好ましくは15～400、最も好ましくは100～370の範囲である。

## 【0127】

炭化は、好ましくは、炭素源を温度 $T_c$ まで加熱することを含み、ここで $T_c > T_a$ である。好ましくは、 $T_c$ は、400より高く、好ましくは450より高く、最も好ましくは500より高い。

## 【0128】

上記の所与の温度 $T_a$ および $T_c$ は、一定の温度値または適切な温度範囲であり得る。例えば、 $T_c$ は、好ましくは、300より高い一定の温度であり得る。しかしながら、 $T_c$ はある温度範囲としてもよく、前記温度範囲の温度はそれぞれ300より高いことが好ましい。その場合、温度範囲 $T_c$ の温度は、炭素源を炭化するのに適切でなければならない。炭素源および/または炭素源から得られる炭素の温度を $T_c$ に保持することは、前記温度を特定の値 $T_c$ に一定に維持すること、または温度を温度範囲 $T_c$ に保持することを意味し得る。これは、 $T_a$ にも同様に当てはまる。ここで、 $T_a$ は、炭素源をテンプレートと接触させるのに適した特定の温度または温度範囲である。

## 【0129】

## 適合したテンプレート/エッチングの除去

方法の工程h)において、テンプレートは、多孔質炭素製品を得るために、好ましくはエッチングによって、テンプレートおよび炭化から得られた炭素の両方を含む固体(前駆体)から少なくとも部分的に、好ましくは実質的に除去される。

## 【0130】

一実施形態において、テンプレートおよび炭素を含む固体中のテンプレート材料の総重量に基づいて、テンプレート材料の少なくとも約50重量%、好ましくは少なくとも約8 50

0重量%、より好ましくは少なくとも約95重量%、最も好ましくは少なくとも約99重量%が、エッティング工程において除去される。

#### 【0131】

エッティングは、好ましくは、酸または塩基で化学的に溶解する工程を含むことが好ましい。好ましい酸は、ブレンステッド酸、好ましくは無機ブレンステッド酸である。好ましい塩基は、ブレンステッド塩基、好ましくは無機ブレンステッド塩基である。好ましい無機ブレンステッド酸はHFである。好ましい無機ブレンステッド塩基はNaOHである。

#### 【0132】

エッティングに続いて、得られた多孔質炭素製品は、好ましくはリノスされ、好ましくは乾燥される。リノスは好ましくは水で行われる。

10

#### 【0133】

##### グラファイト化

本発明の方法は、任意選択で、好ましくは、多孔質炭素体の面において、好ましくは多孔質炭素製品の構造変化を引き起こす1つ以上のグラファイト化工程を含む。グラファイト化は、好ましくはテンプレートの除去後に実施される。

#### 【0134】

グラファイト化工程についての好ましい温度は、約500～約3000の範囲、より好ましくは約1000～約2500の範囲、最も好ましくは約1300～約2300の範囲である。グラファイト化可能な炭素源が存在する場合、グラファイト化は、好ましくは、多孔質炭素体中のグラファイト様2Dシートの含有量を増加させる。グラファイト化できない炭素源が存在する場合、グラファイト化は、好ましくは、多孔質炭素製品の表面上のいくつかのミクロポアをターボストラティック炭素に変換する。

20

#### 【0135】

##### 多孔質炭素製品の活性化

一実施形態において、多孔質炭素製品は化学的に活性化される。一実施形態において、多孔質炭素製品は、炭素表面の酸化、好ましくは非グラファイト炭素部位の選択的酸化をもたらすために、酸素の存在下で、好ましくは約200～約700の範囲、より好ましくは約300～約600の範囲、最も好ましくは約400～約500の範囲の温度で加熱される。

#### 【0136】

30

##### サイジング

本明細書全体にわたる使用に関して、サイジングは前駆体または製品のサイズを決定する任意の手段を意味する。サイズは、サイズを減少させることによって、または分類することによって、またはその両方によって決定することができる。サイズを減少させる例はフライス加工である。分類の例はふるい分けである。本発明による方法は、いくつかのサイジング工程を含むことができる。

#### 【0137】

本発明による方法の好ましい実施態様において、テンプレートとも称される多孔質二酸化ケイ素材料は、サイズが減少される。好ましくは、テンプレートは、第1のサイズ減少工程においてサイズが減少され、続いて第2のサイズ減少工程において減少される。第1のサイズ減少工程は、テンプレートが基材から除去される前または後に実施形態することができる。好ましくは、第1のサイズ減少工程は、テンプレートが基材から除去された後に実施される。好ましい第1のサイズ減少工程は、破壊、破碎、および切断、またはそれらの少なくとも2つの組み合わせからなる群から選択されるものを含む。好ましくは、第1のサイズ減少工程は粉碎機によって実施される。第1のサイズ減少工程により、好ましくは1～10mmの範囲の粒子幅を有するテンプレート粒子が得られる。さらに好ましくは、第1のサイズ減少工程により、0.01～5mmの範囲の厚さを有するテンプレート粒子が得られる。さらに好ましくは、第1のサイズ減少工程により、1～10mmの範囲の長さを有するテンプレート粒子が得られる。

40

#### 【0138】

50

第2のサイズ減少工程は、好ましくは、第1のサイズ減少工程から得られたテンプレート粒子をフライス加工することを含む。前記フライス加工は、好ましくは、衝撃式製粉機によって実施される。好ましい第2のサイズ減少工程により、複数のテンプレート粒子が得られる。好ましくは、複数のテンプレート粒子は、 $2 \sim 45 \mu\text{m}$ 、好ましくは $7 \sim 40 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $10 \sim 32 \mu\text{m}$ の範囲の $D_5$ ； $120 \sim 200 \mu\text{m}$ 、好ましくは $130 \sim 190 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $135 \sim 175 \mu\text{m}$ の範囲の $D_{50}$ ； $330 \sim 580 \mu\text{m}$ 、好ましくは $350 \sim 550 \mu\text{m}$ 、より好ましくは $380 \sim 520 \mu\text{m}$ の範囲の $D_{95}$ からなる群から選択されるものを有する粒径分布；および複数のテンプレート粒子の合計の重量に基づいて各々 $5 \text{ wt \%}$ 未満、好ましくは $3 \text{ wt \%}$ 未満、より好ましくは $1 \text{ wt \%}$ 未満の量である、 $315 \mu\text{m}$ より大きい粒径を有する粒子の画分；またはそれらの少なくとも2つの組み合わせを特徴とする。ここで、 $D_5$ 、 $D_{50}$ および $D_{95}$ 値は、レーザー回折によって測定される。 $315 \mu\text{m}$ より大きい粒径を有する粒子の画分は、ふるい分けおよびその後の秤量によって測定される。

## 【0139】

本発明による方法のさらに好ましい実施形態において、テンプレートおよび炭素源の炭化から得られた炭素を含む前駆体は、第3のサイズ減少工程においてサイズが減少される。ここで、前駆体はフライス加工によってサイズが減少されることが好ましい。フライス加工は、好ましくは、衝撃式粉碎機、ジェットミル、ボールミル、およびローラーミルまたはそれらの少なくとも2つの組み合わせからなる群から選択されるもので実施される。上記前駆体のサイズを減少させることにより、好ましくは複数の前駆体粒子が得られる。

## 【0140】

本発明による別の好ましい実施形態において、第3のサイズ減少工程は、流動床もしくはミキサーまたはその両方で実施される。ここで、好ましいミキサーはパドルミキサーである。

## 【0141】

本発明の多孔質炭素製品は、好ましくは、第4のサイズ減少工程においてサイズが減少される。第4のサイズ減少工程は、好ましくは、多孔質炭素製品を乾燥させた後、もしくは多孔質炭素製品を乾燥させる前に、またはその両方で実施される。

## 【0142】

第4のサイズ減少工程が乾燥の前に実施される場合、第4のサイズ減少工程は、多孔質炭素製品を湿式粉碎することを含むことが好ましい。好ましい湿式粉碎はボールミルで実施される。好ましい実施形態において、湿式粉碎の後、多孔質炭素製品は湿潤状態に分類される。湿潤状態における好ましい分類は、遠心分離もしくはデカンテーションまたはその両方である。別の好ましい実施形態において、多孔質炭素製品は、湿式粉碎の後、分類の前に乾燥される。

## 【0143】

第4のサイズ減少工程が乾燥後に実施される場合、第4のサイズ減少工程は、好ましくは、ジェットミルもしくはローラーミルまたはその両方を使用して実施される。好ましいジェットミルはエアジェットミルである。好ましいジェットミルは圧縮ガスを含み、圧縮ガスは、 $10 \text{ バール未満}$ 、好ましくは $5 \text{ バール未満}$ 、より好ましくは $3 \text{ バール未満}$ の範囲の圧力を特徴とする。好ましくは、ジェットミルは、少なくとも2つの対向するジェットを含む。別の好ましいジェットミルは分類ローターを含む。

## 【0144】

乾燥した多孔質炭素製品の分類は、好ましくは、ふるいもしくは分類ローター、またはその両方を使用して実施される。最も好ましいのは、分類ローターである。好ましい分類ローターはシフターである。ふるい分けによって、乾燥した多孔質炭素製品は、好ましくは、より短い時間で、もしくは多孔質炭素製品への損傷が少ない状態で、またはその両方で分類することができる。多孔質炭素製品のふるい分けについて、超音波発生器を含まないふるいが好ましい。

## 【0145】

10

20

30

40

50

第4のサイズ減少工程の前に多孔質炭素製品の乾燥は、好ましくは、パドル乾燥機、ローラー乾燥機、ベルト乾燥機、またはそれらの少なくとも2つの組み合わせを使用して実施される。第4のサイズ減少工程の後の多孔質炭素製品の乾燥は、好ましくは、噴霧乾燥機、パドル乾燥機、ローラードライヤー、およびベルト乾燥機、またはそれらの少なくとも2つの組み合わせからなる群から選択されるものを使用して実施される。

#### 【0146】

多孔質炭素製品を分類することによって、好ましくは、多孔質炭素製品の大型の粒子が、多孔質炭素製品の残りから分離される。好ましい大型の粒子は、 $300\text{ }\mu\text{m}$ 超、好ましくは $200\text{ }\mu\text{m}$ 超、より好ましくは $100\text{ }\mu\text{m}$ 超の粒径を特徴とする。

#### 【0147】

さらに、多孔質炭素製品を分類することによって、好ましくは、多孔質炭素製品の多峰性粒径分布の少なくとも1つのモードが多孔質炭素製品から分離される。分類後、多孔質炭素製品の粒径分布の $D_{50}$ は、好ましくは、 $30\sim50\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは $32\sim48\text{ }\mu\text{m}$ 、より好ましくは $35\sim45\text{ }\mu\text{m}$ の範囲である。

#### 【0148】

上記目的の少なくとも1つの解決策への寄与は、複数の炭素粒子である多孔質炭素製品であって、炭素粒子の少なくとも40重量%、好ましくは少なくとも60重量%、より好ましくは少なくとも90重量%がモノリシック炭素体である、多孔質炭素製品を作製することである。好ましくは、複数の炭素粒子の炭素粒子は非球形である。好ましい非球形炭素粒子は、フレークもしくはロッドまたはその両方である。さらに好ましい非球形炭素粒子は、少なくとも5、好ましくは少なくとも10の寸法比を特徴とする。好ましい非球形炭素粒子は、 $10\sim500\text{ }\mu\text{m}$ 、好ましくは $20\sim100\text{ }\mu\text{m}$ 、より好ましくは $20\sim50\text{ }\mu\text{m}$ の範囲の厚さによって特徴付けられる。

#### 【0149】

##### 適用

上記の目的の少なくとも1つを達成することに寄与するのは、本発明による多孔質炭素製品を含む物品である。本発明による多孔質炭素製品の好ましい適用は、多孔質炭素製品の1つ以上の有益な特性を利用するものであり、好ましくは、改良された純度、改良された導電率、改良されたイオン導電率、改良された気体誘電率、改良された吸着および/または吸収、改良された吸着容量および/または吸収容量、増大された比表面積、細孔階層、およびそれらのいずれかの改良された調整可能性からなる群から選択される1つ以上の中である。

#### 【0150】

上記の目的の少なくとも1つを達成することに寄与るのは、本発明による多孔質炭素製品に担持された活性材料、好ましくは触媒である。この実施形態の一態様において、触媒は気相触媒に適している。この実施形態の別の態様において、触媒は液相触媒に適している。

#### 【0151】

上記の目的の少なくとも1つを達成することに寄与するのは、燃料電池、好ましくは液体燃料電池または気体燃料電池、より好ましくは気体燃料電池である。好ましい燃料電池は、水素、炭化水素、アルコール、ケトンおよびアルデヒドからなる群から選択される1つまたは複数の燃料、より好ましくは水素、アルコールおよび炭化水素からなる群から選択される1つまたは複数、最も好ましくは水素と共に使用するのに適している。この文脈において好ましい炭化水素は、アルケンおよびアルカンであり、好ましくはアルカンである。この文脈において好ましいアルケンは、エテン、プロパンおよびブタンからなる群から選択される1つまたは複数であり、より好ましくはエテンおよびプロパンからなる群から選択される1つまたは複数であり、最も好ましくはエテンである。この文脈において好ましいアルカンは、メタン、エタン、プロパンおよびブタンからなる群から選択される1つまたは複数であり、より好ましくはメタンおよびエタンからなる群から選択される1つまたは複数であり、最も好ましくはメタンである。

## 【0152】

上記の目的の少なくとも1つを達成することに寄与するのは、本発明による多孔質炭素製品を含む電池によってなされる。この実施形態の一態様において、本発明の多孔質炭素材料は、1つ以上の電極もしくは電解質、または1つ以上の電極および電解質の両方に少なくとも部分的に含まれる。多孔質炭素製品がカソード中またはカソード上に存在することが特に好ましい。この文脈における好ましい電池は、二次電池または一次電池、好ましくは二次電池である。好ましい一次電池は、アルカリ電池、アルミニウムイオン電池、リチウム電池、オキシ水酸化ニッケル電池、および亜鉛炭素電池からなる群から選択される1つまたは複数である。好ましい二次電池は、鉛酸電池、リチウムイオン電池、リチウム硫黄電池、チタン酸リチウム電池、ニッケルカドミウム電池、ニッケル水素電池、ニッケル金属水素化物電池、およびニッケル亜鉛電池からなる群から選択される1つまたは複数であり、好ましくはリチウムイオン電池である。

## 【0153】

上記の目的の少なくとも1つを達成することにさらに寄与するのは、本発明の多孔性炭素製品を含む装置によってなされ、この装置は、コンデンサ、好ましくはスーパーコンデンサ、液体のための吸収および/または貯蔵材料、気体のための吸収および/または貯蔵材料、クロマトグラフィに使用するための担体材料、ならびに工学および/または医学用途のための原料からなる群から選択される1つまたは複数である。

## 【0154】

本発明によるカテゴリーの実施形態による好ましい特徴、特に方法、多孔質炭素材料、装置および使用は、前記他のカテゴリーと同じまたは類似の事柄または実体に関連する場合、それぞれ他のカテゴリーの実施形態にも好ましい。

## 【0155】

## 細孔構造

好ましい細孔構造は、多孔性、細孔径分布、総細孔体積、および幾何学的細孔構造、またはそれらの少なくとも2つの組み合わせからなる群から選択されるものである。

## 【0156】

## 反応ゾーン

好ましい反応ゾーンは少なくとも1つの火炎である。好ましい火炎はバーナーの火炎である。

## 【0157】

## 凝集

好ましくは、本発明による方法の工程b)は、第1の複数の粒子の粒子の凝集をさらに含み、それによって一次粒子の凝集物として二次粒子を得る。第1の複数の粒子という用語は、本明細書では一次粒子、ならびに好ましくは凝集によって形成される二次粒子に対して使用される。

## 【0158】

## 焼結

テンプレートは好ましくは部分的に焼結され、このことは、テンプレートが全体を通して焼結されないことを意味する。したがって、可能な限り低い多孔性を有する小型の材料は、好ましくは得られない。

## 【0159】

## 寸法比

粒子の寸法比は、その厚さに対する粒子の長さの比である。粒子の長さは、粒子の最長範囲の長さである。粒子の長さは、第1のデカルト方向に沿って延びる。粒子の幅は第2のデカルト方向に沿って延び、幅は、長さに垂直な粒子の最長範囲の長さである。したがって、幅は粒子の長さ以下である。粒子の厚さは第3のデカルト方向に沿って延び、厚さは粒子の幅以下である。したがって、長さ、幅、および厚さは互いに垂直な方向に測定され、長さは、幅に等しいかまたはそれ以上であり、幅は、厚さに等しいかまたはそれ以上である。粒子の幅および厚さが、粒子の長さから20%を超えて、好ましくは10%を超

えて、より好ましくは5%を超えて異なる場合、粒子は球状と称される。粒子の長さが粒子の幅の少なくとも2倍、好ましくは少なくとも3倍であり、粒子の厚さの少なくとも2倍、好ましくは少なくとも3倍である場合、粒子はロッドと称される。粒子の厚さが粒子の長さの60%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは30%以下、および粒子の幅の60%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは30%以下である場合、粒子はフレークと称される。

#### 【0160】

一実施形態において、多孔質炭素製品は、層状幾何学形状、好ましくはフレークまたはシート幾何学形状を有する。層状幾何学形状の好ましい多孔質炭素製品は、層状平面を有し、層状平面に直接垂直な厚さは比較的小さく、平面内の線形延長は比較的大きい。この実施形態の一態様において、多孔質炭素製品は、空間における最大線形延長である第1の空間延長、第1の空間延長に垂直な最大線形延長である第2の空間延長ならびに第1の空間延長および第2の空間延長の両方に垂直である第3の空間延長を有する。第3の空間延長と第2の空間延長との比は、好ましくは1:5~1:100の範囲、より好ましくは1:8~1:50の範囲、より好ましくは1:10~1:20の範囲である。第3の空間延長に沿った延長は、好ましくは10~200μmの範囲、好ましくは15~100μmの範囲、より好ましくは20~50μmの範囲である。

10

#### 【0161】

一実施形態において、多孔質二酸化ケイ素材料は、層状幾何学形状、好ましくはフレークまたはシート幾何学形状を有する。層状幾何学形状の好ましい多孔質ケイ素材料は層状平面を有し、層状平面に直接垂直な厚さは比較的小さく、平面内の線形延長は比較的大きい。この実施形態の一態様において、多孔質二酸化ケイ素材料は、空間における最大線形延長である第1の空間延長、第1の空間延長に垂直な最大線形延長である第2の空間延長ならびに第1の空間延長および第2の空間延長の両方に垂直である第3の空間延長を有する。第3の空間延長と第2の空間延長との比は、好ましくは1:5~1:100の範囲、より好ましくは1:8~1:50の範囲、より好ましくは1:10~1:20の範囲である。第3の空間延長に沿った延長は、好ましくは10~200μmの範囲、好ましくは15~100μmの範囲、より好ましくは20~50μmの範囲である。

20

#### 【0162】

##### 電気化学的装置

30

好ましい電気化学的装置は、電池もしくは燃料電池、またはその両方である。好ましい電池は、再充電可能な電池もしくは二次電池またはその両方である。好ましい二次電池はリチウムイオン電池である。好ましいリチウムイオン電池は、リチウムポリマー電池、チタン酸リチウム電池、リチウムマンガン電池、リン酸鉄リチウム電池、酸化リチウムコバルト電池、酸化リチウムコバルトニッケルマンガン電池、酸化リチウムコバルトマンガニッケルアルミニウム電池（全ての組み合わせNi、Al、Co、Mn）、リチウム硫黄電池、およびリチウム空気電池、またはそれらの少なくとも2つの組み合わせからなる群から選択されるものである。別の好ましいリチウムイオン電池は、Li含有電極中に、Ni、Al、CoおよびMn、またはそれらの少なくとも2つの組み合わせからなる群から選択されるものを含む。

40

#### 【0163】

##### 試験方法

以下の試験方法を本発明に使用する。試験方法がない場合、本出願の最も早い出願日に最も近い測定対象の特徴に関するISO試験方法が適用される。明確な測定条件がない場合、298.15K(25°C、77°F)の温度および100kPa(14.504psia、0.986atm)の絶対圧力としての標準周囲温度および圧力(SATP)が適用される。

#### 【0164】

##### かさ密度

かさ密度測定は、DIN ISO 697(1984)に従って実施した。

50

## 【0165】

骨格密度（材料密度またはバックボーン密度とも呼ばれる）

骨格密度測定は、DIN 66137-2に従って実施した。0.49g～0.51gの粉末試料を試料セルで秤量し、200にて1時間減圧乾燥してから測定した。乾燥後の質量を計算のために使用した。「小さい」試料体積および「小さい」参照体積を利用して、Thermo Fisher Scientific, Inc. 製のPycnomat ic ATC Helium Pycnometerを測定のために使用した。比重瓶は、約3cm<sup>3</sup>の周知の体積を有する「余分な小さい」球を用いて毎月較正する。測定は、純度4.6のヘリウムを使用して、20.00の温度および約2barのガス圧で、DIN標準および装置のSOPに従って実施した。

10

## 【0166】

水銀圧入ポロシメトリー（細孔径および細孔体積）

異なる細孔径についての比細孔体積、累積細孔体積、および多孔率を水銀圧入ポロシメトリーによって測定した。水銀圧入ポロシメトリー分析はISO 15901-1(2005)に従って実施した。Thermo Fisher Scientific PASCAL 140(4barまでの低圧)およびPASCAL 440(4000barまでの高圧)およびSOLID Version 1.6.3(26.11.2015)ソフトウェア(全てThermo Fisher Scientific, Inc. 製)を、モード細孔径140.2nmおよび細孔体積924.4mm<sup>3</sup>/g(BAM製ERM-FD122基準物質)を有する多孔質ガラス球で較正した。測定中、圧力は、連続的に増加または減少し、PASCALモードで作動する機器によって自動的に制御され、速度は侵入に対して8および押出に対して9に設定された。評価にはWashburn法を利用し、実際の温度に対してHgの密度を補正した。表面張力についての値は0.48N/mであり、接触角は140°であった。試料サイズは約25～80mgであった。測定を開始する前に、試料を減圧下で150に1時間加熱した。

20

## 【0167】

BET-SSA / 比表面積およびBJH-BET(細孔径、細孔体積)

粒子の比表面積(BET-SSA)を決定するためのBET測定は、DIN ISO 9277:2010に従って行う。SMART法(Sorption Method with Adaptive dosing Rate:適応投与速度による吸着法)に従って作動するNOVA 3000(Quantachrome製)を測定のために使用する。基準物質として、Quantachromeから入手可能なQuantachrome Alumina SARMカタログ番号2001(多点BET法で13.92m<sup>2</sup>/g)およびSARMカタログ番号2004(多点BET法で214.15m<sup>2</sup>/g)を使用する。死容積を減少させるために、基準および試料キュベットに充填ロッドを加える。キュベットをBET装置にマウントする。窒素ガス(N<sub>2</sub> 4.0)の飽和蒸気圧を測定する。充填ロッドを有するキュベットが完全に充填され、最小限の死容積が形成されるような量で試料をガラスキュベット内で秤量する。試料を減圧下、200で1時間保持し、乾燥させる。冷却後、試料の重量を記録する。試料を含有するガラスキュベットを測定装置にマウントする。試料を脱気するために、10ミリバールの最終圧まで材料がポンプに吸い込まれないように選択されたポンプ速度で試料を排気する。

30

## 【0168】

脱気後の試料の質量を計算に使用する。データ分析には、NovaWin 11.04ソフトウェアを使用する。5つの測定点による多点分析を実施し、得られた比表面積(BET-SSA)をm<sup>2</sup>/gで与える。ヘリウムガス(He 4.6、湿度30ppmv)を使用して、事前に測定した後、各々の試料セルの死容積を測定する。ガラスキュベットを、液体窒素浴を使用して77Kに冷却する。吸着剤としては、77Kにおいて分子断面積が0.162nm<sup>2</sup>のN<sub>2</sub> 4.0を計算に使用する。

40

## 【0169】

メソ細孔径分布およびメソ細孔体積(BET-BJH)は、0.35を超える相対圧力

50

でのISO15901-2によるBJH細孔径モデルによって脱着等温線から導かれる。

#### 【0170】

ISO15901-3:2007に従って経験的t-プロット法を使用して、0.1より大きい相対圧力で、微細孔と残存する多孔率（すなわち、メソ多孔性、マクロ多孔性および外部表面積寄与）を識別し、微細孔表面および微細孔体積を計算する。カットオフ $p/p_0$ 、典型的には $0.1 p/p_0$ までの低圧等温線データ点を選択して、t-プロットの直線部分を決定する。データ点選択を、正のC定数を得ることによって検証する。微細孔体積を縦軸切片から決定する。微細孔比表面積は、t-プロットの勾配から計算することができる。

#### 【0171】

##### タップ密度

タップ密度は、DIN EN ISO 787-11(1995)に従って測定した。

#### 【0172】

##### アスペクト比／粒子寸法

ISO 9276-1、ISO 9276-6およびISO 13320に従って、粒子の形態および形成を、QICPIC画像分析システム(Sympatec GmbH System-Partikel-Technik Germany)を使用して分析した。粒子の乾燥分散を、QICPICに取り付けたRODOS/L(0.50 63.0 mm)ユニットにより加圧空気を使用して実施した。測定領域を、約5~1705 μmの直径を有する粒子を覆うM6に設定した。さらなるパラメータは以下の通りであった：画像周波数=450 Hz、搬送速度VIBRI=20%、漏斗高さ=2 mm、分散管の内径=4 mm、圧力1 bar。EQPC(粒子の投影面積と同じ面積を有する円の直径)、FRETE\_MIN(粒子の最小直径または幅)およびFRETE\_MAX(粒子の最大直径または幅)を決定した。アスペクト比は、式 $FRETE\_MIN/FRETE\_MAX$ に従って計算した。アスペクト比は、試料のFRETE\_MAXおよびFRETE\_MIN分布の×50値を使用することによって計算する。

#### 【0173】

##### 粒径分布

###### レーザー回折( $D_{10}$ 、 $D_{50}$ 、 $D_{90}$ )

粒子の粒径測定のために、レーザー回折法をISO規格13320に従って使用した。He-Neレーザー(波長632.8 nm、最大出力4 mW)および青色LED(波長470 nm、最大出力10 mW)および湿式分散ユニット(Hydro MV)を備えたMalvern製のMaster sizer 3000を、23の周囲温度で実施される測定のために利用した。イソプロパノールおよび脱イオン水の混合物(50%/50%)を測定媒体として使用した。内蔵攪拌機を3500 rpmで使用し、最大出力で10秒間超音波処理することにより、混合物を分散ユニット中で脱気した。試料物質を、100%イソプロパノール(40 mL)中の濃縮分散液として調製する。物質の量は、30秒間の超音波フィンガー混合後に均質な混合物を生成するのに十分である。試料を、不明瞭値が3~7%になるまで、ピペットを用いて分散ユニットに滴下して加える。 $D_{10}$ 、 $D_{50}$ および $D_{90}$ (体積ベース)の値を、Malvern software Master sizer 3000 Software 3.30および1のフォームファクタを使用して決定した。フラウンホーファー理論を粒子が10 μm超である試料について使用し、ミー理論を粒子が10 μm未満である物質に適用する。

#### 【0174】

##### ふるい分け(315 μm超の粒径を有する重量分率)

Haver und Bocker(HAVER & BOECKER OHG)製の315 μmの開口を有するふるいを備えたAir Jet RHEWUM LPS 200 MCふるい機(RHEWUM GmbH)によるふるいを用いて、315 μmより大きいサイズを有する粒子を有する重量画分のふるい分けを注意深く実施した。

#### 【0175】

10

20

30

40

50

### 不純物含有量

多孔質炭素材料の不純物含有量は、DIN EN ISO 11885と類似した誘導結合プラズマ発光分析( ICP-OES : Inductively Coupled Plasma Optical Emission Spectrometry )によって実施する。測定前に、多孔質炭素試料を灰化し、灰の消化後に固体残渣が残らないように消化する。この灰化および消化処理は、2015年4月22日付けの「Total auf schluss - Veraschung」として記録された試験方法に従って、分析サービスプロバイダWolfener Analytik GmbH、Bitterfeld-Wolfen、Germanyから商業的に利用可能である。1回の分析につき約50gの多孔質炭素材料を使用する。3回の分析の平均不純物値を重量ppm(mg/kg)で報告する。10

### 【実施例】

#### 【0176】

以下、本発明を実施例および図面によってより詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。これらの図面は、例えば尺度を提供することにより、別段の記載がなければ、縮尺通りではない。

#### 【0177】

##### 本発明の多孔質炭素製品の製造

多孔質炭素製品は以下の図4による装置を使用して得られる。そこで、酸素、水素およびOMCTSは、明るい光の白色火炎を得るためにバーナーに供給される。二酸化ケイ素材料の熱処理、炭素源の含浸、炭化およびテンプレートの除去の工程が以下に記載される。20

#### 【0178】

##### 第1の比較の多孔質炭素製品の製造

多孔質炭素製品は、多孔質二酸化ケイ素材料が熱処理される工程が省略されることを除いて本発明の実施例についての方法によって得られる。

#### 【0179】

##### 第2の比較の多孔質炭素製品の製造

多孔質炭素製品は、二酸化ケイ素の50個の層が基材表面上に堆積されることを除いて本発明の実施例についての方法によって得られる。50個全ての層はエアブレードで同時に除去される前に基材表面に適用される。30

#### 【0180】

##### テンプレートの熱処理

テンプレートを、細孔構造に適合させるように1200の温度で16時間熱処理する。

#### 【0181】

##### 熱処理された多孔質二酸化ケイ素のサイズの減少

熱処理された多孔質二酸化ケイ素は、衝撃式製粉機(No 11 Type Demi N 02500、回転数90%、スループット50kg/h、PEKフィルタ20m<sup>2</sup>、ニードルフェルト、ファン90%)によってサイズが減少された微粉塊である。このように得られた粒子は25~350μmの範囲の粒径を特徴とする。40

#### 【0182】

##### 炭素源の含浸

この実施例において、コールタールピッチ(Carbores P15、Rutgersから入手可能、320~350の低粘度範囲を有する)を、多孔質二酸化ケイ素材料の表面に適用するが、それは依然として基材表面上にある。多孔質二酸化ケイ素材料の温度は、コールタールピッチが溶融し、多孔質二酸化ケイ素材料の細孔に含浸できるように350の温度に維持される。

#### 【0183】

比較例において、除去された多孔質二酸化ケイ素材料は最初にフライス加工によってサ

50

イズが減少され、厚さ 20 μm、および平面内での延長が 500 μm のフレーク（薄片）が得られる。次いで、テンプレートのフレークを、2 重量部の二酸化ケイ素対 1 重量部の P 15 粉末の比で P 15 粉末と混合する。

#### 【0184】

##### 炭化

浸潤プロセスに続いて、温度を約 700 にさらに上昇させる。炭化を終えると、多孔質炭素で被覆された多孔質 SiO<sub>2</sub> 粒子を内側（細孔内）および外側に含有する複合体が得られる。炭素の細孔の少なくとも 70 vol % は、10 ~ 150 nm の範囲の細孔径を有するメソ細孔である。浸透 / 含浸および炭化のために実施される加熱の図を図 7 に示す。

10

#### 【0185】

##### 複合体 / 前駆体のサイズの減少

複合体は、ハンマーミル (Alpine Type 63/50 HA、ふるい 6 mm の丸孔、回転数 12 %、スループット 100 kg/h、PEK フィルタ 20 m<sup>2</sup>、ニードルフェルト、ファン 90 %) によってサイズが徐々に減少されたわずかに凝集した塊である。このように得られた粒子は 25 ~ 350 μm の範囲の粒径を特徴とする。

#### 【0186】

##### テンプレートの除去

SiO<sub>2</sub> テンプレート材料を、複合体を HF 槽に導入することによって複合粒子から除去する。SiO<sub>2</sub> 粒子をエッティングにより除去した後、多孔質炭素のフレークを得るために、残りの材料を水ですすぎ、乾燥し、サイズを減少させる。多孔質炭素の構造は、実質的に元のテンプレート材料のネガである。炭素材料は、テンプレート材料の除去から生じる細孔、ならびにテンプレートの二次凝集物構造から生じる細孔を含む。テンプレートの一次粒子が前にあった場合、炭素材料中にメソ細孔が存在し、二次テンプレート粒子間の焼結ネックが前にあった場合、マクロ細孔チャネルは炭素材料のメソ細孔領域を相互接続する。炭素材料は、階層細孔構造を有すると称される。相互接続されたチャネル（マクロ細孔）のネットワークは、炭素材料を含むメソ細孔を通って延びる。

20

#### 【0187】

##### 細孔径分布の幅

本発明の実施例および比較例 1 からの多孔質炭素製品の細孔径分布を、この試験法を用いて測定した。各場合における分布の幅は、2 つの尺度によって決定した。まず、幅を d<sub>10</sub> と d<sub>90</sub> の差として求めた。第 2 に、幅を、d<sub>90</sub> に対する d<sub>10</sub> の比として決定した。結果を表 1 に示す

30

#### 【0188】

##### 【表 1】

##### 二酸化ケイ素製品

実施例	基材に適用した層の数	d <sub>90</sub> と d <sub>10</sub> の差	比 d <sub>90</sub> :d <sub>10</sub>	10 ~ 10000 nm の範囲のモードの数
発明	1	550	7:1	1
比較 1	1	5000	100:1	2

40

#### 【0189】

## 【表2】

表1

実施例	基材に適用した層の数	$d_{90}$ と $d_{10}$ との差	比 $d_{90}:d_{10}$	10~10000 nm の範囲のモードの数
発明(ピッチ)	1	550	16:1	1
発明(糖)	1	370	15:1	1
比較1(ピッチ)	1	5100	120:1	2
比較1(糖)	1	5000	115:1	2

10

## 【0190】

表1から見ることができるように、本発明の設定は、より厳密に制御された細孔径分布を可能とした。

## 【0191】

## フレーク厚分布の幅

本発明の実施例および比較例2からの多孔質炭素製品の厚さ分布を、粒子の最小寸法の大きさの分布として決定した。結果を表2に示す。

## 【0192】

表2

実施例	基材に適用した層の数	平均フレーク厚さ
発明	1	20 μm
比較2	50	80 μm

20

## 【0193】

表2から見ることができるように、本発明の設定は、得られるフレークの平均厚さを薄くすることができた。

## 【0194】

図1は、多孔質二酸化ケイ素材料の製造のための本発明による方法100のフローチャート図を示す。方法100は、酸素、水素およびオクタメチルシクロテトラシロキサン(OMCTS)の供給材料組成物を、火炎加水分解バーナー304の火炎305に供給する工程a)101を含む。工程b)102において、火炎305における供給材料組成物は、加水分解反応によって $SiO_2$ の複数の一次粒子601に反応される。前記一次粒子601は凝集して二次粒子602を形成する。これらの二次粒子602は、工程c)103において、基材301の基材表面302上に堆積される。これにより、一層の形態の多孔質二酸化ケイ素材料309が得られる。工程d)104において、多孔質二酸化ケイ素材料309の層が基材表面302から取り外され、除去される。これにより、除去された多孔質二酸化ケイ素材料403が得られる。除去された多孔質二酸化ケイ素材料403の細孔構造を適合させることは、方法100の工程e)105を表す。工程a)~e)は図4の文脈において以下により詳細に記載される。方法100は図10によってさらに例示される。

30

## 【0195】

図2は、多孔質炭素製品を製造するための本発明による別の方法100のフローチャート図を示す。図2による方法100は工程a)101~h)108を含む。工程a)101~e)105は図1による方法100と同じである。図2による方法100は、中間相ピッチである炭素源606をテンプレートに含浸させる工程f)106をさらに含む。ここで、テンプレートの粒子は中間相ピッチ粒子と乾式混合される。続いて、中間相ピッチを溶融するために混合物を加熱する。溶融ピッチはテンプレートの細孔に浸透する。工程g)107において、ピッチを炭化するために、混合物を約650°のより高い温度に加

40

50

熱する。これにより、炭素およびテンプレートを含む前駆体が得られる。工程 h ) 108において、H F 槽中のエッティングによってテンプレートを前駆体から除去する。その結果、多孔質炭素製品が得られる。

#### 【 0 1 9 6 】

図 3 は、多孔質製品 309 の製造のための本発明による方法 100 の工程 a ) ( 101 ) ~ c ) ( 103 ) を実施するための設定の断面スキームを示す。ここで、多孔質製品は  $\text{SiO}_2$  - すす ( スト、soot ) 体である。この設定は酸化アルミニウム製の管 301 である基材 301 を備える。管 301 に沿って、火炎加水分解バーナー 304 の列が配置される。前記火炎加水分解バーナー 304 は、単一のバーナー供給ブロック 306 上に配置されている。前記バーナー供給ブロック 306 は、管 301 の長手方向軸 303 に平行な方向 308 における 2 つの転換点の間を周期的に前後に移動する。さらに、バーナー供給ブロック 306 は、長手方向軸 303 に垂直な方向 307 において移動できる。火炎加水分解バーナー 304 は石英ガラス製である。2 つの隣接する火炎加水分解バーナー 304 間の距離は 15 cm である。各火炎加水分解バーナー 304 は、基材表面 302 に向かって火炎 305 を生じさせる。前記火炎 305 は、加水分解反応のための反応ゾーン 305 を形成する。火炎加水分解バーナー 304 により、 $\text{SiO}_2$  - すす粒子が基材表面 302 上に堆積される。ここで、nm スケールの直径の一次粒子 601 が火炎 305 に形成される。前記一次粒子 601 は基材表面 302 に向かって移動し、一次粒子 601 は凝集してほぼ球形の二次粒子 602 を形成する。凝集のランダムな性質のために、二次粒子 602 は異なる数の一次粒子 601 を含み、したがって、かなり広い二次粒径分布を示す。二次粒子 602 内には、一次粒子 601 の間に、かなり小さな空洞および細孔が存在する ( nm スケール )。前記空洞および細孔はメソ細孔と呼ばれる。二次粒子 602 の間には、約 400 ~ 1000 nm の間隙を有するマクロ細孔が存在する。堆積プロセスの間、管 301 は図 3 の矢印によって示されるように、その長手方向軸 303 の周りを回転する。回転する基材表面 303 上に堆積されて、 $\text{SiO}_2$  - すす粒子は、回転する基材 301 の 1 回転当たり 1 層である、いくつかの層を形成する。これにより、基材 301 に多孔質二酸化ケイ素材料 309 の本体が得られる。本体の最終外径は約 400 mm である。多孔質二酸化ケイ素材料 309 の個々の層の平均厚さは約 50  $\mu\text{m}$  である。火炎加水分解バーナー 304 に供給される供給組成物は、酸素、水素およびオクタメチルシクロテトラシロキサン ( OMC TS ) を含む。バーナー供給ブロック 306 の周期的な前後運動の振幅は、火炎加水分解バーナー 304 の 2 つの距離 ( 30 cm ) である。 $\text{SiO}_2$  - すす粒子が基材表面 302 上に堆積されるが、基材表面 302 は約 1200 の温度を有する。上記のすす堆積プロセスにより、多孔質二酸化ケイ素材料 309 の管 ( すす管 ) が得られる。前記すす管は、長さが 3 m、外径が 400 mm、内径が 50 mm である。すす管の生成中は比較的低温に保たれるので、多孔質二酸化ケイ素材料 309 は、石英ガラスの密度 ( 2.21 g / cm<sup>3</sup> ) を基準として 22 % の平均相対密度を特徴とする。多孔質二酸化ケイ素材料 309 のかさ密度が低いため、前記材料は容易にサイズを減少することができる。多孔質二酸化ケイ素材料 309 のサイズを減少することは、しばしば、多孔質二酸化ケイ素材料 309 の層の部分的な剥離を含む。したがって、多孔質二酸化ケイ素材料 309 は、20 ~ 50  $\mu\text{m}$  の範囲の厚さを有する非球状フレークにサイズを減少することができる。多孔質二酸化ケイ素材料 309 は異方性質量分布およびいわゆる階層細孔構造を示し、これは、多孔質二酸化ケイ素材料 309 が、チャネルを形成するマクロ細孔によって接続されるメソ細孔を含むことを意味する。

#### 【 0 1 9 7 】

図 4 は、図 1 による方法 100 を実施するための設定の断面スキームを示す。この設定は、その長手方向軸 303 の周りを回転するドラム 301 の形態の基材 301 を含む。ドラム 301 はステンレス鋼製の本体からなる。ドラム 301 の外径は 30 cm、長さは 50 cm である。ドラム 301 の側面である基材表面 302 上に、 $\text{SiO}_2$  の多孔質二酸化ケイ素材料 309 の 1 つの層が堆積される。多孔質二酸化ケイ素材料 309 を得るために、火炎加水分解バーナー 304 が適用される。前記火炎加水分解バーナー 304 は、ドラ

ム 3 0 1 の長手方向軸 3 0 3 に平行な方向に沿って列に配置されている。火炎加水分解バーナー 3 0 4 は単一のバーナー供給ブロック 3 0 6 上に配置されている。前記バーナー供給ブロック 3 0 6 は長手方向軸 3 0 3 に平行な周期的な前後運動を実施する。火炎加水分解バーナー 3 0 4 に供給される供給組成物は、酸素、水素およびオクタメチルシクロテトラシロキサン(OMCTS)を含む。加水分解反応により、一次粒子 6 0 1 は、基材表面 3 0 2 に向けられた火炎加水分解バーナー 3 0 4 の火炎から形成された反応ゾーンに形成される。<sup>10</sup> nm 範囲の直径の前記一次粒子 6 0 1 は基材表面 3 0 2 に向かって移動し、一次粒子 6 0 1 は凝集してほぼ球形の二次粒子 6 0 2 を形成する。凝集のランダムな性質のために、二次粒子 6 0 2 は異なる数の一次粒子 6 0 1 を含み、したがって、かなり広い二次粒径分布を示す。二次粒子 6 0 2 内には、一次粒子 6 0 1 の間に、かなり小さな空洞および細孔が存在する(nmスケール)。前記空洞および細孔は、いわゆるメソ細孔と呼ばれる。二次粒子 6 0 2 の間には、約 4 0 0 ~ 1 0 0 0 nm の間隙を有するマクロ細孔が存在する。基材表面 3 0 9 上に二次 SiO<sub>2</sub> 粒子を堆積させることによって形成される多孔質二酸化ケイ素材料 3 0 9 は、約 1 0 0 m<sup>2</sup> / g の BET による比表面積を特徴とする。前記多孔質二酸化ケイ素材料 3 0 9 は基材表面 3 0 2 上に一定の厚さの平滑な層を形成する。<sup>20</sup> ドラム 3 0 1 の接線速度および堆積速度は、多孔質二酸化ケイ素材料 3 0 9 の層が 4 0 cm の長さおよび約 3 5 μm の厚さを有するように調整される。前記厚さは図 4 に誇張して示される。基材 3 0 1 に向けられた火炎加水分解バーナー 3 0 4 は、多孔質二酸化ケイ素材料層の外面を上記のすす堆積プロセスの間に約 1 2 0 0 の温度にさせる。火炎加水分解バーナー 3 0 4 のこの加熱作用は、基材表面 3 0 2 上の二次粒子 6 0 2 の部分的な予備焼結をもたらす。それにより、二次粒子 6 0 2 は、各二次粒子を他の二次粒子に相互接続する焼結ネット 6 0 3 を形成し、それによって多孔質二酸化ケイ素材料層を形成する。<sup>30</sup> 多孔質二酸化ケイ素材料層は、石英ガラスの密度(2.21 g / cm<sup>3</sup>)を基準として 2 2 % の平均相対密度を特徴とする。ドラム 3 0 1 の半回転よりわずかに大きい回転の後、多孔質二酸化ケイ素材料層は、送風機 4 0 1 の作用を受ける。送風機 4 0 1 は、基材表面 3 0 2 に面する多孔質二酸化ケイ素材料層の側に空気流 4 0 2 を方向付ける。エアナイフ 4 0 2 としても知られる空気流 4 0 2 により、多孔質二酸化ケイ素材料 3 0 9 は基材表面 3 0 2 から取り外され、除去される。続いて、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 4 0 3 は、搬送ローラーを介してサイズ減少ゾーンに搬送される。前記サイズ減少ゾーンは、シールド 4 0 5 によって上記の設定から分離されている。前記シールド 4 0 5 は、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 4 0 3 が輸送される開口部を有する壁である。<sup>40</sup> サイズ減少ゾーンにおいて、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 4 0 3 は、反対方向に回転する 2 つの回転ローラー 4 0 6 の間で破碎される。そのために、除去された層の形態の除去された多孔質二酸化ケイ素材料 4 0 3 は、回転ローラー 4 0 6 の間の間隙に供給される。前記間隙の幅は、除去された多孔質二酸化ケイ素材料層の厚さに等しい。回転ローラーの表面は、それぞれ回転ローラー 4 0 6 の長手方向に配向されるプロファイル(輪郭、外形)を備える。回転ローラー 4 0 6 の作用により、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 4 0 3 は、ほぼ同じサイズの非球形粒子にサイズが減少される。非球形粒子、好ましくはフレークの厚さは、約 4 5 μm である。粒子は炉室 4 0 7 に供給される。炉室 4 0 7 において、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 4 0 3 の粒子は、それらの細孔径分布の幅を減少させるために熱処理される。熱処理前の前記粒子の細孔径分布を図 9 a ) に示す。炉室 4 0 7 において、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 4 0 3 は、6 / 分の速度で 1 2 0 0 に加熱される。前記温度を 5 0 0 分間一定に保つ。続いて、多孔質二酸化ケイ素材料を冷却することによって温度を室温まで下げる。熱処理により、適合された多孔質二酸化ケイ素材料が得られる。適合された多孔質二酸化ケイ素材料の細孔径分布を図 9 b ) に示す。図 9 a ) および 9 b ) の細孔径分布の幅を比較すると、細孔径分布の幅は、本発明による方法 1 0 0 の工程 e ) 1 0 5 である熱処理によって減少することが分かり得る。

#### 【0198】

図 5 は、多孔質炭素材料 8 0 0 を製造するための本発明による方法 5 0 0 のフローチャート図を示す。方法 5 0 0 は、工程 a . 5 0 1 ~ d . 5 0 4 を含む。工程 a . において、<sup>50</sup>

テンプレート 309 が提供される。前記サイズの減少は、50 nm の D<sub>10</sub>、600 nm の D<sub>50</sub>、および 3500 nm の D<sub>90</sub> を有する細孔径分布を特徴とする。サイズの減少 309 は、本発明による方法 100 から達成することができる。方法 500 の工程 b . 502において、サイズの減少 309 は、図 2 の方法 100 の工程 f ) 106 の文脈に記載されるように炭素源 606 を含浸させる。続いて、工程 c . 503 において、炭素源 606 は、図 2 による方法 100 の工程 g ) 107 の文脈に記載されるように炭化され、それによって、サイズの減少 309 および炭素の前駆体が得られる。工程 d . 504 において、テンプレート 309 は、図 2 による方法 100 の工程 h ) 108 の文脈に説明されるようにエッティングによって除去される。それによって、多孔質炭素製品 800 が得られる。

## 【0199】

10

図 6 a ) は、本発明による多孔質材料 309 の断面の概略図を示す。多孔質材料は、凝集して二次粒子 602 となる一次粒子 601 を含む。前記二次粒子 602 は、焼結ネック 603 によって互いに接続される。前記多孔質材料 309 は、上記のように、図 4 の基材表面 302 上に得られる。図 6 a ) の多孔質材料 309 は、方法 100 で得られる多孔質二酸化ケイ素材料 309、および多孔質炭素製品 800 を製造するための本発明による方法 500 の工程 a . 501 で提供されるテンプレート 309 であり得る。

## 【0200】

図 6 b ) は、テンプレート 309 および炭素源 606 を含む前駆体の断面の概略図を示す。前記前駆体は、多孔質炭素製品 800 を製造するための本発明による方法 500 の工程 b . 502 において、または多孔質製品を製造するための本発明による方法 100 の工程 f ) 106 において得られる。ここで、図 6 a ) に示される材料は、スクロースである炭素源 606 で含浸される。

20

## 【0201】

図 7 は、コールタールピッチ炭素源を使用して多孔質製品を製造するための本発明による別の方法 100 の工程 c ) および d ) において適用される加熱プロファイルを示す図である。ここで、温度 T は、時間 t (分)と共に で示される。300 ~ 400 の温度 T<sub>a</sub> を保持して、溶融コールタールピッチが多孔質二酸化ケイ素材料に含浸できるようとする。約 600 の温度を保持して、炭素源の炭化を可能にする。

## 【0202】

図 8 は、本発明による多孔質炭素製品 800 の SEM 記録を示す。多孔質炭素製品 800 の内部構造を見ることができる。前記内部構造は、異なるサイズの複数の相互接続された細孔および空洞を含む。スポンジ様炭素体は、かなり微細なメソ細孔 801 を示す。前記スポンジ様体は、異なるメソ細孔含有領域の間にチャネルを形成する、より大きなマクロ細孔 802 によって貫通される。BET による比表面積は約 450 m<sup>2</sup> / g である。

30

## 【0203】

図 9 a ) は、本発明による方法 100 による除去された多孔質二酸化ケイ素材料 403 の細孔構造を示す図である。除去された多孔質二酸化ケイ素材料 403 は、図 4 の文脈に記載される方法 100 によって得られたものである。図の左側は、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 403 の全体の細孔体積に基づいた細孔体積 (%) を提供する。図中の棒は、異なる細孔径についての細孔体積を示す。図の右側は、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 403 における累積細孔体積 (cm<sup>3</sup> / g) を示す。グラフは、異なる細孔径に対する累積細孔体積の値を示す。

40

## 【0204】

図 9 b ) は、図 9 a ) の除去された多孔質二酸化ケイ素材料 403 から図 4 の文脈で上記したように得られた多孔質二酸化ケイ素材料の細孔構造を示す図を示す。図の左側は、多孔質二酸化ケイ素材料の全細孔体積を基準とした細孔体積を % で示している。図中の棒は、異なる細孔径についての細孔体積を示す。図の右側は、適合多孔質二酸化ケイ素材料における累積細孔体積 (cm<sup>3</sup> / g) を示す。グラフは、異なる細孔径についての累積細孔体積の値を示す。図 9 a ) と 9 b ) を比較すると、多孔質二酸化ケイ素材料は、除去された多孔質二酸化ケイ素材料 403 よりも狭い細孔径分布を有することが分かり得る。さ

50

らに、多孔質二酸化ケイ素材料の細孔径分布は1つのモードのみを含み、それによって、除去された多孔質二酸化ケイ素材料の細孔径分布は、少なくとも3つのモードを含む。

#### 【0205】

図10は、図1による方法100をさらに示すフローチャート図を示す。前駆体1001は、方法100の工程a)101において反応ゾーン305に供給される供給材料組成物によって構成される。図1によれば、前駆体1001はOMCTSであり、供給材料組成物は酸素および水素をさらに含む。図1によると加水分解反応である前駆体1001の熱分解1002によって、複数の一次粒子601が工程b)102で得られる。前記一次粒子601は酸化ケイ素粒子である。さらに、前記一次粒子601は凝集し(凝集1003)、それによって、凝集物602とも呼ばれる二次粒子602を形成する。第1の複数の粒子という用語は、本発明の文脈において一次粒子601および二次粒子602を含む総称として使用される。二次粒子602は、工程c)103において、基材301の基材表面302上に堆積される。基材表面302上で、二次粒子602は部分的に焼結される(焼結1004)。これにより、二次粒子602を互いに接続する焼結ネット603が形成される。続いて、または時間的に重複して、SiO<sub>2</sub>の多孔質二酸化ケイ素材料309が、基材表面302上に1つの層として形成される(層形成1005)。さらなる工程は図1および4の文脈に記載される。

#### 【0206】

図11は、図1の方法100を実施するための設定を示す。二酸化ケイ素は、多孔質二酸化ケイ素材料309を提供するために、3つの供給バーナー306から、移動する基材表面301上に堆積される。基材表面301の移動方向において、各供給バーナー306に続いて送風機401が配置され、堆積した多孔質二酸化ケイ素材料309を除去する。この構成では、堆積した多孔質二酸化ケイ素材料309が、基材表面301が後続の堆積点306に達する前に送風機401によって基材表面301から除去されるので、二酸化ケイ素の1つの層のみが基材表面上に堆積される。

#### 【符号の説明】

#### 【0207】

100 多孔質製品を製造するための本発明による方法

101 工程a)

30

102 工程b)

103 工程c)

104 工程d)

105 工程e)

106 工程f)

107 工程g)

108 工程h)

301 基材/管/ドラム

302 基材表面

303 長手方向軸

304 反応バーナー/火炎加水分解バーナー

40

305 反応ゾーン/火炎

306 バーナー供給ブロック

307 長手方向軸に垂直な方向

308 長手方向軸に平行な方向

309 多孔質二酸化ケイ素材料/テンプレート

401 送風機

402 気流/エアナイフ

403 除去された多孔質二酸化ケイ素材料/テンプレート

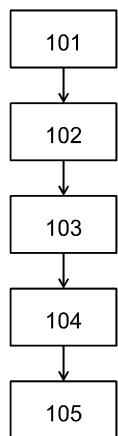
404 輸送ローラー

405 シールド

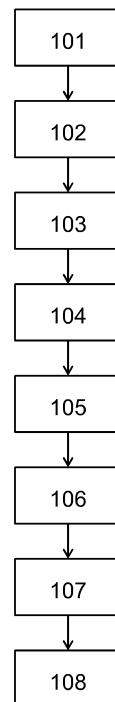
50

4 0 6	回転ローラー	
4 0 7	炉室	
5 0 0	本発明による多孔質炭素材料を製造する方法	
5 0 1	工程 a .	
5 0 2	工程 b .	
5 0 3	工程 c .	
5 0 4	工程 d .	
6 0 1	一次粒子	
6 0 2	二次粒子 / 凝集物	
6 0 3	焼結ネック	10
6 0 4	テンプレートのマクロ細孔	
6 0 5	炭素源およびテンプレートを有する前駆体	
6 0 6	炭素源	
8 0 0	多孔質炭素材料	
8 0 1	メソ細孔	
8 0 2	多孔質炭素製品のマクロ細孔	
1 0 0 1	前駆体	
1 0 0 2	熱分解	
1 0 0 3	凝集	
1 0 0 4	焼結	20
1 0 0 5	層形成	

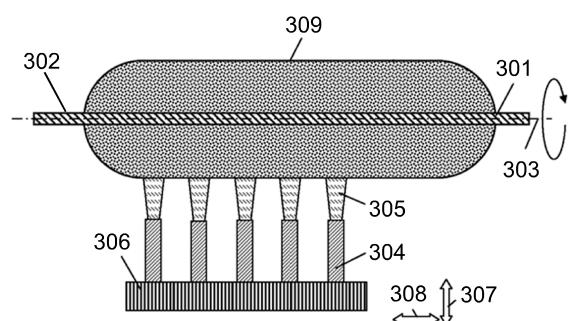
【図 1】

100

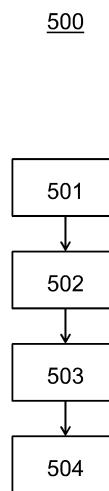
【図 2】

100

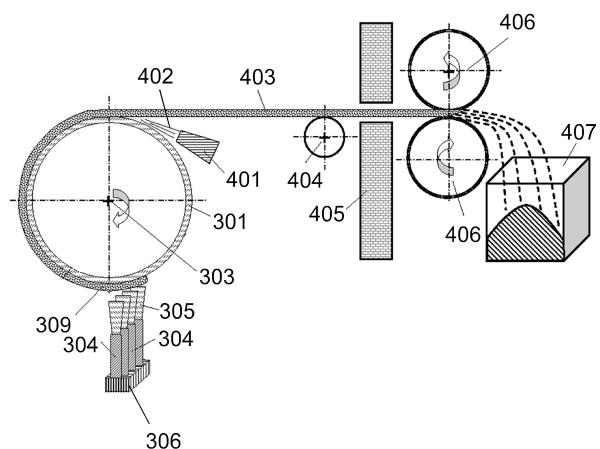
【図3】



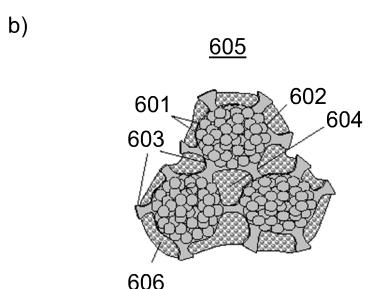
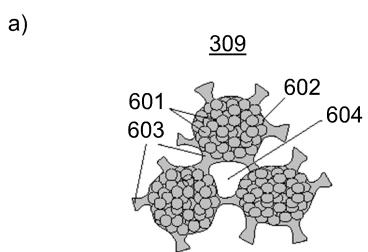
【図5】



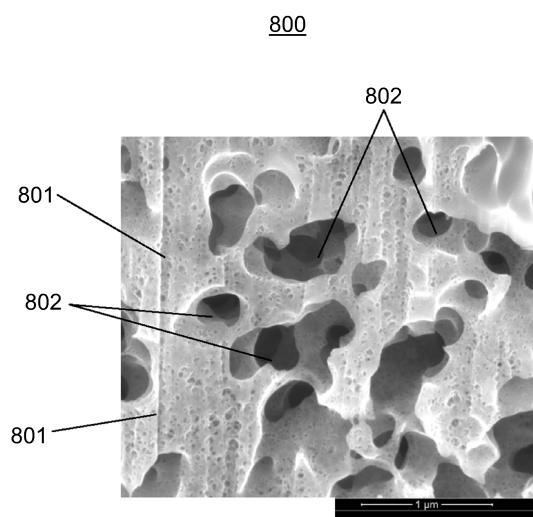
【図4】



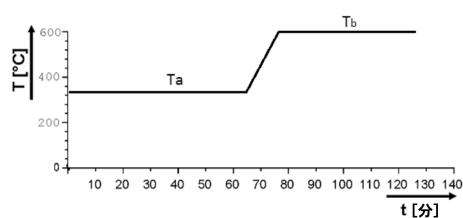
【図6】



【図8】

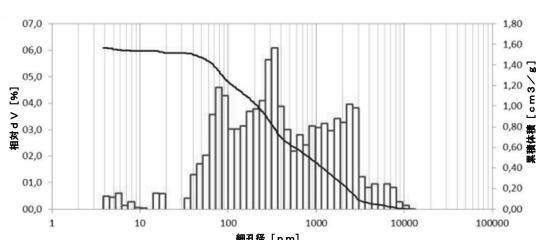


【図7】

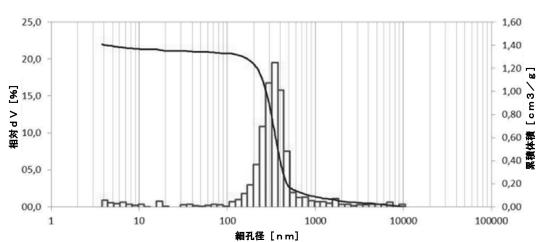


【図9】

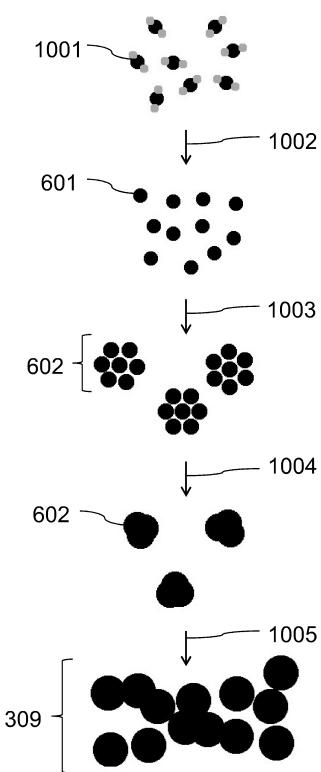
a)



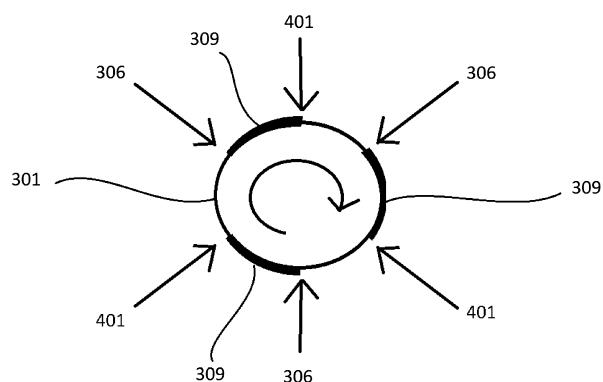
b)



【図10】



【図11】



---

フロントページの続き

(72)発明者 ノイマン クリストゥアン  
ドイツ国 35410 フンゲン アム グレンツヴァル 30

審査官 神野 将志

(56)参考文献 特表2014-511816 (JP, A)  
米国特許出願公開第2017/0008769 (US, A1)  
特表2016-531818 (JP, A)  
米国特許出願公開第2013/0209891 (US, A1)  
特開平02-022120 (JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C01B 33/00 - 33/193  
C01B 32/05