

 (19) 대한민국특허청(KR) (12) 공개특허공보(A)	(11) 공개번호 10-2016-0054932 (43) 공개일자 2016년05월17일
(51) 국제특허분류(Int. Cl.) <i>H01M 4/48</i> (2010.01) <i>C01B 31/02</i> (2006.01) <i>C01B 33/113</i> (2006.01) <i>H01M 4/587</i> (2010.01) (21) 출원번호 10-2014-0154571 (22) 출원일자 2014년11월07일 심사청구일자 없음	(71) 출원인 주식회사 부림 서울특별시 성동구 뚝섬로3길 9 ,B-206(성수동1가,(주)석화빌딩)(성수동1가,가동) 김윤순 경기도 용인시 수지구 성북2로 126 ,311동1604호(성북동,성동마을엘지빌리지3차) 유점용 경기도 용인시 수지구 성북2로 126 ,311-1604(성북동,성동마을엘지빌리지3차) (72) 발명자 유점용 경기도 용인시 수지구 성북2로 126 ,311-1604(성북동,성동마을엘지빌리지3차) 김윤순 경기도 용인시 수지구 성북2로 126 ,311동1604호(성북동,성동마을엘지빌리지3차) (74) 대리인 특허법인씨엔에스

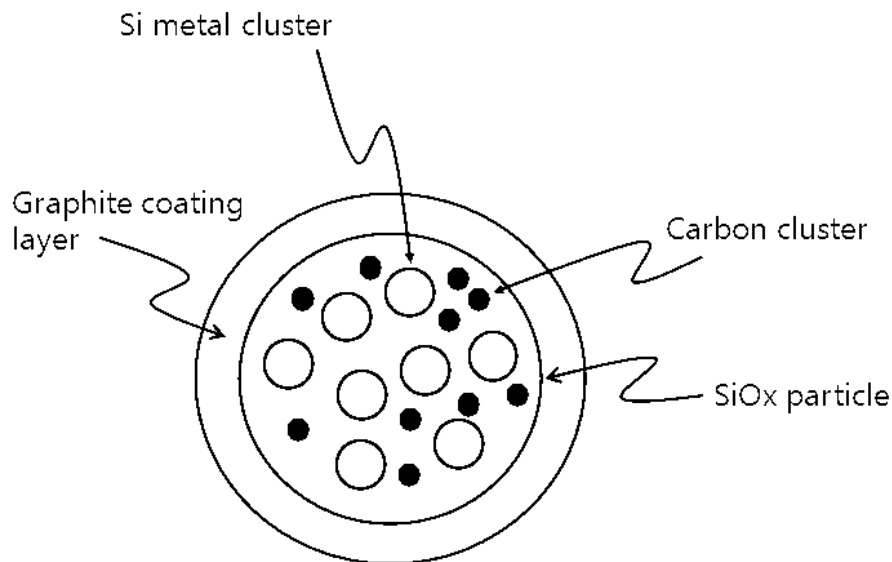
전체 청구항 수 : 총 7 항

(54) 발명의 명칭 이차전지용 음극재 및 그 제조방법

(57) 요약

본 발명은 이차전지 음극재 및 이를 제조하는 방법에 관한 것이다.

대표도 - 도1



명세서

청구범위

청구항 1

2가 알코올과 1가 또는 3가 알코올을 혼합한 수용액을 준비하는 단계;

상기 수용액과 실란계 물질을 혼합하고 반응시켜 반응물을 형성하는 단계;

상기 반응물을 탄소수소를 포함하는 가스 분위기에서 열처리하여 산소의 함량(x)이 $0 < x < 2$ 인 C-SiO_x로 표현되는 탄소함유 실리콘산화물을 형성하는 단계; 및

상기 C-SiO_x와 탄소 소재를 결합하여 (C-SiO_x)-C로 표현되는 실리콘산화물-탄소 복합재를 제조하는 단계를 포함하는 이차전지용 음극재의 제조방법.

청구항 2

청구항 1에 있어서,

상기 실란계 물질은 사염화실란(SiCl₄), 실리콘테트라 클로라이드, 트리클로로실란, 삼염화실란, 1-4 Disilacyclohexane, Vinyltrimethoxysilane, 3-(methacryloyloxy)Propyltrimethoxysilane, (Octyl)SiCl₃ 중 어느 하나인 이차전지용 음극재의 제조방법.

청구항 3

청구항 1에 있어서,

상기 2가 알코올은 에틸렌글리콜인 이차전지용 음극재의 제조방법

청구항 4

청구항 1에 있어서,

상기 탄화수소는 헥산, 메탄, 에탄, 에틸렌, 아세틸렌, 프로판, 부탄, 부텐, 펜탄, 이소부탄 중 1종 또는 2종 이상인 이차전지용 음극재의 제조방법.

청구항 5

청구항 1에 있어서,

상기 탄화수소는 1환 내지 3환의 방향족 탄화수소인 이차전지용 음극재의 제조방법

청구항 6

청구항 1에 있어서,

상기 탄소 소재는 그래핀, 탄소나노튜브(CNT), 천연흑연, 인조흑연, 비정질카본 중 하나 이상인 이차전지용 음극재의 제조방법.

청구항 7

탄소를 포함하고, 산소의 함량(x)이 $0 < x < 2$ 인 C-SiO_x로 표현되는 탄소함유 실리콘산화물; 및
상기 탄소함유 실리콘 산화물과 결합된 탄소소재
를 포함하는 이차전지용 음극재.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 이차전지, 특히 리튬이온 이차전지에 사용되는 음극재와 이를 제조하는 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 21세기에 들어서면서 IT산업기술은 기타 과학기술 분야에 비해 비약적인 발전은 계속하고 있고, 이들은 노트북, 휴대전화, PDA등 휴대가 가능하고 간편한 모바일기기를 중심으로 많은 상품개발이 주축을 이루어왔으며, 최근에는 모바일 기기의 성능 다양화와 가정, 회사, 사회 등을 연결하는 유비쿼터스 네트워크가 급속도로 진행되고 있다.

[0003] 특히 환경문제 및 에너지 문제에 대한 관심 및 연구개발이 집중되면서, 전기자동차용 리튬이차전지와 에너지저장용 리튬이차전지에 관한 기술선점 욕구는 전 세계적으로 매우 치열한 경쟁이 진행되고 있고 이를 위한 활발한 연구가 진행되고 있다.

[0004] 리튬이차전지에 있어서, 특히 음극재에 대한 기술이 부각되고 있다. 리튬이차전지의 음극 활물질은 흑연이 지속적으로 사용되어 왔으며, 용량 증가에 대한 요구로 인해 다른 탄소계 물질이나, 리튬 금속 화합물 등이 연구되어 왔다. 리튬이차전지의 음극활물질로 사용되는 상기 탄소계 물질로는 천연흑연 및 인조흑연과 같은 결정질계 탄소와 소프트 카본 및 하드 카본과 같은 비정질계 탄소가 있다. 상기 비정질계 탄소는 용량이 크지만, 충방전 과정에서 비가역성이 크다는 문제점이 있다. 결정질계 탄소로는 천연 흑연이 대표적으로 사용되며, 이론 한계 용량이 372mAh/g으로서, 음극 활물질로 이용되고 있으나, 수명 열화가 심하다는 문제점이 있다. 상기 탄소계 음극 활물질은 이론 용량이 380mAh/g 정도 밖에 되지 않아, 현재 높은 용량이 요구되는 이차전지 적용에는 한계를 가지고 있다.

[0005] 상기 탄소계 음극 활물질을 대체하기 위한 연구가 이루어지고 있으며, 특히 Sn, Si 등을 이용한 연구가 진행되고 있다. Sn을 이용한 SnO나 SnO₂계의 음극 활물질은 비가역 용량이 전체 용량의 65% 이상을 차지할 뿐만 아니라, 수명특성이 매우 나쁘다는 단점이 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0006] 본 발명의 일측면은 고용량을 확보할 수 있는 이차전지용 음극재와 이를 제조하는 방법을 제공하고자 하는 것이다.

과제의 해결 수단

- [0007] 본 발명의 일측면은 2가 알코올과 1가 또는 3가 알코올을 혼합한 수용액을 준비하는 단계;
- [0008] 상기 수용액과 실란계 물질을 혼합하고 반응시켜 반응물을 형성하는 단계;
- [0009] 상기 반응물을 탄소수소를 포함하는 가스 분위기에서 열처리하여 산소의 함량(x)이 $0 < x < 2$ 인 C-SiO_x로 표현되는 탄소함유 실리콘산화물을 형성하는 단계; 및
- [0010] 상기 C-SiO_x와 탄소 소재를 결합하여 (C-SiO_x)-C로 표현되는 실리콘산화물-탄소 복합재를 제조하는 단계를 포함하는 이차전지용 음극재의 제조방법을 제공한다.
- [0011] 본 발명의 또다른 일측면은 탄소를 포함하고, 산소의 함량(x)이 $0 < x < 2$ 인 C-SiO_x로 표현되는 탄소함유 실리콘산화물; 및
- [0012] 상기 탄소함유 실리콘 산화물과 결합된 탄소소재를 포함하는 이차전지용 음극재를 제공한다.

발명의 효과

- [0013] 본 발명에 의하면, 비가역 용량 손실을 보완하여, 고용량 고효율의 이차전지용 음극재를 제공할 수 있으며, 수명특성이 우수한 음극재를 제공할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0014] 도 1은 본 발명의 이차전지용 음극재를 모식화한 모식도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0015] 이하, 본 발명에 대해 상세히 설명한다. 먼저 본 발명의 음극재 제조방법에 대해 상세히 설명한다.
- [0016] 본 발명의 음극재 제조방법은 2가 알코올과 1가 또는 3가 알코올을 혼합한 수용액을 준비하는 단계; 상기 수용액과 실란계 물질을 혼합하고 반응시켜 반응물을 형성하는 단계; 상기 반응물을 탄소수소를 포함하는 가스 분위기에서 열처리하여 산소의 함량(x)이 $0 < x < 2$ 인 C-SiO_x로 표현되는 탄소함유 실리콘산화물을 형성하는 단계; 및 상기 C-SiO_x와 탄소 소재를 결합하여 (C-SiO_x)-C로 표현되는 실리콘산화물-탄소 복합재를 제조하는 단계를 포함한다.
- [0017] 먼저, 2가 알코올에 1가 또는 3가 알코올을 혼합하여 수용액을 준비한다(제1공정).
- [0018] 2가 알코올은 에틸렌글리콜인 것이 바람직하다.
- [0019] 상기 1가 또는 3가 알코올은 에탄올인 것이 바람직하다.
- [0020] 상기 수용액에 실란계 물질을 혼합하여 반응시켜 반응물을 형성한다(제2공정).
- [0021] 상기 실란계 물질은 사염화실란(SiCl₄), 실리콘테트라 클로라이드, 트리클로로실란, 삼염화실란, 1-4 Disilacyclohexane, Vinyltrimethoxysilane, 3-(methacryloyloxy)Propyltrimethoxysilane, (Octyl)SiCl₃ 등이 바람직하다.
- [0022] 상기 실란계 물질과 수용액은 몰비로 1:9~9:1로 혼합하여 반응시키는 것이 바람직하다. 이때의 반응은 상온반응인 것이 바람직하다.
- [0023] 상기 반응물을 탄화수소를 포함하는 가스 분위기에서 열처리한다(제3공정). 상기 열처리를 통해 산소의 함량

(x)이 $0 < x < 2$ 인 C-SiO_x로 표현되는 탄소함유 실리콘산화물을 형성한다.

- [0024] 상기 탄화수소는 헥산, 메탄, 에탄, 에틸렌, 아세틸렌, 트로판, 부탄, 부텐, 펜탄, 이소부탄 등의 탄화수소 단독 혹은 혼합물이 적용될 수 있으며, 벤젠, 톨루엔, 크실렌, 스티렌, 에틸벤젠, 디페닐메탄, 나프탈렌, 페놀, 크레졸, 티트로벤젠 등의 1 내지 3환의 방향족 탄화수소가 적용될 수 있다.
- [0025] 상기 열처리는 200~1300℃에서 행하는 것이 바람직하다.
- [0026] 상기 C-SiO_x와 탄소 소재를 결합하여 (C-SiO_x)-C로 표현되는 실리콘산화물-탄소 복합체를 제조한다(제4공정).
- [0027] 상기 탄소 소재는 그래핀, 탄소나노튜브(CNT), 천연흑연, 인조흑연, 비정질카본 등이 바람직하다.
- [0028] 상기 C-SiO_x와 탄소 소재의 결합은 고상반응을 통한 결합이 바람직하며 볼 밀링 등이 적용될 수 있다.
- [0029] 이하, 본 발명의 음극재에 대해 상세히 설명한다.
- [0030] 본 발명의 음극재는 탄소를 포함하고, 산소의 함량(x)이 $0 < x < 2$ 인 C-SiO_x로 표현되는 탄소함유 실리콘산화물; 및 상기 탄소함유 실리콘 산화물과 결합된 탄소소재를 포함한다.
- [0031] 상기 탄소함유 실리콘 산화물의 결정입자는 ASTM D10 기준으로 0.1~10 μ m의 입자크기를 갖는 것이 바람직하다.
- [0032] 상기 탄소함유 실리콘산화물에 포함되어 있는 탄소의 함량은 0.5~10중량%인 것이 바람직하다.
- [0033] 상기 탄소함유 실리콘산화물의 비표면적은 4~10m²/g인 것이 바람직하다.
- [0034] 상기 음극재의 결정입자는 ASTM D10 기준으로 2~10 μ m의 입자크기를 갖는 것이 바람직하다.
- [0035] 상기 음극재의 비표면적은 2~20m²/g인 것이 바람직하다.
- [0036] 상기 음극재는 탄소함유 실리콘 산화물과 탄소소재가 결합된 복합 구조로서, 탄소소재의 평균입경은 0.1~20 μ m인 것이 바람직하다.
- [0037] 본 발명의 음극재 일형태를 모식화하여 도 1에 나타내었다.

도면

도면1

