

公告本

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：**P4130701**

※申請日期：**P. P. 7**

※IPC 分類：**H01M 10/40** (2006.01)

H01M 4/58 (2006.01)

H01M 4/40 (2006.01)

一、發明名稱：(中文/英文)

陽極活性材料及使用該材料之電池

ANODE ACTIVE MATERIAL AND BATTERY USING THE SAME

二、申請人：(共 1 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

日商新力股份有限公司

SONY CORPORATION

代表人：(中文/英文)

中鉢 良治

CHUBACHI, RYOJI

住居所或營業所地址：(中文/英文)

日本東京都品川區北品川六丁目七番35號

7-35, KITASHINAGAWA 6-CHOME, SHINAGAWA-KU, TOKYO,

JAPAN

國籍：(中文/英文)

日本 JAPAN

三、發明人：(共 4 人)

姓 名：(中文/英文)

1. 水谷 聰

MIZUTANI, SATOSHI

2. 井上 弘

INOUE, HIROSHI

3. 山口 晃

YAMAGUCHI, AKIRA

4. 北 昭憲

KITA, AKINORI

國 籍：(中文/英文)

1. 日本 JAPAN

2. 日本 JAPAN

3. 日本 JAPAN

4. 日本 JAPAN

四、聲明事項：

主張專利法第二十二條第二項 第一款或 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 日本；2004年09月30日；特願2004-289410

2. 日本；2004年09月30日；特願2004-289413

無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1.

2.

主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

主張專利法第三十條生物材料：

須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於一種陽極活性材料，其包括作為元件之錫(Sn)、鈷(Co)及碳(C)；以及使用該陽極活性材料之電池。

【先前技術】

近年來，已出現大量可攜式電子器件，例如攝錄像機、蜂巢式電話及膝上型電腦，並已嘗試減小此等器件之大小及重量。吾人已積極促進針對改善用作電子器件之可攜式電源來源的電池能量密度之研究及開發，特別係作為關鍵器件之二次電池。此等電池中，與相關技術中之水電解質二次電池相比，例如鉛酸電池及鎳鎘電池，非水電解質二次電池(例如鋰離子二次電池)可獲得高能量密度，因此電池之改良已得以全面地研究。

作為用於鋰離子二次電池內的陽極活性材料，具有較高容量及優越循環特徵的碳材料被廣泛使用，例如非石墨化碳或或石墨。然而，考慮到近來對於較高容量之需求，進一步增加碳材料之容量構成了挑戰。

此一背景下，已開發出透過選擇需要碳化的材料以及形成條件來實現較高容量之碳材料的技術(例如，參考日本未經審核專利申請公開案第Hei 8-315825號)。然而，當使用此一碳材料時，陽極對鋰(Li)具有0.8 V至1.0 V之放電電位，當電池包括碳材料時，電池放電電壓減小，因此幾乎無法期望電池能量密度之顯著改良。此外，一缺點為充電-放電曲線形狀的磁滯現象較大，因此每條充電-放電循

環的能量效率較低。

另一方面，作為具有高於碳材料之容量的陽極，已研究出透過以電化學方式製造某種金屬與鋰的合金而形成並具有以可逆方式產生及分解的特性之合金材料。例如，已開發出使用Li-Al合金或Sn合金的高容量陽極，也已開發出包括Si合金之高容量陽極(例如，參考美國專利第4950566號)。

然而，Li-Al合金、Sn合金或Si合金具有一較大缺點，即循環特徵極差，因為合金依據充電及放電膨脹或收縮，因此每次重複充電-放電循環時，陽極即被粉化。

因此，為改善循環特徵，已考慮形成包括錫或矽(Si)之合金以便防止合金膨脹的技術(例如，參考「電化學協會期刊」1999年第146期第414頁)。此外，已提出 Mg_2Si 等(例如參考「電化學協會期刊」1999年第146期第4401頁)。

【發明內容】

然而，即使使用此等技術，改善循環特徵之效果仍嫌不足，因此事實為包括合金材料之具高容量陽極之優點尚未完全使用。

考慮到上述內容，需要提供具有高容量及優越循環特徵之電池，以及用於該電池之陽極活性材料。

依據本發明之具體實施例，提供至少包括作為元件的錫、鈷及碳之陽極活性材料，其中碳含量係在從9.9 wt%至29.7 wt%，鈷對錫及鈷總量之比率係在從30 wt%至70 wt%。

依據本發明之具體實施例，提供包括一陰極、一陽極及一電解質之電池，其中該陽極包括一至少包括最為元件的錫、鈷及碳之陽極活性材料，及在該陽極活性材料中之碳含量係在從9.9 wt%至29.7 wt%，鈷對錫及鈷總量之比率係在從30 wt%至70 wt%。

在依據本發明之具體實施例的陽極活性材料中，包括作為元件之錫，因此可獲得較高容量。此外，包括作為元件之鈷，鈷對錫及鈷之總量的比率係在從30 wt%至70 wt%，因此在保持較高容量的同時，可改善循環特徵。另外，包括作為元件之碳，碳含量係在從9.9 wt%至29.7 wt%，因此可進一步改善循環特徵。所以，在依據本發明之具體實施例的電池內，其使用陽極活性材料，可獲得較高容量，並可獲得優越循環特徵。

此外，當該陽極活性材料中包括作為一元件的矽時，可獲得較高的容量。

另外，當陽極活性材料內進一步包括作為元件的至少一個種類時，其係選自由銦(In)、鈮(Nb)、鍮(Ge)、鈦(Ti)、鉬(Mo)、鋁(Al)、磷(P)、鎵(Ga)及鉍(Bi)所組成之群組，且其含量為14.9 wt%或更小，可進一步改善循環特徵，更明確地說，當含量為2.4 wt%或更大時，可獲得更高效果。

另外，當陽極活性材料內進一步包括作為元件之鐵時，鐵含量係在從0.3 wt%至5.9 wt%，因此可進一步改善容量及循環特徵。

此外，當電解質內包括環狀碳酸酯(其包括鹵素原子)之一衍生物時，可防止陽極內溶劑之分解反應，因此可進一步改善循環特徵。

從以下說明將更全面地明白本發明之其他及進一步的目的、特徵與優點。

【實施方式】

下面將參考附圖來詳細說明較佳具體實施例。

(第一具體實施例)

依據本發明之一第一項具體實施例之一陽極活性材料可與鋰或類似者發生反應，且包括作為元件之錫與鈷。此係由於與每一單位質量的鋰發生反應的錫數量較高，因此能獲得高容量。此外，此係由於若僅包括錫則難以獲得充分的循環特徵；但是，若還包括鈷，則能改善循環特徵。

該鈷含量較佳的係在鈷對錫與鈷總量之比率係在從30 wt%至70 wt%內，而較佳的係在從30 wt%至60 wt%內。當該比率較低時，該鈷含量減小，從而難以獲得充分的循環特徵。另一方面，當該比率較高時，該錫含量減小，從而難以獲得比在相關技術中一陽極材料(例如，一碳材料)情況下更高之一容量。

該陽極活性材料除包括錫與鈷外還包括作為元件之碳，因為在包括碳時可進一步改善該循環特徵。該碳含量較佳的係在從9.9 wt%至29.7 wt%內，較佳的係在從14.9 wt%至29.7 wt%內，而更佳的係在從16.8 wt%至24.8 wt%內，因為在該範圍內能獲得較高的效果。

在某些情況下，該陽極活性材料較佳的係除包括上述元件外還包括作為元件之矽，因為與每一單位質量的鋰反應的矽數量較高，而能進一步提高容量。該矽含量較佳的係在從0.5 wt%至7.9 wt%內，因為當該含量較低時，不會產生充分的提高容量效果，而當該含量較pulverized高時，該陽極活性材料會依據充電與放電而粉化，從而該等循環特徵會衰減。

在某些情況下，該陽極活性材料較佳的係進一步包括從由以下作為元件組成的群組中選取的至少一類材料：銻、銱、鍺、鈦、鉬、鋁、磷、鎳及鈹，因為該等循環特徵可獲得進一步改善。該等元件之含量較佳的係在為14.9 wt%或更低，更佳的係在從2.4 wt%至14.9 wt%內，而更佳的係在從4.0 wt%至12.9 wt%內，因為當該含量較低時，難以獲得充分的效果，而當該含量較高時，該錫含量減小，從而難以獲得足夠的容量而該等循環特徵衰減。

此外，該陽極活性材料具有一低晶體相位或一非晶相位。該相位係一能與鋰或類似者反應之反應相位，而藉由該反應相位能獲得卓越的循環特徵。在將CuK α 射線用作特定的X射線而掃掠速率為1°/分鐘之情況下，當繞射角度為2 θ 時，藉由X射線繞射而獲得之該相位繞射峰值的半寬度較佳的係1.0°或更大。此係由於鈹或類似者可以平滑地插入或擷取，而電解質的反應性將進一步減少。

透過與鋰或類似者進行電化學反應之前與之後的X射線繞射圖之間的比較，可容易地決定藉由X射線繞射而獲得

之繞射峰值是否對應於一能夠與鋰或類似者進行反應之反應相位。例如，當在與鋰與類似者的電化學反應之前的繞射峰值位置不同於該電化學反應之後的繞射峰值位置時，該繞射峰值對應於一能夠與鋰或類似者反應之反應相位。在該陽極活性材料中，在(例如) $2\theta=20^\circ$ 至 50° 範圍內可偵測出低晶體反應相位或非晶反應相位之繞射峰值。該低晶體反應相位或該非晶反應相位包括，例如，上述元件之每一元件，而且認為主要係藉由碳而將該反應相位改變為低晶體或非晶相位。

該陽極活性材料除低晶體相位或非晶相位外還可具有一包括簡單物質或每一元件之一部分的相位。

此外，在該陽極活性材料中，作為一元件的碳之至少一部分較佳的係耦合至作為另一元件之一金屬元件或一類金屬元件。認為該等循環特徵之衰減係錫或類似者之集合或結晶所致；但是，當碳係耦合至另一元件時，可防止此類集合或結晶。

舉例而言，可使用 X 射線光電子光譜法 (X-ray photoelectron spectroscopy ; XPS)，作為檢查一元件的耦合狀態之一測量方法。該 XPS 係為一種透過向一測試樣本之表面施加一軟 X 射線(在一可購得之裝置中，使用一 Al-K α 射線或一 Mg-K α 射線)來測量從該測試樣本之表面發射之一光電子動能，從而決定該元件成分以及在距該測試樣本之一表面數 nm 遠之一區域中該元件之耦合狀態之方法。

與在一第一階近似值中該元件上之一充電密度相關，而

改變一元件之一內部軌道電子之結合能。例如，當因與靠近碳元件之一元件的相互作用而使得一碳元件之充電密度減小時，會減少諸如2p電子之外部電子，因此一外殼對該碳元件之1s電子有很強的束縛。換言之，當該元件之充電密度減小時，該結合能增加。在該XPS中，當該結合能增加時，該峰值會偏移至一較高的能量區域。

在該XPS中，在一裝置中觀察到石墨情況下碳的1s軌道(C1s)峰值處於284.5 eV，在該裝置中執行能量校準而使得觀察到金原子之4f軌道(Au4f)峰值處於84.0 eV。此外，在表面污染碳之情況下，觀察到該峰值處於284.8 eV。另一方面，在該碳元件之充電密度增加之情況下，例如在碳係耦合至一金屬元件或一類金屬元件之情況下，觀察到C1s之峰值處於低於284.5 eV之一區域中。換言之，在觀察到於該陽極活性材料中獲得的C1s之複合波峰值處於一低於284.5 eV之區域中之情況下，該陽極活性材料中所包括的碳中至少有一部分係耦合至作為另一元件之金屬元件或類金屬元件。

在對該陽極活性材料進行XPS測量時，若該陽極活性材料之表面覆蓋有表面污染碳，則較佳的係用附著於一XPS裝置之一氬離子槍來對該表面略作噴濺。此外，若欲測量之陽極活性材料係放置於一電池陽極中(後文將對此作說明)，則在拆解該電池以取出該陽極之後，可用一揮發性溶劑(例如二甲基碳酸酯)來清潔該陽極以便能移除在該陽極表面上之一低揮發性溶劑與一電解質鹽。此類取樣較佳

的係在一惰性大氣中執行。

此外，在該 XPS 測量中，例如，可使用 C1s 峰值來校正一頻譜之能量軸。一般地，表面污染碳存在於一材料表面上，因此令該表面污染碳之 C1s 峰值固定於 284.8 eV，並將該峰值用作一能量參考。在該 XPS 測量中，所獲得的 C1s 峰值之波形係作為包括該表面污染碳峰值與該陽極活性材料中的碳峰值之一形式，因此透過利用(例如)可購得之軟體對該波形進行分析來分離該表面污染碳之峰值與該陽極活性材料中的碳峰值。在該波形分析中，將存在於一最低結合能側上之一主要峰值位置用作一能量參考(284.8 eV)。

該陽極活性材料之形成可以係：例如，透過混合所有元件之材料來形成一混合物、將該混合物熔化於一電爐、一高頻率電感爐、一電弧爐或類似物中，而然後讓該混合物固化；或透過各種霧化方法(例如，氣體霧化或水霧化)、各種旋轉方法，或利用機械化學反應之方法(例如，機械合金方法或一機械研磨方法)。該陽極活性材料較佳的係透過利用其間機械化學反應之方法而形成，因為該陽極活性材料可具有一低晶體結構或一非晶結構。在此方法中，例如，可使用一行星球研磨。

可將元件的各樣本物質之一混合物用作該材料；但是，較佳的係使用除碳以外的元件之一部分之一合金。此係由於當向此一合金添加碳以透過一機械合金方法來合成該陽極活性材料時，該陽極活性材料可具有一低晶體結構或一

非晶結構，並能減少反應時間。該材料之形式可以係粉末或一塊。

由於將碳用作一材料，因此可使用一類或二類或更多類的碳材料，例如，非石墨化碳、石墨化碳、石墨、各類熱解碳、各類焦炭、各類玻璃狀碳、燃燒後高分子量有機化合物、活性碳及碳黑。其中，各類焦炭括瀝青焦、針狀焦、石油焦等，而燒結的高分子量有機化合物係一高分子量化合物，例如酚樹脂、呋喃樹脂或透過適當溫度的燃燒而碳化之類似物。該等碳材料可具有一纖維形式、一球形形式、一粒子形式或一等級形式。

例如，該陽極活性材料係用於二次電池中，下面將對此進行說明。

(第一電池)

圖1顯示一第一二次電池之一斷面圖。該二次電池係所謂的圓柱類型，其所包含之一螺旋纏繞電極體20包括一帶形陰極21與一帶形陽極22，該陰極與該陽極係層壓並係螺旋纏繞於一實質上中空的圓柱形電池罐11中且在其之間有一分離器23。該電池罐係由(例如)鍍鎳的鐵製成。該電池罐11之一端部分係封閉，而其另一端部分係開放。將一電解溶液(其係一液體電解質)注入該電池罐11，以讓該分離器23充滿該電解溶液。此外，將一對絕緣板12與13置放成使得螺旋纏繞的電極體20係夾在該等二板之間而在垂直於一周邊纏繞表面之一方向上。

在該電池罐11之開放端部分中，採用墊片17填隙一電池

蓋 14 以及置放於該電池蓋 14 內側之一安全閥機構 15 與一 PTC(正溫度係數器件)裝置 16, 並密封該電池罐 11 之內部。該電池蓋 14 係由(例如)與電池罐 11 相同材料製成。該安全閥機構 15 係經由該 PTC 裝置 16 而電連接至該電池蓋 14, 而當該電池內的內部壓力由於內部短路或外部施加的熱量而增加至高於一特定範圍時, 一圓盤狀板 15A 翻轉以致斷開該電池蓋 14 與該螺旋纏繞電極體 20 之間的電連接。當溫度升高時, 該 PTC 器件 16 藉由增加之電阻限制電流, 從而防止藉由一大電流所產生之不正常加熱。該墊片 17 係由(例如)一絕緣材料製成, 而其表面塗布有瀝青。

例如, 將一中心銷 24 插入該螺旋纏繞電極體 20 之中心。將由鋁或類似材料製成之一陰極引線 25 連接至該螺旋纏繞電極體 20 之陰極 21, 而將由鎳(Ni)或類似材料製成之一陽極引線 26 連接至該陽極 22。該陰極引線 25 係焊接至該安全閥機構 15 以便電連接至該電池蓋 14, 而該陰極引線 26 係焊接並電連接至該電池罐 11。

圖 2 顯示圖 1 所示螺旋纏繞電極體 20 之一部分之一放大視圖。該陰極 21 包括, 例如: 一陰極電流集極 21A, 其具有一對彼此面對的表面; 以及一陰極活性材料層 21B, 其係置放於該陰極電流集極 21A 之任一側或二側上。該陰極電流集極 21A 係由(例如)鋁箔的金屬箔製成。該陰極活性材料層 21B 包括(例如)能夠插入並擷取鋰子之一類或二類或更多類陰極活性材料, 而且若需要還包括一導電體(例如, 碳材料)與一黏結劑(例如, 聚偏二氟乙烯)。

例如，將使用不包括鋰之金屬硫化物或金屬氧化物，例如硫化鈦(TiS_2)、硫化鉬(MoS_2)、硒化鈮(NbSe_2)或氧化鈮(V_2O_5)，用作能夠插入並擷取鋰之陰極活性材料。此外，使用作為一主要成分之一鋰錯合物氧化物，其包括 Li_xMO_2 (其中M指示一或多類過渡金屬，而x值取決於該電池之一充電放電狀態而一般在範圍 $0.05 \leq x \leq 1.10$ 內)。作為該鋰錯合氧化物之一過渡金屬M，較佳的係鈷、鎳或錳(Mn)。此一鋰錯合氧化物之特定實施例包括 LiCoO_2 、 LiNiO_2 、 $\text{Li}_x\text{Ni}_y\text{Co}_{1-y}\text{O}_2$ (其中，x與y之值取決於該電池之一充電放電狀態，而且一般分別在範圍 $0 < x < 1$ 及 $0 < y < 1.0$ 內)、具有一尖晶石結構之一鋰錳錯合物氧化物及類似物。

該陽極22包括，例如：一陽極電流集極22A，其具有一對彼此面對的表面；以及一陽極活性材料層22B，其係置放於該陽極電流集極22A之任一側或二側上，如同該陰極21之情況中一樣。該陽極電流集極22A係藉由(例如)諸如銅箔之金屬箔製成。

該陽極活性材料層22B包括(例如)依據具體實施例之陽極活性材料，而且若需要還包括諸如聚偏二氟乙烯的黏結劑。當依據該項具體實施例之陽極活性材料係包括於該二次電池中時，該二次電池可獲得一高容量，並可改善該二次電池之循環特徵。該陽極活性材料22B除包括依據該項具體實施例之陽極活性材料外，還可包括另一陽極活性材料或諸如一導體的另一材料。引用(例如)能夠插入並擷

取鋰之一碳材料，作為另一陽極活性材料。該碳材料係較佳的，因為可改善充電放電循環特徵，而且該碳材料還充當一導電體。引用(例如)與在形成該陽極活性材料時所使用者相同之材料，作為該碳材料。

依據該項具體實施例該碳材料與該陽極活性材料之比率較佳的係在從1 wt%至95 wt%內。此係因為當該碳材料之比率低於該範圍時，該陽極22之導電率減小，而當該碳材料之比率高於該範圍時，電池容量減小。

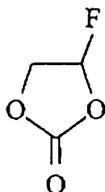
該分離器23在該陰極21與該陽極22之間進行隔離，以便讓鋰離子通過而防止電流因該陰極21與該陽極22之間的接觸而短路。該分離器23係由(例如)合成樹脂(例如，聚四氟乙烯、聚丙烯或聚乙烯)之一多孔膜製成或一陶瓷之多孔膜，而且該分離器23可具有其中層壓二類或更多類多孔膜之一結構。

充滿該分離器23之電解溶液包括一溶劑與一溶解於該溶劑中的電解質鹽。引用丙烯碳酸酯、乙烯碳酸酯、二乙基碳酸酯、二乙基碳酸酯、1,2-二甲氧基乙烷、1,2-二乙氧基乙烷、 γ -丁內酯、四氫呋喃、2-甲基四氫呋喃、1,3-二氧戊環、4-甲基-1,3-二氧戊環、二乙基醚、環丁砜、甲基環丁砜、氰化甲烷、丙氰、苯甲醚、乙酸酯、丁酸酯、丙酸酯或類似者作為該溶劑。可使用從其中選取一類溶劑或二類或更多類溶劑之一混合物作為該溶劑。

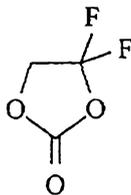
該溶劑更佳的係包括一環狀碳酸酯(包括一鹵素原子)之一衍生物。此係由於可防止該陽極22中的溶劑之分解反

應，而且可改善循環特徵。該循碳酸酯之衍生物之特定實施例包括：化學公式1中所示的4-氟-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式2中所示的4,4-二氟-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式3中所示的4,5-二氟-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式4中所示的4-二氟-5-氟-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式5中所示的4-氯-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式6中所示的4,5-二氯-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式7中所示的4-溴-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式8中所示的4-碘-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式9中所示的4-氟甲基-1,3-二氧戊環-2-單、化學公式10中所示的4-三氟甲基-1,3-二氧戊環-2-單及類似物，而其中較佳的係4-氟-1,3-二氧戊環-2-單，因為能獲得一較高的效果。

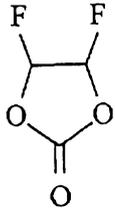
[化學公式1]



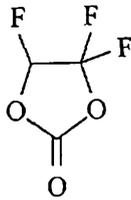
[化學公式2]



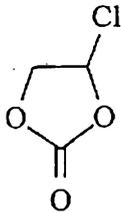
[化學公式3]



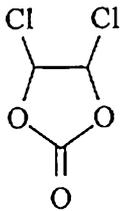
[化學公式 4]



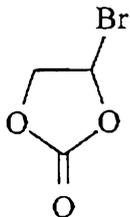
[化學公式 5]



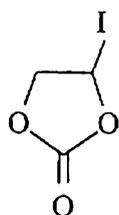
[化學公式 6]



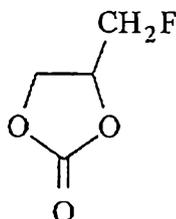
[化學公式 7]



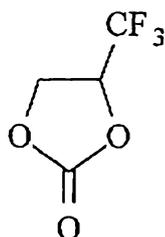
[化學公式 8]



[化學公式 9]



[化學公式 10]



該溶劑可包括僅該碳之衍生物；但是，較佳的係使用該碳酸酯之衍生物與在大氣壓力 (1.01325×10^5 Pa) 下沸點為 150°C 或更低之低沸點溶劑之混合物作為該溶劑。此係由於可提高該離子導電率。整個溶劑中該碳酸酯衍生物之含量較佳的係在從 0.1 wt% 至 80 wt% 內。當該含量低於該範圍時，不會充分產生防止該陽極 22 中該溶劑分解反應之效果，而當該含量較高時，黏度增加而離子導電率減小。

例如，使用鋰鹽，還可使用一類鋰鹽或二類或更多類鋰鹽之一混合物，作為該電解質鹽。該等鋰鹽之實施例包括 LiClO_4 、 LiAsF_6 、 LiPF_6 、 LiBF_4 、 $\text{LiB}(\text{C}_6\text{H}_5)_4$ 、 $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{Li}$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{Li}$ 、 LiCl 、 LiBr 及類似物。較佳的係將

該鋰鹽用作該電解質鹽；但是，該電解質鹽並不明確受限於該鋰鹽。此係由於當從該陰極21或類似物提供鋰離子時，可獲得足夠的鋰離子引起充電及放電。

例如可以透過以下步驟而形成二次電池。

首先，例如，混合該陰極活性材料與該導電體及該黏結劑(若需要)，以製備一陰極混合物，而然後將該陰極混合物分散於一混合溶劑(例如，N-甲基-2-吡咯酮)中以形成陰極混合物淤漿。接下來，在向該陰極電流集極21A施加該陰極混合物淤漿並乾燥該溶劑後，透過壓縮形成該陰極活性材料層21B以便形成該陰極21。接下來，將該陰極引線25焊接至該陰極21。

此外，例如，混合依據該項具體實施例之陽極活性材料與另一陽極活性材料及該黏結劑(若需要)，以製備一陽極混合物，而然後將該陽極混合物分散於一混合溶劑(例如，N-甲基-2-吡咯酮)中以形成陽極混合物淤漿。接下來，在向該陽極電流集極22A施加該陽極混合物淤漿並乾燥該溶劑後，透過壓縮形成該陽極活性材料層22B以便形成該陽極22。

此後，例如，將其間具有該分離器23之一包括該陰極21與該陽極22之層板作螺旋纏繞，而將該陰極引線25之一端部分焊接至該安全閥機構15，而將該陽極引線26之一端部分焊接至該電池罐11。然後，將包括該陰極21與該陽極22之螺旋纏繞層板夾在一對絕緣板12與13之間，而然後將該螺旋纏繞層板包含於該電池罐11中。然後，將該電解溶液

注入該電池罐11。此後，透過該墊片17來填隙，從而將該電池蓋14、該安全閥機構15及該PTC器件16固定於該電池罐11之一開放的端部分。從而，製成圖1所示之二次電池。

在該二次電池中，當實施充電時，從該陰極21擷取鋰離子並透過該電解質而將該等鋰離子插入該陽極22。在實施放電時，從該陽極22擷取鋰離子並透過該電解質而將該等鋰離子插入該陰極21。在此情況下，該陽極22包括該陽極活性材料，該材料包括上述比率之錫、鈷及碳，因此當獲得高容量時，可改善該等循環特徵。

因此，在依據具體實施例之陽極活性材料中，包括錫作為該陽極活性材料之一元件，從而可獲得高容量。此外，包括鈷作為該陽極活性材料之一元件，而鈷對錫與鈷總量之比率在係在從30 wt%至70 wt%內，因此當保持高容量時，可改善該等循環特徵。進一步，包括碳作為該陽極活性材料之一元件，而該碳含量在係在從9.9 wt%至29.7 wt%內，因此可進一步改善該等循環特徵。因此，在依據該項具體實施例之電池中，使用該陽極活性材料，因此能獲得高容量及卓越的循環特徵。

此外，當包含矽作為該陽極活性材料中之一元件時，可獲得較高的容量。

進一步，當該陽極活性材料中包括從由銻、銱、鍺、鈦、鉬、鋁、磷、鎳及鈹組成的群組中選取之至少一類材料作為一元件且其含量在範圍14.9 wt%或更低時，可進一

步改善該等循環特徵，而更明確言之，當該含量在範圍2.4 wt%或更高時，可獲得更高的效果。

此外，當該電解質中的環狀碳酸酯(包括一鹵素原子)之衍生物時，可防止該陽極22中該溶劑之分解反應，而可進一步改善該循環特徵。

(第二電池)

圖3顯示第二二次電池之結構。在該二次電池中，一陰極引線31及一陽極引線32所附著之一螺旋纏繞電極體30係包含於膜形封裝部件40中，而可減小該二次電池之尺寸、重量及輪廓。

將該陰極引線31及該陽極引線32從該封裝部件40之內部拖曳到外部，例如在相同方向上拖曳。該陰極引線31與該陽極引線32係由(例如)諸如鋁、銅、鎳或不銹鋼的一金屬材料製成且具有一薄板形式或篩網形式。

封裝部件40係由(例如)矩形鋁層壓膜製造，該膜包含一尼龍膜、鋁箔與一聚乙烯膜(係以此順序而層壓)。置放封裝部件40以便封裝部件40之聚乙烯膜面對螺旋纏繞電極主體30，並且藉由熔化焊接或黏著劑而將封裝部件40之邊緣部分彼此黏著。一用於防止外部空氣進入之黏膜41插入於封裝部件40、陰極引線31及陽極引線32之間。該黏膜41係由(例如)能黏附於該等陰極引線31及該陽極引線32之一材料(例如，聚乙烯、聚炳烯、經修改的聚乙烯或經修改的聚炳烯之類聚烯烴樹脂)製成。

該等封裝部件40可以係由具有任何其他結構之一層板膜

(一高分子量膜，例如，聚丙烯或金屬膜)而非上述鋁層板膜製成。

圖4顯示沿圖3線I-I所取之螺旋纏繞電極體30之斷面圖。該螺旋纏繞電極體30係一包括一陰極33與一陽極34之一螺旋纏繞層板，該陰極與該陽極之間具有一分離器35及一電解質層36，而該螺旋纏繞電極體30之一最外部分受到一保護膠帶37之保護。

陰極33具有一結構，其中將一陰極活性材料層33B置放於一陰極電流集極33A之一側或兩側上。陽極34具有一結構，其中將陽極活性材料層34B置放於一陽極電流集極34A之一側或兩側上，而該陽極34係置放成使得該陽極活性材料層34B面對該陰極活性材料層33B。陰極電流集極33A、陰極活性材料層33B、陽極電流集極34A、陽極活性材料層34B及分離器35之結構，係分別與陰極電流集極21A、陰極活性材料層21B、陽極電流集極22A、陽極活性材料層22B及分離器23之結構相同。

該電解質層36包括一電解溶液與一高分子量化合物(作為固持該電解溶液之一固持體)，且係所謂的凝膠電解質。凝膠電解質為較佳，因為凝膠電解質可以獲得高離子導電率，並且可以防止電池洩漏。該電解質溶液(即溶劑及電解質鹽)之結構與圖1所示之圓柱型二次電池結構相同。高分子量化合物之實施例包括以氟為主的高分子量化合物(例如聚偏二氟乙烯)或氟化亞乙烯與六氟丙烯之共聚物、一以醚為主的高分子量化合物(例如聚氧乙烯或一包

括聚氧乙烯與聚丙烯氰及類似者的交聯物)之類。更明確言之，在氧化還原的穩定性方面，較佳的係以氟為主的高分子量化合物。

例如可以透過以下步驟而形成二次電池。

首先，將包括該溶劑、該電解質鹽、該高分子量化合物及一混合溶劑之一先驅物溶液施加於該陰極33及該陽極34，並讓該混合溶劑揮發以形成該電解質層36。之後，透過焊接將陰極31附著於該陰極電流集極33A之一端部分，並透過焊接將該陽極引線32附著於該陽極電流集極34A之一端部分。接下來，層壓其上面形成該電解質層36之陰極33後與其上面形成該電解質層36之陽極34且在該陰極33與該陽極34之間具有該分離器35，從而形成一層板，該層板係螺旋纏繞於一縱向方向上，並將該保護膠帶37黏附於該層板之一最外部分以便形成該螺旋纏繞電極體30。最後，例如，將該螺旋纏繞電極體30夾在該等封裝部件40之間，並透過熱熔合黏接或類似方法將該等封裝部件40之邊緣部分彼此黏附以將該螺旋纏繞電極體30密封於該等封裝部件40中。此時，在該陰極引線31、該陽極引線32及該等封裝部件40之間插入該黏膜41。從而，製成圖3及4所示之二次電池。

此外，二次電池可以係透過以下步驟而形成。首先，如上面之說明，形成該陰極33與該陽極34，並且在將該陰極引線31與該陽極引線32附著於該陰極33與該陽極34後，層壓該陰極33與該陽極34且在其之間具有該分離器35以形成

一層板，而且該層板係螺旋纏繞，並將該保護膠帶37黏附於該層板之一最外部分以便形成一螺旋纏繞體作為該螺旋纏繞電極體30之一先驅物體。接下來，該螺旋纏繞體係夾在該封裝部件40，且該等端部分(除一側外)係透過熱熔合黏接黏著以形成一袋形。然後，該螺旋纏繞體包含於封裝部件40中。接下來，製備包括該溶劑、該電解質鹽、單體作為該高分子量化合物材料以及一聚合起始劑而用於一電解質之一複合物，而且若需要則還製備諸如聚合起始劑之類的另一材料，並將該複合物注入該等封裝部件40之內部。

在注入用於一電解質之複合物後，透過在一真空環境中的熱熔合黏接來密封該等封裝部件40之一開口。接來來，透過施加熱量來聚合該單體以形成一高分子量化合物，從而形成該凝膠電解質層36，並裝配圖3所示之二次電池。

該二次電池可發揮與該第一二次電池之情況下相同的功能，且可具有與該第一二次電池相同之效果。

(第三電池)

圖5顯示一第三二次電池之一斷面圖。在該二次電池中，附著包括一陰極52(其係附著有一陰極引線51)與一陽極54(其係附著有一陽極引線53)之一板形電極體50，而使得該陰極52與該陽極54彼此面對且其之間的一電解質層55係包含於一膜形封裝部件56中。該封裝部件56之結構係與上述之封裝部件40之結構相同。

該陰極52具有一結構，其中一陰極活性材料層52B係置

放於一陰極電流集極52A上。該陽極54具有一結構，其中一陽極活性材料54B係置放於一陽極電流集極54A上，而該陽極54係置放成使得該陽極活性材料層54B面對該陰極活性材料層52B。陰極電流集極52A、陰極活性材料層52B、陽極電流集極54A、陽極活性材料層54B之結構，係分別與陰極電流集極21A、陰極活性材料層21B、陽極電流集極22A、陽極活性材料層22B之結構相同。

該電解質55係由(例如)固態電解質製成。例如，可使用無機固態電解質或固態高分子量電解質作為該固態電解質，只要該固態電解質係具有鋰離子導電率之一材料即可。引用包括氯化鋰、碘化鋰或類似者之一電解質作為該無機固態電解質。該固態高分子量電解質主要係由一電解質鹽與一高分子量化合物(其中溶解該電解質鹽)製成。例如，可使用以醚為主的高分子量化合物(例如，聚氧乙烯或包括聚氧乙烯之交聯物)、以醚為主的高分子量化合物(例如聚甲基丙烯酸酯)或以丙烯酸酯為主的高分子量化合物，或者其混合物或共聚物，作為該固態高分子量電解質之高分子量化合物。

例如，可透過混合該高分子量化合物、該電解質鹽及一混合溶劑並接著令該混合溶劑揮發來形成該固態高分子量電解質。此外，繼該電解質鹽之後，將作為高分子量化合物及該聚合起始劑材料之單體以及若需要還將諸如該聚合起始劑的另一材料溶解於該混合溶劑中，並令該混合溶劑揮發，透過施加熱量來聚合該等單體以形成高分子量化合

物，從而能形成該固態高分子量電解質。

例如，可透過氣相方法(例如噴濺方法、真空沉積方法、雷射切除方法、離子電鍍方法或CVD(化學氣相沉積方法)或液相沉積(例如溶膠凝膠方法)在該陰極52或該陽極54之表面上形成該無機電解質。

該二次電池可發揮與該第一或該第二二次電池之情況下相同的功能，且可具有與該第一或該第二二次電池相同之效果。

(第二具體實施例)

依據本發明之一第二項具體實施例之一陽極活性材料具有與依據該第一項具體實施例之陽極活性材料相同之結構，不同之處係進一步包括鐵作為一元件。

該陽極活性材料中的鐵含量較佳的係在從0.3 wt%至5.9 wt%內。當該鐵含量為0.3%或更高時，可進一步改善該等循環特徵；但是，當該鐵含量超過5.9%時，令該錫含量減小，從而難以獲得一足夠的容量。

如同該第一項具體實施例之情況一樣，可將該陽極活性材料用於該第一電池、該第二電池及該第三電池。

[實施例]

下面將詳細說明本發明之特定實施例。

(實施例1-1至1-7)

首先，製備陽極活性材料。製備鈷粉末、錫粉末及碳粉末以作為該陽極活性材料之材料，並將該鈷粉末與該錫粉末製成合金而形成鈷錫合金粉末，且接著將該碳粉末添加

入該合金粉末，並將其乾燥混合，從而形成混合物。此時，作為該等材料之比率，如表1所示，鈷對錫與鈷總量之比率(下文稱為Co/(Sn+Co)比率)係固定為37 wt%，而碳比率在係在從10 wt%至30 wt%內變化。接下來，將20 g混合物連同約400 g直徑為9 mm之鋼球放入Ito Seisakuso行星球研磨器之反應容器中。接下來，將氫氣體引入該反應容器，並以250 rpm及10分鐘的間隔重複10分鐘操作之循環，至總操作時間達到30小時。然後，將該反應容器冷卻到室溫，並從該反應容器取出合成的陽極活性材料，將該陽極活性材料粉末並具有280個網目之篩網，以移除該陽極活性材料粉末之粗顆粒。

[表 1]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			半寬 度 (°)	初始充 電容 量 (mAh/g)	第二循環的 放電容 量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電容 量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C					
實施例 1-1	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	3.5	500	122	73	60
實施例 1-2	32.6	55.4	12.0	32.2	54.9	11.9	3.8	505	128	78	61
實施例 1-3	31.5	53.6	15.0	31.1	53.0	14.9	4.3	515	131	81	62
實施例 1-4	30.7	52.3	17.0	30.4	51.8	16.8	4.5	521	136	90	66
實施例 1-5	29.6	50.4	20.0	29.3	49.9	19.8	4.8	525	140	98	70
實施例 1-6	27.8	47.3	25.0	27.5	46.8	24.8	5.1	526	140	95	68
實施例 1-7	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	5.4	510	128	78	61
比較實 施例1-1	37.0	63.0	0	36.6	62.4	0	0.2	450	87	0	0
比較實 施例1-2	36.6	62.4	1.0	36.3	61.7	1.0	0.5	453	91	0	0
比較實 施例1-3	35.2	59.9	5.0	34.8	59.3	5.0	2.0	475	98	0	0
比較實 施例1-4	34.0	58.0	8.0	33.7	57.4	7.9	3.0	490	111	13	12
比較實 施例1-5	22.2	37.8	40.0	22.0	37.4	39.6	5.5	460	93	19	20
比較實 施例1-6	18.5	31.5	50.0	18.3	31.2	49.5	5.5	410	76	9	12
比較實 施例1-7	16.7	28.4	55.0	16.5	28.1	54.5	5.5	380	72	7	10

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

分析所獲得之陽極活性材料的成分。藉由碳/硫分析器測量碳含量，藉由ICP(感應耦合電漿)發射光譜法測量鈷及錫含量。表1顯示該等分析值。表1顯示之材料比率及分析值係經捨入為第一小數位。以下實施例中之材料比率及

分析值係以相同方式顯示。此外，當為所獲得之每一陽極活性材料進行X射線繞射時，觀察到具有範圍介於 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內的較寬半寬度之繞射峰值。表1亦顯示各陽極活性材料之繞射峰值半寬度。另外，當為所獲得之每一陽極活性材料進行XPS測量時，如圖6所示，獲得峰值P1。當分析峰值P1時，獲得表面污染碳之峰值P2及陽極活性材料內低於峰值2之能量側上的C1之峰值P3。實施例1-1至1-7之各實施例中，在低於284.5 eV之區域內獲得峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料之每一材料所包括的碳係耦合至另一元件。

接下來，實施例1-1至1-7之各實施例的陽極活性材料粉末用於形成圖7所示之硬幣型二次電池，並決定二次電池之初始充電容量。硬幣型電池包括測試電極61，其使用封裝部件62內包含的各實施例之陽極活性材料，以及附著於封裝部件64的反電極63。採用分離器65層壓測試電極61及反電極63，該分離器係採用電解質溶液充滿於中間，接著藉由墊片66加以填隙，從而形成硬幣型電池。

透過以下步驟而形成該測試電極61。首先，混合70份重量的所獲得之陽極活性材料、作為導電體及另一陽極活性材料之20份重量的石墨、作為導電體之1份重量的乙炔黑及作為黏結劑之4份重量的聚偏二乙烯，以形成一混合物。將該混合物散佈於適當溶劑內以形成淤漿後，將淤漿應用於銅箔之電流集極，並加以乾燥。然後，將該電流集極衝壓成直徑為15.2 mm之一小球。

使用衝壓成一直徑為15.5 mm的圓盤形狀之金屬鋰板，作為該反電極63。使用包括乙烯碳酸酯、丙烯碳酸酯及二甲基碳酸酯且其中溶解 LiPF_6 作為一電解質鹽之一混合溶劑，作為該電解質溶液。

作為初始充電容量，每單位質量之充電容量為測試電極61之質量減去銅箔電流集極質量及黏結劑質量，其係透過在1 mA之恆定電流下決定對二次電池充電，至電池電壓到達0.2 mV，接著在0.2 mV之恆定電壓下對二次電池充電，至電流到達10 μA 。在此情況下，充電意味著鋰進入該陽極活性材料之插入反應。結果顯示於表1及圖8中。

此外，形成圖1所示之一圓柱型二次電池。首先，以氧化鎳：克特晏碳黑：聚偏二氟乙烯=94:3:3之質量比混合由氧化鎳、作為一導電體之克特晏碳黑及作為一黏結劑之聚偏二氟乙烯製成之一陰極活性材料，以形成一混合物。在將該混合物分散於一溶劑(例如N-甲基-2-吡咯酮)中以形成陰極混合物淤漿後，將該陰極混合物淤漿均勻地施加於由帶形鋁箔製成的陰極電流集極21A之二側，並加以乾燥。然後，透過滾壓壓縮模型而形成該陰極活性材料層21B，以便形成該陰極21。之後，由鋁製成之陰極引線25附著於該陰極電流集極21A之一端。

此外，將包括如上所述而形成的陽極活性材料之淤漿均勻地施加於由帶形銅箔製成的陽極電流集極22A之二側，並加以乾燥。然後，透過滾壓壓縮模型而形成該陽極活性材料層22B，以便形成該陽極22。接下來，由鎳製成之陽

極引線26附著於該陽極電流集極22A之一端。

在形成該陰極21與該陽極22後，製備該分離器23，並按此處之說明順序層壓該陽極22、該分離器23、該陰極21及該分離器23以形成一層板，並對該層板作數次螺旋纏繞以形成該螺旋纏繞電極體20。

在形成該螺旋纏繞電極體20後，將該螺旋纏繞電極體20夾在一對絕緣板12與13之間，並將該陽極引線26焊接至該電池罐11，而將該陰極引線25焊接至該安全閥機構15。然後，電池罐11包含之螺旋纏繞電極體20由鍍鎳之鐵製成。此後，藉由一分解方法將上述電解質溶液注入該電池罐11。

在將該電解質溶液注入該電池罐11後，用表面塗布有瀝青的墊片17來將該電池蓋14填隙於該電池罐11，從而獲得圖1所示之圓柱型二次電池。

測量所獲得之二次電池的循環特徵。表1及圖8顯示測量結果。此時，透過以下步驟來測量該等循環特徵。

首先，在對該二次電池進行0.5 A恆定電流之充電至該電池電壓達到4.2 V後，對該二次電池進行4.2 V恆定電壓之充電至該電流達到10 mA。然後，對該二次電池進行0.25 A恆定電流之放電至該電池電壓達到2.6 V。因此，執行充電-放電之第一循環。

作為第二或後面的循環，在對該二次電池進行1.4 A恆定電流之充電至該電池電壓達到4.2 V後，對該二次電池進行4.2 V恆定電壓之充電至該電流達到10 mA，並接著對

該二次電池進行1.0 A恆定電流之放電至該電池電壓達到2.6 V。決定該第二循環中放電容量之第300循環中的容量保持率(第300循環中的放電容量)/(第二循環中的放電容量) $\times 100$ (%)，作為該等循環特徵。

作為相對於實施例1-1至1-7之比較實施例1-1，合成一陽極活性材料，並如同實施例1-1至1-7之情況一樣形成二次電池，不同之處僅係不使用碳粉末作為一材料。此外，作為比較實施例1-2至1-7，合成陽極活性材料，並如同實施例1-1至1-7中的情況一樣形成二次電池，不同之處係如表1所示而改變碳粉末材料比率。對比較實施例1-1至1-7之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表1中顯示測量結果。進一步，在對比較實施例1-1至1-7之陽極活性材料進行XPS測量時，在比較實施例1-3至1-7之陽極活性材料中獲得圖6所示之峰值P1。在分析該峰值P1時，如同在實施例1-1至1-7之情況下一樣，獲得表面污染碳之峰值P2與該陽極活性材料中的C1s峰值P3，並在一低於284.5 eV之區域中獲得比較實施例1-3至1-7之每一實施例中的峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。另一方面，在比較實施例1-1中，如圖9所示，獲得一峰值P4，而在分析該峰值P4時，僅獲得表面污染碳之峰值P2。在比較實施例1-2中，用作一材料的碳數量較小，因此藉由分析僅獲得該峰值P2，而難以偵測該峰值P3。

此外，以相同方式測量比較實施例1-1至1-7之二次電池之充電容量及循環特徵。表1及圖8中顯示該等測量結果。

從表1及圖8明顯看出，在該陽極活性材料中的碳含量在係在從9.9 wt%至29.7 wt%之實施例1-1至1-7中，與該碳含量超出該範圍之比較實施例1-1至1-7相比，可顯著提高該容量保持比率。此外，可提高初始充電容量及放電容量。

此外，當該陽極活性材料中的碳含量在係在從14.9 wt%至29.7 wt%內，而更明確言之係在從16.8 wt%至24.8 wt%內時，可獲得更高的值。

換言之，發現當該碳含量在係在從9.9 wt%至29.7 wt%內時，可提高容量而改善循環特徵，而該碳含量更佳的係範圍在從14.9 wt%至29.7 wt%內，而更佳的係在從16.8 wt%至24.8 wt%內。

(實施例2-1至2-9)

如同實施例1-1至1-7之情況一樣形成二次電池，不同之處僅係合成如表2所示改變鈷、錫及碳材料比率之陽極活性材料。更明確言之，碳材料比率係固定為10%，而Co/(Sn+Co)比率在係在從30 wt%至70 wt%內變化。

[表 2]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			$\frac{\text{Co}}{\text{Sn+Co}}$	半寬 度 (°)	初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C						
實施例 2-1	63.0	27.0	10.0	62.4	26.7	9.9	0	3.8	370	96	69	72
實施例 2-2	58.5	31.5	10.0	57.9	31.2	9.9	65	3.8	380	100	71	71
實施例 2-3	54.0	36.0	10.0	53.5	35.6	9.9	60	3.7	400	102	72	70
實施例 2-4	49.5	40.5	10.0	49.0	40.1	9.9	55	3.7	420	105	72	69
實施例 2-5	45.0	45.0	10.0	44.6	44.6	9.9	50	3.6	450	107	72	67
實施例 2-6	40.5	49.5	10.0	40.1	49.0	9.9	45	3.6	480	113	73	64
實施例 2-7	36.0	54.0	10.0	35.6	53.5	9.9	40	3.5	488	118	73	62
實施例 1-1	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	37	3.5	500	122	73	60
實施例 2-8	29.7	60.3	10.0	29.4	59.7	9.9	33	3.4	530	120	71	59
實施例 2-9	27.0	63.0	10.0	26.7	62.4	9.9	30	3.3	560	120	68	57
比較實 施例2-1	25.2	64.8	10.0	24.9	64.2	9.9	28	3.2	565	118	22	19
比較實 施例2-2	22.5	67.5	10.0	22.3	66.8	9.9	25	3.0	575	115	0	0
比較實 施例2-3	18.0	72.0	10.0	17.8	71.3	9.9	20	2.8	600	111	0	0
比較實 施例2-4	67.5	22.5	10.0	66.8	22.3	9.9	75	3.8	284	71	52	73

作為相對於實施例 2-1 至 2-9 之比較實施例 2-1 至 2-4，如同實施例 2-1 至 2-9 之情況一樣形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係如表 2 所示而改變該 Co/(Sn+Co) 比率。比較實施例 2-1、2-2、2-3 及 2-4 中的 Co/(Sn+Co) 比率分別係 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75 wt%。

如同實施例 1-1 至 1-7 中之情況一樣，對實施例 2-1 至 2-9

及比較實施例 2-1 至 2-4 之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表 2 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，測量該二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 2 及圖 10 顯示測量結果。

從表 2 及圖 10 明顯看出，在 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內之實施例 2-1 至 2-9 中，與其中 Co/(Sn+Co) 比率低於 30 wt% 之比較實施例 2-1 至 2-3 相比，可明顯提高該容量保持比率，而與其中 Co/(Sn+Co) 比率高於 70 wt% 之比較實施例 2-4 相比，可明顯增加初始充電容量。更明確言之，當 Co/(Sn+Co) 比率等於或低於 60 wt% 時，可獲得一較高的初始充電容量。

換言之，得出結論，當 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內時，可提高該容量而改善循環特徵。此外，得出結論，Co/(Sn+Co) 比率更佳的係 60 wt% 或更小。

(實施例 3-1 至 3-9)

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係合成如表 3 所示而改變鈷、錫及碳材料比率之陽極活性材料。更明確言之，碳材料比率係固定為 20 wt%，而 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內變化。

[表 3]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			$\frac{\text{Co}}{\text{Sn+Co}}$	半寬 度 (°)	初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環 的放電容 量 (mAh/cm ³)	第300循 環的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C						
實施例 3-1	56.0	24.0	20.0	55.4	23.8	19.8	70	5.0	370	98	82	84
實施例 3-2	52.0	28.0	20.0	51.5	27.7	19.8	65	5.0	380	100	84	84
實施例 3-3	48.0	32.0	20.0	47.5	31.7	19.8	60	4.9	400	106	88	83
實施例 3-4	44.0	36.0	20.0	43.6	35.6	19.8	55	4.9	420	112	92	82
實施例 3-5	40.0	40.0	20.0	39.6	39.6	19.8	50	4.9	450	118	95	80
實施例 3-6	36.0	44.0	20.0	35.6	43.6	19.8	45	4.8	480	128	96	75
實施例 3-7	32.0	48.0	20.0	31.7	47.5	19.8	40	4.8	505	133	96	72
實施例 1-5	29.6	50.4	20.0	29.3	49.9	19.8	37	4.8	525	140	98	70
實施例 3-8	26.4	53.6	20.0	26.1	53.1	19.8	33	4.6	545	140	95	68
實施例 3-9	24.0	56.0	20.0	23.8	55.4	19.8	30	4.5	560	146	89	61
比較實 施例3- 1	22.4	57.6	20.0	22.2	57.0	19.8	28	4.4	565	140	49	35
比較實 施例3- 2	20.0	60.0	20.0	19.8	59.4	19.8	25	4.2	575	134	27	20
比較實 施例3- 3	16.0	64.0	20.0	15.8	63.4	19.8	20	4.0	600	126	0	0
比較實 施例3- 4	60.0	20.0	20.0	59.4	19.8	19.8	75	5.0	259	65	55	85

作為相對於實施例3-1至3-9之比較實施例3-1至3-4，如同實施例3-1至3-9之情況一樣形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係如表3所示而改變該Co/(Sn+Co)比率。

比較實施例 3-1、3-2、3-3 及 3-4 之 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率分別為 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75wt%。

如同實施例 1-1 至 1-7 中之情況一樣，對實施例 3-1 至 3-9 及比較實施例 3-1 至 3-4 之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表 3 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，測量該二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 3 及圖 11 顯示測量結果。

從表 3 及圖 11 明顯看出，獲得與實施例 2-1 至 2-9 之情況中相同之結果。換言之，可得出結論，當 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內時，即使碳含量為 19.8 wt% 之情況中，可提高該容量而改善循環特徵。

(實施例 4-1 至 4-9)

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係合成如表 4 所示而改變鈷、錫及碳材料比率之陽極活性材料。更明確言之，碳材料比率係固定為 30%，而 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內變化。

[表 4]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			Co Sn+Co	半寬 度 (°)	初始充電 容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C						
實施例 4-1	49.0	21.0	30.0	48.5	20.8	29.7	70	6.0	325	81	70	86
實施例 4-2	45.5	24.5	30.0	45.0	24.3	29.7	65	5.9	401	105	85	81
實施例 4-3	42.0	28.0	30.0	41.6	27.7	29.7	60	5.8	421	110	85	77
實施例 4-4	38.5	31.5	30.0	38.1	31.2	29.7	55	5.7	445	116	86	74
實施例 4-5	35.0	35.0	30.0	34.7	34.7	29.7	50	5.6	458	121	85	70
實施例 4-6	31.5	38.5	30.0	31.2	38.1	29.7	45	5.5	472	124	84	68
實施例 4-7	28.0	42.0	30.0	27.7	41.6	29.7	40	5.5	498	126	81	64
實施例 1-7	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	37	5.4	510	128	78	61
實施例 4-8	23.1	46.9	30.0	22.9	46.4	29.7	33	5.4	519	132	78	59
實施例 4-9	21.0	49.0	30.0	20.8	48.5	29.7	30	5.3	525	135	76	56
比較實 施例4-1	19.6	50.4	30.0	19.4	49.9	29.7	28	5.2	534	132	51	39
比較實 施例4-2	17.5	52.5	30.0	17.3	52.0	29.7	25	5.1	545	128	31	24
比較實 施例4-3	14.0	56.0	30.0	13.9	55.4	29.7	20	5.0	551	115	0	0
比較實 施例4-4	52.5	17.5	30.0	52.0	17.3	29.7	75	6.1	271	67	60	89

作為相對於實施例 4-1 至 4-9 之比較實施例 4-1 至 4-4，如同實施例 4-1 至 4-9 之情況一樣形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係如表 4 所示而改變該 Co/(Sn+Co) 比率。比較實施例 4-1、4-2、4-3 及 4-4 之 Co/(Sn+Co) 比率分別為 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75 wt%。

如同實施例 1-1 至 1-7 中之情況一樣，對實施例 4-1 至 4-9 及比較實施例 4-1 至 4-4 之陽極活性材料進行成分分析並測

量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta = 20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表4中顯示測量結果。進一步，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例1-1至1-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。結果顯示於表4及圖12中。表4及圖12顯示測量結果。

從表4及圖12明顯看出，獲得與實施例2-1至2-9之情況中相同之結果。換言之，可得出結論，當Co/(Sn+Co)比率在範圍30 wt%至70 wt%內時，即使碳含量為29.7 wt%之情況中，可提高該容量而改善循環特徵。

(實施例5-1至5-6及6-1至6-6)

如同實施例1-1至1-7之情況一樣，形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係改變合成該等陽極活性材料時的操作時間及旋轉數目以便改變觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta = 20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值之半寬度。此時，在鈷、錫及碳材料比率中，實施例5-1至5-6及實施例6-1至6-6中改變碳材料比率(如表5所示)，而該Co/(Sn+Co)比率相同。

[表 5]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			半寬度 (°)	容量保持 比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C		
實施例5-1	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	1.0	38
實施例5-2	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	1.2	45
實施例5-3	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	1.5	48
實施例5-4	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	2.0	51
實施例5-5	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	3.0	55
實施例5-6	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	4.0	64
實施例6-1	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	1.0	40
實施例6-2	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	1.2	43
實施例6-3	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	1.5	45
實施例6-4	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	2.0	48
實施例6-5	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	3.0	50
實施例6-6	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	4.0	54

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

如同實施例 1-1 至 1-7 中之情況一樣，對實施例 5-1 至 5-6 及 6-1 至 6-6 之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表 5 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，測量該二次電池之初始充電容量及循環特

徵。表5顯示測量結果。

從表5明顯看出，在實施例5-1至5-6及6-1至6-6中，該半寬度越大，則該容量保持比率提高得越多。換言之，得出結論，當該繞射峰值之半寬度具有一較大的反應相位時，可改善循環特徵。

(實施例7-1至7-11)

如果實施例1-1至1-7之情況中一樣，形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係進一步將矽粉末用作一材料，如表6所示而改變鈷、錫、碳及矽材料比率。更明確言之，該矽粉末材料比率在係在從0.3 wt%至10 wt%內變化，而該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率及碳材料比率係固定。如實施例1-1至1-7之情況一樣，對實施例7-1至7-11之二次電池進行成分分析。表6中顯示測量結果。藉由ICP發射光譜法來測量該矽含量。此外，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例1-1至1-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表6中顯示測量結果。

[表 6]

	材料比率 (WT%)					分析值 (WT%)					初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Si	Sn+Si	Co	Sn	C	Si	Sn+Si				
實施例 1-5	29.6	50.4	20	0	50.4	29.3	49.9	19.8	0	49.9	525	140	98	70
實施例 7-1	29.5	50.2	20	0.3	50.5	29.2	49.7	19.8	0.3	50.0	526	140	98	70
實施例 7-2	29.4	50.1	20	0.5	50.6	29.1	49.6	19.8	0.5	50.1	530	142	96	68
實施例 7-3	29.2	49.8	20	1.0	50.8	28.9	49.3	19.8	1.0	50.3	550	144	96	67
實施例 7-4	28.9	49.1	20	2.0	51.1	28.6	48.6	19.8	2.0	50.6	560	146	95	65
實施例 7-5	28.1	47.9	20	4.0	51.9	27.8	47.4	19.8	4.0	51.4	575	148	95	64
實施例 7-6	27.4	46.6	20	6.0	52.6	27.1	46.2	19.8	5.9	52.1	591	152	96	63
實施例 7-7	27.0	46.0	20	7.0	53.0	26.7	45.5	19.8	6.9	52.5	610	157	97	62
實施例 7-8	26.6	45.4	20	8.0	53.4	26.4	44.9	19.8	7.9	52.8	620	159	89	56
實施例 7-9	26.5	45.0	20	8.5	53.5	26.2	44.6	19.8	8.4	53.0	636	159	65	41
實施例 7-10	26.3	44.7	20	9.0	53.7	26.0	44.3	19.8	8.9	53.2	660	161	40	25
實施例 7-11	25.9	44.1	20	10	54.1	25.6	43.7	19.8	9.9	53.6	690	163	16	10

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

從表 6 明顯看出，在包括矽之實施例 7-1 至 7-11 中，與不包括矽的實施例 1-5 相比，可進一步提高該初始充電容量。但是，有一趨勢係該容量保持比率隨該矽含量增加而減小。

換言之，得出結論，當該陽極活性材料中包括矽時，可提高容量，而該矽含量較佳的係在從 0.5 wt% 至 7.9 wt% 內。

(實施例 8-1 至 8-10)

在實施例8-1中，如同實施例1-1至1-7之情況一樣，合成一陽極活性材料並形成二次電池，不同之處係如表7所示而改變鈷、錫及碳材料比率。在實施例8-2至8-10中，如同實施例1-1至1-7之情況一樣，合成陽極活性材料並形成二次電池，不同之處係製備鈷粉末、錫粉末、碳粉末及鈦粉末以作為材料，而其材料比率如表7所示而發生改變。更明確言之，該鈦材料比率在係在從0 wt%至16 wt%內變化，而該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率及碳材料比率係固定。此外，透過將該鈷粉末、該錫粉末及該鈦粉末製成合金來形成鈷錫鈦合金粉末且接著將碳粉末混合於該合金粉末，從而合成該陽極活性材料。如同實施例1-1至1-7之情況一樣，對實施例8-1至8-10之陽極活性材料進行成分分析。表7顯示其結果。藉由ICP發射光譜法測量鈦含量。進一步，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例1-1至1-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表7及圖13顯示測量結果。

[表 7]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Ti	Co	Sn	C	Ti				
實施例 8-1	28.0	52.0	20	0	27.7	51.5	19.8	0	530	140	98	70
實施例 8-2	27.6	51.2	20	1.2	27.3	50.7	19.8	1.2	545	143	100	73
實施例 8-3	27.2	50.4	20	2.4	26.9	49.9	19.8	2.4	551	145	116	80
實施例 8-4	26.6	49.4	20	4.0	26.3	48.9	19.8	4.0	560	147	122	83
實施例 8-5	26.2	48.7	20	5.1	26.0	48.2	19.8	5.0	568	147	125	85
實施例 8-6	25.4	47.1	20	7.5	25.1	46.7	19.8	7.4	572	148	124	84
實施例 8-7	24.5	45.5	20	10.0	24.3	45.0	19.8	9.9	570	147	125	85
實施例 8-8	23.5	43.6	20	13.0	23.2	43.1	19.8	12.9	565	143	120	84
實施例 8-9	22.8	42.3	20	15.0	22.5	41.8	19.8	14.9	540	140	111	79
實施例 8-10	22.4	41.6	20	16.0	22.2	41.2	19.8	15.8	500	130	90	69

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

從表 7 及圖 13 明顯看出，在所包括的鈦在範圍為 14.9 wt% 或更低之實施例 8-2 至 8-9 中，與其中不包括鈦的實施例 8-1 以及所包括的鈦超過 14.9 wt% 之實施例 8-10 相比，可提高該容量保持比率。此外，當該鈦含量等於或高於 2.4 wt%，更明確言之係在從 4.0 wt% 至 12.9 wt% 內時，可獲得一更高的值。

換言之，得出結論，當該陽極活性材料中包括 14.9 wt% 或更低之鈦時，可進一步改進該等循環特徵，而更佳的係所包括的鈦在範圍 2.4 wt% 或更高，而更佳的係在從 4.0

wt%至12.9 wt%內。

(實施例9-1至9-9)

如同實施例1-1至1-7之情況一樣，合成陽極活性材料並形成二次電池，不同之處係製備鈷粉末、錫粉末、碳粉末及鈹粉末以作為材料，而其材料比率如表8所示而發生改變。更明確言之，該鈹粉末材料比率在係在從1.2 wt%至16 wt%內變化，而該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率及碳材料比率係固定。此外，透過將該鈷粉末、該錫粉末及該鈹粉末製成合金來形成鈷錫鈹合金粉末且接著將碳粉末混合於該合金粉末，從而合成該陽極活性材料。如同在實施例1-1至1-7之情況一樣，對該等陽極活性材料進行成分分析。表8中顯示測量結果。藉由ICP發射光譜法來測量該矽含量。進一步，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例1-1至1-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表8及圖14顯示測量結果。

[表 8]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Bi	Co	Sn	C	Bi				
實施例 8-1	28.0	52.0	20	0	27.7	51.5	19.8	0	530	140	98	70
實施例 9-1	27.6	51.2	20	1.2	27.3	50.7	19.8	1.2	525	138	95	71
實施例 9-2	27.2	50.4	20	2.4	26.9	49.9	19.8	2.4	524	138	101	73
實施例 9-3	26.6	49.4	20	4.0	26.3	48.9	19.8	4.0	524	138	105	76
實施例 9-4	26.2	48.7	20	5.1	26.0	48.2	19.8	5.0	520	138	113	82
實施例 9-5	25.4	47.1	20	7.5	25.1	46.7	19.8	7.4	517	137	116	85
實施例 9-6	24.5	45.5	20	10.0	24.3	45.0	19.8	9.9	515	136	118	87
實施例 9-7	23.5	43.6	20	13.0	23.2	43.1	19.8	12.9	511	136	117	86
實施例 9-8	22.8	42.3	20	15.0	22.5	41.8	19.8	14.9	510	136	111	82
實施例 9-9	22.4	41.6	20	16.0	22.2	41.2	19.8	15.8	498	131	89	68

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

如表 8 及圖 14 所示，在添加鉍之實施例 9-1 及 9-9 中，獲得與添加鈦的實施例 8-2 及 8-10 相同之結果。換言之，得出結論，在該陽極活性材料中包含鉍在 14.9 wt% 或更低的情況下，可進一步改進該等循環特徵，而所包括的鉍更佳的係在範圍 4.0 wt% 或更高。

(實施例 10-1 至 10-14)

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，合成陽極活性材料而形成二次電池，不同之處係使用鈷粉末、錫粉末、碳粉末及鉬粉末、鈮粉末、鋁粉末、鎳粉末、銻粉末、鎵粉末、

磷粉末或鋁粉末與磷粉末作為材料，並且如表9所示而改變鈷、錫、碳及鉬、鈦、鋁、鍺、銻、鎳、磷或鋁與磷材料比率。更明確言之，鉬、鈦、鋁、鍺、銻、鎳、磷或鋁與磷之材料比率為3 wt%、4 wt%、5 wt%或6 wt%，而該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率係固定為35 wt%。此外，透過將該鈷粉末與該錫粉末製成合金以形成鈷錫合金粉末且接著將該碳粉與該鉬粉末、該鈦粉末、該鋁粉末、該鍺粉末、該銻粉末、該鎳粉末、該磷粉末或該鋁粉末與該磷粉末混合為該合金粉末，從而合成該等陽極活性材料。如同實施例1-1至1-7之情況一樣，對實施例10-1至10-14之陽極活性材料進行成分分析。表9中顯示測量結果。藉由ICP發射光譜法來測量鉬、鈦、鋁、鍺、銻及磷之含量。進一步，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例1-1至1-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表10中顯示測量結果。

[表 9]

	材料比率 (WT%)										分析値 (WT%)									
	Co	Sn	C	Mo	Nb	Al	Ge	In	Ga	P	Co	Sn	C	Mo	Nb	Al	Ge	In	Ga	P
實施例8-1	28.0	52.0	20	-	-	-	-	-	-	-	27.7	51.5	19.8	-	-	-	-	-	-	-
實施例10-1	26.6	49.4	20	4.0	-	-	-	-	-	-	26.3	48.9	19.8	4.0	-	-	-	-	-	-
實施例10-2	26.6	49.4	18	6.0	-	-	-	-	-	-	26.3	48.9	17.8	5.9	-	-	-	-	-	-
實施例10-3	26.6	49.4	20	-	4.0	-	-	-	-	-	26.3	48.9	19.8	-	4.0	-	-	-	-	-
實施例10-4	27.0	50.1	18	-	5.0	-	-	-	-	-	26.7	49.5	17.8	-	5.0	-	-	-	-	-
實施例10-5	26.3	48.8	19	-	6.0	-	-	-	-	-	26.0	48.3	18.8	-	5.9	-	-	-	-	-
實施例10-6	27.3	50.7	18	-	-	4.0	-	-	-	-	27.0	50.2	17.8	-	-	4.0	-	-	-	-
實施例10-7	25.9	48.1	20	-	-	6.0	-	-	-	-	25.6	47.6	19.8	-	-	5.9	-	-	-	-
實施例10-8	25.9	48.1	20	-	-	-	6.0	-	-	-	25.6	47.6	19.8	-	-	-	5.9	-	-	-
實施例10-9	27.7	51.4	18	-	-	-	-	3.0	-	-	27.4	50.8	17.8	-	-	-	-	3.0	-	-
實施例10-10	27.3	50.7	18	-	-	-	-	4.0	-	-	27.0	50.2	17.8	-	-	-	-	4.0	-	-
實施例10-11	25.9	48.1	20	-	-	-	-	6.0	-	-	25.6	47.6	19.8	-	-	-	-	5.9	-	-
實施例10-12	25.9	48.1	20	-	-	-	-	-	6.0	-	25.6	47.6	19.8	-	-	-	-	-	-	5.9
實施例10-13	27.7	51.4	18	-	-	-	-	-	-	3.0	27.4	50.8	17.8	-	-	-	-	-	-	3.0
實施例10-14	25.9	48.1	20	-	-	4.0	-	-	-	2.0	25.6	47.6	19.8	-	-	3.9	-	-	-	1.9

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

[表 10]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
實施例8-1	530	140	98	70
實施例10-1	510	136	107	79
實施例10-2	508	138	110	80
實施例10-3	535	140	116	83
實施例10-4	530	139	114	82
實施例10-5	532	138	113	82
實施例10-6	556	141	110	78
實施例10-7	552	144	117	81
實施例10-8	540	142	114	80
實施例10-9	540	139	110	79
實施例10-10	544	140	112	80
實施例10-11	550	144	120	83
實施例10-12	525	138	112	81
實施例10-13	541	141	110	78
實施例10-14	560	147	113	77

如表 9 及 10 所示，在實施例 10-1 至 10-14 中，如同實施例 8-2 至 8-10 及 9-1 至 9-9 之情況一樣可提高循環特徵。換言之，得出結論，當該陽極活性材料包括從鉬、鈮、鋁、銻、銻、鎳及磷組成的群組中選取之至少一類元件時，可進一步提高循環特徵。

(實施例 11-1 至 11-8)

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，合成陽極活性材料並形成二次電池，不同之處係製備鈷粉末、錫粉末、碳粉

末、矽粉末、鈦粉末及錮粉末作為材料，而其材料比率如表 11 所示而發生改變。更明確言之，鈦或鈦與錮材料比率在係在從 0 wt% 至 10 wt% 內變化，而該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率、碳材料比率及矽材料比率係固定。此外，透過將鈷粉末與錫粉末、鈷粉末、錫粉末與鈦粉末或鈷粉末、錫粉末、鈦粉末及錮粉末製成合金以形成鈷錫合金粉末或鈷錫鈦合金粉末或鈷錫鈦錮合金粉末並接著將碳粉末與矽粉末混合於該合金粉末，來合成該等陽極活性材料。如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，對實施例 11-1 至 11-8 之陽極活性材料進行成分分析。表 11 中顯示測量結果。藉由 ICP 發射光譜法來測量矽、鈦及錮之含量。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 12 中顯示測量結果。

[表 11]

	材料比率 (WT%)						分析值 (WT%)					
	Co	Sn	C	Si	Ti	In	Co	Sn	C	Si	Ti	In
實施例8-1	28.0	52.0	20.0	—	—	—	27.7	51.5	19.8	—	—	—
實施例11-1	27.7	51.4	18.0	3.0	—	—	27.4	50.8	17.8	3.0	—	—
實施例11-2	26.3	48.8	18.0	3.0	4.0	—	26.0	48.3	17.8	3.0	4.0	—
實施例11-3	25.9	48.0	18.0	3.0	5.1	—	25.6	47.6	17.8	3.0	5.0	—
實施例11-4	25.0	46.5	18.0	3.0	7.5	—	24.8	46.0	17.8	3.0	7.4	—
實施例11-5	26.3	48.8	18.0	3.0	2.6	1.4	26.0	48.3	17.8	3.0	2.6	1.4
實施例11-6	25.9	48.0	18.0	3.0	3.7	1.4	25.6	47.6	17.8	3.0	3.6	1.4
實施例11-7	25.0	46.5	18.0	3.0	6.1	1.4	24.8	46.0	17.8	3.0	6.0	1.4
實施例11-8	24.2	44.9	18.0	3.0	8.6	1.4	23.9	44.4	17.8	3.0	8.4	1.4

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

[表 12]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	容量保持 比率 (%)
實施例8-1	530	140	98	70
實施例11-1	568	147	96	65
實施例11-2	592	148	110	74
實施例11-3	600	149	113	76
實施例11-4	602	150	113	75
實施例11-5	588	147	112	76
實施例11-6	597	149	112	75
實施例11-7	598	149	113	76
實施例11-8	593	148	110	74

從表 12 明顯看出，在除矽外還額外地添加鈦、或鈦與錮之實施例 11-2 至 11-8 中，與不包括該些元件之實施例 8-1 及

11-1相比，可進一步提高初始充電容量及容量保持比率。

換言之，得出結論，當該陽極活性材料中包括從鈦、鉬、鈮、鋁、鍺、銻、鎳及磷組成的群組中選取之至少一類元件且該陽極活性材料中包括矽時，可進一步提高容量而改善循環特徵。

(實施例12-1至12-6)

如同實施例1-1至1-7之情況中一樣，合成陽極活性材料，不同之處係製備鈷粉末、錫粉末、碳粉末、矽粉末及鈦粉末作為材料，且在將該鈷粉末與該錫粉末或該鈷粉末、該錫粉末及該鈦粉末製成合金以形成鈷錫合金粉末或鈷錫鈦合金粉末後，將碳粉末或矽粉末與該矽粉末混合於該合金粉末。此時，如表13所示改變該材料比率。此外，如同實施例1-1至1-7之情況一樣，形成圖1所示的圓柱二次電池，不同之處係使用該陽極活性材料，且在實施例12-1至12-3及實施例12-4至12-6中改變該電解質溶液之成分。此時，在實施例12-1至12-3中，使用一將 LiPF_6 作為電解質鹽以比率1摩爾/公升溶解於一混合溶劑中之電解質溶液，該混合溶劑包括乙烯碳酸酯及丙烯碳酸酯、二甲基碳酸酯而乙烯碳酸酯：丙烯碳酸酯：二甲基碳酸酯之質量比=30:10:60，而在實施例12-4至12-6中，使用一將 LiPF_6 作為電解質鹽以比率1摩爾/公升溶解於一混合溶劑中之電解質溶液，該混合溶劑包括4-氟-1,3-二氧戊環-2-單、乙烯碳酸酯、丙烯碳酸酯及二甲基碳酸酯而4-氟-1,3-二氧戊環-2-單：乙烯碳酸酯：丙烯碳酸酯：二甲基碳酸酯之質量比

=20:10:10:60。實施例 12-1 與 12-4 中、實施例 12-2 與 12-5 中以及實施例 12-3 與 12-6 中使用相同的陽極活性材料。

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，對實施例 12-1 至 12-6 之陽極活性材料進行成分分析。表 13 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式來測量該二次電池之循環特徵。表 13 中顯示測量結果。

[表 13]

	材料比率 (WT%)					分析值 (WT%)					溶劑	容量保持比率 (%)
	Co	Sn	C	Si	Ti	Co	Sn	C	Si	Ti		
實施例 12-1	30.0	50	20.0	—	—	29.9	49.8	19.8	—	—	EC+PC+DMC	70
實施例 12-2	28.8	48	19.2	4.0	—	28.7	47.8	19.1	3.9	—	EC+PC+DMC	64
實施例 12-3	28.2	47	18.8	4.0	2.0	28.1	46.8	18.7	3.9	1.9	EC+PC+DMC	72
實施例 12-4	30.0	50	20.0	—	—	29.9	49.8	19.8	—	—	FEC+EC+PC+DMC	86
實施例 12-5	28.8	48	19.2	4.0	—	28.6	47.8	19.0	3.9	—	FEC+EC+PC+DMC	78
實施例 12-6	28.2	47	18.8	4.0	2.0	28.0	46.8	18.7	13.9	1.9	FEC+EC+PC+DMC	90

EC：乙烯碳酸酯

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37.5wt\%$$

PC：丙烯碳酸酯

DMC：二甲基碳酸酯

FEC：4-氟-1,3-二氧戊環-2-單

從表13明顯看出，在使用4-氟-1,3-二氧戊環-2-單作為溶劑之實施例12-4至12-6中，與不使用4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之實施例12-1至12-3相比，可進一步提高該容量保持比率。

(實施例13-1至13-18)

如同實施例12-1及12-4之情況一樣，形成圓柱二次電池，不同之處僅係如表14所示而改變該溶劑成分。如同實施例1-1至1-7之情況一樣，測量實施例13-1至13-18之二次電池之循環特徵。表14中顯示測量結果。

[表 14]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			溶劑 (WT%)				容量保持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C	FEC	EC	PC	DMC	
實施例 12-1	30	50	20	29.9	49.8	19.8	0	30	10	60	70
實施例 13-1	30	50	20	29.9	49.8	19.8	0.1	29.9	10	60	71
實施例 13-2	30	50	20	29.9	49.8	19.8	0.5	29.5	10	60	75
實施例 13-3	30	50	20	29.9	49.8	19.8	1.0	29	10	60	78
實施例 13-4	30	50	20	29.9	49.8	19.8	5.0	25	10	60	80
實施例 13-5	30	50	20	29.9	49.8	19.8	10	20	10	60	83
實施例 13-6	30	50	20	29.9	49.8	19.8	15	15	10	60	84
實施例 12-4	30	50	20	29.9	49.8	19.8	20	10	10	60	86
實施例 13-7	30	50	20	29.9	49.8	19.8	20	20	0	60	86
實施例 13-8	30	50	20	29.9	49.8	19.8	25	5	10	60	87
實施例 13-9	30	50	20	29.9	49.8	19.8	30	0	10	60	88
實施例 13-10	30	50	20	29.9	49.8	19.8	30	10	0	60	89
實施例 13-11	30	50	20	29.9	49.8	19.8	35	0	5	60	89
實施例 13-12	30	50	20	29.9	49.8	19.8	40	0	0	60	92
實施例 13-13	30	50	20	29.9	49.8	19.8	50	0	0	50	89
實施例 13-14	30	50	20	29.9	49.8	19.8	60	0	0	40	86
實施例 13-15	30	50	20	29.9	49.8	19.8	65	0	0	35	83
實施例 13-16	30	50	20	29.9	49.8	19.8	70	0	0	30	79
實施例 13-17	30	50	20	29.9	49.8	19.8	80	0	0	20	72
實施例 13-18	30	50	20	29.9	49.8	19.8	90	0	0	10	50

EC： 乙烯碳酸酯 $\frac{Co}{Sn+Co} = 37.5wt\%$

PC： 丙烯碳酸酯

DMC： 二甲基碳酸酯

FEC： 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單

從表 14 明顯看出，隨著 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之含量增加，該容量保持比率增加到一最大值，然後減小。

換言之，得出結論，當包括 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單時，可改進循環特徵而與該溶劑成分無關，而明確言之當 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之含量在係在從 0.1 wt% 至 80 wt% 內時，獲得一更高的效應。

(實施例 14-1 至 14-6)

如同 14-2 之情況一樣，形成圓柱二次電池，不同之處係使用包括一鹵素原子的一環狀碳酸酯之另一衍生物來替代 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單。此時，在實施例 14-1、實施例 14-2、實施例 14-3、實施例 14-4、實施例 14-5 及實施例 14-6 中分別使用 4-二氟-1,3-二氧戊環-2-單、4-二氟-5-氟-1,3-二氧戊環-2-單、4-氯-1,3-二氧戊環-2-單、4-溴-1,3-二氧戊環-2-單、4-碘-1,3-二氧戊環-2-單及 4-氟甲基-1,3-二氧戊環-2-單。

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，測量實施例 14-1 至 14-6 之二次電池之循環特徵。表 15 中顯示測量結果。

[表 15]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			溶劑	容量保持 比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C		
實施例 12-1	30	50	20	29.9	49.8	19.8	EC+PC+DMC	70
實施例 12-4	30	50	20	29.9	49.8	19.8	FEC+EC+PC+DMC	86
實施例 14-1	30	50	20	29.9	49.8	19.8	DFEC+EC+PC+DMC	78
實施例 14-2	30	50	20	29.9	49.8	19.8	Tri-FEC+EC+PC+DMC	74
實施例 14-3	30	50	20	29.9	49.8	19.8	Cl-EC+EC+PC+DMC	79
實施例 14-4	30	50	20	29.9	49.8	19.8	Br-EC+EC+PC+DMC	75
實施例 14-5	30	50	20	29.9	49.8	19.8	I-EC+EC+PC+DMC	74
實施例 14-6	30	50	20	29.9	49.8	19.8	F-PC+EC+PC+DMC	80

EC：乙烯碳酸酯 Cl-EC：4-氯-1,3-二氧戊環-2-單

PC：丙烯碳酸酯 Br-EC：4-溴-1,3-二氧戊環-2-單

DMC：二甲基碳酸酯 I-EC：4-碘-1,3-二氧戊環-2-單

FEC：4-氟-1,3-二氧戊環-2-單

F-PC：4-氟甲基-1,3-二氧戊環-2-單

DFEC：4-二氟-1,3-二氧戊環-2-單

三FEC：4-二氟-5-氟-1,3-二氧戊環-2-單

$$\frac{Co}{Sn+Co} = 37.5wt\%$$

從表 15 明顯看出，即便使用包括一鹵原子的環狀碳酸酯之另一衍生物，亦如同實施例 12-4 之情況一樣可改進循環特徵。但是，在使用 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之實施例 12-4 中，該容量保持率特別高。換言之，得出結論，當包括一

環狀碳酸酯(包括一鹵原子)之一衍生物時，可改進循環特徵，而當包括4-氟-1,3-二氧戊環-2-單作為衍生物時，會特別有效地改進循環特徵。

(實施例15-1至15-7)

如同實施例1-1至1-7之情況一樣，形成硬幣型二次電池，不同之處係在該測試電極61與該反電極63之表面上形成由一凝膠電解質製成之一電解質層以替代液體電解質溶液。換言之，將透過以與實施例1-1至1-7中(如表16所示)相同的材料比率來混合鈷、錫及碳而合成的陽極活性材料用於該測試電極61。此外，透過以下步驟來形成該電解質層。首先，將作為一高分子量化合物之一氟化亞乙烯與六氟丙烯的共聚物以及作為一混合溶劑的二甲基碳酸酯混合於一電解質溶液，該電解質溶液係透過以乙烯碳酸酯：丙烯碳酸酯：LiPF₆=11.5:11.5:4之質量比來混合作為溶劑的乙烯碳酸酯及丙烯碳酸酯與作為電解質鹽的LiPF₆而形成，從而獲得電解質溶液：高分子量化合物：混合溶劑=27:10:60之一質量比，從而形成一先驅物溶液。氟化亞乙烯與六氟丙烯的共聚物之分子量係600000。將所獲得之先驅物溶液均勻地施加於該測試電極61與該反電極63之相對表面，並讓其保持於室溫6小時以令二乙基碳酸酯揮發，從而形成該凝膠電解質層。

如同實施例1-1至1-7之情況中一樣，測量該硬幣型二次電池的初始充電容量。表16及圖15顯示測量結果。

[表 16]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			半寬度 (°)	初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C					
實施例 15-1	33.3	56.7	10	33.0	56.1	9.9	3.5	475	98	58	59
實施例 15-2	32.6	55.4	12	32.2	54.9	11.9	3.8	481	102	62	61
實施例 15-3	31.5	53.6	15	31.1	53.0	14.9	4.3	490	105	66	63
實施例 15-4	30.7	52.3	17	30.4	51.8	16.8	4.5	495	108	72	67
實施例 15-5	29.6	50.4	20	29.3	49.9	19.8	4.8	500	112	80	71
實施例 15-6	27.8	47.3	25	27.5	46.8	24.8	5.1	501	113	78	69
實施例 15-7	25.9	44.1	30	25.6	43.7	29.7	5.4	485	100	60	60
比較實 施例 15-1	37.0	63.0	0	36.6	62.4	0	0.2	432	78	0	0
比較實 施例 15-2	36.6	62.4	1.0	36.3	61.7	1.0	0.5	434	80	0	0
比較實 施例 15-3	35.2	59.9	5.0	34.8	59.3	5.0	2.0	455	91	0	0
比較實 施例 15-4	34.0	58.0	8.0	33.7	57.4	7.9	3.0	469	94	15	16
比較實 施例 15-5	22.2	37.8	40	22.0	37.4	39.6	5.5	440	81	32	40
比較實 施例 15-6	18.5	31.5	50	18.3	31.2	49.5	5.5	394	72	25	35
比較實 施例 15-7	16.7	28.4	55	16.5	28.1	54.5	5.5	363	61	17	28

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

此外，形成圖3及4所示之二次電池。首先，如同實施例

1-1至1-7之情況一樣，形成該陰極33及該陽極34，並附著該陰極引線31及該陽極引線32。

接下來，將上述先驅物溶液均勻地施加於該陰極33與該陽極32，並讓其保持於室溫6小時以令二甲基碳酸酯揮發，從而形成該凝膠電解質層36。

然後，層壓該陰極33與該陽極34且在其之間具有該分離器35而使得其上面形成該電解質層36的陰極33及陽極34之表面彼此面對，從而形成一層板，並對該層板作螺旋纏繞以形成螺旋纏繞電極體30。

所獲得之螺旋纏繞電極體30係真空密封於由一防濕鋁層板膜製成的封裝部件40中，從而形成圖3及4所示之二次電池。

如同實施例1-1至1-7之情況一樣，測量該二次電池的循環特徵。表16及圖15顯示測量結果。

作為相對於實施例15-1至15-7之比較實施例15-1至15-7，如同在實施例15-1至15-7之情況一樣形成二次電池，不同之處係使用透過以表16所示材料比率來混合鈷、錫及碳來合成之陽極活性材料，即如同比較實施例1-1至1-7之情況一樣合成之陽極活性材料。

測量比較實施例15-1至15-7之所獲得的二次電池之初始充電容量及循環特徵。表16及圖15顯示測量結果。

從表16及圖15明顯看出，獲得與實施例1-1至1-7之情況中相同之結果。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，若該碳含量在係在從9.9 wt%至29.7 wt%內時，亦可提

高容量而改善循環特徵，而該碳含量更佳的係在從 14.9 wt% 至 29.7 wt% 內，而更佳的係在從 16.8 wt% 至 24.8 wt% 內。

(實施例 16-1 至 16-9、17-1 至 17-9 及 18-1 至 18-9)

作為實施例 16-1 至 16-9，與實施例 15-1 至 15-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處僅係如表 17 所示使用碳材料比率係固定為 10 wt% 而 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內變化之陽極活性材料，即如同實施例 2-1 至 2-9 之情況一樣合成的陽極活性材料。此外，作為相對於實施例 16-1 至 16-9 之比較實施例 16-1 至 16-4，與實施例 16-1 至 16-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表 17 所示使用碳材料比率係固定為 10 wt% 而 Co/(Sn+Co) 比率係 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75 wt% 之陽極活性材料，即如同實施例 2-1 至 2-4 之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 17]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			$\frac{\text{Co}}{\text{Sn+Co}}$	半寬度 (°)	初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C						
實施例 16-1	63.0	27.0	10.0	62.4	26.7	9.9	70	3.8	350	78	57	73
實施例 16-2	58.5	31.5	10.0	57.9	31.2	9.9	65	3.8	365	81	58	72
實施例 16-3	54.0	36.0	10.0	53.5	35.6	9.9	60	3.7	382	83	59	71
實施例 16-4	49.5	40.5	10.0	49.0	40.1	9.9	55	3.7	401	85	60	70
實施例 16-5	45.0	45.0	10.0	44.6	44.6	9.9	50	3.6	429	87	57	66
實施例 16-6	40.5	49.5	10.0	40.1	49.0	9.9	45	3.6	458	91	57	63
實施例 16-7	36.0	54.0	10.0	35.6	53.5	9.9	40	3.5	466	95	58	61
實施例 15-1	33.3	56.7	10.0	33.0	56.1	9.9	37	3.5	475	98	58	59
實施例 16-8	29.7	60.3	10.0	29.4	59.7	9.9	33	3.4	504	97	56	58
實施例 16-9	27.0	63.0	10.0	26.7	62.4	9.9	30	3.3	532	97	54	56
比較實 施例 16-1	25.2	64.8	10.0	24.9	64.2	9.9	28	3.2	538	96	16	17
比較實 施例 16-2	22.5	67.5	10.0	22.3	66.8	9.9	25	3.0	545	93	0	0
比較實 施例 16-3	18.0	72.0	10.0	17.8	71.3	9.9	20	2.8	561	88	0	0
比較實 施例 16-4	67.5	22.5	10.0	66.8	22.3	9.9	75	3.8	271	62	45	73

作為實施例 17-1 至 17-9，與實施例 15-1 至 15-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如圖 8 所示使用碳材料比率係固定為 20 wt% 而 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內變化之陽極活性材料，即如同實施例 3-1 至 3-9 之情

況一樣合成的陽極活性材料。此外，作為相對於實施例17-1至17-9之比較實施例17-1至17-4，與實施例17-1至17-9之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表18所示使用碳材料比率係固定為20 wt%而Co/(Sn+Co)比率係28 wt%、25 wt%、20 wt%及75 wt%之陽極活性材料，即如同比較實施例3-1至3-4之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 18]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			$\frac{\text{Co}}{\text{Sn+Co}}$	半寬度 (°)	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C						
實施例17-1	56.0	24.0	20.0	55.4	23.8	19.8	70	5.0	351	78	67	85
實施例17-2	52.0	28.0	20.0	51.5	27.7	19.8	65	5.0	362	80	67	84
實施例17-3	48.0	32.0	20.0	47.5	31.7	19.8	60	4.9	382	85	70	83
實施例17-4	44.0	36.0	20.0	43.6	35.6	19.8	55	4.9	405	90	73	81
實施例17-5	40.0	40.0	20.0	39.6	39.6	19.8	50	4.9	428	94	75	79
實施例17-6	36.0	44.0	20.0	35.6	43.6	19.8	45	4.8	456	102	76	74
實施例17-7	32.0	48.0	20.0	31.7	47.5	19.8	40	4.8	481	106	76	71
實施例15-5	29.6	50.4	20.0	29.3	49.9	19.8	37	4.8	500	112	80	71
實施例17-8	26.4	53.6	20.0	26.1	53.1	19.8	33	4.6	518	112	75	67
實施例17-9	24.0	56.0	20.0	23.8	55.4	19.8	30	4.5	534	117	70	60
比較實施例17-1	22.4	57.6	20.0	22.2	57.0	19.8	28	4.4	539	111	37	33
比較實施例17-2	20.0	60.0	20.0	19.8	59.4	19.8	25	4.2	548	106	22	21
比較實施例17-3	16.0	64.0	20.0	15.8	63.4	19.8	20	4.0	558	97	0	0
比較實施例17-4	60.0	20.0	20.0	59.4	19.8	19.8	75	5.0	248	45	38	85

作為實施例18-1至18-9，與實施例15-1至15-9之情況一樣形成二次電池，不同之處僅係如表19所示使用碳材料比率係固定為30 wt%而Co/(Sn+Co)比率在係在從30 wt%至70 wt%內變化之陽極活性材料，即如同實施例4-1至4-9之情況一樣合成的陽極活性材料。此外，作為相對於實施例18-1至18-9之比較實施例18-1至18-4，與實施例18-1至18-9之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表19所示使用碳材料比率係固定為30 wt%而Co/(Sn+Co)比率係28 wt%、25 wt%、20 wt%及75 wt%之陽極活性材料，即如同比較實施例4-1至4-4之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 19]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			$\frac{Co}{Sn+Co}$	半寬 度 (°)	初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	n	C						
實施例 18-1	49.0	21.0	30.0	48.5	20.8	29.7	70	6.0	309	66	57	86
實施例 18-2	45.5	24.5	30.0	45.0	24.3	29.7	65	5.9	381	85	69	81
實施例 18-3	42.0	28.0	30.0	41.6	27.7	29.7	60	5.8	400	89	69	77
實施例 18-4	38.5	31.5	30.0	38.1	31.2	29.7	55	5.7	423	94	70	74
實施例 18-5	35.0	35.0	30.0	34.7	34.7	29.7	50	5.6	435	97	68	70
實施例 18-6	31.5	38.5	30.0	31.2	38.1	29.7	45	5.5	448	98	67	68
實施例 18-7	28.0	42.0	30.0	27.7	41.6	29.7	40	5.5	473	99	63	64
實施例 15-7	25.9	44.1	30.0	25.6	43.7	29.7	37	5.4	485	100	60	60
實施例 18-8	23.1	46.9	30.0	22.9	46.4	29.7	33	5.4	493	102	60	59
實施例 18-9	21.0	49.0	30.0	20.8	48.5	29.7	30	5.3	499	103	58	56
比較實施 例18-1	19.6	50.4	30.0	19.4	49.9	29.7	28	5.2	505	101	38	38
比較實施 例18-2	17.5	52.5	30.0	17.3	52.0	29.7	25	5.1	516	94	24	26
比較實施 例18-3	14.0	56.0	30.0	13.9	55.4	29.7	20	5.0	528	85	0	0
比較實施 例18-4	52.5	17.5	30.0	52.0	17.3	29.7	75	6.1	265	54	48	89

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，測量實施例 16-1 至 16-9、17-1 至 17-9 及 18-1 至 18-9 及比較實施例 16-1 至 16-4、17-1 至 17-4 及 18-1 至 18-4 之所獲得的二次電池之初始容量及循環特徵。表 17 至 19 及圖 16 至 18 顯示測量結果。

從表 17 至 19 及圖 16 至 18 明顯看出，獲得與實施例 2-1 至 2-9、3-1 至 3-9 及 4-1 至 4-9 中相同之結果。換言之，得出結

論，若 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內，則即便使用該凝膠電解質，亦可提高該容量及該等循環特徵。此外，得出結論， $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率更佳的係 60 wt% 或更小。

(實施例 19-1 至 19-11)

與實施例 15-1 至 15-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處僅係如表 20 所示使用矽粉末材料比率在係在從 0.3 wt% 至 10 wt% 內變化而 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率及碳材料比率係固定之陽極活性材料，即如同實施例 7-1 至 7-11 之情況一樣合成的陽極活性材料。

如同實施例 1-1 至 1-9 之情況一樣，測量實施例 19-1 至 19-11 之二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 21 中顯示測量結果。

[表 20]

	材料比率 (WT%)					分析值 (WT%)				
	Co	Sn	C	Si	Sn+Si	Co	Sn	C	Si	Sn+Si
實施例 15-5	29.6	50.4	20.0	0	50.4	29.3	49.9	19.8	0	49.9
實施例 19-1	29.5	50.2	20.0	0.3	50.5	29.2	49.7	19.8	0.3	50.0
實施例 19-2	29.4	50.1	20.0	0.5	50.6	29.1	49.6	19.8	0.5	50.1
實施例 19-3	29.2	49.8	20.0	1.0	50.8	28.9	49.3	19.8	1.0	50.3
實施例 19-4	28.9	49.1	20.0	2.0	51.1	28.6	48.6	19.8	2.0	50.6
實施例 19-5	28.1	47.9	20.0	4.0	51.9	27.8	47.4	19.8	4.0	51.4
實施例 19-6	27.4	46.6	20.0	6.0	52.6	27.1	46.2	19.8	5.9	52.1
實施例 19-7	27.0	46.0	20.0	7.0	53.0	26.7	45.5	19.8	6.9	52.5
實施例 19-8	26.6	45.4	20.0	8.0	53.4	26.4	44.9	19.8	7.9	52.8
實施例 19-9	26.5	45.0	20.0	8.5	53.5	26.2	44.6	19.8	8.4	53.0
實施例 19-10	26.3	44.7	20.0	9.0	53.7	26.0	44.3	19.8	8.9	53.2
實施例 19-11	25.9	44.1	20.0	10	54.1	25.6	43.7	19.8	9.9	53.6

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

[表 21]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比 率 (%)
實施例15-5	500	112	80	71
實施例19-1	501	112	80	71
實施例19-2	504	113	78	69
實施例19-3	523	116	79	68
實施例19-4	532	118	78	66
實施例19-5	546	119	75	63
實施例19-6	561	122	75	62
實施例19-7	580	126	75	60
實施例19-8	591	127	69	54
實施例19-9	608	127	48	38
實施例19-10	630	129	27	21
實施例19-11	658	131	14	11

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

從表 21 明顯看出，獲得與實施例 7-1 至 7-11 之情況中相同之結果。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，若該陽極活性材料包括矽，亦可提高該容量，而該矽含量較佳的係在從 0.5 wt% 至 7.9 wt% 內。

(實施例 20-1 至 20-10)

與實施例 15-1 至 15-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表 22 所示，使用鈦材料比率在係在從 0 wt% 至 16 wt% 內改變而該 Co/(Sn+Co) 比率及碳材料比率係固定之陽極活性材料，即如同實施例 8-1 至 8-10 之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 22]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				初始充電 容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Ti	Co	Sn	C	Ti				
實施例 20-1	28.0	52.0	20	0	27.7	51.5	19.8	0	501	111	77	69
實施例 20-2	27.6	51.2	20	1.2	27.3	50.7	19.8	1.2	514	113	81	72
實施例 20-3	27.2	50.4	20	2.4	26.9	49.9	19.8	2.4	525	117	95	81
實施例 20-4	26.6	49.4	20	4.0	26.3	48.9	19.8	4.0	534	118	98	83
實施例 20-5	26.2	48.7	20	5.1	26.0	48.2	19.8	5.0	546	119	100	84
實施例 20-6	25.4	47.1	20	7.5	25.1	46.7	19.8	7.4	547	119	101	85
實施例 20-7	24.5	45.5	20	10.0	24.3	45.0	19.8	9.9	543	119	101	85
實施例 20-8	23.5	43.6	20	13.0	23.2	43.1	19.8	12.9	539	118	99	84
實施例 20-9	22.8	42.3	20	15.0	22.5	41.8	19.8	14.9	516	113	88	78
實施例 20-10	22.4	41.6	20	16.0	22.2	41.2	19.8	15.8	479	104	72	69

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，測量實施例 20-1 至 20-10 之所獲得的二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 22 及圖 19 顯示測量結果。

從表 22 及圖 19 明顯看出，獲得與實施例 8-1 至 8-10 之情況中相同之結果。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，當該陽極活性材料中包括鈦在範圍為 14.9 wt% 或更低時，可進一步改進該等循環特徵，而鈦含量更佳的係在範圍為 2.4 wt% 或更高，而更佳的係在從 4.0 wt% 至 12.9 wt% 內。

(實施例 21-1 至 21-8)

與實施例 15-1 至 15-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處僅係如表 23 所示使用鈦及錫材料比率在係在從 0 wt% 至 10 wt% 內變化而 Co/(Sn+Co) 比率與碳及矽材料比率係固定之陽極活性材料，即如同實施例 11-1 至 11-8 之情況一樣合成的陽極活性材料。

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，測量實施例 21-1 至 21-8 之所獲得的二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 24 中顯示測量結果。

[表 23]

	材料比率 (WT%)						分析值 (WT%)					
	Co	Sn	C	Si	Ti	In	Co	Sn	C	Si	Ti	In
實施例 20-1	28.0	52.0	20.0	—	—	—	27.7	51.5	19.8	—	—	—
實施例 21-1	27.7	51.4	18.0	3.0	—	—	27.4	50.8	17.8	3.0	—	—
實施例 21-2	26.3	48.8	18.0	3.0	4.0	—	26.0	48.3	17.8	3.0	4.0	—
實施例 21-3	25.9	48.0	18.0	3.0	5.1	—	25.6	47.6	17.8	3.0	5.0	—
實施例 21-4	25.0	46.5	18.0	3.0	7.5	—	24.8	46.0	17.8	3.0	7.4	—
實施例 21-5	26.3	48.8	18.0	3.0	2.6	1.4	26.0	48.3	17.8	3.0	2.6	1.4
實施例 21-6	25.9	48.0	18.0	3.0	3.7	1.4	25.6	47.6	17.8	3.0	3.6	1.4
實施例 21-7	25.0	46.5	18.0	3.0	6.1	1.4	24.8	46.0	17.8	3.0	6.0	1.4
實施例 21-8	24.2	44.9	18.0	3.0	8.6	1.4	23.9	44.4	17.8	3.0	8.4	1.4

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

[表 24]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	容量保持 比率 (%)
實施例20-1	501	111	77	69
實施例21-1	540	117	75	64
實施例21-2	562	118	86	73
實施例21-3	570	120	90	75
實施例21-4	572	120	91	76
實施例21-5	559	118	89	76
實施例21-6	567	119	91	76
實施例21-7	568	119	91	76
實施例21-8	563	118	88	74

從表 24 明顯看出，獲得與實施例 11-1 至 11-8 之情況中相同之結果。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，當該陽極活性材料中包括從鈦、鉬、鈮、鋁、鍺、銻、鎳及磷組成的群組中選取之至少一類元件與矽時，可進一步提高容量而改善循環特徵。

(實施例 22-1 至 22-3)

如同實施例 15-5 之情況一樣形成二次電池，不同之處係使用其中 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單、乙烯碳酸酯及丙烯碳酸酯係 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單：乙烯碳酸酯：丙烯碳酸酯 = 1:10.5:11.5，5:6.5:11.5 或 10:1.5:11.5 之質量比來混合之一溶劑。

如同實施例 1-1 至 1-7 之情況一樣，測量實施例 22-1 至 22-3 之二次電池之循環特徵。表 25 中顯示測量結果。

[表 25]

	材料比率 (WT%)			分析值 (WT%)			溶劑 (WT%)			容量保持 比率 (%)
	Co	Sn	C	Co	Sn	C	FEC	EC	PC	
實施例15-5	29.6	50.4	20	29.3	49.9	19.8	0	11.5	11.5	71
實施例22-1	29.6	50.4	20	29.3	49.9	19.8	1	10.5	11.5	73
實施例22-2	29.6	50.4	20	29.3	49.9	19.8	5	6.5	11.5	83
實施例22-3	29.6	50.4	20	29.3	49.9	19.8	10	1.5	11.5	90

EC： 乙烯碳酸酯 $\frac{Co}{Sn+Co} = 37wt\%$

PC： 丙烯碳酸酯

FEC： 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單

從表 25 明顯看出，在溶劑中使用 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之實施例 22-1 至 22-3 中，與不使用 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之實施例 15-5 相比，可進一步提高容量保持比率。換言之，得出結論，在該溶劑中包括一環狀碳酸酯而該環狀碳酸酯包括一鹵素原子之情況下，即便使用該凝膠電解質，亦可進一步提高循環特徵。

(實施例 23-1 至 23-7)

形成陽極活性材料。製備鈷粉末、錫粉末、鐵粉末及碳粉末作為該陽極活性材料之材料，並在將該鈷粉末、該錫粉末及該鐵粉末製成合金而形成鈷錫鐵合金粉末後，將該碳粉末添加給該合金粉末，並將其乾燥混合，從而形成一混合物。此時，作為該等材料比率，如表 26 所示， $Co/(Sn+Co)$ 比率係固定於 37 wt%，而鐵比率係固定於 0.8

wt%，而碳比率係在從10 wt%至30 wt%內改變。接下來，將20 g的該混合物與約400 g的直徑為9 mm之鋼球一起放置進一Ito Seisakusho行星球研磨機之一反應容器。接下來，將一氫大氣引入該反應容器，並以250 rpm及10分鐘的間隔重複一10分鐘操作之循環，至總操作時間達到30小時。然後，將該反應容器冷卻到室溫，並從該反應室取出合成的陽極活性材料，並透過具有280個網目之一篩網來轉移該陽極活性材料粉末以移除該陽極活性材料粉末之粗顆粒。

分析所獲得之陽極活性材料的成分。藉由一碳/硫磺分析器來測量該碳含量，而藉由ICP(電感耦合電漿)發射光譜法來測量鈷、錫及鐵之含量。表26中顯示分析值。此外，當執行所獲得之陽極活性材料中每一材料上的X射線繞射，觀察到具有一在範圍 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內的較寬半寬度之繞射峰值。表26還顯示該繞射峰值之半寬度。進一步，當對所獲得之陽極活性材料執行該XPS測量時，如圖6所示，獲得峰值P1。在分析峰值P1時，獲得表面污染碳之峰值P2與在一比獲得峰值P2更低的能量側上之該陽極活性材料中的C1s峰值P3。實施例23-1至23-7之每一實施例中的峰值P3皆係在一低於284.5 eV之區域中獲得。換言之，確認該陽極活性材料之每一材料所包括的碳係耦合至另一元件。

[表 26]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				半寬 度 (°)	初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe					
實施例 23-1	33.0	56.2	10.0	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	3.5	495	121	76	63
實施例 23-2	32.3	54.9	12.0	0.8	31.9	54.4	11.9	0.8	3.8	501	127	81	64
實施例 23-3	31.2	53.0	15.0	0.8	30.8	52.5	14.9	0.8	4.3	505	130	86	66
實施例 23-4	30.4	51.8	17.0	0.8	30.1	51.3	16.8	0.8	4.5	511	135	93	69
實施例 23-5	29.3	49.9	20.0	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	4.8	518	139	101	73
實施例 23-6	27.5	46.7	25.0	0.8	27.2	46.3	24.8	0.8	5.1	526	139	100	72
實施例 23-7	25.6	43.6	30.0	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	5.4	510	127	81	64
比較實 施例 23-1	36.7	62.5	0	0.8	36.3	61.9	0	0.8	0.2	447	86	0	0
比較實 施例 23-2	36.3	61.9	1.0	0.8	36.0	61.2	1.0	0.8	0.5	449	90	0	0
比較實 施例 23-3	34.9	59.3	5.0	0.8	34.5	58.8	5.0	0.8	2.0	472	97	0	0
比較實 施例 23-4	33.7	57.5	8.0	0.8	33.4	56.9	7.9	0.8	3.0	486	110	13	12
比較實 施例 23-5	21.9	37.3	40.0	0.8	21.7	36.9	39.6	0.8	5.5	460	92	19	21
比較實 施例 23-6	18.2	31.0	50.0	0.8	18.0	30.7	49.5	0.8	5.5	410	75	9	12

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

接下來，使用實施例 23-1 至 23-7 中每一實施例之陽極活性材料粉末來形成圖 7 所示之一硬幣型二次電池，並決定該二次電池之初始充電容量。該硬幣型電池包括：該測試

電池 61，其使用包含於該封裝部件 62 中的每一實施例之陽極活性材料；以及該反電極 63，其係附著於該封裝部件 64。層壓該測試電極 61 與該反電極 63 且在其之間具有充滿一電解質溶液之分離器 65，並接著藉由該墊片 66 來填隙該等電極，從而形成該硬幣型電池。

透過以下步驟而形成該測試電極 61。首先，混合 70 份重量的所獲得之陽極活性材料、作為導電體及另一陽極活性材料之 20 份重量的石墨、作為導電體之 1 份重量的乙炔黑及作為黏結劑之 4 份重量的聚偏二乙烯，以形成一混合物。在將該混合物分散於一適當的混合溶劑中以形成淤漿後，將該淤漿施加於一銅箔之電流集極，並加以乾燥。然後，將該電流集極衝壓成直徑為 15.2 mm 之一小球。

使用衝壓成一直徑為 15.5 mm 的圓盤形狀之金屬鋰板，作為該反電極 63。使用包括乙烯碳酸酯、丙烯碳酸酯及二甲基碳酸酯且其中溶解 LiPF_6 作為一電解質鹽之一混合溶劑，作為該電解質溶液。

透過對該二次電池進行 1 mA 恆定電流充電至該電池電壓達到 0.2 mV，並接著對該二次電池進行 0.2 mV 恆定電壓充電至電流達到 10 μA ，來決定每單位質量(其係該測試電極 61 之質量，不包括銅箔的電流集極質量與該黏結劑質量)之充電容量，以作為初始充電容量。在此情況下，充電意味著鋰進入該陽極活性材料之插入反應。表 26 及圖 20 中顯示測量結果。

此外，形成圖 1 所示之一圓柱型二次電池。首先，以氧

化鎳：克特晏碳黑：聚偏二氟乙烯=94:3:3之質量比混合由氧化鎳、作為一導電體之克特晏碳黑及作為一黏結劑之聚偏二氟乙烯製成之一陰極活性材料，以形成一混合物。在將該混合物分散於一混合溶劑(例如N-甲基-2-吡咯酮)中以形成陰極混合物淤漿後，將該陰極混合物淤漿均勻地施加於由帶形鋁箔製成的陰極電流集極21A之二側，並加以乾燥。然後，透過滾壓壓縮模型而形成該陰極活性材料層21B，以便形成該陰極21。然後，將由鋁製成的陰極引線25附著於該陰極電流集極21A之一端。

此外，將包括如上所述而形成的陽極活性材料之淤漿均勻地施加於由帶形銅箔製成的陽極電流集極22A之二側，並加以乾燥。然後，透過滾壓壓縮模型而形成該陽極活性材料層22B，以便形成該陽極22。接下來，將由鎳製成的陽極引線26附著於該陽極電流集極22A之一端。

在形成該陰極21與該陽極22後，製備該分離器23，並按此處之說明順序層壓該陽極22、該分離器23、該陰極21及該分離器23以形成一層板，並對該層板作數次螺旋纏繞以形成該螺旋纏繞電極體20。

在形成該螺旋纏繞電極體20後，將該螺旋纏繞電極體20夾在一對絕緣板12與13之間，並將該陽極引線26焊接至該電池罐11，而將該陰極引線25焊接至該安全閥機構15。然後，將該螺旋纏繞電極體20包含於由鍍鎳的鐵製成之電池罐11內。此後，藉由一分解方法將上述電解質溶液注入該電池罐11。

在將該電解質溶液注入該電池罐11後，用表面塗布有瀝青的墊片17來將該電池蓋14填隙於該電池罐11，從而獲得圖1所示之圓柱型二次電池。

測量所獲得之二次電池的循環特徵。表26及圖20中顯示測量結果。此時，透過以下步驟來測量該等循環特徵。

首先，在對該二次電池進行0.5 A恆定電流之充電至該電池電壓達到4.2 V後，對該二次電池進行4.2 V恆定電壓之充電至該電流達到10 mA。然後，對該二次電池進行0.25 A恆定電流之放電至該電池電壓達到2.6 V。從而，執行充電放電之第一循環。

作為第二或後面的循環，在對該二次電池進行1.4 A恆定電流之充電至該電池電壓達到4.2 V後，對該二次電池進行4.2 V恆定電壓之充電至該電流達到10 mA，並接著對該二次電池進行1.0 A恆定電流之放電至該電池電壓達到2.6 V。決定相對於該第二循環中放電容量之第300循環中的容量保持率(第300循環中的放電容量)/(第二循環中的放電容量) $\times 100$ (%)，作為該等循環特徵。

作為相對於實施例23-1至23-7之比較實施例23-1，合成一陽極活性材料，並如同實施例23-1至23-7之情況一樣形成二次電池，不同之處僅係不使用碳粉末作為一材料。此外，作為比較實施例23-2至23-6，合成陽極活性材料，並如同實施例23-1至23-7中的情況一樣形成二次電池，不同之處係如表26所示而改變碳粉末材料比率。對比較實施例23-1至23-6之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的

較寬半寬度在範圍 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表26中顯示測量結果。進一步，在對比較實施例23-1至23-6之陽極活性材料進行XPS測量時，在比較實施例23-3至23-6之陽極活性材料中獲得圖6所示之峰值P1。在分析該峰值P1時，如同在實施例23-1至23-7之情況下一樣，獲得表面污染碳之峰值P2與該陽極活性材料中的C1s峰值P3，並在一低於284.5 eV之區域中獲得比較實施例23-3至23-6之每一實施例中的峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。另一方面，在比較實施例23-1中，如圖9所示，獲得一峰值P4，而在分析該峰值P4時，僅獲得表面污染碳之峰值P2。在比較實施例23-2中，用作一材料的碳數量較小，因此藉由分析僅獲得該峰值P2，而難以偵測該峰值P3。

此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表26及圖20中顯示該等測量結果。

從表26及圖20明顯看出，在該陽極活性材料中的碳含量在係在從9.9 wt%至29.7 wt%內之實施例23-1至23-7中，與碳含量超出該範圍之比較實施例23-1至23-6相比，可顯著提高該容量保持比率。此外，可提高初始充電容量及放電容量。

此外，當該陽極活性材料中的碳含量在係在從14.9 wt%至29.7 wt%內，而更明確言之係在從16.8 wt%至24.8 wt%內時，可獲得更高的值。

換言之，發現當該碳含量在係在從9.9 wt%至29.7 wt%

內時，可提高容量而改善循環特徵，而該碳含量更佳的係在從14.9 wt%至29.7 wt%內，而更佳的係在從16.8 wt%至24.8 wt%內。

(實施例24-1至24-9)

如同實施例23-1至23-7之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係合成如表27所示而改變鈷、錫、鐵及碳材料比率之陽極活性材料。更明確言之，鐵材料比率係固定為0.8 wt%，而碳材料比率係固定為10 wt%。該Co/(Sn+Co)比率係在從30 wt%至70 wt%內改變。

[表 27]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				$\frac{\text{Co}}{\text{Sn+Co}}$	半寬 度 (°)	初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量 保持 比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe						
實施例 24-1	62.4	26.8	10	0.8	61.8	26.5	9.9	0.8	70	3.8	367	96	69	72
實施例 24-2	58.0	31.2	10	0.8	57.4	30.9	9.9	0.8	65	3.8	377	100	71	71
實施例 24-3	53.5	35.7	10	0.8	53.0	35.3	9.9	0.8	60	3.7	396	102	72	70
實施例 24-4	49.1	40.1	10	0.8	48.6	39.7	9.9	0.8	55	3.7	415	104	72	69
實施例 24-5	44.6	44.6	10	0.8	44.2	44.2	9.9	0.8	50	3.6	446	106	71	67
實施例 24-6	40.1	49.1	10	0.8	39.7	48.6	9.9	0.8	45	3.6	476	112	72	64
實施例 24-7	35.7	53.5	10	0.8	35.3	53.0	9.9	0.8	40	3.5	483	117	73	62
實施例 23-1	33.0	56.2	10	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	37	3.5	495	121	76	63
實施例 24-8	29.4	59.8	10	0.8	29.1	59.2	9.9	0.8	33	3.4	525	120	71	59
實施例 24-9	26.8	62.4	10	0.8	26.5	61.8	9.9	0.8	30	3.3	555	119	68	57
比較實 施例 24-1	25.0	64.2	10	0.8	24.7	63.6	9.9	0.8	28	3.2	558	117	22	19
比較實 施例 24-2	22.3	66.9	10	0.8	22.1	66.2	9.9	0.8	25	3.0	575	114	0	0
比較實 施例 24-3	17.8	71.4	10	0.8	17.7	70.6	9.9	0.8	20	2.8	590	109	0	0
比較實 施例 24-4	66.9	22.3	10	0.8	66.2	22.1	9.9	0.8	75	3.8	278	71	52	73

作為相對於實施例 24-1 至 24-9 之比較實施例 24-1 至 24-4，如同實施例 24-1 至 24-9 之情況一樣形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係如表 27 所示而改變該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率。比較實施例 24-1、24-2、24-3 及 24-4 中的 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率分別係 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75

wt%。

如同實施例 23-1 至 23-7 中之情況一樣，對實施例 24-1 至 24-9 及比較實施例 24-1 至 24-4 之所獲得的陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta = 20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表 27 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，測量該二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 27 及圖 21 顯示測量結果。

從表 27 及圖 21 明顯看出，在 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30% 至 70 wt% 內之實施例 24-1 至 24-9 中，與其中 Co/(Sn+Co) 比率低於 30 wt% 之比較實施例 24-1 至 24-3 相比，可明顯提高該容量保持比率，而與其中 Co/(Sn+Co) 比率高於 70 wt% 之比較實施例 2-4 相比，可明顯增加初始充電容量。更明確言之，當 Co/(Sn+Co) 比率等於或低於 60 wt% 時，可獲得一較高的初始充電容量。

換言之，得出結論，當 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內時，可提高該容量而改善循環特徵。此外，得出結論，Co/(Sn+Co) 比率更佳的係 60 wt% 或更小。

(實施例 25-1 至 25-9)

如同實施例23-1至23-7之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係合成如表28所示而改變鈷、錫、鐵及碳材料比率之陽極活性材料。更明確言之，鐵材料比率係固定為0.8 wt%，而碳材料比率係固定為20 wt%。該Co/(Sn+Co)比率係在從30 wt%至70 wt%內改變。

[表 28]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				$\frac{\text{Co}}{\text{Sn+Co}}$	半寬度 (°)	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe						
實施例25-1	55.4	23.8	20	0.8	54.9	23.5	19.8	0.8	70	5.0	368	98	85	87
實施例25-2	51.5	27.7	20	0.8	51.0	27.4	19.8	0.8	65	5.0	378	100	87	87
實施例25-3	47.5	31.7	20	0.8	47.0	31.4	19.8	0.8	60	4.9	397	106	91	86
實施例25-4	43.6	35.6	20	0.8	43.1	35.3	19.8	0.8	55	4.9	417	111	94	85
實施例25-5	39.6	39.6	20	0.8	39.2	39.2	19.8	0.8	50	4.9	445	118	98	83
實施例25-6	35.6	43.6	20	0.8	35.3	43.1	19.8	0.8	45	4.8	474	127	99	78
實施例25-7	31.7	47.5	20	0.8	31.4	47.0	19.8	0.8	40	4.8	500	133	100	75
實施例23-5	29.3	49.9	20	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	37	4.8	518	139	101	73
實施例25-8	26.1	53.1	20	0.8	25.9	52.5	19.8	0.8	33	4.6	539	139	97	70
實施例25-9	23.8	55.4	20	0.8	23.5	54.9	19.8	0.8	30	4.5	555	145	93	64
比較實施例25-1	22.2	57.0	20	0.8	22.0	56.5	19.8	0.8	28	4.4	561	139	50	36
比較實施例25-2	19.8	59.4	20	0.8	19.6	58.8	19.8	0.8	25	4.2	569	133	27	20
比較實施例25-3	15.8	63.4	20	0.8	15.7	62.7	19.8	0.8	20	4.0	591	125	0	0
比較實施例25-4	59.4	19.8	20	0.8	58.8	19.6	19.8	0.8	75	5.0	252	65	57	88

作為相對於實施例25-1至25-9之比較實施例25-1至25-4，如同實施例25-1至25-9之情況一樣形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係如表28所示而改變該Co/(Sn+Co)

比率。比較實施例 25-1、25-2、25-3 及 25-4 中的 Co/(Sn+Co) 比率分別係 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75 wt%。

如同實施例 23-1 至 23-7 中之情況一樣，對實施例 25-1 至 25-9 及比較實施例 25-1 至 25-4 之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta = 20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表 28 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，測量該二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 28 及 22 顯示測量結果。

從表 28 及圖 22 明顯看出，獲得與實施例 24-1 至 24-9 之情況中相同之結果。換言之，得出結論，當 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內時，甚至在碳含量係 19.8 wt% 之情況下，亦可提高該容量而改善循環特徵。

(實施例 26-1 至 26-9)

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係合成如表 29 所示而改變鈷、錫、鐵及碳材料比率之陽極活性材料。更明確言之，鐵材料比率係固定為 0.8 wt%，而碳材料比率係固定為 30 wt%。該 Co/(Sn+Co) 比率係在從 30 wt% 至 70 wt% 內改變。

[表 29]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				$\frac{\text{Co}}{\text{Sn+Co}}$	半寬 度 (°)	初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe						
實施例 26-1	48.4	20.8	30	0.8	48.0	20.6	29.7	0.8	70	6.0	321	81	70	87
實施例 26-2	45.0	24.2	30	0.8	44.5	24.0	29.7	0.8	65	5.9	397	105	87	83
實施例 26-3	41.5	27.7	30	0.8	41.1	27.4	29.7	0.8	60	5.8	416	110	89	81
實施例 26-4	38.1	31.1	30	0.8	37.7	30.8	29.7	0.8	55	5.7	441	116	90	78
實施例 26-5	34.6	34.6	30	0.8	34.3	34.3	29.7	0.8	50	5.6	451	121	88	73
實施例 26-6	31.1	38.1	30	0.8	30.8	37.7	29.7	0.8	45	5.5	467	124	88	71
實施例 26-7	27.7	41.5	30	0.8	27.4	41.1	29.7	0.8	40	5.4	486	126	84	67
實施例 23-7	25.6	43.6	30	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	37	5.4	510	127	81	64
實施例 26-8	22.8	46.4	30	0.8	22.6	45.9	29.7	0.8	33	5.3	512	132	79	60
實施例 26-9	20.8	48.4	30	0.8	20.6	48.0	29.7	0.8	30	5.2	521	135	78	58
比較實施 例26-1	19.4	49.8	30	0.8	19.2	49.3	29.7	0.8	28	5.2	530	132	46	35
比較實施 例26-2	17.3	51.9	30	0.8	17.1	51.4	29.7	0.8	25	5.1	541	128	29	23
比較實施 例26-3	13.8	55.4	30	0.8	13.7	54.8	29.7	0.8	20	5.1	548	115	0	0
比較實施 例26-4	51.9	17.3	30	0.8	51.4	17.1	29.7	0.8	75	6.1	269	67	60	90

比較實施例 26-1 至 26-4 相對於實施例 26-1 至 26-9，如例 26-1 至 26-9 之情況一樣形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係如表 29 所示而改變該 Co/(Sn+Co) 比率。比較實施例 26-1、26-2、26-3 及 26-4 中的 Co/(Sn+Co) 比率分別係 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75 wt%。

如同實施例 23-1 至 23-7 中之情況一樣，對實施例 26-1 至 26-9 及比較實施例 26-1 至 26-4 之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內之一

繞射峰值半寬度。表 29 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 29 及圖 23 顯示測量結果。

從表 29 及圖 23 明顯看出，獲得與實施例 24-1 至 24-9 之情況中相同之結果。換言之，可得出結論，當 Co/(Sn+Co) 比率範圍在 30 wt% 至 70 wt% 內時，即使該碳含量為 29.7 wt% 之情況下，可提高該容量而改善循環特徵。

(實施例 27-1 至 27-6 及 28-1 至 28-6)

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況中一樣，形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係改變合成該等陽極活性材料時的操作時間及旋轉數目以便改變觀察到的較寬半寬度範圍在 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值之半寬度。此時，在鈷、錫、鐵及碳材料比率中，實施例 27-1 至 27-6 及實施例 28-1 至 28-6 中改變碳材料比率，如表 30 所示，而該 Co/(Sn+Co) 比率相同。

[表 30]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				半寬度 (°)	容量保持 比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe		
實施例27-1	33.0	56.2	10.0	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	1.0	39
實施例27-2	33.0	56.2	10.0	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	1.2	46
實施例27-3	33.0	56.2	10.0	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	1.5	49
實施例27-4	33.0	56.2	10.0	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	2.0	53
實施例27-5	33.0	56.2	10.0	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	3.0	58
實施例27-6	33.0	56.2	10.0	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	4.0	67
實施例28-1	25.6	43.6	30.0	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	1.0	41
實施例28-2	25.6	43.6	30.0	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	1.2	44
實施例28-3	25.6	43.6	30.0	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	1.5	46
實施例28-4	25.6	43.6	30.0	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	2.0	50
實施例28-5	25.6	43.6	30.0	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	3.0	53
實施例28-6	25.6	43.6	30.0	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	4.0	57

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

如同實施例 23-1 至 23-7 中之情況一樣，對實施例 27-1 至 27-6 及 28-1 至 28-6 之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度範圍在 $2\theta = 20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表 30 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，測量該二次電池之初始充電容量

及循環特徵。表30中顯示測量結果。

從表30明顯看出，在實施例27-1至27-6及28-1至28-6中，該半寬度越大，則該容量保持比率提高得越多。換言之，得出結論，當該繞射峰值之半寬度具有一較大的反應相位時，可改善循環特徵。

(實施例29-1至29-9)

如同實施例23-1至23-7之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係合成如表31所示而改變鈷、錫、鐵及碳材料比率之陽極活性材料。更明確言之，該鐵材料比率係在從0.1 wt%至7.0 wt%內變化。該 $Co/(Sn+Co)$ 比率係固定為37 wt%，而該碳材料比率係固定為20 wt%。

[表31]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				半寬度 (°)	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	n	C	Fe					
實施例 29-1	29.6	50.3	20	0.1	29.3	49.8	19.8	0.1	4.8	525	140	98	70
實施例 29-2	29.5	50.3	20	0.2	29.2	49.8	19.8	0.2	4.8	523	140	98	70
實施例 29-3	29.5	50.2	20	0.3	29.2	49.7	19.8	0.3	4.8	520	139	100	72
實施例 23-5	29.3	49.9	20	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	4.8	518	139	101	73
實施例 29-4	29.2	49.8	20	1.0	28.9	49.3	19.8	1.0	4.8	517	139	103	74
實施例 29-5	28.5	48.5	20	3.0	28.2	48.0	19.8	3.0	4.8	506	138	105	76
實施例 29-6	27.8	47.3	20	5.0	27.5	46.8	19.8	5.0	4.8	491	131	102	78
實施例 29-7	27.4	46.6	20	6.0	27.1	46.2	19.8	5.9	4.8	476	127	100	79
實施例 29-8	27.2	46.3	20	6.5	26.9	45.8	19.8	6.4	4.8	452	117	94	80
實施例 29-9	27.0	46.0	20	7.0	26.7	45.5	19.8	6.9	4.8	411	109	88	81

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

如同實施例 23-1 至 23-7 中之情況一樣，對實施例 29-1 至 29-9 之陽極活性材料進行成分分析並測量觀察到的較寬半寬度在範圍 $2\theta=20^\circ$ 至 50° 內之一繞射峰值半寬度。表 31 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 31 及圖 24 中顯示測量結果。

從表 31 及圖 24 明顯看出，在鐵含量在係在從 0.3 wt% 至 5.9 wt% 內之實施例 29-3 至 29-7 中，與其中鐵含量小於 0.3 wt% 之實施例 29-1 及 29-2 相比，可提高容量保持比率，而與其中鐵含量大於 5.9 wt% 之實施例 29-8 及 29-9 相比，可增加初始充電容量。

換言之，得出結論，當鐵含量係在從 0.3 wt% 至 5.9 wt% 內時，可提高該容量而改善循環特徵。

(實施例 30-1 至 30-11)

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況中一樣，形成陽極活性材料及二次電池，不同之處僅係進一步將矽粉末用作一材料，如表 32 所示而改變鈷、錫、鐵、碳及矽材料比率。更明確言之，該矽粉末材料比率係在從 0.3 wt% 至 10.0 wt% 內變化，而 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率、鐵材料比率及碳材料比率係固

定。如實施例23-1至23-7之情況一樣，對實施例30-1至30-11之二次電池進行成分分析。表32中顯示測量結果。藉由ICP發射光譜法來測量該矽含量。此外，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例23-1至23-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表33中顯示測量結果。

[表 32]

	材料比率 (WT%)						分析值 (WT%)					
	Co	Sn	C	Fe	Si	Sn+Si	Co	Sn	C	Fe	Si	Sn+Si
實施例23-5	29.3	49.9	20.0	0.8	0	49.9	29.0	49.4	19.8	0.8	0	49.4
實施例30-1	29.2	49.7	20.0	0.8	0.3	50.0	28.9	49.2	19.8	0.8	0.3	49.5
實施例30-2	29.1	49.6	20.0	0.8	0.5	50.1	28.8	49.1	19.8	0.8	0.5	49.6
實施例30-3	28.9	49.3	20.0	0.8	1.0	50.3	28.6	48.8	19.8	0.8	1.0	49.8
實施例30-4	28.6	48.6	20.0	0.8	2.0	50.6	28.3	48.1	19.8	0.8	2.0	50.1
實施例30-5	27.8	47.4	20.0	0.8	4.0	51.4	27.5	46.9	19.8	0.8	4.0	50.9
實施例30-6	27.1	46.1	20.0	0.8	6.0	52.1	26.8	45.7	19.8	0.8	5.9	51.6
實施例30-7	26.7	45.5	20.0	0.8	7.0	52.5	26.4	45.0	19.8	0.8	6.9	52.0
實施例30-8	26.3	44.9	20.0	0.8	8.0	52.9	26.1	44.4	19.8	0.8	7.9	52.3
實施例30-9	26.2	44.5	20.0	0.8	8.5	53.0	25.9	44.1	19.8	0.8	8.4	52.5
實施例30-10	26.0	44.2	20.0	0.8	9.0	53.2	25.7	43.8	19.8	0.8	8.9	52.7
實施例30-11	25.6	43.6	20.0	0.8	10.0	53.6	25.3	43.2	19.8	0.8	9.9	53.1

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

[表 33]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
實施例23-5	518	139	101	73
實施例30-1	519	140	102	73
實施例30-2	525	142	100	71
實施例30-3	544	144	101	70
實施例30-4	556	146	99	68
實施例30-5	570	147	98	67
實施例30-6	586	152	101	66
實施例30-7	603	156	101	65
實施例30-8	614	158	93	59
實施例30-9	630	158	66	42
實施例30-10	653	160	42	26
實施例30-11	680	162	19	12

從表 32 及 33 明顯看出，在包括矽之實施例 30-1 至 30-11 中，與不包括矽的實施例 23-5 相比，可進一步提高該初始充電容量。但是，有一趨勢係該容量保持比率隨該矽含量增加而減小。

換言之，得出結論，當該陽極活性材料中包括矽時，可提高容量，而該矽含量較佳的係在從 0.5 wt% 至 7.9 wt% 內。

(實施例 31-1 至 31-10)

在實施例 31-1 中，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，合成一陽極活性材料並形成二次電池，不同之處係如表 34 所示而改變鈷、錫、鐵及碳材料比率。在實施例 31-2 至 31-

10中，如同實施例23-1至23-7之情況一樣，合成陽極活性材料並形成二次電池，不同之處係製備鈷粉末、錫粉末、鐵粉末、碳粉末及鈦粉末作為材料，並如表34所示而改變其材料比率。更明確言之，該鈦材料比率係在從0 wt%至16.0 wt%內變化，而Co/(Sn+Co)比率、鐵材料比率及碳材料比率係固定。此外，透過將鈷粉末、錫粉末、鐵粉末及鈦粉末製成合金來形成鈷錫鐵鈦合金粉末且接著將碳粉末混合於該合金粉末，從而合成該陽極活性材料。如同實施例23-1至23-7之情況一樣，對實施例31-1至31-10之陽極活性材料進行成分分析。表34中顯示測量結果。藉由ICP發射光譜法來測量該鈦含量。進一步，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例23-1至23-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表34及圖25顯示測量結果。

[表 34]

	材料比率 (WT%)					分析值 (WT%)					初始充 電容量 (mAh/g)	第二循環的 放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Ti	Co	Sn	C	Fe	Ti				
實施例 31-1	27.7	51.5	20.0	0.8	0	27.4	51.0	19.8	0.8	0	525	139	101	73
實施例 31-2	27.3	50.7	20.0	0.8	1.2	27.0	50.2	19.8	0.8	1.2	541	142	104	74
實施例 31-3	26.9	49.9	20.0	0.8	2.4	26.6	49.4	19.8	0.8	2.4	550	145	117	81
實施例 31-4	26.3	48.9	20.0	0.8	4.0	26.1	48.4	19.8	0.8	4.0	555	146	126	86
實施例 31-5	25.9	48.2	20.0	0.8	5.1	25.7	47.7	19.8	0.8	5.0	562	146	128	88
實施例 31-6	25.1	46.6	20.0	0.8	7.5	24.8	46.1	19.8	0.8	7.4	568	147	128	87
實施例 31-7	24.2	45.0	20.0	0.8	10.0	24.0	44.5	19.8	0.8	9.9	565	146	128	88
實施例 31-8	23.2	43.0	20.0	0.8	13.0	22.9	42.6	19.8	0.8	12.9	559	142	124	87
實施例 31-9	22.5	41.7	20.0	0.8	15.0	22.2	41.3	19.8	0.8	14.9	535	140	115	82
實施例 31-10	22.1	41.1	20.0	0.8	16.0	21.9	40.7	19.8	0.8	15.8	494	129	92	71

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

從表 34 及圖 25 明顯看出，在所包括的鈦在範圍為 14.9 wt% 或更低之實施例 31-2 至 31-9 中，與其中不包括鈦的實施例 31-1 以及所包括的鈦超過 14.9 wt% 之實施例 31-10 相比，可提高該容量保持比率。此外，當該鈦含量等於或高於 2.4 wt%，更明確言之係在從 4.0 wt% 至 12.9 wt% 內時，可獲得一更高的值。

換言之，得出結論，當該陽極活性材料中包括鈦為 14.9 wt% 或更低時，可進一步改進該等循環特徵，而最佳的係所包括的鈦在係在從 4.0 wt% 至 12.9 wt% 內。

(實施例 32-1 至 32-9)

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，合成陽極活性材料並形成二次電池，不同之處係製備鈷粉末、錫粉末、碳粉末及鈹粉末以作為材料，如表 35 所示而改變其材料比率。更明確言之，該鈹粉末材料比率係在從 1.2 wt% 至 16.0 wt% 內變化，而 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率、鐵材料比率及碳材料比率係固定。此外，透過將鈷粉末、錫粉末、鐵粉末及鈹粉末製成合金來形成鈷錫鐵鈹合金粉末且接著將碳粉末混合於該合金粉末，從而合成該陽極活性材料。如同在實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，對該等陽極活性材料進行成分分析。表 35 中顯示測量結果。藉由 ICP 發射光譜法來測量該鈹含量。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 35 及圖 26 顯示測量結果。

[表 35]

	材料比率 (WT%)					分析值 (WT%)					初始充電 容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Bi	Co	Sn	C	Fe	Bi				
實施例 31-1	27.7	51.5	20.0	0.8	0	27.4	51.0	19.8	0.8	0	525	139	101	73
實施例 32-1	27.3	50.7	20.0	0.8	1.2	27.0	50.2	19.8	0.8	1.2	520	137	99	74
實施例 32-2	26.9	49.9	20.0	0.8	2.4	26.6	49.4	19.8	0.8	2.4	519	137	104	76
實施例 32-3	26.3	48.9	20.0	0.8	4.0	26.1	48.4	19.8	0.8	4.0	519	137	108	79
實施例 32-4	25.9	48.2	20.0	0.8	5.1	25.7	47.7	19.8	0.8	5.0	515	138	117	85
實施例 32-5	25.1	46.6	20.0	0.8	7.5	24.8	46.1	19.8	0.8	7.4	512	136	120	88
實施例 32-6	24.2	45.0	20.0	0.8	10.0	24.0	44.5	19.8	0.8	9.9	509	136	122	90
實施例 32-7	23.2	43.0	20.0	0.8	13.0	22.9	42.6	19.8	0.8	12.9	505	135	120	89
實施例 32-8	22.5	41.7	20.0	0.8	15.0	22.2	41.3	19.8	0.8	14.9	503	135	115	85
實施例 32-9	22.1	41.1	20.0	0.8	16.0	21.9	40.7	19.8	0.8	15.8	492	130	91	70

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

如表 35 及圖 26 所示，在添加鈹之實施例 32-1 及 32-9 中，獲得與添加鈹的實施例 31-2 及 31-10 相同之結果。換言之，得出結論，在該陽極活性材料中包含鈹在範圍為 14.9 wt% 或更低之情況下，可進一步改進該等循環特徵，而所包括的鈹更佳的係在範圍為 4.0 wt% 或更高。

(實施例 33-1 至 33-14)

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，合成陽極活性材料而形成二次電池，不同之處係使用鈷粉末、錫粉末、鐵粉末、碳粉末及鈾粉末、鈮粉末、鋁粉末、鍍粉末、鈦粉、鎳粉末、磷粉末或鋁粉末與磷粉末作為材料，並且如表 36 所示而改變鈷、錫、鐵、碳及鈾、鈮、鋁、鍍、鈦、鎳、

磷或鋁與磷材料比率。更明確言之，鉬、鈮、鋁、鍺、銻、鎳、磷或鋁與磷之材料比率為3.0 wt%、4.0 wt%、5.0 wt%或6.0 wt%，而該Co/(Sn+Co)比率係固定為35 wt%而鐵材料比率係固定為0.8 wt%。此外，透過將鈷粉末、錫粉末及鐵粉末製成合金以形成鈷錫合金粉末且接著將碳粉與鉬粉末、鈮粉末、鋁粉末、鍺粉末、銻粉末、鎳粉末、磷粉末或鋁粉末與磷粉末混合為該合金粉末，從而合成該等陽極活性材料。如同實施例23-1至23-7之情況一樣，對實施例33-1至33-14之陽極活性材料進行成分分析。表36中顯示測量結果。藉由ICP發射光譜法來測量鉬、鈮、鋁、鍺、銻及磷之含量。進一步，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例23-1至23-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表37中顯示測量結果。

[表 36]

	材料比率 (WT%)											分析値 (WT%)										
	Co	Sn	C	Fe	Mo	Nb	Al	Ge	In	Ga	P	Co	Sn	C	Fe	Mo	Nb	Al	Ge	In	Ga	P
實施例 31-1	27.7	51.5	20	0.8	-	-	-	-	-	-	-	27.4	51.0	19.8	0.8	-	-	-	-	-	-	-
實施例 33-1	26.3	48.9	20	0.8	4.0	-	-	-	-	-	-	26.1	48.4	19.8	0.8	4.0	-	-	-	-	-	-
實施例 33-2	26.3	48.9	18	0.8	6.0	-	-	-	-	-	-	26.1	48.4	17.8	0.8	5.9	-	-	-	-	-	-
實施例 33-3	26.3	48.9	20	0.8	-	4.0	-	-	-	-	-	26.1	48.4	19.8	0.8	-	4.0	-	-	-	-	-
實施例 33-4	26.7	49.5	18	0.8	-	5.0	-	-	-	-	-	26.4	49.0	17.8	0.8	-	5.0	-	-	-	-	-
實施例 33-5	26.0	48.2	19	0.8	-	6.0	-	-	-	-	-	25.7	47.7	18.8	0.8	-	5.9	-	-	-	-	-
實施例 33-6	27.0	50.2	18	0.8	-	-	4.0	-	-	-	-	26.7	49.7	17.8	0.8	-	-	4.0	-	-	-	-
實施例 33-7	25.6	47.6	20	0.8	-	-	6.0	-	-	-	-	25.4	47.1	19.8	0.8	-	-	5.9	-	-	-	-
實施例 33-8	25.6	47.6	20	0.8	-	-	-	6.0	-	-	-	25.4	47.1	19.8	0.8	-	-	-	5.9	-	-	-
實施例 33-9	27.4	50.8	18	0.8	-	-	-	-	3.0	-	-	27.1	50.3	17.8	0.8	-	-	-	-	3.0	-	-
實施例 33-10	27.0	50.2	18	0.8	-	-	-	-	4.0	-	-	26.7	49.7	17.8	0.8	-	-	-	-	4.0	-	-
實施例 33-11	25.6	47.6	20	0.8	-	-	-	-	6.0	-	-	25.4	47.1	19.8	0.8	-	-	-	-	5.9	-	-
實施例 33-12	25.6	47.6	20	0.8	-	-	-	-	-	6.0	-	25.4	47.1	19.8	0.8	-	-	-	-	-	5.9	-
實施例 33-13	27.4	50.8	18	0.8	-	-	-	-	-	-	3.0	27.1	50.3	17.8	0.8	-	-	-	-	-	-	3.0
實施例 33-14	25.6	47.6	20	0.8	-	-	4.0	-	-	-	2.0	25.4	47.1	19.8	0.8	-	-	3.9	-	-	-	1.9

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

[表 37]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
實施例31-1	525	139	101	73
實施例33-1	505	136	112	82
實施例33-2	503	138	115	83
實施例33-3	531	140	120	86
實施例33-4	526	139	118	85
實施例33-5	527	138	117	85
實施例33-6	551	141	114	81
實施例33-7	547	143	120	84
實施例33-8	536	142	118	83
實施例33-9	536	139	114	82
實施例33-10	539	139	115	83
實施例33-11	544	144	124	86
實施例33-12	519	137	115	84
實施例33-13	535	141	114	81
實施例33-14	554	146	117	80

如表 36 及 37 所示，在實施例 33-1 至 33-14 中，如同實施例 31-2 至 31-10 及 32-1 至 32-9 之情況一樣可提高循環特徵。換言之，得出結論，當該陽極活性材料包括從鉬、鈮、鋁、鍺、銻、鎳及磷組成的群組中選取之至少一類元件時，可進一步提高循環特徵。

(實施例 34-1 至 34-8)

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，合成陽極活性材料並形成二次電池，不同之處係製備鈷粉末、錫粉末、鐵粉

末、碳粉末、矽粉末、鈦粉末及錮粉末作為材料，而其材料比率如表38所示而發生改變。更明確言之，鈦或鈦與錮材料比率係在從0 wt%至10.0 wt%內變化，而該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率、鐵材料比率、碳材料比率及矽材料比率係固定。此外，透過將鈷粉末與錫粉末、錫粉末、鐵粉末及鈦粉末或鈷粉末、錫粉末、鐵粉末、鈦粉末及錮粉末製成合金以形成鈷錫鐵鈦合金粉末或鈷錫鐵鈦錮合金粉末或鈷錫鈦錮合金粉末並接著將碳粉末與矽粉末混合於該合金粉末，來合成該等陽極活性材料。如同實施例23-1至23-7之情況一樣，對實施例34-1至34-8之陽極活性材料進行成分分析。表39中顯示測量結果。進一步，在執行該XPS測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例23-1至23-7之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值P2以及該陽極活性材料中C1s之峰值P3，而在每一實施例中皆在一低於284.5 eV之區域內獲得該峰值P3。換言之，確認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式測量該等二次電池之初始充電容量及循環特徵。表39中顯示測量結果。

[表 38]

	材料比率 (WT%)							分析值 (WT%)						
	Co	Sn	C	Fe	Si	Ti	In	Co	Sn	C	Fe	Si	Ti	In
實施例31-1	27.7	51.5	20.0	0.8	—	—	—	27.4	51.0	19.8	0.8	—	—	—
實施例34-1	27.4	50.8	18.0	0.8	3.0	—	—	27.1	50.3	17.8	0.8	3.0	—	—
實施例34-2	26.0	48.2	18.0	0.8	3.0	4.0	—	25.7	47.7	17.8	0.8	3.0	4.0	—
實施例34-3	25.6	47.5	18.0	0.8	3.0	5.1	—	25.3	47.0	17.8	0.8	3.0	5.0	—
實施例34-4	24.7	46.0	18.0	0.8	3.0	7.5	—	24.5	45.5	17.8	0.8	3.0	7.4	—
實施例34-5	26.0	48.2	18.0	0.8	3.0	2.6	1.4	25.7	47.7	17.8	0.8	3.0	2.6	1.4
實施例34-6	25.6	47.5	18.0	0.8	3.0	3.7	1.4	25.3	47.0	17.8	0.8	3.0	3.7	1.4
實施例34-7	24.7	46.0	18.0	0.8	3.0	6.1	1.4	24.5	45.5	17.8	0.8	3.0	6.0	1.4
實施例34-8	23.9	44.3	18.0	0.8	3.0	8.6	1.4	23.6	43.9	17.8	0.8	3.0	8.4	1.4

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

[表 39]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保持 比率 (%)
實施例31-1	525	139	101	73
實施例34-1	563	147	100	68
實施例34-2	587	148	114	77
實施例34-3	594	149	118	79
實施例34-4	597	150	117	78
實施例34-5	583	147	116	79
實施例34-6	592	149	116	78
實施例34-7	594	149	118	79
實施例34-8	587	148	112	76

從表 38 及 39 明顯看出，在其中除矽外還額外地添加鈦或鈦與錮之實施例 34-2 至 34-8 中，與其中不包括該些元件之

實施例 31-1 及 34-1 相比，可進一步提高初始充電容量及容量保持比率。

換言之，得出結論，當該陽極活性材料中包括從鈦、鉬、鈮、鋁、鍺、銻、鎵、鎳、磷及鈹組成的群組中選取之至少一類元件與矽時，可進一步提高容量而改善循環特徵。
(實施例 35-1 至 35-8)

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況中一樣，合成陽極活性材料，不同之處係製備鈷粉末、錫粉末、鐵粉末、碳粉末、矽粉末及鈦粉末作為材料，且在將鈷粉末、錫粉末及鐵粉末或鈷粉末、錫粉末、鐵粉末及鈦粉末製成合金以形成鈷錫鐵合金粉末或鈷錫鐵鈦合金粉末後，將碳粉末或矽粉末與矽粉末混合於該合金粉末。此時，如表 40 所示改變該材料比率。此外，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，形成圖 1 所示的圓柱二次電池，不同之處係使用該陽極活性材料，且在實施例 35-1 至 35-4 及實施例 35-5 至 35-8 中改變該電解質溶液之成分。此時，在實施例 35-1 至 35-4 中，使用一溶解 LiPF_6 作為電解質鹽以比率 1 摩爾/公升溶解於一混合溶劑中之電解質溶液，該混合溶劑包括乙烯碳酸酯、丙烯碳酸酯及二甲基碳酸酯而乙烯碳酸酯：丙烯碳酸酯：二甲基碳酸酯之質量比 = 30:10:60，而在實施例 35-5 至 35-8 中，使用一將 LiPF_6 作為電解質鹽以比率 1 摩爾/公升溶解於一混合溶劑中之電解質溶液，該混合溶劑包括 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單、乙烯碳酸酯、丙烯碳酸酯及二甲基碳酸酯而 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單：乙烯碳酸酯：丙烯碳酸酯：二甲

基碳酸酯之質量比=20:10:10:60。實施例 35-1 與 35-5 中、實施例 35-2 與 35-6、實施例 35-3 與 35-7 中以及實施例 35-4 與 35-8 中使用相同的陽極活性材料。

[表 40]

	材料比率 (WT%)						分析值 (WT%)						溶劑	容量保持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Si	Ti	Co	Sn	C	Fe	Si	Ti		
實施例 35-1	29.9	49.7	19.6	0.8	-	-	29.8	49.5	19.5	0.8	-	-	EC+PC+DMC	73
實施例 35-2	28.7	47.7	18.8	0.8	4.0	-	28.6	47.5	18.7	0.8	4.0	-	EC+PC+DMC	67
實施例 35-3	28.7	47.7	18.8	0.8	-	4.0	28.6	47.5	18.7	0.8	-	4.0	EC+PC+DMC	83
實施例 35-4	28.1	46.7	18.4	0.8	4.0	2.0	28.0	46.5	18.2	0.8	4.0	2.0	EC+PC+DMC	74
實施例 35-5	29.9	49.7	19.6	0.8	-	-	29.8	49.5	19.5	0.8	-	-	FEC+EC+PC+DMC	87
實施例 35-6	28.7	47.7	18.8	0.8	4.0	-	28.6	47.5	18.7	0.8	4.0	-	FEC+EC+PC+DMC	80
實施例 35-7	28.7	47.7	18.8	0.8	-	4.0	28.6	47.5	18.7	0.8	-	4.0	FEC+EC+PC+DMC	89
實施例 35-8	28.1	46.7	18.4	0.8	4.0	2.0	28.0	46.5	18.2	0.8	4.0	2.0	FEC+EC+PC+DMC	87

EC：乙烯碳酸酯 $\frac{Co}{Sn+Co} = 37.5wt\%$

PC：丙烯碳酸酯

DMC：二甲基碳酸酯

FEC：4-氟-1,3-二氧戊環-2-單

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，對實施例 35-1 至 35-8 之陽極活性材料進行成分分析。表 40 中顯示測量結果。進一步，在執行該 XPS 測量並分析所獲得的峰值時，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，獲得表面污染碳之峰值 P2 以及該陽極活性材料中 C1s 之峰值 P3，而在每一實施例中皆在一低於 284.5 eV 之區域內獲得該峰值 P3。換言之，確

認該陽極活性材料中包括的碳之至少一部分係耦合至另一元件。此外，以相同方式來測量該二次電池之循環特徵。表40中顯示測量結果。

從表40明顯看出，在使用4-氟-1,3-二氧戊環-2-單作為溶劑之實施例35-5至35-8中，與不使用4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之實施例35-1至35-4相比，可進一步提高該容量保持比率，

(實施例36-1至36-18)

如同實施例35-1及35-5之情況一樣，形成圓柱二次電池，不同之處僅係如表41所示而改變該溶劑成分。如同實施例23-1至23-7之情況一樣，測量實施例36-1至36-18之二次電池之循環特徵。表41中顯示測量結果。

[表 41]

	材料比率 (WT%)				分析値 (WT%)				溶劑 (WT%)				容量保持 比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe	FEC	EC	PC	DMC	
實施例 35-1	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	0	30.0	10.0	60.0	73
實施例 36-1	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	0.1	29.9	10.0	60.0	74
實施例 36-2	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	0.5	29.5	10.0	60.0	78
實施例 36-3	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	1.0	29.0	10.0	60.0	80
實施例 36-4	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	5.0	25.0	10.0	60.0	82
實施例 36-5	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	10.0	20.0	10.0	60.0	85
實施例 36-6	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	15.0	15.0	10.0	60.0	86
實施例 35-5	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	20.0	10.0	10.0	60.0	87
實施例 36-7	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	20.0	20.0	0	60.0	88
實施例 36-8	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	25.0	5.0	10.0	60.0	89
實施例 36-9	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	30.0	0	10.0	60.0	90
實施例 36-10	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	30.0	10.0	0	60.0	91
實施例 36-11	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	35.0	0	5.0	60.0	92
實施例 36-12	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	40.0	0	0	60.0	94
實施例 36-13	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	50.0	0	0	50.0	91
實施例 36-14	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	60.0	0	0	40.0	88
實施例 36-15	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	65.0	0	0	35.0	85
實施例 36-16	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	70.0	0	0	30.0	82
實施例 36-17	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	80.0	0	0	20.0	76
實施例 36-18	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	90.0	0	0	10.0	54

EC： 乙烯碳酸酯 $\frac{Co}{Sn+Co} = 37.5\text{wt}\%$

PC： 丙烯碳酸酯

DMC： 二甲基碳酸酯

FEC： 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單

從表41明顯看出，隨著4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之含量增加，該容量保持比率增加到一最大值，然後減小。

換言之，得出結論，當包括4-氟-1,3-二氧戊環-2-單時，可改進循環特徵而與該溶劑成分無關，而明確言之當4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之含量在係在從0.1 wt%至80 wt%內時，獲得一更高的效應。

(實施例37-1至37-6)

如同35-5之情況一樣，形成圓柱二次電池，不同之處係使用包括一鹵素原子的一環狀碳酸酯之另一衍生物來替代4-氟-1,3-二氧戊環-2-單。此時，在實施例37-1中，使用4-二氟-1,3-二氧戊環-2-單，在實施例37-2中，使用4-二氟-5-氟-1,3-二氧戊環-2-單，在實施例37-3中，使用4-氟-1,3-二氧戊環-2-單，在實施例37-4中，使用4-溴-1,3-二氧戊環-2-單，在實施例37-5中，使用4-碘-1,3-二氧戊環-2-單，而在實施例37-6中，使用4-氟甲基-1,3-二氧戊環-2-單。

如同實施例23-1至23-7之情況一樣，測量實施例37-1至37-6之二次電池之循環特徵。表42中顯示測量結果。

[表 42]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				溶劑	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe		
實施例 35-1	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	EC+PC+DMC	73
實施例 35-5	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	FEC+EC+PC+DMC	87
實施例 37-1	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	DFEC+EC+PC+DMC	80
實施例 37-2	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	tri-FEC+EC+PC+DMC	77
實施例 37-3	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	Cl-EC+EC+PC+DMC	82
實施例 37-4	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	Br-EC+EC+PC+DMC	74
實施例 37-5	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	I-EC+EC+PC+DMC	74
實施例 37-6	29.9	49.7	19.6	0.8	29.8	49.5	19.5	0.8	F-PC+EC+PC+DMC	83

EC：乙烯碳酸酯

三-FEC：4-二氟-5-氟-1,3-二氧戊環-2-單

PC：丙烯碳酸酯 Cl-EC：4-氯-1,3-二氧戊環-2-單

DMC：二甲基碳酸酯 Br-EC：4-溴-1,3-二氧戊環-2-單

FEC：4-氟-1,3-二氧戊環-2-單

I-EC：4-碘-1,3-二氧戊環-2-單

DFEC：4-二氟-1,3-二氧戊環-2-單

F-PC：4-氟甲基-1,3-二氧戊環-2-單

$$\frac{Co}{Sn+Co} = 37.5wt\%$$

從表42明顯看出，即便使用包括一鹵原子的環狀碳酸酯之另一衍生物，亦如同實施例35-5之情況一樣可改進循環特徵。但是，在使用4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之實施例35-5

中，該容量保持率特別高。換言之，得出結論，當包括一環狀碳酸酯(包括一鹵原子)之一衍生物時，可改進循環特徵，而當包括4-氟-1,3-二氧戊環-2-單作為衍生物時，會特別有效地改進循環特徵。

(實施例38-1至38-7)

如同實施例23-1至23-7之情況下一樣，形成硬幣型二次電池，不同之處係在該測試電極61與該反電極63之表面上形成由一凝膠電解質製成之一電解層以替代一液體電解質溶液。換言之，將透過以與實施例23-1至23-7中相同的材料比率(如表43所示)混合鈷、錫、鐵及碳而合成的陽極活性材料用於該測試電極61。此外，透過以下步驟來形成該電解質層。首先，將作為一高分子量化合物之一氟化亞乙烯與六氟丙烯的共聚物以及作為一混合溶劑的二甲基碳酸酯混合於一電解質溶液，該電解質溶液係透過以乙烯碳酸酯：丙烯丙烯酸酯： LiPF_6 =11.5:11.5:4之質量比來混合作為溶劑的乙烯碳酸酯及丙烯碳酸酯與作為電解質鹽的 LiPF_6 而形成，從而獲得電解質溶液：高分子量化合物：混合溶劑=27:10:60之一質量比，從而形成一先驅物溶液。氟化亞乙烯與六氟丙烯的共聚物之分子量係600000。將所獲得之先驅物溶液均勻地施加於該測試電極61與該反電極63之相對表面，並讓其保持於室溫6小時以令二乙基碳酸酯揮發，從而形成該凝膠電解質層。

[表 43]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				半寬度 (°)	初始充電 容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe					
實施例 38-1	33.0	56.2	10.0	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	3.5	470	97	59	61
實施例 38-2	32.3	54.9	12.0	0.8	31.9	54.4	11.9	0.8	3.8	476	102	66	65
實施例 38-3	31.2	53.0	15.0	0.8	30.8	52.5	14.9	0.8	4.3	480	104	69	66
實施例 38-4	30.4	51.8	17.0	0.8	30.1	51.3	16.8	0.8	4.5	485	108	76	70
實施例 38-5	29.3	49.9	20.0	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	4.8	492	111	82	74
實施例 38-6	27.5	46.7	25.0	0.8	27.2	46.3	24.8	0.8	5.1	500	111	80	72
實施例 38-7	25.6	43.6	30.0	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	5.4	485	100	65	65
比較實施 例38-1	36.7	62.5	0	0.8	36.3	61.9	0	0.8	0.2	427	77	0	0
比較實施 例38-2	36.3	61.9	1.0	0.8	36.0	61.2	1.0	0.8	0.5	429	79	0	0
比較實施 例38-3	34.9	59.3	5.0	0.8	34.5	58.8	5.0	0.8	2.0	451	90	0	0
比較實施 例38-4	33.7	57.5	8.0	0.8	33.4	56.9	7.9	0.8	3.0	464	93	18	19
比較實施 例38-5	21.9	37.3	40.0	0.8	21.7	36.9	39.6	0.8	5.5	435	80	34	43
比較實施 例38-6	18.2	31.0	50.0	0.8	18.0	30.7	49.5	0.8	5.5	389	71	27	38

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，測量該硬幣型二次電池的初始充電容量。表 43 及圖 27 顯示測量結果。

此外，形成圖 3 及 4 所示之二次電池。首先，如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，形成該陰極 33 及該陽極 34，並附著該陰極引線 31 及該陽極引線 32。

接下來，將上述先驅物溶液均勻地施加於該陰極 33 與該陽極 34，並讓其保持於室溫 6 小時以令二甲基碳酸酯揮

發，從而形成該凝膠電解質層36。

然後，層壓該陰極33與該陽極34且在其之間具有該分離器35而使得其上面形成該電解質層36的陰極33及陽極34之表面彼此面對，從而形成一層板，並對該層板作螺旋纏繞以形成螺旋纏繞電極體30。

所獲得之螺旋纏繞電極體30係真空密封於由一防濕鋁層板膜製成的封裝部件40中，從而形成圖3及4所示之二次電池。

如同實施例23-1至23-7之情況一樣，測量該二次電池的循環特徵。表43及圖27顯示測量結果。

作為相對於實施例38-1至38-6之比較實施例38-1至38-7，如同在實施例23-1至23-7之情況一樣形成二次電池，不同之處係使用透過以表43所示材料比率來混合鈷、錫及碳來合成之陽極活性材料，即如同比較實施例23-1至23-6之情況一樣合成之陽極活性材料。

測量比較實施例38-1至38-6之所獲得的二次電池之初始充電容量及循環特徵。表43及圖27顯示測量結果。

從表43及圖27明顯看出，獲得與實施例23-1至23-7之情況中相同之結果。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，若該碳含量在係在從9.9 wt%至29.7 wt%內，亦可提高容量而改善循環特徵，而該碳含量更佳的係在從14.9 wt%至29.7 wt%內，而更佳的係在從16.8 wt%至24.8 wt%內。

(實施例39-1至39-9、40-1至40-9及41-1至41-9)

作為實施例 39-1 至 39-9，如同實施例 38-1 至 38-7 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表 44 所示，使用碳之材料比率係固定為 10 wt%，而鐵之材料比率係固定為 0.8 wt%，而 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30% 至 70 wt% 內變化之陽極活性材料，即如同實施例 24-1 至 24-7 之情況一樣合成的陽極活性材料。此外，作為相對於實施例 39-1 至 39-9 之比較實施例 39-1 至 39-4，如同實施例 39-1 至 39-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表 44 所示，使用碳材料比率係固定為 10 wt%，鐵材料比率係固定為 0.8 wt% 而 Co/(Sn+Co) 比率係 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75 wt% 之陽極活性材料，即如同實施例 24-1 至 24-4 之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 44]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				Co Sn+Co	半寬 度 (°)	初始充電 容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe						
實施例 39-1	62.4	26.8	10	0.8	61.8	26.5	9.9	0.8	70	3.8	348	77	55	72
實施例 39-2	58.0	31.2	10	0.8	57.4	30.9	9.9	0.8	65	3.8	359	80	57	71
實施例 39-3	53.5	35.7	10	0.8	53.0	35.3	9.9	0.8	60	3.7	377	82	57	70
實施例 39-4	49.1	40.1	10	0.8	48.6	39.7	9.9	0.8	55	3.7	396	83	57	69
實施例 39-5	44.6	44.6	10	0.8	44.2	44.2	9.9	0.8	50	3.6	426	85	57	67
實施例 39-6	40.1	49.1	10	0.8	39.7	48.6	9.9	0.8	45	3.6	453	90	57	64
實施例 39-7	35.7	53.5	10	0.8	35.3	53.0	9.9	0.8	40	3.5	460	94	58	62
實施例 38-1	33.0	56.2	10	0.8	32.7	55.6	9.9	0.8	37	3.5	470	97	59	61
實施例 39-8	29.4	59.8	10	0.8	29.1	59.2	9.9	0.8	33	3.4	501	96	57	59
實施例 39-9	26.8	62.4	10	0.8	26.5	61.8	9.9	0.8	30	3.3	527	95	54	57
比較實施 例39-1	25.0	64.2	10	0.8	24.7	63.6	9.9	0.8	28	3.2	534	95	17	18
比較實施 例39-2	22.3	66.9	10	0.8	22.1	66.2	9.9	0.8	25	3.0	540	92	0	0
比較實施 例39-3	17.8	71.4	10	0.8	17.7	70.6	9.9	0.8	20	2.8	558	87	0	0
比較實施 例39-4	66.9	22.3	10	0.8	66.2	22.1	9.9	0.8	75	3.8	264	60	44	74

作為實施例 40-1 至 40-9，如同實施例 38-1 至 38-7 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表 45 所示，使用碳之材料比率係固定為 20 wt%，而鐵之材料比率係固定為 0.8 wt%，而 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30% 至 70 wt% 內變化之陽極活性材料，即如同實施例 25-1 至 25-9 之情況一樣合成的陽極活性材料。此外，作為相對於實施例 40-1 至 40-9 之比較實施例 40-1 至 40-4，如同實施例 40-1 至 40-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表 45 所示，使用碳材料比

率係固定為 20 wt%，而鐵材料比率係固定為 0.8%，而 Co/(Sn+Co)比率係 28 wt%、25 wt%、20 wt%及 75 wt%之陽極活性材料，即如同實施例 25-1 至 25-4 之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 45]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				$\frac{\text{Co}}{\text{Sn+Co}}$	半寬度 (°)	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe						
實施例 40-1	55.4	23.8	20	0.8	54.9	23.5	19.8	0.8	70	5.0	349	78	69	88
實施例 40-2	51.5	27.7	20	0.8	51.0	27.4	19.8	0.8	65	5.0	360	80	70	87
實施例 40-3	47.5	31.7	20	0.8	47.0	31.4	19.8	0.8	60	4.9	378	85	73	86
實施例 40-4	43.6	35.6	20	0.8	43.1	35.3	19.8	0.8	55	4.9	395	89	75	85
實施例 40-5	39.6	39.6	20	0.8	39.2	39.2	19.8	0.8	50	4.9	424	94	79	84
實施例 40-6	35.6	43.6	20	0.8	35.3	43.1	19.8	0.8	45	4.8	451	102	80	79
實施例 40-7	31.7	47.5	20	0.8	31.4	47.0	19.8	0.8	40	4.8	476	106	80	75
實施例 38-5	29.3	49.9	20	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	37	4.8	493	111	82	74
實施例 40-8	26.1	53.1	20	0.8	25.9	52.5	19.8	0.8	33	4.6	515	111	77	69
實施例 40-9	23.8	55.4	20	0.8	23.5	54.9	19.8	0.8	30	4.5	527	116	73	63
比較實施例 40-1	22.2	57.0	20	0.8	22.0	56.5	19.8	0.8	28	4.4	534	110	39	35
比較實施例 40-2	19.8	59.4	20	0.8	19.6	58.8	19.8	0.8	25	4.2	542	105	25	24
比較實施例 40-3	15.8	63.4	20	0.8	15.7	62.7	19.8	0.8	20	4.0	551	97	0	0
比較實施例 40-4	59.4	19.8	20	0.8	58.8	19.6	19.8	0.8	75	5.0	246	44	39	89

作為實施例 41-1 至 41-9，如同實施例 38-1 至 38-7 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表 46 所示，使用碳之材料比率係固定為 30 wt%，而鐵之材料比率係固定為 0.8

wt%，而 Co/(Sn+Co) 比率在係在從 30% 至 70 wt% 內變化之陽極活性材料，即如同實施例 26-1 至 26-9 之情況一樣合成的陽極活性材料。此外，作為相對於實施例 41-1 至 41-9 之比較實施例 41-1 至 41-4，如同實施例 41-1 至 41-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處係如表 46 所示，使用碳材料比率係固定為 30 wt%，鐵材料比率係固定為 0.8 wt%，而 Co/(Sn+Co) 比率係 28 wt%、25 wt%、20 wt% 及 75 wt% 之陽極活性材料，即如同實施例 26-1 至 26-4 之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 46]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				Co Sn+Co	半寬度 (°)	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe						
實施例 41-1	48.4	20.8	30	0.8	48.0	20.6	29.7	0.8	70	6.0	321	65	56	86
實施例 41-2	45.0	24.2	30	0.8	44.5	24.0	29.7	0.8	65	5.9	397	84	69	82
實施例 41-3	41.5	27.7	30	0.8	41.1	27.4	29.7	0.8	60	5.8	416	88	70	80
實施例 41-4	38.1	31.1	30	0.8	37.7	30.8	29.7	0.8	55	5.7	441	93	72	78
實施例 41-5	34.6	34.6	30	0.8	34.3	34.3	29.7	0.8	50	5.6	451	97	72	74
實施例 41-6	31.1	38.1	30	0.8	30.8	37.7	29.7	0.8	45	5.5	467	99	69	70
實施例 41-7	27.7	41.5	30	0.8	27.4	41.1	29.7	0.8	40	5.4	486	101	68	67
實施例 38-7	25.6	43.6	30	0.8	25.3	43.2	29.7	0.8	37	5.4	510	102	65	65
實施例 41-8	22.8	46.4	30	0.8	22.6	45.9	29.7	0.8	33	5.3	512	106	62	59
實施例 41-9	20.8	48.4	30	0.8	20.6	48.0	29.7	0.8	30	5.2	521	108	63	58
比較實施例 41-1	19.4	49.8	30	0.8	19.2	49.3	29.7	0.8	28	5.2	528	102	42	41
比較實施例 41-2	17.3	51.9	30	0.8	17.1	51.4	29.7	0.8	25	5.1	534	95	28	29
比較實施例 41-3	13.8	55.4	30	0.8	13.7	54.8	29.7	0.8	20	5.1	546	86	0	0
比較實施例 41-4	51.9	17.3	30	0.8	51.4	17.1	29.7	0.8	75	6.1	261	54	49	91

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，測量實施例 39-1 至 39-9、40-1 至 40-9 及 41-1 至 41-9 及比較實施例 39-1 至 39-4、40-1 至 40-4 及 41-1 至 41-4 之所獲得的二次電池之初始容量及循環特徵。表 44 至 46 及圖 28 至 30 顯示測量結果。

從表 44 至 46 及圖 28 至 30 明顯看出，獲得與實施例 24-1 至 24-9、25-1 至 25-9 及 26-1 至 26-9 中相同之結果。換言之，得出結論，若該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率在係在從 30 wt% 至 70 wt% 內，則即便使用該凝膠電解質，亦可提高該容量及該等循環特徵。此外，得出結論，該 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率更佳的係 60 wt% 或更小。

(實施例 42-1 至 42-9)

與實施例 38-1 至 38-9 之情況一樣形成二次電池，不同之處僅係如表 47 所示，使用 $\text{Co}/(\text{Sn}+\text{Co})$ 比率與碳材料比率係固定，而鐵材料比率在係在從 0.1 wt% 至 7.0 wt% 內變化之陽極活性材料，即如同實施例 29-1 至 29-9 之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 47]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				半寬 度 (°)	初始充電 容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe					
實施例 42-1	29.6	50.3	20	0.1	29.3	49.8	19.8	0.1	4.8	500	112	80	71
實施例 42-2	29.5	50.3	20	0.2	29.2	49.8	19.8	0.2	4.8	496	112	80	71
實施例 42-3	29.5	50.2	20	0.3	29.2	49.7	19.8	0.3	4.8	494	111	80	72
實施例 38-5	29.3	49.9	20	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	4.8	493	111	82	74
實施例 42-4	29.2	49.8	20	1.0	28.9	49.3	19.8	1.0	4.8	490	111	83	75
實施例 42-5	28.5	48.5	20	3.0	28.2	48.0	19.8	3.0	4.8	487	110	84	76
實施例 42-6	27.8	47.3	20	5.0	27.5	46.8	19.8	5.0	4.8	479	108	83	77
實施例 42-7	27.4	46.6	20	6.0	27.1	46.2	19.8	5.9	4.8	453	104	81	78
實施例 42-8	27.2	46.3	20	6.5	26.9	45.8	19.8	6.4	4.8	441	102	81	79
實施例 42-9	27.0	46.0	20	7.0	26.7	45.5	19.8	6.9	4.8	403	97	78	80

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，測量實施例 42-1 至 42-9 之二次電池之充電容量及循環特徵。表 47 及圖 31 顯示測量結果。

從表 47 及圖 31 明顯看出，獲得與實施例 29-1 至 29-9 之情況中相同之結果。換言之，得出結論，若鐵含量在係在從 0.4 wt% 至 5.9 wt% 內，則即便使用該凝膠電解質，亦可提高該容量及該等循環特徵。

(實施例 43-1 至 43-11)

如同實施例 38-1 至 38-7 之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係如表 48 所示，使用矽粉末材料比率在係在從

0.3 wt%至10 wt%內變化而Co/(Sn+Co)比率、鐵材料比率及碳材料比率係固定之陽極活性材料，即如同使用實施例30-1至30-11之情況一樣合成的陽極活性材料。

如同實施例23-1至23-7之情況一樣，測量實施例43-1至43-11之所獲得的二次電池之初始充電容量及循環特徵。表49中顯示測量結果。

[表 48]

	材料比率 (WT%)						分析值 (WT%)					
	Co	Sn	C	Fe	Si	Sn+Si	Co	Sn	C	Fe	Si	Sn+Si
實施例38-5	29.3	49.9	20.0	0.8	0	49.9	29.0	49.4	19.8	0.8	0	49.4
實施例43-1	29.2	49.7	20.0	0.8	0.3	50.0	28.9	49.2	19.8	0.8	0.3	49.5
實施例43-2	29.1	49.6	20.0	0.8	0.5	50.1	28.8	49.1	19.8	0.8	0.5	49.6
實施例43-3	28.9	49.3	20.0	0.8	1.0	50.3	28.6	48.8	19.8	0.8	1.0	49.8
實施例43-4	28.6	48.6	20.0	0.8	2.0	50.6	28.3	48.1	19.8	0.8	2.0	50.1
實施例43-5	27.8	47.4	20.0	0.8	4.0	51.4	27.5	46.9	19.8	0.8	4.0	50.9
實施例43-6	27.1	46.1	20.0	0.8	6.0	52.1	26.8	45.7	19.8	0.8	5.9	51.6
實施例43-7	26.7	45.5	20.0	0.8	7.0	52.5	26.4	45.0	19.8	0.8	6.9	52.0
實施例43-8	26.3	44.9	20.0	0.8	8.0	52.9	26.1	44.4	19.8	0.8	7.9	52.3
實施例43-9	26.2	44.5	20.0	0.8	8.5	53.0	25.9	44.1	19.8	0.8	8.4	52.5
實施例43-10	26.0	44.2	20.0	0.8	9.0	53.2	25.7	43.8	19.8	0.8	8.9	52.7
實施例43-11	25.6	43.6	20.0	0.8	10.0	53.6	25.3	43.2	19.8	0.8	9.9	53.1

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 37wt\%$$

[表 49]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放 電容量 (mAh/cm ³)	第300循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	容量保持比率 (%)
實施例38-5	492	111	82	74
實施例43-1	493	112	81	72
實施例43-2	499	115	81	70
實施例43-3	517	116	80	69
實施例43-4	528	117	78	67
實施例43-5	542	118	78	66
實施例43-6	557	122	79	65
實施例43-7	573	125	79	63
實施例43-8	583	126	73	58
實施例43-9	599	126	51	40
實施例43-10	620	129	30	23
實施例43-11	646	131	16	12

從表 48 及 49 明顯看出，獲得與實施例 30-1 至 30-11 之情況相同之結果。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，當該陽極活性材料中包括矽時，亦可提高容量，而該矽含量較佳的係在從 0.5 wt% 至 7.9 wt% 內。

(實施例 44-1 至 44-10)

如同實施例 38-1 至 38-7 之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係如表 50 所示，使用鈦材料比率在係在從 0 wt% 至 16 wt% 內變化，而 Co/(Sn+Co) 比率、鐵材料比率及碳材料比率係固定之陽極活性材料，即如同實施例 31-1 至 31-10 之情況一樣合成的陽極活性材料。

[表 50]

	材料比率 (WT%)					分析值 (WT%)					初始充電 容量 (mAh/g)	第二循環的 放電容量 (mAh/cm ³)	第300循環 的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保 持比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Ti	Co	Sn	C	Fe	Ti				
實施例 44-1	27.7	51.5	20.0	0.8	0	27.4	51.0	19.8	0.8	0	499	111	80	72
實施例 44-2	27.3	50.7	20.0	0.8	1.2	27.0	50.2	19.8	0.8	1.2	514	114	83	73
實施例 44-3	26.9	49.9	20.0	0.8	2.4	26.6	49.4	19.8	0.8	2.4	523	116	93	80
實施例 44-4	26.3	48.9	20.0	0.8	4.0	26.1	48.4	19.8	0.8	4.0	527	117	100	86
實施例 44-5	25.9	48.2	20.0	0.8	5.1	25.7	47.7	19.8	0.8	5.0	534	117	102	87
實施例 44-6	25.1	46.6	20.0	0.8	7.5	24.8	46.1	19.8	0.8	7.4	540	118	102	87
實施例 44-7	24.2	45.0	20.0	0.8	10.0	24.0	44.5	19.8	0.8	9.9	537	117	103	88
實施例 44-8	23.2	43.0	20.0	0.8	13.0	22.9	42.6	19.8	0.8	12.9	531	114	98	86
實施例 44-9	22.5	41.7	20.0	0.8	15.0	22.2	41.3	19.8	0.8	14.9	508	112	92	82
實施例 44-10	22.1	41.1	20.0	0.8	16.0	21.9	40.7	19.8	0.8	15.8	469	103	72	70

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，測量實施例 44-1 至 44-10 之所獲得的二次電池之初始充電容量及循環特徵。表 50 及圖 32 顯示測量結果。

從表 50 及圖 32 明顯看出，獲得與實施例 31-1 至 31-10 之情況中相同之結果。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，當該陽極活性材料中包括鈦在範圍 14.9 wt% 或更低時，亦可進一步改進該等循環特徵，而鈦含量更佳的係在範圍為 2.4 wt% 或更高，而更佳的係在從 4.0 wt% 至 12.9 wt% 內。

(實施例 45-1 至 45-8)

如同實施例38-1至38-7之情況一樣，形成二次電池，不同之處僅係如表51所示，使用鈦及錫材料比率在係在從0 wt%至10.0 wt%內變化，而Co/(Sn+Co)比率、鐵材料比率、碳材料比率及矽材料比率係固定之陽極活性材料，即如同實施例34-1至34-8之情況一樣合成的陽極活性材料。

如同實施例23-1至23-7之情況一樣，測量實施例45-1至45-8之二次電池之初始充電容量及循環特徵。表52中顯示測量結果。

[表 51]

	材料比率 (WT%)							分析值 (WT%)						
	Co	Sn	C	Fe	Si	Ti	In	Co	Sn	C	Fe	Si	Ti	In
實施例44-1	27.7	51.5	20.0	0.8	—	—	—	27.4	51.0	19.8	0.8	—	—	—
實施例45-1	27.4	50.8	18.0	0.8	3.0	—	—	27.1	50.3	17.8	0.8	3.0	—	—
實施例45-2	26.0	48.2	18.0	0.8	3.0	4.0	—	25.7	47.7	17.8	0.8	3.0	4.0	—
實施例45-3	25.6	47.5	18.0	0.8	3.0	5.1	—	25.3	47.0	17.8	0.8	3.0	5.0	—
實施例45-4	24.7	46.0	18.0	0.8	3.0	7.5	—	24.5	45.5	17.8	0.8	3.0	7.4	—
實施例45-5	26.0	48.2	18.0	0.8	3.0	2.6	1.4	25.7	47.7	17.8	0.8	3.0	2.6	1.4
實施例45-6	25.6	47.5	18.0	0.8	3.0	3.7	1.4	25.3	47.0	17.8	0.8	3.0	3.7	1.4
實施例45-7	24.7	46.0	18.0	0.8	3.0	6.1	1.4	24.5	45.5	17.8	0.8	3.0	6.0	1.4
實施例45-8	23.9	44.3	18.0	0.8	3.0	8.6	1.4	23.6	43.9	17.8	0.8	3.0	8.4	1.4

$$\frac{Co}{Sn + Co} = 35wt\%$$

[表 52]

	初始充電容量 (mAh/g)	第二循環的放電 容量 (mAh/cm ³)	第300循環的放電 容量 (mAh/cm ³)	容量保持 比率 (%)
實施例44-1	499	111	80	72
實施例45-1	532	118	79	67
實施例45-2	556	118	92	78
實施例45-3	562	119	95	80
實施例45-4	568	120	95	79
實施例45-5	555	119	95	80
實施例45-6	563	120	96	80
實施例45-7	562	120	97	81
實施例45-8	557	119	89	75

從表 51 及 52 明顯看出，獲得與實施例 34-1 至 34-8 之情況相同之結果。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，當該陽極活性材料中包括從鈦、鉬、鈮、鋁、鍺、銻、鎳、磷及鈹組成的群組中選取之至少一類元件與矽時，可進一步提高容量而改善循環特徵。

(實施例 46-1 至 46-3)

如同實施例 38-5 之情況一樣形成二次電池，不同之處係使用其中 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單、乙烯碳酸酯及丙烯碳酸酯係以 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單：乙烯碳酸酯：丙烯碳酸酯 = 1:10.5:11.5、5:6.5:11.5 或 10:1.5:11.5 之質量比來混合之一溶劑。

如同實施例 23-1 至 23-7 之情況一樣，測量實施例 46-1 至 46-3 之二次電池之循環特徵。表 53 中顯示測量結果。

[表 53]

	材料比率 (WT%)				分析值 (WT%)				溶劑 (WT%)			容量保持 比率 (%)
	Co	Sn	C	Fe	Co	Sn	C	Fe	FEC	EC	PC	
實施例 38-5	29.3	49.9	20.0	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	0	11.5	11.5	74
實施例 46-1	29.3	49.9	20.0	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	1	10.5	11.5	76
實施例 46-2	29.3	49.9	20.0	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	5	6.5	11.5	85
實施例 46-3	29.3	49.9	20.0	0.8	29.0	49.4	19.8	0.8	10	1.5	11.5	91

EC： 乙烯碳酸酯 $\frac{Co}{Sn+Co} = 37wt\%$

PC： 丙烯碳酸酯

FEC： 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單

從表 53 明顯看出，在溶劑中使用 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之實施例 46-1 至 46-3 中，與不使用 4-氟-1,3-二氧戊環-2-單之實施例 38-5 相比，可進一步提高容量保持比率。換言之，得出結論，即便使用該凝膠電解質，在該溶劑中包括一環狀碳酸酯而該環狀碳酸酯包括一鹵素原子之情況下，亦可進一步改善循環特徵。

雖然參考該具體實施例與各實施例而說明本發明，但是本發明不限於該等具體實施例而可進行各種修改。例如，在上述具體實施例及上述實施例中，參考具有一硬幣形狀、一薄片形狀及一螺旋纏繞結構的二次電池來說明本發明；但是，本發明可應用於具有任何其他形狀而使用一鈕扣形封裝部件、一棱鏡形封裝部件或類似者之二次電池以及具有層板結構(其中層壓複數個陰極及複數個陽極)之二

次電池。

此外，在該等具體實施例及該等實施例中，說明將鋰用作一電極反應物之情況；但是，本發明可應用於使用下列任何其他材料之情況：元件循環表長式的群組1元件，例如鈉(Na)或鉀(K)；元件循環表長式的一群組2元件，例如錳或鈣(Ca)；其他輕金屬(例如鋁)或一包括鋰或任何上述材料之合金，只要該等材料能與該陽極活性材料反應即可，且能獲得相同的效果。此時，依據該電極反應物來選取能夠插入並擷取該電極反應物、非水性溶劑或類似者之一陰極活性材料。

熟習此項技術人士應瞭解根據設計需求及其他因素，各種修正、組合、次組合及變更均可出現，只要其等係在隨附申請專利範圍或其等同者的範疇內。

【圖式簡單說明】

圖1為依據本發明之一具體實施例的二次電池之斷面圖；

圖2為圖1所示之二次電池內的螺旋纏繞電極體之部分放大斷面圖；

圖3為依據本發明之具體實施例的另一二次電池之分解透視圖；

圖4為沿圖3之線I-I所取的螺旋纏繞電極主體之斷面圖；

圖5為依據本發明之具體實施例的另一二次電池之斷面圖；

圖6為曲線圖，其顯示在藉由X射線光電子光譜法獲得之

實施例內形成的陽極活性材料之峰值實施例；

圖 7 為在一實施例中形成之硬幣型電池的斷面圖；

圖 8 為曲線圖，其顯示陽極活性材料內之碳含量、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 9 為曲線圖，其顯示在藉由 X 射線光電子光譜法獲得之比較實施例內形成的陽極活性材料之峰值實施例；

圖 10 為曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 11 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 12 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 13 為曲線圖，其顯示陽極活性材料內之鈦含量與容量保持比率間的關係；

圖 14 為曲線圖，其顯示陽極活性材料內之鈷含量與容量保持比率間的關係；

圖 15 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內之碳含量、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 16 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 17 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 18 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 19 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內之鈦含量與容量保持比率間的關係；

圖 20 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內之碳含量、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 21 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 22 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 23 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 24 為曲線圖，其顯示陽極活性材料內之鐵含量、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 25 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內之鈦含量與容量保持比率間的關係；

圖 26 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內之鈹含量與容量保持比率間的關係；

圖 27 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內之碳含量、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 28 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 29 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 30 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內的鈷對錫及鈷總量之比率、容量保持比率及初始充電容量間的關係；

圖 31 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內之鐵含量、容量保持比率及初始充電容量間的關係；以及

圖 32 為另一曲線圖，其顯示陽極活性材料內之鈦含量與容量保持比率間的關係。

【主要元件符號說明】

11	電池罐
12	絕緣板
13	絕緣板
14	電池蓋
15	安全閥機構
15A	圓盤狀板
16	PTC 裝置
17	墊片
20	螺旋纏繞電極體
21	陰極
21A	陰極電流集極
21B	陰極活性材料層
22	陽極
22A	陽極電流集極
22B	陽極活性材料層
23	分離器
24	中心銷
25	陰極引線
26	陽極引線

30	螺旋纏繞電極體
31	陰極引線
32	陽極引線
33	陰極
34	陽極
36	凝膠電解質層
40	封裝部件
61	測試電極
62	封裝部件
63	反電極
64	封裝部件
65	分離器
66	墊片

五、中文發明摘要：

本發明揭示一種具有高容量及優越循環特徵之電池，以及一種用於該電池內之陽極活性材料。陽極包括能夠與鋰發生反應之陽極活性材料。該陽極活性材料至少包括作為元件之錫、鈷及碳，且該碳含量係在從9.9 wt%至29.7 wt%，並且鈷對錫及鈷之總量的比率係在從30 wt%至70 wt%。從而，在保持高容量之同時，循環特徵得以改善。

六、英文發明摘要：

十一、圖式：

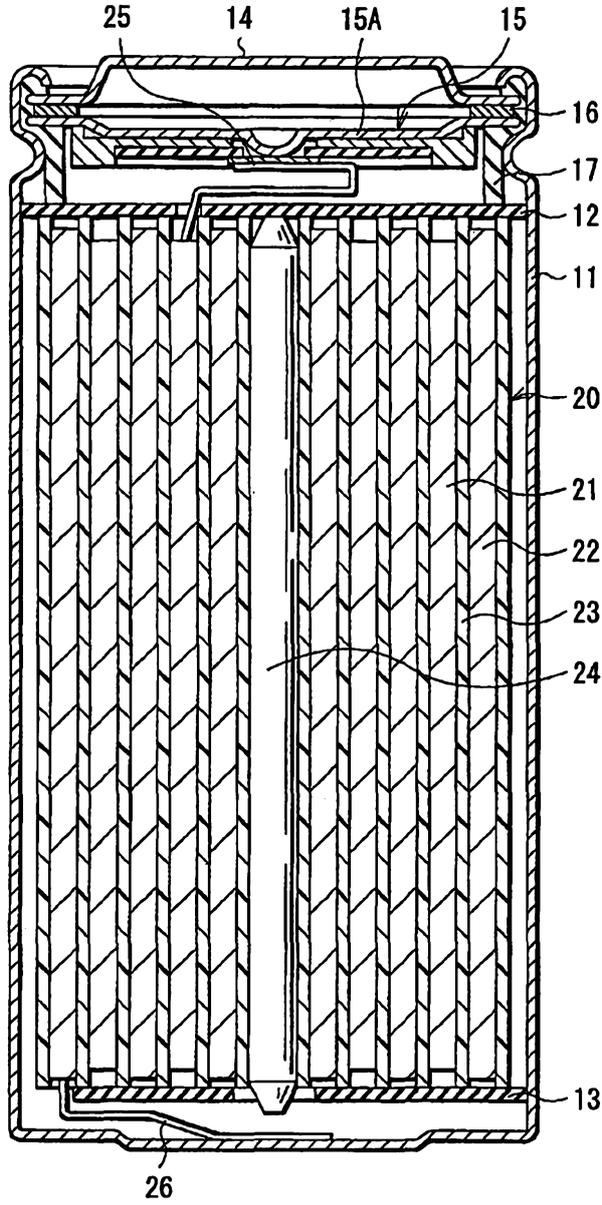


圖 1

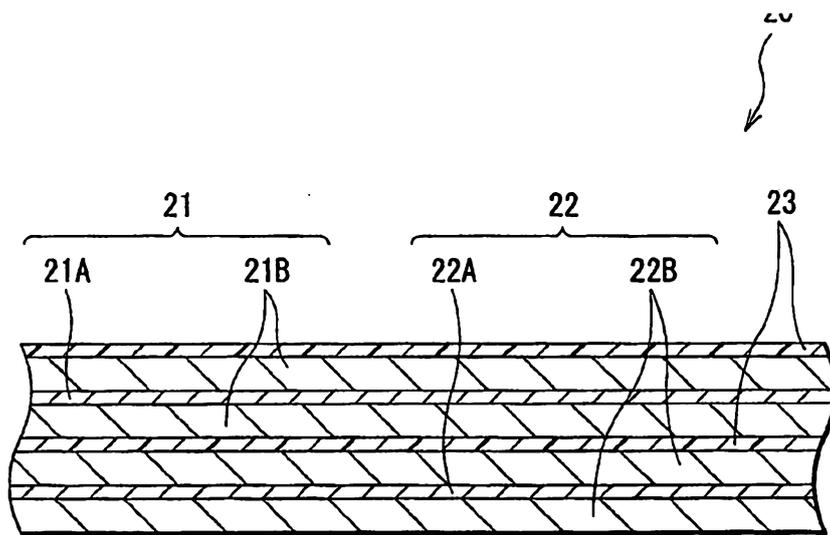


圖 2

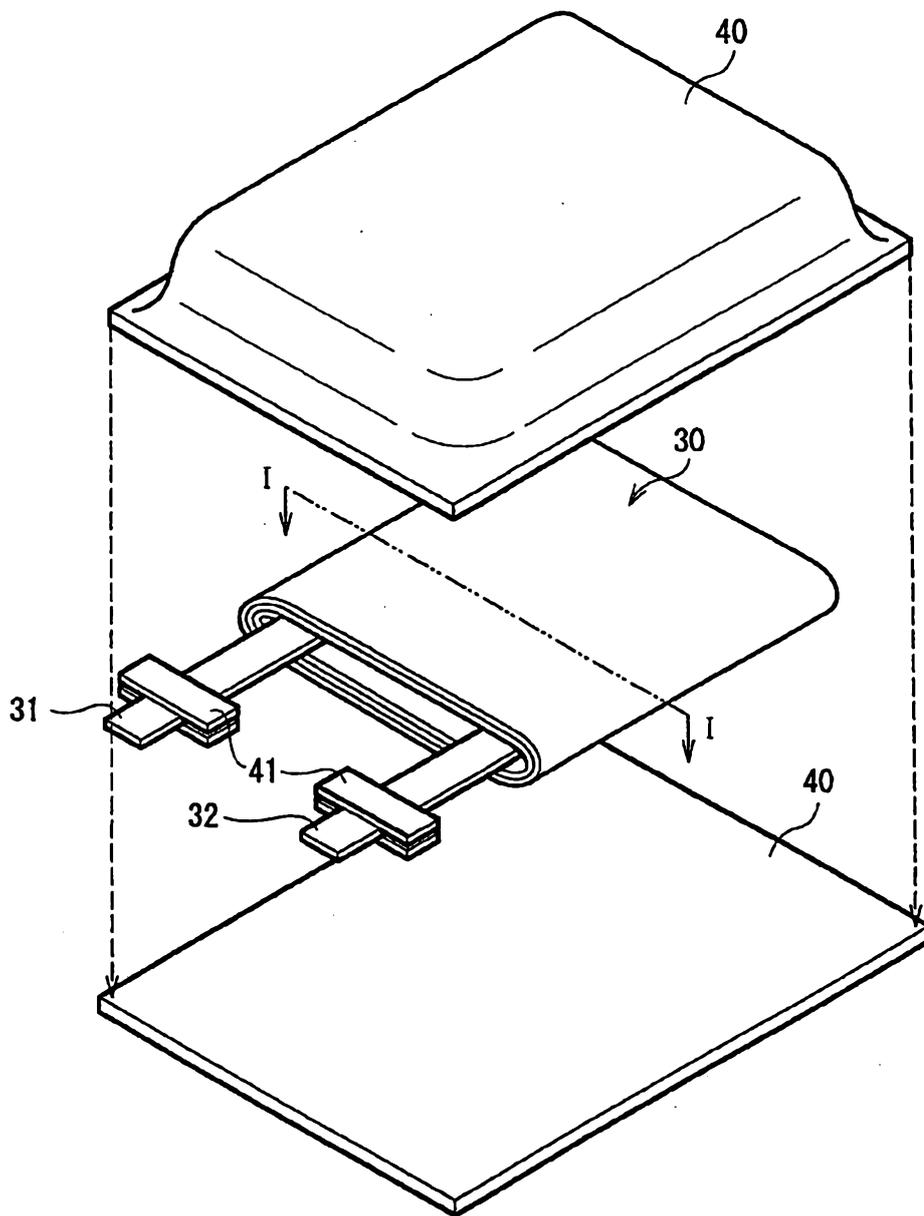


圖 3

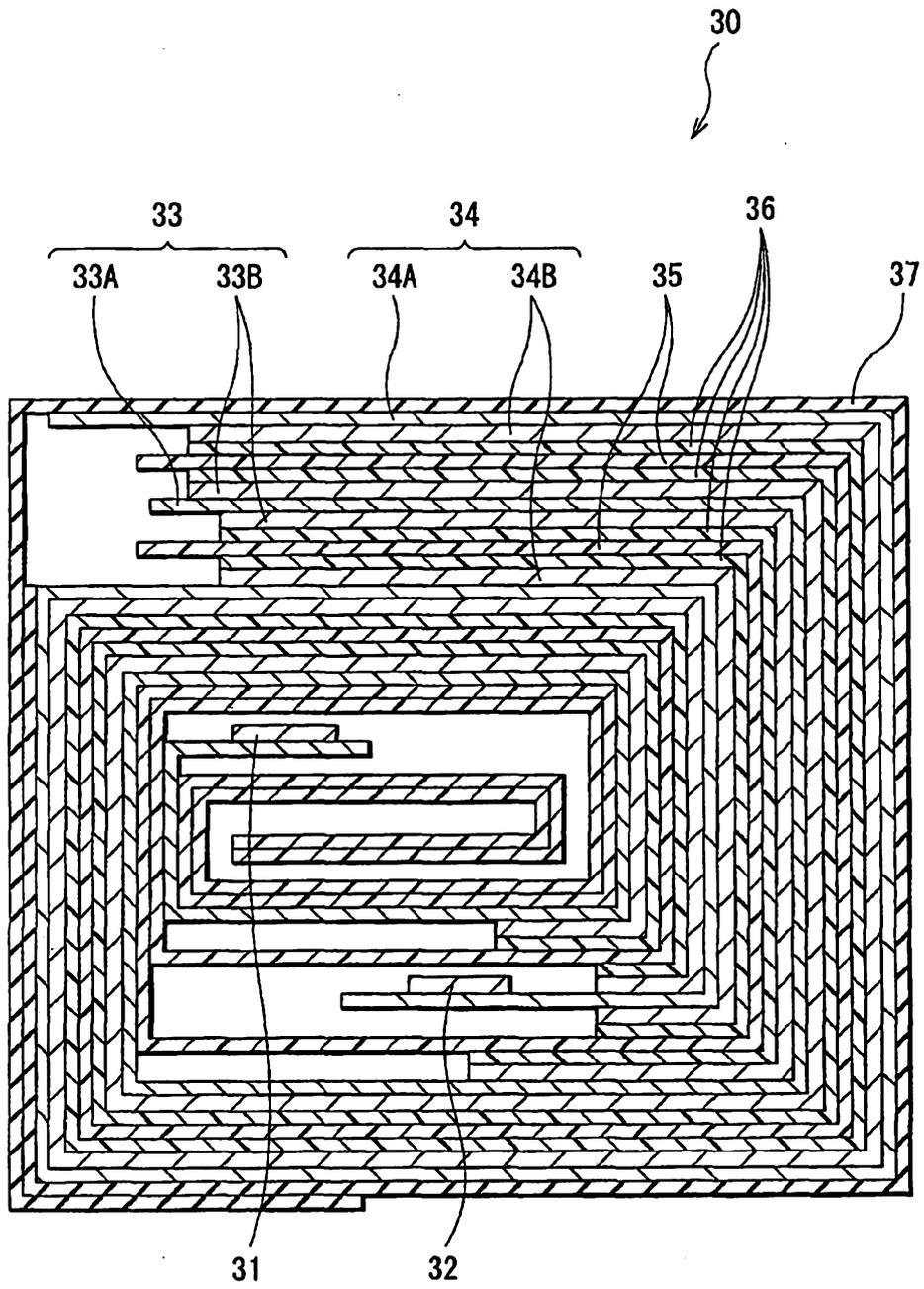


圖 4

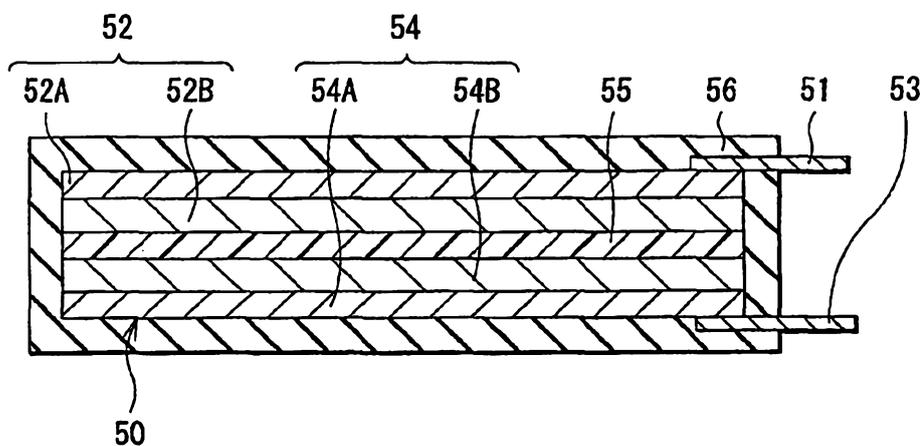


圖 5

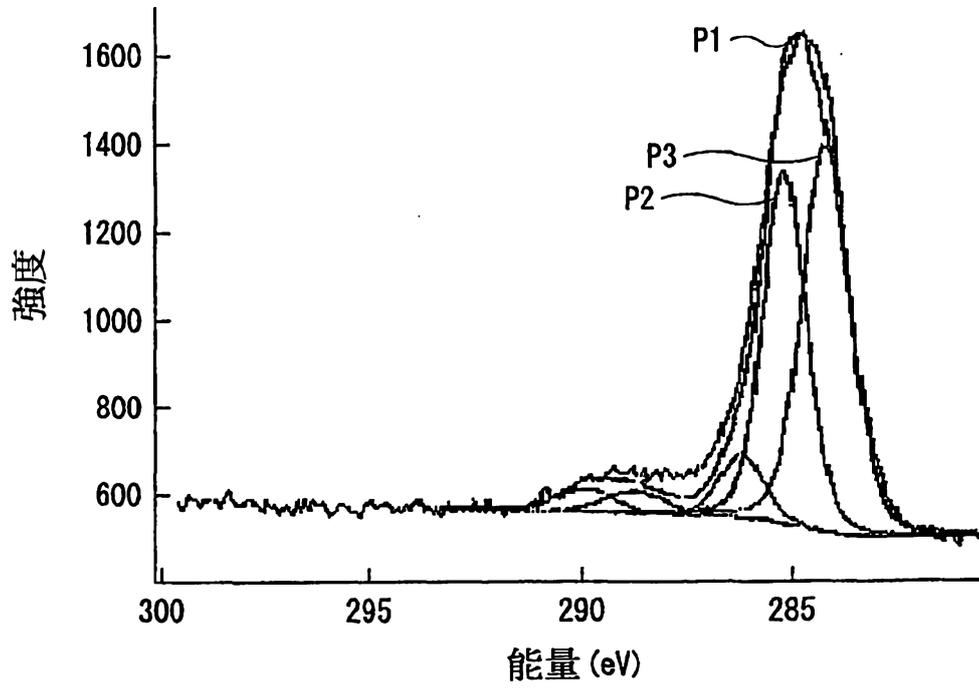


圖 6

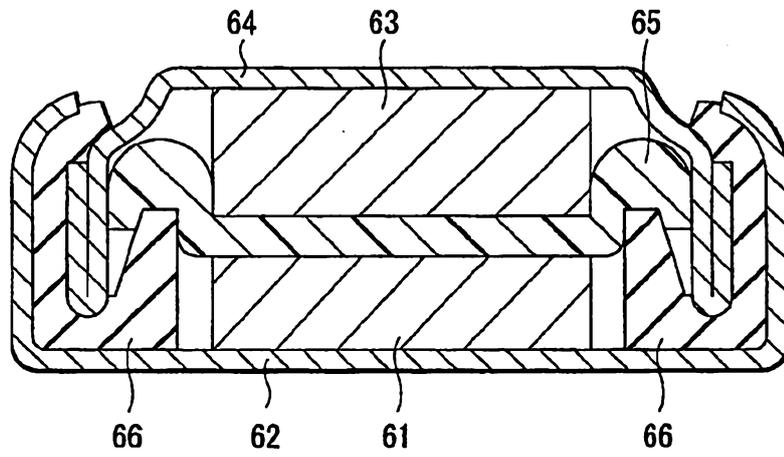


圖 7

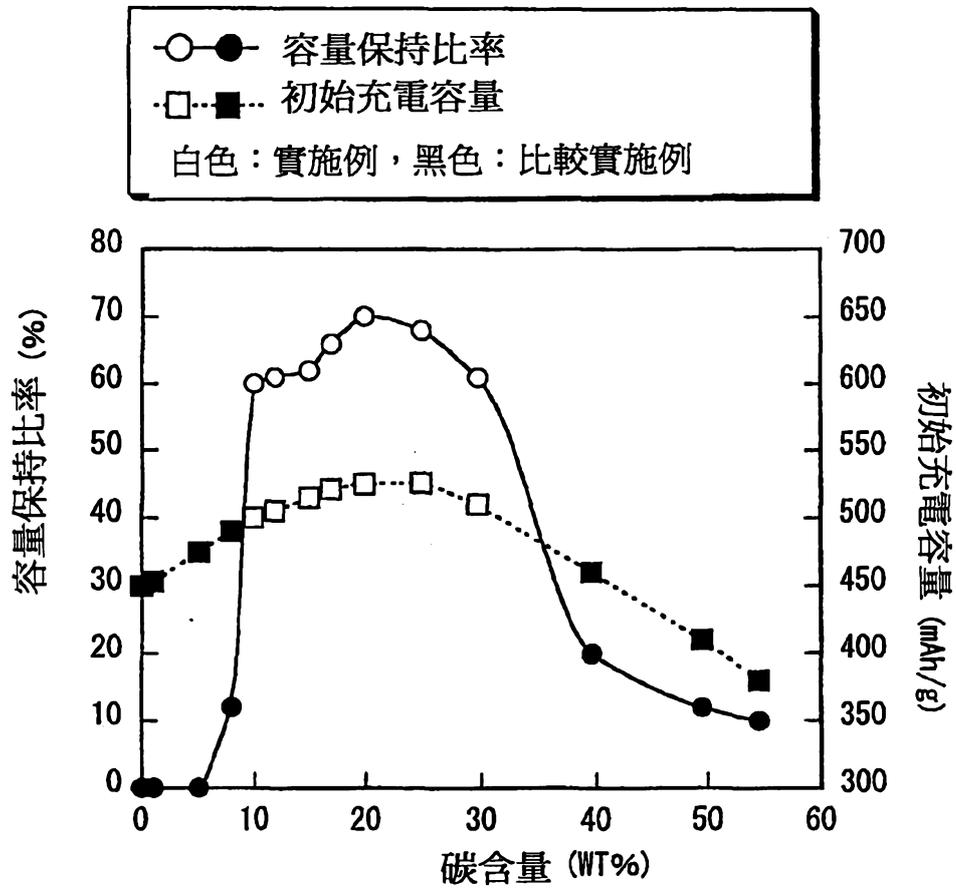


圖 8

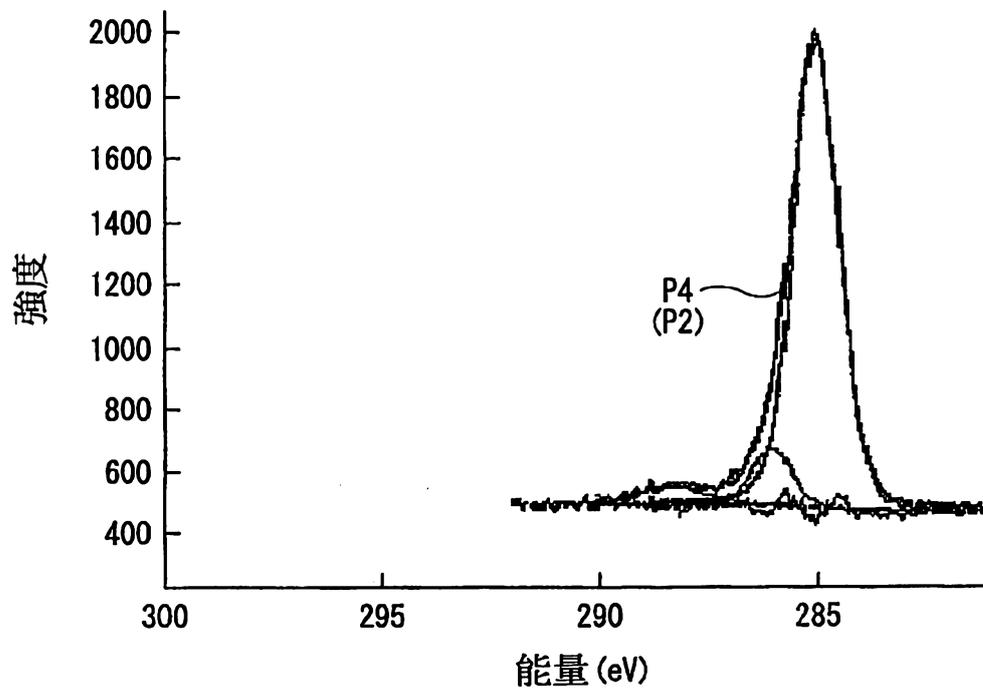


圖 9

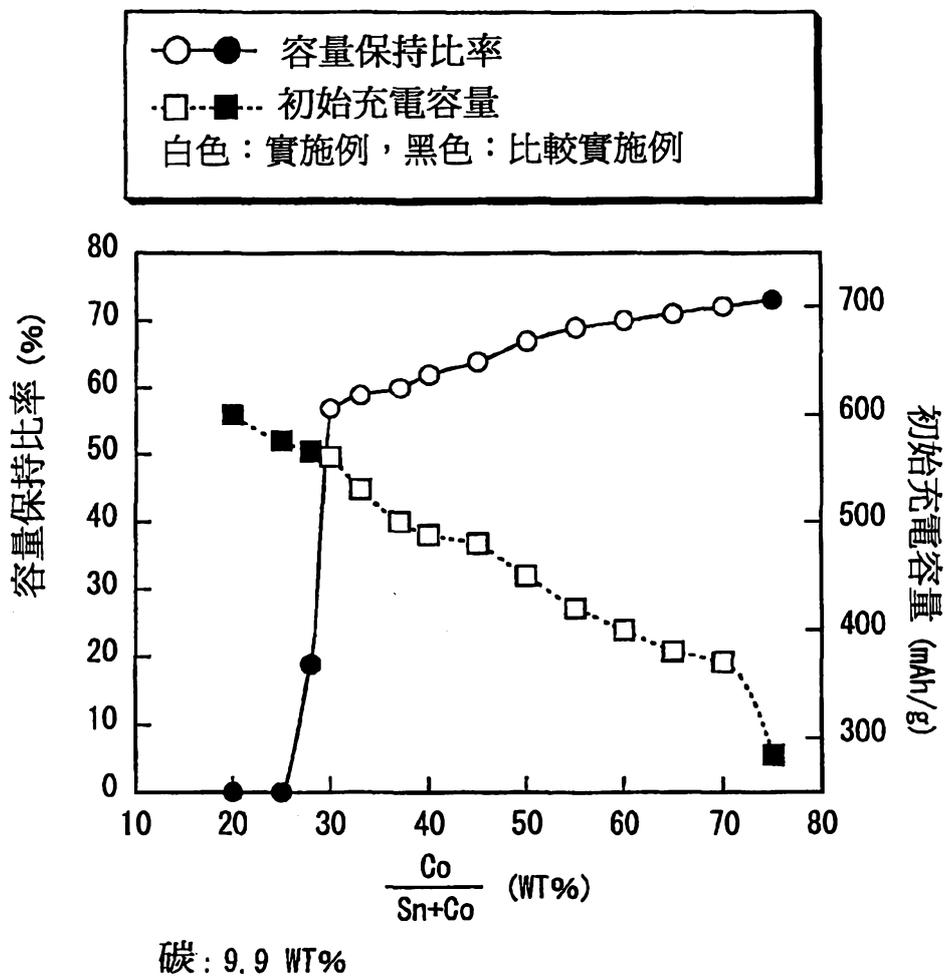


圖 10

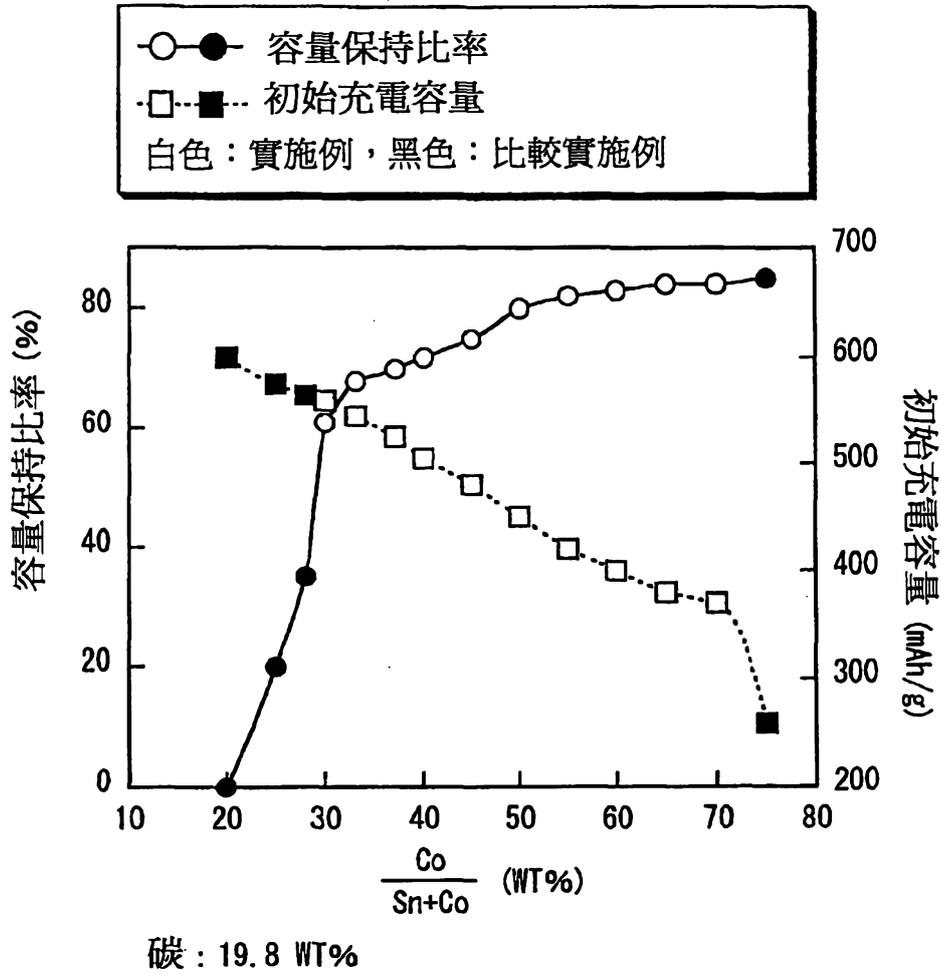


圖 11

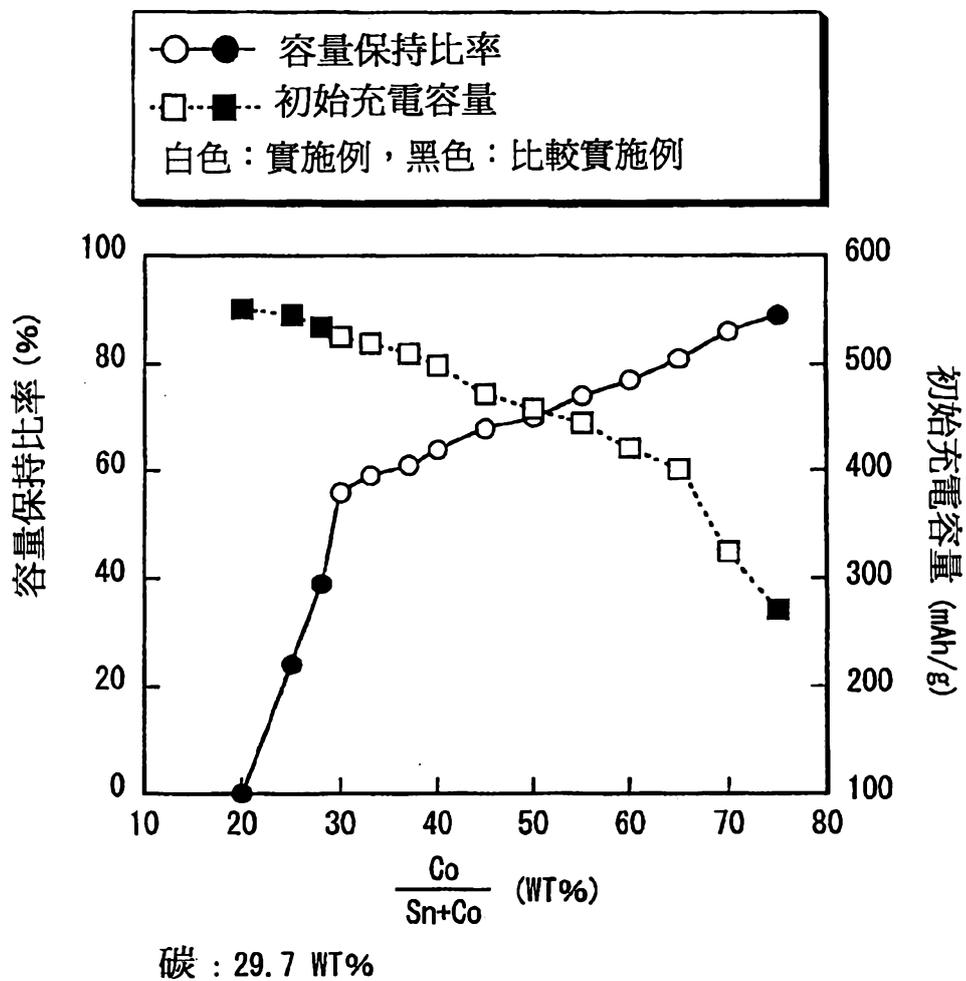


圖 12

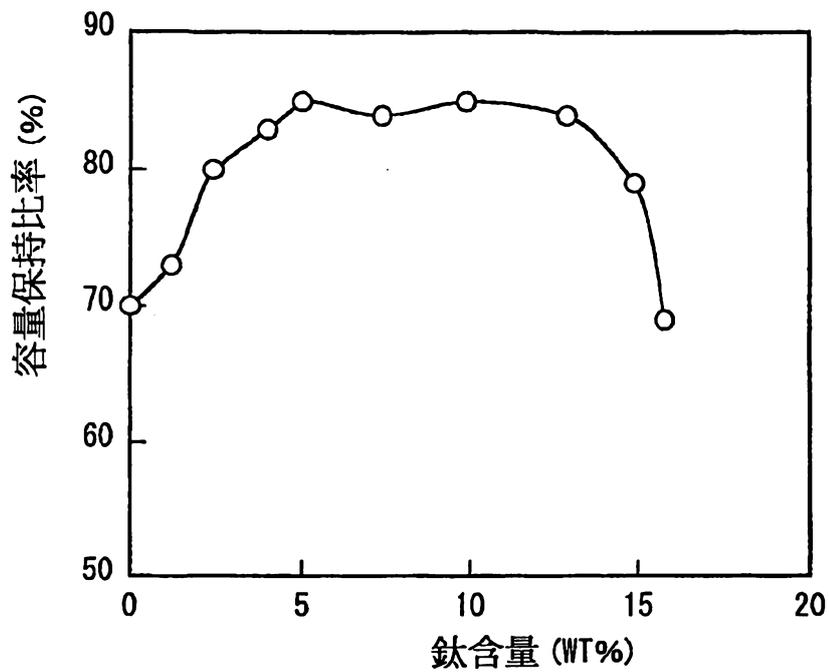


圖 13

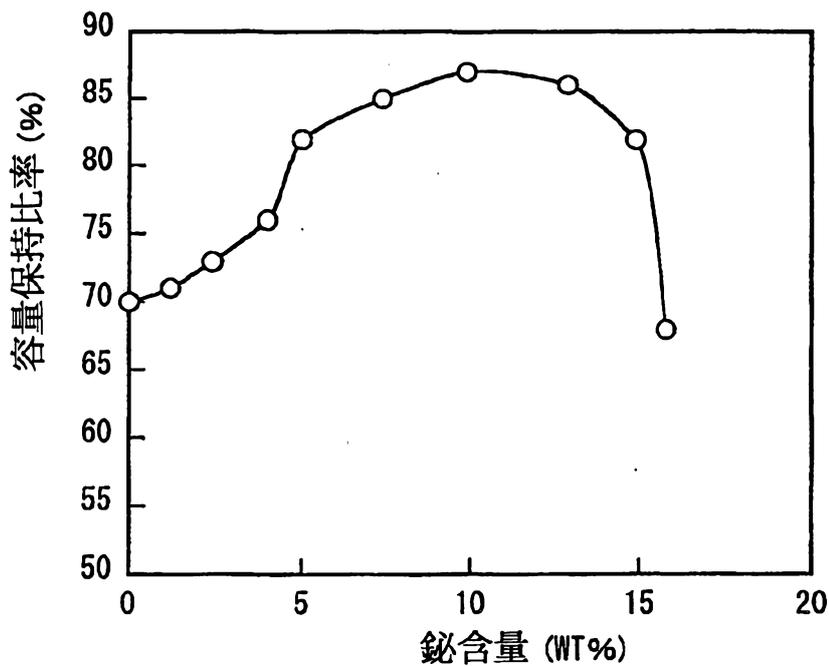


圖 14

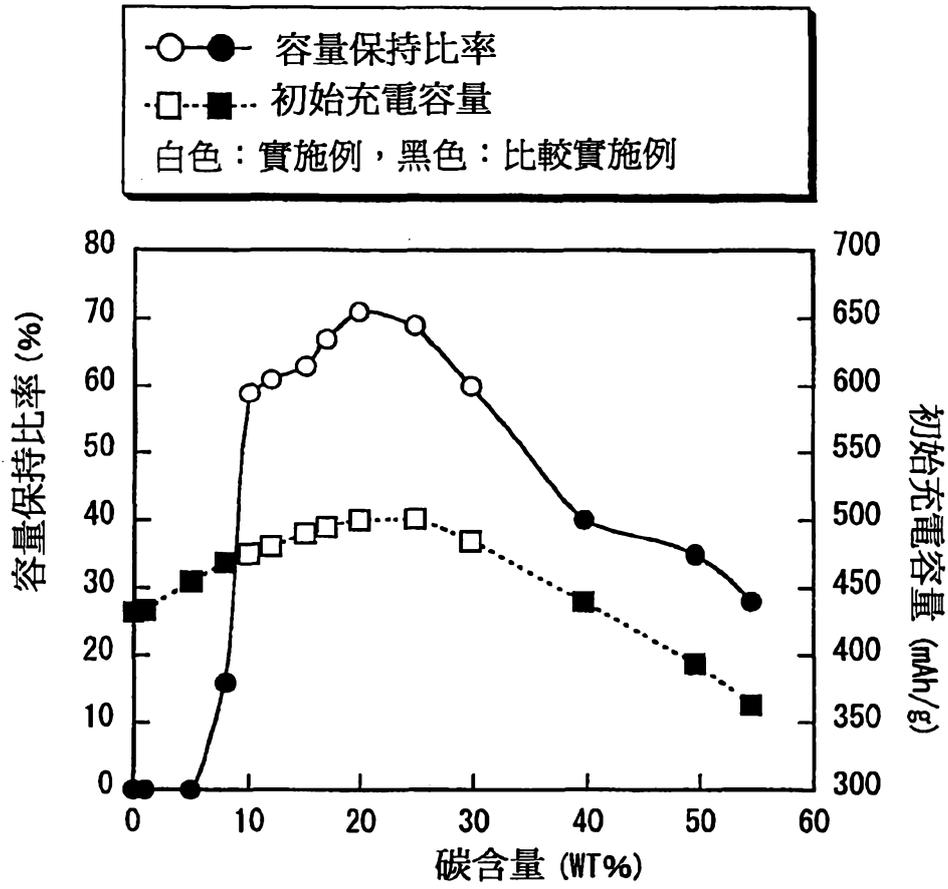


圖 15

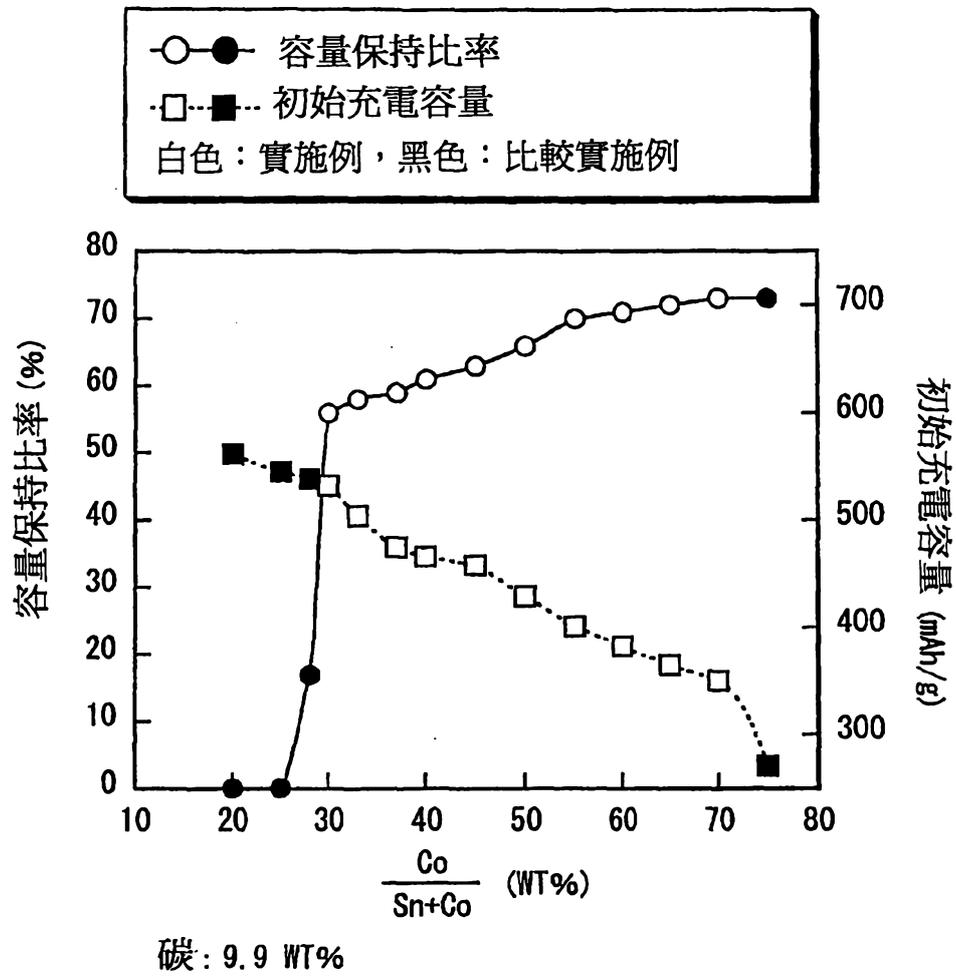


圖 16

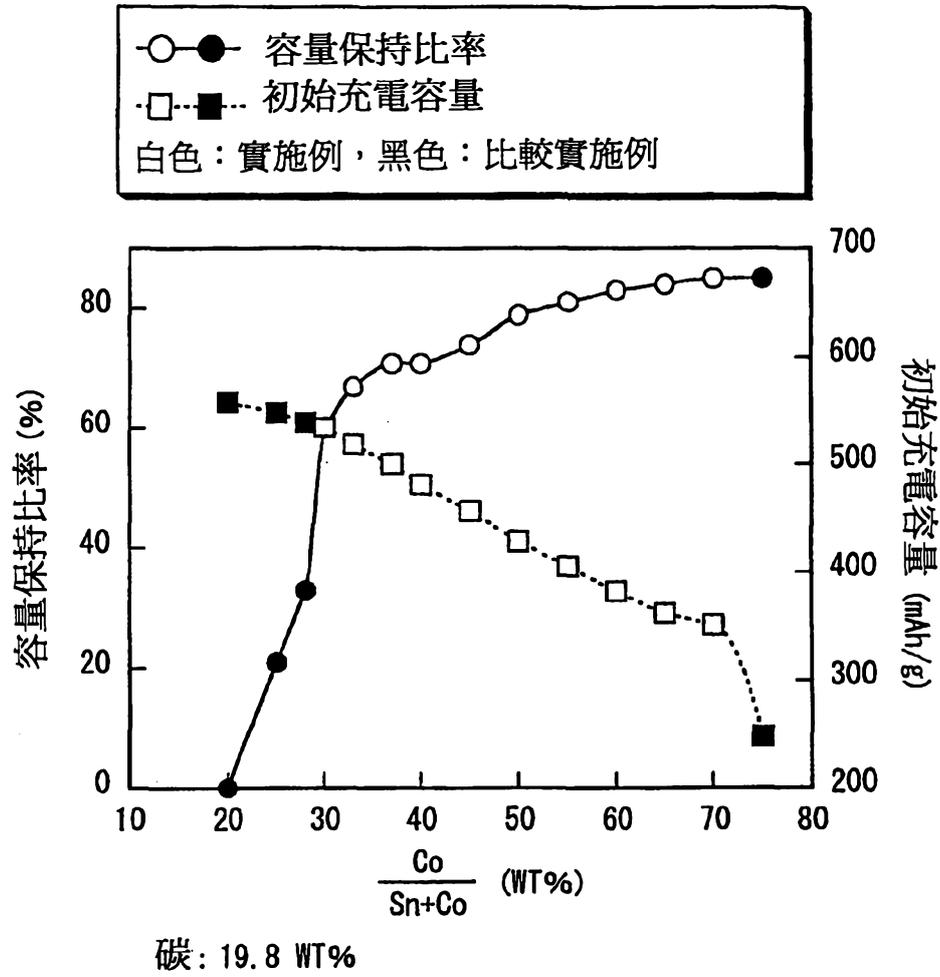


圖 17

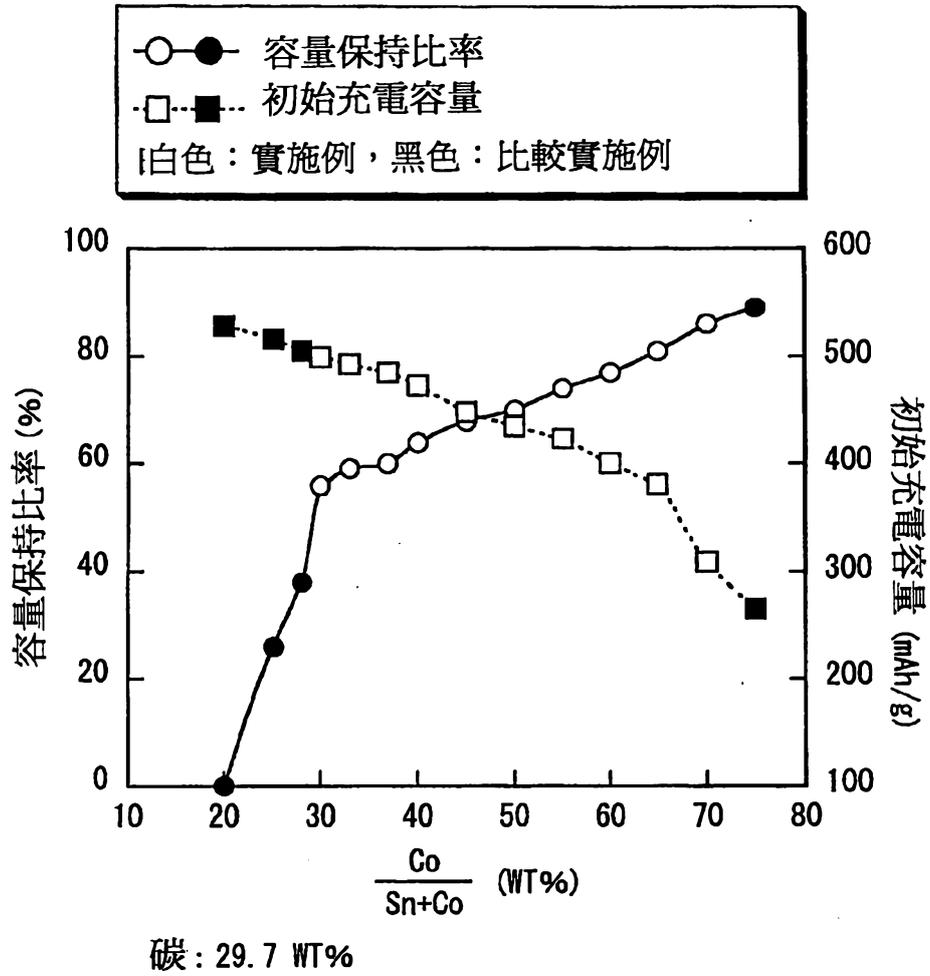


圖 18

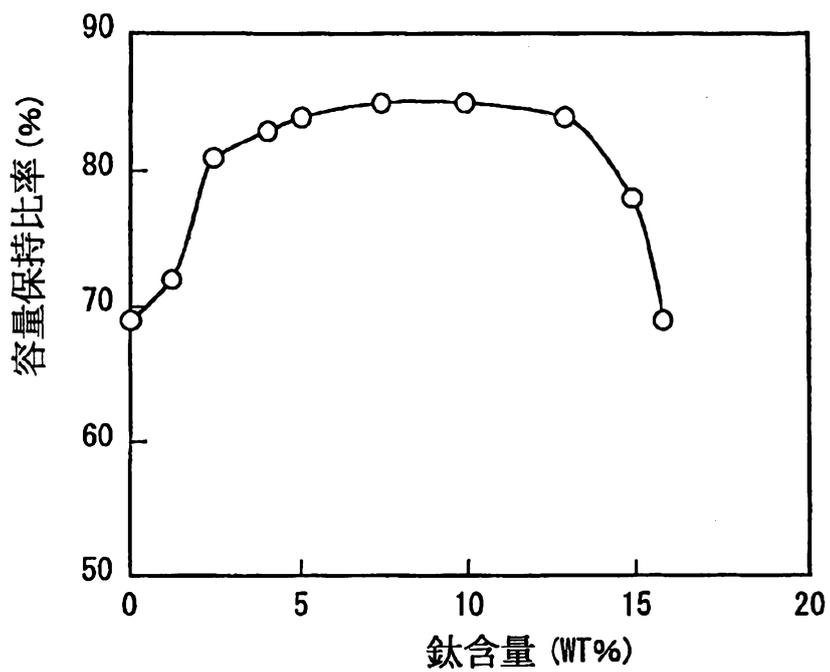


圖 19

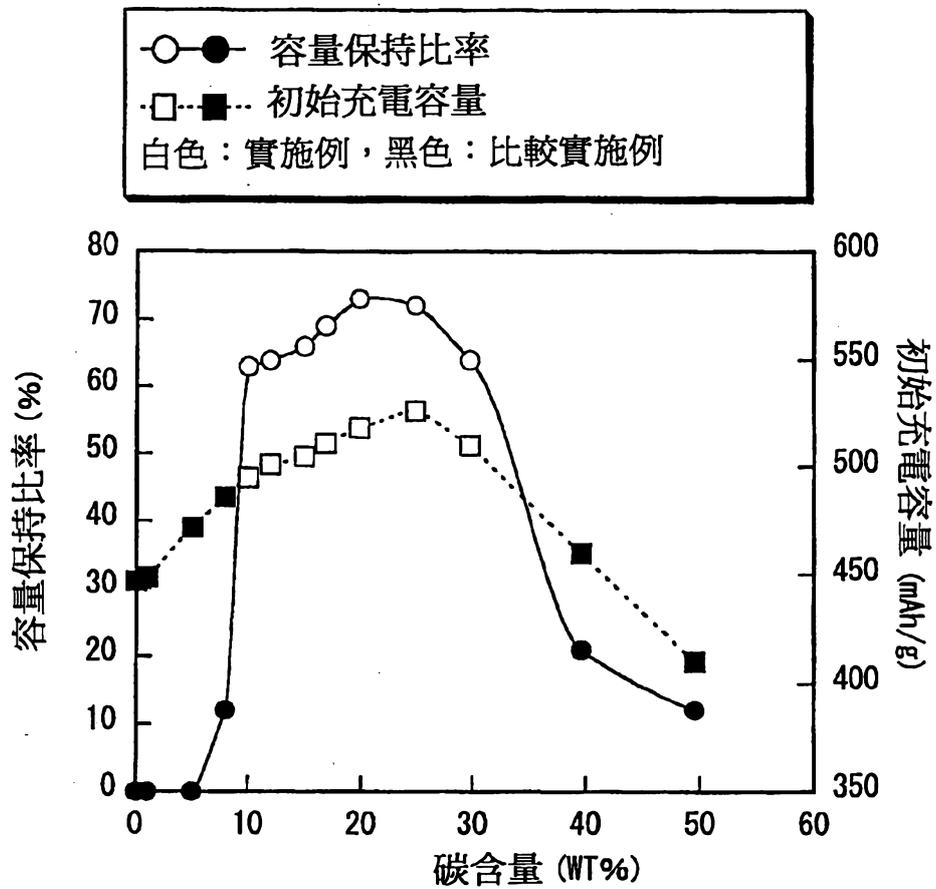


圖 20

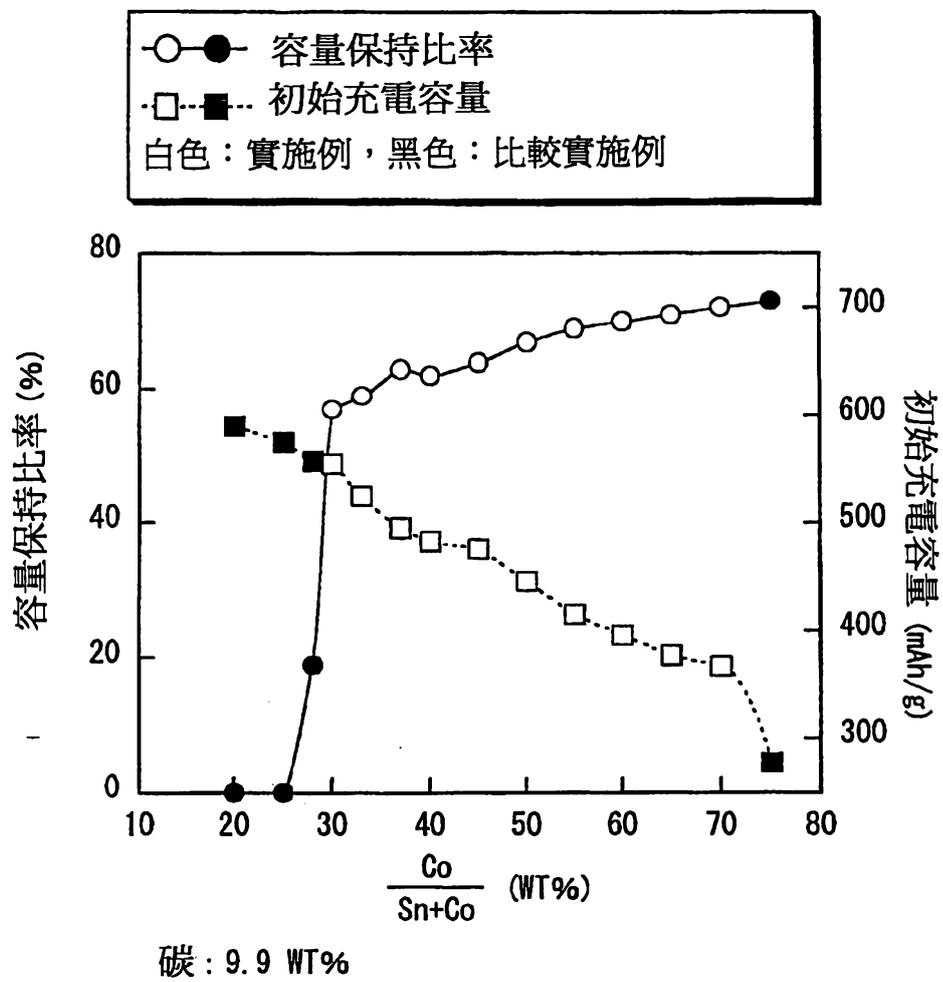


圖 21

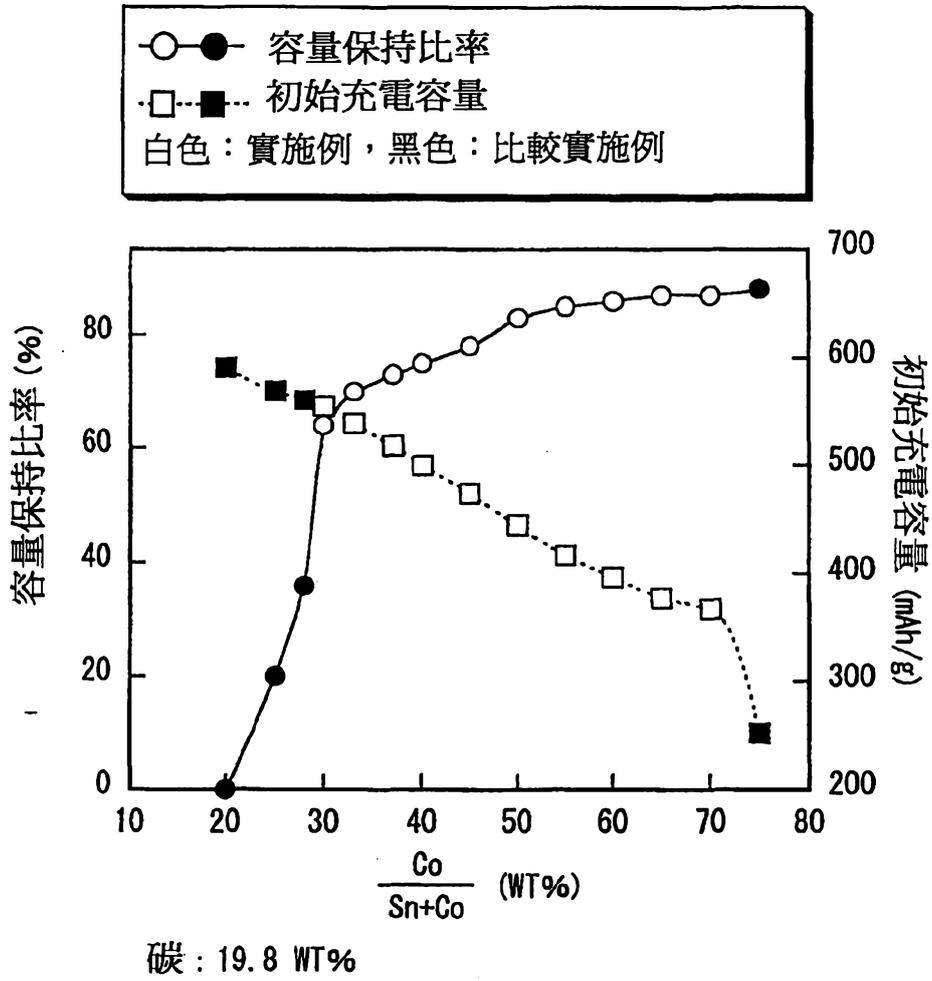


圖 22

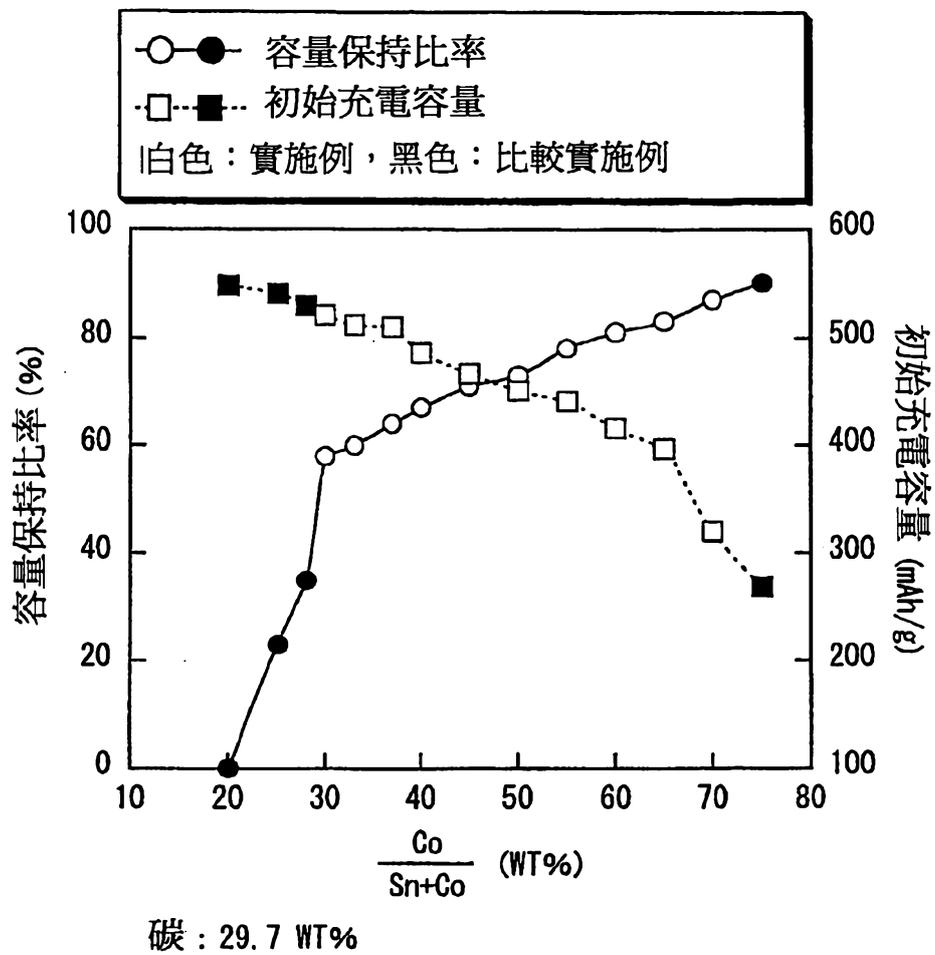


圖 23

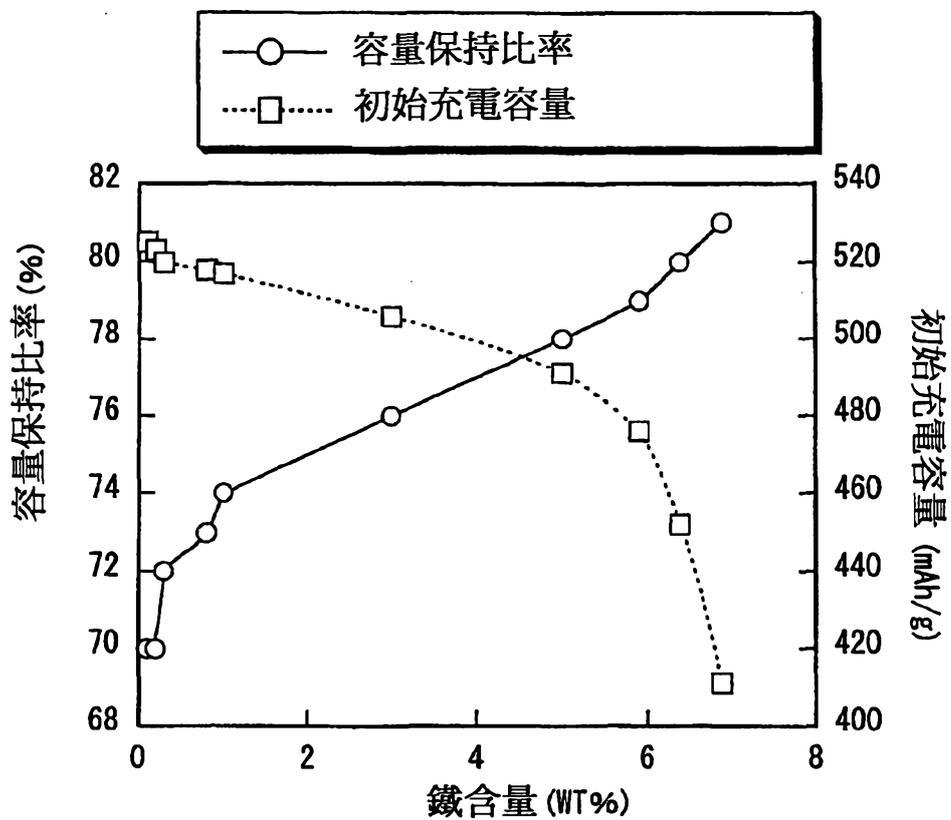


圖 24

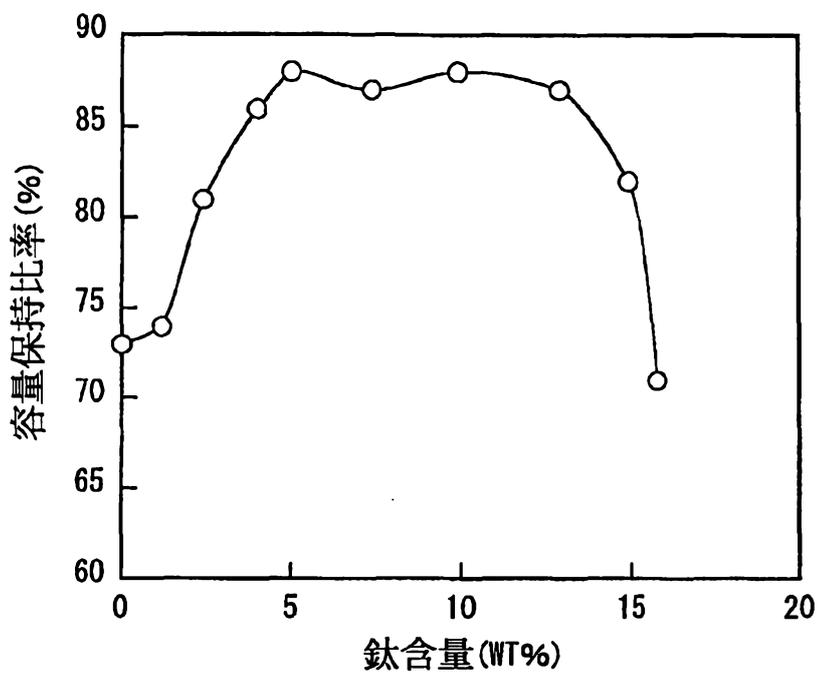


圖 25

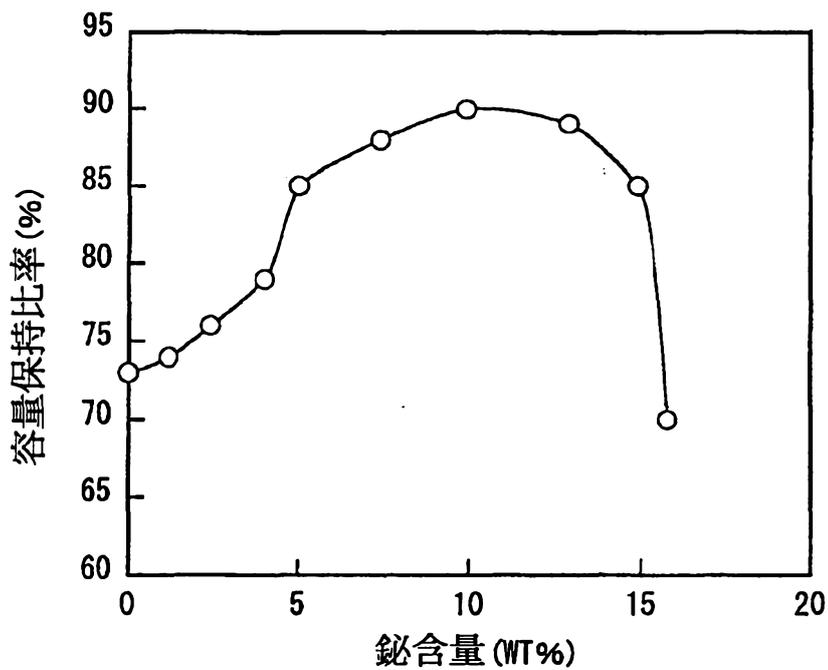


圖 26

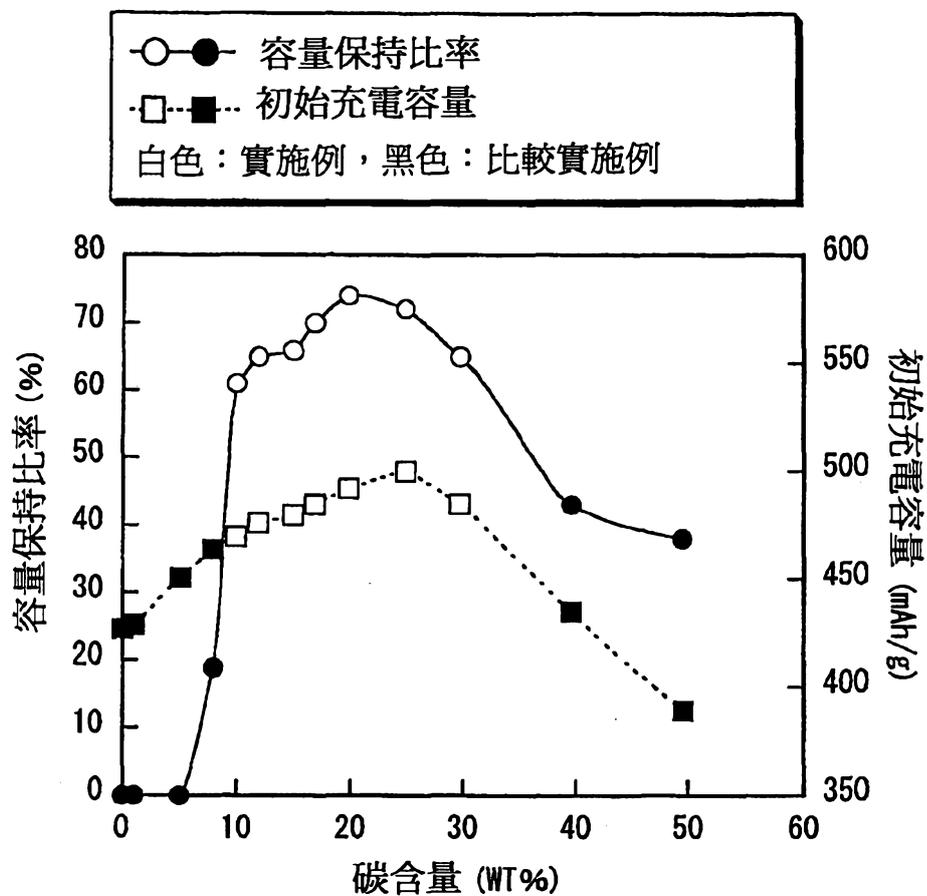


圖 27

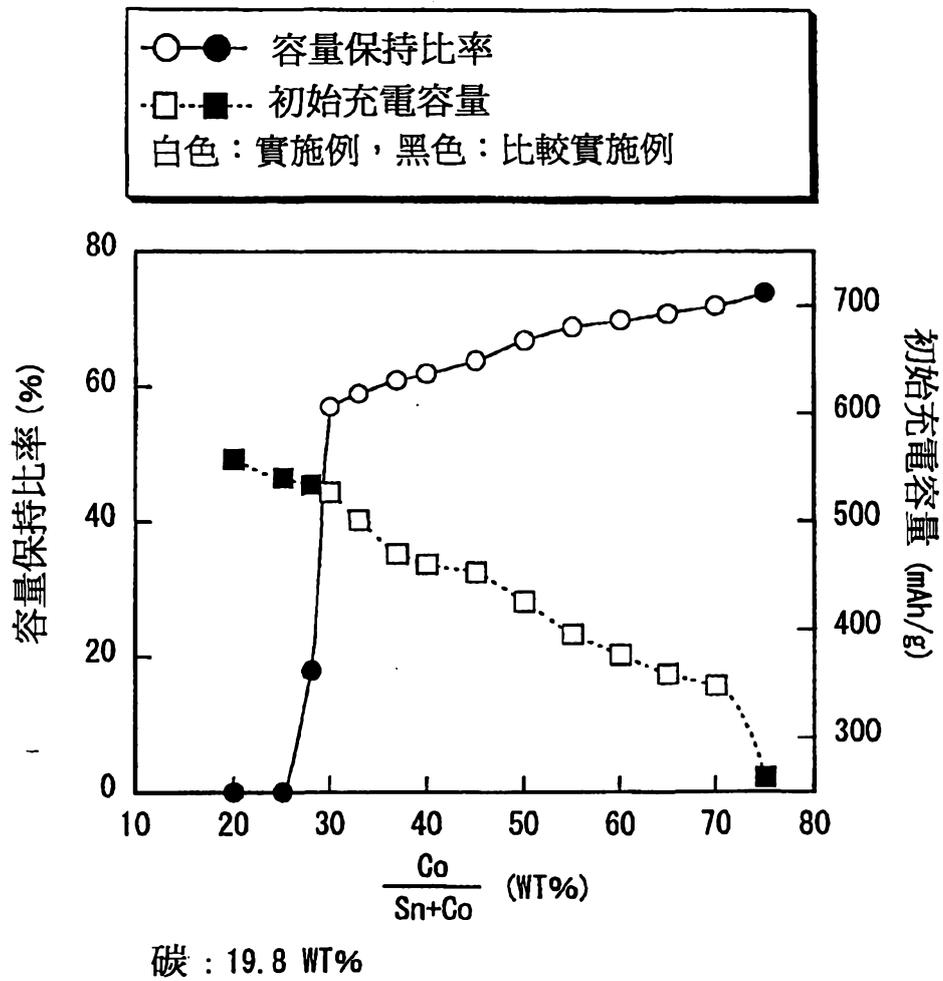


圖 28

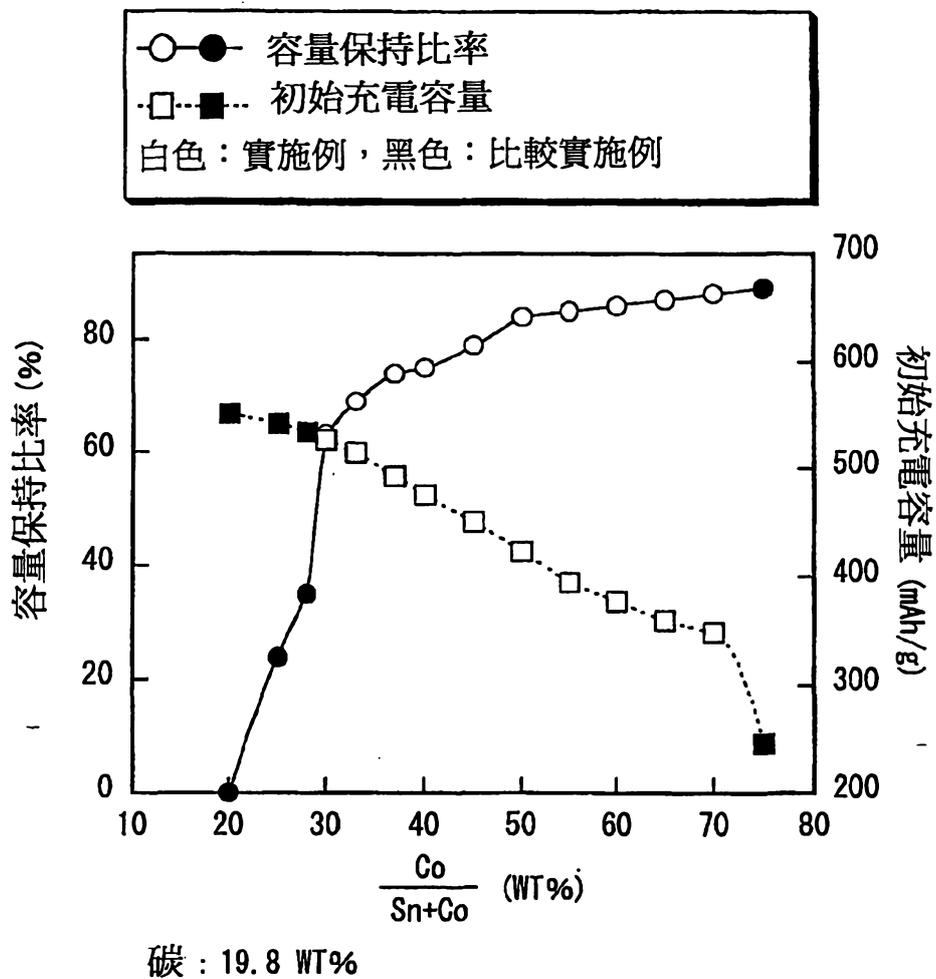


圖 29

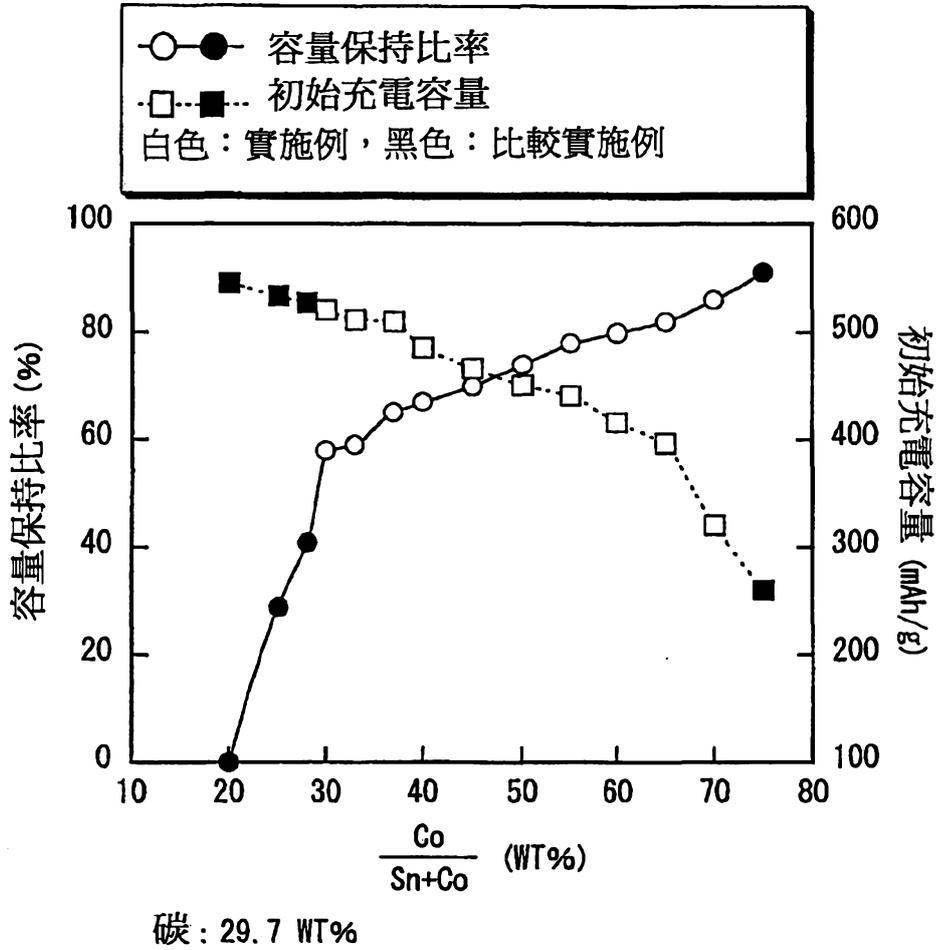


圖 30

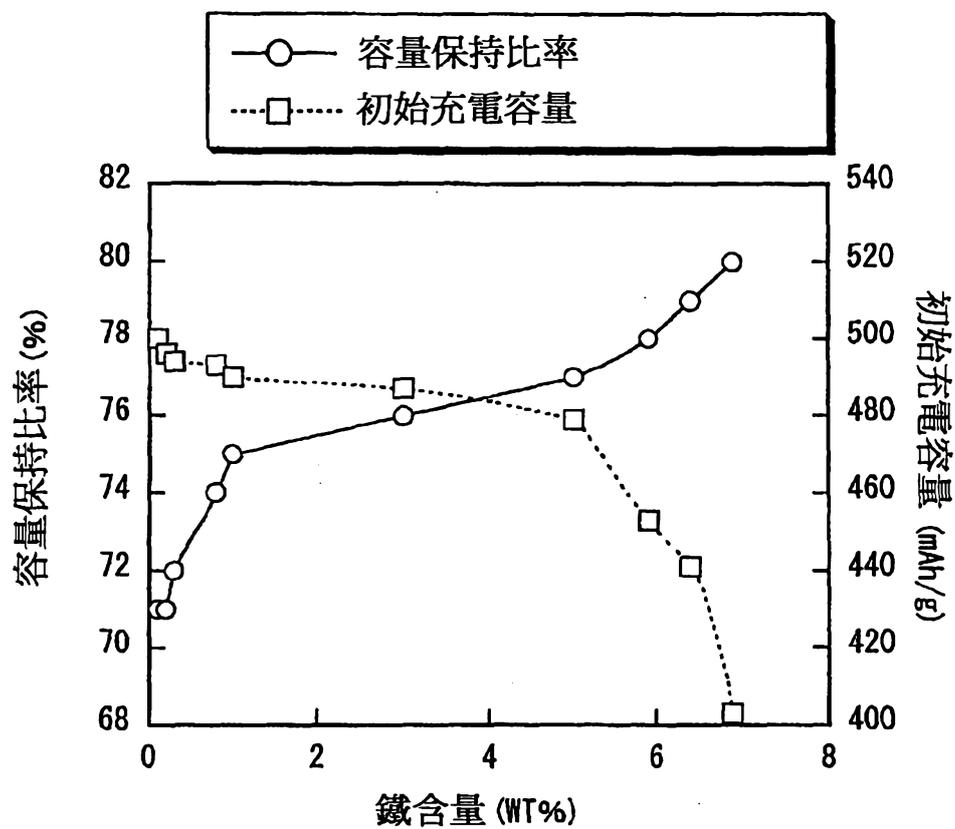


圖 31

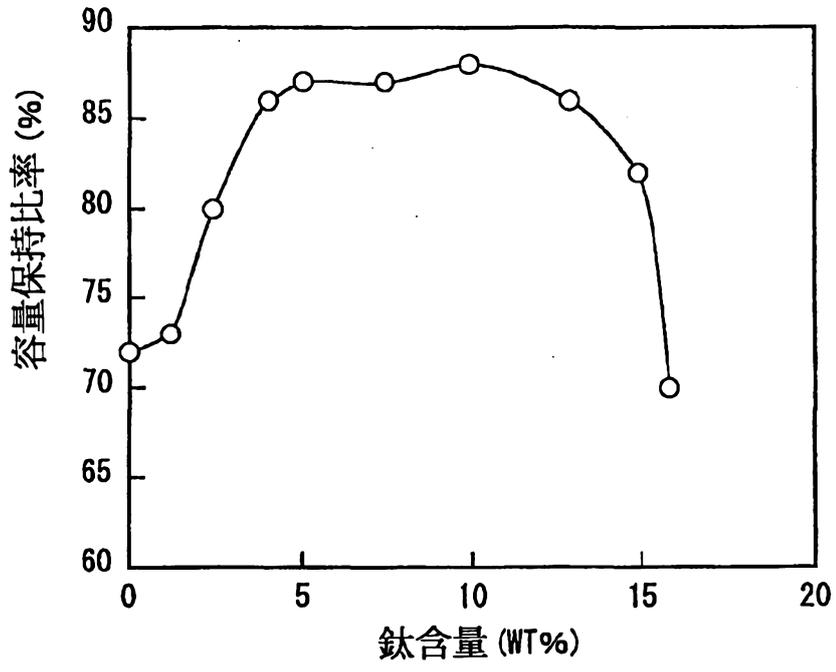


圖 32

七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第(1)圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

11	電池罐
12	絕緣板
13	絕緣板
14	電池蓋
15	安全閥機構
15A	圓盤狀板
16	PTC裝置
17	墊片
20	螺旋纏繞電極體
21	陰極
22	陽極
23	分離器
24	中心銷
25	陰極引線
26	陽極引線

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)

97年9月9日修(更)正本

1. 一種陽極活性材料，其包含：

至少錫(Sn)、鈷(Co)及碳(C)作為元件，

其中該碳含量係在從9.9 wt%至29.7 wt%，鈷相對於錫與鈷之總量的比率係在從30 wt%至70 wt%，且該陽極活性材料包括可與鋰發生反應的反應性相位，並且藉由X射線繞射獲得的繞射峰值之半寬度為 1.0° 或更高。

2. 如請求項1之陽極活性材料，其中

藉由X射線光電子光譜法在低於284.5 eV之區域內獲得該碳之1s峰值。

3. 如請求項1之陽極活性材料，其進一步包含：

矽(Si)作為元件。

4. 如請求項3之陽極活性材料，其中

該矽含量係在從0.5 wt%至7.9 wt%。

5. 如請求項1之陽極活性材料，其進一步包含：

至少一種選自由銦(In)、鈮(Nb)、鍺(Ge)、鈦(Ti)、鉬(Mo)、鋁(Al)、磷(P)、鎳(Ga)及鉍(Bi)所組成之群組以作為元件，其為14.9 wt%或更低。

6. 如請求項5之陽極活性材料，其中

包括至少一種選自由銦、鈮、鍺、鈦、鉬、鋁、磷、鎳及鉍所組成之群組，其係在從2.4 wt%內或更高。

7. 如請求項1之陽極活性材料，其進一步包含：

矽，其係在從0.5 wt%至7.9 wt%；以及

至少一種選自由銦、鈮、鍺、鈦、鉬、鋁、磷、鎳及

鈹所組成之群組，其範圍係從2.4 wt%至14.9 wt%。

8. 如請求項1之陽極活性材料，其進一步包含鐵(Fe)作為元件。

9. 一種電池，其包含：

陰極；

陽極；以及

電解質，

其中該陽極包括陽極活性材料，其至少包括錫(Sn)、鈷(Co)及碳(C)作為元件，以及

該陽極活性材料內之該碳含量在從9.9 wt%至29.7 wt%，鈷對錫及鈷之總量的比率在從30 wt%至70 wt%，且該陽極活性材料包括可與鋰發生反應的反應性相位，並且藉由X射線繞射獲得的繞射峰值之半寬度為1.0°或更高。

10. 如請求項9之電池，其中

該陽極活性材料中，藉由X射線光電子光譜法在低於284.5 eV之區域內獲得該碳之該1s峰值。

11. 如請求項9之電池，其中

該陽極活性材料進一步包括矽(Si)作為元件。

12. 如請求項11之電池，其中

該陽極活性材料內的該矽含量為從0.5 wt%至7.9 wt%。

13. 如請求項9之電池，其中

該陽極活性材料進一步包括至少一種選自由銦(In)、

鈮(Nb)、鍺(Ge)、鈦(Ti)、鉬(Mo)、鋁(Al)、磷(P)、鎵(Ga)及鉍(Bi)所組成之群組以作為元件，其範圍為14.9 wt%或更低。

14. 如請求項13之電池，其中

該陽極活性材料包括至少一種選自由鈮、鈮、鍺、鈦、鉬、鋁、磷、鎵及鉍所組成之群組，其範圍為2.4 wt%內或更高。

15. 如請求項9之電池，其中

該陽極活性材料進一步包括矽，其係在從0.5 wt%至7.9 wt%，以及至少一種選自由鈮、鈮、鍺、鈦、鉬、鋁、磷、鎵及鉍所組成之群組，其係在從2.4 wt%至14.9 wt%內。

16. 如請求項9之電池，其中

該陽極活性材料進一步包括鐵(Fe)作為元件。

17. 如請求項9之電池，其中

該電解質包括包含鹵素原子之環狀碳酸酯之衍生物。