



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2018년01월18일
 (11) 등록번호 10-1819042
 (24) 등록일자 2018년01월10일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
C01B 33/18 (2006.01) *C01B 31/00* (2006.01)
C01B 33/159 (2006.01) *H01M 4/583* (2010.01)
 (21) 출원번호 10-2011-0097596
 (22) 출원일자 2011년09월27일
 심사청구일자 2016년09월27일
 (65) 공개번호 10-2013-0033733
 (43) 공개일자 2013년04월04일
 (56) 선행기술조사문헌
 US20110033746 A1*
 KR1020110016287 A*
 *는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
주식회사 예일전자
 인천광역시 부평구 부평대로 283, 2층 비-203호
 (청천동, 부평 우림라이온스밸리)
 (72) 발명자
강윤규
 인천광역시 부평구 부평대로 283 B동 203호 (청천동, 부평우림라이온스밸리)
 (74) 대리인
특허법인씨엔에스

전체 청구항 수 : 총 3 항

심사관 : 정현아

(54) 발명의 명칭 **그래핀-탄소 복합체로 코팅된 실리콘산화물 및 그 제조방법**

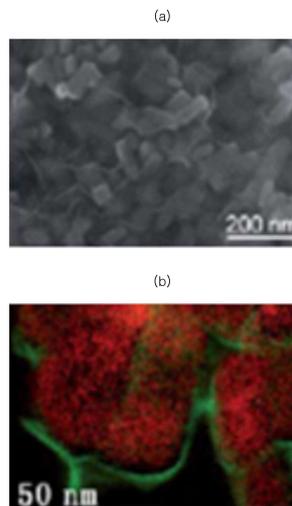
(57) 요약

본 발명은 효율이 우수하고, 부피변화가 심하지 않아 장기간 사용이 가능한 그래핀-탄소 복합체로 코팅된 실리콘산화물과 이를 용이하게 제조할 수 있는 방법에 관한 것으로,

그래핀과 흑연을 혼합하여 그래핀-탄소 복합체를 제조하는 단계; 및

상기 그래핀-탄소 복합체를 실리콘 산화물 입자 표면에 코팅하는 단계를 포함하는 그래핀-탄소 복합체로 코팅된 실리콘 산화물의 제조방법과 이를 통해 제조된 실리콘 산화물에 관한 것이다.

대표도 - 도1



명세서

청구범위

청구항 1

그래핀과 흑연을 혼합하여 그래핀-탄소 복합체를 제조하는 단계; 및

상기 그래핀-탄소 복합체를 실리콘 산화물 입자 표면에 코팅하는 단계

를 포함하고,

상기 코팅은 그래핀-탄소 복합체와 실리콘 산화물을 중량비 1:9~2:8비율로 혼합한 후, 건식방법을 통해 코팅하는 것을 특징으로 하는 그래핀-탄소 복합체로 코팅된 실리콘 산화물의 제조방법.

청구항 2

청구항 1에 있어서,

상기 그래핀과 흑연은 중량비 8:2의 비율로 혼합하는 그래핀-탄소 복합체로 코팅된 실리콘 산화물의 제조방법.

청구항 3

삭제

청구항 4

청구항 1 또는 청구항 2의 방법으로 제조된 그래핀-탄소 복합체로 코팅된 실리콘 산화물.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 리튬 이차전지의 음극재에 관한 것으로서, 보다 상세하게는 그래핀과 탄소 복합체로 코팅된 실리콘 산화물(SiO_x)에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 21세기에 들어서면서 IT산업기술은 기타 과학기술 분야에 비해 비약적인 발전은 계속하고 있고, 이들은 노트북, 휴대전화, PDA등 휴대가 가능하고 간편한 모바일기기를 중심으로 많은 상품개발이 주축을 이루어왔으며, 최근에는 모바일 기기의 성능 다양화와 가정, 회사, 사회 등을 연결하는 유비쿼터스 네트워크가 급속도로 진행되고 있다.

[0003] 특히 환경문제 및 에너지 문제에 대한 관심 및 연구개발이 집중되면서, 전기자동차용 리튬이차전지와 에너지저장용 리튬이차전지에 관한 기술선점 욕구는 전 세계적으로 매우 치열한 경쟁이 진행되고 있고 이를 위한 활발한 연구가 진행되고 있다.

[0004] 리튬이차전지에 있어서, 특히 음극재료에 대한 기술이 부각되고 있다. 리튬이차전지의 음극 활물질은 흑연이 지속적으로 사용되어 왔으며, 용량 증가에 대한 요구로 인해 다른 탄소계 물질이나, 리튬 금속 화합물 등이 연구되어 왔다. 그러나 음극재료는 초기 비가역용량이 존재하고 부피변화가 심하게 발생되며, 수명 특성이 크게 떨어지는 문제가 있어, 아직까지는 흑연을 대체하여 상용화할 수 있는 물질을 찾아보기 어렵다.

[0005] 최근에 리튬이차전지의 음극 활물질로 금속 Si 나노와이어(nanowire)가 개발되었으나, 고가의 가격 경쟁력을 극복하지 못하고 있는 실정이다. 또한, 다른 금속 또는 금속 산화물을 이용하여 복합 전극을 제조하는 기술이 등장하고 있으나, 첨가된 금속이나 금속 산화물이 용량을 발현하지 못하고, 낮은 에너지 밀도를 보이는 단점이 존재한다.

[0006] 한편, 음극 활물질로 SiO-C 복합체를 제조하는 기술이 등장하고 있으나, 이러한 SiO-C복합체는 출발물질(precursor)로 SiO를 사용하여 고온(약 700~1000℃)의 열처리를 필요로 하고, 다시 기계적, 물리적으로 파쇄를 통해 입자크기를 줄여야 하는 기술적 난점을 가지고 있다.

[0007] 따라서, 전지 효율이 우수하고, 장시간 사용할 수 있는 음극 활물질이 절실히 요구되고 있으며, 이러한 음극 활물질을 경제적이고, 용이하게 제조할 수 있는 방법이 요구되고 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0008] 본 발명의 일측면은 효율이 우수하고, 부피변화가 심하지 않아 장기간 사용이 가능한 그래핀-탄소 복합체로 코팅된 실리콘 산화물과 이를 용이하게 제조할 수 있는 방법을 제공하고자 하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0009] 본 발명은 그래핀과 흑연을 혼합하여 그래핀-탄소 복합체를 제조하는 단계; 및

[0010] 상기 그래핀-탄소 복합체를 실리콘 산화물 입자 표면에 코팅하는 단계를 포함하는 그래핀-탄소 복합체로 코팅된 실리콘 산화물의 제조방법

[0011] 또한, 본 발명은 상기 방법으로 제조된 실리콘 산화물을 제공한다.

발명의 효과

[0012] 본 발명은 음극재의 부피팽창을 최소화할 수 있는 안정적인 전기 용량을 확보할 수 있는 음극활물질을 제공한다. 이를 통해, 고성능 리튬 이차전지로서의 활용을 기대할 수 있는 장점이 있다.

도면의 간단한 설명

[0013] 도 1(a)는 발명예를 관찰한 SEM 사진이고, (b)는 상기 (a)를 확대한 사진임

도 2는 본 발명 실시예의 결과를 나타낸 그래프임.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0014] 이하, 본 발명에 대해 상세히 설명한다.

[0015] 먼저, 본 발명의 실리콘 산화물의 제조방법에 대해서 상세히 설명한다.

[0016] 그래핀(graphene)과 흑연을 혼합하여 그래핀-탄소 복합체를 제조한다. 상기 그래핀과 흑연은 중량비 8:2의 비율로 준비하고 진식방법을 통해 혼합함으로써, 그래핀-탄소 복합체를 제조한다.

[0017] 상기 그래핀은 높은 전기전도도를 가지며, 탄소계 표면에 미세한 탄소층을 형성하고, 후술하는 그래핀-탄소 복합체가 코팅된 실리콘 산화물의 제조시에 실리콘의 확산을 억제하고 산소와의 결합력을 약화시켜, 실리카(SiO₂)

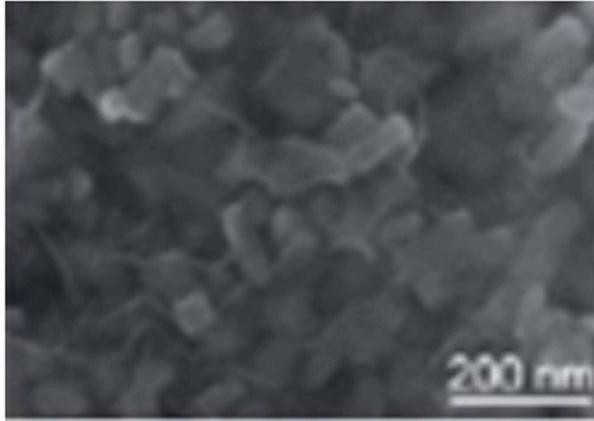
의 형성을 억제하여 용량을 비약적으로 확대시킬 수 있다.

- [0018] 상기 그래핀-탄소 복합체를 실리콘 산화물(SiO_x) 입자에 코팅시켜 그래핀-탄소 복합체가 코팅된 실리콘 산화물을 제조한다.
- [0019] 이하, 본 발명의 실시예에 대하여 상세히 설명한다.
- [0020] (실시예)
- [0021] 입자크기 $150\mu\text{m}$ 의 인조흑연과 층간간격이 $0.45\sim 0.8\text{nm}$ 인 그래핀(알드리치사)을 준비하였다. 상기 그래핀과 흑연을 중량비 8:2로 $100\sim 200\text{rpm}$ 으로 약 2~5시간 동안 건식 혼합방식을 통해 그래핀-탄소 복합체를 제조하였다.
- [0022] 또한, 실리콘 산화물(SiO_x)(알드리치사)를 준비하고, 상기 그래핀-탄소 복합체와 상기 실리콘 산화물을 1:9~2:8의 중량비로 $200\sim 500\text{rpm}$ 으로 건식방법을 통해, 상기 그래핀-탄소 복합체가 코팅된 실리콘 산화물을 제조하였다.
- [0023] 이렇게 제조된 실리콘 산화물을 전자현미경인 SEM으로 분석하여 그 결과를 도 1에 나타내었다. 도 1의 (a) 및 (b)에 나타난 바와 같이, 탄소내에 그래핀이 균일하게 위치하여 있음을 알 수 있다.
- [0024] 한편, 본 발명의 그래핀-탄소 복합체가 코팅된 실리콘 산화물(발명예)과 통상의 탄소 코팅 실리콘 산화물(비교예)의 수명특성을 평가하고 그 결과를 도 2에 나타내었다. 도 2에 나타난 바와 같이, 비교예에 비해, 발명예는 50cycle까지도 500mAh/g 의 용량을 확보하여 안정적인 용량을 확보할 수 있다. 이는 상기 그래핀-탄소 복합체가 Si의 확산과 산화를 억제하여 부피팽창을 최소화하기 때문이다.

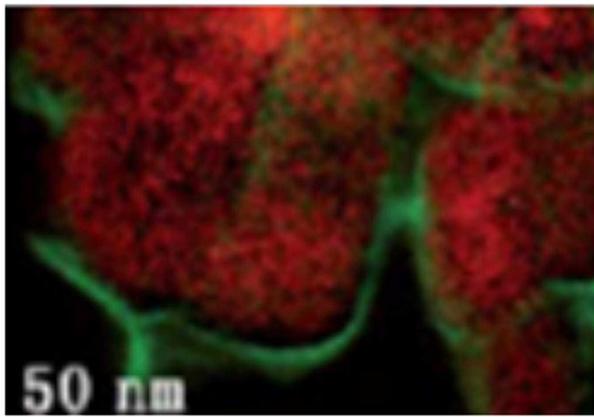
도면

도면1

(a)



(b)



도면2

