

【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4区分

【発行日】平成28年3月3日(2016.3.3)

【公表番号】特表2015-511268(P2015-511268A)

【公表日】平成27年4月16日(2015.4.16)

【年通号数】公開・登録公報2015-025

【出願番号】特願2014-551635(P2014-551635)

【国際特許分類】

B 2 2 F	1/00	(2006.01)
H 0 1 M	4/139	(2010.01)
H 0 1 M	4/1395	(2010.01)
C 2 2 C	24/00	(2006.01)
B 2 2 F	1/02	(2006.01)

【F I】

B 2 2 F	1/00	R
H 0 1 M	4/139	
H 0 1 M	4/1395	
C 2 2 C	24/00	
B 2 2 F	1/02	B
B 2 2 F	1/02	A

【手続補正書】

【提出日】平成28年1月12日(2016.1.12)

【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】

金属リチウムより成るコアを有し、かつ該コアがリチウムと合金化可能な元素周期系の第3主族又は/及び第4主族の1種以上の元素を含有する外側の不動態化層で取り囲まれていることを特徴とする、安定化された粒状リチウム金属。

【請求項2】

前記外側の層に含まれたリチウムと合金化可能な元素が、単体の形で又はリチウムとの合金として存在することを特徴とする、安定化された粒状リチウム金属。

【請求項3】

200 ppm未満のナトリウム含量を有することを特徴とする、請求項1又は2記載の安定化された粒状リチウム金属。

【請求項4】

100 ppm未満のナトリウム含量を有することを特徴とする、請求項1から3までのいずれか1項記載の安定化された粒状リチウム金属。

【請求項5】

50 ppm未満のナトリウム含量を有することを特徴とする、請求項1から4までのいずれか1項記載の安定化された粒状リチウム金属。

【請求項6】

合金化可能な元素として、B、Al、Ga、In、Tl、Si、Ge、Sn又はPbから選択された少なくとも1種の元素が存在することを特徴とする、請求項1から5までのいずれか1項記載の安定化された粒状リチウム金属。

## 【請求項 7】

最大 5000  $\mu\text{m}$ 、有利には最大 1000  $\mu\text{m}$ 、特に有利には最大 300  $\mu\text{m}$  の平均粒度を有することを特徴とする、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載の安定化された粒状リチウム金属。

## 【請求項 8】

約 200 ppm の含水量を有する N - メチル - 2 - ピロリドンとの、50 での、有利には 80 までの、少なくとも 15 時間の接触において目立った発熱作用を示さず、殊に“暴走現象”も示さないことを特徴とする、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項記載の安定化された粒状リチウム金属。

## 【請求項 9】

リチウム金属を、元素周期系の第 3 主族及び第 4 主族の元素を含有する被膜形成 - 前駆体と、50 から 300 の間、有利には 100 から 280 の間の範囲の温度で、特に有利には 180.5 のリチウム溶融温度を超えて、不活性有機溶媒中で接触させることを特徴とする、合金形成元素でコーティングされた安定化されたリチウム金属形状付与物の製造法。

## 【請求項 10】

被膜形成 - 前駆体として、一般式 I 若しくは II の 1 種以上の不動態化剤：

[ A R<sup>1</sup> R<sup>2</sup> R<sup>3</sup> R<sup>4</sup> ] L<sub>i</sub><sub>x</sub> ( I )、

又は R<sup>1</sup> R<sup>2</sup> R<sup>3</sup> A - O - A R<sup>4</sup> R<sup>5</sup> R<sup>6</sup> ( II )

ここで、

- R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>、R<sup>4</sup>、R<sup>5</sup> 及び R<sup>6</sup> = 互いに無関係に、アルキル ( C<sub>1</sub> ~ C<sub>12</sub> ) 基、アリール基、アルコキシ基、アリールオキシ基若しくはハロゲン ( F、Cl、Br 若しくは I ) ; 又は 2 つの基 R は、一緒になって 1,2 - ジオラート ( 例えば 1,2 - エタンジオラート ) 、1,2 - ジカルボキシラート若しくは 1,3 - ジカルボキシラート ( 例えば オキサラート若しくはマロナート ) 若しくは 2 - ヒドロキシカルボキシラートジアニオン ( 例えば ラクタート、グリコラート若しくは サリチラート ) を意味する ;

- R<sup>1</sup> 基 ~ R<sup>6</sup> 基は、更に別の官能基、例えばアルコキシ基を含有してよい ;

- A = ホウ素、アルミニウム、ガリウム、インジウム、タリウム、ケイ素、ゲルマニウム、スズ又は鉛 ;

- x = B、Al、Ga、In 又は Tl については、0 又は 1

- x = Si、Ge、Sn 又は Pb については、0 ;

- x = 0 かつ A = B、Al、Ga、In 又は Tl の場合、R<sup>4</sup> は存在しない、又は 1 種以上の元素 B、Al、Ga、In、Tl、Si、Ge、Sn 又は Pb を含有するポリマーを用いることを特徴とする、請求項 9 記載の方法。

## 【請求項 11】

リチウム金属と不動態化剤とのモル比が、100 : 0.01 ~ 100 : 5、有利には 100 : 0.05 ~ 100 : 1 であることを特徴とする、請求項 10 記載の方法。

## 【請求項 12】

不活性有機溶媒として、ヘキサン、ヘプタン、オクタン、デカン、ウンデカン、ドデカン、トルエン、エチルベンゼン及びクメンから成る群から選択された炭化水素を、純粋な形で又は市販の留分として混合物において用いることを特徴とする、請求項 9 から 11 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 13】

付加的なコーティングを、180.5 未満の温度で行うことの特徴とする、請求項 9 から 12 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 14】

非球状のリチウム金属形状付与物、例えばリチウム箔を、180.5 未満の温度にて、本発明による被膜形成 - 前駆体で不動態化することの特徴とする、請求項 9 から 13 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 15】

電気化学的に活性な材料、好ましくはリチウムバッテリー用のグラファイト負極、合金負極又は変換負極のプレリチウム化のために、本発明により不動態化されたリチウム金属形状付与物を用いる使用。

【請求項 1 6】

リチウムバッテリー用の金属負極を製造するために、本発明により不動態化されたリチウム金属形状付与物を用いる使用。