

【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】令和7年3月6日(2025.3.6)

【国際公開番号】WO2022/230993

【出願番号】特願2023-517629(P2023-517629)

【国際特許分類】

H 0 1 M 4/38(2006.01)

H 0 1 M 4/36(2006.01)

H 0 1 M 4/58(2010.01)

H 0 1 M 4/587(2010.01)

10

【F I】

H 0 1 M 4/38 Z

H 0 1 M 4/36 C

H 0 1 M 4/36 A

H 0 1 M 4/36 E

H 0 1 M 4/58

H 0 1 M 4/587

【手続補正書】

20

【提出日】令和7年2月26日(2025.2.26)

【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】

非水電解質二次電池用の負極活物質であって、
ケイ素を含有する活物質粒子と、
前記活物質粒子の表面に形成された表面層とを含み、
前記表面層は、化合物がシロキサン結合を形成するように反応した反応生成物を含み、
前記化合物は、 $Si-R1-Si$ で表される構造を含み、
前記R1は、硫黄原子、酸素原子、および窒素原子からなる群より選択される少なくとも1種とアルキレン基とを構成要素として含む鎖状部を有する原子団であり、

30

前記2つのSiの一方には、炭素数が1~6の範囲にあるアルコキシ基、オキシアルキレン基を含み $-O-(C_{x1}H_{2x1+1}O_{y1})$ で表される基($x1$ は2以上6以下の整数であり $y1$ は1以上3以下の整数である)、クロロ基、および水酸基からなる群より選択される少なくとも1つの原子団が結合しており、

前記2つのSiの他方には、炭素数が1~6の範囲にあるアルコキシ基、オキシアルキレン基を含み $-O-(C_{x2}H_{2x2+1}O_{y2})$ で表される基($x2$ は2以上6以下の整数であり $y2$ は1以上3以下の整数である)、クロロ基、および水酸基からなる群より選択される少なくとも1つの原子団が結合している、非水電解質二次電池用の負極活物質。

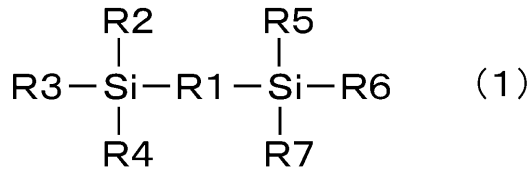
40

【請求項2】

前記化合物は以下の式(1)で表される化合物である、請求項1に記載の負極活物質。

50

【化 1】



[式(1)において、R2、R3、およびR4からなる群より選択される少なくとも1つはそれぞれ独立に、炭素数が1~6の範囲にあるアルコキシ基、オキシアルキレン基を含み - O - (C_{x1}H_{2x1+1}O_{y1}) で表される基 (x₁は2以上6以下の整数であり y₁は1以上3以下の整数である)、クロロ基、または水酸基である。R5、R6、およびR7からなる群より選択される少なくとも1つはそれぞれ独立に、炭素数が1~6の範囲にあるアルコキシ基、オキシアルキレン基を含み - O - (C_{x2}H_{2x2+1}O_{y2}) で表される基 (x₂は2以上6以下の整数であり y₂は1以上3以下の整数である)、クロロ基、または水酸基である。R2~R7の残りはそれぞれ独立に、炭素数が1~6の範囲にある炭化水素基、水素原子、または C_{x3}H_{2x3+y3+1}N_{y3}O_{z3}S_{w3} で表される基 (x₃は1以上6以下の整数であり、y₃は0以上3以下の整数であり、z₃は0以上3以下の整数であり、w₃は0以上3以下の整数であり、1 y₃ + z₃ + w₃ である) である。R2~R7は、同じであってもよいし異なってもよい。]

10

【請求項3】

20

前記式(1)において、R2~R7はメトキシ基またはエトキシ基である、請求項2に記載の負極活物質。

【請求項4】

前記R1は、硫黄原子、酸素原子、および窒素原子からなる群より選択される少なくとも1種のヘテロ原子と、前記少なくとも1種のヘテロ原子を挟むように前記鎖状部を構成する2つのアルキレン基とを含み、

前記2つのアルキレン基の炭素数はそれぞれ独立に2~4の範囲にある、請求項1に記載の負極活物質。

【請求項5】

前記R1は、- (CH₂)_pS_n(CH₂)_q- (1 n 6、2 p 4、2 q 4)、- (CH₂)_pO(CH₂)_q- (2 p 4、2 q 4)、- (CH₂)_pO(CH₂)_rO(CH₂)_q- (2 p 4、2 q 4、2 r 4)、および - (CH₂)_pNH(CH₂)_q- (2 p 4、2 q 4) のいずれか (ただし、n、p、q、r はそれぞれ自然数である) である、請求項1に記載の負極活物質。

30

【請求項6】

前記表面層は導電性カーボンを含む、請求項1に記載の負極活物質。

【請求項7】

前記活物質粒子は、Li_xSiO_y (0 < x 4、0 < y 4) で表されるリチウムシリケート相と、前記リチウムシリケート相中に分散しているシリコン相と、を含む複合粒子である、請求項1に記載の負極活物質。

40

【請求項8】

前記シリコン相の結晶子サイズは1nm~1000nmの範囲にある、請求項7に記載の負極活物質。

【請求項9】

前記活物質粒子は、炭素相と、前記炭素相内に分散しているシリコン相と、を含む、請求項1に記載の負極活物質。

【請求項10】

正極と負極と非水電解質とを含み、

前記負極は請求項1~9のいずれか1項に記載の負極活物質を含む、非水電解質二次電池。

50

【請求項 1 1】

非水電解質二次電池用の負極活物質の製造方法であって、

化合物、または前記化合物が溶解された液体と、ケイ素を含有する活物質粒子とを接触させる第 1 の工程と、

前記化合物または前記液体と前記活物質粒子とが接触している状態で、シロキサン結合を形成するように前記化合物を反応させる第 2 の工程とを含み、

前記化合物は、 $\text{Si}-\text{R}1-\text{Si}$ で表される構造を含み、

前記 R 1 は、硫黄原子、酸素原子、および窒素原子からなる群より選択される少なくとも 1 種とアルキレン基とを構成要素として含む鎖状部を有する原子団であり、

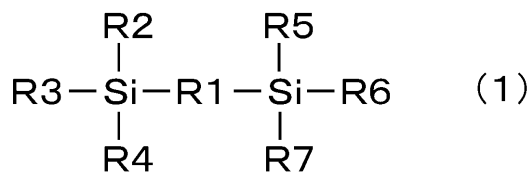
前記 2 つの Si の一方には、炭素数が 1 ~ 6 の範囲にあるアルコキシ基、オキシアルキレン基を含み $-\text{O}-\left(\text{C}_{x1}\text{H}_{2x1+1}\text{O}_{y1}\right)$ で表される基 ($x1$ は 2 以上 6 以下の整数であり $y1$ は 1 以上 3 以下の整数である)、クロロ基、および水酸基からなる群より選択される少なくとも 1 つの原子団が結合しており、

前記 2 つの Si の他方には、炭素数が 1 ~ 6 の範囲にあるアルコキシ基、オキシアルキレン基を含み $-\text{O}-\left(\text{C}_{x2}\text{H}_{2x2+1}\text{O}_{y2}\right)$ で表される基 ($x2$ は 2 以上 6 以下の整数であり $y2$ は 1 以上 3 以下の整数である)、クロロ基、および水酸基からなる群より選択される少なくとも 1 つの原子団が結合している、負極活物質の製造方法。

【請求項 1 2】

前記化合物は、以下の式 (1) で表される化合物である、請求項 1 1 に記載の製造方法

【化 2】



[式 (1) において、R 2、R 3、および R 4 からなる群より選択される少なくとも 1 つはそれぞれ独立に、炭素数が 1 ~ 6 の範囲にあるアルコキシ基、オキシアルキレン基を含み $-\text{O}-\left(\text{C}_{x1}\text{H}_{2x1+1}\text{O}_{y1}\right)$ で表される基 ($x1$ は 2 以上 6 以下の整数であり $y1$ は 1 以上 3 以下の整数である)、クロロ基、または水酸基である。R 5、R 6、および R 7 からなる群より選択される少なくとも 1 つはそれぞれ独立に、炭素数が 1 ~ 6 の範囲にあるアルコキシ基、オキシアルキレン基を含み $-\text{O}-\left(\text{C}_{x2}\text{H}_{2x2+1}\text{O}_{y2}\right)$ で表される基 ($x2$ は 2 以上 6 以下の整数であり $y2$ は 1 以上 3 以下の整数である)、クロロ基、または水酸基である。R 2 ~ R 7 の残りはそれぞれ独立に、炭素数が 1 ~ 6 の範囲にある炭化水素基、水素原子、または $\text{C}_{x3}\text{H}_{2x3+y3+1}\text{N}_{y3}\text{O}_{z3}\text{S}_{w3}$ で表される基 ($x3$ は 1 以上 6 以下の整数であり、 $y3$ は 0 以上 3 以下の整数であり、 $z3$ は 0 以上 3 以下の整数であり、 $w3$ は 0 以上 3 以下の整数であり、 $1 \leq y3 + z3 + w3$ である) である。R 2 ~ R 7 は、同じであってもよいし異なってもよい。]

10

20

30

40

50