



(10) **DE 20 2017 007 716 U1** 2025.02.27

(12)

Gebrauchsmusterschrift

(21) Aktenzeichen: **20 2017 007 716.7**

(51) Int Cl.: **H01M 4/134 (2010.01)**

(22) Anmelddetag: **14.06.2017**

H01M 4/62 (2006.01)

(67) aus Patentanmeldung: **EP 22 20 5898.4**

(47) Eintragungstag: **22.01.2025**

(45) Bekanntmachungstag im Patentblatt: **27.02.2025**

(30) Unionspriorität:

1610353.3	14.06.2016	GB
1610468.9	15.06.2016	GB

(74) Name und Wohnsitz des Vertreters:

**Dilg, Haesler, Schindelmann
Patentanwaltsgeellschaft mbH, 80636 München,
DE**

(73) Name und Wohnsitz des Inhabers:

Nexeon Limited, Abingdon, Oxfordshire, GB

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen.

(54) Bezeichnung: **Elektroden für Metall-Ionen-Batterien**

(57) Hauptanspruch: Elektrode für eine Metallionenbatterie, wobei die Elektrode eine aktive Schicht umfasst, die in elektrischem Kontakt mit einem Stromabnehmer steht, wobei die aktive Schicht Folgendes umfasst:

(i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x , wobei $0 < x \leq 1,5$, Germanium, Zinn, Aluminium und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 μm und eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen und wobei die porösen Partikel eine Kohlenstoffmatrix umfassen, in der elektroaktives Material enthaltende Primärpartikel dispergiert sind; und

(ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus einem oder mehreren von Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 μm ; wobei die aktive Schicht mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii) umfasst und wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt; wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 50 Vol.-% der Partikelpopulation durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert, bestimmt werden.

Beschreibung

[0001] Diese Erfindung betrifft im Allgemeinen Elektrodenzusammensetzungen für Metallionenbatterien und insbesondere hybride Elektrodenzusammensetzungen, die Kohlenstoffpartikel und mindestens ein weiteres partikuläres elektroaktives Material umfassen. Ebenfalls bereitgestellt sind Elektrodenzusammensetzungen umfassende Elektroden, die Elektroden umfassende Metallionenbatterien und Verfahren zur Herstellung der Elektroden.

[0002] Wiederaufladbare Metallionenbatterien werden häufig in tragbaren elektronischen Vorrichtungen wie Mobiltelefonen und Laptops verwendet und finden zunehmend Anwendung in elektrischen oder hybriden Fahrzeugen. Wiederaufladbare Metallionenbatterien umfassen im Allgemeinen eine Anodenschicht, eine Kathodenschicht, einen Elektrolyten zum Transport von Metallionen zwischen der Anoden- und Kathodenschicht und einen elektrisch isolierenden porösen Separator, der zwischen der Anode und der Kathode angeordnet ist. Die Kathode umfasst typischerweise einen metallischen Stromabnehmer, der mit einer Schicht aus einem Metallionen enthaltenden Verbundwerkstoff auf Metalloxidbasis bereitgestellt ist, und die Anode umfasst typischerweise einen metallischen Stromabnehmer, der mit einer Schicht aus einem elektroaktiven Material bereitgestellt ist, das in dieser Schrift als ein Material definiert ist, das in der Lage ist, während des Aufladens und Entladens einer Batterie Metallionen einzubringen und freizusetzen.

[0003] Zur Vermeidung von Zweifeln werden die Begriffe „Kathode“ und „Anode“ in dieser Schrift in dem Sinne verwendet, dass die Batterie derart über eine Last platziert wird, dass die Kathode die positive Elektrode ist und die Anode die negative Elektrode ist. Wenn eine Metallionenbatterie aufgeladen wird, werden Metallionen von der metallionenhaltigen Kathodenschicht mittels des Elektrolyten zur Anode transportiert und in das Anodenmaterial eingebracht. Der Begriff „Batterie“ wird in dieser Schrift sowohl für eine Vorrichtung, die eine einzige Anode und eine einzige Kathode enthält, als auch für Vorrichtungen, die eine Vielzahl von Anoden und/oder eine Vielzahl von Kathoden enthalten, verwendet.

[0004] Es besteht Interesse an der Verbesserung der gravimetrischen und/oder volumetrischen Kapazitäten wiederaufladbarer Metallionenbatterien. Die Verwendung von Lithiumionenbatterien hat im Vergleich zu anderen Batterietechnologien bereits zu einer wesentlichen Verbesserung geführt, es verbleibt aber Spielraum zur weiteren Entwicklung. Bis-her waren kommerzielle Metallionenbatterien beschränkt auf die Verwendung von Grafit als aktives Anodenmaterial. Wenn eine Grafitanode aufgeladen wird, interkaliert Lithium zwischen den Grafitschich-

ten, um ein Material mit der empirischen Formel Li_xC_6 zu bilden (wobei x größer als 0 und kleiner als oder gleich 1 ist). Folglich weist Grafit in einer Lithiumionenbatterie eine maximale theoretische Kapazität von 372 mAh/g auf, wobei die praktische Kapazität etwas geringer ist (ca. 320 bis 360 mAh/g). Andere Materialien wie Silicium, Zinn und Germanium sind in der Lage, Lithium mit einer signifikant höheren Kapazität als Grafit zu interkalieren, müssen aber bisher aufgrund von Schwierigkeiten, über zahlreiche Auflade-/Entladezyklen hinweg eine ausreichende Kapazität beizubehalten, noch breite kommerzielle Nutzung finden.

[0005] Insbesondere Silicium zieht wegen seiner sehr hohen Kapazität für Lithium als eine potenzielle Alternative zu Grafit für die Fertigung wiederaufladbarer Metallionenbatterien mit hohen gravimetrischen und volumetrischen Kapazitäten zunehmend Aufmerksamkeit auf sich (siehe beispielsweise „Insertion Electrode Materials for Rechargeable Lithium Batteries“, Winter, M. et al. in Adv. Mater. 1998, 10, Nr. 10). Bei Raumtemperatur weist Silicium eine theoretische Kapazität in einer Lithiumionenbatterie von etwa 3.600 mAh/g (bezogen auf $\text{Li}_{15}\text{Si}_4$) auf. Jedoch wird dessen Verwendung als ein elektroaktives Material durch große volumetrische Veränderungen beim Aufladen und Entladen verkompliziert. Die Einbringung von Lithium in Siliciummasse (oder das Legieren von Silicium) führt zu einer großen Steigerung des Volumens des Siliciummaterials, bis zu 400 % seines ursprünglichen Volumens, wenn Silicium bis zu seiner maximalen Kapazität lithiiert ist, und wiederholte Auflade-Entlade-Zyklen verursachen signifikante mechanische Belastungen in dem Siliciummaterial, was in Brechen und Delamination des Siliciumanodenmaterials resultiert. Ein Verlust des elektrischen Kontakts zwischen dem Anodenmaterial und dem Stromabnehmer resultiert zu einem signifikanten Kapazitätsverlust in anschließenden Auflade-Entlade-Zyklen.

[0006] Die Verwendung von Germanium als elektroaktives Material ist mit ähnlichen Problemen assoziiert. Germanium hat in einer Lithiumionenbatterie eine theoretische Kapazität von maximal 1625 mAh/g. Die Einbringung von Lithium in die Germaniummasse führt jedoch zu einer Volumenänderung von bis zu 370 %, wenn Germanium auf seine maximale Kapazität lithiiert wird. Die mechanische Beanspruchung des Germaniummaterials führt ebenso wie bei Silicium zu Bruch- und Delaminationerscheinungen des Anodenmaterials und einem Kapazitätsverlust.

[0007] Zinn und Aluminium sind weitere Beispiele für elektroaktive Materialien, die in der Lage sind, Metallionen mit wesentlich höherer volumetrischer und gravimetrischer Kapazität als Grafit zu interkalieren, die aber auch mit Kapazitätsverlusten durch

Expansion und Kontraktion des elektroaktiven Materials über mehrere Auflade- und Entladezyklen assoziiert sind.

[0008] Es wurde eine Anzahl von Ansätzen vorgeschlagen, um die Probleme zu überwinden, die mit der Volumenänderung assoziiert sind, die beim Aufladen siliciumhaltiger Anoden beobachtet wird. Diese betreffen im Allgemeinen Siliciumstrukturen, die volumetrische Veränderungen besser vertragen als Siliciummasse. Beispielsweise haben Ohara et al. (Journal of Power Sources 136 (2004) 303-306) die Verdampfung von Silicium als einen dünnen Film auf einen Stromabnehmer aus Nickelfolie und die Verwendung dieser Struktur als die Anode einer Lithiumionenbatterie beschrieben. Obwohl dieser Ansatz eine gute Kapazitätserhaltung ergibt, ergeben die Dünnschichtstrukturen keine brauchbaren Mengen an Kapazität pro Einheitsfläche und jegliche Verbesserung wird eliminiert, wenn die Filmdicke erhöht wird. WO 2007/083155 offenbart, dass eine verbesserte Kapazitätserhaltung durch die Verwendung von Siliciumpartikeln mit einem hohen Seitenverhältnis, d. h. dem Verhältnis der größten Abmessung zu der kleinsten Abmessung des Partikels, erlangt werden kann. Es wird angenommen, dass das hohe Seitenverhältnis, das bis zu 100:1 oder mehr betragen kann, dabei hilft, die großen Volumenänderungen während des Aufladens und Entladens aufzunehmen, ohne die physikalische Integrität der Partikel zu beeinträchtigen. Andere Ansätze betreffen die Verwendung von Siliciumstrukturen im Submikrometermaßstab, die während der Expansion, die beim Interkalieren von Lithium in Silicium auftritt, nicht so wahrscheinlich brechen. Beispielsweise offenbaren US 6,334,939 und US 6,514,395 Nanostrukturen auf Silicumbasis für die Verwendung als Anodenmaterialien in Lithiumionen-Sekundärbatterien. Derartige Nanostrukturen beinhalten käfigartige sphärische Partikel und Stäbe oder Drähte, die Durchmesser im Bereich von 1 bis 50 nm und Längen im Bereich von 500 nm bis 10 µm aufweisen. Die Siliciumstrukturen können auch derart angeordnet sein, dass sie einen Hohlraum zum Bereitstellen einer Pufferzone für die Expansion beinhalten. Beispielsweise offenbart US 8,597,831 eine Elektrode, die sich zum Bereitstellen von Schnittpunkten kreuzende längliche Siliciumstrukturen und eine poröse Struktur umfassen, und WO 2012/175998 offenbart Partikel, die eine Vielzahl von siliciumhaltigen Säulen umfassen, die sich von einem Partikelkern erstrecken, der beispielsweise durch chemisches Ätzen oder durch einen Sputterprozess gebildet sein kann.

[0009] Poröse Siliciumpartikel wurden auch für die Verwendung in Lithiumionenbatterien untersucht. Poröse Siliciumpartikel sind attraktive Kandidaten zur Verwendung in Metallionenbatterien, da die Kosten für die Herstellung dieser Partikel allgemein geringer sind als die Kosten für die Fertigung alter-

nativer Siliciumstrukturen wie Siliciumfasern, -bänder oder -säulenpartikel. Beispielsweise offenbart US 2009/0186267 ein Anodenmaterial für eine Lithiumionenbatterie, wobei das Anodenmaterial poröse Siliciumpartikel umfasst, die in einer leitfähigen Matrix dispergiert sind. Die porösen Siliciumpartikel weisen einen Durchmesser im Bereich von 1 bis 10 µm, Porendurchmesser im Bereich von 1 bis 100 nm, eine BET-Oberfläche im Bereich von 140 bis 250 m²/g und Kristallitgrößen im Bereich von 1 bis 20 nm auf. Die porösen Siliciumpartikel werden mit einem leitfähigen Material, wie Industriekohle, und einem Bindemittel, wie PVDF, zum Bilden eines Elektrodenmaterials gemischt, das auf einen Stromabnehmer zum Bereitstellen einer Elektrode aufgebracht werden kann.

[0010] Trotz der bisherigen Anstrengungen muss die Lebensdauerleistung von elektroaktiven Siliciummaterialien signifikant verbessert werden, bevor Elektroden, die hohe Siliciumbeladungen enthalten, als kommerziell nutzbar betrachtet werden können. Während es somit ein langfristiges Ziel bleibt, Batterien zu kommerzialisieren, bei denen das elektroaktive Anodenmaterial überwiegend oder vollständig Silicium ist, ist ein unmittelbares Ziel der Batteriehersteller, Wege zu identifizieren, die Kapazität von Graphitanoden durch Verwenden kleiner Siliciummengen zu ergänzen. Ein aktueller Fokus liegt daher auf Erhalten inkrementeller Verbesserungen gegenüber der bestehenden Metallionenbatterie-Technologie durch die Verwendung von „hybriden“ Elektroden, anstatt eines vollständigen Übergangs von Graphitanoden zu Siliciumanoden.

[0011] Die Entwicklung von hybriden Elektroden hat ihre eigenen Herausforderungen. Jedes zusätzliche elektroaktive Material muss in einer Form bereitgestellt werden, die mit den herkömmlich in Metallionenbatterien verwendeten partikulären Kohlenstoffformen kompatibel ist. Beispielsweise muss es möglich sein, das zusätzliche elektroaktive Material in einer Matrix aus Kohlenstoffpartikeln zu dispergieren, und die Partikel des zusätzlichen elektroaktiven Materials müssen eine ausreichende strukturelle Integrität aufweisen, um dem Compoundieren mit Kohlenstoffpartikeln und der anschließenden Bildung einer Elektrodenschicht, beispielsweise über Schritte wie Mischen einer Aufschlämmung, Abscheidung, Komprimieren, Trocknen und Kalandrieren, standzuhalten. Unterschiede in den Metallisierungseigenschaften von Grafit und anderen elektroaktiven Materialien müssen bei der Entwicklung von hybriden Anoden auch berücksichtigt werden. Bei der Lithiierung einer graffithaltigen hybriden Anode, bei der Grafit mindestens 50 Gew.-% des elektroaktiven Materials ausmacht, muss ein siliciumhaltiges elektroaktives Material auf oder beinahe auf seine maximale Kapazität lithiiert werden, um die Kapazitätsvorteile des gesamten elektroaktiven Materials zu

erhalten. Während das Siliciummaterial bei einer nicht hybriden Siliciumelektrode während der Aufladung und Entladung im Allgemeinen auf ca. 25 bis 60 % seiner maximalen gravimetrischen Kapazität begrenzt werden kann, um übermäßige mechanische Belastungen (durch die Expansion und Kontraktion des aktiven Materials) des Siliciummaterials selbst sowie anderer Elektroden- und Zellkomponenten zu vermeiden und auch um eine optimale volumetrische Gesamtkapazität bei voller Aufladung der Zelle aufrechtzuerhalten, steht diese Option bei hybriden Elektroden nicht zur Verfügung. Folglich muss das elektroaktive Material in der Lage sein, bei wiederholten Auflade- und Entladezyklen sehr hohen mechanischen Belastungen standzuhalten. Das elektroaktive Material muss nicht nur hohen Belastungen standhalten, sondern auch ausreichend robust sein, sodass es während Prozessen zur Elektrodenfertigung, die typischerweise einen oder mehrere Kalandrierschritte einschließen, nicht beschädigt oder abgebaut wird.

[0012] US 7,479,351 offenbart poröse siliciumhaltige Partikel, die mikrokristallines Silicium enthalten und einen Partikeldurchmesser im Bereich von 0,2 bis 50 µm aufweisen. Die Partikel werden durch Legieren von Silicium mit einem Element X erhalten, ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Al, B, P, Ge, Sn, Pb, Ni, Co, Mn, Mo, Cr, V, Cu, Fe, W, Ti, Zn, Alkalimetallen, Erdalkalimetallen und Kombinationen davon, gefolgt vom entfernen des Elements X durch eine chemische Behandlung. US 7,479,351 offenbart, dass die porösen siliciumhaltigen Partikel in Kombination mit Grafit zum Bilden einer Verbundelektrode verwendet werden können. Während die Beispiele von US 7,479,351 jedoch zeigen, dass eine verbesserte Leistung im Vergleich zu nicht porösen Siliciumformen erhalten wird, ist die Verwendung von Grafit nur in untergeordneten Mengen als leitfähiger Zusatzstoff offenbart und die Beispiele offenbaren nur die Lithiierung der Siliciumkomponente der Anode.

[0013] US 8,526,166 offenbart einen Lithiumionenkondensator, der ein hybrides aktives Anodenmaterial beinhaltet, das zwei Arten von aktiven Materialpartikeln umfasst. Die ersten aktiven Materialpartikel werden aus Aktivkohlepertikeln, wie Grafitpartikeln, ausgewählt und die zweiten aktiven Materialpartikel beinhalten ein Siliciumoxid und weisen eine Partikelgröße von 10 bis 100 nm auf. Gemäß US 8,526,166 sorgen die Siliciumoxidpartikel im Nanomaßstab für eine größere Steigerung der theoretischen Kapazität und sind toleranter gegenüber Volumenänderungen beim Aufladen und Entladen im Vergleich zu Partikeln im Mikromamaßstab. Für Anwendungen im kommerziellen Maßstab sind Nanopartikel jedoch nicht besonders geeignet, da sie schwierig herzustellen und zu handhaben sind. Beispielsweise neigen Partikel im Nanomaßstab zur Bildung von Agglomeraten,

was es schwierig macht, eine brauchbare Dispersion der Partikel in einer Anodenmaterialmatrix zu erlangen. Zusätzlich resultiert die Bildung von Agglomeraten aus Nanopartikeln in einem inakzeptablen Kapazitätsverlust beim wiederholten Durchlaufen von Auflade-Entlade-Zyklen. US 2004/0214085 offenbart eine wiederaufladbare Lithiumbatterie, bei der das negative aktive Anodenmaterial ein Aggregat aus porösen Siliciumpartikeln beinhaltet, wobei die porösen Partikel mit einer Vielzahl von Hohlräumen gebildet sind, die einen durchschnittlichen Durchmesser zwischen 1 nm und 10 µm aufweisen, und wobei das Aggregat eine mittlere Partikelgröße zwischen 1 µm und 100 µm aufweist. Die Beispiele von US 2004/0214085 beziehen sich auf Grafit, jedoch nur in untergeordneten Mengen als leitfähiges Material. Die Verwendung von Grafit als aktives Anodenmaterial ist nicht offenbart.

[0014] US 2006/0251561 offenbart Silicium-„Nanoschwamm“-Partikel, die durch chemisches Ätzen (Stain Etching) eines metallurgischen Siliciumpulvers, das eine anfängliche Partikelgröße im Bereich von etwa 1 µm bis etwa 4 µm aufweist, unter Verwendung einer Lösung von HF und HNO₃ hergestellt werden. Die resultierenden Nanoschwammpartikel sollen nanokristalline Bereiche mit zwischen den nanokristallinen Bereichen angeordneten Poren umfassen, die einen durchschnittlichen Durchmesser von 2,0 nm bis 8,0 nm aufweisen.

[0015] Es besteht weiterhin ein Bedarf auf diesem Gebiet, Grafit und mindestens ein zusätzliches elektroaktives Material enthaltende hybride Elektroden zu identifizieren, bei denen die Eigenschaften des Grafits und des zusätzlichen elektroaktiven Materials zum Bereitstellen einer optimalen Kompatibilität zwischen diesen Komponenten und damit einer optimalen Zelleistung gesteuert werden. Insbesondere besteht ein Bedarf, Grafit und mindestens ein zusätzliches elektroaktives Material umfassende Elektroden zu identifizieren, bei denen die Struktur des zusätzlichen elektroaktiven Materials derart gesteuert wird, dass das elektroaktive Material bei minimaler nach außen gerichteter Expansion und ohne Bruch wiederholt auf dessen maximale Kapazität lithiiert werden kann, und gleichzeitig auch eine Elektrodenfertigung mit herkömmlichen Prozessen ohne Beschädigung des elektroaktiven Materials ermöglicht wird.

[0016] In einem ersten Aspekt stellt die vorliegende Erfindung eine Elektrode für eine Metallionenbatterie bereit, wobei die Elektrode eine aktive Schicht umfasst, die in elektrischem Kontakt mit einem Stromabnehmer steht, wobei die aktive Schicht Folgendes umfasst:

- (i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x,

wobei $0 < x \leq 1,5$, Germanium, Zinn, Aluminium und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 μm und eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen; und

(ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus einem oder mehreren von Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 μm ;

wobei die aktive Schicht mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii) umfasst und wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt.

[0017] Es wurde festgestellt, dass die erfindungsgemäßen hybriden Elektroden besonders vorteilhafte Eigenschaften zur Verwendung in Metallionenbatterien aufweisen. Durch Steuern des Größenverhältnisses der porösen Partikel (i) und der Kohlenstoffpartikel (ii) ordnen sich die porösen Partikel (i) vorteilhafterweise in den Hohlräumen zwischen den Kohlenstoffpartikeln (ii) an. Die Erfindung stellt somit eine Erhöhung der Kapazität der aktiven Schicht verglichen mit einer aktiven Schicht bereit, die nur herkömmliche Kohlenstoffpartikel umfasst, wobei gleichzeitig eine etwaige Volumenvergrößerung der aktiven Schicht minimiert wird. Zusätzlich wird die Porosität der porösen Partikel (i) innerhalb eines Bereichs gesteuert, der es gestattet, mindestens einen Teil der Expansion des elektroaktiven Materials während der Einbringung von Metallionen durch Hohlräume oder Zwischenräume innerhalb der Partikelstruktur aufzunehmen, wodurch eine übermäßige nach außen gerichtete Expansion der porösen Partikel (i) vermieden wird, die anderenfalls zu einer Deformation und Delamination der aktiven Schicht der Elektrode und/oder zu einem Bruch der porösen Partikel führen könnte. Beispielsweise beträgt die nach außen gerichtete Volumenexpansion der in dieser Schrift definierten porösen Partikel (i) bei Volllithierung typischerweise weniger als etwa 20 % der Expansion, die beim Lithieren eines festen Partikels gleichen Volumens auf seine volle Kapazität beobachtet wird. Gleichzeitig ist die Porosität der porösen Partikel (i) nicht so hoch, dass die volumetrische Kapazität der porösen Partikel nützliche Grenzen unterschreitet. Weiterhin wurde festgestellt, dass durch Beibehalten der Porosität der porösen Partikel (i) innerhalb der in dieser Schrift aufgeführten Bereiche die porösen Partikel ausreichend robust sind, um Fertigung und Einarbeitung in die aktive Schicht einer Elektrode ohne Verlust an struktureller Integrität zu überstehen, insbesondere wenn Elektrodenbeschichten zum Produzieren einer dichten gleichförmigen Schicht kalandriert werden, wie dies im Stand der Technik üblich ist. Insbesondere hat sich gezeigt, dass die aktive Schicht einer Elektrode der

erfindungsgemäßen Elektroden stärker kalandriert werden kann als Elektrodenschichten, die elektroaktive Partikel höherer Porosität umfassen, und dass folglich die in der aktiven Schicht benötigte Bindemittelmenge reduziert ist. Die Kalandrierbarkeit fördert die Anordnung der kleineren porösen Partikel an der bevorzugten Stelle, nämlich in den Zwischenräumen zwischen benachbarten Kohlenstoff(Grafit)-Partikeln. Ein Kalandrieren ist auch wünschenswert, um eine gleichmäßige Dicke der Schicht zu fördern oder zu gewährleisten. Noch weiter haben die Erfinder erkannt, dass die Größe der porösen Partikel ein leichtes Dispergieren der Partikel ohne Agglomeration in Aufschlämmungen ermöglicht, was deren Einarbeitung in Elektrodenmaterialien erleichtert, die ferner Kohlenstoffpartikel umfassen. Eine effektive Dispergierung der porösen Partikel ist entscheidend, da eine ungleichmäßige Verteilung der porösen Partikel zu einer ungleichmäßigen Aufladung und Expansion der aktiven Schicht führt, was zu einem Abbau der aktiven Schicht führt.

[0018] Silicium kann als elementares Silicium oder Siliciumoxid vorhanden sein, das die Formel SiO_x aufweist, wobei $0 < x \leq 1,5$.

[0019] Der Begriff SiO_x ist derart zu verstehen, dass elementares Silicium eingeschlossen ist, das an der Partikelloberfläche eine native Siliciumoxidschicht umfasst. Vorzugsweise ist die native Siliciumoxidschicht in einer Menge von nicht mehr als 30 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 25 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 10 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 5 Gew.-%, beispielsweise nicht mehr als 4 Gew.-%, nicht mehr als 3 Gew.-%, nicht mehr als 2 Gew.-% oder nicht mehr als 1 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge an Silicium und Siliciumoxid, vorhanden. Siliciumoxide, die die Formel SiO_x aufweisen, können auch in Form einer SiO_2 -Matrix vorliegen, in der Regionen von elementarem Silicium verteilt sind.

[0020] Germanium, Zinn und Aluminium können ebenfalls in den porösen Partikeln (i) in Kombination mit ihren Oxiden vorhanden sein, beispielsweise aufgrund der Gegenwart einer nativen Oxidschicht auf der Oberfläche der porösen Partikel. Wie in dieser Schrift verwendet, sind Verweise auf Germanium, Zinn und Aluminium derart zu verstehen, dass die Oxide von Germanium, Zinn und Aluminium beinhaltet sind. Vorzugsweise sind die Oxide von Germanium, Zinn und Aluminium in einer Menge von nicht mehr als 30 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 25 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 10 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 5 Gew.-%, beispielsweise nicht mehr als 4 Gew.-%, nicht mehr als 3 Gew.-%, nicht

mehr als 2 Gew.-% oder nicht mehr als 1 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge an Germanium, Zinn und Aluminium und den Oxiden davon, vorhanden.

[0021] Vorzugsweise umfassen die porösen Partikel (i) mindestens 60 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 70 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 75 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 85 Gew.-% des elektroaktiven Materials. Beispielsweise können die porösen Partikel (i) mindestens 90 Gew.-%, mindestens 95 Gew.-%, mindestens 98 Gew.-% oder mindestens 99 Gew.-% des elektroaktiven Materials umfassen. Bevorzugte elektroaktive Materialien sind Silicium und Zinn. Somit umfassen die porösen Partikel (i) vorzugsweise mindestens 60 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 70 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 75 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 85 Gew.-% Silicium oder Zinn. Beispielsweise können die porösen Partikel (i) zu mindestens 90 Gew.-%, zu mindestens 95 Gew.-%, zu mindestens 98 Gew.-% oder zu mindestens 99 Gew.-% Silicium oder Zinn umfassen. Ein besonders bevorzugtes elektroaktives Material ist Silicium. Somit umfassen die porösen Partikel (i) vorzugsweise mindestens 60 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 70 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 75 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 85 Gew.-% Silicium. Beispielsweise können die porösen Partikel (i) zu mindestens 90 Gew.-%, zu mindestens 95 Gew.-%, zu mindestens 98 Gew.-% oder zu mindestens 99 Gew.-% Silicium umfassen. Diese Bereiche sind insbesondere für die Ausführungsformen anwendbar, bei denen die porösen Partikel (i) Primärpartikel sind. Diese Bereiche sind insbesondere auch bei den elektroaktiven Material enthaltenden Primärpartikeln in den Ausführungsformen anwendbar, in denen die porösen Partikel (i) Sekundärpartikel sind, die diese Primärpartikel umfassen, wie nachfolgend beschrieben.

[0022] Insbesondere wenn es sich bei den porösen Partikeln um Sekundärpartikel handelt, umfassen die porösen Partikel (i) vorzugsweise mindestens 40 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 50 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 55 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 60 Gew.-% des elektroaktiven Materials. Geeigneterweise umfassen die porösen Partikel (i) nicht mehr als 90 Gew.-%, vorzugsweise nicht mehr als 80 Gew.-% des elektroaktiven Materials. Typischerweise umfassen die porösen Partikel (i) etwa 40 bis etwa 90 Gew.-%, vorzugsweise etwa 50 bis etwa 80 Gew.-%, vorzugsweise etwa 60 bis etwa 80 Gew.-% des elektroaktiven Materials. Bevorzugte elektroaktive Materialien sind Silicium und Zinn. Somit umfassen die porösen Partikel (i) vorzugsweise mindestens 40 Gew.-%, weiter bevorzugt

mindestens 50 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 55 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 60 Gew.-% Silicium oder Zinn. Vorzugsweise umfassen die porösen Partikel (i) nicht mehr als 90 Gew.-%, vorzugsweise nicht mehr als 80 Gew.-% Silicium oder Zinn. Typischerweise umfassen die porösen Partikel (i) etwa 40 bis etwa 90 Gew.-%, vorzugsweise etwa 50 bis etwa 80 Gew.-%, vorzugsweise etwa 60 bis etwa 80 Gew.-% Silicium oder Zinn. Ein besonders bevorzugtes elektroaktives Material ist Silicium. Somit umfassen die porösen Partikel (i) vorzugsweise mindestens 40 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 50 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 55 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 60 Gew.-% Silicium. Vorzugsweise umfassen die porösen Partikel (i) nicht mehr als 90 Gew.-%, vorzugsweise nicht mehr als 80 Gew.-% Silicium. Typischerweise umfassen die porösen Partikel (i) etwa 40 bis etwa 90 Gew.-%, vorzugsweise etwa 50 bis etwa 80 Gew.-%, vorzugsweise etwa 60 bis etwa 80 Gew.-% Silicium. Handelt es sich bei den porösen Partikeln (i) um Sekundärpartikel, ist die Zusammensetzung der elektroaktiven Material enthaltenden Primärpartikel, die die Sekundärporenpartikel (i) ausmachen, vorzugsweise wie in dem Absatz unmittelbar vorstehend beschrieben. Die porösen Sekundärpartikel (i) können ferner Kohlenstoff umfassen. Vorzugsweise ist eine Hauptfraktion (und vorzugsweise mindestens 60 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 70 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, oder im Wesentlichen alles) des Rests der Zusammensetzung der porösen Partikel (i) (d. h. abgesehen von dem elektroaktiven Material) Kohlenstoff (beispielsweise ein carbonisiertes Bindemittel). Der Kohlenstoff kann auch als leitfähiger Kohlenstoff, wie Industrieruß, Graphen oder Materialien auf Graphen-Basis, Kohlenstoff-Nanoröhren und/oder Kohlenstoff-Nanodrähte oder andere Materialien auf Kohlenstoff-Basis bereitgestellt werden.

[0023] Die porösen Partikel (i) können optional Silicium oder Zinn in Kombination mit einer geringen Menge an Aluminium und/oder Germanium umfassen. Beispielsweise können die porösen Partikel (i) mindestens 60 Gew.-% Silicium oder Zinn und bis zu 40 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, weiter bevorzugt mindestens 70 Gew.-% Silicium oder Zinn und bis zu 30 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, weiter bevorzugt mindestens 75 Gew.-% Silicium oder Zinn und bis zu 25 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-% Silicium oder Zinn und bis zu 20 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, weiter bevorzugt mindestens 85 Gew.-% Silicium oder Zinn und bis zu 15 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, weiter bevorzugt mindestens 90 Gew.-% Silicium oder Zinn und bis zu 10 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium und besonders bevorzugt mindestens 95 Gew.-% Silicium oder Zinn und bis zu 5 Gew.-% Aluminium

und/oder Germanium umfassen. Handelt es sich bei den porösen Partikeln (i) um Sekundärpartikel, sind diese Zusammensetzungen insbesondere auf die elektroaktives Material enthaltenden Primärapartikel anwendbar, die die porösen Sekundärpartikel (i) ausmachen.

[0024] Optional können die porösen Partikel (i) mindestens 0,01 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, mindestens 0,1 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, mindestens 0,5 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, mindestens 1 Gew.-% Aluminium, mindestens 2 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium oder mindestens 3 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium umfassen. Handelt es sich bei den porösen Partikeln (i) um Sekundärpartikel, sind diese Bereiche insbesondere auf die elektroaktives Material enthaltenden Primärapartikel anwendbar, die die porösen Sekundärpartikel (i) ausmachen.

[0025] Die porösen Partikel (i) können optional eine geringe Menge eines oder mehrerer anderer zusätzlicher Elemente als Silicium, Germanium, Zinn oder Aluminium umfassen. Beispielsweise können die porösen Partikel (i) eine geringe Menge eines oder mehrerer zusätzlicher Elemente umfassen, ausgewählt aus Sb, Cu, Mg, Zn, Mn, Cr, Co, Mo, Ni, Be, Zr, Fe, Na, Sr, P, Ru, Ag, Au und Oxiden davon. Vorzugsweise sind das eine oder die mehreren zusätzlichen Elemente, falls vorhanden, ausgewählt aus einem oder mehreren von Ni, Ag und Cu. Das eine oder die mehreren zusätzlichen Elemente können optional in einer Gesamtmenge von nicht mehr als 40 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 30 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 25 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 10 Gew.-% und besonders bevorzugt nicht mehr als 5 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des partikulären Materials, vorhanden sein. Optional können das eine oder die mehreren zusätzlichen Elemente in einer Gesamtmenge von mindestens 0,01 Gew.-%, mindestens 0,05 Gew.-%, mindestens 0,1 Gew.-%, mindestens 0,2 Gew.-%, mindestens 0,5 Gew.-%, mindestens 1 Gew.-%, mindestens 2 Gew.-% oder mindestens 3 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des partikulären Materials, vorhanden sein. Handelt es sich bei den porösen Partikeln (i) um Sekundärpartikel, sind diese Zusammensetzungen insbesondere auf die elektroaktives Material enthaltenden Primärapartikel anwendbar, die die porösen Sekundärpartikel (i) ausmachen.

[0026] Wie nachstehend beschrieben, können die porösen Partikel (i) ferner Kohlenstoff (vorzugsweise ein carbonisiertes Bindemittel oder in Form eines leitfähigen Kohlenstoffs wie Industrieruß, Kohlenstoff-Nanoröhren, Graphen oder Materialien auf Graphen-Basis, Kohlenstoff-Nanodrähte oder andere

Materialien auf Kohlenstoff-Basis) umfassen, wobei die porösen Partikel (i) insbesondere Sekundärpartikel sind. Vorzugsweise ist eine Hauptfraktion (und vorzugsweise mindestens 60 Gew.- %, vorzugsweise mindestens 70 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, oder im Wesentlichen alles) des Rests der Zusammensetzung der porösen Partikel (i) (d. h. abgesehen von dem elektroaktiven Material) Kohlenstoff, wobei die porösen Partikel (i) insbesondere Sekundärpartikel sind.

[0027] Die porösen Partikel (i) weisen einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 μm auf. Vorzugsweise beträgt der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 0,8 μm , mindestens 1 μm , mindestens 1,5 μm , mindestens 2 μm , mindestens 2,5 μm oder mindestens 3 μm . Vorzugsweise beträgt der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 35 μm , nicht mehr als 30 μm , nicht mehr als 25 μm , nicht mehr als 20 μm , nicht mehr als 15 μm , nicht mehr als 10 μm , nicht mehr als 6 μm , nicht mehr als 5,5 μm , nicht mehr als 5 μm , nicht mehr als 4,5 μm , nicht mehr als 4 μm oder nicht mehr als 3,5 μm . Beispielsweise können die porösen Partikel (i) einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 μm bis 35 μm , 1 μm bis 25 μm , 1 μm bis 20 μm oder 1 μm bis 10 μm aufweisen.

[0028] Der D_{10} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise mindestens 0,1 μm , mindestens 0,2 μm , mindestens 0,3 μm , mindestens 0,4 μm , mindestens 0,5 μm , mindestens 0,6 μm , mindestens 0,8 μm , mindestens 1 μm , mindestens 2 μm oder mindestens 3 μm . Besonders bevorzugt sind poröse Partikel (i) mit einem D_{10} -Partikeldurchmesser von mindestens 0,5 μm , da das Potenzial für eine unerwünschte Agglomeration von Partikeln in Submikrometergröße verringert wird, was zu einer verbesserten Dispergierbarkeit des partikulären Materials in Aufschlammungen führt.

[0029] Wenn der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 1 μm beträgt, beträgt der D_{10} -Partikeldurchmesser vorzugsweise mindestens 0,5 μm , weiter bevorzugt mindestens 1 μm . Wenn der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 1,5 μm beträgt, beträgt der D_{10} -Partikeldurchmesser vorzugsweise mindestens 0,8 μm , weiter bevorzugt mindestens 1 μm . Wenn der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 2 μm beträgt, beträgt der D_{10} -Partikeldurchmesser vorzugsweise mindestens 1 μm und noch weiter bevorzugt mindestens 1,5 μm .

[0030] Der D_{90} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise nicht mehr als 80 μm , nicht mehr als 60 μm , nicht mehr als 50 μm , nicht mehr als 40 μm , nicht mehr als 30 μm , nicht

mehr als 20 µm, nicht mehr als 15 µm oder nicht mehr als 10 µm.

[0031] Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 30 µm beträgt, beträgt der D₉₀-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 60 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 50 µm. Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 25 µm beträgt, beträgt der D₉₀-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 50 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 40 µm.

[0032] Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 20 µm beträgt, beträgt der D₉₀-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 40 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 30 µm. Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 15 µm beträgt, beträgt der D₉₀-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 30 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 20 µm. Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 10 µm beträgt, beträgt der D₉₀-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 20 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 15 µm. Der D₉₉-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise nicht mehr als 100 µm, nicht mehr als 80 µm, nicht mehr als 70 µm, nicht mehr als 60 µm, nicht mehr als 50 µm, nicht mehr als 40 µm oder nicht mehr als 30 µm.

[0033] Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 30 µm beträgt, beträgt der D₉₉-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 80 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 70 µm. Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 25 µm beträgt, beträgt der D₉₉-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 70 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 60 µm. Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 20 µm beträgt, beträgt der D₉₉-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 50 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 40 µm. Wenn der D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 15 µm beträgt, beträgt der D₉₉-Partikeldurchmesser vorzugsweise nicht mehr als 40 µm, weiter bevorzugt nicht mehr als 30 µm. Vorzugsweise weisen die porösen Partikel (i) eine enge Größenverteilungsspanne auf. Beispielsweise beträgt die Größenverteilungsspanne der Partikel (definiert als (D₉₀-D₁₀)/D₅₀) vorzugsweise 5 oder weniger, 4 oder weniger, 3 oder weniger, 2 oder weniger oder 1,5 oder weniger. Durch Beibehalten einer engen Größenverteilungsspanne wird die Konzentration von Partikeln in dem von den Erfindern für die Verwendung in Elektroden am günstigsten festgestellten Größenbereich maximiert.

[0034] Zur Vermeidung von Zweifeln bezieht sich der Begriff „Partikeldurchmesser“, wie in dieser Schrift verwendet, auf den äquivalenten kugelförmigen Durchmesser (equivalent spherical diameter - esd), d. h. den Durchmesser einer Kugel mit dem gleichen Volumen wie ein gegebenes Partikel, wobei das Partikelvolumen derart zu verstehen ist, dass es das Volumen der Intrapartikelporen beinhaltet. Die Begriffe „D₅₀“ und „D₅₀-Partikeldurchmesser“, wie in dieser Schrift verwendet, beziehen sich auf den medianen Partikeldurchmesser auf Volumen-Basis, d. h. den Durchmesser, unter dem 50 Vol.- % der Partikelpopulation gefunden werden. Die Begriffe „D₁₀“ und „D₁₀-Partikeldurchmesser“, wie in dieser Schrift verwendet, beziehen sich auf den medianen Partikeldurchmesser auf Volumen-Basis des 10. Perzentils, d. h. den Durchmesser, unter dem 10 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden. Die Begriffe „D₉₀“ und „D₉₀-Partikeldurchmesser“, wie in dieser Schrift verwendet, beziehen sich auf den medianen Partikeldurchmesser auf Volumen-Basis des 90. Perzentils, d. h. den Durchmesser, unter dem 90 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden. Die Begriffe „D₉₉“ und „D₉₉-Partikeldurchmesser“, wie in dieser Schrift verwendet, beziehen sich auf den volumenmedianen Partikeldurchmesser des 99. Perzentils, d. h. den Durchmesser, unter dem 99 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden wird.

[0035] Partikeldurchmesser und Partikelgrößenverteilungen können durch routinemäßige Laserdiffractionstechniken bestimmt werden. Die Laserdiffraction basiert auf dem Prinzip, dass ein Partikel Licht in einem Winkel streut, der je nach Partikelgröße variiert, und dass eine Ansammlung von Partikeln ein durch Intensität und Winkel definiertes Streulichtmuster produziert, das mit einer Partikelgrößenverteilung korreliert werden kann. Zur raschen und zuverlässigen Bestimmung von Partikelgrößenverteilungen sind eine Anzahl von Laserdiffractionsinstrumenten im Handel erhältlich. Sofern nicht anderweitig angegeben, sind Partikelgrößenverteilungen, wie in dieser Schrift spezifiziert oder angegeben, wie mit dem herkömmlichen Partikelgrößenanalysator Malvern Mastersizer 2000 von Malvern Instruments gemessen. Der Partikelgrößenanalysator Malvern Mastersizer 2000 funktioniert, indem ein Helium-Neon-Gaslaserstrahl durch eine transparente Zelle projiziert wird, die die Partikel von Interesse enthält, die in einer wässrigen Lösung suspendiert sind. Auf die Partikel treffende Lichtstrahlen werden über Winkel gestreut, die umgekehrt proportional zu der Partikelgröße sind, und ein Photodetektorarray misst die Lichtintensität bei mehreren vorgegebenen Winkeln und die bei den unterschiedlichen Winkeln gemessenen Intensitäten werden von einem Computer unter Verwendung standardmäßiger theoretischer Prinzipien verarbeitet, um die Partikelgrößenverteilung zu bestimmen. Die Laserdiffractionswerte werden, wie in dieser Schrift angegeben, unter Verwendung einer Nassdispersion der Partikel in destilliertem Wasser erlangt. Der Partikelbre-

chungsindex wird als 3,50 und der Dispergiermittelindex als 1,330 angenommen. Partikelgrößenverteilungen werden unter Verwendung des Mie-Streuungsmodells berechnet.

[0036] Das durchschnittliche Seitenverhältnis der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise weniger als 3:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 2,5:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 2:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,8:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,6:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,4:1 und besonders bevorzugt nicht mehr als 1,2:1. Der Begriff „Seitenverhältnis“ bezieht sich, wie in dieser Schrift verwendet, auf das Verhältnis der längsten Abmessung zur kürzesten Abmessung einer zweidimensionalen Partikelprojektion. Der Begriff „durchschnittliches Seitenverhältnis“ bezieht sich auf einen zahlgewichteten mittleren Durchschnitt der Seitenverhältnisse der einzelnen Partikel in der Partikelpopulation.

[0037] Die porösen Partikel (i) sind vorzugsweise in ihrer Form sphäroidal. Sphäroidale Partikel, wie in dieser Schrift definiert, können sowohl sphärische als auch ellipsoide Partikel beinhalten und die Form der porösen Partikel (i) kann geeigneterweise sowohl unter Bezugnahme auf das durchschnittliche Seitenverhältnis als auch auf die durchschnittliche Sphärität der porösen Partikel definiert werden. Es wurde festgestellt, dass sich sphäroidale Partikel für die Dispergierung in Aufschlammungen ohne Agglomerationbildung besonders gut eignen und sich leicht in den Hohlräumen (Zwischenräumen) zwischen den Kohlenstoffpartikeln in Elektrodenschichten anordnen. Die Sphärität eines Objekts wird herkömmlicherweise als das Verhältnis der Oberfläche einer Kugel zu der Oberfläche des Objekts definiert, wobei das Objekt und die Kugel identisches Volumen aufweisen. In der Praxis ist es jedoch schwierig, die Oberfläche und das Volumen einzelner Partikel im Mikrometermaßstab zu messen. Durch Rasterelektronenmikroskopie (REM) und dynamische Bildanalyse, bei der eine Digitalkamera zur Aufnahme des von einem Partikel projizierten Schattens verwendet wird, lassen sich jedoch hochgenaue zweidimensionale Projektionen von Partikeln im Mikrometermaßstab erhalten. Der Begriff „Sphärität“, wie in dieser Schrift verwendet, ist als das Verhältnis der Fläche der Partikelprojektion zur Fläche eines Kreises zu verstehen, wobei Partikelprojektion und Kreis identischen Umfang haben. Somit kann die Sphärität S für ein einzelnes Partikel wie folgt definiert werden:

$$S = \frac{4 \cdot \pi \cdot A_m}{(C_m)^2}$$

[0038] Hierbei ist A_m die gemessene Fläche der Partikelprojektion und C_m der gemessene Umfang der Partikelprojektion. Die durchschnittliche Sphärität S_{av} einer Partikelpopulation, wie in dieser Schrift verwendet, ist wie folgt definiert:

$$S_{av} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left[\frac{4 \cdot \pi \cdot A_m}{(C_m)^2} \right]$$

[0039] Hierbei stellt n die Anzahl der Partikel in der Population dar.

Wie in dieser Schrift verwendet, ist der Begriff „sphäroidal“, wenn auf die porösen Partikel (i) angewendet, so zu verstehen, dass er sich auf ein Material bezieht, das eine durchschnittliche Sphärität von mindestens 0,70 aufweist. Vorzugsweise weisen die porösen Partikel (i) eine durchschnittliche Sphärität von mindestens 0,85, weiter bevorzugt mindestens 0,90, weiter bevorzugt mindestens 0,92, weiter bevorzugt mindestens 0,93, weiter bevorzugt mindestens 0,94, weiter bevorzugt mindestens 0,95, weiter bevorzugt mindestens 0,96, weiter bevorzugt mindestens 0,97, weiter bevorzugt mindestens 0,98 und besonders bevorzugt mindestens 0,99 auf.

[0040] Es versteht sich, dass der Umfang und die Fläche einer zweidimensionalen Partikelprojektion im Falle eines beliebigen Partikels, das nicht perfekt sphäroidal ist, von der Ausrichtung des Partikels abhängen. Der Effekt der Partikelausrichtung kann jedoch durch Angabe von Sphärität und Seitenverhältnissen als Durchschnittswerte, die von einer Vielzahl von Partikeln mit zufälliger Ausrichtung erhalten werden, ausgeglichen werden.

[0041] Im Handel ist eine Reihe von REM- und dynamischen Bildanalysegeräten erhältlich, mit denen die Sphärität und das Seitenverhältnis eines partikulären Materials schnell und zuverlässig bestimmt werden können. Sofern nicht anders angegeben, werden die Sphäritätswerte, wie in dieser Schrift spezifiziert oder angegeben, von einem CamSizer XT Partikelanalysator von Retsch Technology GmbH gemessen. Der CamSizer XT ist ein dynamisches Bildanalyseinstrument, das in der Lage ist, hochgenaue Verteilungen der Größe und Form von partikulären Materialien in Probenvolumina von 100 mg bis 100 g zu erhalten, wodurch Eigenschaften wie durchschnittliche Sphärität und Seitenverhältnisse direkt durch das Instrument berechnet werden können.

[0042] Der Begriff „poröses Partikel“, wie in dieser Schrift verwendet, ist so zu verstehen, dass er sich auf ein Partikel bezieht, das eine Vielzahl von Poren, Hohlräumen oder Kanälen innerhalb einer Partikelstruktur umfasst. Der Begriff „poröses Partikel“ ist so zu verstehen, dass er Partikel beinhaltet, die ein statistisches oder geordnetes Netzwerk linearer, verzweigter oder geschichteter länglicher Strukturelemente umfassen, wobei zwischen den länglichen Strukturelementen des Netzwerks miteinander verbundene Hohlräume oder Kanäle definiert sind, wobei die länglichen Strukturelemente lineare, verzweigte oder geschichtete Fasern, Röhrchen,

Drähte, Säulen, Stäbe, Bänder, Platten, Wände oder Flocken beinhalten. Bei den in dieser Schrift beschriebenen bevorzugten porösen Partikeln (i) handelt es sich jedoch um Sekundärpartikel, die elektroaktives Material enthaltende Primärpartikel umfassen und ferner Kohlenstoff (vorzugsweise ein carbonisiertes Bindemittel oder in Form eines leitfähigen Kohlenstoffs wie Industrieruß, Graphen oder Materialien auf Graphen-Basis, Kohlenstoff-Nanoröhren und/oder Kohlenstoff-Nanodrähte oder andere Materialien auf Kohlenstoff-Basis) umfassen; derartige Primärpartikel sind geeigneterweise sphärische oder sphäroidale Nanopartikel oder Agglomerate davon, obwohl die Primärpartikel alternativ ein statistisches oder geordnetes Netzwerk linearer, verzweigter oder geschichteter länglicher Strukturelemente umfassen können und in diesen Ausführungsformen weisen diese länglichen Strukturelemente vorzugsweise relativ niedrige Seitenverhältnisse auf (vorzugsweise derart, dass die zweite und dritte Abmessung (unabhängig) nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal größer ist als die kleinste Abmessung des länglichen Strukturelements). Vorzugsweise weisen die porösen Partikel (i) eine im Wesentlichen offene poröse Struktur auf, sodass im Wesentlichen das gesamte Porenvolumen der porösen Partikel für ein Fluid, beispielsweise ein Gas oder ein Elektrolyt, von der Außenseite der Partikel zugänglich ist. Mit einer im Wesentlichen offenen porösen Struktur ist gemeint, dass mindestens 90 %, vorzugsweise mindestens 95 %, vorzugsweise mindestens 98 %, vorzugsweise mindestens 99 % des Porenvolumens der porösen Partikel von der Außenseite der Partikel zugänglich sind.

[0043] Die porösen Partikel (i) können in einigen Ausführungsformen durch eine spezifische Mikrostruktur oder Architektur der Strukturelemente, die die porösen Partikel ausmachen, unterschieden werden. Die porösen Partikel (i) können ein Netzwerk miteinander verbundener unregelmäßiger länglicher Strukturelemente umfassen, die das elektroaktive Material umfassen, die als nadelförmig, flockenförmig, dendritisch oder korallenartig beschrieben werden können. Diese Partikelarchitektur ist mit einem miteinander verbundenen Netzwerk von Poren assoziiert, vorzugsweise mit einer im Wesentlichen gleichmäßigen Verteilung der Poren im gesamten Partikel.

[0044] Die Intrapartikelporosität ist in dieser Schrift definiert als das Verhältnis des Volumens von Poren innerhalb eines Partikels zu dem Gesamtvolume des Partikels. Die Interpartikelporosität ist das Volumen von Poren zwischen diskreten Partikeln und ist sowohl von der Größe und Form der einzelnen Partikel als auch von der Packungsdichte der Partikel in der aktiven Schicht abhängig.

[0045] Die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise mindestens 3 %, liegt vorzugsweise im Bereich von 5 bis 25 % und weiter bevorzugt im Bereich von 5 bis 20 %.

[0046] Die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise mindestens 5 % und kann mindestens 10 % oder mindestens 12 % betragen. Die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise nicht mehr als 29 %, weiter bevorzugt nicht mehr als 28 %, weiter bevorzugt nicht mehr als 27 %, weiter bevorzugt nicht mehr als 26 % und besonders bevorzugt nicht mehr als 25 %. Beispielsweise kann die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) nicht mehr als 24 %, nicht mehr als 23 %, nicht mehr als 22 %, nicht mehr als 21 %, nicht mehr als 20 %, nicht mehr als 19 %, nicht mehr als 18 %, nicht mehr als 17 %, nicht mehr als 16 % oder nicht mehr als 15 % betragen.

[0047] Werden die porösen Partikel (i) durch Entfernung einer unerwünschten Komponente aus einem Ausgangsmaterial, z. B. durch Auslaugen einer Legierung, wie nachfolgend ausführlicher erörtert, hergestellt, kann die Intrapartikelporosität geeigneterweise durch Bestimmen der elementaren Zusammensetzung der Partikel vor und nach dem Auslaugen und Berechnen des entfernten Materialvolumens bestimmt werden.

[0048] Weiter bevorzugt kann die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) mittels Quecksilberporosimetrie gemessen werden. Quecksilberporosimetrie ist eine Technik, die die Porosität eines Materials durch Ausüben variierender Druckniveaus auf eine in Quecksilber getauchte Probe des Materials charakterisiert. Der Druck, der zum Einpressen von Quecksilber in die Poren der Probe erforderlich ist, ist umgekehrt proportional zu der Größe der Poren. Spezifischer basiert die Quecksilberporosimetrie auf dem Kapillargesetz, das das Eindringen von Flüssigkeit in kleine Poren regelt. Dieses Gesetz wird im Fall einer nicht benetzenden Flüssigkeit wie Quecksilber durch die Washburn-Gleichung ausgedrückt:

$$D = (1/P) \cdot 4y \cdot \cos\phi$$

[0049] Hierbei ist D der Porendurchmesser, P der ausgeübte Druck, y die Oberflächenspannung und ϕ der Kontaktwinkel zwischen der Flüssigkeit und der Probe. Das Volumen des in die Poren der Probe eindringenden Quecksilbers wird direkt abhängig von dem ausgeübten Druck gemessen. Wenn der Druck während einer Analyse steigt, wird die Porengröße für jeden Druckpunkt berechnet und das entsprechende Quecksilervolumen gemessen, das zum Füllen dieser Poren erforderlich ist. Diese Messungen, die über einen Druckbereich vorgenommen werden, ergeben die Verteilung des Porenvolumens gegenüber dem Porendurchmesser für das Proben-

material. Die Washburn-Gleichung geht davon aus, dass alle Poren zylindrisch sind. Obwohl echte zylindrische Poren in realen Materialien selten anzutreffen sind, stellt diese Annahme für die meisten Materialien eine ausreichend nützliche Darstellung der Porenstruktur bereit. Zur Vermeidung von Zweifeln sind Verweise auf den Poredurchmesser in dieser Schrift als Verweise auf die äquivalenten zylindrischen Abmessungen zu verstehen, wie durch Quecksilberporosimetrie bestimmt. Durch Quecksilberporosimetrie erhaltene Werte, wie in dieser Schrift angegeben, werden gemäß ASTM UOP574-11 erhalten, wobei die Oberflächenspannung γ als 480 mN/m angenommen wird und der Kontaktwinkel ϕ für Quecksilber bei Raumtemperatur als 140° angenommen wird. Die Dichte von Quecksilber wird bei Raumtemperatur als 13,5462 g/cm³ angenommen.

[0050] Für eine Probe in Form eines Pulvers von porösen Partikeln ist das Gesamtporenvolumen der Probe die Summe der Intrapartikel- und Interpartikel-poren. Dies lässt eine wenigstens bimodale Poredurchmesserverteilungskurve in einer Quecksilberporosimetrieanalyse auftreten, die einen Satz von einem oder mehreren Peaks bei niedrigeren Porengrößen in Bezug auf die Intrapartikel-Poredurchmesserverteilung und einen Satz von einem oder mehreren Peaks bei größeren Porengrößen in Bezug auf die Interpartikel-Poredurchmesserverteilung umfasst. Aus der Poredurchmesserverteilungskurve gibt der niedrigste Punkt zwischen den beiden Peaksätzen den Durchmesser an, bei dem die Intrapartikel- und Interpartikel-Porenvolumina getrennt werden können. Von dem Porenvolumen bei Durchmessern, die größer sind als diese, wird angenommen, dass dies das mit den Interpartikel-poren assoziierte Porenvolumen ist. Das Gesamtporenvolumen abzüglich des Interpartikel-Porenvolumens ergibt das Intrapartikel-Porenvolumen, aus dem die Intrapartikelporosität berechnet werden kann.

[0051] Auch die Intrapartikelporosität der aktiven Schicht der Elektrode, die die porösen Partikel und Kohlenstoffpartikel umfasst, kann mittels einer Porosimetrie wie der Quecksilberporosimetrie gemessen werden.

[0052] Eine Anzahl hochpräziser Quecksilberporosimetrieinstrumente sind im Handel erhältlich, wie die Serie automatisierter Quecksilberporosimeter AutoPore IV, die von Micromeritics Instrument Corporation, USA, erhältlich ist. Für einen vollständigen Überblick über die Quecksilberporosimetrie kann auf P. A. Webb und C. Orr in „Analytical Methods in Fine Particle Technology“, 1997, Micromeritics Instrument Corporation, ISBN 0-9656783-0 verwiesen werden.

[0053] Es versteht sich, dass Quecksilberporosimetrie und andere Intrusionstechniken nur effektiv sind,

um das Porenvolumen von Poren zu bestimmen, die für Quecksilber (oder ein anderes Fluid) von der Außenseite der zu messenden porösen Partikel zugänglich sind. Wie vorstehend erwähnt, ist im Wesentlichen das gesamte Porenvolumen der porösen Partikel (i) von der Außenseite der Partikel zugänglich, sodass die quecksilberporosimetrischen Porositätsmessungen im Allgemeinen dem gesamten Porenvolumen der Partikel entsprechen. Nichtsdestotrotz sind zur Vermeidung von Zweifeln Intrapartikelporositäts- und Elektroden-Interpartikelporositäts-werte, wie in dieser Schrift spezifiziert oder angegeben, so zu verstehen, dass sie sich auf das Volumen offener Poren beziehen, d. h. Poren, die für ein Fluid von der Außenseite der Partikel oder der aktiven Schicht einer Elektrode zugänglich sind. Vollständig umschlossene Poren, die durch Quecksilberporosimetrie nicht identifiziert werden können, werden beim Spezifizieren oder Angeben von Intrapartikelporosität nicht berücksichtigt.

[0054] Die porösen Partikel (i) weisen vorzugsweise eine Intrapartikel-Poredurchmesserverteilung auf, die mindestens einen Peak bei einer Porengröße von weniger als 500 nm, weniger als 350 nm, weiter bevorzugt weniger als 300 nm, weiter bevorzugt weniger als 250 nm, weiter bevorzugt weniger als 200 nm, weiter bevorzugt weniger als 150 nm, weiter bevorzugt weniger als 100 nm aufweist, wie durch Quecksilberporosimetrie bestimmt. Vorzugsweise weist die Poredurchmesserverteilung mindestens einen Peak bei einer Porengröße von mehr als 3 nm, weiter bevorzugt mehr als 5 nm, weiter bevorzugt mehr als 10 nm, weiter bevorzugt mehr als 20 nm, weiter bevorzugt mehr als 30 nm, weiter bevorzugt mehr als 40 nm, weiter bevorzugt mehr als 50 nm, weiter bevorzugt mehr als 60 nm und besonders bevorzugt mehr als 80 nm auf, wie durch Quecksilberporosimetrie bestimmt.

[0055] Die porösen Partikel (i) sind daher vorzugsweise nicht nur durch die Gesamtporosität der porösen Partikel charakterisiert, sondern auch durch die Art und Weise, wie die Porosität in den Partikeln verteilt ist. Vorzugsweise ist die Porosität mit einer Poredurchmesserverteilung assoziiert, die gewährleistet, dass die Architektur des elektroaktiven Materials in den porösen Partikeln (i) weder so fein ist, dass es während des Verarbeitens zu Elektroden-schichten abgebaut wird, noch so groß ist, dass es während des Aufladens und Entladens des elektroaktiven Materials einer nicht akzeptablen Belastung ausgesetzt ist. Somit sind die porösen Partikel (i) ausreichend robust, um Fertigung und Einarbeitung in eine Anodenschicht ohne Verlust an struktureller Integrität zu überstehen, insbesondere, wenn Anodenschichten zum Produzieren einer dichten gleichförmigen Schicht kalandriert werden, wie dies im Stand der Technik üblich ist, und gleichzeitig eine reversible Kapazität über mehrere Auflade-Entlade-

Zyklen auf einem kommerziell akzeptablen Niveau bereitstellen.

[0056] Die porösen Partikel (i) können Netzwerke von unregelmäßigen, länglichen Strukturelementen umfassen, die vorzugsweise ein Seitenverhältnis von mindestens 2:1 und weiter bevorzugt mindestens 5:1 aufweisen. Ein hohes Seitenverhältnis der Strukturelemente stellt eine hohe Anzahl von Verbindungen zwischen den die porösen Partikel ausmachenden Strukturelementen für elektrische Kontinuität bereit.

[0057] Die Dicke der die porösen Partikel (i) bildenden Strukturelemente ist ein wichtiger Parameter in Bezug auf die Fähigkeit des elektroaktiven Materials, Metallionen reversibel zu interkalieren und freizusetzen. Zu dünne Strukturelemente können aufgrund einer zu hohen BET-Oberfläche und daraus resultierender Bildung einer SEI-Schicht zu einem übermäßigen ersten Zyklusverlust führen. Zu dicke Strukturelemente werden jedoch während der Einbringung von Metallionen einer übermäßigen Belastung ausgesetzt und behindern zudem die Einbringung von Metallionen in die Masse des Siliciummaterials. Die Erfindung zielt darauf ab, aufgrund des Vorhandenseins von Strukturelementen mit optimierter Größe und optimierten Proportionen ein optimales Gleichgewicht dieser konkurrierenden Faktoren bereitzustellen. Somit umfassen die porösen Partikel vorzugsweise Strukturelemente, die eine kleinste Abmessung von weniger als 500 nm, vorzugsweise weniger als 300 nm, vorzugsweise weniger als 200 nm, weiter bevorzugt weniger als 150 nm, und eine größte Abmessung des mindestens Zweifachen, vorzugsweise mindestens des Fünffachen der kleinsten Abmessung aufweisen. Die kleinste Abmessung beträgt vorzugsweise mindestens 10 nm, weiter bevorzugt mindestens 20 nm und besonders bevorzugt mindestens 30 nm.

[0058] Bei den porösen Partikeln (i) kann es sich um Primär- oder Sekundärpartikel handeln, vorzugsweise handelt es sich jedoch um Sekundärpartikel. Es ist jedoch nicht ausgeschlossen, dass die porösen siliciumhaltigen Partikel poröse diskrete Primärpartikel umfassen können.

[0059] Die bevorzugten porösen Sekundärpartikel (i) umfassen vorzugsweise elektroaktives Material enthaltende Primärpartikel, wie vorstehend beschrieben, und umfassen ferner Kohlenstoff. Derartige Primärpartikel sind geeigneterweise sphärische oder sphäroidale Nanopartikel oder Agglomerate davon. Alternativ können die Primärpartikel ein statistisches oder geordnetes Netzwerk linearer, verzweigter oder geschichteter länglicher Strukturelemente umfassen und in diesen Ausführungsformen weisen diese länglichen Strukturelemente vorzugsweise relativ niedrige Seitenverhältnisse auf (vorzugsweise derart,

dass die zweite und dritte Abmessung (unabhängig) nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal größer ist als die kleinste Abmessung des länglichen Strukturelements). Der Kohlenstoff kann in porösen Sekundärpartikeln (i) als Kohlenstoffpartikel oder als Kohlenstoffbeschichtung auf den Primärpartikeln oder als Kohlenstoffmatrix (z. B. Kohlenstoffmatrix, in der elektroaktives Material enthaltende Primärpartikel dispergiert sind) oder als carbonisiertes Bindemittel, das die elektroaktiven porösen Partikel (d. h. die elektroaktives Material enthaltenden Primärpartikel) darin umfasst, oder als beliebige Kombination davon vorhanden sein. Der Kohlenstoff kann pyrolyserter Kohlenstoff oder carbonisiertes Bindemittel sein, das sich von einer carbonisierbaren Vorstufe ableitet, wie nachstehend beschrieben. Der Kohlenstoff kann auch als leitfähiger Kohlenstoff, wie Industrieruß, Graphen oder Materialien auf Graphen-Basis, Kohlenstoff-Nanoröhren und/oder Kohlenstoff-Nanodrähte oder andere Materialien auf Kohlenstoff-Basis bereitgestellt werden.

[0060] Bei den bevorzugten porösen Sekundärpartikeln (i) weisen die Primärpartikel vorzugsweise eine kleinste Abmessung von weniger als 500 nm, vorzugsweise weniger als 300 nm, vorzugsweise weniger als 200 nm, weiter bevorzugt weniger als 150 nm, und eine größte Abmessung auf, die nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal größer ist als die kleinste Abmessung. Die kleinste Abmessung beträgt vorzugsweise mindestens 10 nm, weiter bevorzugt mindestens 20 nm und besonders bevorzugt mindestens 30 nm. Beispielsweise kann es sich bei den Primärpartikeln um sphärische oder sphäroidale Nanopartikel handeln, die einen Durchmesser von 20 bis 500 nm aufweisen, oder es kann sich bei ihnen um Flocken mit einer Dicke von 20 bis 500 nm mit einer zweiten und dritten Abmessung handeln, die nicht mehr als 5-mal größer ist als diese kleinste Abmessung.

[0061] Zur Vermeidung von Zweifeln wird der Begriff „Primärpartikel“ in dieser Schrift in seiner herkömmlichen Bedeutung verwendet, d. h. um die einzelnen Materieteilstücke in einem partikulären Material zu bezeichnen (IUPAC definiert ein „Primärpartikel“ als „kleinste diskrete identifizierbare Einheit“ in einem partikulären Material). Primärpartikel können von Sekundärpartikeln unterschieden werden, bei denen es sich um Partikel handelt, die aus einer Vielzahl von Primärpartikeln zusammengesetzt und entweder durch schwache Adhäsions- oder Kohäsionskräfte bei Agglomeraten oder durch starke atomare oder molekulare Kräfte bei Aggregaten zusammengehalten werden. Die porösen Sekundärpartikel können eine Anordnung von porösen Primärpartikeln oder eine Anordnung von nicht porösen Partikeln umfassen. Die Sekundärpartikel bildenden Primärpartikel behalten eine individuelle Identität und es versteht sich deshalb, dass sich Sekundärpartikel,

die nur Poren zwischen den am Aufbau beteiligten nicht porösen Primärpartikeln umfassen, leicht von Primärpartikeln, die eine intrinsische Porosität aufweisen, unterscheiden lassen.

[0062] Umfassen die porösen Partikel poröse Sekundärpartikel, die eine Anordnung von porösen oder nicht porösen Primärpartikeln umfassen, beträgt der D_{50} -Partikeldurchmesser der nicht porösen Partikel vorzugsweise weniger als 50 % der D_{50} -Partikelgröße der Sekundärpartikel (d. h. weniger als $D_{50}/2$ der Sekundärpartikel).

[0063] Die porösen Partikel (i) weisen vorzugsweise eine BET-Oberfläche von weniger als 300 m²/g, weniger als 250 m²/g, weniger als 200 m²/g, weniger als 150 m²/g, weniger als 120 m²/g, weniger als 100 m²/g oder weniger als 80 m²/g auf. Die BET-Oberfläche kann geeigneterweise mindestens 5 m²/g, mindestens 10 m²/g, mindestens 15 m²/g, mindestens 20 m²/g oder mindestens 50 m²/g betragen. Typischerweise beträgt die BET-Oberfläche etwa 10 bis etwa 50 m²/g. Der Begriff „BET-Oberfläche“, wie in dieser Schrift verwendet, soll die Oberfläche pro Masseneinheit bezeichnen, die aus einer Messung der physikalischen Adsorption von Gasmolekülen an einer festen Oberfläche unter Verwendung der Brunauer-Emmett-Teller-Theorie gemäß ASTM B922/10 berechnet wird. Die Steuerung der BET-Oberfläche von elektroaktivem Material ist ein wichtiger Gesichtspunkt bei der Gestaltung von Elektroden für Metallionenbatterien. Eine zu geringe BET-Oberfläche resultiert aufgrund der Unzugänglichkeit zu der Masse des elektroaktiven Materials für die Metallionen in dem umgebenden Elektrolyten in einer inakzeptabel niedrigen Aufladerate und Kapazität. Es ist jedoch auch bekannt, dass eine sehr hohe BET-Oberfläche aufgrund der Bildung einer Schicht mit fester Elektrolytinterphase (solid electrolyte interphase - SEI) an der Anodenoberfläche während des ersten Auflade-Entlade-Zyklus der Batterie nachteilig ist. SEI-Schichten werden aufgrund der Reaktion des Elektrolyten an der Oberfläche von elektroaktiven Materialien gebildet und können erhebliche Mengen von Metallionen aus dem Elektrolyten verbrauchen, wodurch die Kapazität der Batterie in nachfolgenden Auflade-Entlade-Zyklen verringert wird. Während sich die bisherige Lehre im Fachgebiet auf eine optimale BET-Oberfläche unterhalb von etwa 10 m²/g konzentriert, haben die Erfinder der vorliegenden Erfindung festgestellt, dass bei Verwendung des erfundungsgemäßen partikulären Materials als elektroaktives Material ein wesentlich breiterer BET-Bereich toleriert werden kann.

[0064] Die elektroaktives Material enthaltenden Strukturelemente, die die porösen Partikel (i) ausmachen, umfassen vorzugsweise amorphes oder nanokristallines elektroaktives Material, das eine Kristallitgröße von weniger als 100 nm, vorzugsweise

weniger als 60 nm aufweist. Die Strukturelemente können eine Mischung aus amorphem und nanokristallinem elektroaktivem Material umfassen. Die Kristallitgröße kann durch Röntgendiffraktionsspektrometrie-Analyse unter Verwendung einer Röntgenwellenlänge von 1,5456 nm bestimmt werden. Die Kristallitgröße wird unter Verwendung der Scherrer-Gleichung anhand eines 2θ-XRD-Scans berechnet, wobei die Kristallitgröße $d = K\lambda / (B \cdot \cos\theta_B)$, wobei die Formkonstante K als 0,94 angenommen wird, die Wellenlänge λ 1,5456 nm beträgt, θ_B der mit dem Silicium-Peak von 220 assoziierte Bragg-Winkel ist und B die Halbwertsbreite (full width half maximum - FWHM) dieses Peaks ist. Geeigneterweise beträgt die Kristallitgröße mindestens 10 nm.

[0065] Die porösen Partikel (i) können gemäß bekannten Verfahren erhalten werden. Beispielsweise können die porösen Partikel (i) geeigneterweise durch Prozesse erhalten werden, bei denen unerwünschtes Material aus einem partikulären Ausgangsmaterial, das das elektroaktive Material umfasst, entfernt wird. Durch Entfernen von unerwünschtem Material können die Strukturen des elektroaktiven Materials, die die porösen Partikel definieren, erzeugt oder freigelegt werden. Beispielsweise kann es sich dabei um die Entfernung/Verringerung von Oxidkomponenten aus einer Silicium-, Germanium-, Zinn- und/oder Aluminiumstruktur handeln, um das Ätzen von Silicium-, Germanium-, Zinn- und/oder Aluminiummassenpartikeln oder das Auslaugen einer Metallmatrix aus Legierungspartikeln, die elektroaktive Materialstrukturen in einer Metallmatrix enthalten.

[0066] Poröse Partikel können mit einem entfernbaren porenbildenden Material zusammengesetzt werden. Porenbildende Materialien sind partikuläre Komponenten, die während der Fertigung zunächst innerhalb der porösen Partikel enthalten sind und dann mindestens teilweise entfernt werden, um Poren an ihrer Stelle zu hinterlassen. Die porenbildenden Materialien können mindestens teilweise durch Verdampfungs-, Zerfalls-, Wärmebehandlungs-, Ätz- oder Waschprozesse entfernt werden. Porenbildende Materialien können beinhaltet sein, um zusätzliche Porosität einzuführen und/oder die Größe der Poren und/oder deren Verteilung innerhalb der porösen Partikel zu steuern. Die porenbildenden Materialien können geeigneterweise ausgewählt sein aus Kieselsäure, Metalloxiden, Salzen (einschließlich NaCl) und thermisch abbauenden Materialien, die sich bei Erwärmen unter Zurücklassung von minimalem Kohlerest oder Rückständen mindestens teilweise in flüchtige Komponenten zersetzen (einschließlich Polystyrol, Celluloseether, Acrylpolymer, PMMA, Stärke, Poly(alkylen)carbonate, Polypropylencarbonat (PPC) und Polyethylen-carbonat (PEC)). Geeignete porenbildende Mate-

rialien beinhalten solche, die eine Partikelgröße im Bereich von 10 bis 500 nm aufweisen. Natriumchlorid ist ein bevorzugter porenbildender Zusatzstoff, da Natriumchlorid-Nanokristalle während des Zusammensetzens der porösen Partikel (z. B. durch Sprührocknung) *in situ* gebildet und dann leicht durch Lösen in Wasser entfernt werden können. Die porösen Partikel (i) können durch Ätzen von elektroaktivem Material zum Bilden von Poren, Hohlräumen oder Kanälen innerhalb des elektroaktiven Materials gebildet werden. Beispielhafte Ätzprozesse beinhalten chemisches Ätzen, metallgestütztes chemisches Ätzen und elektrochemisches Ätzen. Die porösen Partikel (ii) können durch Reduktion der Oxide von elektroaktivem Material zum Bilden von porösem elektroaktivem Material gebildet werden. Beispielsweise können poröse Siliciumpartikel durch die magnesiothermische Reduktion von Siliciumdioxid oder Siliciummonoxid gebildet werden.

[0067] Die porösen Partikel (i) können alternativ aus einem partikulären oder Massen-Ausgangsmaterial gebildet werden und der Prozess kann Fragmentierung, Brechen oder Mahlen des porös gemachten Ausgangsmaterials zum Bilden der porösen Partikel (i) umfassen.

[0068] Poröse Sekundärpartikel (i) können durch Sprührocknung von porösen oder nicht porösen Partikeln elektroaktiven Materials gebildet werden. Sprührocknung ist ein Prozess zum Produzieren eines trockenen Pulvers aus einer Flüssigkeit oder Aufschlämmung durch Dispergieren der Flüssigkeit oder Aufschlämmung durch einen Zerstäuber oder eine Sprühdüse zum Bilden eines Sprühstrahls von Tröpfchen mit gesteuerter Tröpfchengröße, die dann unter Verwendung eines heißen Gases zum Bilden einer Vielzahl von allgemein sphäroidalen Partikeln in Form eines rieselfähigen Pulvers schnell getrocknet werden.

[0069] Somit können die porösen Sekundärpartikel durch Bilden einer Aufschlämmung, die poröse oder nicht poröse Partikel elektroaktiven Materials zusammen mit einem verdampfbaren flüssigen Träger umfasst, und Sprührocknen der Aufschlämmung zum Bilden des partikulären Materials, das aus einer Vielzahl von porösen Partikeln besteht, erhalten werden. Geeignete verdampfbare flüssige Träger für die Aufschlämmung beinhalten Wasser und organische Lösungsmittel, wie Ethanol. In einigen Ausführungsformen kann eine Aufschlämmung, die Partikel elektroaktiven Materials umfasst, die aus einem Nasskugelmahlprozess wie vorstehend definiert erhalten wurden, falls angemessen verdünnt und dann direkt im Sprührocknungsprozess verwendet werden. Der Sprührocknungsschritt kann alternativ durch ein oder mehrere alternative Prozesse wie Agglomeration, Granulierung, Lyophilisierung (einschließlich Gefriertrocknung), Gefriergranulierung,

Sprühgefrieren in Flüssigkeit, Sprühpyrolyse, elektrostatisches Spritzen, Emulsionspolymerisation und Selbstzusammensetzung von Partikeln in Lösung ersetzt werden, um poröse Partikel aus einer Aufschlämmung zu bilden.

[0070] Die bevorzugten kohlenstoffhaltigen Sekundärpartikel können durch Wärmebehandlung oder Pyrolyse einer carbonisierbaren Komponente, die als Bindemittel dient, hergestellt werden. Carbonisierte Bindemittel werden aus carbonisierbaren Vorstufen erhalten, die durch Erwärmen der porösen Partikel auf eine Temperatur oberhalb der Zersetzungstemperatur der carbonisierbaren Vorstufen, beispielsweise im Bereich von 600 bis 1000 °C, in Kohlenstoff umgewandelt werden. Beispiele für carbonisierbare Vorstufen zur Bildung von carbonisierten Bindemitteln beinhalten Zucker und Polysaccharide (z. B. Saccharose, Dextran oder Stärke), Petrolpech und Polymere wie die vorstehend genannten. Die carbonisierbaren Vorstufen werden geeigneterweise in einer Menge verwendet, die zum Bereitstellen von bis zu 40 Gew.-% oder bis zu 30 Gew.-% oder bis zu 20 Gew.- % oder bis zu 10 Gew.-% carbonisiertes Bindemittel, bezogen auf das Gesamtgewicht der porösen Partikel, nach dem Carbonisieren der carbonisierbaren Vorstufe angemessen ist. Die Verwendung von carbonisierten Bindemitteln ist vorteilhaft, da sie eine Kohlenstoffschicht bereitstellt, die mindestens einen Teil des darunterliegenden Partikels beschichtet, wobei angenommen wird, dass dies zum Steuern der Bildung von SEI-Schichten auf der Oberfläche des elektroaktiven Materials und zum Verbessern der Leitfähigkeit der Partikel beiträgt.

[0071] Die porösen Sekundärpartikel können auch durch mechanische Fusion erhalten werden.

[0072] Die porösen Partikel (i) können durch einen Prozess erhalten werden, der das Auslaugen von Partikeln einer Legierung umfasst, die Silicium- und/oder Germaniumstrukturen in einer Metallmatrix umfasst. Dieser Prozess beruht auf der Beobachtung, dass ein Netzwerk aus kristallinen Silicium- und/oder Germaniumstrukturen innerhalb einer Legierungsmatrix ausfällt, wenn bestimmte Legierungen, die diese Elemente enthalten, aus dem geschmolzenen Zustand abgekühlt werden. Geeigneterweise umfassen die Legierungen Matrixmetalle, bei denen die Löslichkeit von Silicium und/oder Germanium gering ist und/oder bei denen die Bildung von Intermetallen beim Abkühlen vernachlässigbar oder nicht vorhanden ist. Durch Auslaugen der Metalle, die die Metallmatrix ausmachen, wird das Netzwerk von Silicium- und/oder Germaniumstrukturen freigelegt. Somit stellen Auslaugpartikel einer Silicium und/oder Germanium umfassenden Legierung einen geeigneten Weg zu den vorstehend definierten porösen Partikeln bereit.

[0073] Die porösen Partikel (i) können eine Vielzahl von elektroaktives Material enthaltenden Fragmenten umfassen, die zum Bilden der porösen Partikel (i) agglomierert oder anderweitig zusammengesetzt oder miteinander verbunden werden.

[0074] Die Kohlenstoffpartikel (ii) sind ausgewählt aus Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff. Der Begriff Weichkohlenstoff bezieht sich, wie in dieser Schrift verwendet, auf grafitisierbare Kohlenstoffe und der Begriff Hartkohlenstoff bezeichnet nicht grafitisierbaren Kohlenstoff. Hart- und Weichkohlenstoff sind im Fachgebiet als zwei verschiedene und gut definierte Klassen von Kohlenstoffmaterialien anerkannt. Insbesondere bezieht sich „Hartkohlenstoff“ auf Kohlenstoff, der bei Raumtemperatur keine kristallographische Fernordnung aufweist. Beim Erwärmen auf sehr hohe Temperaturen bildet Hartkohlenstoff keine Fernordnung (d. h. er bildet keinen Grafit). Im Gegensatz dazu bezieht sich „Weichkohlenstoff“ auf Kohlenstoff, der bei Raumtemperatur ungeordnet ist, dem aber durch Erwärmen auf über ca. 1000 °C eine kristallographische Fernordnung vermittelt werden kann (d. h. graftischer gemacht werden kann) (siehe Franklin, Proceedings of the Royal Society A, 1951, Bd. 209, 196-218).

[0075] Bei den Kohlenstoffpartikeln (ii) handelt es sich vorzugsweise um Grafitpartikel, weiter bevorzugt um Mesphasengrafitpartikel. Die Grafitpartikel können synthetischen oder natürlichen Grafit umfassen. Vorzugsweise weist der Grafit eine maximale spezifische Kapazität von mindestens 300 mAh/g, beispielsweise 300 bis 360 mAh/g oder 300 bis 340 mAh/g auf.

[0076] Die Kohlenstoffpartikel (ii) weisen einen D₅₀-Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 µm auf. Vorzugsweise beträgt der D₅₀-Partikeldurchmesser der Kohlenstoffpartikel (ii) mindestens 2 µm, mindestens 5 µm, mindestens 7 µm, mindestens 8 µm, mindestens 10 µm, mindestens 12 µm oder mindestens 15 µm. Der D₅₀-Partikeldurchmesser der Kohlenstoffpartikel (ii) beträgt vorzugsweise nicht mehr als 80 µm, nicht mehr als 70 µm, nicht mehr als 60 µm, nicht mehr als 50 µm, nicht mehr als 45 µm, nicht mehr als 40 µm, nicht mehr als 35 µm, nicht mehr als 30 µm oder nicht mehr als 25 µm. Befinden sich die D₅₀-Partikelgrößen der porösen Partikel (i) und der Kohlenstoffpartikel (ii) innerhalb der in dieser Schrift offenbarten bevorzugten Bereiche, sind die porösen Partikel (i) vorteilhafterweise in der Lage, Hohlräume zwischen den Kohlenstoffpartikeln (ii) zu besetzen, insbesondere, wenn eines oder vorzugsweise beide der porösen Partikel (i) und der Kohlenstoffpartikel (ii) eine sphäroidale Form aufweisen.

[0077] Die Kohlenstoffpartikel (ii) können somit in Form von sphäroidalen Partikeln vorliegen, die eine

durchschnittliche Sphärität S_{av} von mindestens 0,70, vorzugsweise mindestens 0,85, weiter bevorzugt mindestens 0,90, weiter bevorzugt mindestens 0,92, weiter bevorzugt mindestens 0,93, weiter bevorzugt mindestens 0,94 und besonders bevorzugt mindestens 0,95 aufweisen.

[0078] Die Kohlenstoffpartikel (ii) können ein durchschnittliches Seitenverhältnis von weniger als 3:1, vorzugsweise nicht mehr als 2,5:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 2:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,8:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,6:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,4:1 und besonders bevorzugt nicht mehr als 1,2:1 aufweisen.

[0079] In bevorzugten Ausführungsformen sind die Kohlenstoffpartikel (ii) ausgewählt aus sphäroidalen Grafitpartikeln, die einen D₅₀-Partikeldurchmesser im Bereich von 5 bis 50 µm aufweisen. Weiter bevorzugt sind die Kohlenstoffpartikel (ii) ausgewählt aus sphäroidalen Grafitpartikeln, die einen D₅₀-Partikeldurchmesser im Bereich von 8 bis 25 µm aufweisen. Besonders bevorzugt sind die Kohlenstoffpartikel (ii) aus sphärischen Grafitpartikeln ausgewählt, die einen D₅₀-Partikeldurchmesser im Bereich von 8 bis 25 µm aufweisen, und die porösen Partikel (i) sind aus porösen sphäroidalen Partikeln umfassend Silicium, wie vorstehend beschrieben, ausgewählt.

[0080] Die aktive Schicht der Elektrode umfasst vorzugsweise 60 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 95 Gew.-% und besonders bevorzugt 80 bis 95 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii).

[0081] Die aktive Schicht der Elektrode umfasst geeigneterweise 1 bis 30 Gew.-% der porösen Partikel (i). Vorzugsweise umfasst die aktive Schicht mindestens 2 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 5 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 8 Gew.-% der porösen Partikel (i). Vorzugsweise umfasst die aktive Schicht nicht mehr als 25 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.-% und besonders bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-% der porösen Partikel (i).

[0082] Das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise mindestens 2, mindestens 2,5, mindestens 3, mindestens 3,5 oder mindestens 4. Das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise nicht mehr als 25, nicht mehr als 20, nicht mehr als 15 oder nicht mehr als 10.

[0083] Die aktive Schicht weist geeigneterweise eine Interpartikelporosität von nicht mehr als 30 %, vorzugsweise nicht mehr als 25 % und besonders bevorzugt nicht mehr als 20 % auf. Vorzugsweise

beträgt die Interpartikelporosität der aktiven Schicht mindestens 2 %, weiter bevorzugt mindestens 5 % und besonders bevorzugt mindestens 10 %. Die Gesamtporosität der aktiven Schicht liegt vorzugsweise im Bereich von 10 bis 60 %, weiter bevorzugt 10 bis 50 %, beispielsweise 15 bis 50 %, 20 bis 45 % oder 20 bis 40 %. Die Interpartikelporosität und Gesamtporosität der aktiven Schicht werden geeigneterweise wie vorstehend beschrieben durch Quecksilberporosimetrie bestimmt. Es wurde festgestellt, dass die Kombination der porösen Partikel (i) und der Kohlenstoffpartikel (ii) zusammen mit der Interpartikelporosität in den in dieser Schrift aufgeführten Bereichen ein homogenes Benetzen der aktiven Materialien durch einen Elektrolyten ohne eine übermäßige Verringerung der volumetrischen Energiedichte der aktiven Schicht erleichtert. Dementsprechend werden die Auflade- und Entladeraten der aktiven Schicht auf akzeptablen Niveaus beibehalten und der irreversible Verlust von Metallionen wird verringert.

[0084] Die aktive Schicht der Elektrode weist in einem trockenen, ungeladenen Zustand vorzugsweise eine Dichte im Bereich von 0,6 bis 1,8 g/cm³, weiter bevorzugt 0,65 bis 1,75 g/cm³, weiter bevorzugt 0,7 g/cm³ bis 1,7 g/cm³, 0,75 g/cm³ bis 1,65 g/cm³ oder 0,8 g/cm³ bis 1,6 g/cm³ auf. Optional weist die aktive Schicht der Elektrode eine Dichte von mindestens 0,85 g/cm³, mindestens 0,9 g/cm³, mindestens 0,95 g/cm³, mindestens 1,0 g/cm³ oder mindestens 1,05 g/cm³ auf. Optional weist die aktive Schicht der Elektrode eine Dichte von nicht mehr als 1,55 g/cm³, nicht mehr als 1,5 g/cm³ oder nicht mehr als 1,45 g/cm³ auf. Beispielsweise kann die aktive Schicht der Elektrode eine Dichte von 0,6 g/cm³ bis 0,7 g/cm³, von 0,7 g/cm³ bis 0,8 g/cm³, von 0,8 g/cm³ bis 0,9 g/cm³, von 0,9 g/cm³ bis 1,0 g/cm³, von 1,0 g/cm³ bis 1,1 g/cm³, von 1,1 g/cm³ bis 1,2 g/cm³, von 1,2 g/cm³ bis 1,3 g/cm³, von 1,3 g/cm³ bis 1,4 g/cm³, von 1,4 g/cm³ bis 1,5 g/cm³ oder von 1,5 g/cm³ bis 1,6 g/cm³ aufweisen. Die Dichte der aktiven Schicht kann geeigneterweise durch Messen der Masse und Dicke einer Elektrode bekannter Abmessungen vor und nach der Entfernung der aktiven Schicht aus dem Elektrodenstromabnehmer gemessen werden.

[0085] Es versteht sich, dass eine hochdichte aktive Schicht erwartungsgemäß theoretisch eine hohe Energiedichte bereitstellen würde. Ist die Dichte der aktiven Schicht jedoch zu hoch, dann weist die aktive Schicht keine ausreichende Porosität auf, um den Elektrolyten durch die aktive Schicht dringen zu lassen, was in einer ungleichmäßigen Lithiierung der aktiven Schicht resultiert, die zu Rissbildung der aktiven Schicht und hohem Ionenwiderstand führt. Mit festen Siliciumpartikeln können Elektrodenschichten hoher Dichte erhalten werden, ein wiederholtes Metallisieren und Entmetallisieren des Siliciums führt allerdings zu einer erhöhten Expansion der

Elektrodenschicht und zur elektrischen Trennung von Partikeln. Eine signifikante Elektrodenexpansion kann auch andere Elektrodenkomponenten belasten.

[0086] Herkömmliche Grafitelektroden weisen eine typische Beschichtungsdichte im Bereich von 1,8 bis 2,3 g/cm³ auf. Die Erfinder der vorliegenden Erfindung haben jedoch erkannt, dass mit den erfindungsgemäßigen Elektroden eine optimale Leistung bei einer etwas geringeren Dichte der aktiven Schicht erhalten wird, wobei dennoch höhere volumetrische Energiedichten bei voller Ladung als bei herkömmlichen Elektroden erreicht werden. Die im Vergleich zu Grafitelektroden verringerte Dichte der aktiven Schicht wird durch die signifikant höhere volumetrische Kapazität von Materialien wie Silicium kompensiert. Dementsprechend wurde festgestellt, dass Elektroden, die aktive Schichten aufweisen, die eine Dichte innerhalb der vorstehend identifizierten bevorzugten Bereiche aufweisen, ein optimales Gleichgewicht zwischen volumetrischer Energiedichte, elektrischer Konnektivität und geringer Elektrodenexpansion bereitstellen, während sie gleichzeitig ein gutes Eindringen des Elektrolyten in die aktive Schicht beibehalten.

[0087] Geeigneterweise weist die erfindungsgemäße Elektrode eine aktive Schicht mit einer volumetrischen Energiedichte bei einer ersten vollen Ladung von mindestens 450 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 575 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 600 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 650 mAh/cm³ auf.

[0088] Die erfindungsgemäße Elektrode kann auch durch Schneiden eines Querschnitts durch die aktive Schicht und Durchführen einer Bildanalyse des Querschnitts der aktiven Schicht unter Verwendung von REM-Bildgebung charakterisiert werden. Eine Elektrodenprobe wird durch Schneiden in einer Richtung quer zur planaren Oberfläche der aktiven Schicht abgetrennt und dann in einem REM abgebildet, um Querschnittsbilder der Komponenten und Hohlräume innerhalb der aktiven Schicht bereitzustellen. Zum Identifizieren und Unterscheiden der Flächenabschnitte mit porösen Partikeln und der Flächenabschnitte mit Kohlenstoffpartikeln und zum Berechnen des Feret-Durchmessers und der Sphärität jedes Partikels kann digitale Bildanalysesoftware wie die Open-Source-Software ImageJ verwendet werden. Es kann auch die Gesamtfläche von Hohlräumen und Porenräumen innerhalb des Querschnitts berechnet werden. Geeigneterweise sollten mindestens zwei oder mehr Querschnitte der Elektrode parallel zueinander und gleichmäßig beabstandet hergestellt werden. Geeigneterweise werden mindestens 3, vorzugsweise mindestens 5, weiter bevorzugt mindestens 10 Querschnitte gemessen. Der Abstand zwischen jedem der Querschnitte

beträgt geeigneterweise mindestens 20 µm. Die durchschnittlichen Feret-Durchmesser und durchschnittlichen Sphärizitätswerte werden als Durchschnitt des Wertes aller über die Vielzahl von Querschnitten gemessenen Partikel berechnet.

[0089] Beispielsweise kann die erfindungsgemäße Elektrode unter Bezugnahme auf den durchschnittlichen maximalen Feret-Durchmesser der porösen Partikel (i) charakterisiert werden, die in dem Querschnitt der aktiven Schicht (in dieser Schrift als $F_{max}PP$ bezeichnet) beobachtbar sind. Geeigneterweise liegt $F_{max}PP$ im Bereich von 0,5 bis 18 µm. Optional kann $F_{max}PP$ mindestens 0,8 µm, mindestens 1 µm, mindestens 1,5 µm, mindestens 2 µm, mindestens 2,5 µm oder mindestens 3 µm betragen. Optional kann $F_{max}PP$ nicht mehr als 15 µm, nicht mehr als 12 µm, nicht mehr als 10 µm, nicht mehr als 8 µm, nicht mehr als 7 µm, nicht mehr als 6,5 µm, nicht mehr als 6 µm, nicht mehr als 5,5 µm, nicht mehr als 5 µm, nicht mehr als 4,5 µm, nicht mehr als 4 µm oder nicht mehr als 3,5 µm betragen.

[0090] Die erfindungsgemäße Elektrode kann unter Bezugnahme auf den durchschnittlichen minimalen Feret-Durchmesser der porösen Partikel (i) charakterisiert werden, die in dem Querschnitt der aktiven Schicht (in dieser Schrift als $F_{min}PP$ bezeichnet) beobachtbar sind. Geeigneterweise kann $F_{min}PP$ mindestens 0,1 µm, mindestens 0,2 µm, mindestens 0,3 µm, mindestens 0,4 µm, mindestens 0,5 µm, mindestens 0,6 µm, mindestens 0,8 µm oder mindestens 1 µm betragen. Optional beträgt $F_{min}PP$ nicht mehr als 15 µm, nicht mehr als 12 µm, nicht mehr als 10 µm, nicht mehr als 8 µm, nicht mehr als 6 µm, nicht mehr als 5 µm, nicht mehr als 4,5 µm, nicht mehr als 4 µm, nicht mehr als 3,5 µm, nicht mehr als 3 µm oder nicht mehr als 2,5 µm. Optional kann der Wert von $F_{min}PP$ mindestens 50 % des Wertes von $F_{max}PP$ betragen, beispielsweise mindestens 60 %, mindestens 70 %, mindestens 80 %, mindestens 90 % oder mindestens 95 % des Wertes von $F_{max}PP$.

[0091] Zur Vermeidung von Zweifeln bezieht sich der Begriff „minimaler Feret-Durchmesser“, wie in dieser Schrift verwendet, auf den maximalen Abstand zwischen einem Paar paralleler Linien tangential zu der zweidimensionalen Projektion eines Partikels. Der Begriff „durchschnittlicher maximaler Feret-Durchmesser“ oder „ F_{max} “, wie in dieser Schrift verwendet, bezieht sich auf den mittleren zahlenmittelten maximalen Feret-Durchmesser. Ebenso bezieht sich der Begriff „minimaler Feret-Durchmesser“, wie in dieser Schrift verwendet, auf den minimalen Abstand zwischen einem Paar paralleler Linien tangential zu der zweidimensionalen Projektion eines Partikels. Der Begriff „durchschnittlicher minimaler Feret-Durchmesser“ oder „ F_{min} “, wie in dieser Schrift verwendet, bezieht sich auf den mittleren zahlenmittelten minimalen Feret-Durchmesser, wie

anhand von mindestens 3, vorzugsweise 5 und besonders bevorzugt 10 Querschnitten der aktiven Schicht einer Elektrode berechnet.

[0092] Der durchschnittliche maximale Feret-Durchmesser der Kohlenstoffpartikel (ii), die in dem Querschnitt der aktiven Schicht beobachtbar sind (in dieser Schrift als $F_{max}C$ bezeichnet), liegt geeigneterweise im Bereich von 1 bis 50 µm. Vorzugsweise beträgt $F_{max}C$ mindestens 2 µm, mindestens 5 µm, mindestens 7 µm, mindestens 8 µm, mindestens 10 µm, mindestens 12 µm oder mindestens 15 µm. Vorzugsweise beträgt $F_{max}C$ nicht mehr als 45 µm, nicht mehr als 40 µm, nicht mehr als 35 µm, nicht mehr als 30 µm oder nicht mehr als 25 µm.

[0093] Der durchschnittliche minimale Feret-Durchmesser der Kohlenstoffpartikel (ii), die in dem Querschnitt der aktiven Schicht beobachtbar sind (in dieser Schrift als $F_{min}C$ bezeichnet), beträgt geeigneterweise mindestens 0,5 µm, mindestens 1 µm, mindestens 2 µm, mindestens 5 µm, mindestens 8 µm, mindestens 10 µm, mindestens 12 µm oder mindestens 15 µm. Optional beträgt $F_{min}C$ nicht mehr als 40 µm, nicht mehr als 35 µm, nicht mehr als 30 µm oder nicht mehr als 20 µm. Optional kann der Wert von $F_{min}C$ mindestens 50 % des Wertes von $F_{max}C$ betragen, beispielsweise mindestens 60 %, mindestens 70 %, mindestens 80 %, mindestens 90 % oder mindestens 95 % des Wertes von $F_{max}C$.

[0094] Die aktive Schicht der erfindungsgemäßen Elektrode kann auch unter Bezugnahme auf den durchschnittlichen Prozentsatz der Querschnittsfläche der aktiven Schicht definiert werden, die von den porösen Partikeln (i), einschließlich deren Intrapartikelporen, den Kohlenstoffpartikeln (ii) und den Interpartikelporen als ein Prozentsatz der von der aktiven Schicht im Querschnitt eingenommenen Gesamtfläche eingenommen wird. Geeigneterweise kann die durchschnittliche prozentuale Querschnittsfläche der aktiven Schicht, die von den porösen Partikeln (i), einschließlich Intrapartikelporen, den Kohlenstoffpartikeln (ii) und den Interpartikelporen eingenommen wird, mittels REM-Bildgebung gemessen werden und wird in dieser Schrift als mittlerer Durchschnitt von mindestens drei Querschnitten der aktiven Schicht, die eine durch die Dicke der aktiven Schicht definierte Querschnittsfläche und einer Querbreite von mindestens 100 µm aufweist, angegeben. Die prozentuale durchschnittliche Querschnittsfläche der aktiven Schicht, die von den porösen Partikeln (i), einschließlich deren Intrapartikelporen, eingenommen wird, liegt vorzugsweise im Bereich von 1 % bis 25 %, weiter bevorzugt 2 % bis 20 %, weiter bevorzugt 5 % bis 20 % und besonders bevorzugt 5 % bis 15 %.

[0095] Die prozentuale durchschnittliche Querschnittsfläche der aktiven Schicht, die von den Koh-

lenstoffpartikeln (ii) eingenommen wird, liegt vorzugsweise im Bereich von 40 % bis 85 %, weiter bevorzugt 45 % bis 85 %, weiter bevorzugt 45 % bis 80 % und besonders bevorzugt 45 % bis 75 %. Die prozentuale durchschnittliche Querschnittsfläche der aktiven Schicht, die von den Interpartikelporen der aktiven Schicht eingenommen wird, liegt vorzugsweise im Bereich von 2 % bis 30 %, weiter bevorzugt 2 % bis 25 %, weiter bevorzugt 5 % bis 25 %, weiter bevorzugt 10 % bis 25 % und besonders bevorzugt 10 % bis 20 %.

[0096] Die aktive Schicht kann optional ein Bindemittel umfassen. Ein Bindemittel dient dazu, die Komponenten der aktiven Schicht an einen Stromabnehmer zu haften und die Integrität der aktiven Schicht beizubehalten. Beispiele von Bindemitteln, die gemäß der vorliegenden Erfindung verwendet werden können, beinhalten Polyvinylidenfluorid (PVDF), Polyacrylsäure (PAA) und Alkalimetallsalze davon, modifizierte Polyacrylsäure (mPAA) und Alkalimetallsalze davon, Carboxymethylcellulose (CMC), modifizierte Carboxymethylcellulose (mCMC), Natriumcarboxymethylcellulose (Na-CMC), Polyvinylalkohol (PVA), Alginate und Alkalimetallsalze davon, Styrol-Butadien-Kautschuk (SBR) und Polyimid. Die aktive Schicht kann eine Mischung von Bindemitteln umfassen. Vorzugsweise umfasst das Bindemittel Polymere, ausgewählt aus Polyacrylsäure (PAA) und Alkalimetallsalzen davon und modifizierter Polyacrylsäure (mPAA) und Alkalimetallsalzen davon, SBR und CMC.

[0097] Das Bindemittel kann geeigneterweise in einer Menge von 0,5 bis 20 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 10 Gew.-% und besonders bevorzugt 1 bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der aktiven Schicht, vorhanden sein.

[0098] Das Bindemittel kann optional in Kombination mit einem oder mehreren Zusatzstoffen vorhanden sein, die die Eigenschaften des Bindemittels modifizieren, wie Vernetzungsbeschleuniger, Haftvermittler und/oder Klebebeschleuniger.

[0099] Die aktive Schicht kann optional einen oder mehrere leitfähige Zusatzstoffe umfassen. Bevorzugte leitfähige Zusatzstoffe sind nicht elektroaktive Materialien, die beinhaltet sind, um die elektrische Leitfähigkeit zwischen den elektroaktiven Komponenten der aktiven Schicht und zwischen den elektroaktiven Komponenten der aktiven Schicht und dem Stromabnehmer zu verbessern. Die leitfähigen Zusatzstoffe können geeigneterweise aus Industrieruß, Kohlenstofffasern, Kohlenstoff-Nanoröhren, Acetylenruß, Ketjenruß, Graphen, Nanographenplättchen, Metallfasern, Metallpulvern und leitfähigen Metalloxiden ausgewählt werden. Bevorzugte leitfähige Zusatzstoffe beinhalten Industrieruß, Kohlenstofffasern und Kohlenstoff-Nanoröhren.

[0100] Der eine oder die mehreren leitfähigen Zusatzstoffe können geeigneterweise in einer Gesamtmenge von 0,5 bis 20 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 15 Gew.-% und besonders bevorzugt 2 bis 10 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der aktiven Schicht, vorhanden sein.

[0101] Die aktive Schicht weist geeigneterweise eine Dicke im Bereich von 15 µm bis 2 mm, vorzugsweise 15 µm bis 1 mm, vorzugsweise 15 µm bis 500 µm, vorzugsweise 15 µm bis 200 µm, vorzugsweise 20 µm bis 100 µm, vorzugsweise 20 µm bis 60 µm auf.

[0102] Wie in dieser Schrift verwendet, bezieht sich der Begriff Stromabnehmer auf jegliches leitfähige Substrat, das in der Lage ist, einen Strom zu und von den elektroaktiven Partikeln in der Elektrodenzusammensetzung zu tragen. Beispiele von Materialien, die als der Stromabnehmer verwendet werden können, beinhalten Kupfer, Aluminium, Edelstahl, Nickel, Titan und gesinterten Kohlenstoff oder Legierungen oder Mischungen davon. Ein bevorzugtes Material ist Kupfer. Vorzugsweise ist die Oberfläche des Stromabnehmers behandelt, um die Haftung der aktiven Schicht zu erhöhen, beispielsweise durch eine Behandlung zum Aufrauen der Oberfläche des Stromabnehmers. Der Stromabnehmer liegt typischerweise in Form einer Folie oder eines Netzes mit einer Dicke zwischen 3 und 100 µm vor. Der Stromabnehmer kann ein- oder beidseitig mit einer erfindungsgemäßen aktiven Schicht beschichtet sein.

[0103] In einem zweiten Aspekt stellt die vorliegende Erfindung eine Elektrodenzusammensetzung bereit, umfassend:

(i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Germanium, Zinn und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 µm und eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen;

(ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 µm; und

wobei die Elektrodenzusammensetzung mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung, umfasst und wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt.

[0104] Die porösen Partikel (i) und die Kohlenstoffpartikel (ii) der Elektrodenzusammensetzung des

zweiten erfindungsgemäßen Aspekts können jedes der Merkmale aufweisen, die unter Bezugnahme auf den ersten erfindungsgemäßen Aspekt als bevorzugt oder optional beschrieben sind.

[0105] Vorzugsweise umfasst die Elektrodenzusammensetzung 60 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 95 Gew.-% und weiter bevorzugt 80 bis 95 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

[0106] Vorzugsweise umfasst die Elektrodenzusammensetzung 1 bis 30 Gew.-% der porösen Partikel (i), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung. Vorzugsweise umfasst die Elektrodenzusammensetzung mindestens 2 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 5 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 8 Gew.-% der porösen Partikel (i), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung. Vorzugsweise umfasst die aktive Schicht nicht mehr als 25 Gew.-% und besonders bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.-%, beispielsweise nicht mehr als 15 Gew.-% der porösen Partikel (i), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

[0107] Das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise mindestens 2, mindestens 2,5, mindestens 3, mindestens 3,5 oder mindestens 4. Das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) beträgt vorzugsweise nicht mehr als 25, nicht mehr als 20, nicht mehr als 15 oder nicht mehr als 10.

[0108] Die Elektrodenzusammensetzung kann optional ein Bindemittel oder eine Bindemittelvorstufe umfassen. Beispiele von Bindemitteln, die gemäß der vorliegenden Erfindung verwendet werden können, beinhalten Polyvinylidenfluorid (PVDF), Polyacrylsäure (PAA) und Alkalimetallsalze davon, modifizierte Polyacrylsäure (mPAA) und Alkalimetallsalze davon, Carboxymethylcellulose (CMC), modifizierte Carboxymethylcellulose (mCMC), Natriumcarboxymethylcellulose (Na-CMC), Polyvinylalkohol (PVA), Alginate und Alkalimetallsalze davon, Styrol-Butadien-Kautschuk (SBR) und Polyimid. Die Elektrodenzusammensetzung kann eine Mischung von Bindemitteln umfassen. Vorzugsweise umfasst das Bindemittel Polymere, ausgewählt aus Polyacrylsäure (PAA) und Alkalimetallsalzen davon und modifizierter Polyacrylsäure (mPAA) und Alkalimetallsalzen davon, SBR und CMC.

[0109] Das Bindemittel kann geeigneterweise in einer Menge von 0,5 bis 20 Gew.-%, vorzugsweise 0,5 bis 10 Gew.-% und besonders bevorzugt 1 bis 5

Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung, vorhanden sein.

[0110] Das Bindemittel kann optional in Kombination mit einem oder mehreren Zusatzstoffen vorhanden sein, die die Eigenschaften des Bindemittels modifizieren, wie Vernetzungsbeschleuniger, Haftvermittler und/oder Klebebeschleuniger.

[0111] Die Elektrodenzusammensetzung kann optional einen oder mehrere leitfähige Zusatzstoffe umfassen. Bevorzugte leitfähige Zusatzstoffe sind nicht elektroaktive Materialien, die beinhaltet sind, um die elektrische Leitfähigkeit zwischen den elektroaktiven Komponenten der aktiven Schicht und zwischen den elektroaktiven Komponenten der aktiven Schicht und einem Stromabnehmer zu verbessern. Die leitfähigen Zusatzstoffe können geeigneterweise aus Industrieruß, Kohlenstofffasern, Kohlenstoff-Nanoröhren, Acetylenruß, Ketjenruß, Graphen, Graphen-Nanoplättchen, Metallfasern, Metallpulvern und leitfähigen Metalloxiden ausgewählt werden. Bevorzugte leitfähige Zusatzstoffe beinhalten Industrieruß und Kohlenstoff-Nanoröhren.

[0112] Der eine oder die mehreren leitfähigen Zusatzstoffe können geeigneterweise in einer Gesamtmenge von 0,5 bis 20 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 15 Gew.-% und besonders bevorzugt 2 bis 10 Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung, vorhanden sein.

[0113] Die Elektrodenzusammensetzung kann optional ein Lösungsmittel umfassen. Somit kann die Elektrodenzusammensetzung optional in Form einer Aufschlammung oder einer Suspension vorliegen. Das Lösungsmittel kann Wasser oder ein organisches Lösungsmittel sein. Beispiele für geeignete organische Lösungsmittel beinhalten N-Methylpyrrolidon, N,N-Dimethylformamid, N,N-Diethylformamid, Dimethylsulfoxid, Tetrahydrofuran und C₁-C₄-Alkohole. Wie vorstehend erwähnt, wird das Lösungsmittel bei der Angabe der Gewichtsprozente der festen Bestandteile der Elektrodenzusammensetzung nicht berücksichtigt.

[0114] In einem dritten Aspekt stellt die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Herstellung einer Elektrode bereit, wobei das Verfahren Folgendes umfasst:

- (i) Herstellen einer Aufschlammung, umfassend eine Elektrodenzusammensetzung, wie unter Bezugnahme auf den zweiten erfindungsgemäßen Aspekt der Erfindung definiert, und ein Lösungsmittel beinhaltend;
- (ii) Gießen der Aufschlammung auf die Oberfläche eines Stromabnehmers; und
- (iii) Entfernen des Lösungsmittels zum Bilden einer aktiven Schicht in elektrischem Kontakt mit dem Stromabnehmer.

[0115] Die Elektrodenzusammensetzung und der Stromabnehmer, die in dem Verfahren des dritten erfindungsgemäßen Aspekts verwendet werden, können jedes der Merkmale aufweisen, die unter Bezugnahme auf den ersten und/oder zweiten erfindungsgemäßen Aspekt als bevorzugt oder optional beschrieben sind.

[0116] Vorzugsweise umfasst die Elektrodenzusammensetzung ein Bindemittel, wie vorstehend definiert. Vorzugsweise umfasst die Elektrodenzusammensetzung mindestens einen leitfähigen Zusatzstoff, wie vorstehend definiert.

[0117] Das Verfahren des dritten erfindungsgemäßen Aspekts kann optional weitere Verarbeitungsschritte umfassen, wie eine Wärmebehandlung, um beispielsweise eventuell in der aktiven Schicht vorhandenes Bindemittel zu härten oder heiß zu fixieren, und/oder ein Ausüben von Druck auf die aktive Schicht (z. B. mittels einer Presse oder Walze), um diese zu verdichten.

[0118] In einem vierten Aspekt stellt die vorliegende Erfindung ein Verfahren zur Herstellung einer Elektrode bereit, wobei das Verfahren Folgendes umfasst:

- (i) Herstellen einer Aufschlämmlung, umfassend eine Elektrodenzusammensetzung, wie unter Bezugnahme auf den zweiten erfindungsgemäßen Aspekt der Erfindung definiert, und ein Lösungsmittel beinhaltend;
- (ii) Gießen der Aufschlämmlung auf eine Schablone;
- (iii) Entfernen des Lösungsmittels, um eine freistehende Folie oder Matte zu bilden, die die Elektrodenzusammensetzung umfasst; und
- (iv) Befestigen der freistehenden Folie oder Matte aus Schritt (iii) an einem Stromabnehmer, um eine aktive Schicht in elektrischem Kontakt mit dem Stromabnehmer zu bilden.

[0119] Die Elektrodenzusammensetzung und der Stromabnehmer, die in dem Verfahren des vierten erfindungsgemäßen Aspekts verwendet werden, können jedes der Merkmale aufweisen, die unter Bezugnahme auf den ersten und/oder zweiten erfindungsgemäßen Aspekt als bevorzugt oder optional beschrieben sind.

[0120] Vorzugsweise umfasst die Elektrodenzusammensetzung ein Bindemittel wie vorstehend definiert. Vorzugsweise umfasst die Elektrodenzusammensetzung mindestens einen leitfähigen Zusatzstoff, wie vorstehend definiert.

[0121] Das Verfahren des vierten erfindungsgemäßen Aspekts kann optional weitere Verarbeitungsschritte umfassen, wie eine Wärmebehandlung, um

beispielsweise eventuell in der aktiven Schicht vorhandenes Bindemittel zu härten oder heiß zu fixieren, und/oder ein Ausüben von Druck auf die aktive Schicht (z. B. mittels einer Presse oder Walze), um diese zu verdichten. Derartige Schritte können während der Bildung der die Elektrodenzusammensetzung umfassenden freistehenden Folie oder Matte in Schritt (iii) und/oder nach dem Befestigen der die Elektrodenzusammensetzung umfassenden freistehenden Folie oder Matte an dem Stromabnehmer in Schritt (iv) durchgeführt werden.

[0122] Vorzugsweise umfassen die Verfahren des dritten und vierten erfindungsgemäßen Aspekts den Schritt des Verdichtens der aktiven Schicht aus Schritt (iii), um eine Dichte der aktiven Schicht im Bereich von 0,6 bis 1,8 g/cm³ zu erhalten. Gemäß dem vierten erfindungsgemäßen Aspekt kann der Verdichtungsschritt vor oder nach Schritt (iv) durchgeführt werden.

[0123] Vorzugsweise liegt die in dem Verdichtungsschritt erhaltene Dichte der aktiven Schicht im Bereich von 0,65 bis 1,75 g/cm³, weiter bevorzugt 0,7 g/cm³ bis 1,7 g/cm³, 0,75 g/cm³ bis 1,65 g/cm³ oder 0,8 g/cm³ bis 1,6 g/cm³. Optional beträgt die in dem Verdichtungsschritt erhaltene Dichte der aktiven Schicht mindestens 0,85 g/cm³, mindestens 0,9 g/cm³, mindestens 0,95 g/cm³, mindestens 1,0 g/cm³ oder mindestens 1,05 g/cm³. Optional beträgt die in dem Verdichtungsschritt erhaltene Dichte der aktiven Schicht nicht mehr als 1,55 g/cm³, nicht mehr als 1,5 g/cm³ oder nicht mehr als 1,45 g/cm³. Beispielsweise beträgt die in dem Verdichtungsschritt erhaltene Dichte der aktiven Schicht 0,6 g/cm³ bis 0,7 g/cm³, 0,7 g/cm³ bis 0,8 g/cm³, 0,8 g/cm³ bis 0,9 g/cm³, 0,9 g/cm³ bis 1,0 g/cm³, 1,0 g/cm³ bis 1,1 g/cm³, 1,1 g/cm³ bis 1,2 g/cm³, 1,2 g/cm³ bis 1,3 g/cm³, 1,3 g/cm³ bis 1,4 g/cm³, 1,4 g/cm³ bis 1,5 g/cm³ oder 1,5 g/cm³ bis 1,6 g/cm³.

[0124] Die Elektrode des ersten Aspekts der Erfindung kann als die Anode einer Metallionenbatterie verwendet werden. Somit stellt die vorliegende Erfindung in einem fünften Aspekt eine wiederaufladbare Metallionenbatterie bereit, umfassend: (i) eine Anode, wobei die Anode eine Elektrode wie unter Bezugnahme auf den ersten erfindungsgemäßen Aspekt beschrieben umfasst; (ii) eine Kathode, umfassend ein aktives Kathodenmaterial, das in der Lage ist, Metallionen freizusetzen und wieder zu absorbieren; und (iii) einen Elektrolyten zwischen der Anode und der Kathode.

[0125] Die Metallionen werden vorzugsweise aus Lithium, Natrium, Kalium, Calcium oder Magnesium ausgewählt. Weiter bevorzugt ist die wiederaufladbare erfindungsgemäße Metallionenbatterie eine Lithiumionenbatterie und das aktive Kathodenmaterial ist in der Lage, Lithiumionen freizusetzen. Das

aktive Kathodenmaterial ist vorzugsweise ein Verbundwerkstoff auf Metalloxidbasis. Beispiele von geeigneten aktiven Kathodenmaterialien beinhalten LiCoO_2 , $\text{LiCo}_{0,99}\text{Al}_{0,01}\text{O}_2$, LiNiO_2 , LiMnO_2 , $\text{LiCo}_{0,5}\text{Ni}_{0,5}\text{O}_2$, $\text{LiCo}_{0,7}\text{Ni}_{0,3}\text{O}_2$, $\text{LiCo}_{0,8}\text{Ni}_{0,2}\text{O}_2$, $\text{LiCo}_{0,82}\text{Ni}_{0,18}\text{O}_2$, $\text{LiCo}_{0,8}\text{Ni}_{0,15}\text{Al}_{0,05}\text{O}_2$, $\text{LiNi}_{0,4}\text{Co}_{0,3}\text{Mn}_{0,3}\text{O}_2$ und $\text{LiNi}_{0,33}\text{Co}_{0,33}\text{Mn}_{0,34}\text{O}_2$. Der Kathodenstromabnehmer ist im Allgemeinen von einer Dicke zwischen 3 und 500 μm . Beispiele von Materialien, die als der Kathodenstromabnehmer verwendet werden können, beinhalten Aluminium, Edelstahl, Nickel, Titan und gesinterten Kohlenstoff.

[0126] Der Elektrolyt ist geeigneterweise ein nichtwässriger Elektrolyt, der ein Metallsalz, z. B. ein Lithiumsalz, enthält, und kann, ohne Einschränkung, nichtwässrige Elektrolytlösungen, Festkörperelektrolyte und anorganische Festkörperelektrolyte beinhalten. Beispiele von nichtwässrigen Elektrolytlösungen, die verwendet werden können, beinhalten nichtprotische organische Lösungsmittel wie Propylencarbonat, Ethylenkarbonat, Butylencarbonate, Dimethylcarbonat, Diethylcarbonat, Gamma-Butyrolacton, 1,2-Dimethoxyethan, 2-Methyltetrahydrofuran, Dimethylsulfoxid, 1,3-Dioxolan, Formamid, Dimethylformamid, Acetonitril, Nitromethan, Methylformiat, Methylacetat, Phosphorsäuretriester, Trimethoxymethan, Sulfolan, Methylsulfolan und 1,3-Dimethyl-2-imidazolidinon.

[0127] Beispiele von organischen Festkörperelektrolyten beinhalten Polyethylenderivate, Polyethylenoxidderivate, Polypropylenoxidderivate, Phosphorsäureesterpolymere, Polyestersulfid, Polyvinylalkohole, Polyvinylidenfluorid und Polymere, die ionisch dissoziierende Gruppen enthalten. Beispiele von anorganischen Festkörperelektrolyten beinhalten Nitride, Halogenide und Sulfide von Lithiumsalzen, wie Li_5Nl_2 , Li_3N , LiI , LiSiO_4 , Li_2SiS_3 , Li_4SiO_4 , LiOH und Li_3PO_4 .

[0128] Das Lithiumsalz ist geeigneterweise in dem gewählten Lösungsmittel oder der gewählten Lösungsmittelmischung löslich. Beispiele von geeigneten Lithiumsalzen beinhalten LiCl , LiBr , LiI , LiClO_4 , LiBF_4 , LiBC_4O_8 , LiPF_6 , LiCF_3SO_3 , LiAsF_6 , LiSbF_6 , LiAlCl_4 , $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{Li}$ und $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{Li}$.

[0129] Ist der Elektrolyt eine nichtwässrige organische Lösung, wird die Batterie vorzugsweise mit einem zwischen der Anode und der Kathode eingefügten Separator bereitgestellt. Der Separator ist typischerweise aus einem isolierenden Material mit hoher Ionenpermeabilität und hoher mechanischer Festigkeit gebildet. Der Separator weist typischerweise einen Porendurchmesser zwischen 0,01 und 100 μm und eine Dicke zwischen 5 und 300 μm auf. Beispiele von geeigneten Elektrodenseparatoren beinhalten einen mikroporösen Polyethylenfilm.

[0130] Der Separator kann durch ein Polymerelektrolytmaterial ersetzt werden und in solchen Fällen ist das Polymerelektrolytmaterial sowohl in der Verbundanodenschicht als auch der Verbundkathoden- schicht vorhanden. Das Polymerelektrolytmaterial kann ein fester Polymerelektrolyt oder ein Polymer- elektrolyt vom Geltyp sein.

[0131] In einem sechsten Aspekt stellt die Erfindung die Verwendung einer Elektrodenzusammensetzung, wie unter Bezugnahme auf den zweiten erfindungsgemäßen Aspekt definiert, als aktives Anoden- material bereit.

Beispielhafte Verfahren zur Herstellung von porösen Partikeln

[0132] Umfassen die porösen Partikel (i) Silicium oder Germanium, können sie durch Auslaugen einer Metallmatrix aus Legierungspartikeln, die in einer Metallmatrix elektroaktive Materialstrukturen enthalten, hergestellt werden. Die porösen Partikel können durch ein Verfahren hergestellt werden, das folgende Schritte umfasst:

(a) Bereitstellen einer Vielzahl von Legierungspartikeln, wobei die Legierungspartikel durch Kühlen einer geschmolzenen Legierung erhalten werden, umfassend: (i) 11 bis 30 Gew.-% einer elektroaktiven Materialkomponente, ausgewählt aus Silicium, Germanium und Mischungen davon; und (ii) eine Matrixmetallkomponente, wobei die Legierungspartikel einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 7 μm aufweisen und wobei die Legierungspartikel diskrete elektroaktives Material enthaltende Strukturen umfassen, die in der Matrixmetallkomponente dispergiert sind;

(b) Auslaugen der Legierungspartikel aus Schritt (a) zum Entfernen mindestens eines Teils der Matrixmetallkomponente und zum mindestens teilweisen Freilegen der elektroaktives Material enthaltenden Strukturen;

wobei die porösen Partikel nicht mehr als 40 Gew.-% der Matrixmetallkomponente umfassen. Dieser Prozess beruht auf der Beobachtung, dass kristallines elektroaktives Material enthaltende Strukturen innerhalb einer Matrixmetallkomponente ausgefällt werden, wenn bestimmte Legierungen abgekühlt werden. Diese Legierungen sind solche, bei denen die Löslichkeit der elektroaktiven Materialien in dem Material Metall gering ist und bei denen beim Abkühlen keine oder nur eine geringe Ausbildung von Intermetallen auftritt. Es wurde festgestellt, dass durch Steuern der Konzentration des elektroaktiven Materials in der Legierung in dem vorstehend angegebenen Bereich ein partikuläres Material erhalten wird, das eine Porosität und andere strukturelle Eigen- schaften aufweist, die insbesondere für den Einsatz

in hybriden Anoden für Lithiumionenbatterien geeignet sind.

[0133] Vorzugsweise weisen die Legierungspartikel Partikelabmessungen auf, die den in dieser Schrift offenbarten Abmessungen der porösen Partikel (i) entsprechen. Somit weisen die Legierungspartikel geeigneterweise einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von $0,5 \mu\text{m}$ bis $40 \mu\text{m}$ und einen bevorzugten D_{10} -, D_{50} -, D_{90} - und D_{99} -Partikeldurchmesser wie vorstehend für die porösen Partikel (i) offenbart auf.

[0134] Bei den Legierungspartikeln handelt es sich vorzugsweise um sphäroidale Partikel. Somit weisen die Legierungspartikel vorzugsweise eine durchschnittliche Sphärizität von mindestens 0,70, weiter bevorzugt mindestens 0,85, weiter bevorzugt mindestens 0,90, weiter bevorzugt mindestens 0,92, weiter bevorzugt mindestens 0,93, weiter bevorzugt mindestens 0,94, weiter bevorzugt mindestens 0,95, weiter bevorzugt mindestens 0,96, weiter bevorzugt mindestens 0,97, weiter bevorzugt mindestens 0,98 und besonders bevorzugt mindestens 0,99 auf.

[0135] Das durchschnittliche Seitenverhältnis der Legierungspartikel beträgt vorzugsweise weniger als 3:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 2,5:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 2:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,8:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,6:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,4:1 und besonders bevorzugt nicht mehr als 1,2:1.

[0136] Ein bevorzugter Bestandteil des elektroaktiven Materials ist Silicium. Somit umfasst die elektroaktive Materialkomponente der Legierungspartikel vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 95 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 98 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 99 Gew.-% Silicium.

[0137] Die Legierungspartikel umfassen vorzugsweise mindestens 11,2 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 11,5 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 11,8 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 12 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 12,2 Gew.-% der elektroaktiven Materialkomponente. Beispielsweise können die Legierungspartikel mindestens 12,2 Gew.-%, mindestens 12,4 Gew.-%, mindestens 12,6 Gew.-%, mindestens 12,8 Gew.-% oder mindestens 13 Gew.-% der elektroaktiven Materialkomponente umfassen. Vorzugsweise umfassen die Legierungspartikel weniger als 27 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 24 Gew.-% und weiter bevorzugt weniger als 18 Gew.-% der elektroaktiven Materialkomponente. Die Menge an elektroaktivem Material in den Legierungspartikeln wird natürlich durch die gewünschte Struktur der porösen Partikel, einschließlich der gewünschten Porosität und Porengröße der porösen Partikel, und die Abmessungen der Strukturelemente vorgegeben.

[0138] Die Matrixmetallkomponente ist geeigneterweise ausgewählt aus Al, Sb, Cu, Mg, Zn, Mn, Cr, Co, Mo, Ni, Be, Zr, Fe, Sn, Ru, Ag, Au und Kombinationen davon. Vorzugsweise umfasst die Matrixmetallkomponente eines oder mehrere von Al, Ni, Ag oder Cu. Weiter bevorzugt umfasst die Matrixmetallkomponente mindestens 50 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 60 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 70 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 90 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 95 Gew.-% eines oder mehrerer von Al, Ni, Ag oder Cu.

[0139] Eine bevorzugte Matrixmetallkomponente ist Aluminium. Somit kann die Matrixmetallkomponente Aluminium oder eine Kombination von Aluminium mit einem oder mehreren zusätzlichen Metallen oder Seltenen Erden sein, beispielsweise eines oder mehrere von Sb, Cu, Mg, Zn, Mn, Cr, Co, Mo, Ni, Be, Zr, Fe, Na, Sr, P, Sn, Ru, Ag und Au, wobei die Kombination mindestens 50 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 60 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 70 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 90 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 95 Gew.-% Aluminium umfasst. Weiter bevorzugt ist die Matrixmetallkomponente ausgewählt aus Aluminium oder einer Kombination von Aluminium mit Kupfer und/oder Silber und/oder Nickel, wobei die Kombination mindestens 50 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 60 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 70 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 90 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 95 Gew.-% Aluminium umfasst.

[0140] Vorzugsweise ist das elektroaktive Material Silicium oder eine Kombination aus Silicium und Germanium, wobei die Kombination mindestens 90 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 95 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 98 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 99 Gew.-% Silicium umfasst, und ist die Matrixmetallkomponente Aluminium oder eine Kombination von Aluminium mit einem oder mehreren von Sb, Cu, Mg, Zn, Mn, Cr, Co, Mo, Ni, Be, Zr, Fe, Na, Sr, P, Sn, Ru, Ag und Au, wobei die Kombination mindestens 90 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 95 Gew.-% Aluminium umfasst.

[0141] Besonders bevorzugt ist das elektroaktive Material Silicium und die Matrixmetallkomponente Aluminium. Silicium-Aluminium-Legierungen sind auf dem Gebiet der Metallurgie gut bekannt und weisen eine Reihe von nützlichen Eigenschaften, einschließlich ausgezeichneter Verschleißbeständigkeit, Gießbarkeit, Schweißbarkeit und geringem Schwund, auf. Sie werden überall dort in der Industrie in großem Ausmaß verwendet, wo diese Eigenschaften erwünscht sind, beispielsweise bei Motorblöcken und Zylinderköpfen für Kraftfahrzeuge.

[0142] Es versteht sich, dass Aluminium und Silicium in metallurgischer Qualität geringe Mengen an anderen Elementen als Verunreinigungen umfassen können, einschließlich der in dieser Schrift als optionale Bestandteile der Legierungspartikel identifizierten. Wird in dieser Schrift angegeben, dass das elektroaktive Material Silicium ist und die Matrixmetallkomponente Aluminium ist, ist zur Vermeidung von Zweifeln nicht ausgeschlossen, dass die Legierungspartikel geringe Mengen an anderen Elementen umfassen können, mit der Maßgabe, dass die Gesamtmenge an derartigen zusätzlichen Elementen weniger als 5 Gew.-%, weiter bevorzugt 2 Gew.-% und besonders bevorzugt weniger als 1 Gew.-% beträgt. Mengen an elektroaktiven Materialien, wie in dieser Schrift angegeben, sind nicht so auszulegen, dass sie Verunreinigungen beinhalten.

[0143] Silicium hat eine vernachlässigbare Löslichkeit in festem Aluminium und bildet mit Aluminium keine Intermetalle. Somit umfassen Aluminium-Silicium-Legierungspartikel diskrete Siliciumstrukturen, die in einer Aluminiummatrix dispergiert sind. Es wurde festgestellt, dass durch Beibehalten der Konzentration von Silicium in den Legierungspartikeln in den in dieser Schrift aufgeführten Bereichen die nach dem Auslaugen erhaltenen porösen Partikel eine spezifische Mikrostruktur aufweisen, die für die Verwendung in hybriden Elektroden für Metallionenbatterien besonders vorteilhaft ist.

[0144] Der eutektische Punkt einer Silicium-Aluminium-Legierung liegt bei einer Konzentration von ca. 12,6 Gew.-% Silicium. Es wurde festgestellt, dass das Vorhandensein von Silicium in einer Menge signifikant über der eutektischen Zusammensetzung im Falle einer Silicium-Aluminium-Legierung zur Bildung größerer Silicium-Elemente innerhalb der Legierungspartikel führen kann. Beispielsweise können bei einer Siliciummenge in den Legierungspartikeln im Bereich von 20 bis 30 Gew.-% und insbesondere im Bereich von 24 bis 30 Gew.-% nach dem Auslaugen der Matrixmetallkomponente grobe Primärphasen-Siliciumdomänen beobachtet werden. Die Größe derartiger Primärphasenstrukturen ist abhängig von der Abkühlgeschwindigkeit während des Erstarrens der Legierung und kann auch durch Zugeben weiterer bekannter Zusatzstoffe zur Legierung modifiziert werden. Sofern jedoch die Gesamtmenge an Silicium in den Legierungspartikeln 30 Gew.-%, weiter bevorzugt 24 Gew.-% nicht überschreitet, wird davon ausgegangen, dass die Gesamtmikrostruktur der porösen Partikel ausreichend fein ist, um eine akzeptable Kapazitätserhaltung während des Aufladens und Entladens von hybriden Elektroden, die die porösen Partikel umfassen, bereitzustellen.

[0145] Die Form und Verteilung der diskreten elektroaktiven Materialstrukturen innerhalb der Legie-

rungspartikel ist sowohl von der Zusammensetzung der Legierungspartikel als auch von dem Herstellungsprozess der Legierungspartikel abhängig. Es wurde festgestellt, dass bei einer zu geringen Menge an elektroaktivem Material die nach Entfernung der Matrixmetallkomponente erhaltenen porösen Partikel eine schlechte strukturelle Integrität aufweisen und zum Zerfallen während der Fertigung und/oder anschließenden Einarbeitung in Anoden neigen. Zusätzlich kann die Kapazitätserhaltung derartiger Partikel für kommerzielle Anwendungen aufgrund einer unzureichenden Elastizität gegenüber den volumetrischen Änderungen beim Aufladen und Entladen unzulänglich sein.

[0146] Die Größe und Form der Strukturen aus elektroaktivem Material kann durch Steuern der Abkühlgeschwindigkeit der Legierung aus der Schmelze und dem Vorhandensein von Modifikatoren (chemischen Zusatzstoffen in der Schmelze) beeinflusst werden. Im Allgemeinen führt eine schnellere Abkühlung zur Bildung kleinerer, gleichmäßiger verteilter Siliciumstrukturen. Die Abkühlgeschwindigkeit und somit die Größe und Form der gebildeten elektroaktiven Materialstrukturen ist von dem zum Bilden der Legierungspartikel verwendeten Prozess abhängig. So können durch die Wahl eines angemessenen Prozesses zur Bildung der Legierungspartikel Legierungspartikel erhalten werden, bei denen die Strukturen mit dispergiertem elektroaktivem Material eine Morphologie aufweisen, die bei Freilegen durch Auslaugen des Matrixmetalls besonders für die Verwendung in Metallionenbatterien, insbesondere Metallionenbatterien mit hybriden Elektroden, wünschenswert ist.

[0147] Die Legierungspartikel werden vorzugsweise durch Abkühlen einer geschmolzenen Legierung von dem flüssigen Zustand in den festen Zustand mit einer Abkühlgeschwindigkeit von mindestens 1×10^3 K/s, vorzugsweise mindestens 5×10^3 K/s, vorzugsweise mindestens 1×10^4 K/s, beispielsweise mindestens 1×10^5 K/s oder mindestens 5×10^5 K/s oder mindestens 1×10^6 K/s oder mindestens 5×10^6 K/s oder mindestens 1×10^7 K/s erhalten. Es wurde festgestellt, dass die Porendurchmesserverteilung der porösen Partikel mit erhöhten Abkühlraten hin zu größeren Porengrößen zunimmt.

[0148] Prozesse zum Abkühlen einer geschmolzenen Legierung zum Bilden von Legierungspartikeln mit einer Abkühlgeschwindigkeit von mindestens 10^3 K/s beinhalten Gaszerstäubung, Wasserzerstäubung, Schmelzspinnen, Spritzkühlung und Plasmaphasenzerstäubung. Bevorzugte Prozesse zum Abkühlen der geschmolzenen Legierung zum Bilden von Legierungspartikeln beinhalten Gaszerstäubung und Wasserzerstäubung. Es wurde festgestellt, dass die Abkühlgeschwindigkeit der durch Gas- und Was-

serzerstübungsprozesse erhaltenen Partikel mit der Größe der Legierungspartikel korreliert werden kann und dass Legierungspartikel mit einer in dieser Schrift spezifizierten Partikelgröße mit sehr hohen Geschwindigkeiten (d. h. über 1×10^3 K/s und typischerweise mindestens 1×10^5 K/s) abkühlen und somit die in den Legierungspartikeln gebildeten Strukturen des elektroaktiven Materials eine Morphologie aufweisen, die besonders bevorzugt ist. Falls erforderlich, können die durch ein beliebiges Abkühlverfahren erhaltenen Legierungspartikel klassiert werden, um eine angemessene Größenverteilung zu erhalten.

[0149] Die Metallmatrix kann unter Verwendung eines beliebigen Auslaugungsmittels ausgelaugt werden, das geeignet ist, mindestens einen Teil der Matrixmetallkomponente zu entfernen, während die Strukturen mit elektroaktivem Material intakt bleiben. Auslaugungsmittel können flüssig oder gasförmig sein und Zusatzstoffe oder Teilprozesse zum Entfernen von Nebenproduktansammlungen, die das Auslaugen behindern könnten, beinhalten. Das Auslaugen kann geeigneterweise durch einen chemischen oder elektrochemischen Prozess erfolgen. Zum Auslaugen von Aluminium kann ätzendes Auslaugen mit Natriumhydroxid verwendet werden, obwohl die Konzentration von Natriumhydroxid in der Auslaugungsmittellösung unter 10 bis 20 Gew.-% gesteuert werden sollte, um ein Angreifen von Silicium und/oder Germanium durch das Auslaugungsmittel zu vermeiden. Ein saures Auslaugen, z. B. mit Salzsäure oder Eisenchlorid, ist ebenfalls eine geeignete Technik. Alternativ kann das Matrixmetall unter Verwendung von Salzelektrolyten, z. B. Kupfersulfat oder Natriumchlorid, elektrochemisch ausgelaugt werden. Das Auslaugen wird durchgeführt, bis die gewünschte Porosität der porösen Partikel erreicht ist. Beispielsweise genügt ein saures Auslaugen unter Verwendung von 6M wässriger HCl bei Raumtemperatur über einen Zeitraum von 10 bis 60 Minuten, um im Wesentlichen das gesamte auslaugbare Aluminium aus den in dieser Schrift beschriebenen Silicium-Aluminium-Legierungen auszulaugen (wobei zu beachten ist, dass eine geringe Menge des Matrixmetalls nicht ausgelaugt werden kann).

[0150] Nach dem Auslaugen der Matrixmetallkomponente werden die porösen Partikel in dem Auslaugungsmittel intakt gebildet. Im Allgemeinen ist es angemessen, Reinigungs- und Spülsschritte durchzuführen, um Nebenprodukte und Auslaugungsmittelreste zu entfernen. Die feine Verteilung der Siliciumstrukturelemente in den Legierungspartikeln ist derart, dass die nach dem Auslaugen erhaltenen porösen Partikel Partikelabmessungen und -form aufweisen, die im Wesentlichen gleich den Partikelabmessungen und der Partikelform der Ausgangslegierungspartikel sind.

[0151] Es ist nicht zwingend erforderlich, dass die Matrixmetallkomponente vollständig entfernt wird und auch bei längeren Reaktionszeiten für das Auslaugen kann eine geringe Menge an Matrixmetall verbleiben. Tatsächlich kann es wünschenswert sein, dass die Matrixmetallkomponente nicht vollständig entfernt wird, da sie als zusätzliches elektroaktives Material und/oder als Dotiermittel dienen kann. Somit können die porösen Partikel einen Rest der Matrixmetallkomponente, wie vorstehend definiert, in einer Menge von nicht mehr als 40 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 30 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 25 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.- %, weiter bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 10 Gew.-% und besonders bevorzugt nicht mehr als 5 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des partikulären Materials, umfassen. Optional können die porösen Partikel einen Rest der Matrixmetallkomponente in einer Menge von mindestens 0,01 Gew.-%, mindestens 0,1 Gew.-%, mindestens 0,5 Gew.-%, mindestens 1 Gew.-%, mindestens 2 Gew.-% oder mindestens 3 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des partikulären Materials, umfassen.

[0152] Wie vorstehend erörtert, ist Aluminium eine bevorzugte Matrixmetallkomponente und somit können die porösen Partikel optional Restaluminium in einer Menge von nicht mehr als 40 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 30 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 25 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 10 Gew.-% und besonders bevorzugt nicht mehr als 5 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des partikulären Materials, umfassen. Optional können die porösen Partikel Restaluminium in einer Menge von mindestens 0,01 Gew.-%, mindestens 0,1 Gew.-%, mindestens 0,5 Gew.-%, mindestens 1 Gew.-%, mindestens 2 Gew.-% oder mindestens 3 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des partikulären Materials, umfassen. Restaluminium wird gut toleriert, da es in der Lage ist, Metallionen während des Aufladens und Entladens einer Metallionenbatterie freizusetzen und zu absorbieren, und es ferner das Herstellen eines elektrischen Kontakts zwischen den Siliciumstrukturen und zwischen den Siliciumstrukturen und dem Anoden-Stromabnehmer unterstützen kann.

[0153] Die porösen Partikel können Silicium und eine geringe Menge Aluminium umfassen. Beispielsweise können die porösen Partikel mindestens 60 Gew.-% Silicium und nicht mehr als 40 Gew.-% Aluminium, weiter bevorzugt mindestens 70 Gew.-% Silicium und nicht mehr als 30 Gew.-% Aluminium, weiter bevorzugt mindestens 75 Gew.-% Silicium und nicht mehr als 25 Gew.-% Aluminium, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-% Silicium und nicht mehr als 20 Gew.-% Aluminium, weiter bevorzugt

mindestens 85 Gew.-% Silicium und nicht mehr als 15 Gew.-% Aluminium, weiter bevorzugt mindestens 90 Gew.-% Silicium und nicht mehr als 10 Gew.-% Aluminium und weiter bevorzugt mindestens 95 Gew.-% Silicium und nicht mehr als 5 Gew.-% Aluminium umfassen.

[0154] Optional kann das partikuläre Material mindestens 1 Gew.-% Aluminium und nicht mehr als 99 Gew.-% Silicium oder mindestens 2 Gew.-% Aluminium und nicht mehr als 98 Gew.-% Silicium oder mindestens 3 Gew.-% Aluminium und nicht mehr als 97 Gew.-% Silicium umfassen.

[0155] Die Erfindung stellt die Inhalte der nachfolgenden nummerierten Absätze bereit.

1. Elektrode für eine Metallionenbatterie, wobei die Elektrode eine aktive Schicht umfasst, die in elektrischem Kontakt mit einem Stromabnehmer steht, wobei die aktive Schicht Folgendes umfasst:

(i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x , wobei $0 < x \leq 1,5$, Germanium, Zinn, Aluminium und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 μm und eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen; und

(ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus einem oder mehreren von Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 μm ;

wobei die aktive Schicht mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii) umfasst und wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt.

2. Elektrode nach Absatz 1, wobei die porösen Partikel (i) mindestens 60 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 70 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 75 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 80 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 85 Gew.-% des elektroaktiven Materials umfassen, wobei das elektroaktive Material vorzugsweise Silicium oder Zinn ist, wobei das elektroaktive Material vorzugsweise Silicium ist.

3. Elektrode nach Absatz 2, wobei es sich bei den porösen Partikeln (i) um Primärpartikel handelt.

4. Elektrode nach Absatz 1, wobei die porösen Partikel (i) mindestens 40 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 50 Gew.-%, weiter bevorzugt

mindestens 60 Gew.-% und vorzugsweise nicht mehr als 90 Gew.-% und vorzugsweise nicht mehr als 80 Gew.-% des elektroaktiven Materials umfassen, wobei das elektroaktive Material vorzugsweise Silicium oder Zinn ist, wobei das elektroaktive Material vorzugsweise Silicium ist.

5. Elektrode nach Absatz 4, wobei die porösen Sekundärpartikel (i) Primärpartikel aus elektroaktivem Material umfassen, wobei die Zusammensetzung der Primärpartikel wie in Absatz 2 definiert ist.

6. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) mindestens 0,01 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, mindestens 0,1 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, mindestens 0,5 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium, mindestens 1 Gew.-% Aluminium, mindestens 2 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium oder mindestens 3 Gew.-% Aluminium und/oder Germanium umfassen.

7. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) eine geringe Menge eines oder mehrerer zusätzlicher Elemente umfassen, ausgewählt aus Antimon, Kupfer, Magnesium, Zink, Mangan, Chrom, Kobalt, Molybdän, Nickel, Beryllium, Zirkonium, Eisen, Natrium, Strontium, Phosphor, Zinn, Ruthenium, Gold, Silber und Oxiden davon.

8. Elektrode nach Absatz 7, wobei die porösen Partikel (i) eine geringe Menge eines oder mehrerer von Nickel, Silber oder Kupfer umfassen.

9. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 0,8 μm , mindestens 1 μm , mindestens 1,5 μm , mindestens 2 μm , mindestens 2,5 μm oder mindestens 3 μm beträgt.

10. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 35 μm , nicht mehr als 30 μm , nicht mehr als 25 μm , nicht mehr als 20 μm , nicht mehr als 15 μm , nicht mehr als 10 μm , nicht mehr als 6 μm , nicht mehr als 5,5 μm , nicht mehr als 5 μm , nicht mehr als 4,5 μm , nicht mehr als 4 μm oder nicht mehr als 3,5 μm beträgt.

11. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) eine Partikelgrößenverteilungsspanne von 5 oder weniger, 4 oder weniger, 3 oder weniger, 2 oder weniger oder 1,5 oder weniger aufweisen.

12. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei das durchschnittliche Seitenverhältnis der porösen Partikel (i) weniger als 3:1,

vorzugsweise nicht mehr als 2,5:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 2:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,8:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,6:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,4:1 und besonders bevorzugt nicht mehr als 1,2:1 beträgt.

13. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) sphäroidale Partikel sind, die eine durchschnittliche Sphärität S_{av} von mindestens 0,70, vorzugsweise mindestens 0,85, weiter bevorzugt mindestens 0,90, weiter bevorzugt mindestens 0,92, weiter bevorzugt mindestens 0,93, weiter bevorzugt mindestens 0,94, weiter bevorzugt mindestens 0,95, weiter bevorzugt mindestens 0,96, weiter bevorzugt mindestens 0,97, weiter bevorzugt mindestens 0,98 und besonders bevorzugt mindestens 0,99 aufweisen.

14. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) im Bereich von 5 bis 25 % liegt.

15. Elektrode nach Absatz 14, wobei die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) im Bereich von 5 bis 20 % liegt.

16. Elektrode nach Absatz 15, wobei die porösen Partikel (i) eine Intrapartikelporosität von mindestens 5 %, mindestens 10 % oder mindestens 12 % aufweisen.

17. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) eine Intrapartikelporosität von nicht mehr als 29 %, nicht mehr als 28 %, nicht mehr als 27 %, nicht mehr als 26 %, nicht mehr als 25 %, nicht mehr als 24 %, nicht mehr als 23 %, nicht mehr als 22 %, nicht mehr als 21 %, nicht mehr als 20 %, nicht mehr als 19 %, nicht mehr als 18 %, nicht mehr als 17 %, nicht mehr als 16 % oder nicht mehr als 15 % aufweisen.

18. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) eine Porendurchmesserverteilung aufweisen, die mindestens einen Peak bei einer Porengröße von weniger als 500 nm, vorzugsweise weniger als 350 nm, vorzugsweise weniger als 300 nm, vorzugsweise weniger als 250 nm, vorzugsweise weniger als 200 nm, vorzugsweise weniger als 150 nm, vorzugsweise weniger als 100 nm aufweist, wie durch Quecksilberporosimetrie bestimmt.

19. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) eine Porendurchmesserverteilung aufweisen, die mindestens einen Peak bei einer Porengröße von mehr als 3 nm, vorzugsweise mehr als 5 nm, vorzugsweise mehr als 10 nm, vorzugsweise mehr als 20 nm, vorzugsweise mehr als

30 nm, vorzugsweise mehr als 40 nm, vorzugsweise mehr als 50 nm, vorzugsweise mehr als 60 nm, vorzugsweise mehr als 80 nm aufweist, wie durch Quecksilberporosimetrie bestimmt.

20. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) eine BET-Oberfläche von weniger als 300 m²/g, vorzugsweise weniger als 250 m²/g, weiter bevorzugt weniger als 200 m²/g, weiter bevorzugt weniger als 150 m²/g und besonders bevorzugt weniger als 120 m²/g aufweisen und/oder wobei die porösen Partikel (i) eine BET-Oberfläche von mindestens 5 m²/g, mindestens 10 m²/g, mindestens 15 m²/g, mindestens 20 m²/g oder mindestens 50 m²/g aufweisen.

21. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die porösen Partikel (i) poröse Primärpartikel, poröse Sekundärpartikel oder eine Mischung davon umfassen.

22. Elektrode nach Absatz 21, wobei die porösen Sekundärpartikel eine Anordnung von porösen Primärpartikeln umfassen.

23. Elektrode nach Absatz 21, wobei die porösen Sekundärpartikel eine Anordnung von nicht porösen Primärpartikeln umfassen.

24. Elektrode nach einem der Absätze 21 bis 23, wobei die Sekundärpartikel ein Aggregat, in dem die Primärpartikel durch starke Kräfte zusammengehalten werden, oder ein Agglomerat umfassen, in dem die Primärpartikel durch schwache kohäsive Kräfte zusammengehalten werden.

25. Elektrode nach einem der Absätze 21 bis 24, wobei die porösen Partikel Sekundärpartikel umfassen, wobei die Sekundärpartikel eine Anordnung von Primärpartikeln umfassen und wobei der D₅₀-Partikeldurchmesser der Primärpartikel weniger als D₅₀/2 der Sekundärpartikel beträgt.

26. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei es sich bei den porösen Partikeln (i) um Sekundärpartikel handelt, die Primärpartikel aus elektroaktivem Material umfassen, und ferner umfassend Kohlenstoff, wobei der Kohlenstoff vorzugsweise als Kohlenstoffpartikel oder als eine Kohlenstoffbeschichtung auf den Primärpartikeln oder als Kohlenstoffmatrix oder carbonisiertes Bindemittel, das die Primärpartikel des elektroaktiven Materials darin umfasst, oder als jede Kombination davon vorliegt, beispielsweise wobei der Kohlenstoff von einer carbonisierbaren Vorstufe abgeleitet ist.

27. Elektrode nach Absatz 26, wobei die Primärpartikel sphäroidale Nanopartikel oder Agglomerate davon sind oder die Primärpartikel ein statistisches oder geordnetes Netzwerk linearer,

verzweigter oder geschichteter länglicher Strukturelemente umfassen, wobei die länglichen Strukturelemente vorzugsweise Seitenverhältnisse derart aufweisen, dass die größte Abmessung nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal größer ist als die kleinste Abmessung des länglichen Strukturelements.

28. Elektrode nach Absatz 26 oder 27, wobei die Primärpartikel eine kleinste Abmessung aufweisen, die weniger als 500 nm, vorzugsweise weniger als 300 nm, vorzugsweise weniger als 200 nm, weiter bevorzugt weniger als 150 nm beträgt und die mindestens 10 nm, vorzugsweise mindestens 20 nm und besonders bevorzugt mindestens 30 nm beträgt und wobei die Primärpartikel eine größte Abmessung aufweisen, die nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal, größer ist als die kleinste Abmessung.

29. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die Kohlenstoffpartikel (ii) Grafitpartikel, vorzugsweise Mesphasengrafitpartikel, sind.

30. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der Kohlenstoffpartikel (ii) mindestens 2 μm , mindestens 5 μm , mindestens 7 μm , mindestens 8 μm , mindestens 10 μm , mindestens 12 μm oder mindestens 15 μm beträgt.

31. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der Kohlenstoffpartikel (ii) nicht mehr als 80 μm , nicht mehr als 70 μm , nicht mehr als 60 μm , nicht mehr als 50 μm , nicht mehr als 45 μm , nicht mehr als 40 μm , nicht mehr als 35 μm , nicht mehr als 30 μm oder nicht mehr als 25 μm beträgt.

32. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die Kohlenstoffpartikel (ii) sphäroidale Partikel sind, die eine durchschnittliche Sphärität S_{av} von mindestens 0,70, vorzugsweise mindestens 0,85, weiter bevorzugt mindestens 0,90, vorzugsweise mindestens 0,92, weiter bevorzugt mindestens 0,93, weiter bevorzugt mindestens 0,94 und besonders bevorzugt mindestens 0,95 aufweisen.

33. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die Kohlenstoffpartikel (ii) ein durchschnittliches Seitenverhältnis von weniger als 3:1, vorzugsweise nicht mehr als 2,5:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 2:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,8:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,6:1, weiter bevorzugt nicht mehr als 1,4:1 und besonders bevorzugt nicht mehr als 1,2:1 aufweisen.

34. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die aktive Schicht 60 bis 95

Gew.- %, vorzugsweise 70 bis 95 Gew.-% und besonders bevorzugt 80 bis 95 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii) umfasst.

35. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die aktive Schicht 1 bis 30 Gew.-% der porösen Partikel (i) umfasst.

36. Elektrode nach Absatz 31, wobei die aktive Schicht mindestens 2 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 5 Gew.-% und besonders bevorzugt mindestens 8 Gew.-% der porösen Partikel (i) umfasst.

37. Elektrode nach Absatz 31 oder Absatz 32, wobei die aktive Schicht nicht mehr als 25 Gew.- %, vorzugsweise nicht mehr als 20 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-% der porösen Partikel (i) umfasst.

38. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 2, mindestens 2,5, mindestens 3, mindestens 3,5 oder mindestens 4 beträgt.

39. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 25, nicht mehr als 20, nicht mehr als 15 oder nicht mehr als 10 beträgt.

40. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die aktive Schicht eine Interpartikelporosität von nicht mehr als 30 %, vorzugsweise nicht mehr als 25 % und weiter bevorzugt nicht mehr als 20 % aufweist.

41. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die aktive Schicht eine Interpartikelporosität von mindestens 2 %, vorzugsweise mindestens 5 %, weiter bevorzugt mindestens 10 % aufweist.

42. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die aktive Schicht in einem trockenen, ungeladenen Zustand eine Dichte im Bereich von 0,6 bis 1,8 g/cm³ aufweist.

43. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die aktive Schicht eine Gesamtporosität von 10 bis 60 %, von 10 bis 50 %, von 15 bis 50 %, von 20 bis 45 % oder von 20 bis 40 % aufweist.

44. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei die prozentuale durchschnittliche Querschnittsfläche der aktiven Schicht, die von den porösen Partikeln (i) eingenommen wird, im Bereich von 1 % bis 25 %, vorzugsweise 2 % bis 20 %, weiter bevorzugt 5 % bis

20 % und besonders bevorzugt 5 % bis 15 % liegt.

45. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die prozentuale durchschnittliche Querschnittsfläche der aktiven Schicht, die von den Kohlenstoffpartikeln (ii) eingenommen wird, im Bereich von 40 % bis 85 %, vorzugsweise 45 % bis 85 %, weiter bevorzugt 45 % bis 80 % und besonders bevorzugt 45 % bis 75 % liegt.

46. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die prozentuale durchschnittliche Querschnittsfläche der aktiven Schicht, die von den Interpartikelporen der aktiven Schicht eingenommen wird, im Bereich von 2 % bis 30 %, vorzugsweise 2 % bis 25 %, weiter bevorzugt 5 % bis 25 %, weiter bevorzugt 10 % bis 25 % und besonders bevorzugt 10 % bis 20 % liegt.

47. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die aktive Schicht ein Bindemittel umfasst, vorzugsweise in einer Menge von 0,5 bis 20 Gew.-%, weiter bevorzugt 0,5 bis 10 Gew.-% und besonders bevorzugt 1 bis 5 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der aktiven Schicht.

48. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die aktive Schicht einen oder mehrere leitfähige Zusatzstoffe umfasst, vorzugsweise in einer Gesamtmenge von 0,5 bis 20 Gew.-%, weiter bevorzugt 1 bis 15 Gew.-% und besonders bevorzugt 2 bis 10 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht der aktiven Schicht.

49. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die aktive Schicht eine Dicke im Bereich von 15 µm bis 2 mm, vorzugsweise 15 µm bis 1 mm, vorzugsweise 15 µm bis 500 µm, vorzugsweise 15 µm bis 200 µm, vorzugsweise 20 µm bis 100 µm, vorzugsweise 20 µm bis 60 µm aufweist.

50. Elektrodenzusammensetzung, umfassend:
 (i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Germanium, Zinn und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 µm und eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen;

(ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 µm; und wobei die Elektrodenzusammensetzung mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel, bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung, umfasst und wobei das

Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt.

51. Elektrodenzusammensetzung nach Absatz 50, wobei die porösen Partikel (i) wie in einem der Absätze 2 bis 28 definiert sind.

52. Elektrodenzusammensetzung nach Absatz 50 oder Absatz 51, wobei die Kohlenstoffpartikel (ii) wie in einem der Absätze 29 bis 33 definiert sind.

53. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Absätze 50 bis 52, umfassend 60 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 95 Gew.-% und besonders bevorzugt 80 bis 95 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

54. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Absätze 50 bis 53, umfassend mindestens 1 Gew.-%, mindestens 2 Gew.-%, mindestens 5 Gew.-% oder mindestens 8 Gew.-% der porösen Partikel (i), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

55. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Absätze 50 bis 54, umfassend nicht mehr als 30 Gew.-%, nicht mehr als 25 Gew.-%, nicht mehr als 20 Gew.-% oder nicht mehr als 15 Gew.-% der porösen Partikel (i), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

56. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Absätze 50 bis 54, wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 2, mindestens 2,5, mindestens 3, mindestens 3,5 oder mindestens 4 beträgt.

57. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Absätze 50 bis 56, wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 25, nicht mehr als 20, nicht mehr als 15 oder nicht mehr als 10 beträgt.

58. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Absätze 50 bis 57, umfassend ein Bindemittel, vorzugsweise in einer Menge von 0,5 bis 20 Gew.-%, weiter bevorzugt 0,5 bis 10 Gew.-% und besonders bevorzugt 1 bis 5 Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

59. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Absätze 50 bis 58, umfassend einen oder mehrere leitfähige Zusatzstoffe, vorzugsweise in einer Gesamtmenge von 0,5 bis 20 Gew.-%, weiter bevorzugt 1 bis 15 Gew.-% und beson-

ders bevorzugt 2 bis 10 Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

60. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Absätze 50 bis 59 in Form einer Aufschlämung, ferner umfassend ein Lösungsmittel.

61. Verfahren zur Herstellung einer Elektrode, wobei das Verfahren Folgendes umfasst:

(i) Herstellen einer Aufschlämung, umfassend eine Elektrodenzusammensetzung wie in Absatz 60 definiert;

(ii) Gießen der Aufschlämung auf die Oberfläche eines Stromabnehmers; und

(iii) Entfernen des Lösungsmittels zum Bilden einer aktiven Schicht in elektrischem Kontakt mit dem Stromabnehmer.

62. Verfahren zur Herstellung einer Elektrode, wobei das Verfahren Folgendes umfasst:

(i) Herstellen einer Aufschlämung, umfassend eine Elektrodenzusammensetzung wie in Absatz 60 definiert;

(ii) Gießen der Aufschlämung auf eine Schablone;

(iii) Entfernen des Lösungsmittels, um eine freistehende Folie oder Matte zu bilden, die die Elektrodenzusammensetzung umfasst; und

(iv) Befestigen der freistehenden Folie oder Matte aus Schritt (iii) an einem Stromabnehmer, um eine aktive Schicht in elektrischem Kontakt mit dem Stromabnehmer zu bilden.

63. Verfahren nach Absatz 61 oder Absatz 62, ferner umfassend den Schritt des Verdichtens der aktiven Schicht zum Erhalten einer Dicke der aktiven Schicht im Bereich von 0,6 bis 1,8 g/cm³.

64. Verfahren nach einem der Absätze 61 bis 63, wobei die Elektrode wie in einem der Absätze 1 bis 49 definiert ist.

65. Wiederaufladbare Metallionenbatterie, umfassend: (i) eine Anode, wobei die Anode eine Elektrode wie in einem der Absätze 1 bis 49 beschrieben umfasst; (ii) eine Kathode, umfassend ein aktives Kathodenmaterial, das in der Lage ist, Metallionen freizusetzen und wieder aufzunehmen; und (iii) einen Elektrolyten zwischen der Anode und der Kathode.

66. Verwendung einer Elektrodenzusammensetzung, wie in einem der Absätze 50 bis 60 definiert, als ein aktives Anodenmaterial.

[0156] Die Erfindung stellt ferner die Inhalte der nachfolgenden nummerierten Absätze bereit.

1. Elektrode für eine Metallionenbatterie, wobei die Elektrode eine aktive Schicht umfasst, die in elektrischem Kontakt mit einem Stromabnehmer steht, wobei die aktive Schicht Folgendes umfasst:

(i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x, wobei $0 < x \leq 1,5$, Germanium, Zinn, Aluminium und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D₅₀-Partikeldurchmesser von mindestens 0,8 µm und nicht mehr als 35 µm, eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen und Sekundärpartikel sind, die elektroaktives Material enthaltende Primärpartikel umfassen und ferner Kohlenstoff umfassen; und

(ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus einem oder mehreren von Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D₅₀-Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 µm,

wobei die aktive Schicht mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii) umfasst und wobei das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt; wobei die aktive Schicht in einem trockenen, ungeladenen Zustand eine Dichte im Bereich von 0,6 bis 1,8 g/cm³ aufweist;

wobei der D₅₀-Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 50 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden, bestimmt durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert.

2. Elektrode nach Absatz 1, wobei die porösen Partikel (i) ein elektroaktives Material umfassen, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x, wobei $0 < x \leq 1,5$, und Mischungen davon.

3. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätze, wobei das SiO_x in Form von elementaren Siliciumpartikeln vorliegt, die eine native Siliciumoxidschicht auf der Partikelloberfläche umfassen; wobei die native Siliciumoxidschicht vorzugsweise in einer Menge von nicht mehr als 30 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 25 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 10 Gew.-%, weiter bevorzugt nicht mehr als 5 Gew.-%, beispielsweise nicht mehr als 4 Gew.-%, nicht mehr als 3 Gew.-%, nicht mehr als 2 Gew.-% oder nicht mehr als 1 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge an Silicium und Siliciumoxid, vorhanden ist.

4. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i) mindestens 40 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 50 Gew.-%, weiter bevorzugt mindestens 60 Gew.-% und vorzugsweise nicht mehr als 90 Gew.-% und vorzugsweise nicht mehr als 80 Gew.-% des elektroaktiven Materials umfassen, wobei das elektroaktive Material vorzugsweise Silicium ist.

5. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei mindestens 60 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 70 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-% oder im Wesentlichen die gesamte Zusammensetzung der porösen Partikel (i) abgesehen von dem elektroaktiven Material Kohlenstoff ist.

6. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i) nicht mehr als 5 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des partikulären Materials, eines oder mehrerer zusätzlicher Elemente abgesehen von Silicium, Germanium, Zinn oder Aluminium umfassen; wobei die zusätzlichen Elemente vorzugsweise ausgewählt sind aus Antimon, Kupfer, Magnesium, Zink, Mangan, Chrom, Kobalt, Molybdän, Nickel, Beryllium, Zirkonium, Eisen, Natrium, Strontium, Phosphor, Zinn, Ruthenium, Gold, Silber und Oxiden davon.

7. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1 μm bis 35 μm , 1 μm bis 25 μm , 1 μm bis 20 μm oder 1 μm bis 10 μm liegt.

8. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i)

(a) einen D_{10} -Partikeldurchmesser von mindestens 0,5 μm aufweisen; oder

(b) einen D_{50} -Partikeldurchmesser von mindestens 1 μm und einen D_{10} -Partikeldurchmesser von mindestens 0,5 μm aufweisen; oder

(c) einen D_{50} -Partikeldurchmesser von mindestens 2 μm und einen D_{10} -Partikeldurchmesser von mindestens 1 μm aufweisen;

wobei der D_{10} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 10 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden, bestimmt durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert.

9. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i)

(a) einen D_{90} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 80 μm , nicht mehr als 60 μm , nicht mehr als 50 μm , nicht mehr als 40 μm , nicht mehr als 30 μm , nicht mehr als 20 μm , nicht

mehr als 15 μm oder nicht mehr als 10 μm aufweisen; oder

(b) einen D_{50} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 30 μm und einen D_{90} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 60 μm oder nicht mehr als 50 μm aufweisen; oder

wobei der D_{90} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 90 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden, bestimmt durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert.

10. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i)

(a) einen D_{99} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 100 μm , nicht mehr als 80 μm , nicht mehr als 70 μm , nicht mehr als 60 μm , nicht mehr als 50 μm , nicht mehr als 40 μm oder nicht mehr als 30 μm aufweisen; oder

(b) einen D_{50} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 30 μm und einen D_{99} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 80 μm oder nicht mehr als 70 μm aufweisen; oder

wobei der D_{99} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 99 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden, bestimmt durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert.

11. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i) eine Partikelgrößenverteilungsspanne von 5 oder weniger, 4 oder weniger, 3 oder weniger, 2 oder weniger oder 1,5 oder weniger aufweisen.

12. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i) sphäroide Partikel sind, die eine durchschnittliche Sphärizität S_{av} von mindestens 0,70, vorzugsweise mindestens 0,85, weiter bevorzugt mindestens 0,90, weiter bevorzugt mindestens 0,92, weiter bevorzugt mindestens 0,93, weiter bevorzugt mindestens 0,94, weiter bevorzugt mindestens 0,95, weiter bevorzugt mindestens 0,96, weiter bevorzugt mindestens 0,97, weiter bevorzugt mindestens 0,98 und besonders bevorzugt mindestens 0,99 aufweisen;

13. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i) eine Porendurchmesserverteilung aufweisen, die mindestens einen Peak bei einer Porengröße von weniger als 500 nm, vorzugsweise weniger als 350 nm, vorzugsweise weniger als 300 nm, vorzugsweise weniger als 250 nm, vorzugsweise weniger als 200 nm, vorzugsweise weniger als 150 nm, vorzugsweise weniger als 100 nm aufweist, wie durch Quecksilberporosimetrie bestimmt.

14. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die porösen Partikel (i) eine BET-Oberfläche von weniger als 300 m²/g, weniger als 250 m²/g, weniger als 200 m²/g, weniger als 150 m²/g, weniger als 120 m²/g, weniger als 100 m²/g oder weniger als 80 m²/g aufweisen.

15. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei der Kohlenstoff in den porösen Partikeln (i) als Kohlenstoffpartikel oder als eine Kohlenstoffbeschichtung auf den Primärpartikeln oder als eine Kohlenstoffmatrix oder carbonisiertes Bindemittel, das die Primärpartikel des elektroaktiven Materials darin umfasst, oder als jede Kombination davon vorliegt, beispielsweise wobei der Kohlenstoff von einer carbonisierbaren Vorstufe abgeleitet ist.

16. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei der Kohlenstoff in den porösen Partikeln (i) als eine Kohlenstoffmatrix vorliegt, in der elektroaktives Material enthaltene Primärpartikel dispergiert sind.

17. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei der Kohlenstoff in den porösen Partikeln (i) pyrolyserter Kohlenstoff oder von einer carbonisierbaren Vorstufe abgeleitetes carbonisiertes Bindemittel ist.

18. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, die porösen Partikel (i) aus einem partikulären oder Massen-Ausgangsmaterial in einem Prozess gebildet sind, der Fragmentierung, Brechen oder Mahlen eines porös gemachten Ausgangsmaterials umfasst.

19. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die Primärpartikel sphäroide Nanopartikel oder Agglomerate davon sind oder die Primärpartikel ein statistisches oder geordnetes Netzwerk linearer, verzweigter oder geschichteter länglicher Strukturelemente umfassen, wobei die länglichen Strukturelemente vorzugsweise Seitenverhältnisse derart aufweisen, dass die größte Abmessung nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal größer ist als die kleinste Abmessung des länglichen Strukturelements.

20. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die Primärpartikel eine kleinste Abmessung aufweisen, die weniger als 500 nm, vorzugsweise weniger als 300 nm, vorzugsweise weniger als 200 nm, weiter bevorzugt weniger als 150 nm beträgt und wobei die Primärpartikel eine größte Abmessung aufweisen, die nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal, größer ist als die kleinste Abmessung.

21. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die aktive Schicht in einem tro-

ckenen, ungeladenen Zustand eine Dichte im Bereich von 0,8 bis 1,6 g/cm³ aufweist.

22. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die Elektrode eine aktive Schicht mit einer volumetrischen Energiedichte bei einer ersten vollen Ladung von mindestens 450 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 575 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 600 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 650 mAh/cm³ aufweist.

23. Elektrode nach einem der vorhergehenden Absätzen, wobei die aktive Schicht eine Gesamtporosität von 10 bis 60 %, von 10 bis 50 %, von 15 bis 50 %, von 20 bis 45 % oder von 20 bis 40 % aufweist.

24. Wiederaufladbare Metallionenbatterie, umfassend: (i) eine Anode, wobei die Anode eine Elektrode wie in einem der Absätze 1 bis 23 beschrieben umfasst; (ii) eine Kathode, umfassend ein aktives Kathodenmaterial, das in der Lage ist, Metallionen freizusetzen und wieder aufzunehmen; und (iii) einen Elektrolyten zwischen der Anode und der Kathode.

ZITATE ENTHALTEN IN DER BESCHREIBUNG

Diese Liste der vom Anmelder aufgeführten Dokumente wurde automatisiert erzeugt und ist ausschließlich zur besseren Information des Lesers aufgenommen. Die Liste ist nicht Bestandteil der deutschen Patent- bzw. Gebrauchsmusteranmeldung. Das DPMA übernimmt keinerlei Haftung für etwaige Fehler oder Auslassungen.

Zitierte Patentliteratur

- WO 2007/083155 [0008]
- US 6,334,939 [0008]
- US 6,514,395 [0008]
- US 8,597,831 [0008]
- WO 2012/175998 [0008]
- US 2009/0186267 [0009]
- US 7,479,351 [0012]
- US 8,526,166 [0013]
- US 2004/0214085 [0013]
- US 2006/0251561 [0014]

Zitierte Nicht-Patentliteratur

- Insertion Electrode Materials for Rechargeable Lithium Batteries“, Winter, M. et al. in Adv. Mater. 1998, 10, Nr. 10 [0005]
- Ohara et al. (Journal of Power Sources 136 (2004) 303-306 [0008]
- P. A. Webb und C. Orr in „Analytical Methods in Fine Particle Technology“, 1997, Micromeritics Instrument Corporation, ISBN 0-9656783-0 [0052]
- Franklin, Proceedings of the Royal Society A, 1951, Bd. 209, 196-218 [0074]

Schutzansprüche

1. Elektrode für eine Metallionenbatterie, wobei die Elektrode eine aktive Schicht umfasst, die in elektrischem Kontakt mit einem Stromabnehmer steht, wobei die aktive Schicht Folgendes umfasst: (i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x , wobei $0 < x \leq 1,5$, Germanium, Zinn, Aluminium und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 μm und eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen und wobei die porösen Partikel eine Kohlenstoffmatrix umfassen, in der elektroaktives Material enthaltende Primärpartikel dispergiert sind; und (ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus einem oder mehreren von Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 μm ; wobei die aktive Schicht mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii) umfasst und wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt; wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 50 Vol.-% der Partikelpopulation durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert, bestimmt werden.

2. Elektrode für eine Metallionenbatterie, wobei die Elektrode eine aktive Schicht umfasst, die in elektrischem Kontakt mit einem Stromabnehmer steht, wobei die aktive Schicht Folgendes umfasst: (i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x , wobei $0 < x \leq 1,5$, Germanium, Zinn, Aluminium und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 μm und eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen; und wobei die porösen Partikel ein carbonisiertes Bindemittel umfassen, umfassend elektroaktives Material enthaltende Primärpartikel; und (ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus einem oder mehreren von Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D_{50} -Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 μm ; wobei die aktive Schicht mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii) umfasst und wobei das Verhältnis des D_{50} -Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt; wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 50 Vol.-% der Partikelpopulation durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert, bestimmt werden.

3. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der Kohlenstoff in den porösen Partikeln (i) pyrolysierte Kohlenstoff ist.

4. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) eine Kohlenstoffbeschichtung umfassen.

5. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) ein elektroaktives Material umfassen, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x , wobei $0 < x \leq 1,5$, und Mischungen davon.

6. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das elektroaktive Material Silicium ist und die elektroaktives Material enthaltenden Primärpartikel eine native Siliciumoxidschicht auf der Partikeloberfläche umfassen, wobei die native Siliciumoxidschicht vorzugsweise in einer Menge von nicht mehr als 30 Gew.-%, mehr bevorzugt nicht mehr als 25 Gew.-%, mehr bevorzugt nicht mehr als 20 Gew.-%, mehr bevorzugt nicht mehr als 15 Gew.-%, mehr bevorzugt nicht mehr als 10 Gew.-%, mehr bevorzugt nicht mehr als 5 Gew.-%, beispielsweise nicht mehr als 4 Gew.-%, nicht mehr als 3 Gew.-%, nicht mehr als 2 Gew.-% oder nicht mehr als 1 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge an Silicium und Siliciumoxid, vorhanden ist.

7. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) mindestens 40 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 50 Gew.-%, mehr bevorzugt mindestens 60 Gew.-% und vorzugsweise nicht mehr als 90 Gew.% und vorzugsweise nicht mehr als 80 Gew.-% des elektroaktiven Materials umfassen, wobei das elektroaktive Material vorzugsweise Silicium ist.

8. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei mindestens 60 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 70 Gew.-%, vorzugseise mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-% oder im Wesentlichen die gesamte Zusammensetzung der porösen Partikel (i) abgesehen von dem elektroaktiven Material Kohlenstoff ist.

9. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) nicht mehr als 5 Gew.-%, bezogen auf das Gesamtgewicht des partikulären Materials, eines oder mehrerer zusätzlicher Elemente abgesehen von Silicium, Germanium, Zinn oder Aluminium umfassen; wobei die zusätzlichen Elemente vorzugsweise ausgewählt sind aus Antimon, Kupfer, Magnesium, Zink, Mangan, Chrom, Kobalt, Molybdän, Nickel, Beryllium, Zirkonium, Eisen, Natrium, Strontium, Phosphor, Zinn, Ruthenium, Gold, Silber und Oxiden davon.

10. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der D_{50} -Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1 µm bis 35 µm, 1 µm bis 25 µm, 1 µm bis 20 µm oder 1 µm bis 10 µm liegt.

11. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i):
 (a) einen D_{10} -Partikeldurchmesser von mindestens 0,5 µm aufweisen; oder
 (b) einen D_{50} -Partikeldurchmesser von mindestens 1 µm und einen D_{10} -Partikeldurchmesser von mindestens 0,5 µm aufweisen; oder
 (c) einen D_{50} -Partikeldurchmesser von mindestens 2 µm und einen D_{10} -Partikeldurchmesser von mindestens 1 µm aufweisen; wobei der D_{10} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 10 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden, bestimmt durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert.

12. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i):
 (a) einen D_{90} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 80 µm, nicht mehr als 60 µm, nicht mehr als 50 µm, nicht mehr als 40 µm, nicht mehr als 30 µm, nicht mehr als 20 µm, nicht mehr als 15 µm oder nicht mehr als 10 µm aufweisen; oder
 (b) einen D_{50} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 30 µm und einen D_{90} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 60 µm oder nicht mehr als 50 µm aufweisen; oder wobei der D_{90} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 90 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden, bestimmt durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert.

13. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i):
 (a) einen D_{99} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 100 µm, nicht mehr als 80 µm, nicht mehr als 70 µm, nicht mehr als 60 µm, nicht mehr als 50 µm, nicht mehr als 40 µm oder nicht mehr als 30 µm aufweisen; oder
 (b) einen D_{50} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 30 µm und einen D_{99} -Partikeldurchmesser von nicht mehr als 80 µm oder nicht mehr als 70 µm aufweisen; oder wobei der D_{99} -Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 99 Vol.-% der Partikelpopulation gefunden werden, bestimmt durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert.

14. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) eine Partikelgrößenverteilungsspanne von 5 oder weniger, 4 oder weniger, 3 oder weniger, 2 oder weniger oder 1,5 oder weniger aufweisen, wobei die Spanne definiert ist als $(D_{90}-D_{10})/D_{50}$.

15. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der durchschnittliche maximale

Feret-Durchmesser $F_{\max}PP$ der porösen Partikel (i), die in einem Querschnitt einer aktiven Schicht beobachtbar sind, im Bereich von 0,5 bis 18 µm liegt.

16. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der durchschnittliche minimale Feret-Durchmesser $F_{\min}PP$ der porösen Partikel, die in dem Querschnitt der aktiven Schicht beobachtbar sind, nicht mehr als 15 µm beträgt, wobei $F_{\min}PP$ gegebenenfalls mindestens 0,1 µm beträgt.

17. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der durchschnittliche minimale Feret-Durchmesser $F_{\min}PP$ der porösen Partikel, die in dem Querschnitt der aktiven Schicht beobachtbar sind, mindestes 50 % des Wertes von $F_{\max}PP$ beträgt.

18. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das durchschnittliche Seitenverhältnis der porösen Partikel (i) weniger als 3:1, mehr bevorzugt nicht mehr als 2,5:1, mehr bevorzugt nicht mehr als 2:1, mehr bevorzugt nicht mehr als 1,8:1, mehr bevorzugt nicht mehr als 1,6:1, mehr bevorzugt nicht mehr als 1,4:1 und am meisten bevorzugt nicht mehr als 1,2:1 beträgt.

19. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) sphäroide Partikel sind, die eine durchschnittliche Sphärizität S_{av} von mindestens 0,70, vorzugsweise mindestens 0,85, mehr bevorzugt mindestens 0,90, mehr bevorzugt mindestens 0,92, mehr bevorzugt mindestens 0,93, mehr bevorzugt mindestens 0,94, mehr bevorzugt mindestens 0,95, mehr bevorzugt mindestens 0,96, mehr bevorzugt mindestens 0,97, mehr bevorzugt mindestens 0,98 und am meisten bevorzugt mindestens 0,99 aufweisen; wobei S_{av} definiert ist als:

$$S_{av} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left[\frac{4 \cdot \pi \cdot A_m}{(C_m)^2} \right]$$

wobei n die Anzahl der Partikel in der Population darstellt, A_m die gemessene Fläche der Partikelprojektion ist und C_m der gemessene Umfang der Partikelprojektion ist.

20. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) im Bereich von 5 bis 25 % liegt.

21. Elektrode nach Anspruch 20, wobei die Intrapartikelporosität der porösen Partikel (i) im Bereich von 5 bis 20 % liegt.

22. Elektrode nach Anspruch 21, wobei die porösen Partikel (i) eine Intrapartikelporosität von min-

destens 5 %, mindestens 10 % oder mindestens 12 % aufweisen.

23. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) eine Porendurchmesserverteilung aufweisen, die mindestens einen Peak bei einer Porengröße von weniger als 500 nm, vorzugsweise weniger als 350 nm, vorzugsweise weniger als 300 nm, vorzugsweise weniger als 250 nm, vorzugsweise weniger als 200 nm, vorzugsweise weniger als 150 nm, vorzugsweise weniger als 100 nm aufweist, wie durch Quecksilberporosimetrie bestimmt.

24. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) eine BET-Oberfläche von weniger als 300 m²/g, weniger als 250 m²/g, weniger als 200 m²/g, weniger als 150 m²/g, weniger als 120 m²/g, weniger als 100 m²/g oder weniger als 80 m²/g aufweisen.

25. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die porösen Partikel (i) eine BET-Oberfläche von 5 bis 50 m²/g aufweisen.

26. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, die porösen Partikel (i) Sekundärpartikel sind, umfassend ein Aggregat, in dem die Primärpartikel durch starke Kräfte zusammengehalten werden, oder ein Agglomerat, in dem die Primärpartikel durch schwache kohäsive Kräfte zusammengehalten werden.

27. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der Kohlenstoff in den porösen Partikeln (i) von einer carbonisierbaren Vorstufe abgeleitet ist.

28. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, die porösen Partikel (i) aus einem partikulären oder Massen-Ausgangsmaterial in einem Prozess gebildet sind, der Fragmentierung, Brechen oder Mahlen eines porös gemachten Ausgangsmaterials umfasst.

29. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Primärpartikel sphäroide Nanopartikel oder Agglomerate davon sind oder die Primärpartikel ein statistisches oder geordnetes Netzwerk linearer, verzweigter oder geschichteter länglicher Strukturelemente umfassen, wobei die länglichen Strukturelemente vorzugsweise Seitenverhältnisse derart aufweisen, dass die größte Abmessung nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal größer ist als die kleinste Abmessung des länglichen Strukturelements.

30. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Primärpartikel eine kleinste Abmessung aufweisen, die weniger als 500 nm, vor-

zugsweise weniger als 300 nm, vorzugsweise weniger als 200 nm, mehr bevorzugt weniger als 150 nm beträgt und wobei die Primärpartikel eine größte Abmessung aufweisen, die nicht mehr als 5-mal, vorzugsweise nicht mehr als 3-mal, größer ist als die kleinste Abmessung.

31. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der durchschnittliche maximale Feret-Durchmesser $F_{\max}C$ der Kohlenstoffpartikel (ii), die in dem Querschnitt der aktiven Schicht beobachtbar sind, im Bereich von 1 bis 50 µm liegt; wobei $F_{\max}C$ vorzugsweise mindestens 2 µm, mindestens 5 µm, mindestens 7 µm, mindestens 8 µm, mindestens 10 µm, mindestens 12 µm oder mindestens 15 µm beträgt; wobei $F_{\max}C$ vorzugsweise nicht mehr als 45 µm, nicht mehr als 40 µm, nicht mehr als 35 µm, nicht mehr als 30 µm oder nicht mehr als 25 µm beträgt.

32. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der durchschnittliche minimale Feret-Durchmesser $F_{\min}C$ der Kohlenstoffpartikel (ii), die in dem Querschnitt der aktiven Schicht beobachtbar sind, mindestens 0,5 µm, mindestens 1 µm, mindestens 2 µm, mindestens 5 µm, mindestens 8 µm, mindestens 10 µm, mindestens 12 µm oder mindestens 15 µm beträgt; wobei $F_{\min}C$ gegebenenfalls nicht mehr als 40 µm, nicht mehr als 35 µm, nicht mehr als 30 µm oder nicht mehr als 20 µm beträgt.

33. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der Wert des durchschnittlichen minimalen Feret-Durchmessers $F_{\min}C$ der Kohlenstoffpartikel (ii), die in dem Querschnitt der aktiven Schicht beobachtbar sind, mindestens 50 % des Wertes des durchschnittlichen maximalen Feret-Durchmessers $F_{\max}C$ der Kohlenstoffpartikel (ii), die in dem Querschnitt der aktiven Schicht beobachtbar sind, beträgt, beispielsweise mindestens 60 %, mindestens 70 %, mindestens 80 %, mindestens 90 % oder mindestens 95 % des Wertes von $F_{\max}C$.

34. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Kohlenstoffpartikel (ii) sphäroide Partikel sind, die eine durchschnittliche Sphärität S_{av} von mindestens 0,70, vorzugsweise mindestens 0,85, mehr bevorzugt mindestens 0,90, vorzugsweise mindestens 0,92, mehr bevorzugt mindestens 0,93, mehr bevorzugt mindestens 0,94, und am meisten bevorzugt mindestens 0,95 aufweisen.

35. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Kohlenstoffpartikel (ii) ein durchschnittliches Seitenverhältnis von weniger als 3:1, vorzugsweise nicht mehr als 2,5:1, mehr bevorzugt nicht mehr als 2:1, mehr bevorzugt nicht mehr als 1,8:1, mehr bevorzugt nicht mehr als 1,6:1, mehr

bevorzugt nicht mehr als 1,4:1 und am meisten bevorzugt nicht mehr als 1,2:1 aufweisen.

36. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die aktive Schicht 60 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 95 Gew.-% und am meisten bevorzugt 80 bis 95 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii) umfasst.

37. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die aktive Schicht 1 bis 30 Gew.-% der porösen Partikel (i) umfasst.

38. Elektrode nach Anspruch 37, wobei die aktive Schicht mindestens 2 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 5 Gew.-% und am meisten bevorzugt mindestens 8 Gew.-% der porösen Partikel (i) umfasst.

39. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 2, mindestens 2,5, mindestens 3, mindestens 3,5 oder mindestens 4 beträgt.

40. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 25, nicht mehr als 20, nicht mehr als 15 oder nicht mehr als 10 beträgt.

41. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die aktive Schicht eine Interpartikelporosität von mindestens 2 %, vorzugsweise mindestens 5 %, mehr bevorzugt mindestens 10 % aufweist.

42. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die aktive Schicht in einem trockenen, ungeladenen Zustand eine Dichte im Bereich von 0,6 bis 1,8 g/cm³ aufweist.

43. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Elektrode eine aktive Schicht mit einer volumetrischen Energiedichte bei einer ersten vollen Ladung von mindestens 450 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 575 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 600 mAh/cm³, geeigneterweise mindestens 650 mAh/cm³ aufweist.

44. Elektrode nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die aktive Schicht eine Gesamtporosität von 10 bis 60 %, von 10 bis 50 %, von 15 bis 50 %, von 20 bis 45 % oder von 20 bis 40 % aufweist.

45. Elektrodenzusammensetzung, umfassend:
 (i) eine Vielzahl von porösen Partikeln, umfassend ein elektroaktives Material, ausgewählt aus Silicium, Siliciumoxid der Formel SiO_x, wobei 0 < x ≤ 1,5, Germanium, Zinn, Aluminium und Mischungen davon, wobei die porösen Partikel einen D₅₀-Partikeldurchmesser im Bereich von 0,5 bis 40 µm und eine Intrapartikelporosität von weniger als 30 % aufweisen und wobei die porösen Partikel eine Kohlenstoffmatrix umfassen, in der elektroaktives Material enthaltende Primärpartikel dispergiert sind; und
 (ii) eine Vielzahl von Kohlenstoffpartikeln, ausgewählt aus Grafit, Weichkohlenstoff und Hartkohlenstoff und aufweisend einen D₅₀-Partikeldurchmesser im Bereich von 1 bis 100 µm; und wobei die Elektrodenzusammensetzung mindestens 50 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel, bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung, umfasst und wobei das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) im Bereich von 1,5 bis 30 liegt;
 wobei der D₅₀-Partikeldurchmesser der Durchmesser ist, unter dem 50 Vol.-% der Partikelpopulation durch Laserdiffraction, wie in der Beschreibung definiert, bestimmt werden.

46. Elektrodenzusammensetzung nach Anspruch 45, wobei die porösen Partikel (i) wie in einem der Ansprüche 1 bis 44 definiert sind.

47. Elektrodenzusammensetzung nach Anspruch 45 oder Anspruch 46, wobei die Kohlenstoffpartikel (ii) wie in einem der Ansprüche 1 bis 44 definiert sind.

48. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Ansprüche 45 bis 47, umfassend 60 bis 95 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 95 Gew.-% und am meisten bevorzugt 80 bis 95 Gew.-% der Kohlenstoffpartikel (ii), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

49. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Ansprüche 45 bis 48, umfassend mindestens 1 Gew.-%, mindestens 2 Gew.-%, mindestens 5 Gew.-% oder mindestens 8 Gew.-% der porösen Partikel (i), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

50. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Ansprüche 45 bis 49, umfassend nicht mehr als 30 Gew.-%, nicht mehr als 25 Gew.-%, nicht mehr als 20 Gew.-% oder nicht mehr als 15 Gew.-% der porösen Partikel (i), bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

51. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Ansprüche 45 bis 50, wobei das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii)

zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) mindestens 2, mindestens 2,5, mindestens 3, mindestens 3,5 oder mindestens 4 beträgt.

52. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Ansprüche 45 bis 51, wobei das Verhältnis des D₅₀-Partikeldurchmessers der Kohlenstoffpartikel (ii) zu dem D₅₀-Partikeldurchmesser der porösen Partikel (i) nicht mehr als 25, nicht mehr als 20, nicht mehr als 15 oder nicht mehr als 10 beträgt.

53. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Ansprüche 45 bis 52, umfassend ein Bindemittel, vorzugsweise in einer Menge von 0,5 bis 20 Gew.-%, mehr bevorzugt 0,5 bis 10 Gew.- % und am meisten bevorzugt 1 bis 5 Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

54. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Ansprüche 45 bis 53, umfassend einen oder mehrere leitfähige Zusatzstoffe, vorzugsweise in einer Gesamtmenge von 0,5 bis 20 Gew.-%, mehr bevorzugt 1 bis 15 Gew.-% und am meisten bevorzugt 2 bis 10 Gew.-%, bezogen auf den Feststoffgehalt der Elektrodenzusammensetzung.

55. Elektrodenzusammensetzung nach einem der Ansprüche 45 bis 54 in Form einer Aufschlämung, ferner umfassend ein Lösungsmittel.

56. Wiederaufladbare Metallionenbatterie, umfassend: (i) eine Anode, wobei die Anode eine Elektrode wie in einem der Ansprüche 1 bis 44 beschrieben umfasst; (ii) eine Kathode, umfassend ein aktives Kathodenmaterial, das in der Lage ist, Metallionen freizusetzen und wieder aufzunehmen; und (iii) einen Elektrolyten zwischen der Anode und der Kathode.

Es folgen keine Zeichnungen