



# (12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 110148729 B

(45) 授权公告日 2022.03.11

(21) 申请号 201910452164.0

H01M 4/38 (2006.01)

(22) 申请日 2019.05.28

H01M 10/0525 (2010.01)

(65) 同一申请的已公布的文献号  
申请公布号 CN 110148729 A

### (56) 对比文件

(43) 申请公布日 2019.08.20

CN 105405680 A, 2016.03.16

CN 105336912 A, 2016.02.17

(73) 专利权人 合肥国轩高科动力能源有限公司  
地址 230011 安徽省合肥市新站区岱河路  
599号

CN 104022257 A, 2014.09.03

CN 103107315 A, 2013.05.15

CN 109585816 A, 2019.04.05

WO 2014041108 A1, 2014.03.20

KR 20080034393 A, 2008.04.21

(72) 发明人 赵宇飞 林少雄 谢李生 谢李昭  
陈龙

Jie Shu et al. Facile fabrication of conducting hollow carbon nanofibers/Si composites for copper phthalocyanine-based field effect transistors and high performance lithium-ion batteries.《RSC Advances》.2012,第2卷(第22期),第8323-8331页.

(74) 专利代理机构 合肥天明专利事务所(普通合伙) 34115  
代理人 黄少波 金凯

审查员 彭夏容

(51) Int. Cl.

H01M 4/36 (2006.01)

H01M 4/583 (2010.01)

H01M 4/62 (2006.01)

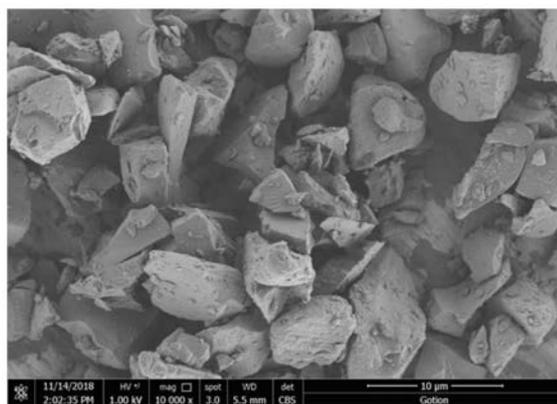
权利要求书1页 说明书3页 附图5页

### (54) 发明名称

一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法及应用

### (57) 摘要

本发明涉及一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法及应用,方法包括以下步骤:将氧化亚硅放入密闭的带电极的反应炉中,将炉腔抽真空后,注入有机物气体使炉腔内保持低真空状态;在两电极之间通高压电流使有机物气体分解生成碳后沉积在氧化亚硅表面,得到碳包覆氧化亚硅材料;本发明的方法不同于传统的固相包覆和高温气相包覆方法,是通过高压电流使有机物气体分解生成碳对氧化亚硅材料进行碳包覆,得到的碳包覆层薄且均匀,抑制了氧化亚硅材料充放电中的体积膨胀,避免了氧化亚硅材料和电解液的直接接触,从而提高了氧化亚硅材料的首次库伦效率和循环稳定性能,是锂离子电池负极材料的优良选择。



CN 110148729 B

1. 一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,其特征在于:包括以下步骤:

S1、将氧化亚硅放入密闭的带电极的反应炉中,将炉腔内真空度抽至0.1-1Pa后通入有机物气体,使炉腔内压力保持在60-1400Pa;

S2、在两电极之间通高压电流使有机物气体分解生成碳后沉积在氧化亚硅表面,得到碳包覆氧化亚硅材料;所述两电极之间加载电压为400-750V。

2. 根据权利要求1所述的一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,其特征在于:所述有机物气体为甲烷、乙烷、乙烯、丙烯、乙炔或丙炔中的一种或几种。

3. 根据权利要求1所述的一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,其特征在于:所述S2中两电极之间的高压电流为直流电或交流电。

4. 根据权利要求3所述的一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,其特征在于:所述交流电的频率为10-100Hz。

5. 根据权利要求1所述的一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,其特征在于:所述高压电流的电流密度为0.5-2.0mA/cm<sup>2</sup>。

6. 根据权利要求1-5任一项所述的一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,其特征在于:所述制备得到的碳包覆氧化亚硅材料用于锂离子电池负极材料。

## 一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法及应用

### 技术领域

[0001] 本发明涉及氧化亚硅材料技术领域,特别是一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法及应用。

### 背景技术

[0002] 动力电动车的续航里程关系着人们需求的变化及未来汽车行业的发展,为了实现动力电池300wh/kg的能量密度,以三元材料替代市场化的磷酸铁锂、钴酸锂作为锂离子电池的正极材料是必然的选择;而以硅碳材料替代石墨负极,成倍的提升电池的能量密度,也是新能源汽车产业发展的必然趋势。

[0003] 因为硅具有较低的平台电位,超高的理论容量(3800mAh/g,  $\text{Li}_{15}\text{Si}_4$ ; 4200mAh/g,  $\text{Li}_{15}\text{Si}_4$ , 是市场化石墨容量的近10倍),高表面积,高振实密度以及制备简单等优点,所以具有极大的应用前景。

[0004] 但是,硅材料作为负极材料在充放电过程中会发生巨大的体积变化,致使电池性能急剧的衰减;而氧化亚硅材料具有较高的理论容量和较低的体积膨胀逐渐受到关注。

[0005] 为提高氧化亚硅材料的首次库伦效率和循环性能,需要对氧化亚硅材料进行表面包覆,最为简单有效的方法为碳包覆,现有技术中最为常见的碳包覆方法为固相包覆和高温气相包覆。

### 发明内容

[0006] 本发明的目的在于提供一种全新的碳包覆氧化亚硅材料的制备方法及应用,相较于传统方法所述制备的主流产品,本方法制备的碳包覆氧化亚硅材料具有基本相同或更好的性能。

[0007] 为实现上述目的,本发明采用了以下技术方案:

[0008] 一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,包括以下步骤:

[0009] S1、将氧化亚硅放入密闭的带电极的反应炉中,将炉腔抽真空后,注入有机物气体使炉腔内保持低真空状态;

[0010] S2、在两电极之间通高压电流使有机物气体分解生成碳后沉积在氧化亚硅表面,得到碳包覆氧化亚硅材料。

[0011] 优选的,所述S1中将炉腔内真空度抽至1-0.1Pa后通入有机物气体,使炉腔内压力保持在60-1400Pa。

[0012] 优选的,所述有机物气体为甲烷、乙烷、乙烯、丙烯、乙炔或丙炔中的一种或几种。

[0013] 优选的,所述S2中两电极之间加载电压为400-750V。

[0014] 优选的,所述S2中两电极之间的高压电流为直流电或交流电。

[0015] 优选的,所述交流电的频率为10-100Hz。

[0016] 优选的,所述高压电流的电流密度0.5-2.0mA/cm<sup>2</sup>。

[0017] 上述的一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法所述制备得到的碳包覆氧化亚硅材

料,可以应用于锂离子电池负极材料。

[0018] 本发明的有益效果如下:本发明的方法不同于传统的固相包覆和高温气相包覆方法,是通过高压电流使有机物气体分解生成碳对氧化亚硅材料进行碳包覆,得到的碳包覆层薄且均匀,抑制了氧化亚硅材料充放电中的体积膨胀,避免了氧化亚硅材料和电解液的直接接触,从而提高了氧化亚硅材料的首次库伦效率和循环稳定性能,是锂离子电池负极材料的优良选择。

#### 附图说明

[0019] 图1是实施例1制得的碳包覆氧化亚硅材料的SEM图;

[0020] 图2是实施例1及固相碳包覆法分别制得的碳包覆氧化亚硅材料的扣电首次充放电图;

[0021] 图3是实施例1及固相碳包覆法分别制得的碳包覆氧化亚硅材料的扣电循环图;

[0022] 图4是实施例2制得的碳包覆氧化亚硅材料的SEM图;

[0023] 图5是实施例2及固相碳包覆法分别制得的碳包覆氧化亚硅材料的扣电首次充放电图;

[0024] 图6是实施例2及固相碳包覆法分别制得的碳包覆氧化亚硅材料的扣电循环图;

[0025] 图7是实施例3制得的碳包覆氧化亚硅材料的SEM图;

[0026] 图8是实施例3及高温气相碳包覆法分别制得的碳包覆氧化亚硅材料的扣电首次充放电图;

[0027] 图9是实施例3及高温气相碳包覆法分别制得的碳包覆氧化亚硅材料的扣电循环图。

#### 具体实施方式

[0028] 下面结合具体的实施例对本发明做进一步说明:

[0029] 实施例1:

[0030] 一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,包括以下步骤:

[0031] 将氧化亚硅放入密闭的带电极的反应炉中,将炉腔抽真空至0.1Pa,注入甲烷,使炉腔内压力保持在700Pa。

[0032] 然后在两电极之间加电压为600V,电流密度为 $1\text{mA}/\text{cm}^2$ 的直流电,高压电流使甲烷分解生成碳后沉积在氧化亚硅表面,得到碳包覆氧化亚硅材料。

[0033] 检测由实施例1得到的碳包覆氧化亚硅材料的形貌SEM如图1所示。

[0034] 由图1可以看出,实施例1所制得的碳包覆氧化亚硅材料,碳均匀的包覆在氧化亚硅表面。

[0035] 以实施例1所制得的碳包覆氧化亚硅材料作为负极材料制备扣式电池,同时以固相碳包覆法制备的碳包覆氧化亚硅材料作为负极材料制备扣式电池,二者均进行首次充放电测试和循环性能测试,结构如图2和图3所示。

[0036] 由图2可知,与传统的固相碳包覆法相比,实施例1所制得的碳包覆氧化亚硅材料制成的扣式电池,明显提高了氧化亚硅材料首次库伦效率。

[0037] 由图3可知,与传统的固相碳包覆法相比,实施例1所制得的碳包覆氧化亚硅材料

制成的扣式电池,明显提高了氧化亚硅材料的循环性能。

[0038] 实施例2

[0039] 一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,包括以下步骤:

[0040] 将氧化亚硅放入密闭的带电极的反应炉中,将炉腔抽真空至0.2Pa,注入乙炔,使炉腔内压力保持在500Pa。

[0041] 然后在两电极之间加电压为550V,频率50Hz,电流密度为0.5mA/cm<sup>2</sup>的交流电,高压电流使乙炔分解生成碳后沉积在氧化亚硅表面,得到碳包覆氧化亚硅材料。

[0042] 检测由实施例2得到的碳包覆氧化亚硅材料的形貌SEM如图4所示。

[0043] 由图4可以看出,实施例2所制得的碳包覆氧化亚硅材料,碳均匀的包覆在氧化亚硅表面。

[0044] 以实施例2所制得的碳包覆氧化亚硅材料作为负极材料制备扣式电池,同时以固相碳包覆法制备的碳包覆氧化亚硅材料作为负极材料制备扣式电池,二者均进行首次充放电测试和循环性能测试,结构如图5和图6所示。

[0045] 由图5可知,与传统的固相碳包覆法相比,实施例2所制得的碳包覆氧化亚硅材料制成的扣式电池,明显提高了氧化亚硅材料首次库伦效率。

[0046] 由图6可知,与传统的固相碳包覆法相比,实施例2所制得的碳包覆氧化亚硅材料制成的扣式电池,明显提高了氧化亚硅材料的循环性能。

[0047] 实施例3

[0048] 一种碳包覆氧化亚硅材料的制备方法,包括以下步骤:

[0049] 将氧化亚硅放入密闭的带电极的反应炉中,将炉腔抽真空至1Pa,注入甲烷,使炉腔内压力保持在1000Pa。

[0050] 然后在两电极之间加电压为700V,电流密度为0.5mA/cm<sup>2</sup>的直流电,高压电流使甲烷分解生成碳后沉积在氧化亚硅表面,得到碳包覆氧化亚硅材料。

[0051] 检测由实施例3得到的碳包覆氧化亚硅材料的形貌SEM如图7所示。

[0052] 由图7可以看出,实施例3所制得的碳包覆氧化亚硅材料,碳均匀的包覆在氧化亚硅表面。

[0053] 以实施例3所制得的碳包覆氧化亚硅材料作为负极材料制备扣式电池,同时以高温裂解气相碳包覆法制备的碳包覆氧化亚硅材料作为负极材料制备扣式电池,二者均进行首次充放电测试和循环性能测试,结构如图8和图9所示。

[0054] 由图8可知,与传统的高温裂解气相碳包覆法相比,实施例3所制得的碳包覆氧化亚硅材料制成的扣式电池,明显提高了氧化亚硅材料首次库伦效率。

[0055] 由图9可知,与传统的高温裂解气相碳包覆法相比,实施例3所制得的碳包覆氧化亚硅材料制成的扣式电池,明显提高了氧化亚硅材料的循环性能。

[0056] 以上所述的实施例仅仅是对本发明的优选实施方式进行了描述,并非对本发明的范围进行限定,在不脱离本发明设计精神的前提下,本领域普通技术人员对本发明的技术方案作出的各种变形和改进,均应落入本发明权利要求书确定的保护范围内。

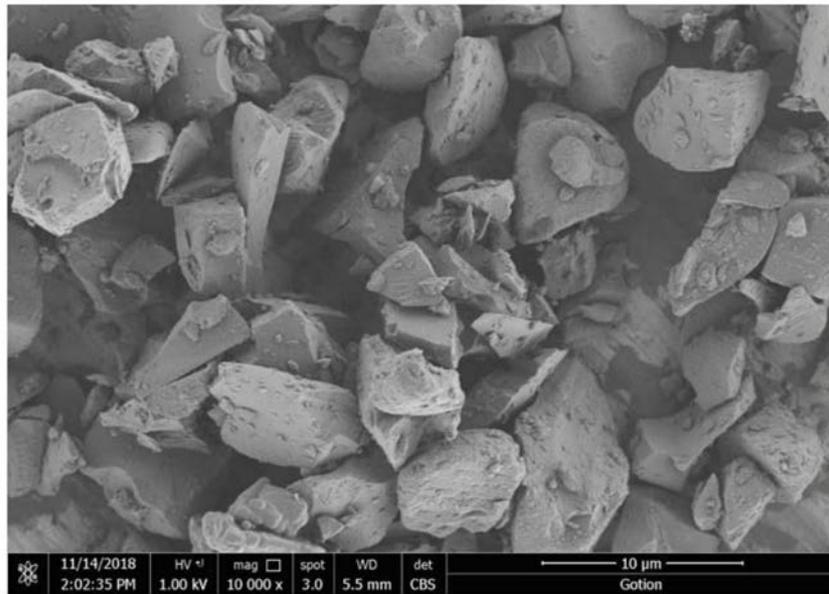


图1

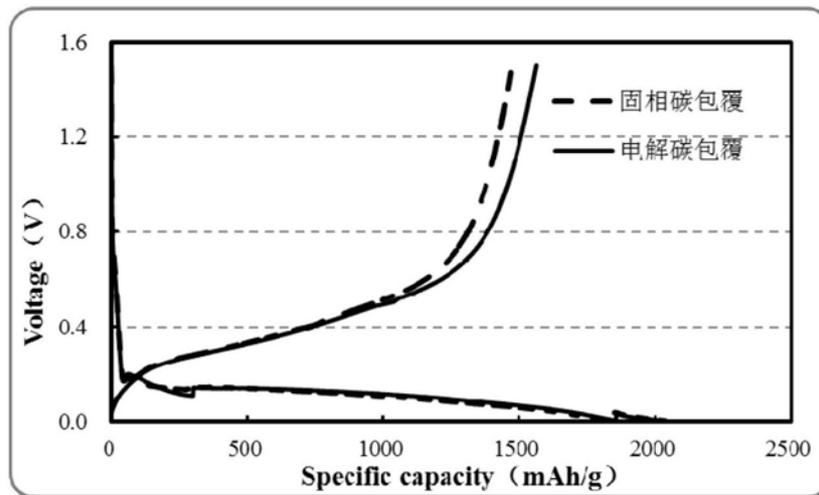


图2

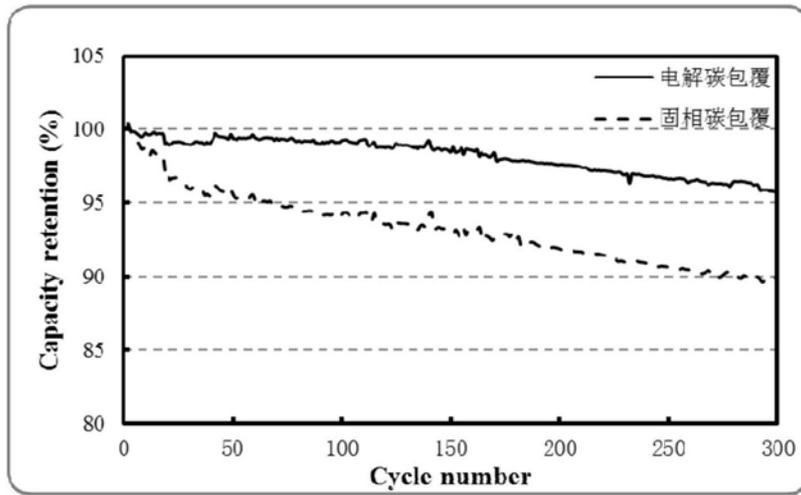


图3

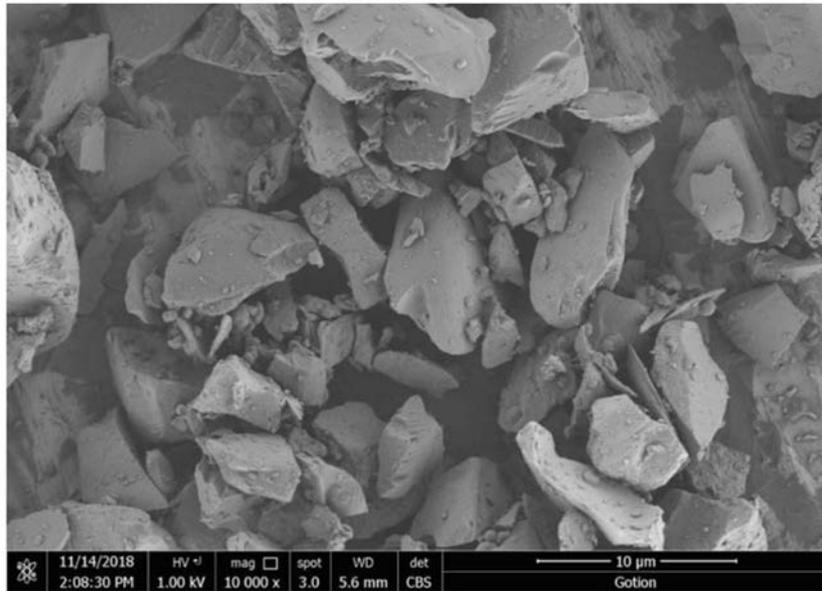


图4

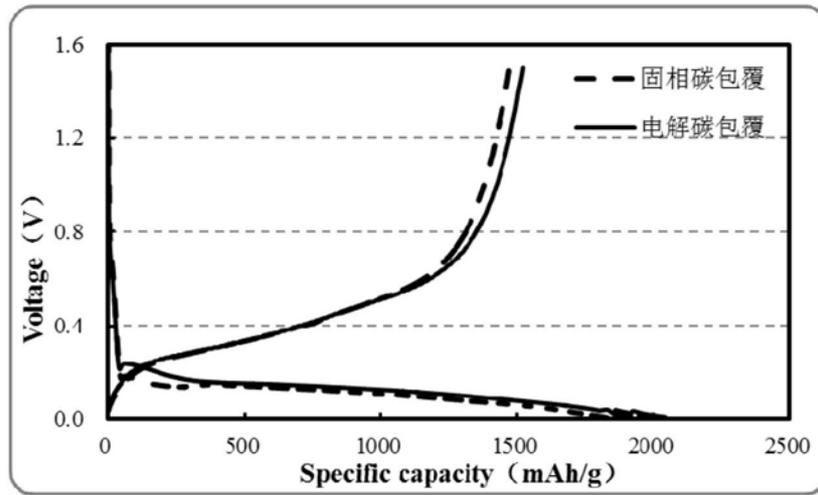


图5

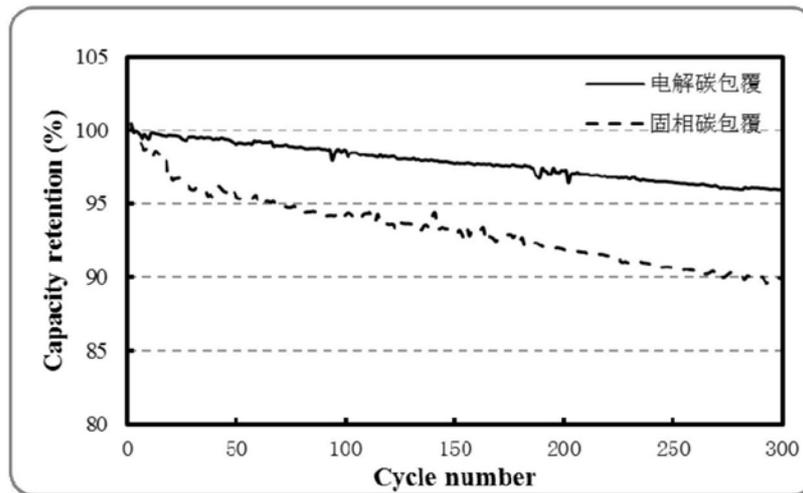


图6

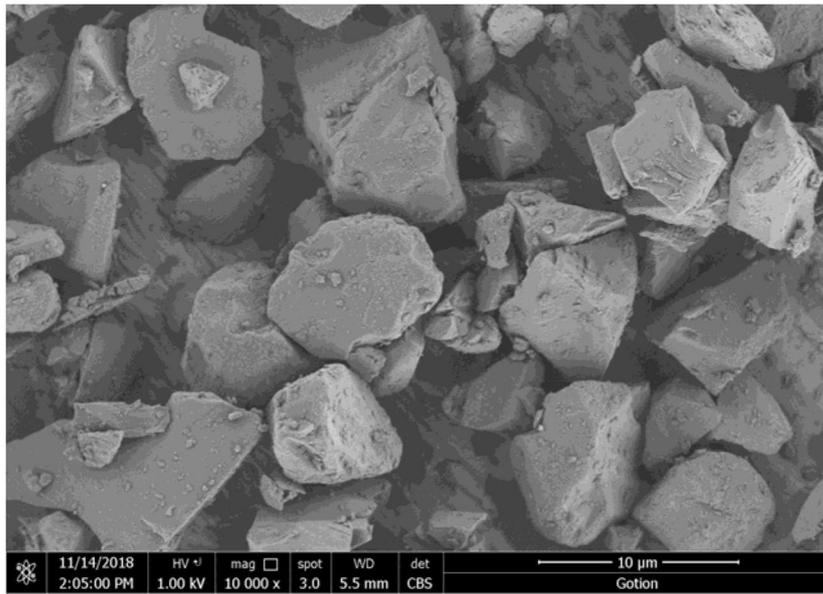


图7

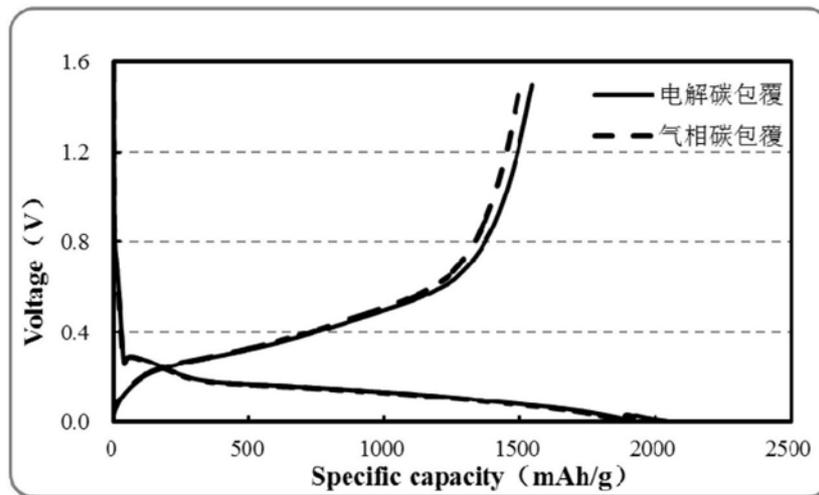


图8

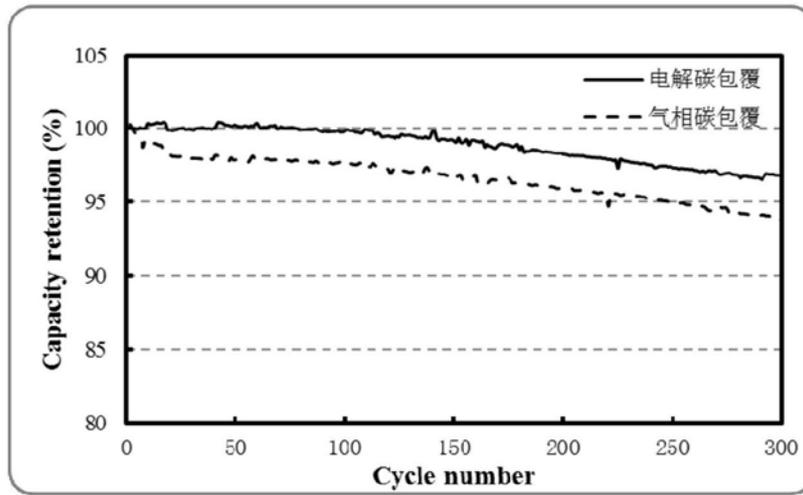


图9