

【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29年6月15日(2017.6.15)

【公表番号】特表2016-507863(P2016-507863A)

【公表日】平成28年3月10日(2016.3.10)

【年通号数】公開・登録公報2016-015

【出願番号】特願2015-549351(P2015-549351)

【国際特許分類】

H 01M 4/58 (2010.01)

H 01M 4/36 (2006.01)

H 01M 10/0566 (2010.01)

H 01M 10/052 (2010.01)

C 01B 25/45 (2006.01)

【F I】

H 01M 4/58

H 01M 4/36 A

H 01M 10/0566

H 01M 10/052

C 01B 25/45 Z

【誤訳訂正書】

【提出日】平成29年4月27日(2017.4.27)

【誤訳訂正1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

実験式 $L_{1-a}M_{n-b}Fe_cD_dP_{0.4}$ を有する電気活性材料を含む微粒子カソード材料であって、式中、

aが、0.85～1.15の数であり、

bが、0.65～0.95であり、

cが、0.049～0.349であり、

dが、0.001～0.1であり、

$2.75(a+2b+2c+dV) = 3.10$ であり、式中、VがDの原子価であり、Dがマグネシウムとコバルトとの混合物であり、

更に、前記電気活性材料の少なくとも一部がオリビン型構造を有する、微粒子カソード材料。

【請求項2】

$(a+2b+2c+dV) = 3.00$ である、請求項1に記載のカソード材料。

【請求項3】

1) aが、0.95～1.10であり、bが、0.70～0.95であり、cが、0.049～0.349であり、dが、0.005～0.10であり、 $(a+2b+2c+dV)$ が、2.85～2.99または3.01～3.05である、請求項1または2に記載のカソード材料。

【請求項4】

1) aが、1.00～1.10であり、bが、0.70～0.95であり、cが、0.1～0.3であり、dが、0.005～0.10であり、 $(a+2b+2c+dV)$ が、

2.85 ~ 2.99 または 3.01 ~ 3.05 である、請求項 1 または 2 に記載のカソード材料。

【請求項 5】

1) a が、1.025 ~ 1.10 であり、b が、0.70 ~ 0.85 であり、c が、0.1 ~ 0.3 であり、d が、0.01 ~ 0.075 であり、(a + 2b + 2c + dV) が、2.85 ~ 2.99 または 3.01 ~ 3.05 である、請求項 1 または 2 に記載のカソード材料。

【請求項 6】

1) a が、1.025 ~ 1.075 であり、b が、0.70 ~ 0.85 であり、c が、0.15 ~ 0.25 であり、d が、0.02 ~ 0.06 であり、(a + 2b + 2c + dV) が、2.95 ~ 2.98 または 3.01 ~ 3.05 である、請求項 1 または 2 に記載のカソード材料。

【請求項 7】

(a + 2b + 2c + dV) が、2.85 ~ 2.99 である、請求項 4 または 5 に記載のカソード材料。

【請求項 8】

最大 30 重量 % のグラファイト、カーボンブラック、および / または他の伝導性カーボンとともに、請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の少なくとも 70 重量 % の微粒子カソード材料を含有する、ナノ複合材料。

【請求項 9】

請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載のカソード材料、または請求項 8 に記載のナノ複合材料を含む、電池カソード。

【請求項 10】

アノード、請求項 9 に記載のカソード、前記アノードとカソードとの間に配置される隔壁板、および少なくとも 1 つのリチウム塩を含有する電解質溶液を備える、リチウム電池。

【請求項 11】

オリビン型リチウムマンガン遷移金属リン酸塩カソード材料を作製するための方法であって、

a) 少なくとも 1 つのリチウム前駆体、少なくとも 1 つの鉄前駆体、少なくとも 1 つのマンガン前駆体、少なくとも 1 つのドーパント金属前駆体、および H_xPO_4 イオンの少なくとも 1 つの前駆体の混合物を形成することと、ここで、式中、x が、0、1、または 2 であり、前記前駆体が、

リチウムイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.85 ~ 1.15 であり、

マンガンイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.65 ~ 0.95 であり、

鉄イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.049 ~ 0.349 であり、

ドーパント金属イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.001 ~ 0.10 であり、

化合されたリチウム、マンガン、鉄、およびドーパント金属イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、(2.75 × モル H_xPO_4) [モル Li + (2 × モル Mn) + (2 × モル Fe) + (2 × モルドーパント金属)] (3.10 × モル H_xPO_4) であるような、量で存在し、

b) 前記混合物を粉碎することと、次いで

c) 前記粉碎された混合物を焼成して、前記オリビン型リチウムマンガン鉄リン酸塩カソード材料を形成することとを含み、

前記ドーパント金属がマグネシウムとコバルトとの混合物である、前記方法。

【請求項 12】

化合されたリチウム、マンガン、鉄、およびドーパント金属イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、[モル Li + (2 × モル Mn) + (2 × モル Fe) + (2 × モルドーパント金属)] (3.00 × モル H_xPO_4) であるような、請求項 11 に記載の方法。

【請求項 1 3】

リチウムイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.95～1.10であり、マンガンイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.70～0.95であり、鉄イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.049～0.349であり、ドーパント金属イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.005～0.10であり、[モルLi⁺ (2×モルMn) + (2×モルFe) + (2×モルドーパント金属)]が、(2.85～2.99×モル H_xPO_4)または(3.01～3.05×モル H_xPO_4)である、請求項11に記載の方法。

【請求項 1 4】

リチウムイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、1.00～1.10であり、マンガンイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.70～0.95であり、鉄イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.1～0.3であり、ドーパント金属イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.005～0.10であり、[モルLi⁺ (2×モルMn) + (2×モルFe) + (2×モルドーパント金属)]が、(2.85～2.99×モル H_xPO_4)または(3.01～3.05×モル H_xPO_4)である、請求項11に記載の方法。

【請求項 1 5】

リチウムイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、1.025～1.10であり、マンガンイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.70～0.85であり、鉄イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.1～0.3であり、ドーパント金属イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.01～0.075であり、[モルLi⁺ (2×モルMn) + (2×モルFe) + (2×モルドーパント金属)]が、(2.85～2.99×モル H_xPO_4)または(3.01～3.05×モル H_xPO_4)である、請求項11に記載の方法。

【請求項 1 6】

リチウムイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、1.025～1.075であり、マンガンイオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.75～0.85であり、鉄イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.15～0.25であり、ドーパント金属イオンと H_xPO_4 イオンとのモル比が、0.02～0.06であり、[モルLi⁺ (2×モルMn) + (2×モルFe) + (2×モルドーパント金属)]が、(2.95～2.98×モル H_xPO_4)または(3.01～3.05×モル H_xPO_4)である、請求項11に記載の方法。

【請求項 1 7】

[モルLi⁺ (2×モルMn) + (2×モルFe) + (2×モルドーパント金属)]が、(2.85～2.99×モル H_xPO_4)である、請求項14または15に記載の方法

【請求項 1 8】

最大30重量%のグラファイト、カーボンブラック、および/または他の伝導性カーボンとともに、請求項11～17のいずれかに従って生成される少なくとも70重量%のカソード材料を含有する、ナノ複合材料。

【請求項 1 9】

請求項11～17のいずれかに従って生成されるカソード材料、または請求項18に記載のナノ複合材料を含む、電池カソード。

【請求項 2 0】

アノード、請求項19に記載のカソード材料を含む電池カソード、前記アノードとカソードとの間に配置される隔離板、および少なくとも1つのリチウム塩を含有する電解質溶液を備える、リチウム電池。

【誤訳訂正2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0047

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0047】

実施例1～3および比較試料A～D

実施例1～3および比較試料A～Dを、国際公開第2009/144600号に記載されるように固体プロセスを用いて調製する。

【表1】

表1

名称	式	$a + 2b + 2c + dV$
比較試料A	$LiMn_{0.8}Fe_{0.2}PO_4$	3.0
比較試料B	$Li_{1.025}Mn_{0.8}Fe_{0.2}PO_4$	3.025
比較試料C	$Li_{1.1}Mn_{0.71}Fe_{0.24}PO_4$	3.0
比較試料D	$Li_{1.1}Mn_{0.76}Fe_{0.19}PO_4$	3.0
実施例1	$Li_{1.1}Mn_{0.8}Fe_{0.1}Mg_{0.05}PO_4$	3.0
実施例2	$Li_{1.1}Mn_{0.8}Fe_{0.08}Mg_{0.07}PO_4$	3.0
実施例3	$LiMn_{0.7}Fe_{0.2}Mg_{0.05}PO_4$	2.90

【誤訛訂正3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0057

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0057】

粉碎された試料を170で噴霧乾燥させて最大約20ミクロンの直径を有するミクロンサイズのボールに小さい粒子を凝集させる。噴霧乾燥された粒子は、約5%の水を含有する。噴霧乾燥された粒子を、100ppmより少ない酸素を含有する大気下で焼成する。粒子を室温から400に3時間以上加熱し、1時間400に保つ。次いで、温度を、2時間以上650に上昇させ、3時間650に保つ。焼成プロセスを通して、CO、CO₂、H₂O、酢酸、およびタルを放出する。次いで、粒子を60を下回るまで冷却し、44ミクロンの篩にかけて篩う。

【表2】

表2

名称	式	$a + 2b + 2c + dV$
実施例4	$Li_{1.05}Mn_{0.75}Fe_{0.1}Mg_{0.07}Co_{0.01}PO_4$	2.87
実施例5	$Li_{1.05}Mn_{0.75}Fe_{0.24}Co_{0.01}PO_4$	3.05
実施例6	$Li_{1.05}Mn_{0.7}Fe_{0.23}Mg_{0.03}Co_{0.01}PO_4$	2.99
実施例7	$Li_{1.05}Mn_{0.75}Fe_{0.15}Mg_{0.04}Co_{0.01}PO_4$	2.95
実施例8	$Li_{1.05}Mn_{0.71}Fe_{0.19}Mg_{0.04}Co_{0.01}PO_4$	2.95
比較試料E	$Li_{1.05}Mn_{0.71}Fe_{0.24}PO_4$	2.95

【誤訛訂正4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0062

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0062】

実施例9および10ならびに比較試料EおよびF

以下の表5に示される式を有するオリビン型LMP粒子を、実施例1～3に説明され

たプロセスを用いて作製する。

【表5】

表5

名称	式	$a + 2b + 2c + dV$
実施例9	$Li_{1.05}Mn_{0.75}Fe_{0.2}Mg_{0.02}Co_{0.01}PO_4$	3.01
実施例10	$Li_{1.05}Mn_{0.75}Fe_{0.15}Mg_{0.05}Co_{0.01}PO_4$	2.97
比較試料E	$Li_{1.05}Mn_{0.71}Fe_{0.24}PO_4$	2.95
比較試料F	$Li_{1.0}Mn_{0.75}Fe_{0.25}PO_4$	3.00

【誤訛訂正5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0065

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0065】

表7のデータからわかるように、試験された電極材料の4つ全てが、低(C/10)放電速度で類似の平均電圧および放電エネルギーを提供する。しかしながら、高(5C)放電速度では、平均動作電圧は、比較例に関してよりも実施例9および10に関してのほうが著しくより高い。

なお、本発明には以下の態様が含まれることを付記する。

[1]

実験式 $Li_aMn_bFe_cD_dPO_4$ を有する電気活性材料を含む微粒子カソード材料であって、式中、

aが、0.85～1.15の数であり、

bが、0.65～0.95であり、

cが、0.049～0.349であり、

dが、0.001～0.1であり、

$2.75(a + 2b + 2c + dV) = 3.10$ であり、式中、Vが、Dの原子価であり、Dが、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、コバルト、チタン、ジルコニア、モリブデン、バナジウム、ニオブ、ニッケル、スカンジウム、クロム、銅、亜鉛、ベリリウム、ランタン、およびアルミニウムのうちの1つ以上から選択される金属イオンであり、更に、前記電気活性材料の少なくとも一部がオリビン型構造を有する、微粒子カソード材料。

[2]

Dが、マグネシウム、コバルト、またはマグネシウムとコバルトとの混合物である、[1]に記載のカソード材料。

[3]

$(a + 2b + 2c + dV) = 3.00$ である、[1]または[2]に記載のカソード材料。

[4]

1) aが、0.95～1.10であり、bが、0.70～0.95であり、cが、0.049～0.349であり、dが、0.005～0.10であり、 $(a + 2b + 2c + dV)$ が、2.85～2.99または3.01～3.05である、[1]～[3]のいずれかに記載のカソード材料。

[5]

1) aが、1.00～1.10であり、bが、0.70～0.95であり、cが、0.1～0.3であり、dが、0.005～0.10であり、 $(a + 2b + 2c + dV)$ が、2.85～2.99または3.01～3.05である、[1]～[3]のいずれかに記載のカソード材料。

[6]

1) a が、 1 . 0 2 5 ~ 1 . 1 0 であり、 b が、 0 . 7 0 ~ 0 . 8 5 であり、 c が、 0 . 1 ~ 0 . 3 であり、 d が、 0 . 0 1 ~ 0 . 0 7 5 であり、 (a + 2 b + 2 c + d V) が、 2 . 8 5 ~ 2 . 9 9 または 3 . 0 1 ~ 3 . 0 5 である、 [1] ~ [3] のいずれかに記載のカソード材料。

[7]

1) a が、 1 . 0 2 5 ~ 1 . 0 7 5 であり、 b が、 0 . 7 0 ~ 0 . 8 5 であり、 c が、 0 . 1 5 ~ 0 . 2 5 であり、 d が、 0 . 0 2 ~ 0 . 0 6 であり、 (a + 2 b + 2 c + d V) が、 2 . 9 5 ~ 2 . 9 8 または 3 . 0 1 ~ 3 . 0 5 である、 [1] ~ [3] のいずれかに記載のカソード材料。

[8]

最大 30 重量 % のグラファイト、カーボンブラック、および / または他の伝導性カーボンとともに、[1] ~ [7] のいずれかに記載の少なくとも 70 重量 % の微粒子カソード材料を含有する、ナノ複合材料。

[9]

[1] ~ [7] のいずれかに記載のカソード材料、または [8] に記載のナノ複合材料を含む、電池カソード。

[10]

アノード、[9] に記載のカソード、前記アノードとカソードとの間に配置される隔壁板、および少なくとも 1 つのリチウム塩を含有する電解質溶液を備える、リチウム電池。

[11]

オリビン型リチウムマンガン遷移金属リン酸塩カソード材料を作製するための方法であって、

a) 少なくとも 1 つのリチウム前駆体、少なくとも 1 つの鉄前駆体、少なくとも 1 つのマンガン前駆体、少なくとも 1 つのドーパント金属前駆体、および $H_x PO_4$ イオンの少なくとも 1 つの前駆体の混合物を形成することであって、式中、x が、0、1、または 2 であり、前記前駆体が、

リチウムイオンと $H_x PO_4$ イオンとのモル比が、0 . 8 5 ~ 1 . 1 5 であり、

マンガンイオンと $H_x PO_4$ イオンとのモル比が、0 . 6 5 ~ 0 . 9 5 であり、

鉄イオンと $H_x PO_4$ イオンとのモル比が、0 . 0 4 9 ~ 0 . 3 4 9 であり、

ドーパント金属イオンと $H_x PO_4$ イオンとのモル比が、0 . 0 0 1 ~ 0 . 1 0 であり、

化合されたリチウム、マンガン、鉄、およびドーパント金属イオンと $H_x PO_4$ イオンとのモル比が、(2 . 7 5 × モル $H_x PO_4$) [モル Li + (2 × モル Mn) + (2 × モル Fe) + (2 × モルドーパント金属)] (3 . 1 0 × モル $H_x PO_4$) であるような、量で存在する、形成することと、

b) 前記混合物を粉碎することと、次いで

c) 前記粉碎された混合物を焼成して、前記オリビン型リチウムマンガン鉄リン酸塩カソード材料を形成することと、を含む、方法。

[12]

前記ドーパント金属が、マグネシウム、コバルト、またはマグネシウムとコバルトとの混合物である、[11] に記載の方法。

[13]

化合されたリチウム、マンガン、鉄、およびドーパント金属イオンと $H_x PO_4$ イオンとのモル比が、[モル Li + (2 × モル Mn) + (2 × モル Fe) + (2 × モルドーパント金属)] (3 . 0 0 × モル $H_x PO_4$) であるような、[11] または [12] に記載の方法。

[14]

リチウムイオンと $H_x PO_4$ イオンとのモル比が、0 . 9 5 ~ 1 . 1 0 であり、マンガニイオンと $H_x PO_4$ イオンとのモル比が、0 . 7 0 ~ 0 . 9 5 であり、鉄イオンと H_x

PO_4 イオンとのモル比が、0.049～0.349であり、ドーパント金属イオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.005～0.10であり、[モルLi+(2×モルMn)+(2×モルFe)+(2×モルドーパント金属)]が、(2.85～2.99×モル $\text{H}_x \text{PO}_4$) または (3.01～3.05×モル $\text{H}_x \text{PO}_4$) である、[11] または [12] に記載の方法。

[15]

リチウムイオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、1.00～1.10であり、マンガンイオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.70～0.95であり、鉄イオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.1～0.3であり、ドーパント金属イオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.005～0.10であり、[モルLi+(2×モルMn)+(2×モルFe)+(2×モルドーパント金属)]が、(2.85～2.99×モル $\text{H}_x \text{PO}_4$) または (3.01～3.05×モル $\text{H}_x \text{PO}_4$) である、[11] または [12] に記載の方法。

[16]

リチウムイオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、1.025～1.10であり、マンガンイオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.70～0.85であり、鉄イオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.1～0.3であり、ドーパント金属イオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.01～0.075であり、[モルLi+(2×モルMn)+(2×モルFe)+(2×モルドーパント金属)]が、(2.85～2.99×モル $\text{H}_x \text{PO}_4$) または (3.01～3.05×モル $\text{H}_x \text{PO}_4$) である、[11] または [12] に記載の方法。

[17]

リチウムイオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、1.025～1.075であり、マンガンイオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.75～0.85であり、鉄イオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.15～0.25であり、ドーパント金属イオンと $\text{H}_x \text{PO}_4$ イオンとのモル比が、0.02～0.06であり、[モルLi+(2×モルMn)+(2×モルFe)+(2×モルドーパント金属)]が、(2.95～2.98×モル $\text{H}_x \text{PO}_4$) または (3.01～3.05×モル $\text{H}_x \text{PO}_4$) である、[11] または [12] に記載の方法。

[18]

最大30重量%のグラファイト、カーボンブラック、および/または他の伝導性カーボンとともに、[11]～[17]のいずれかに従って生成される少なくとも70重量%のカソード材料を含有する、ナノ複合材料。

[19]

[11]～[17]のいずれかに従って生成されるカソード材料、または[18]に記載のナノ複合材料を含む、電池カソード。

[20]

アノード、[19]に記載のカソード材料を含む電池カソード、前記アノードとカソードとの間に配置される隔離板、および少なくとも1つのリチウム塩を含有する電解質溶液を備える、リチウム電池。

【誤訳訂正6】

【訂正対象書類名】図面

【訂正対象項目名】図1

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【図1】

