

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4132647号
(P4132647)

(45) 発行日 平成20年8月13日(2008.8.13)

(24) 登録日 平成20年6月6日(2008.6.6)

(51) Int.Cl.

F I

H O 1 M 2/02 (2006.01)

H O 1 M 2/02

K

H O 1 M 2/10 (2006.01)

H O 1 M 2/10

E

請求項の数 7 (全 11 頁)

(21) 出願番号 特願2000-354221 (P2000-354221)
 (22) 出願日 平成12年11月21日(2000.11.21)
 (65) 公開番号 特開2002-157981 (P2002-157981A)
 (43) 公開日 平成14年5月31日(2002.5.31)
 審査請求日 平成16年10月8日(2004.10.8)

(73) 特許権者 000005049
 シャープ株式会社
 大阪府大阪市阿倍野区長池町2番2号
 (74) 代理人 100065248
 弁理士 野河 信太郎
 (72) 発明者 西島 主明
 大阪府大阪市阿倍野区長池町2番2号
 シャープ株式会社内
 (72) 発明者 山田 和夫
 大阪府大阪市阿倍野区長池町2番2号
 シャープ株式会社内
 (72) 発明者 見立 武仁
 大阪府大阪市阿倍野区長池町2番2号
 シャープ株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 薄型二次電池

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

正極層、電解質層、負極層が積層された電池素子と、電池素子の表裏面を封止するラミネート体を備え、ラミネート体が、電池素子側から少なくとも接着層と金属層との積層体からなり、電池素子の表面側の金属層と裏面側の金属層は、異なる材料からなり、電池素子の表面側の金属層が、電子機器の筐体を兼ねることを特徴とする薄型二次電池。

【請求項2】

表面側の金属層が、凹形状を有し、電池素子が、凹形状の内側に配設されていることを特徴とする請求項1に記載の薄型二次電池。

【請求項3】

表面側の金属層が、アルミ合金、マグネシウム合金から選ばれる金属からなることを特徴とする請求項1又は2に記載の薄型二次電池。

【請求項4】

表面側の金属層が、圧延された板材をプレス成形することによって得られたものであることを特徴とする請求項1～3のいずれか1つに記載の薄型二次電池。

【請求項5】

裏面側の金属層が、アルミニウム、ステンレス、ニッケル又は銅から選択される金属からなることを特徴とする請求項1～4のいずれか1つに記載の薄型二次電池。

【請求項6】

表面側の金属層が、鋳造により得られた層であることを特徴とする請求項1～5のいずれ

れか1つに記載の薄型二次電池。

【請求項7】

表面側の金属層の表面のみに保護フィルムが積層されていることを特徴とする請求項1～6のいずれか1つに記載の薄型二次電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、薄型二次電池に関する。更に詳しくは、本発明は、薄型携帯機器の長時間使用を可能にする薄型二次電池に関する。

【0002】

【従来の技術及び発明が解決しようとする課題】

携帯電話やインターネットを利用するための携帯端末等のモバイル機器（携帯機器）が急速に普及するなかで、携帯機器の更なる小型化、薄型化、軽量化が強く望まれている。そのような携帯機器の電源の一つとして、リチウムイオン電池が挙げられる。この電池は、高エネルギー密度、軽量といった特徴を有するため、多くの携帯機器に搭載され、確実に生産量を増やしている。従来のリチウムイオン電池は、スチールやアルミからなる外装缶の中に電池素子が封入され封口されている。リチウムイオン電池では、機器の薄型化への要求に答えるべく技術開発が進められ、総厚み4mmをきる電池が生産されるに至っている。

【0003】

一方、携帯機器の薄型化競争は非常に激しく、0.1mmレベルで更なる薄型化を目指した競争が繰り広げられている。一方、携帯機器において、使用時間が短いということは致命的であるため、単に小さい電池を採用することはできない。また、電池缶タイプでは外装缶の作製上の制限から、4mm程度の厚みが限界であり、それ以上薄くできたとしても外装缶自体の厚みが電池全体の厚みに対して大きくなりすぎ、高いエネルギー密度を得ることは困難になってくる。そのような状況の中で、電池が機器の厚みを決めている場合が非常に多いのが現状であり、薄さと高容量密度の両方を満たす電池の開発が強く望まれている。

そこで、上記課題を解決するために、電解液をポリマー化する等して、固い外装缶を必要としないラミネート体を外装材として用いる電池が開発された。

【0004】

ラミネート体は、一般的に電池素子を封入するための接着層、水分の進入を防ぐための金属箔、場合によっては、表面の針刺し強度等を向上させることを目的とした保護フィルム層の積層体からなる。このラミネート体は総厚で100～200μm程度であり、缶タイプの電池に比べ、十分に薄い。更に、袋状にして電池を封入できるため、電池厚みの制限がなく、薄型の電池が得られる。そのため、携帯機器の電池として非常に期待されている。

【0005】

しかし、この電池は内圧に対する力が弱いため、電池内圧が上昇すると電池が膨れ、不特定の方向に内容物が噴出する可能性が残されている。また、携帯機器に装着する場合、単独で電池パックとして取り外し可能とするためには、外力に耐えることが要求される。そのため、電池の外装とは別に固い外装が必要となる。また、内蔵型にした場合でも、筐体に貼り付けるために、接着層が必要となる。従って、実際に機器の薄型化に貢献できないことがあった。

【0006】

薄型電池を機器に効率的に組み込むために、種々の方法が提案されている。例えば、特開平8-17179号公報には、機器への実装を容易にするために、フィルム電池を基板中に埋め込むことが提案されている。また、特開平10-13512号公報には、薄型電池を取り外し可能な筐体内部に埋め込むことが提案されている。

【0007】

しかしながらこれらは、実際にはラミネート体による外装まで含めたフィルム電池を内蔵するため、機器の薄型化への貢献は十分とはいえなかった。また回路基板と一体化する技術も開示されているが、単なる回路基板を構成する樹脂層との一体化では電池への水分の進入は完全に阻止できず、長期使用に問題が出る場合もあった。

【0008】

【課題を解決するための手段】

かくして、本発明によれば、正極層、電解質層、負極層が積層された電池素子と、電池素子の表裏面を封止するラミネート体を備え、ラミネート体が、電池素子側から少なくとも接着層と金属層との積層体からなり、電池素子の表面側の金属層と裏面側の金属層は、異なる材料からなり、電池素子の表面側の金属層が、電子機器の筐体を兼ねることを特徴とする薄型二次電池が提供される。

10

【0009】

【発明の実施の形態】

本発明によれば、金属層の強度、厚さ又はそれら両方を変えることにより、電池に異常が発生したときに強度の小さい側又は薄い側に必ず電池が膨れるため、内容物の噴出方向が特定できる。

更に、厚い金属層が、凹形状になっており、その凹形状の内側に電池素子が配設されるようにすることで、より内容物の噴出方向が特定が可能となる。

【0010】

また、厚い金属層に、アルミ合金、マグネシウム合金から選ばれる金属を用いることにより、より薄く、より軽い電池とすることが可能である。

20

更に、これらの材料を成形するためには鋳型に流し込んで作製する流し込みの方法と、圧延した板材をプレス加工によって成型する方法があるがどちらも使用可能である。更に好ましくは、板材をプレス加工した材料は、金属層をより薄くすることが可能であり、また薄くした際に、ピンホール等の心配がないため、電池の信頼性を上げることが可能である。

【0011】

このようにして、厚い金属層を筐体と兼用し、薄い金属層を携帯機器の内側に向けることにより、電池が液漏れしても、ユーザー側には直接噴出しなため、異常時の安全性を確保することができる。また、金属層が筐体を兼用しているため、従来必要であった片方のラミネート体が不必要となり、機器の薄型に貢献することができる。あるいは筐体と電池を含めた厚みを従来と同じにした場合、電池容量をかなり大きくすることが可能である。

30

【0012】

以下、本発明を更に詳細に説明する。

厚い金属層の厚みは、筐体を兼用する場合、強度が必要となるため、0.4～1.5mm程度であることが好ましい。この厚みより薄いと、筐体としての強度を十分に保つことができず、また、これ以上厚いと、機器の薄型化、軽量化に対して要求を満たしにくい電池となる。なお、本発明における筐体としては、ノートパソコン、ビデオカメラ、カメラ、携帯電話等の各種携帯機器の筐体が挙げられる。

【0013】

筐体を兼用しない場合、厚い金属層の厚みは、0.05～2.00mm程度であることが好ましい。

40

なお、筐体を兼用してしなくても、金属層には、アルミニウムにマグネシウムを添加したアルミ合金や、マグネシウムにアルミニウムや亜鉛を添加したマグネシウム合金等が挙げられる。

【0014】

薄い金属層の厚みは、電池への水分の進入を防ぐことができる厚みであれば特に限定されないが、通常10～300μmの範囲であることが好ましい。更に、電池を含めた総厚み、突起物等に対する針刺し強度の観点から30～200μmであることが好ましい。また、薄い金属層側に更に保護層を設ける場合には、あまり強度は必要なく、水分の浸入を防

50

ぐことに重点をおいて設計すればよい。例えば、最近では圧延の技術の向上等により、 $15\text{ }\mu\text{m}$ 程度のアルミ箔でもピンホールフリーの材料もあり、そのような $15\sim 25\text{ }\mu\text{m}$ 程度のアルミ箔を用いてもよい。なお、水分を防ぐ目的においては、厚みよりピンホールフリーであることが重要である。このように片面のラミネート層の金属層を薄くした場合には、反対側の金属層の熱容量が大きくても、金属層の薄い側から熱をかける等の手段により、信頼性よく封止ができる等の特徴を有する

【0015】

上記薄い金属層は、アルミニウム、ステンレス、ニッケル、銅等の金属箔等からなることが好ましい。

上記では金属層の厚みを変えることにより、内容物の噴出方向を特定しているが、同程度の厚みでも、強度の異なる材料を用いることで内容物の噴出方向を特定することも可能である。この場合の強度は、例えば、金属層を構成する金属の引っ張り強度等によって比較することができる。強度の差は基本的に強度が高い金属/強度の弱い金属の比が1以上であることが好ましい。より好ましくは2倍以上、特に好ましくは5倍以上である。この比を満たす金属を使用することにより、異常時において、より確実に内容物の噴出の方向を特定できる。

【0016】

上記金属層に接着層を積層することによって、ラミネート体は完成される。

ここで接着層としては熱融着性樹脂のフィルムが挙げられる。具体的には、ポリエチレン、ポリプロピレン、変性ポリエチレン、変性ポリプロピレン、アイオノマー樹脂、熱融着性ポリイミド、ポリメタクリル酸メチル等の樹脂からなるフィルムが挙げられる。接着層の厚みは $20\sim 250\text{ }\mu\text{m}$ 程度が好ましい。また、材質によっても異なるが、熱融着性、フィルム強度、膜物性の点から $80\sim 200\text{ }\mu\text{m}$ の範囲がより好ましい。あまり接着層が薄いと、水分の進入を十分に防ぐことができず、また厚すぎると、熱融着の際に、樹脂フィルムに十分に熱が伝わらず、気密信頼性が下がったり、電池のエネルギー密度が低下したりするため好ましくない。

また、電池素子は、通常、外部接続用の金属タブを有するが、この金属タブの導出部での密封性を向上するために、導出部に上記熱融着性樹脂の接着層をもう一層設けることも可能である。

【0017】

接着層と金属層の間には、針刺し強度を向上させるために、保護フィルムを挟むことも可能である。ここで用いる保護フィルムとしては、ナイロン、ポリエステル、PET等からなるフィルムが挙げられる。なお、金属層の厚さが薄い側を機器の内側に配置する場合には、特に外からの力が掛かることはないため、薄い側にはそのような保護フィルムを省略することが可能である。

【0018】

上述した厚みの異なるラミネート体によって、正極層、電解質層及び負極層が積層された電池素子を封止することによって電池は完成する。電池を封止するためのラミネート体の形状としては、一方又は両方に電池の厚み分のくぼみを有する形状が挙げられる。その場合は、薄い側(強度の小さい側)に付けるのが簡単である。また、一方のラミネート体が筐体を兼用する場合は、筐体自身をプレス成形によって形成する際に、同時にくぼみを作ることにも可能である。なお、電池素子が非常に薄い場合は、どちらも平らな板状で対応可能である。

【0019】

接着層によって封止する手段として、ヒーター等を用い、熱をかけることにより接合する方法が一般的である。また、超音波を照射することにより、接着層を相互に熱溶着することも可能である。ラミネート体が筐体を兼用する場合、筐体の厚みが大いいと、熱容量が大いため、前者の方法では十分な信頼性が得られない場合があるが、その際には後者の方法が有効である。

【0020】

電池素子を含む電池の総厚としては、3 mm以下とすることが好ましく、より好ましくは2 mm以下である。ここで、通常の電池では、ラミネート体の厚みは両方で300 μm程度であり、電池の総厚3 mmの場合約10%に相当する。これに対して、本発明では、通常の電池で必要であった一対のラミネート体の内、片側を省略することができるので、その分を電池素子のスペースとして用いることができる。特に電池の総厚が2 mm以下の場合、少なくとも容量を10%以上向上することが可能となる。更に、ラミネート体によって封止された電池を電池パックとする場合には、強度のある外装材を用いる必要があるが、本発明の電池ではその部分を省略することも可能である。

電池素子は、正極層、固体電解質層及び負極層の積層体からなり、その積層体を基本ユニットとし、設計容量に合わせてそれらを更に積層することができる。

10

【0021】

ここで、正極層は、一般的に、正極活物質、導電材、溶媒に溶解あるいは分散させた結着材とを混合してスラリーを作製し、集電体の片面、あるいは両面に塗布、あるいは充填することによって作製することができる。正極層作製においては、結着性を向上させるために各々の結着材の融点前後かつ、溶媒の沸点以上の温度で熱処理を行うことが好ましい。

【0022】

集電体としては、金属単体、合金等が用いられる。たとえばチタン、アルミニウムやステンレス鋼等がある。また、銅、アルミニウムやステンレス鋼の表面にチタン、銀からなる膜を形成したものをを用いることができる。形状は、箔の他、フィルム、シート、ネット、パンチされたもの、ラス体、多孔質体、発泡体、繊維群の成形体等が挙げられる。集電体の厚みは特に限定されないが、強度、導電性、電池を作製した場合のエネルギー密度の観点から1 μm～1 mmが好ましく、更に好ましくは1～100 μmである。

20

【0023】

正極活物質としては、 LiCoO_2 、 LiNiO_2 に代表される $\text{Li}_x\text{M}_1\text{M}_2_{1-y}\text{O}_2$ （ここで M_1 はFe、Co、Niのいずれかであり、 M_2 は遷移金属、4B族、あるいは5B族の金属を表す、 $x=0\sim1$ 、 $y=0\sim1$ ）、 LiMn_2O_4 に代表される $\text{LiMn}_2\text{M}_2\text{O}_4$ （ここで M_2 は遷移金属、4B族、あるいは5B族の金属を表す、 x は0～2）等のリチウムを含有した酸化物が挙げられる。また、 MnO_2 、 MoO_3 、 V_2O_5 、 V_6O_{13} 等のようなリチウムを含有しない酸化物を使用してもよい。この内、リチウムを含有する遷移金属カルコゲン化合物は、電池を放電状態で完成できるため、製造工程中の安全性を考えると好ましい。なお、リチウムを含有しない酸化物は、負極層又は正極層にあらかじめリチウムを含有させておく必要がある。

30

【0024】

更に、導電性の付与、結着性の付与のために上記正極活物質に導電材、結着材を混合して正極層を形成する。この混合比は、活物質100重量部に対して、導電材を1～50重量部、結着材を1～30重量部とすることができる。導電材の混合比は、2～20重量部がより好ましく、2～10重量部が更に好ましい。電解質やゲル電解質の前駆体等の粘度が高い場合には、電解液の染み込みをよくするために、導電材を少なめにし、空隙率を確保する手段は有効である。また、導電材を少なくした場合には、電極中の活物質密度を向上させることが可能であり、この場合、電極中の活物質密度が2.8 g/cc以上であることが好ましく、3.0～3.4 g/ccの範囲内であることが更に好ましい。

40

【0025】

この導電材には、カーボンブラック（アセチレンブラック、サーマルブラック、チャンネルブラック等）等の炭素類や、グラファイト粉末、金属粉末等を用いることができるが、これに限定されるものではない。この結着材には、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデン等のフッ素系ポリマー、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン系ポリマー、合成ゴム類等を用いることができるが、これに限定されるものではない。

【0026】

導電材が1重量部より少ない、あるいは結着材が30重量部より多いと、電極の内部抵抗

50

あるいは分極等が大きくなり、電極の放電容量が低くなるため実用的なりチウム二次電池の作製が困難となる。導電材が50重量部より多いと電極内に含まれる活物質量が相対的に減るため、正極としての放電容量が低くなる。結着材が1重量部以上ないと活物質の結着能力がなくなり、活物質の脱落や機械的強度の低下により電池の作製が困難であり、30重量部より多いと導電材の場合と同様に、電極内に含まれる活物質量が減り、更に、電極の内部抵抗あるいは分極等が大きくなり放電容量が低くなり実用的ではない。

【0027】

負極層は、負極材料としてリチウム金属、リチウム合金（例えば、リチウムとアルミニウムとの合金）、あるいはリチウムを吸蔵放出可能な炭素材料や金属酸化物等が使用可能である。安全性、サイクル特性の面から炭素材料は有望である。炭素材料としては、従来より使用されている周知の材料を使用することができ、例えば黒鉛材料（天然、人工等）、石油コークス、クレゾール樹脂焼成炭素、フラン樹脂焼成炭素、ポリアクリロニトリル焼成炭素、気相成長炭素、メソフェーズピッチ焼成炭素、結晶性の高い黒鉛の表面に非晶質炭素層を形成した黒鉛材料等が挙げられる。それら炭素材料の中でも、結晶性の高い黒鉛材料は、電池の電圧を平坦にすることができ、エネルギー密度を大きくすることができるので好ましい。更に黒鉛材料のなかでも、黒鉛粒子の表面に非晶質炭素層を有する黒鉛材料は、電解液との副反応が少なく、ラミネート体によって封止された電池のように、内圧に対して弱い形状の電池の場合には特に好ましい。

【0028】

上述の炭素材料をリチウムイオン二次電池用負極層に用いる場合には、炭素材料（好ましくは、粒子状の材料）と結着材とを混合して形成することができる。この際、導電性を向上するために導電材を混合することも可能である。ここで使用されうる結着材には、ポリフッ化ビニリデン、ポリテトラフルオロエチレン等のフッ素系ポリマー、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン系ポリマー、合成ゴム類等を用いることができるがこれに限定されるものではない。

【0029】

炭素材料と結着材との混合比は、重量比で99:1~70:30とすることができる。結着材の重量比が70:30より大きくなると、電極の内部抵抗あるいは分極等が大きくなり、放電容量が低くなるため実用的なりチウム二次電池を作製することが困難となる。また、結着材の重量比が99:1より小さくなると、炭素材料自身あるいは炭素材料と集電体との結着能力が十分でなくなり、活物質の脱落や機械的強度の低下により電池の作製上困難である。

【0030】

負極層は、一般的に、上記活物質、溶媒に溶解あるいは分散させた結着材、必要に応じて導電材とを混合してスラリーを作製し、集電体に塗布、あるいは充填することによって作製する。この場合、結着性を向上させるため及び結着材の溶剤を除去するために、溶剤の沸点以上でかつ結着材の融点前後の温度で真空中、不活性ガス雰囲気中あるいは空气中で熱処理を行うのが好ましい。

【0031】

集電体としては、銅、ニッケル等がある。形状は、箔の他、フィルム、シート、ネット、パンチされたもの、ラス体、多孔質体、発泡体、繊維群の成形体等が用いられる。集電体の厚みは特に限定されないが、強度、導電性、電池を作製した場合のエネルギー密度の観点から1 μ m~1mmが好ましく、更に好ましくは1~100 μ mである。導電材には、特に限定はされないが、カーボンブラック（アセチレンブラック、サーマルブラック、チャンネルブラック等）等の炭素類や、金属粉末等を用いることができる。

【0032】

電解質層は特に限定されないが、例えば有機電解液（電解質塩と有機溶媒から成り立っている）、高分子固体電解質、無機固体電解質、熔融塩等を用いることができ、この中でも高分子固体電解質を好適に用いることができる。高分子固体電解質には、電解質と電解質の解離を行う高分子から構成された物質、高分子にイオン解離基を持たせた物質等が使用

10

20

30

40

50

できる。電解質の解離を行う高分子として、例えば、ポリエチレンオキサイド誘導体あるいは該誘導体を含むポリマー、ポリプロピレンオキサイド誘導体、該誘導体を含むポリマー、リン酸エステルポリマー等がある。また、この高分子固体電解質には、上記以外に以下で説明するいわゆるゲル電解質も含まれる。

【0033】

ゲル電解質は、高分子に、電解質塩と有機溶媒を加えたゲル状の固体電解質のことを意味する。このゲル電荷質は、液漏れの心配のない固体電解質の特徴と、液体に近いイオン伝導性を併せ持ち、非常に有望である。

ゲル電解質の骨格を形成するための有機化合物は、電解質の溶媒溶液と親和性があり、重合可能な官能基を有する化合物であれば、特に制限はない。例えばポリエーテル構造及び不飽和二重結合基を有する化合物や、オリゴエステルアクリレート、ポリエステル、ポリイミン、ポリチオエーテル、ポリサルファン等の単独もしくは二種以上の併用が挙げられる。なお、溶媒との親和性からポリエーテル構造及び不飽和二重結合基を有する化合物が好ましい。

【0034】

ポリエーテル構造単位としては、例えばエチレンオキシド、プロピレンオキシド、ブチレンオキシド、グリシジルエーテル類等が挙げられ、これらの単独又は二種以上の組み合わせが好適に用いられる。また、二種以上の組み合わせの場合、その形態はブロック、ランダムを問わず適宜選択できる。更に、不飽和二重結合基としては、例えばアリル、メタリル、ビニル、アクロイル、メタロイル基等が挙げられる。

【0035】

また、ゲル電解質に用いる有機溶媒としては、プロピレンカーボネート（PC）とエチレンカーボネート（EC）、ブチレンカーボネート等の環状カーボネート類と、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、エチルメチルカーボネート、ジブチルカーボネート等の鎖状カーボネート類、 γ -ブチロラクトン、 γ -バレロラクトン等のラクトン類、テトラヒドロフラン、2-メチルテトラヒドロフラン等のフラン等、ジエチルエーテル、1,2-ジメトキシエタン、1,2-ジエトキシエタン、エトキシメトキシエタン、ジオキサン等のエーテル類、ジメチルスルホキシド、スルホラン、メチルスルホラン、アセトニトリル、ギ酸メチル、酢酸メチル等が挙げられ、これらを用いることができる。

【0036】

電解質塩として、過塩素酸リチウム（ LiClO_4 ）、ホウフッ化リチウム（ LiBF_4 ）、リンフッ化リチウム（ LiPF_6 ）、6フッ化砒酸リチウム（ LiAsF_6 ）、6フッ化アンチモン酸リチウム（ LiSbF_6 ）、トリフルオロメタンスルホン酸リチウム（ $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{Li}$ ）、トリフルオロ酢酸リチウム（ CF_3COOLi ）、トリフルオロメタンスルホン酸イミドリチウム（ $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ ）等のリチウム塩が挙げられ、これらの1種以上を混合して用いることができる。

【0037】

ゲル電解質は、前記で選ばれた溶媒に電解質塩を溶解することによって電解液を調製し、上記有機化合物と混合し、重合させることによって得られる。

重合方法は、熱重合、光重合、放射線重合等が挙げられる。熱重合開始剤、光重合開始剤は当業者において公知のものを使用できる。また重合開始剤の量は、組成等によって適宜選択できる。

【0038】

【実施例】

以下、本発明の詳細を実施例により説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。なお、図面は説明のために厚さを誇張して表現している部分もあり、それぞれの厚みの関係は図面に拘束されるものではない。

【0039】

実施例 1

・正極層の作製

正極活物質にコバルト酸リチウム (LiCoO_2) を使用した。結着材であるポリフッ化ビニリデンを、一旦乳鉢で溶剤である N - メチル - 2 - ピロリドンに溶かして結着材溶液を得た。上記正極活物質とアセチレンブラックとを混合し、上記溶液に分散させ、ペーストを作製した。

【0040】

このようにして得られたペーストをアルミニウム箔からなる集電体の両面に塗布し、これを 60 で仮乾燥、150 で熱処理後プレスした。正極層の塗工部 $65 \times 65 \text{ mm}$ とし、無塗工部がタブの形状となるように集電体を打ち抜いた。更に水分除去のために 180 で減圧乾燥したものを正極層として用いた。塗布密度は 3.0 g/cm^3 、正極層総厚は $140 \mu\text{m}$ であった。また、同形状、同サイズで片面にのみ塗布されている正極層も同様に作成した。

10

【0041】

・負極層の作製

負極活物質に人造黒鉛 M C M B (粒径 $12 \mu\text{m}$ 、 $d(002) = 0.337 \text{ nm}$ 、 $R \text{ 値} = 0.4$) を、結着材であるポリフッ化ビニリデンを乳鉢で溶剤である N - メチル - 2 - ピロリドンに溶かした溶液に分散させ、ペースト状にしたものを、銅箔の両面に塗布し、これを 60 で仮乾燥、150 で熱処理後プレスした。負極層の塗工部 $64 \times 64 \text{ mm}$ とし、無塗工部がタブの形状となるようにプレス体を打ち抜いた。更に水分除去のために 200 で真空乾燥したものを負極層として用いた。塗布密度は 1.5 g/cm^3 、負極層の厚みは $130 \mu\text{m}$ であった。

20

【0042】

・電池素子の作製

1 M の LiPF_6 を溶解したエチレンカーボネート (以下 EC) とジエチルカーボネート (以下 DEC) の 1 : 1 (体積比) の溶媒 50 g に、ポリエチレンオキシド・ポリプロピレンオキシドとジアクリレートとの共重合体 (分子量 2000) 10 g を溶解し、重合開始剤を 0.06 g 加えた。

【0043】

この溶液をポリプロピレン製の不織布 (厚さ $16 \mu\text{m}$) に含浸させ、ガラス板に夾み、紫外線を照射することによりゲル化させ、ゲル電解質層を得た。

正極層、負極層は、上記溶液を各層に含浸し、ガラス板に挟み、紫外線を照射することによりゲル化させ、ゲル電解質複合電極とした。このようにして得られた電極及び電解質層を用い、負極層 2 枚、正極層 3 枚 (最外層は正極層の片面塗工電極)、電解質層 4 枚を積層し、電池素子を作製した。

30

【0044】

・ラミネート体及び電池の作製

金属層が厚い側のラミネート体として、厚み 0.8 mm のアルミ合金の板に接着層として、厚み $50 \mu\text{m}$ の変性ポリプロピレンフィルムを貼り付けたものを準備し、大きさを $70 \times 70 \text{ mm}$ とした。一方、薄い側のラミネート体として、厚み $80 \mu\text{m}$ のアルミ箔に接着層として $40 \mu\text{m}$ の変性ポリプロピレン、表面保護層として $30 \mu\text{m}$ の PET フィルムを貼り付けたものを準備した。これらのラミネート体に、上記電池素子を挟み、全体を減圧にし、ラミネート体の周縁部分を熱融着によって封止して、薄型電池を作製した。

40

【0045】

得られた電池を充電終止電圧 4.1 V 、 60 mA 電流値にて CC - CV 充電をおこなった。充電終止条件は電流値が減衰して設定電流の 5 % となった時点を充電終止とした。放電は 60 mA にて低電流放電を行い、放電終止電圧は 2.75 V とした。測定の結果、設定電流値の容量は 330 mAh であった。同じ電池を 5 個作製し、5 A の電流を流し続け、過充電試験を行った。すべての電池がラミネート体を構成する金属層が薄い面方向に膨れ、そのまま電流を流し続けた結果、すべてラミネート体を構成する金属層が薄い面方向に内容物が噴出した。

【0046】

50

比較例 1

実施例 1 における厚い側のラミネート体を、金属層が薄い側のラミネート体に変更した以外は実施例 1 と同様に電池を作製した。得られた電池は 330 mAh の容量であった。同じ電池を 5 個作製し、5 A の電流を流し続け、過充電試験を行った。すべての電池が表、裏とも均等に膨れ、そのまま電流を流し続けた結果、3 つと 2 つの割合で異なる面方向に内容物が噴出した。

【0047】

実施例 2

実施例 1 に記載の通り、正極層 6、負極層 8 及び電解質層 7 を作製し、負極層 3 枚、正極層 4 枚を積層して電池素子を作製した（図 2 参照）。0.8 mm のアルミ合金を筐体の形状にプレス加工したものを、厚い側の金属層とした以外は実施例 1 と同様に電池を作製した（図 1 参照）。作製した電池は筐体と一体化されている。筐体と電池を積層した総厚みは 2 mm であり、放電容量は 480 mAh であった。図 1 中、1 は薄い側の金属層、2 及び 4 は接着層、3 は電池素子、5 は筐体を意味する。図 2 は、図 1 の電池素子 3 の A 部に対応している。

【0048】

比較例 2

比較例 1 と同様に電池を作製した電池を実施例 2 に用いたアルミ合金と同じ形状の筐体に両面テープ（接着層）によって貼り付けた（図 3 参照）。両面テープの厚みが約 90 μm あり、全体の厚みは、実施例 2 とほぼ同じ 1.9 mm であった。得られた電池の容量は 330 mAh であった。図 3 中、9 は電池素子、10 は金属層、11 及び 12 は接着層、13 は筐体を意味する。

【0049】

これらの実施例と比較例からわかるように、薄型の電池においては、電池缶に比べ厚みを薄くすることが可能なラミネート体を用いたとしても、そのラミネート体の占める割合が大きい。更に機器の筐体に貼り付けた場合、両面テープ等の更なる接着層が必要となり、その分の厚みを考慮することが必要となるため、結局、電池素子一組分程度の厚みが無駄になってしまう。その無駄は非常に大きく、上記実施例と比較例では同じ厚みであっても電池容量は約 1.5 倍異なることとなる。従って、積層枚数が限られている薄型電池では、機器への実装厚みを同じにすることを考えた場合、電池容量が大きく異なることは明らかである。

【0050】

更に、上記実施例、比較例では MD サイズの電池で比較しているが、これがパソコンサイズの B5、A4 サイズになると電池容量の大きさはかなり差が出てくることになる。

なお、今回は全体の厚みが同じになるように電池を設計したが、同じ容量の電池となるように設計した場合は全体の厚みを薄くできることは言うまでもない。

【0051】

【発明の効果】

厳しく薄型化が要求される中で、薄型機器の電源として、ラミネート体の厚みを電池素子に置き換えることによって、大きくエネルギー密度が向上し、ひいては薄型の携帯機器の使用時間を大幅に延ばすことが可能となる。また、同じ電池容量で十分な場合は、電池を含めた機器の厚みを薄くできる。また、異常時においても、内容物の噴出方向が特定されているので、ユーザーに対する安全性があがる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の薄型二次電池の概略断面図である。

【図 2】本発明の薄型二次電池の電池素子の概略断面図である。

【図 3】従来の薄型二次電池の概略断面図である。

【符号の説明】

1 薄い側の金属層

2、4、11、12 接着層

10

20

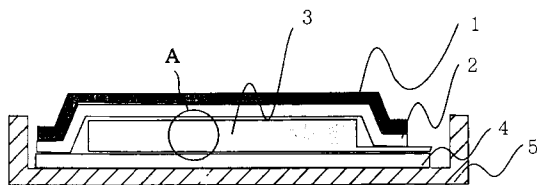
30

40

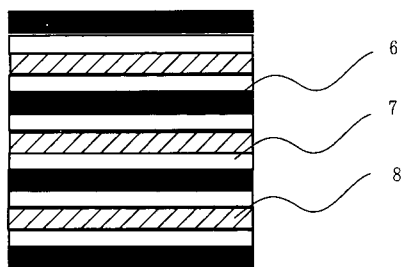
50

- 3、9 電池素子
- 5、13 筐体
- 6 正極層
- 7 電解質層
- 8 負極層
- 10 金属層

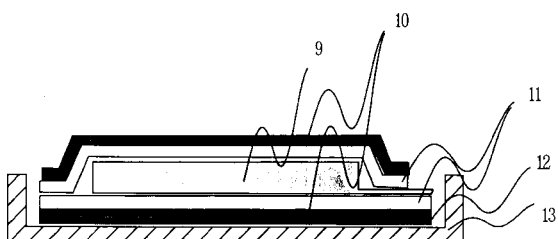
【図1】



【図2】



【図3】



フロントページの続き

- (72)発明者 松村 浩至
大阪府大阪市阿倍野区長池町 2 2 番 2 2 号 シャープ株式会社内
- (72)発明者 鈴江 秀雄
大阪府大阪市阿倍野区長池町 2 2 番 2 2 号 シャープ株式会社内
- (72)発明者 浅井 重美
大阪府大阪市阿倍野区長池町 2 2 番 2 2 号 シャープ株式会社内

審査官 須田 裕一

- (56)参考文献 特開 2 0 0 0 - 7 7 0 4 3 (J P , A)
特開 2 0 0 0 - 3 4 8 6 9 3 (J P , A)
特開平 1 1 - 1 9 5 4 0 4 (J P , A)
実開昭 6 3 - 3 2 4 5 4 (J P , U)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

H01M 2/02
H01M 2/10