

【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 7 部門第 1 区分

【発行日】平成 21 年 1 月 22 日 (2009.1.22)

【公開番号】特開 2007-165108 (P2007-165108A)

【公開日】平成 19 年 6 月 28 日 (2007.6.28)

【年通号数】公開・登録公報 2007-024

【出願番号】特願 2005-359687 (P2005-359687)

【国際特許分類】

H 0 1 M 10/40 (2006.01)

H 0 1 M 4/02 (2006.01)

H 0 1 M 4/48 (2006.01)

H 0 1 M 4/58 (2006.01)

【F I】

H 0 1 M 10/40 A

H 0 1 M 4/02 C

H 0 1 M 4/02 D

H 0 1 M 4/48

H 0 1 M 4/58

【手続補正書】

【提出日】平成 20 年 11 月 28 日 (2008.11.28)

【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】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

層状構造を有するリチウム含有遷移金属酸化物を正極活物質として含有する正極、負極、および非水電解質を備えた非水電解質二次電池であって、

上記負極は、組成式 SiO_x で表される材料（ただし、 Si に対する O の原子比 x は、 $0.5 < x < 1.5$ である）の表面が炭素で被覆された負極活物質を含有しており、

上記非水電解質は、ビニレンカーボネートを含有しており、

上記正極における正極活物質の質量 P と上記負極における負極活物質の質量 N との比 P/N が、 $3.7 \sim 6.8$ であることを特徴とする非水電解質二次電池。

【請求項 2】

組成式 SiO_x で表される材料を被覆している上記炭素が、炭化水素系ガスを気相中で加熱した際に、該炭化水素系ガスの熱分解により生じたものである請求項 1 に記載の非水電解質二次電池。

【請求項 3】

上記負極活物質が、更に炭素材料との複合体を形成している請求項 1 または 2 に記載の非水電解質二次電池。

【請求項 4】

層状構造を有するリチウム含有遷移金属酸化物を正極活物質として含有する正極、負極、および非水電解質を備えた非水電解質二次電池であって、

上記負極は、組成式 SiO_x で表される材料（ただし、 Si に対する O の原子比 x は、 $0.5 < x < 1.5$ である）と炭素材料との複合体の表面が炭素で被覆された負極活物質を含有しており、

上記非水電解質は、ビニレンカーボネートを含有しており、

上記正極における正極活物質の質量 P と上記負極における負極活物質の質量 N との比 P/N が、 $3.7 \sim 6.8$ であることを特徴とする非水電解質二次電池。

【請求項 5】

ビニレンカーボネートを $0.5 \sim 10$ 質量% 含有する非水電解質を使用する請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の非水電解質二次電池。

【請求項 6】

組成式 SiO_x で表される材料が、 Si の微結晶または非晶質相を含んでいる請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の非水電解質二次電池。

【手続補正 2】

【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】

上記目的を達成し得た本発明の非水電解質二次電池は、層状構造を有するリチウム含有遷移金属酸化物を正極活物質として含有する正極、負極、および非水電解質を備えたものであって、上記負極は、組成式 SiO_x で表される材料（ただし、 Si に対する O の原子比 x は、 $0.5 \leq x \leq 1.5$ である。以下、当該材料を「 SiO_x 」と略記する場合がある。）の表面が炭素で被覆された負極活物質、または上記組成式 SiO_x で表される材料と炭素材料との複合体の表面が炭素で被覆された負極活物質を含有しており、上記非水電解質は、ビニレンカーボネートを含有しており、上記正極における正極活物質の質量 P と上記負極における負極活物質の質量 N との比 P/N が、 $3.7 \sim 6.8$ であることを特徴とするものである。

【手続補正 3】

【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】

本発明の非水電解質二次電池に係る負極は、負極活物質として、組成式 SiO_x で表される材料〔ただし、 Si （シリコン）に対する O （酸素）の原子比 x は、 $0.5 \leq x \leq 1.5$ である〕の表面が炭素で被覆された材料、または上記組成式 SiO_x で表される材料と炭素材料との複合体の表面が炭素で被覆された材料を含有している。上記 SiO_x は、 Si の微結晶または非晶質相を含んでいてもよく、この場合、 Si と O の原子比は、 Si の微結晶または非晶質相の Si を含めた比率となる。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0023

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0023】

更に、 SiO_x とそれよりも比抵抗値が小さい導電性材料との造粒体の表面が炭素で被覆されてなるものも、好ましく用いることができる。上記造粒体内部で SiO_x と導電性材料が分散した状態であると、より良好な導電ネットワークを形成できるため、これを負極活物質として含有する負極を有する非水電解質二次電池において、重負荷放電特性など電池特性を更に向上させることができる。

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0035

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0035】

炭素で被覆された、 SiO_x または SiO_x と導電性材料との造粒体の製造において、気相成長 (CVD) 法の処理温度 (雰囲気温度) については、炭化水素系ガスの種類によっても異なるが、通常、600 ~ 1200 が適当であるが、中でも、700 以上であることが好ましく、800 以上であることが更に好ましい。処理温度が高い方が不純物の残存が少なく、かつ導電性の高い炭素を含む被覆層を形成できるからである。

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0040

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0040】

炭素で被覆された、 SiO_x 粒子または SiO_x と導電性材料との造粒体と上記有機化合粒子を分散させるための分散媒としては、例えば、水、アルコール類 (エタノールなど) を用いることができる。分散液の噴霧は、通常、50 ~ 300 の雰囲気内で行うことが適当である。焼成温度は、通常、600 ~ 1200 が適当であるが、中でも700以上が好ましく、800 以上であることが更に好ましい。処理温度が高い方が不純物の残存が少なく、かつ導電性の高い良質な炭素材料を含む被覆層を形成できるからである。ただし、処理温度は SiO_x の融点以下であることを要する。

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0050

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0050】

正極活物質であるリチウム含有遷移金属酸化物として、例えば、高容量の層状化合物 $\text{LiM}'\text{O}_2$ (M' : Co、Mn、Ni から選ばれる少なくとも1種の金属元素) を用いると、その正極活物質の単位質量当たりの理論容量は160 ~ 220 mAh/gとなる。このとき、上記 P/N が上記特定値を満たすとすると、負極活物質では、炭素で被覆された、組成式 SiO_x で表される材料や該材料と炭素材料との複合体において、その放電容量が、理論容量 (充電) の半分以上、具体的には、 SiO_x 中の Si : 1 モルあたりに換算して、70 Ah/mol 以下に制限されることになる。