

【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】平成 24 年 6 月 14 日 (2012.6.14)

【公表番号】特表 2011-517653 (P2011-517653A)

【公表日】平成 23 年 6 月 16 日 (2011.6.16)

【年通号数】公開・登録公報 2011-024

【出願番号】特願 2011-504453 (P2011-504453)

【国際特許分類】

C 01 B 25/45 (2006.01)

H 01 M 4/58 (2010.01)

H 01 M 4/36 (2006.01)

【F I】

C 01 B 25/45 Z

H 01 M 4/58 1 0 1

H 01 M 4/36 B

【手続補正書】

【提出日】平成 24 年 4 月 25 日 (2012.4.25)

【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】

一般式 (I) :

$\text{Li}_{a-b}\text{M}^1_b\text{Fe}_{1-c}\text{M}^2_c\text{Pd-e}\text{M}^3_e\text{O}_x$  (I)、

[ 式中、 $\text{M}^1$  と、 $\text{M}^2$ 、 $\text{M}^3$ 、 $a$ 、 $b$ 、 $c$ 、 $d$ 、 $e$  は :

$\text{M}^1$  : Na、K、Rb、及び / 又は Cs、

$\text{M}^2$  : Mn、Mg、Ca、Ti、Co、Ni、Cr、V、

$\text{M}^3$  : Si、S、

$a$  : 0.8 ~ 1.9、

$b$  : 0 ~ 0.3、

$c$  : 0 ~ 0.9、

$d$  : 0.8 ~ 1.9、

$e$  : 0 ~ 0.5、

$x$  : 1.0 ~ 8、( Li、 $\text{M}^1\text{Fe}$ 、 $\text{M}^2$ 、P、 $\text{M}^3$  の量と酸化状態により異なる )、但し、一般式 (I) の化合物は無電荷である。 ]

で表される化合物の製造方法であって、

( A ) 少なくとも一種のリチウム含有化合物と、鉄の酸化状態が + 3 である少なくとも一種の鉄含有化合物と、存在するなら少なくとも一種の  $\text{M}^1$  含有化合物と、及び / 又は存在するなら少なくとも一種の  $\text{M}^2$  含有化合物、及び / 又は存在するなら  $\text{M}^3$  含有化合物と、少なくとも一個の酸化状態が + 5 であるリン原子を有する少なくとも一種の化合物に酸化される少なくとも一種の還元剤とを含む混合物を供給する工程、

( B ) 必要に応じて、工程 ( A ) で供給される混合物を乾燥して、固体化合物を得る工程、及び

( C ) 工程 ( A ) 又は ( B ) から得られる固体化合物を 300 ~ 1000 の温度で焼成する工程

を含むことを特徴とする方法。

## 【請求項 2】

工程 (A) で供給される前記混合物が実質的に水性である請求項 1 に記載の方法。

## 【請求項 3】

工程 (A) で供給される前記混合物が、さらに少なくとも一個の酸化状態が + 5 であるリン原子を有する少なくとも一種の化合物を含む請求項 1 又は 2 に記載の方法。

## 【請求項 4】

上記少なくとも一個の酸化状態が + 5 であるリン原子を有する少なくとも一種の化合物に酸化される少なくとも一種の還元剤が、 $\text{H}_3\text{PO}_3$ 、 $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_3$ 、 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_3$ 、 $\text{H}_3\text{PO}_2$ 、 $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_2$ 、 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_2$ 、 $\text{LiH}_2\text{PO}_3$ 、 $\text{Li}_2\text{HPO}_3$ 、 $\text{Li}_2\text{PO}_2$  及びこれらの混合物からなる群から選ばれる請求項 1 ~ 3 にいずれか一項に記載の方法。

## 【請求項 5】

前記工程 (A) で添加される、少なくとも一個の酸化状態が + 5 であるリン原子を有する少なくとも一種の化合物が、 $\text{H}_3\text{PO}_4$ 、 $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_4$ 、 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_4$ 、 $(\text{NH}_4)_3\text{PO}_4$ 、 $\text{Li}_3\text{PO}_4$ 、 $\text{LiH}_2\text{PO}_4$ 、 $\text{Li}_2\text{HPO}_4$  及びこれらの混合物からなる群から選ばれる請求項 2 ~ 4 にいずれか一項に記載の方法。

## 【請求項 6】

工程 (B) の乾燥が噴霧乾燥で行われる請求項 2 ~ 5 にいずれか一項に記載の方法。

## 【請求項 7】

上記の少なくとも一種の一般式 (I) に記載の化合物と少なくとも一種の電気伝導性材料とを含む混合物の製造方法であって、

(D) 少なくとも一種の電気伝導性材料又は少なくとも一種の電気伝導性材料の前駆体と、少なくとも一種のリチウム含有化合物と、少なくとも一種の鉄の酸化状態が + 3 である鉄含有化合物と、存在するなら少なくとも一種の  $\text{M}^1$  含有化合物と、及び / 又は、存在するなら少なくとも一種の  $\text{M}^2$  含有化合物と、及び / 又は存在するなら少なくとも一種の  $\text{M}^3$  含有化合物と、少なくとも一個の酸化状態が + 5 であるリン原子を有する少なくとも一種の化合物に酸化される少なくとも一種の還元剤とを含む混合物を供給する工程、

(E) 必要に応じて、工程 (D) で供給される混合物を乾燥して、固体化合物を得る工程、及び

(F) 工程 (E) で得られる固体化合物を 300 ~ 1000 の温度で焼成する工程を含むことを特徴とする方法。

## 【請求項 8】

工程 (D) で供給される混合物が、さらに少なくとも一個の酸化状態が + 5 であるリン原子を有する少なくとも一種の化合物を含む請求項 7 に記載の方法。

## 【請求項 9】

前記の少なくとも一個の酸化状態が + 5 であるリン原子を有する少なくとも一種の化合物に酸化される少なくとも一種の還元剤が、 $\text{H}_3\text{PO}_3$ 、 $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_3$ 、 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_3$ 、 $\text{H}_3\text{PO}_2$ 、 $(\text{NH}_4)\text{H}_2\text{PO}_2$ 、 $(\text{NH}_4)_2\text{HPO}_2$ 、 $\text{LiH}_2\text{PO}_3$ 、 $\text{Li}_2\text{HPO}_3$ 、 $\text{Li}_2\text{PO}_2$  及びこれらの混合物からなる群から選ばれる請求項 7 又は 8 に記載の方法。

## 【請求項 10】

前記電気伝導性材料が、カーボンブラック、グラファイト、炭素繊維、炭素ナノファイバー、炭素ナノチューブ、電気伝導性ポリマー、及びこれらの混合物からなる群から選ばれる請求項 7 ~ 9 にいずれか一項に記載の方法。

## 【請求項 11】

請求項 7 ~ 10 のいずれか一項に記載の方法で製造される、請求項 1 に規定される少なくとも一種の一般式 (I) に記載の化合物と少なくとも一種の電気伝導性材料とを含む混合物からなる球状粒子または凝集物であって、BET 表面積が  $0.1 \sim 500 \text{ m}^2/\text{g}$  である球状粒子又は凝集物。

## 【請求項 12】

請求項 1 1 に記載の球状粒子又は凝集物を、リチウムイオン電池又は電気化学的セルのカソードの製造のために使用する方法。

【請求項 1 3】

請求項 1 1 に記載の球状粒子又は凝集物を含むリチウムイオン用の電池カソード。