



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公開本

(11) 公開編號：TW 202411388 A

(43) 公開日：中華民國 113 (2024) 年 03 月 16 日

(21) 申請案號：112127018

(22) 申請日：中華民國 112 (2023) 年 07 月 20 日

(51) Int. Cl. : C09J133/26 (2006.01)

C09J133/02 (2006.01)

H01M4/62 (2006.01)

(30) 優先權：2022/07/20 日本

2022-115668

(71) 申請人：日商哈利瑪化成股份有限公司 (日本) HARIMA CHEMICALS, INCORPORATED
(JP)

日本

(72) 發明人：堀井忠昭 HORII, TADAAKI (JP)；井上尚哉 INOUE, NAOYA (JP)；栗原隆紀
KURIHARA, TAKANORI (JP)；中村一郎 NAKAMURA, ICHIRO (JP)

(74) 代理人：張耀暉；李元戎

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：7 項 圖式數：0 共 31 頁

(54) 名稱

鋰離子電池電極用黏合劑組成物

(57) 摘要

本發明之目的在於提供一種鋰離子電池電極用黏合劑組成物，至少含有單體成分的聚合物亦即聚(甲基)丙烯醯胺共聚物，該聚(甲基)丙烯醯胺共聚物含有(甲基)丙烯醯胺單體與含不飽和羧酸基單體作為單體單元，單體成分相對於其總量 100 莫耳%，含有 30 莫耳%至 80 莫耳%的(甲基)丙烯醯胺單體及 20 莫耳%至 70 莫耳%的含不飽和羧酸基單體，聚(甲基)丙烯醯胺共聚物的固有黏度為 3.5dL/g 至 7.5dL/g。

【發明摘要】

【中文發明名稱】 鋰離子電池電極用黏合劑組成物

【中文】

本發明之目的在於提供一種鋰離子電池電極用黏合劑組成物，至少含有單體成分的聚合物亦即聚(甲基)丙烯醯胺共聚物，該聚(甲基)丙烯醯胺共聚物含有(甲基)丙烯醯胺單體與含不飽和羧酸基單體作為單體單元，單體成分相對於其總量100莫耳%，含有30莫耳%至80莫耳%的(甲基)丙烯醯胺單體及20莫耳%至70莫耳%的含不飽和羧酸基單體，聚(甲基)丙烯醯胺共聚物的固有黏度為3.5dL/g至7.5dL/g。

【指定代表圖】 無。

【發明說明書】

【中文發明名稱】 鋰離子電池電極用黏合劑組成物

【技術領域】

【0001】 本發明係關於一種鋰離子電池電極用黏合劑組成物。

【先前技術】

【0002】 近年來，為了進一步提升鋰離子電池的性能，已經積極地對電極用材料的改良進行研究。通常，鋰離子電池的電極通過將漿料組成物塗佈在集電體上並使其乾燥而形成，前述漿料組成物含有粉末狀的電極活性物質與用於使該電極活性物質分散在溶劑中並使其黏接在集電體上的黏合劑組成物。

【0003】 以往作為這樣的黏合劑組成物，廣泛使用PVDF(聚偏二氟乙烯)、SBR(苯乙烯-丁二烯橡膠)/CMC(羧甲基纖維素)等樹脂黏合劑，但隨著鋰離子電池的高性能化，期望具有其黏接力比該等樹脂黏合劑更強的黏合劑。

【0004】 此外，存在一種黏合劑組成物的提案，其具有包含(甲基)丙烯醯胺單體與含酸基單體的水溶性聚合物，水溶性聚合物的含酸基單體單元的含有比例為5質量%以上至70質量%以下，水溶性聚合物中，慣性半徑200nm以下的水溶性聚合物的比例為95質量%以上至100質量%以下。而且，還記載了藉由使用這樣的黏合劑組成物，能夠提升非水系二次電池的低溫特性(例如，參照專利文獻1)。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】

[專利文獻1] 國際公開第2017/163806號。

【發明內容】

[發明所欲解決之課題]

【0006】 然而，在上述專利文獻1中記載的黏合劑組成物中，含有該黏合劑組成物的漿料組成物的沉降穩定性(Sedimentation stability)不充分，此外，在漿料組成物中發生凝聚，缺乏漿料組成物的塗佈性，此乃問題之所在。

【0007】 鑑於此，本發明為鑑於上述問題而完成者，其目的在於提供一種鋰離子電池電極用黏合劑組成物，利用它能夠得到具有優異的沉降穩定性與塗佈性的鋰離子電池電極用漿料組成物，並且能夠得到電極複合材料層對集電體的黏著性優異的鋰離子電池用電極。

[用以解決課題之手段]

【0008】 為了達成上述目的，本發明的鋰離子電池電極用黏合劑組成物至少含有單體成分的聚合物亦即聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物，該聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物含有(甲基)丙烯酸醯胺單體與含不飽和羧酸基單體作為單體單元，單體成分相對於其總量100莫耳%，含有30莫耳%至80莫耳%的(甲基)丙烯酸醯胺單體及20莫耳%至70莫耳%的含不飽和羧酸基單體，聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的固有黏度為3.5dL/g至7.5dL/g。

[發明功效]

【0009】 利用本發明的鋰離子電池電極用黏合劑組成物，能夠提供一種具有優異的沉降穩定性與塗佈性的鋰離子電池電極用漿料組成物，並且能夠提供一種電極複合材料層對集電體的黏著性優異的鋰離子電池用電極。

【實施方式】

【0010】 以下，對本發明的鋰離子電池電極用黏合劑組成物進行說明。

【0011】本發明的鋰離子電池電極用黏合劑組成物至少含有單體成分的聚合物亦即聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物，該聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物含有(甲基)丙烯酸醯胺單體與含不飽和羧酸基單體作為單體單元。

【0012】〈(甲基)丙烯酸醯胺單體〉

形成(甲基)丙烯酸醯胺單體單元的(甲基)丙烯酸醯胺單體是來源於含有(甲基)丙烯酸醯胺基的化合物的單體，作為(甲基)丙烯酸醯胺單體，例如能舉例：丙烯酸醯胺、甲基丙烯酸醯胺。需要說明的是，(甲基)丙烯酸醯胺單體可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。

於此所說的「(甲基)丙烯酸」被定義為丙烯酸與/或甲基丙烯酸。

【0013】相對於單體成分(亦即，(甲基)丙烯酸醯胺單體、含不飽和羧酸基單體以及後述的其他聚合性單體)的總量100莫耳%，(甲基)丙烯酸醯胺單體的含量為30莫耳%至80莫耳%。

【0014】這是因為，在小於30莫耳%的情況下，推測聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的親水性變高，聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物對疏水性活性物質的分散性變得不充分，因此而存在在漿料組成物中發生大量的沉降，沉降穩定性降低的情況。在多於80莫耳%的情況下，推測電荷的排斥引起的聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的擴展(體積增大)變得不充分，不會作為立體阻礙(steric hindrance)發揮作用，導致活性物質凝聚，因此在漿料組成物中發生大量的沉降，沉降穩定性降低，並且電荷的排斥引起的聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的擴展變得不充分，能夠有助於黏接的取代基變少，因此而存在電極複合材料層對集電體的黏著性(密接強度)降低的情況。

【0015】 需要說明的是，相對於單體成分的總量100莫耳%，(甲基)丙烯醯胺單體單元的含量較佳為40莫耳%至80莫耳%。從提升電極複合材料層對集電體的黏著性的觀點來看，更佳為45莫耳%至75莫耳%。

【0016】 <含不飽和羧酸基單體>

形成含不飽和羧酸基單體單元的含不飽和羧酸基單體是源於不飽和羧酸或其鹽的陰離子性聚合性單體，作為具有不飽和羧酸基的單體，例如能舉例：丙烯酸、甲基丙烯酸、巴豆酸等 α ， β -不飽和單羧酸系的單體；馬來酸、反丁烯二酸、衣康酸、檸康酸等的 α ， β -不飽和二羧酸系的單體。作為不飽和羧酸的鹽，例如能舉例：不飽和羧酸的鈉鹽、鉀鹽、鋰鹽、銨鹽等。需要說明的是，含不飽和羧酸基單體可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。作為含不飽和羧酸基單體，較佳能舉例 α ， β -不飽和單羧酸系的單體，更佳為丙烯酸、甲基丙烯酸。

【0017】 相對於單體成分的總量100莫耳%，含不飽和羧酸基單體的含量為20莫耳%至70莫耳%。在少於20莫耳%的情況下，推測電荷的排斥引起的聚(甲基)丙烯醯胺共聚物的擴展變得不充分，不會作為立體阻礙發揮作用，導致活性物質凝聚，因此在漿料組成物中發生大量的沉降，沉降穩定性降低，並且電荷的排斥引起的聚(甲基)丙烯醯胺共聚物的擴展變得不充分，能夠有助於黏接的取代基變少，因此存在電極複合材料層對集電體的黏著性(密接強度)降低的情況。在多於70莫耳%的情況下，推測聚(甲基)丙烯醯胺共聚物的親水性變高，對疏水性的活性物質的分散性變得不充分，因此而存在在漿料組成物中發生大量的沉降，沉降穩定性降低的情況。

【0018】 需要說明的是，相對於單體成分的總量100莫耳%，含不飽和羧酸基單體的含量較佳為20莫耳%至60莫耳%，從提升電極複合材料層對集電體的黏著性的觀點來看，更佳為25莫耳%至55莫耳%。

【0019】 在本發明中，除了上述的(甲基)丙烯醯胺單體與含不飽和羧酸基單體以外，作為任意成分還能夠含有其他的聚合性單體。作為其他的聚合性單體，例如能舉例：非離子性聚合性單體或交聯性單體、陰離子性聚合性單體(含不飽和羧酸基單體除外)等。

【0020】 <非離子性聚合性單體>

作為非離子性聚合性單體，例如能舉例：苯乙烯、 α -甲基苯乙烯、(甲基)丙烯酸腈、烷基(甲基)丙烯酸酯、羥烷基(甲基)丙烯酸酯、二丙酮丙烯醯胺、聚伸烷二醇(甲基)丙烯酸酯、甘油單(甲基)丙烯酸酯、乙烯基吡咯烷酮、乙烯基噁唑啉、乙酸乙烯酯、丙烯醯基嗎啉等。需要說明的是，非離子性聚合性單體可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。

【0021】 作為烷基(甲基)丙烯酸酯，能舉例：甲基(甲基)丙烯酸酯、乙基(甲基)丙烯酸酯、n-丙基(甲基)丙烯酸酯、異丙基(甲基)丙烯酸酯、n-丁基(甲基)丙烯酸酯、異丁基(甲基)丙烯酸酯、sec-丁基(甲基)丙烯酸酯、三級-丁基(甲基)丙烯酸酯、戊基(甲基)丙烯酸酯、新戊基(甲基)丙烯酸酯、異戊基(甲基)丙烯酸酯、己基(甲基)丙烯酸酯、庚基(甲基)丙烯酸酯、辛基(甲基)丙烯酸酯、異辛基(甲基)丙烯酸酯、2-乙基己基(甲基)丙烯酸酯、壬基(甲基)丙烯酸酯、異壬基(甲基)丙烯酸酯、癸基(甲基)丙烯酸酯、十二烷基(甲基)丙烯酸酯、十三烷基(甲基)丙烯酸酯、十四烷基(甲基)丙烯酸酯、1-甲基十三烷基(甲基)丙烯酸酯、十六烷基(甲基)丙烯酸酯、十八烷基(甲基)丙烯酸酯(硬脂醯(甲基)丙烯酸酯)、異硬脂醯(甲基)

丙烯酸酯、二十烷基(甲基)丙烯酸酯、二十二烷基(英：Docosyl)(甲基)丙烯酸酯、二十二烷基(英：Behenyl)(甲基)丙烯酸酯、二十四烷基(甲基)丙烯酸酯、三十烷基(甲基)丙烯酸酯、環己基(甲基)丙烯酸酯等的碳原子數為1至30的直鏈狀、支鏈狀或環狀的烷基的(甲基)丙烯酸酯單體等。

【0022】 在含有非離子性聚合性單體的情況下，相對於單體成分的總量100莫耳%，非離子性聚合性單體的含量較佳為1莫耳%至40莫耳%，更佳為1莫耳%至30莫耳%。

【0023】 <交聯性單體>

作為交聯性單體，例如能舉例：含有醯胺基的交聯性單體(例如，亞甲基雙(甲基)丙烯醯胺、乙烯雙(甲基)丙烯醯胺、烯丙基(甲基)丙烯醯胺、羥乙基丙烯醯胺、N-取代丙烯醯胺系單體(例如，N，N-二甲基丙烯醯胺、N，N-二乙基丙烯醯胺、N-羥甲基丙烯醯胺、二丙酮丙烯醯胺、異丙基丙烯醯胺)、三丙烯醯甲縮醛(英：triacrylformal)、含有醯亞胺基的交聯性單體(例如，二丙烯醯基醯亞胺等)、不含氮的雙官能性交聯劑(例如，二乙烯苯、乙二醇二(甲基)丙烯酸酯二甘醇二(甲基)丙烯酸酯、三甘醇二(甲基)丙烯酸酯、烯丙基(甲基)丙烯酸酯等)、不含氮的多官能性交聯劑(例如，三丙烯酸季戊四醇、三羥甲基丙烷丙烯酸酯、四烯丙氧基乙烷等)。需要說明的是，交聯性單體可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。

【0024】 在含有交聯性單體的情況下，相對於單體成分的總量100莫耳%，交聯性單體的含量較佳為0.01莫耳%至10莫耳%，更佳為0.01莫耳%至5莫耳%，尤佳為0.01莫耳%至2莫耳%。

【0025】 <陰離子性聚合性單體>

作為陰離子性聚合性單體，能舉例：具有乙烯基的磺酸系單體，例如乙烯基磺酸、苯乙烯磺酸、2-丙烯醯胺-2-甲基丙磺酸等。也能夠使用具有乙烯基的磺酸系單體的鈉鹽、鉀鹽、鋰鹽、銨鹽等鹽。

【0026】 能夠在不損及本發明的功效的範圍內適當添加陰離子性聚合性單體。

【0027】 除了上述非離子性聚合性單體或交聯性單體、陰離子性聚合性單體以外，在不損及本發明的功效的範圍內，還可以添加陽離子性聚合性單體。陽離子性聚合性單體例如能舉例：第三級胺基系聚合性單體、第四級銨基系聚合性單體等。

【0028】 作為第三級胺基系聚合性單體，是具有第三級胺基的聚合性單體(非四級化物)，例如能舉例：具有第三級胺基的(甲基)丙烯酸酯衍生物、具有第三級胺基的(甲基)丙烯醯胺衍生物等。作為具有第三級胺基的(甲基)丙烯酸酯衍生物，例如能舉例：二烷基氨基乙基(甲基)丙烯酸酯(例如，二甲基氨基乙基(甲基)丙烯酸酯)、二烷基氨基丙基(甲基)丙烯酸酯等。作為具有第三級胺基的(甲基)丙烯醯胺衍生物，例如能舉例：二烷基氨基(甲基)丙烯醯胺(例如，二烷基氨基丙基(甲基)丙烯醯胺(例如，二甲基氨基丙基(甲基)丙烯醯胺等)、(甲基)丙烯醯胺-3-甲基丁基二甲胺等)等。

【0029】 作為第四級銨基系聚合性單體，是具有第四級銨基且具有乙烯性雙鍵的陽離子性的共聚性單體，例如能舉例：上述第三級胺基系聚合性單體的四級化物等。作為第三級胺基系聚合性單體的四級化物，例如能舉例：將上述第三級胺基系聚合性單體的第三級胺基，用甲基氯(氯化甲烷)、甲基溴、苄基氯

(氯化苄)、苄基溴、二甲基硫酸、環氧氯丙烷等四級化而得到的四級化物(四級化鹽)等。

【0030】 <聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的製造方法>

接著，對本發明的聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的製造方法的一例進行詳細說明。

在製造聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物時，使包含上述的(甲基)丙烯酸醯胺單體與含不飽和羧酸基單體以及其他單體的單體成分共聚。為了使這些單體成分共聚，例如，在規定的反應容器中加入單體成分、聚合引發劑及溶劑，使其反應。需要說明的是，在該方法中，單體成分可以一次性投入，也可以分多次分批投入。也可以一邊將聚合引發劑的一部分或全部滴加到反應容器中，一邊使反應進行。

【0031】 作為聚合引發劑，例如能舉例自由基聚合引發劑，更具體而言，能舉例：過氧化物系化合物、硫化物類、亞磺類、亞磺酸類等，較佳為過氧化物系化合物。需要說明的是，過氧化物系化合物也可以與還原劑並用，作為氧化還原系聚合引發劑使用。需要說明的是，這些聚合引發劑可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。

【0032】 作為過氧化物系化合物，例如能舉例：有機過氧化物、無機過氧化物等，較佳為無機過氧化物。

【0033】 作為有機過氧化物，例如能舉例：苯甲醯基過氧化物、月桂醯基過氧化物、乙醯基過氧化物、辛醯基過氧化物、2,4-二氯苯甲醯基過氧化物、異丁基過氧化物、乙醯基環己基磺醯基過氧化物、三級-丁基過氧基新戊酸酯、三級-丁基過氧基-2-己酸乙酯、1,1-二-三級-丁基過氧基環己烷、1,1-二-三級-丁基過氧基-3,3,5-三甲基環己烷、1,1-二-三級-己基過氧基-3,3,5-三甲基環己烷、異丙基過氧基二碳酸酯、異丁基過氧基二碳酸酯、s-丁基過氧基二碳酸酯、n-丁基過

氧基二碳酸酯、2-乙基己基過氧基二碳酸酯、雙(4-三級-丁基環己基)過氧基二碳酸酯、三級-戊基過氧基-2-己酸乙酯、1,1,3,3-四甲基丁基過氧基-己酸乙酯、1,1,2-三甲基丙基過氧基-2-己酸乙酯、三級-丁基過氧基異丙基單碳酸酯、三級-戊基過氧基異丙基單碳酸酯、三級-丁基過氧基-2-乙基己基碳酸酯、三級-丁基過氧基烯丙基碳酸酯、三級-丁基過氧基異丙基碳酸酯、1,1,3,3-四甲基丁基過氧基異丙基單碳酸酯、1,1,2-三甲基丙基過氧基異丙基單碳酸酯、1,1,3,3-四甲基丁基過氧基異酞酸酯(英：1,1,3,3-tetramethylbutyl peroxy isononate)、1,1,2-三甲基丙基過氧基-異酞酸酯(英：1,1,2-trimethylpropyl peroxy isononate)、三級-丁基過氧基苯甲酸酯等。

【0034】 作為無機過氧化物，例如能舉例：過硫酸鈉、過硫酸鉀、過硫酸銨等過硫酸鹽；過氧化氫、過錳酸鉀、溴酸鈉、溴酸鉀等溴酸鹽；過硼酸鈉、過硼酸鉀、過硼酸銨等過硼酸鹽；過碳酸鈉、過碳酸鉀、過碳酸銨等過碳酸鹽；過磷酸鈉、過磷酸鉀、過磷酸銨等過磷酸鹽等。

【0035】 作為聚合引發劑，也能夠使用偶氮基系化合物。作為偶氮基系化合物，例如能舉例：2,2'-偶氮基雙異丁腈、2,2'-偶氮雙(2-甲基戊酮脒)及其鹽等。

【0036】 作為聚合引發劑，較佳能舉例無機過氧化物，更佳能舉例過硫酸鹽，尤佳能舉例過硫酸銨。

【0037】 需要說明的是，相對於單體成分的總量100質量份，聚合引發劑的添加比例例如較佳為0.01質量份至10質量份，更佳為0.05質量份至5質量份。

【0038】 作為溶劑，能舉例：水、酮系溶劑(例如，丙酮、甲基乙基酮)、一元醇系溶劑(例如，甲醇、乙醇、丙醇、異丙醇、丁醇)、乙二醇醚系溶劑(例如，乙二醇單乙醚、丙二醇單甲醚)、能夠與水混合的溶劑(例如，丙二醇單甲醚

乙酸酯等酯醚類溶劑)，較佳能舉例水。需要說明的是，在使用自來水作為溶劑的情況下，也能夠以規定的比例添加螯合劑(乙二胺四乙酸等)來去除金屬。需要說明的是，這些溶劑可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。溶劑的添加比例並沒有特別限制，能夠根據目的及用途進行適當設定。

【0039】 在該方法中，能夠與上述單體成分、聚合引發劑以及溶劑一起，進一步地適當添加鏈轉移劑。

【0040】 作為鏈轉移劑，例如能舉例：(甲基)烯丙基磺酸鹽等(甲基)烯丙基化合物；巯乙醇、氫硫基乙酸、巯戊酮酸、硫柳酸、硫代乳酸、胺乙硫醇、硫甘油、硫代蘋果酸等巯類；異丙醇等。需要說明的是，這些鏈轉移劑可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。

【0041】 於此所說的「(甲基)烯丙基」被定義為烯丙基與/或甲代烯丙基。

【0042】 作為(甲基)烯丙基磺酸鹽，例如能舉例：烯丙基磺酸鈉、甲代烯丙基磺酸鈉、烯丙基磺酸鉀、甲代烯丙基磺酸鉀等。

【0043】 在添加鏈轉移劑時，相對於單體成分的總量(100質量份)，鏈轉移劑的添加比例較佳為0.001質量份至0.4質量份，更佳為0.008質量份至0.36質量份，尤佳為0.008質量份至0.27質量份。

【0044】 製造聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物時的聚合條件根據單體成分、聚合引發劑、溶劑等的種類而不同，聚合溫度例如較佳為30°C以上至100°C以下，更佳為50°C以上至95°C以下。

【0045】 聚合時間例如較佳為0.5小時以上至24小時以下，更佳為1小時以上至12小時以下。需要說明的是，可以視需求，藉由添加已知的聚合終止劑(例

如，焦亞硫酸鈉、硫代硫酸鈉、亞硫酸鈉、4-甲氧苯酚、硫脲等)來終止聚合反應。

【0046】 聚合時的反應溶液的pH值例如較佳為1以上至6以下，更佳為1.5以上至5以下。需要說明的是，pH值能夠藉由添加鹽酸、硫酸、磷酸等公知的酸類或氫氧化鈉、氫氧化鉀、氫氧化鋰等公知的鹼類來進行調整。

【0047】 藉由用中和劑處理藉由聚合得到的聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物，可以進行含聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物與水的反應溶液(亦即，鋰離子電池電極用黏合劑組成物)的pH值的調整。作為中和劑，例如能舉例：氫氧化鈉、氫氧化鉀、氫氧化鋰等鹼金屬氫氧化物、以及氨或有機胺等。調整後的pH值較佳為2至11，更佳為6至8。

【0048】 而且，藉由這樣的反應，製得單體成分的聚合物亦即聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物，該聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物含有(甲基)丙烯酸醯胺單體與含不飽和羧酸基單體作為單體單元，由此而能夠得到含有聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的鋰離子電池電極用黏合劑組成物。

【0049】 聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的固有黏度為3.5 dL/g至7.5dL/g。這是因為，在小於3.5dL/g的情況下，存在電極複合材料層對集電體的黏著性(密接強度)降低的情況。在大於7.5dL/g的情況下，在漿料組成物中，聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物相對於導電助劑的凝聚作用提升，因此而存在漿料組成物的塗佈性降低的情況。

【0050】 亦即，在本發明的鋰離子電池電極用黏合劑組成物中，聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的固有黏度為3.5dL/g 至7.5dL/g，因此能夠提供具有優異的塗佈

性的鋰離子電池電極用漿料組成物，並且能夠提供電極複合材料層對集電體的黏著性優異的鋰離子電池用電極。

【0051】 需要說明的是，從提升電極複合材料層對集電體的黏著性與漿料組成物的塗佈性的觀點來看，聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的固有黏度較佳為4.2dL/g以上至6.5dL/g以下。

【0052】 於此所說的「固有黏度」為表示一個高分子的分子量或溶液中的分子鏈的擴展的特性值，意指高分子在溶液中所占的每單位重量的體積，能夠藉由後述實施例中記載的膠透層析術(GPC)算出。

【0053】 聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的重量平均分子量(Mw)較佳為200萬以上至400萬以下。這是因為，推測在重量平均分子量小於200萬的情況下，聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的分子尺寸不充分，無法作為立體阻礙發揮作用，導致活性物質凝聚，因此而存在在漿料組成物中發生大量的沉降，沉降穩定性降低的情況。在重量平均分子量大於400萬的情況下，則存在電極複合材料層對集電體的黏著性降低的情況。

【0054】 需要說明的是，聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的重量平均分子量能夠根據例如聚合成分亦即上述(甲基)丙烯酸醯胺單體、含不飽和羧酸基單體、以及其他聚合性單體的種類或添加量等進行適當調整。

【0055】 於此所說的「重量平均分子量」是指在膠透層析術(GPC)測量中得到的重量平均分子量，能夠藉由後述的實施例中記載的方法求出。

【0056】 在本發明的鋰離子電池電極用黏合劑組成物中，在將聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的固有黏度設為X[dL/g]、將聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的重量平均分子量設為Y[百萬]時，較佳為下述式(1)的關係成立。

[式1]

$$1.35 \leq X/Y \leq 2.05 \dots (1)$$

【0057】 這是因為，X/Y為1.35以上的情況下，電極複合材料層對集電體的黏著性(密接強度)進一步提升，X/Y為2.05以下的情況下，漿料組成物的塗佈性進一步提升。

【0058】 在含有聚(甲基)丙烯醯胺共聚物的黏合劑組成物中，能夠視需求含有分散劑、調平劑、抗氧化劑、增黏劑、防腐劑(例如黏質控制劑)、防銹劑、消泡劑等添加劑。

【0059】 需要說明的是，添加這些添加劑時，相對於黏合劑組成物的總量100質量%，添加劑的含量較佳為5質量%以下。

【0060】 <鋰離子電池電極用漿料組成物>

本發明的鋰離子電池電極用漿料組成物至少含有上述的鋰離子電池電極用黏合劑組成物與電極活性物質。

【0061】 電極活性物質只要是藉由在電解質中施加電位而能夠可逆地嵌入及脫嵌鋰離子的物質即可，並無特別限定，作為該電極活性物質，能舉例：負極活性物質與正極活性物質。需要說明的是，這些電極活性物質可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。

【0062】 作為負極活性物質，例如能舉例：石墨、焦炭、乙炔黑、介向微碳珠等碳材料；鋰金屬、鋰-矽、鋰-錫等鋰合金；鈦酸鋰、硅、以及矽氧化物等。

【0063】 作為正極活性物質，例如能舉例Fe、Co、Ni、Mn等過渡金屬的氧化物、Fe、Co、Ni、Mn等過渡金屬與鋰的複合氧化物、過渡金屬硫化物等。

【0064】相對於鋰離子電池電極用漿料組成物的固體成分的總量100質量%，鋰離子電池電極用黏合劑組成的含量較佳為0.5質量%至10質量%，更佳為0.8質量%至5質量%。

【0065】在本發明的鋰離子電池電極用漿料組成物中，除了上述鋰離子電池電極用黏合劑組成物與電極活性物質以外，還能夠含有導電助劑或導電助劑用分散劑、黏度調整用溶劑、塗佈性調整用溶劑、增黏劑、pH調整劑、防腐蝕劑等公知的其他成分。

【0066】需要說明的是，添加這些其他成分時，相對於鋰離子電池電極用漿料組成物的總量100質量%，其他成分的含量較佳為5質量%以下。

【0067】作為導電助劑，例如能舉例乙炔黑或科琴黑等碳黑、氣相生長碳纖維、奈米碳管等導電性碳、平均粒徑10 μm 以下的由Cu、Ni、Al、Si或由它們的合金製成的微粉末等。

【0068】在添加導電助劑的情況下，相對於鋰離子電池電極用漿料組成物的固體成分的總量100質量%，導電助劑的含量較佳為0質量%至5質量%，更佳為0.5質量%至2質量%。

【0069】本發明的鋰離子電池電極用漿料組成物中也可以含有上述的含聚(甲基)丙烯醯胺共聚物的鋰離子電池電極用黏合劑組成物以外的其他黏合劑組成物，但全黏合劑中的聚(甲基)丙烯醯胺共聚物的含量較佳為50質量%以上。

【0070】作為其他黏合劑組成物，例如能示例含有以下物質的黏合劑組成物：氟系樹脂(聚偏二氟乙烯、聚四氟乙烯等)、聚烯烴(聚乙烯、聚丙烯等)、具有不飽和鍵的聚合物(苯乙烯-丁二烯橡膠、異戊二烯橡膠、丁二烯橡膠等)、羧

甲基纖維素鹽、聚乙烯醇共聚物、聚乙烯吡咯烷酮等。需要說明的是，這些黏合劑組成物可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。

【0071】 <鋰離子電池電極用漿料組成物的製造方法>

作為鋰離子電池電極用漿料組成物的製造方法，例如能舉例：將上述鋰離子電池電極用黏合劑組成物、電極活性物質以及導電助劑等投入容器中進行混合的方法。

【0072】 需要說明的是，漿料組成物的混合裝置並無特別限定，能舉例：自轉-公轉混合機、球磨機、砂磨機、均質機、行星式攪拌機、霍巴特攪拌機等。

【0073】 <鋰離子電池用電極>

本發明的鋰離子電池用電極藉由將上述鋰離子電池電極用漿料組成物塗佈在集電體上並使其乾燥而得到，在集電體上具有鋰離子電池電極用漿料組成物所形成的電極複合材料層。

【0074】 集電體並無特別限定，例如能舉例：銅、鐵、鋁、鎳、鈦、金、鈹、鉑、不鏽鋼、鍍鎳鋼等金屬材料；碳布、碳紙等碳材料。需要說明的是，作為負極用集電體，較佳使用由銅形成的集電體，作為正極用集電體，較佳使用由鋁形成的集電體。

【0075】 電極複合材料層例如能夠藉由將所製備的鋰電池電極用漿料組成物塗佈在集電體的兩面上或單面上後，在規定的溫度(例如80°C)下進行規定時間(例如60分鐘)的乾燥來形成。需要說明的是，從得到具有所需要的密度的電極複合材料層的觀點來看，較佳使用輥壓機等進行加壓處理。

【0076】電極複合材料層的厚度並無特別限定，較佳為 $5\mu\text{m}$ 至 $300\mu\text{m}$ ，更佳為 $10\mu\text{m}$ 至 $250\mu\text{m}$ 。藉由設為該範圍的厚度，容易得到相對於高密度的電流值的充分的鋰離子嵌入/脫嵌功能。

【0077】集電體的形態並無特別限定，在金屬材料的情況下，可以使用金屬箔、金屬圓柱、金屬線圈、金屬板等；在碳材料的情況下，可以使用碳板、碳薄膜、碳圓柱等。

【0078】作為塗佈方法，能舉例以下方法：使用逗點塗佈機(comma coater)、凹版塗佈機、微凹版塗佈機、模塗佈機、棒塗佈機(bar coater)、塗佈器(applicator)等塗裝裝置進行的塗佈方法。

【0079】作為乾燥時的溫度，較佳為 60°C 至 200°C ，更佳為 75°C 至 195°C 。需要說明的是，乾燥時的環境氣體只要是乾燥空氣或惰性環境氣體即可。

【0080】<鋰離子電池>

本發明的鋰離子電池包括上述的鋰離子電池用電極(正極及負極)、隔膜以及電解液。

【0081】隔膜只要是能夠將正極與負極電絕緣、且能夠保持電解液的材料即可，並無特別限定。例如能舉例：由聚乙烯、聚丙烯等聚烯烴樹脂、聚對苯二甲酸乙二酯等聚酯樹脂、聚醯胺、聚醯醯亞胺等形成的單層或多層的多孔膜、不織布等。

【0082】電解液能舉例：在非水系溶劑中溶解有支援電解質的非水系電解液等。作為非水系溶劑，例如能舉例：碳酸二乙基酯、碳酸二甲基酯、碳酸甲基乙基酯等鏈狀碳酸酯溶劑；碳酸乙烯酯、碳酸丙烯酯、碳酸丁烯酯等環狀碳酸酯溶劑；1, 2-二甲氧基乙烷等鏈狀醚溶劑；四氫呋喃、2-甲基四氫呋喃、環

丁砜、1,3-二氧戊環等環狀醚溶劑；甲酸甲酯、乙酸甲酯、丙酸甲酯等鏈狀酯溶劑； γ -丁內酯、 γ -戊內酯等環狀酯溶劑；以及乙腈等。需要說明的是，電解液可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上，然而，較佳為含有環狀碳酸酯與鏈狀碳酸酯的混合溶劑的組合。

【0083】 支援電解質使用鋰鹽。作為鋰鹽，例如能示例： LiPF_6 、 LiAsF_6 、 LiBF_4 、 LiSbF_6 、 LiAlCl_4 、 LiClO_4 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{Li}$ 、 $\text{C}_4\text{F}_9\text{SO}_3\text{Li}$ 、 CF_3COOLi 、 $(\text{CF}_3\text{CO})_2\text{NLi}$ 、 $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{NLi}$ 、 $(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)\text{NLi}$ 等。其中，較佳為易溶於溶劑且顯示出高解離度的 LiPF_6 、 LiClO_4 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{Li}$ 。使用的支援電解質的解離度越越高，鋰離子導電度越高，因此能夠根據支援電解質的種類來調節鋰離子導電度。需要說明的是，這些支援電解質可以單獨使用一種，也可以並用兩種以上。

【0084】 鋰離子電池的形態並無特別限定，例如能舉例：將片狀電極及隔膜形成為螺旋狀的圓筒型、將顆粒電極及隔膜組合而成的翻面結構(inside-out structure)的圓筒型、將顆粒電極及隔膜積層而成的硬幣型等。藉由將該等形態的電池收納在任意的外殼中，能夠製成硬幣型、圓筒型、方型等任意形狀加以使用。

【0085】 鋰離子電池的製造方法並無特別限定，只要根據電池的結構以適當的步驟組裝即可。例如，將負極放置在外殼上，在其上設置電解液與隔膜，進而以與負極相對的方式放置正極，藉由墊圈、封口板進行固定，由此便能夠製造出鋰離子電池。

【0086】 -[實施例-]

以下根據實施例說明本發明。需要說明的是，本發明並不限定於該等實施例，可根據本發明主旨對該等實施例進行變形、改變，該等變形、改變亦包括在本發明之發明範疇內。

【0087】 (實施例1)

<鋰離子電池電極用黏合劑組成物的製作>

作為聚合成分的一部分，準備表1中記載的聚合成分(丙烯醯胺、丙烯酸、N，N-二甲基丙烯醯胺)的加入總量的85mol%(含有表1所示的甲代烯丙基磺酸鈉)，用蒸餾水進行了稀釋，使聚合成分的濃度達到14質量%。

【0088】 接著，將得到的溶液裝入500mL的可分離式燒瓶中，然後，一邊向溶液中吹入氮氣，一邊在50°C下添加作為聚合引發劑的過硫酸銨(APS)，並使其聚合。然後，溫度藉由伴隨聚合的升溫而達到70°C，維持該溫度，在添加先前的過硫酸銨過了90分鐘後，添加聚合成分的剩餘部分(15mol%)與追加的過硫酸銨。

【0089】 接著，升溫至75°C至80°C，保持該溫度使反應持續了120分鐘。然後，添加作為聚合終止劑(還原劑)的焦亞硫酸鈉($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_5$)與稀釋用水，進行了冷卻。

【0090】 然後，冷卻至40°C後，添加與丙烯酸等物質量的氫氧化鈉作為中和用鹼，得到了含有聚丙烯醯胺共聚物與水的鋰離子電池電極用黏合劑組成物。

【0091】 <重量平均分子量及固有黏度的計算>

接著，計算出了已得到的黏合劑組成物中的聚丙烯醯胺共聚物的重量平均分子量(Mw)。更具體而言，取在本實施例中得到的黏合劑組成物0.1g，溶解於pH值為7的磷酸緩衝液5.0g中，將該溶液中的黏合劑組成物所含的非揮發性成分(固

體成分)的濃度調整為1.0g/L，從藉由膠透析術(GPC)測量得到的析析圖(圖表)計算出了樣品的重量平均分子量(Mw)。以上結果示於表1。

[(0092)] 使用上述溶液，藉由膠透析術(GPC)裝置中的黏度檢測器，計算出得到的黏合劑組成物中的聚丙烯醯胺共聚物的固有黏度。以上結果示於表1。

[(0093)] 需要說明的是，在黏度檢測器中，測量了高分子溶液相對於溶劑的黏度的相對黏度，該相對黏度以比黏度 η_{sp} 表示，該比黏度 η_{sp} 為將上述溶液的黏度設為 η ，且將溶劑的黏度設為 η_s 時的黏度的增加率，如以下的式(2)的方式定義。

〔式2〕

$$\eta_{sp} = (\eta - \eta_s) / \eta_s \dots (2)$$

[(0094)] 高分子的每單位濃度c的黏度的增加量以還原黏度 η_{red} 表示，如以下的式(3)的方式定義。

〔式3〕

$$\eta_{red} = \eta_{sp} / c \dots (3)$$

[(0095)] 在以下的式(4)中，藉由以高分子的單位濃度c成為零的方式，對還原黏度 η_{red} 進行外推，能夠實驗性地計算出固有黏度(亦即，在以下的式(4)中，將使單位濃度c無限接近0時的值作為固有黏度)。

[(0096)] 〔式4〕



【0097】 重量平均分子量及固有黏度的計算中使用的測量裝置與測量條件如下所示。

裝置：型號 OMNISEC RESOLVE & REVEAL (Malvern公司製)

層析管：型號 TSKgel GMPWXL (TOSOH公司製)

移動相：磷酸緩衝液

層析管流量：0.8mL/min

試料濃度：1.0g/L

注入量：100 μ L

【0098】 <鋰離子電池電極用漿料組成物的製作>

將作為活性物質的石墨(Shanghai Shanshan New Material Co., Ltd製，商品名稱：FSNC-1)96質量份、作為導電助劑的碳黑(IMERYS Graphite & Carbon Belgium公司製、商品名稱：Super P Li)1質量份、以及所製作的黏合劑組成物3質量份(固體成分換算)投入容器中，用蒸餾水稀釋至漿料組成物的黏度為5 Pa·s至10Pa·s(用流變儀測量)的固體成分濃度，用自轉-公轉混合機(自轉速度：500rpm、公轉速度：1500rpm、時間：5分鐘)進行了混煉，得到了鋰離子電池電極用漿料組成物。

【0099】 <漿料的沉降穩定性的評價>

將所製作的漿料組成物(約20g)放在容器內靜置，在用玻璃棒(直徑：3mm)進行的觸覺評價中，按照下述的評價基準對從製作日起3天及7天後的漿料的沉降穩定性進行了評價。以上結果示於表1。

沒有觀察到漿料沉降：◎

漿料有一些沉降，但藉由用玻璃棒攪拌一分鐘可使其再分散：○

有大量的漿料沉降，沉降物在容器底部強烈地凝聚，無法用玻璃棒攪拌，無法使其再分散：×

【0100】 <鋰離子電池用電極(負極)的製作>

使用自動塗布裝置(Tester Sangyo公司製，商品名稱：PI-1210)將所製備的鋰離子電池電極用漿料組成物塗佈在作為集電體的銅箔(厚度：18 μ m)上，使塗佈量為10mg/cm²，在80°C的乾燥機中乾燥60分鐘，形成了電極複合材料層。然後，用輥壓機進行衝壓加工，使電極複合材料層的密度為1.5g/cm³，由此得到了鋰離子電池用電極。

【0101】 需要說明的是，電極複合材料層中的黏合劑比率為3質量%。

【0102】 <漿料的塗佈性的評價>

將漿料組成物塗布在集電體上並進行乾燥，形成電極複合材料層後(衝壓加工前)，目視觀察了電極複合材料層的表面，按照下述評價基準，對塗佈性進行了評價。以上結果示於表1。

在電極複合材料層的表面未觀察到凝聚物或塗佈不均勻：◎

在電極複合材料層的表面觀察到若干凝聚物、塗佈不均勻：○

在電極複合材料層的表面觀察到大量凝聚物、塗佈不均勻：×

【0103】 <電極的界面剝離強度的評價>

首先，從上述所製作的鋰離子電池用電極(負極)切出寬度2.5cm×長度5.5cm的樣品，用雙面膠帶(日東電工公司製，No.510)將該樣品的活性物質面與鋁板貼合，製作了試驗片。接著，在25°C的條件下，使用拉伸壓縮萬能試驗機(INTESCO公司製，商品名稱：Model205)，測量了以300mm/分鐘的速度從試驗片的一端沿180°方向剝離集電體(銅箔)時的應力。需要說明的是，測量進行了兩次，計算出

了其平均值作為電極的界面剝離強度。界面剝離強度越大，表示集電體與電極複合材料層的密接強度越高，電極活性物質越難以從集電體剝離。

【0104】 作為參考試料，準備好使用漿料組成物形成的電極，在該漿料組成物中，代替實施例1的黏合劑組成物，使用了以固體成分換算為1.5質量份的SBR(苯乙烯-丁二烯橡膠，JSR公司製，商品名稱：TRD104A)及以固體成分換算為1.5質量份的CMC(羧甲基纖維素，第一工業製藥公司製，商品名稱：BSH-6)，藉由相同的方法，計算出電極的界面剝離強度，並且計算出本實施例的界面剝離強度相對於參考試料的界面剝離強度的比率，按照下述的評價基準，對界面剝離強度進行了評價。以上結果示於表1。

界面剝離強度為參考資料的界面剝離強度的2倍以上：A

界面剝離強度為參考資料的界面剝離強度的1.2倍以上：B

界面剝離強度為參考資料的界面剝離強度的1倍以上至1.2倍以下：C

界面剝離強度小於參照資料的界面剝離強度的1倍：D

【0105】 (實施例2至實施例14、比較例1至比較例5)

除了將聚合成分的種類與添加量變更為表1所示的條件以外，與上述的實施例1同樣地製作了鋰離子電池電極用黏合劑組成物、鋰離子電池電極用漿料組成物以及鋰離子電池用電極(負極)。

【0106】 然後，與上述實施例1同樣地，進行了重量平均分子量的計算、固有黏度的計算、漿料的沉降穩定性的評價、漿料的塗佈性的評價、以及電極的界面剝離強度的評價。以上結果示於表1至表3。

【0107】 (實施例15)

首先，與上述實施例1同樣地，製作了鋰離子電池電極用黏合劑組成物。

接著，將作為活性物質的石墨(Shanghai Shanshan New Material Co., Ltd製，商品名稱：FSNC-1) 96質量份、作為導電助劑的碳黑(IMERYS Graphite & Carbon Belgium公司製、商品名稱：Super P Li)1質量份、所製作的黏合劑組成物2.1質量份(固體成分換算)、以及作為其他黏合劑組成物的SBR(苯乙烯-丁二烯橡膠，JSR公司製，商品名稱：TRD104A)0.9質量份(固體成分換算)投入容器中，用蒸餾水稀釋至漿料組成物的黏度為5Pa·s至10Pa·s(用流變儀測量)的固體成分濃度，用自轉-公轉混合機(自轉速度：500rpm、公轉速度：1500rpm、時間：5分鐘)進行了混煉，得到了鋰離子電池電極用漿料組成物。

【0108】 需要說明的是，鋰離子電池電極用漿料組成物中，所製作的黏合劑組成物(固體成分)與作為其他黏合劑組成物的SBR(苯乙烯-丁二烯橡膠、固體成分)的質量比為，所製作的黏合劑組成物：作為其他黏合劑組成物的SBR(苯乙烯-丁二烯橡膠)=70：30。

【0109】 然後，與上述實施例1同樣地，製作了鋰離子電池用電極(負極)，進行了重量平均分子量的計算、固有黏度的計算、漿料的沉降穩定性的評價、漿料的塗佈性的評價、以及電極的界面剝離強度的評價。以上結果示於表2。

【0110】 (實施例16)

首先，與上述實施例4同樣地，製作了鋰離子電池電極用黏合劑組成物。

接著，將作為活性物質的石墨(Shanghai Shanshan New Material Co., Ltd製，商品名稱：FSNC-1) 67.2質量份、作為活性物質的氧化矽(SiO₂)(OSAKA Titanium Technologies公司製，商品名稱：負極材料用SiO₂(CC粉末))28.8質量份、作為導電助劑的碳黑(IMERYS Graphite & Carbon Belgium公司製、商品名稱：Super P Li)1質量份、以及所製作的黏合劑組成物3質量份(固體成分換算)投入容器中，用

蒸餾水稀釋至漿料組成物的黏度為5 Pa·s至10Pa·s(用流變儀測量)的固體成分濃度，用自轉-公轉混合機(自轉速度：500rpm、公轉速度：1500rpm、時間：5分鐘)進行了混煉，得到了鋰離子電池電極用漿料組成物。

【0111】 需要說明的是，鋰離子電池電極用漿料組成物中的石墨與氧化矽的質量比為，石墨：氧化硅=70：30。

【0112】 然後，與上述實施例1同樣地，製作了鋰離子電池用電極(負極)，進行了重量平均分子量的計算、固有黏度的計算、漿料的沉降穩定性的評價、漿料的塗佈性的評價、以及電極的界面剝離強度的評價。以上結果示於表2。

【0113】 (實施例17至實施例18)

首先，與上述實施例4同樣地，製作了鋰離子電池電極用黏合劑組成物。

接著，將鋰離子電池電極用漿料組成物中的石墨與氧化矽的質量比(石墨：氧化矽)變更為表2所示的比率，除此以外，與上述實施例16同樣地製作了鋰離子電池電極用漿料組成物。

然後，與上述實施例1同樣地，製作了鋰離子電池用電極(負極)，進行了重量平均分子量的計算、固有黏度的計算、漿料的沉降穩定性的評價、漿料的塗佈性的評價、以及電極的界面剝離強度的評價。以上結果示於表2。

【0114】 (實施例19)

首先，與上述實施例4同樣地製作了鋰離子電池電極用黏合劑組成物，在所製作的鋰離子電池電極用黏合劑組成物中添加微量(1000ppm)的作為添加劑的黏質控制劑(THOR JAPAN公司製，商品名稱：ACTICIDE LA5008)。

然後，與上述實施例1同樣地，製作了鋰離子電池電極用漿料組成物及鋰離子電池用電極(負極)，進行了重量平均分子量的計算、固有黏度的計算、漿料的

沉降穩定性的評價、漿料的塗佈性的評價、以及電極的界面剝離強度的評價。

以上結果示於表2。

【0115】 (比較例6)

將聚合成分的種類與添加量變更為表3所示的條件，藉由基於WO2017/163806的實施例14的調整方法得到共聚物後，使用氫氧化鈉作為中和劑製作了黏合劑組成物，除此以外，與上述實施例1同樣地製作了鋰離子電池電極用漿料組成物及鋰離子電池用電極(負極)。

【0116】 然後，與上述實施例1同樣地，進行了重量平均分子量的計算、固有黏度的計算、漿料的沉降穩定性的評價、漿料的塗佈性的評價、以及電極的界面剝離強度的評價。以上結果示於表3。

【0117】 [表1]

【0121】 另一方面，如表3所示可知，在相對於單體成分的總量100莫耳% 丙烯醯胺的含量大於80莫耳%(亦即，89莫耳%)且丙烯酸的含量小於20莫耳%(亦即，10莫耳%)的比較例1中，在漿料中發生大量的沉降，缺乏沉降穩定性，並且電極的界面剝離強度小，電極複合材料層對集電體的黏著性(密接強度)缺乏。

【0122】 還可知，在相對於單體成分的總量100莫耳%的丙烯醯胺的含量小於30莫耳%(亦即，15莫耳%至20莫耳%)且丙烯酸的含量大於70莫耳%(亦即，79莫耳%至84莫耳%)的比較例2至比較例3中，可知在漿料中發生大量的沉降，缺乏沉降穩定性。

【0123】 又可知，在聚丙烯醯胺共聚物的固有黏度大於7.5dL/g(亦即，8.3dL/g)的比較例4中，可知鋰離子電池電極用漿料組成物的塗佈性缺乏。

【0124】 再可知，在聚丙烯醯胺共聚物的固有黏度小於3.5dL/g(亦即，2.9dL/g)的比較例5中，電極的界面剝離強度小，電極複合材料層對集電體的黏著性(密接強度)缺乏。

【0125】 在聚丙烯醯胺共聚物的固有黏度大於7.5dL/g(亦即，9.2ddL/g)的比較例6中，可知鋰離子電池電極用漿料組成物的塗佈性缺乏。

[產業可利用性]

【0126】 如上所述，本發明適用於鋰離子電池電極用漿料組成物中所利用的鋰離子電池電極用黏合劑組成物。

【發明申請專利範圍】

【請求項1】 一種鋰離子電池電極用黏合劑組成物，至少含有單體成分聚合物亦即聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物，前述聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物含有(甲基)丙烯酸醯胺單體與含不飽和羧酸基單體作為單體單元；

前述單體成分相對於其總量100莫耳%，含有30莫耳%至80莫耳%的前述(甲基)丙烯酸醯胺單體及20莫耳%至70莫耳%的前述含不飽和羧酸基單體；

前述聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的固有黏度為3.5dL/g至7.5dL/g。

【請求項2】 如請求項1所記載之鋰離子電池電極用黏合劑組成物，其中前述聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的重量平均分子量為200萬以上至400萬以下。

【請求項3】 如請求項1所記載之鋰離子電池電極用黏合劑組成物，其中在將前述聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的固有黏度設為X[dL/g]，且將前述聚(甲基)丙烯酸醯胺共聚物的重量平均分子量設為Y[百萬]時，下述式(1)的關係成立：

[式1]

$$1.35 \leq X/Y \leq 2.05 \dots (1)。$$

【請求項4】 如請求項1所記載之鋰離子電池電極用黏合劑組成物，其中前述單體成分相對於其總量100莫耳%，含有45莫耳%至75莫耳%的前述(甲基)丙烯酸醯胺單體及25莫耳%至55莫耳%的前述含不飽和羧酸基單體。

【請求項5】 一種鋰離子電池電極用漿料組成物，含有如請求項1至4中任一項所記載之鋰離子電池電極用黏合劑組成物與電極活性物質。

【請求項6】 一種鋰離子電池用電極，在集電體上包括電極複合材料層，前述電極複合材料層由如請求項5所記載之鋰離子電池電極用漿料組成物形成。

【請求項7】 一種鋰離子電池，包括如請求項6所記載之鋰離子電池用電極。