

亜鉛還元法により調製された微細シリコン粉末のリチウムイオン二次電池負極への適用

○岩成大地¹, 島宗孝之¹, 吉田一馬¹, 田中一誠¹, 向井孝志², 池内勇太², 柳田 昌宏²
 (TMC 株式会社¹, 産業技術総合研究所²)

Application to LIB negative electrode of the fine silicon powder by a zinc reduction method.

Iwanari Daichi,¹ Shimamune Takayuki,¹ Yoshida Kazuma,¹ Tanaka Kazuyoshi,¹ Mukai Takashi,² Ikeuchi Yuta,² and Yanagida Masahiro²
 (Town Mining Co.,Ltd.,¹ National Institute of Advanced Industrial Science and Technology²)

1. 目的

シリコン (Si) は、高い理論容量を有するため次世代リチウム二次電池の負極活物質として注目されている。これまでに我々は、粒径 5 μm 以下の Si と高結着性のポリイミド (PI) を用いることで、負極の寿命特性を大きく改善する旨を報告してきた^{1,2}。しかし、従来法による Si 微粉末 (MM シリコン) を得るためには、Fig.1 に示すように、粉碎・分級の工程が必須となり、製造コストが上昇する課題があった。

本研究では、安価で多量生産が可能な微細 Si の製造について検討を行い、独自に開発した SiCl₄ の亜鉛還元によるシリコン製造法により、粉碎・分級工程なしに、1μm 以下の微細で均一な粒径の Si 粉末 (MS シリコン) を得ることに成功した。得られた Si 微粉末について負極活物質として評価したので報告する。

2. 実験

Fig.2 に、製造された MS シリコンの SEM 像を示す。試験負極 (3 mAh/cm²) は、MS シリコン、アセチレンブラック、VGCF、PI からなるスラリーを銅箔上に塗工し、250℃以上で熱処理することで得られた。また、比較として、従来製造法により得られたシリコン (MM シリコン) を用いた電極も同様に作製した。試験電池は、対極として金属リチウム箔、電解液として 1M LiPF₆/EC:DEC (50:50 vol.%) を用いた CR2032 型コインセルを作製した。試験条件としては、30℃環境下、電流密度 0.1 C 率、電位幅 0.0-1.0 V vs. Li/Li⁺ とした。

3. 結果および考察

Fig.3 に、MS シリコンと MM シリコン負極の初回の充放電曲線を示す。両電極共に、0.1V 付近に Si への Li 挿入、0.4V 付近に Li 脱離による電位プラトーが同様に観察された。しかし MS シリコンは、MM シリコンより高い充放電容量を示した。これは、MS シリコンが MM シリコンに比べ小さい粒子径を有し (MM シリコンの粒子径 1~3μm に対し MS シリコンは 1μm 以下)、Li イオンの挿入脱離にともなう拡散距離が短いため、より高い活物質の利用率を示したと推察される。

講演では、サイクル寿命特性向上の取り組みについても詳細に報告する。

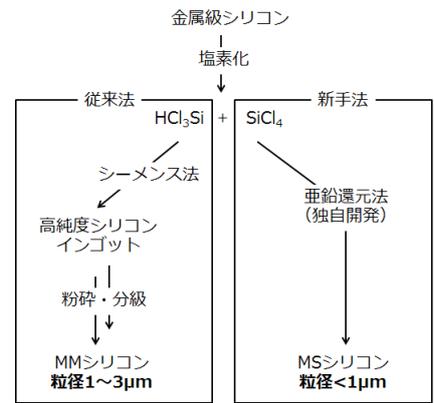


Fig.1 Manufacturing processes of silicon powder.

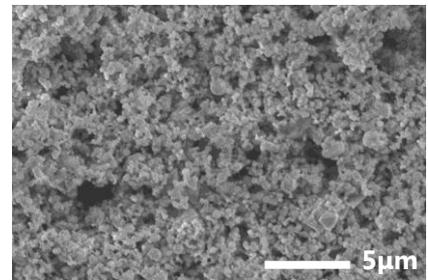


Fig.2 SEM image of MS silicon powder.

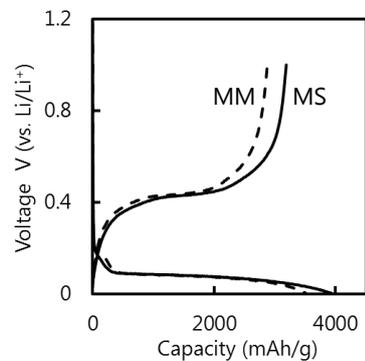


Fig.3 Charge-discharge curves of the MS silicon and MM silicon electrodes.

- (1) 江田, 幸, 森下, 小島, 境, 田中, 吉田, 中田, 電気化学会第 79 回要旨集 (2012) 1C21.
- (2) 岩成, 吉田, 田中, 向井, 境, 第 54 回電池討論会要旨集 (2013) 3B21.