

|      |          |
|------|----------|
| 申請日期 | P1.6.21  |
| 案 號  | P11136P6 |
| 類 別  | H/M 4/04 |

A4  
C4

(以上各欄由本局填註)

564570

# 發明專利說明書

|            |               |                                                                                                                          |
|------------|---------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| 一、發明<br>名稱 | 中 文           | 鋰離子二次電池正極材料之製作方法                                                                                                         |
|            | 英 文           |                                                                                                                          |
| 二、發明<br>人  | 姓 名           | 吳溪煌、林永仁、楊木榮、劉文仁、陳怡互                                                                                                      |
|            | 國 籍           | 中華民國                                                                                                                     |
| 三、申請人      | 住、居所          | 台北市北投區大屯路 30 號 3F<br>台北市大安區建國南路一段 307 巷 4 號 10F 之 1<br>台中縣清水鎮新興路 98-22 號<br>高雄市三民區正興路 163 巷 10-1 號 2F<br>基隆市中和路 139-83 號 |
|            | 姓 名<br>(名稱)   | 大同股份有限公司                                                                                                                 |
| 三、申請人      | 國 籍           | 中華民國                                                                                                                     |
|            | 住、居所<br>(事務所) | 台北市中山北路 3 段 22 號                                                                                                         |
| 三、申請人      | 代 表 人<br>姓 名  | 林挺生                                                                                                                      |

裝

訂

線

(由本局填寫)

|          |
|----------|
| 承辦人代碼：   |
| 大 類：     |
| I P C分類： |

A6  
B6

本案已向：

國 ( 地區 )    申請專利，申請日期：                      案號：                      ， ☐有 ☒無主張優先權

無

有關微生物已寄存於：                                              ，寄存日期：                                              ，寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝  
訂  
線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

## 六、申請專利範圍

5. 如申請專利範圍第1項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該溶劑係指水、甲醇、乙醇、丙醇或丁醇。

6. 如申請專利範圍第1項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該螯合劑係為檸檬酸、草酸或酒石酸。

7. 如申請專利範圍第1項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該螯合劑之莫耳數與該鋰鹽中所含鋰離子莫耳數之比係介於1:1至5:1之間。

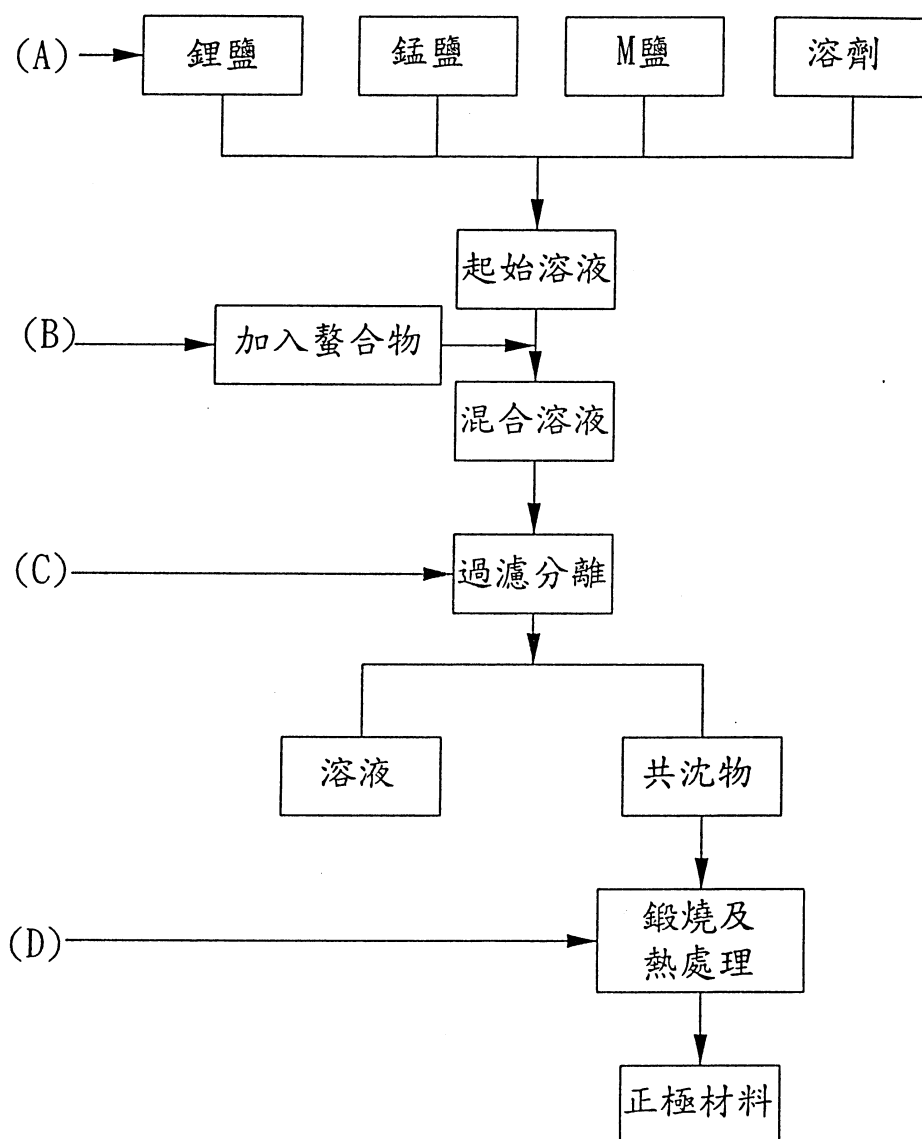
8. 如申請專利範圍第1項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該螯合劑之莫耳數與該鋰鹽中所含鋰離子莫耳數之比係介於1:1至3:1之間。

9. 如申請專利範圍第1項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該煅燒之溫度係介於200℃~400℃之間。

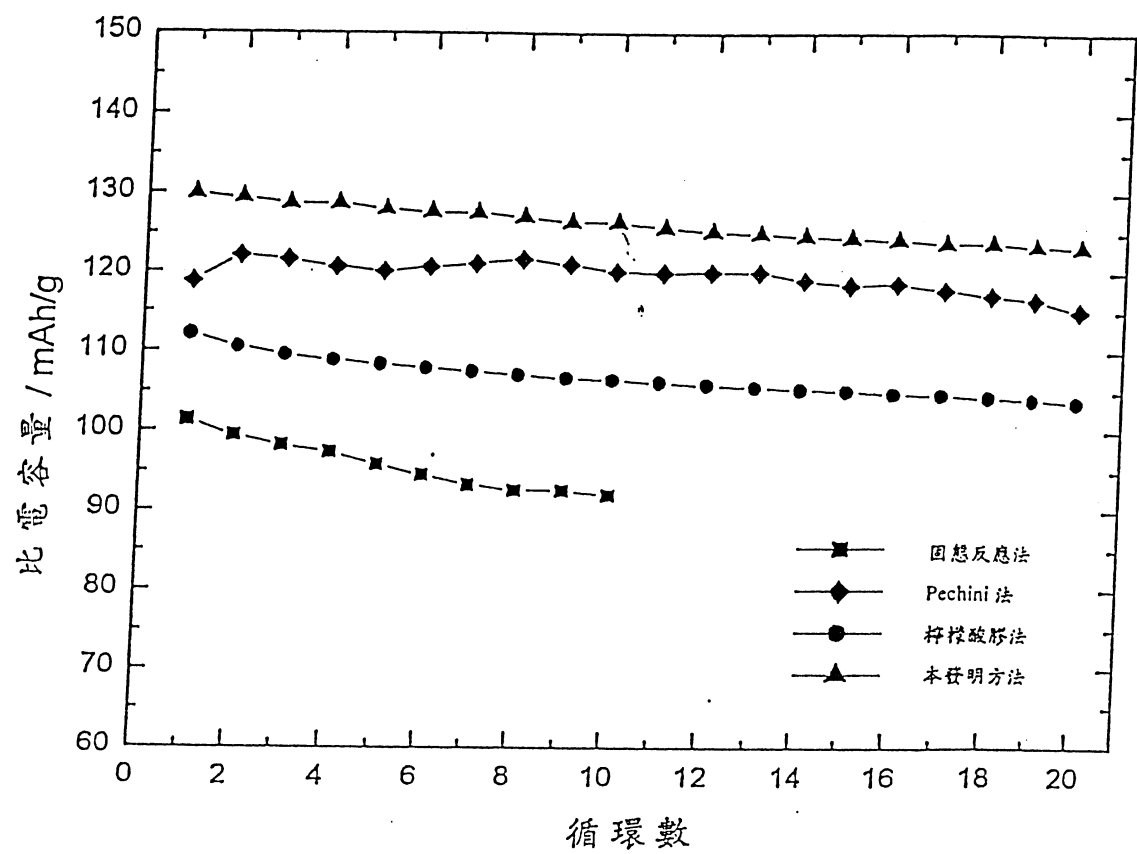
10. 如申請專利範圍第1項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該煅燒之時間係介於1小時至4小時之間。

11. 如申請專利範圍第1項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該熱處理溫度係介於600℃~900℃之間。

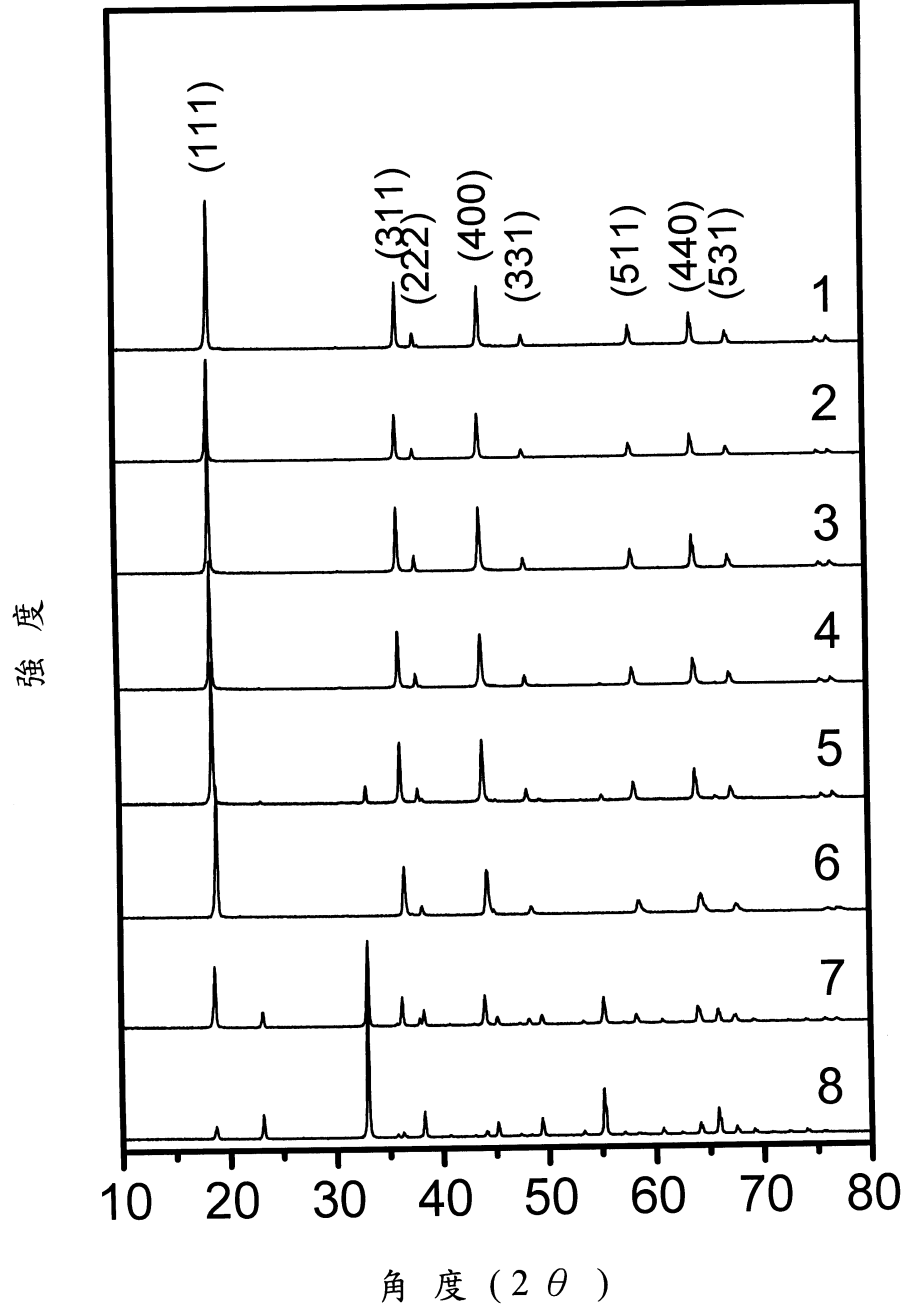
12. 如申請專利範圍第1項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該熱處理時間係介於1小時至8小時之間。



第1圖



第 2 圖



第 3 圖

## 五、發明說明 ( | )

### 【本發明之領域】

本發明係關於一種鋰離子二次電池正極材料之製作方法，尤指一種製作適用於可充電式鋰離子電池之正電極材料之方法，包括應用於手機、筆記型電腦、隨身聽及其他使用充電式鋰離子電池之技術領域。

### 【本發明之背景】

日本 Sony 公司於 1990 年率先將鋰離子電池商品化，其使用一種可讓鋰離子嵌入-嵌出的化合物取代純鋰金屬，作為鋰電池之負極材料，成為一種安全的可充式鋰電池。鋰離子二次電池的正極電極材料通常採用具有強氧化性的化合物，如鋰鈷氧化物 ( $\text{LiCoO}_2$ )、鋰鎳氧化物 ( $\text{LiNiO}_2$ ) 和鋰錳氧化物 ( $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ )，負極電極則使用碳材，至於電解液則採用非水系溶劑。由於含有鋰鈷氧化物 ( $\text{LiCoO}_2$ ) 的電池具有高比電容量，故成為現今可攜式電子產品主要的電源供應來源。至於鋰鎳氧化物 ( $\text{LiNiO}_2$ ) 則有不易合成、熱安定性差等缺點。而鋰錳氧化物 ( $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ) 相較於前二者，則具有成本低、安全性高及環保的優點，非常適用於可充電式鋰金屬和鋰離子電池的正極材料。

在商業化生產時，傳統的固態反應法必須先將前驅物粉末做機械式的混合，再經過長時間的高溫熱處理及研磨，所得生成物會因研磨使其粉末顆粒遭破壞，而降低其比電容量，且在循環性能上之電容量亦容易減少。

## 五、發明說明(2)

近來，溼式化學法的技術已廣泛地被用於 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ 粉末的合成，其優點在於均相混合容易、合成溫度低且反應比表面積高。有幾種低溫溼式化學法合成技術已被發展出來，例如溶膠-凝膠法、Pechini製程及檸檬酸膠法等。這些方法中，部分溶膠-凝膠製程需要在惰性氣體中進行；而Pechini製程，雖然其製作出之鋰錳氧化物在電化學性質方面有所改善，但成本高，很難大量生產製造；至於檸檬酸膠法則需經烘乾的步驟，相當耗費能源及成本。

發明人爰因於此，本於積極發明之精神，亟思一種可以解決上述問題之「鋰離子二次電池正極材料之製作方法」，幾經研究實驗終至完成此項嘉惠世人之發明。

### 【本發明之概述】

本發明之主要目的係在提供一種鋰離子二次電池正極材料之製作方法，俾能以一簡單之製造方法，製作出一性能佳且環保之鋰離子二次電池之正極材料，達到節省能源及成本之功效。

本發明為一種如下通式(I)之二次電池正極材料之製造方法，



其中 Li 係為鋰，Mn 係為錳，M 係為鎂、鋁、鉻、鐵、鈷或鎳， $0 \leq x \leq 0.4$ ， $0 \leq y \leq 0.2$ ；其步驟如下：首先取鋰鹽、錳鹽與 M 鹽使之與至少一種溶劑相混合，以形成一起始溶液，其中，鋰鹽中所含鋰離子之莫耳數：錳鹽

### 五、發明說明 ( 3 )

中所含錳離子之莫耳數：M 鹽中所含 M 離子之莫耳數  $= (1+x):(2-y):y$ ；之後添加至少一螯合劑於該起始溶液中以形成一懸浮溶液，將該懸浮溶液過濾可得一共沈物，最後再將該共沈物進行煨燒及熱處理。

本發明二次電池正極材料之製作方法所使用之鋰鹽並無特殊之限制，例如可以是鋰之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋酸鹽；錳鹽亦無特殊之限制，例如可以是錳之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋酸鹽；而 M 鹽係指鎂、鋁、鉻、鐵、鈷或鎳之鹽類，例如可以是鎂、鋁、鉻、鐵、鈷或鎳之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋酸鹽。本發明所使用之溶劑，較佳的可以選自水、甲醇、乙醇、丙醇或丁醇之至少一種，亦即可以是單一溶劑或兩種以上溶劑之混合。螯合劑並無特殊之限制，只要是具有羧基之多質子有機酸即可，較佳的例如檸檬酸、草酸或酒石酸。螯合劑係用來與鋰鹽、錳鹽和 M 鹽產生錯合反應，一般而言螯合劑之莫耳數與鋰鹽中所含鋰離子莫耳數之比係介於 1:1 至 5:1 之間，以利於生成結晶相良好之正極材料；更佳的条件是，螯合劑之莫耳數與鋰鹽中所含鋰離子莫耳數之比係介於 1:1 至 3:1 之間。後續之煨燒可在  $200^{\circ}\text{C} \sim 400^{\circ}\text{C}$  之間進行 1 小時至 4 小時，及在  $600^{\circ}\text{C}$  至  $900^{\circ}\text{C}$  之間熱處理 1 小時至 8 小時。關於煨燒及熱處理之步驟與條件，非本發明之重點，且為熟悉此項技藝之人士所習之，於此不在一一贅述。

先  
背面之注意事  
再填  
本各

## 五、發明說明 ( 4 )

### 【圖式簡單說明】

第1圖係本發明之流程圖。

第2圖係固態反應法、Pechini法、檸檬酸膠法與本發明所合成之 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ，分別組裝成測試電池所作之充放電測試比較圖。

第3圖係本發明實施例3~10之鋰錳氧化物之 $\text{CuK}\alpha$  X-ray繞射圖譜。

### 【較佳具體實施例之詳細說明】

本發明為以有機酸鹽膠體共沈法來合成如下通式(I)之二次電池正極材料



其中Li係為鋰；Mn係為錳；M係為鎂、鋁、鉻、鐵、鈷或鎳； $0 \leq x \leq 0.4$ ， $0 \leq y \leq 0.2$ 。本發明之方法有以下兩個主要的優點：(1)合成步驟均可於一般環境下進行，不需特定反應條件；(2)可生成高比表面積產物以提高電流密度，且其鋰錳比例易於控制。其製作過程見第1圖本發明之流程圖，在步驟(A)首先取鋰鹽、錳鹽與M鹽使之與至少一種溶劑相混合，以形成一起始溶液，其中，鋰鹽可以是鋰之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋酸鹽之任一種；錳鹽可以是錳之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋酸鹽；而M鹽可以是鎂、鋁、鉻、鐵、鈷或鎳之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋

## 五、發明說明 ( 5 )

酸鹽；上述（鋰鹽中所含鋰離子之莫耳數）：（錳鹽中所含錳離子之莫耳數）：（M鹽中所含M離子之莫耳數）  
 $= (1+x):(2-y):y$ ；而溶劑可以選自水、甲醇、乙醇、丙醇或丁醇之至少一種。

接著在步驟(B)加入螯合物於前述起始溶液中，起始溶液隨即產生一錯合反應，生成一共沈物而形成一懸浮溶液，由於鋰離子與錳離子在起始溶液中已充分地分散，故經錯合反應所生成之共沈物中所含之鋰離子與錳離子之比例可精確地相當於起始溶液中鋰離子與錳離子之計量比。螯合物可以是檸檬酸、草酸、酒石酸或其他任一具有羧基之有機酸，且其莫耳數與步驟(A)之鋰鹽所含鋰離子莫耳數之比可介於1:1至5:1之間，更佳的為介於1:1至3:1之間，最終之正極材料才有較佳之結晶相生成，若小於此比例，則生成之共沈物中將有其他非預期的副產物產生。

本發明之共沈物在室溫下只微溶於溶劑中，故不需長時間蒸餾來去除溶劑，以過濾方式即可得此共沈物，步驟(C)將前述懸浮溶液過濾後，可分離出其中的溶液及共沈物，共沈物再經步驟(D)之煅燒及熱處理即可得結晶相良好的正極材料，其中煅燒的溫度介於  $200^{\circ}\text{C} \sim 400^{\circ}\text{C}$  之間，煅燒的時間介於 1 小時至 4 小時之間；熱處理溫度介於  $600^{\circ}\text{C} \sim 900^{\circ}\text{C}$  之間，熱處理時間介於 1 小時至 8 小時之間。

本發明之正極材料使用在鋰離子二次電池時，可加入碳黑以及聚偏二氟乙烯(polyvinylidene fluoride)黏結

先  
背面之注意事  
再填  
本  
各

## 五、發明說明 ( 6 )

劑，然後塗佈於鋁箔基板以作為測試電池的正極，並將其與一鋰箔負極和一隔離膜，加入非水系電解質組裝成一般電池進行測試。此測試電池可在一般鋰電池常用電位3.6~4.3伏下，以C/3（3小時完成一次充電）之速率進行充放電循環測試，或是在其他的充放電速率下進行充放電循環測試。

本發明中所使用之各種金屬鹽類、溶劑以及螯合劑之取得及實驗之操作為熟悉此項技藝之人士所習知，於此不再贅述。

為能讓 貴審查委員能更瞭解本發明之技術內容，特舉二較佳具體實施例及比較例說明如下。

### 比較例 1

以傳統的固態反應法製作，將醋酸錳和碳酸鋰依化學計量比取量混合，再將此混合物置於氧化鋁坩堝中在350℃煅燒24小時，再以800℃熱處理72小時，然後以24小時的時間降溫至室溫即得一 $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ 化合物。

### 比較例 2

以Pechini法製作，其在製備聚合前驅物時包含三個主要反應：生成金屬酸螯合物、酯化反應及聚合反應，其詳細的合成方法可參閱Liu et. al. 於1996年於J. Electrochem. Soc.，第143卷，第879號。將所得產物以210℃進行6小時的煅燒，然後以800℃熱處理8小時，最後再以每分鐘1℃的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

### 比較例 3

## 五、發明說明 ( 7 )

以檸檬酸膠法製作，將硝酸鋰、硝酸錳和檸檬酸溶於去離子水中，其中  $\text{Li}^+$ 、 $\text{Mn}^{2+}$  與檸檬酸之莫耳比為 0.4:0.7:1.0，將此混合物在  $75^\circ\text{C}$  攪拌 0.5 小時，以確保反應物已均勻混合，當此混合物開始進行錯合反應時，溶液會突然轉成凝膠狀，加熱之以去除水分。所得乾燥粉末再以  $300^\circ\text{C}$  煅燒 6 小時，然後以  $800^\circ\text{C}$  熱處理 8 小時，最後再以每分鐘  $1^\circ\text{C}$  的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

### 實施例 1

取 0.106 莫耳之醋酸鋰與 0.2 莫耳之醋酸錳溶於 100 毫升乙醇中，然後加入檸檬酸乙醇溶液混合，溶液迅速轉變成一懸浮溶液。再攪拌 1 小時，將此懸浮溶液過濾可得一共沈物，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以  $300^\circ\text{C}$  煅燒 2 小時，然後持續加熱至  $800^\circ\text{C}$  熱處理 4 小時，最後再以每分鐘  $1^\circ\text{C}$  的速率緩慢地將共沈物冷卻至室溫。

### 實施例 2

將實施例 1 之方法加以調整，製備一系列含有其他金屬離子的鋰錳氧化物，其分子式為  $\text{Li}_{1.06}\text{Mn}_{2-y}\text{M}_y\text{O}_4$ 。當 M 為鈷時，y 為 0.15；當 M 為鎳時，y 為 0.05。

將上述比較例 1-3 及實施例 1 所得之產物分別加入重量百分比 13% 的碳黑及 7% 的聚偏二氟乙烯 (polyvinylidene fluoride) 黏結劑，然後塗佈於鋁箔基板以作為測試電池的正極，並將其與一鋰箔負極和一隔離膜及適量電解液組裝成一般電池進行測試，其中隔離膜浸

先  
背面之注意事  
再填  
本  
各

## 五、發明說明 ( 8 )

有一以碳酸乙烯(ethylene carbonate)與碳酸二乙烯(diethylene carbonate)以1:1體積比製成含1M的 $\text{LiPF}_6$ 電解液。此測試電池在室溫環境中，以C/3(3小時完成一次充電)之速率進行充放電循環測試，充放電之截止電壓分別為4.3與3.6V。由第2圖可看出，以本發明之方法做成之電池正極，其電池之比電容量與循環穩定性均優於其他習知技術所合成之正極粉末。

### 實施例3

取0.106莫耳之醋酸鋰與0.2莫耳之醋酸錳溶於100毫升甲醇中，另取0.169莫耳之檸檬酸溶於100毫升甲醇中；將兩溶液混合後，會生成沉澱，經持續攪拌約10分鐘後進行過濾，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以 $300^\circ\text{C}$ 煅燒2小時，然後持續加熱至 $750^\circ\text{C}$ 熱處理4小時，最後再以每分鐘 $1^\circ\text{C}$ 的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

將上述產物以 $\text{CuK}\alpha$  X-ray繞射儀(XRD)量測，所得圖譜即為第3圖之(1)。由其分析顯示此合成之鋰錳氧化物為一高度結晶體。

### 實施例4

將實施例3之方法，改用乙醇替代甲醇作為溶劑。取0.106莫耳之醋酸鋰與0.2莫耳之醋酸錳溶於100毫升乙醇中，另取0.169莫耳之檸檬酸溶於100毫升乙醇

## 五、發明說明 ( 9 )

中；將兩溶液混合後，會生成沉澱，經持續攪拌約 10 分鐘後進行過濾，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以 300℃ 煅燒 2 小時，然後持續加熱至 750℃ 熱處理 4 小時，最後再以每分鐘 1℃ 的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

將上述產物以 CuK $\alpha$  X-ray 繞射儀 (XRD) 量測，所得圖譜即為第 3 圖之 (2)。由其分析顯示此合成之鋰錳氧化物為一高度結晶體。

### 實施例 5

將實施例 3 之方法，改用丙醇替代甲醇作為溶劑。取 0.106 莫耳之醋酸鋰與 0.2 莫耳之醋酸錳溶於 200 毫升丙醇中，另取 0.169 莫耳之檸檬酸溶於 150 毫升丙醇中；將兩溶液混合後，會生成沉澱，經持續攪拌約 10 分鐘後進行過濾，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以 300℃ 煅燒 2 小時，然後持續加熱至 750℃ 熱處理 4 小時，最後再以每分鐘 1℃ 的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

將上述產物以 CuK $\alpha$  X-ray 繞射儀 (XRD) 量測，所得圖譜即為第 3 圖之 (3)。由其分析顯示此合成之鋰錳氧化物為一高度結晶體。

### 實施例 6

將實施例 3 之方法，改用正丁醇替代甲醇作為溶

先  
背面之注意事  
再填  
本  
各

## 五、發明說明 (10)

劑。取 0.106 莫耳之醋酸鋰與 0.2 莫耳之醋酸錳溶於 250 毫升正丁醇中，另取 0.169 莫耳之檸檬酸溶於 150 毫升正丁醇中；將兩溶液混合後，會生成沉澱，經持續攪拌約 10 分鐘後進行過濾，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以 300℃ 煅燒 2 小時，然後持續加熱至 750℃ 熱處理 4 小時，最後再以每分鐘 1℃ 的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

將上述產物以 CuK $\alpha$  X-ray 繞射儀 (XRD) 量測，所得圖譜即為第 3 圖之 (4)。由其分析顯示此合成之鋰錳氧化物為一高度結晶體。

### 實施例 7

將實施例 3 之方法，改用草酸替代檸檬酸。取 0.106 莫耳之醋酸鋰與 0.2 莫耳之醋酸錳溶於 100 毫升甲醇中，另取 0.506 莫耳之草酸溶於 150 毫升甲醇中；將兩溶液混合後，會生成沉澱，經持續攪拌約 10 分鐘後進行過濾，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以 300℃ 煅燒 2 小時，然後持續加熱至 750℃ 熱處理 4 小時，最後再以每分鐘 1℃ 的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

將上述產物以 CuK $\alpha$  X-ray 繞射儀 (XRD) 量測，所得圖譜即為第 3 圖之 (5)。由其分析顯示此合成之鋰錳氧化物有部分之 Mn<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 雜相生成，大部分為尖晶石結構之 LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub> 高度結晶體。

先  
背面之注意事  
再填  
本  
各

## 五、發明說明 ( 11 )

### 實施例 8

將實施例 3 之方法，改用草酸替代檸檬酸。取 0.150 莫耳之醋酸鋰與 0.2 莫耳之醋酸錳溶於 150 毫升甲醇中，另取 0.55 莫耳之草酸溶於 150 毫升甲醇中；將兩溶液混合後，會生成沉澱，經持續攪拌約 10 分鐘後進行過濾，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以 300℃ 煅燒 2 小時，然後持續加熱至 750℃ 熱處理 4 小時，最後再以每分鐘 1℃ 的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

將上述產物以 CuK $\alpha$  X-ray 繞射儀 (XRD) 量測，所得圖譜即為第 3 圖之 (6)。由其分析顯示此合成之鋰錳氧化物為一高度結晶體。

### 實施例 9

將實施例 3 之方法，改用酒石酸替代檸檬酸。取 0.106 莫耳之醋酸鋰與 0.2 莫耳之醋酸錳溶於 100 毫升甲醇中，另取 0.506 莫耳之酒石酸溶於 150 毫升甲醇中；將兩溶液混合後，會生成沉澱，經持續攪拌約 30 分鐘後進行過濾，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以 300℃ 煅燒 2 小時，然後持續加熱至 750℃ 熱處理 4 小時，最後再以每分鐘 1℃ 的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

## 五、發明說明 ( 12 )

將上述產物以  $\text{CuK}\alpha$  X-ray 繞射儀 (XRD) 量測，所得圖譜即為第3圖之(7)。由其分析顯示此合成之鋰錳氧化物有  $\text{Mn}_2\text{O}_3$  雜相生成，部分為尖晶石結構之  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  結晶體。

### 實施例 10

將實施例3之方法，改用草酸替代檸檬酸，以硝酸鋰替代醋酸鋰，以硝酸錳替代醋酸錳。取0.106莫耳之硝酸鋰與0.2莫耳之硝酸錳溶於100毫升甲醇中，另取0.253莫耳之草酸溶於150毫升甲醇中；將兩溶液混合後，會生成沉澱，經持續攪拌約10分鐘後進行過濾，所得之共沈物即為鋰錳檸檬酸鹽前驅物。接著將此共沈物置於高溫爐中，以  $300^\circ\text{C}$  煅燒2小時，然後持續加熱至  $750^\circ\text{C}$  熱處理4小時，最後再以每分鐘  $1^\circ\text{C}$  的速率緩慢地將產物冷卻至室溫。

將上述產物以  $\text{CuK}\alpha$  X-ray 繞射儀 (XRD) 量測，所得圖譜即為第3圖之(8)。由其分析顯示此合成之鋰錳氧化物有大部分  $\text{Mn}_2\text{O}_3$  雜相生成，部分為尖晶石結構之  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$  結晶體。

綜合上述實施例所說明，本方法亦適用於其他鹽類、螯合劑、溶劑等，唯因可進行反應之原料眾多，無法一一證明，僅就經濟性與方便性進行上述實施例說明。並針對鋰鹽與錳鹽個別與不同螯合劑進行錯合反

## 五、發明說明 (13)

應，均可產生沉澱，唯因螯合劑之錯合能力不同，因此會有部分組合需較長之反應時間。

在實施例7、9、10中生成之 $Mn_2O_3$ ，其生成之原因為共沉物中鋰與錳的比例小於1:2所致，可藉由起始劑比例上之調整而獲得改善，如實施例8中將鋰鹽的起始比例增加到與錳鹽比為1.5:2，則可獲得高度結晶性之間晶石結構的 $LiMn_2O_4$ 。本發明僅對鋰鹽或錳鹽在溶液中會與螯合劑進行錯合反應而生成沉澱，以此概念而設計。針對不同原料之組合反應，僅須在起始劑量比、反應時間等方面進行調整，所得之共沉物再經 $200^{\circ}C$ 以上之高溫煅燒後，再以 $500^{\circ}C$ 以上之高溫熱處理均可獲得結晶性良好之 $LiMn_2O_4$ 。

綜上所陳，本發明無論就目的、手段及功效，在在均顯示其迥異於習知技術之特徵，為「鋰離子二次電池正極材料之製作方法」之一大突破。惟應注意的是，上述諸多實施例僅係為了便於說明而舉例而已，本發明所主張之權利範圍自應以申請專利範圍所述為準，而非僅限於上述實施例。

四、中文發明摘要（發明之名稱：鋰離子二次電池正極材料之製作方法）

本發明為一種以有機酸膠體共沈法製備如下通式  
(I) 之二次電池正極材料之製造方法，



其中 Li 係為鋰，Mn 係為錳，M 係為鎂、鋁、鉻、鐵、鈷或鎳， $0 \leq x \leq 0.4$ ， $0 \leq y \leq 0.2$ ；首先取鋰鹽、錳鹽與 M 鹽使之與至少一種溶劑相混合，以形成一起始溶液，其中，鋰鹽中所含鋰離子之莫耳數：錳鹽中所含錳離子之莫耳數：M 鹽中所含 M 離子之莫耳數 $= (1+x):(2-y):y$ ；添加至少一螯合劑於該起始溶液中以形成一懸浮溶液，將該懸浮溶液過濾可得一共沈物，最後再將該共沈物進行煅燒及熱處理。

英文發明摘要（發明之名稱：

）

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄）

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍

1. 一種如下通式 (I) 之二次電池正極材料之製造方法，



其中 Li 係為鋰；Mn 係為錳；M 係為鎂、鋁、鉻、鐵、鈷或鎳； $0 \leq x \leq 0.4$ ， $0 \leq y \leq 0.2$ ；其包括如下步驟：

(A) 取鋰鹽、錳鹽與 M 鹽使之與至少一種溶劑相混合，以形成一起始溶液，

其中，鋰鹽中所含鋰離子之莫耳數：錳鹽中所含錳離子之莫耳數：M 鹽中所含 M 離子之莫耳數 =  $(1+x):(2-y):y$ ；

(B) 添加至少一螯合劑於該起始溶液中以形成一懸浮溶液；

(C) 過濾該懸浮溶液可得一共沈物；以及

(D) 將該共沈物進行煅燒及熱處理。

2. 如申請專利範圍第 1 項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該鋰鹽係指鋰之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋酸鹽。

3. 如申請專利範圍第 1 項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該錳鹽係指錳之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋酸鹽。

4. 如申請專利範圍第 1 項所述之二次電池正極材料之製造方法，其中該 M 鹽係指鎂、鋁、鉻、鐵、鈷或鎳之硝酸鹽、氯化物、氫氧化物、碳酸鹽、或醋酸鹽。