

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号
特許第7536736号
(P7536736)

(45)発行日 令和6年8月20日(2024.8.20)

(24)登録日 令和6年8月9日(2024.8.9)

(51)国際特許分類

F I

H 0 1 M	10/04 (2006.01)	H 0 1 M	10/04	W
H 0 1 M	50/457 (2021.01)	H 0 1 M	50/457	
H 0 1 M	50/417 (2021.01)	H 0 1 M	50/417	
H 0 1 M	50/426 (2021.01)	H 0 1 M	50/426	
H 0 1 M	4/13 (2010.01)	H 0 1 M	4/13	

請求項の数 8 (全23頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2021-194886(P2021-194886)
 (22)出願日 令和3年11月30日(2021.11.30)
 (65)公開番号 特開2023-81160(P2023-81160A)
 (43)公開日 令和5年6月9日(2023.6.9)
 審査請求日 令和4年12月8日(2022.12.8)

(73)特許権者 520184767
 プライムプラネットエナジー&ソリューションズ株式会社
 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1号
 (74)代理人 100117606
 弁理士 安部 誠
 (74)代理人 100136423
 弁理士 大井 道子
 (74)代理人 100121186
 弁理士 山根 広昭
 (74)代理人 100130605
 弁理士 天野 浩治
 (72)発明者 福永 政雄
 東京都中央区日本橋室町二丁目3番1号
 プライムプラネットエナジー&ソリューションズ株式会社
 最終頁に続く

(54)【発明の名称】 二次電池の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

正極と、負極とが、セパレータを介して巻回された扁平形状の巻回電極体と、複数の前記巻回電極体を収容する電池ケースと、を備えた二次電池の製造方法であって、複数の前記巻回電極体を、前記電池ケース内に配置する配置工程と、複数の前記巻回電極体のそれぞれの前記正極および前記負極の少なくとも一方と、前記セパレータとを剥離させる剥離工程と、前記電池ケース内に電解液を注液する注液工程と、を含み、前記剥離工程は、前記巻回電極体を加熱する加熱処理と、前記電池ケース内を減圧する減圧処理と、をこの順に含み、

前記剥離工程において、複数の前記巻回電極体のそれぞれに剥離領域が形成された状態となるように、各巻回電極体の前記正極および前記負極の少なくとも一方と、前記セパレータとを剥離させる、二次電池の製造方法。

【請求項2】

前記セパレータの両表面には、接着層が形成されている、請求項1に記載の二次電池の製造方法。

【請求項3】

前記配置工程において、前記正極と前記セパレータとが前記接着層により接着され、前

記負極と前記セパレータとが前記接着層により接着された前記巻回電極体を、前記電池ケース内に配置する、請求項 2 に記載の二次電池の製造方法。

【請求項 4】

前記セパレータは、
ポリオレフィン樹脂製の多孔性の基材層を含み、
前記接着層は、ポリフッ化ビニリデン (P V d F) を含む、請求項 2 または 3 に記載の二次電池の製造方法。

【請求項 5】

前記負極の幅が 2 0 c m 以上である、請求項 1 ~ 4 のいずれか一項に記載の二次電池の製造方法。

10

【請求項 6】

前記電池ケースは、
底壁と、前記底壁から延び相互に対向する一对の第 1 側壁と、前記底壁から延び相互に対向する一对の第 2 側壁と、前記底壁に対向する開口とを有する角型外装体と、
前記開口を封口する封口板と、を備え、
前記配置工程において、前記巻回電極体は、前記巻回電極体の巻回軸が前記底壁に沿った向きに配置される、請求項 1 ~ 5 のいずれか一項に記載の二次電池の製造方法。

【請求項 7】

前記注液工程の後に、前記二次電池の初期充電を行う初期充電工程を含み、
前記初期充電工程は、前記二次電池を拘束した状態で行う、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項に記載の二次電池の製造方法。

20

【請求項 8】

正極と、負極とが、セパレータを介して巻回された扁平形状の巻回電極体と、
複数の前記巻回電極体を収容する電池ケースと、
を備えた二次電池の製造方法であって、
複数の前記巻回電極体を、前記電池ケース内に配置する配置工程と、
複数の前記巻回電極体のそれぞれの前記正極および前記負極の少なくとも一方と、前記セパレータとを剥離させる剥離工程と、
前記電池ケース内に電解液を注液する注液工程と、
を含み、
前記剥離工程は、前記電池ケース内を減圧する減圧処理を含み、
前記減圧処理において、減圧速度を 3 0 k P a / m i n 以上とし、
前記剥離工程において、複数の前記巻回電極体のそれぞれに剥離領域が形成された状態となるように、各巻回電極体の前記正極および前記負極の少なくとも一方と、前記セパレータとを剥離させる、二次電池の製造方法。

30

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、二次電池の製造方法に関する。

【背景技術】

40

【0002】

リチウムイオン二次電池等の二次電池は、例えば、帯状の正極および帯状の負極を帯状のセパレータを介して巻回した巻回電極体と、開口を有し巻回電極体および電解液を収容する外装体と、外装体の開口を封口する封口板と、を備え、当該外装体と封口板とが密閉されて構成されている。特許文献 1 においては、電極体入りのケースに電解液を注液する方法が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【文献】特開 2 0 1 8 - 1 8 5 8 9 9 号公報

50

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

ところで近年では、さらなる高容量化のため、1つの電池ケース内に複数の巻回電極体を収容することが検討されている。本発明者らが鋭意検討した結果によれば、このように1つの電池ケース内に複数の巻回電極体を有する場合には、各巻回電極体間で電解液の含浸が不均一になることがあり、電池全体としての注液性が低下することを見出した。

【0005】

本発明は、上記の課題を解決するためになされたものであり、高容量かつ電池全体としての注液性が向上した二次電池を製造する方法を提供することにある。

10

【課題を解決するための手段】

【0006】

ここに開示される二次電池の製造方法は、正極と、負極とが、セパレータを介して巻回された扁平形状の巻回電極体と、複数の上記巻回電極体を収容する電池ケースと、を備えた二次電池の製造方法であって、複数の上記巻回電極体を、上記電池ケース内に配置する配置工程と、複数の上記巻回電極体のそれぞれの上記正極および上記負極の少なくとも一方と、上記セパレータとを剥離させる剥離工程と、上記電池ケース内に電解液を注液する注液工程と、を含む。ここで、上記剥離工程において、複数の上記巻回電極体のそれぞれに剥離領域が形成された状態となるように、各巻回電極体の上記正極および上記負極の少なくとも一方と、上記セパレータとを剥離させる。

20

【0007】

上記のとおり剥離工程において、複数の上記巻回電極体のそれぞれに剥離領域が形成された状態となるように各巻回電極体の上記正極および上記負極の少なくとも一方と、上記セパレータとを剥離させることにより、複数の巻回電極体が収容された二次電池において、複数の巻回電極体に電解液が均一に含浸しやすくなる。これにより、複数の巻回電極体を有し高容量化された二次電池であり、かつ、複数の巻回電極体への電解液の含浸が不均一となることを抑制し、電池全体としての注液性が向上した二次電池を製造することができる。

【0008】

ここに開示される製造方法の好適な一態様において、上記セパレータの両表面には、接着層が形成されている。また、上記接着層が形成されている態様では、上記配置工程において、上記正極と上記セパレータとが上記接着層により接着され、上記負極と上記セパレータとが上記接着層により接着されていてもよい。そして、上記セパレータは、ポリオレフィン樹脂製の多孔性の基材層を含み、上記接着層はポリフッ化ビニリデン(PVDF)を含んでいてもよい。

30

【0009】

ここに開示される製造方法の好適な一態様において、上記負極の幅が20cm以上であってもよい。また、上記電池ケースは、底壁と、上記底壁から延び相互に対向する一対の第1側壁と、上記底壁から延び相互に対向する一対の第2側壁と、上記底壁に対向する開口とを有する角型外装体と、上記開口を封口する封口板と、を備えてもよい。そして、上記配置工程において、巻回電極体は、巻回電極体の巻回軸が上記底壁に沿った向きに配置されてもよい。

40

【0010】

ここに開示される製造方法の好適な一態様において、上記注液工程の後に、上記二次電池を拘束した状態で初期充電を行う初期充電工程を含んでいてもよい。

【図面の簡単な説明】

【0011】

【図1】一実施形態に係る二次電池の製造方法を示すフローチャート図である。

【図2】一実施形態に係る電池を模式的に示す斜視図である。

【図3】図2のIII-III線に沿う模式的な縦断面図である。

50

【図 4】図 2 の IV - IV 線に沿う模式的な縦断面図である。

【図 5】図 2 の V - V 線に沿う模式的な横断面図である。

【図 6】封口板に取り付けられた電極体群を模式的に示す斜視図である。

【図 7】正極第 2 集電部と負極第 2 集電部が取り付けられた巻回電極体を模式的に示す斜視図である。

【図 8】一実施形態に係る巻回電極体の構成を示す模式図である。

【図 9】一実施形態に係る二次電池の巻回電極体の正極と負極とセパレータとの界面を模式的に示す図である。

【図 10】一実施形態に係る配置工程を説明する模式的な断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0012】

以下、図面を参照しながら、ここで開示される技術のいくつかの好適な実施形態を説明する。なお、本明細書において特に言及している事項以外の事柄であって本発明の実施に必要な事柄（例えば、本発明を特徴付けない電池の一般的な構成および製造プロセス）は、当該分野における従来技術に基づく当業者の設計事項として把握され得る。本発明は、本明細書に開示されている内容と当該分野における技術常識とに基づいて実施することができる。なお、本明細書において範囲を示す「A ~ B」の表記は、A 以上 B 以下の意と共に、「好ましくは A より大きい」および「好ましくは B より小さい」の意を包含するものとする。

【0013】

なお、本明細書において「電池」とは、電気エネルギーを取り出し可能な蓄電デバイス全般を指す用語であって、一次電池と二次電池とを包含する概念である。また、本明細書において「二次電池」とは、繰り返し充放電が可能な蓄電デバイス全般を指す用語であって、リチウムイオン二次電池やニッケル水素電池等のいわゆる蓄電池（化学電池）と、電気二重層キャパシタ等のキャパシタ（物理電池）と、を包含する概念である。

【0014】

以下、ここに開示される二次電池の製造方法の一実施形態について説明する。図 1 は、本実施形態に係る二次電池の製造方法を示すフローチャート図である。図 1 に示すように、ここに開示される二次電池の製造方法は、（1）複数の巻回電極体を電池ケース内に配置する配置工程 S10 と、（2）複数の巻回電極体のそれぞれの正極および負極の少なくとも一方と、セパレータとを剥離させる剥離工程 S20 と、（3）電池ケース内に電解液を注液する注液工程 S30 と、を包含する。ここに開示される二次電池の製造方法は、注液工程 S30 の後に、二次電池を初期充電する初期充電工程をさらに包含してもよい。ここに開示される二次電池の製造方法は、上記剥離工程 S20 において、複数の巻回電極体のそれぞれに剥離領域が形成された状態となるように、各巻回電極体の正極および負極の少なくとも一方と、セパレータとを剥離させることによって特徴づけられている。すなわち、ここに開示される製造方法においては、剥離工程 S20 において、複数の巻回電極体のそれぞれが、正極および負極の少なくとも一方と、セパレータとの間に略同じ割合で隙間を生じさせるように、各巻回電極体の正極および負極の少なくとも一方と、セパレータとを剥離させることによって特徴づけられている。したがって、それ以外の製造プロセスは従来と同様であってもよく、任意の段階でさらに他の工程を含んでもよい。

【0015】

1. 二次電池の構成

ここではまず、作成対象である二次電池 100 の構成を説明した後に、各工程について説明する。図 2 は、二次電池 100 の斜視図である。図 3 は、図 2 の III - III 線に沿う模式的な縦断面図である。図 4 は、図 2 の IV - IV 線に沿う模式的な縦断面図である。図 5 は、図 2 の V - V 線に沿う模式的な横断面図である。図 6 は、封口板に取り付けられた電極体群を模式的に示す斜視図である。図 7 は、正極第 2 集電部と負極第 2 集電部とが取り付けられた巻回電極体を模式的に示す斜視図である。図 8 は、巻回電極体 20 の構成を示す模式図である。以下の説明において、図面中の符号 L、R、F、Rr、U、D は、左、右、前

10

20

30

40

50

、後、上、下を表し、図面中の符号 X、Y、Z は、二次電池 100 の短辺方向、短辺方向と直交する長辺方向、上下方向を、それぞれ表すものとする。ただし、これらは説明の便宜上の方向に過ぎず、二次電池 100 の設置形態を何ら限定するものではない。

【0016】

図 2 ~ 図 4 に示すように、ここに開示される製造方法において製造される二次電池 100 は、電池ケース 10 と、複数の巻回電極体 20 を有する電極体群 200 と、正極端子 30 と、負極端子 40 と、正極集電部 50 と、負極集電部 60 と、を備えている。図示は省略するが、二次電池 100 は、ここでは、さらに電解液を備えている。二次電池 100 は、ここではリチウムイオン二次電池である。

【0017】

(1) 電池ケース

電池ケース 10 は、電極体群 200 を収容する筐体である。電池ケース 10 は、ここでは扁平かつ有底の直方体形状（角形）の外形を有する。電池ケース 10 の材質は、従来から使用されているものと同じでよく、特に制限はない。電池ケース 10 は、金属製であることが好ましく、例えば、アルミニウム、アルミニウム合金、鉄、鉄合金等からなることがより好ましい。図 3 に示すように、電池ケース 10 は、開口 12 h を有する外装体 12 と、開口 12 h を塞ぐ封口板（蓋体）14 と、を備えている。電池ケース 10 は、外装体 12 の厚み方向（短辺方向 X）において、電極体群 200 を収容した際に、わずかに寸法的なゆとり（クリアランス）を有していることが好ましい。これにより、後述する剥離工程 S20 において複数の巻回電極体 20 のそれぞれの正極板 22 および負極板 24 と、セパレータ 26 とを剥離させたときに、電極体群 200 の厚み（短辺方向 X の長さ）が増大するための空間を確保することができる。

【0018】

外装体 12 は、図 2 に示すように、底壁 12 a と、底壁 12 a から延び相互に対向する一对の長側壁 12 b と、底壁 12 a から延び相互に対向する一对の短側壁 12 c と、を備えている。底壁 12 a は、略矩形形状である。底壁 12 a は、開口 12 h と対向している。短側壁 12 c の面積は、長側壁 12 b の面積よりも小さい。

【0019】

封口板 14 は、外装体 12 の開口 12 h を塞ぐように外装体 12 に取り付けられている。封口板 14 は、外装体 12 の底壁 12 a と対向している。封口板 14 は、平面視において略矩形形状である。図 3 に示すように、封口板 14 には、注液孔 15 と、ガス排出弁 17 と、2 つの端子引出孔 18、19 と、が設けられている。端子引出孔 18、19 は、封口板 14 の長辺方向 Y の両端部にそれぞれ形成されている。端子引出孔 18、19 は、封口板 14 を上下方向 Z に貫通している。端子引出孔 18、19 は、それぞれ、封口板 14 に取り付けられる前の正極端子 30 および負極端子 40 を挿通可能な大きさの内径を有する。注液孔 15 は、後述する注液工程において電解液を注液するためのものである。注液孔 15 は、封止部材 16 により封止されている。ガス排出弁 17 は、電池ケース 10 内の圧力が所定値以上になったときに破断して、電池ケース 10 内のガスを外部に排出するように構成されている。

【0020】

(2) 電解液

上述したように、二次電池 100 は、電解液を備えている。電解液は従来と同様でよく、特に制限はない。電解液は、例えば、非水系溶媒と支持塩とを含有する非水電解液である。非水系溶媒は、例えば、エチレンカーボネート、ジメチルカーボネート、エチルメチルカーボネート等のカーボネート類を含んでいる。非水系溶媒は、鎖状カーボネート及び環状カーボネートを含むことが好ましい。支持塩は、例えば、LiPF₆等のフッ素含有リチウム塩である。電解液は、必要に応じて添加剤を含有してもよい。

【0021】

(3) 電極端子

正極端子 30 および負極端子 40 は、それぞれ封口板 14 に固定されている。正極端子

10

20

30

40

50

30は、封口板14の長辺方向Yの一方側(図2、図3の左側)に配置されている。かかる正極端子30は、電池ケース10の外側において、板状の正極外部導電部材32と電氣的に接続されている。正極端子30は、金属製であることが好ましく、例えばアルミニウムまたはアルミニウム合金からなることがより好ましい。一方、負極端子40は、封口板14の長辺方向Yの他方側(図2、図3の右側)に配置されている。かかる負極端子40は、電池ケース10の外側において、板状の負極外部導電部材42と電氣的に接続されている。負極端子40は、金属製であることが好ましく、例えば銅または銅合金からなることがより好ましい。負極端子40は、2つの導電部材が接合され一体化されて構成されていてもよい。例えば、後述する負極集電部60と接続される部分が銅または銅合金からなり、封口板14の外側の表面に露出する部分がアルミニウムまたはアルミニウム合金からなっている。また、電極集電部(正極集電部50および負極集電部60)にも、導電性に優れた金属(アルミニウム、アルミニウム合金、銅、銅合金等)が好適に使用できる。

10

【0022】

正極外部導電部材32および負極外部導電部材42は、複数の二次電池100を相互に電氣的に接続する際に、バスバーが付設される部材である。正極外部導電部材32および負極外部導電部材42は、金属製であることが好ましく、例えばアルミニウムまたはアルミニウム合金からなることがより好ましい。ただし、正極外部導電部材32および負極外部導電部材42は必須ではなく、他の実施形態において省略することもできる。

【0023】

(4) 電極集電部

図3~図6に示すように、本実施形態に係る二次電池100では、電池ケース10内に複数個(ここでは3つ)の巻回電極体20が収容されている。詳しい構造は後述するが、各々の巻回電極体20には、正極タブ群23と負極タブ群25とが設けられている。上述した正極端子30は、正極集電部50を介して、複数の巻回電極体20の各々の正極タブ群23と接続されている。具体的には、正極集電部50は、電池ケース10の内部に収容されている。この正極集電部50は、図3および図6に示すように、封口板14の内側面に沿って長辺方向Yに延びる板状の導電部材である正極第1集電部51と、上下方向Zに沿って延びる板状の導電部材である複数の正極第2集電部52とを備えている。そして、正極端子30の下端部30cは、封口板14の端子引出孔18を通して電池ケース10の内部に挿入され、正極第1集電部51と接続されている(図3参照)。一方で、図5~図7に示すように、この二次電池100では、巻回電極体20の個数に対応した個数の正極第2集電部52が設けられている。それぞれの正極第2集電部52は、複数の巻回電極体20の各々の正極タブ群23に接続される。そして、複数の巻回電極体20の各々の正極タブ群23は、正極第2集電部52と巻回電極体20の一方の側面20eとが対向するように折り曲げられる。これによって、正極第2集電部52の上端部と正極第1集電部51とが電氣的に接続される。

30

【0024】

一方、負極端子40は、負極集電部60を介して、複数の巻回電極体20の各々の負極タブ群25と接続される。かかる負極側の接続構造は、上述した正極側の接続構造と略同一である。具体的には、負極集電部60は、封口板14の内側面に沿って長辺方向Yに延びる板状の導電部材である負極第1集電部61と、上下方向Zに沿って延びる板状の導電部材である複数の負極第2集電部62とを備えている(図3および図6参照)。そして、負極端子40の下端部40cは、端子引出孔19を通して電池ケース10の内部に挿入され、負極第1集電部61と接続される(図3参照)。一方、複数の負極第2集電部62の各々は、複数の巻回電極体20の各々の負極タブ群25と接続される(図5~図7参照)。そして、負極タブ群25は、負極第2集電部62と巻回電極体20の他方の側面20gとが対向するように折り曲げられる。これによって、負極第2集電部62の上端部と負極第1集電部61とが電氣的に接続される。

40

【0025】

50

(5) 絶縁部材

また、この二次電池 100 では、電極体群 200 と電池ケース 10 との導通を防止する種々の絶縁部材が取り付けられている。具体的には、正極外部導電部材 32 (負極外部導電部材 42) と封口板 14 の外側面との間には、外部絶縁部材 92 が介在している (図 2 および図 3 参照)。これによって、正極外部導電部材 32 や負極外部導電部材 42 が封口板 14 と導通することを防止できる。また、封口板 14 の端子引出孔 18、19 の各々にはガスケット 90 が装着されている (図 3 参照)。これによって、端子引出孔 18、19 に挿通された正極端子 30 (または負極端子 40) が封口板 14 と導通することを防止できる。また、正極第 1 集電部 51 (または負極第 1 集電部 61) と封口板 14 の内側面との間には、内部絶縁部材 94 が配置されている。この内部絶縁部材 94 は、正極第 1 集電部 51 (または負極第 1 集電部 61) と封口板 14 の内側面との間に介在する板状のベース部 94a を備えている。これによって、正極第 1 集電部 51 や負極第 1 集電部 61 が封口板 14 と導通することを防止できる。さらに、内部絶縁部材 94 は、封口板 14 の内側面から電極体群 200 に向かって突出する突出部 94b を備えている (図 3 および図 4 参照)。これによって、上下方向 Z における電極体群 200 の移動を規制し、電極体群 200 と封口板 14 が直接接触することを防止できる。なお、上述した各々の絶縁部材の材料は、所定の絶縁性を有していれば特に限定されない。一例として、ポリオレフィン系樹脂 (例、ポリプロピレン (PP)、ポリエチレン (PE))、フッ素系樹脂 (例、パーフルオロアルコキシアルカン (PFA)、ポリテトラフルオロエチレン (PTFE)) 等の合成樹脂材料を使用できる。

【0026】

さらに、複数の巻回電極体 20 は、絶縁性の樹脂シートからなる電極体ホルダ 29 (図 4 参照) に覆われた状態で電池ケース 10 の内部に収容される。これによって、電極体群 200 と外装体 12 が直接接触することを防止できる。電極体ホルダ 29 は、例えば、ポリエチレン (PE) 等の樹脂材料からなる絶縁性の樹脂シートを、袋状または箱状に折り曲げることにより用意することができる。電極体ホルダ 29 を構成する樹脂シートの厚みは、特に限定されないが、0.2mm 程度であってよい。かかる電極体ホルダ 29 は、複数 (ここでは 3 つ) の巻回電極体を収容した際に、わずかに寸法的なゆとり (クリアランス) を有していることが好ましい。あるいは、柔軟な素材から構成されていることが好ましい。これにより、後述する剥離工程 S20 において複数の巻回電極体 20 のそれぞれに剥離領域が形成された状態となりわずかに厚みが増大しても、電極体ホルダ 29 が損傷することがない。

【0027】

(6) 電極体群

電極体群 200 は、図 4 に示すように、ここでは 3 つの巻回電極体 20 を有する。ただし、1 つの外装体 12 の内部に配置される巻回電極体の数は、2 つ以上 (複数) であれば特に限定されない。電極体群 200 は、各巻回電極体の巻回軸 WL が底壁 12a に沿った向き (すなわち、巻回軸 WL が長辺方向 Y と平行になる向き) で外装体 12 の内部に配置されている。言い換えれば、巻回電極体 20 は、巻回軸 WL が底壁 12a と平行になり、短側壁 12c と直交する向きで、外装体 12 の内部に配置されている。巻回電極体 20 の端面 (言い換えれば、正極板 22 と負極板 24 とが積層された積層面、図 8 の長辺方向 Y の端面) は、短側壁 12c と対向している。すなわち、以下の説明における「巻回軸方向」は、図中の長辺方向 Y と略同一の方向である。

【0028】

図 8 に示すように、巻回電極体 20 は、正極板 22 および負極板 24 を有する。巻回電極体 20 は、帯状の正極板 22 と帯状の負極板 24 とが帯状のセパレータ 26 を介して積層され、巻回軸 WL を中心として巻回されてなる扁平形状の電極体である。

【0029】

図 4 に示すように、巻回電極体 20 は、外表面が湾曲した一对の湾曲部 20r と、当該一对の湾曲部 20r を連結する該表面が平坦な平坦部 20f とを有している。一对の湾曲

10

20

30

40

50

部 20r はそれぞれ、底壁 12a および封口板 14 に対向している。一方（図 4 の上側）の湾曲部 20r は、ここでは、正極第 1 集電部 51、負極第 1 集電部 61、内部絶縁部材 94 等を介して、間接的に封口板 14 と対向している。他方（図 4 の下側）の湾曲部 20r は、ここでは、電極体ホルダ 29 を介して間接的に底壁 12a と対向している

【0030】

巻回電極体 20 は、電池の高容量化や車両等に搭載した際のスペースの有効活用の観点から、巻回軸方向の長さが長く、巻回電極体 20 の高さ（上下方向 Z の長さ）が低いことが好ましい。一方で、このように巻回軸方向の長さが長く、高さが低い巻回電極体 20 においては、電解液が巻回軸方向の中央部まで含浸し難く、含浸が不均一になりやすい。このため、ここに開示される技術の効果がより好適に発揮される。巻回電極体 20 の巻回軸方向の長さは、例えば、20cm 以上であることが好ましく、25cm 以上であることがより好ましい。巻回電極体 20 の高さ H1（図 4 参照）は、12cm 以下であることが好ましく、10cm 以下であることがより好ましい。なお、巻回電極体 20 の高さとは、巻回軸方向および巻回電極体 20 の厚み方向（短辺方向 X）に対して垂直方向の長さのことをいう。

10

【0031】

正極板 22 は、図 8 に示すように、長尺な帯状の部材である。正極板 22 は、正極芯体 22c と、正極芯体 22c の少なくとも一方の表面上に固着された正極活物質層 22a および正極保護層 22p と、を有する。ただし、正極保護層 22p は必須ではなく、他の実施形態において省略することもできる。正極芯体 22c は、帯状である。正極芯体 22c は、例えばアルミニウム、アルミニウム合金、ニッケル、ステンレス鋼等の導電性金属からなっている。正極芯体 22c は、ここでは金属箔、具体的にはアルミニウム箔である。また、正極芯体 22c の平均厚みは特に限定されない。例えば、2 μ m ~ 30 μ m が好ましく、2 μ m ~ 20 μ m がより好ましく、5 μ m ~ 15 μ m がさらに好ましい。

20

【0032】

正極芯体 22c の長辺方向 Y の一方の端部（図 8 の左端部）には、複数の正極タブ 22t が設けられている。複数の正極タブ 22t は、長辺方向 Y の一方側（図 8 の左側）に突出している。複数の正極タブ 22t は、セパレータ 26 よりも長辺方向 Y に突出している。複数の正極タブ 22t は、正極板 22 の長手方向に沿って間隔を置いて（間欠的に）設けられている。ただし、正極タブ 22t は、長辺方向 Y の他方の端部（図 8 の右端部）に設けられていてもよいし、長辺方向 Y の両端部にそれぞれ設けられていてもよい。正極タブ 22t は、正極芯体 22c の一部であり、金属箔（アルミニウム箔）からなっている。正極タブ 22t の少なくとも一部は、正極活物質層 22a および正極保護層 22p が形成されずに、正極芯体 22c が露出している。

30

【0033】

正極活物質層 22a は、図 8 に示すように、帯状の正極芯体 22c の長手方向に沿って、帯状に設けられている。正極活物質層 22a は、電荷担体を可逆的に吸蔵および放出可能な正極活物質（例えば、リチウムニッケルコバルトマンガン複合酸化物等のリチウム遷移金属複合酸化物）を含んでいる。正極活物質層 22a の固形分全体を 100 質量%としたときに、正極活物質は、概ね 80 質量%以上、典型的には 90 質量%以上、例えば 95 質量%以上を占めていてもよい。正極活物質層 22a は、正極活物質以外の任意成分、例えば、導電材、バインダ、各種添加成分等を含んでいてもよい。導電材としては、例えばアセチレンブラック（AB）等の炭素材料を使用し得る。バインダとしては、例えばポリフッ化ビニリデン（PVdF）等を使用し得る。

40

【0034】

正極保護層 22p は、図 8 に示すように、長辺方向 Y において正極芯体 22c と正極活物質層 22a との境界部分に設けられている。正極保護層 22p は、ここでは正極芯体 22c の長辺方向 Y の一方の端部（図 8 の左端部）に設けられている。ただし、正極保護層 22p は、長辺方向 Y の両端部に設けられていてもよい。正極保護層 22p は、正極活物質層 22a に沿って、帯状に設けられている。正極保護層 22p は、無機フィラー（例え

50

ば、アルミナ)を含んでいる。正極保護層 2 2 p の固形分全体を 1 0 0 質量%としたときに、無機フィラーは、概ね 5 0 質量%以上、典型的には 7 0 質量%以上、例えば 8 0 質量%以上を占めていてもよい。正極保護層 2 2 p は、無機フィラー以外の任意成分、例えば、導電材、バインダ、各種添加成分等を含んでもよい。導電材およびバインダは、正極活物質層 2 2 a に含み得るとして例示したものと同一であってもよい。

【 0 0 3 5 】

負極板 2 4 は、図 8 に示すように、長尺な帯状の部材である。負極板 2 4 は、負極芯体 2 4 c と、負極芯体 2 4 c の少なくとも一方の表面上に固着された負極活物質層 2 4 a と、を有する。負極芯体 2 4 c は、帯状である。負極芯体 2 4 c は、例えば銅、銅合金、ニッケル、ステンレス鋼等の導電性金属からなっている。負極芯体 2 4 c は、ここでは金属箔、具体的には銅箔である。

10

【 0 0 3 6 】

負極芯体 2 4 c の長辺方向 Y の一方の端部 (図 8 の右端部) には、複数の負極タブ 2 4 t が設けられている。複数の負極タブ 2 4 t は、セパレータ 2 6 よりも長辺方向 Y に突出している。複数の負極タブ 2 4 t は、セパレータ 2 6 よりも長辺方向 Y に突出している。複数の負極タブ 2 4 t は、負極板 2 4 の長手方向に沿って間隔を置いて (間欠的に) 設けられている。負極タブ 2 4 t は、長辺方向 Y の一方側 (図 8 の右側) に突出している。ただし、負極タブ 2 4 t は、長辺方向 Y の他方の端部 (図 8 の左端部) に設けられていてもよいし、長辺方向 Y の両端部にそれぞれ設けられていてもよい。負極タブ 2 4 t は、負極芯体 2 4 c の一部であり、金属箔 (銅箔) からなっている。負極タブ 2 4 t の一部には、負極活物質層 2 4 a が形成されている。負極タブ 2 4 t の少なくとも一部には、負極活物質層 2 4 a が形成されずに、負極芯体 2 4 c が露出している。

20

【 0 0 3 7 】

負極活物質層 2 4 a は、図 8 に示すように、帯状の負極芯体 2 4 c の長手方向に沿って、帯状に設けられている。負極活物質層 2 4 a は、電荷担体を可逆的に吸蔵および放出可能な負極活物質 (例えば、黒鉛等の炭素材料) を含んでいる。負極活物質層 2 4 a の固形分全体を 1 0 0 質量%としたときに、負極活物質は、概ね 8 0 質量%以上、典型的には 9 0 質量%以上、例えば 9 5 質量%以上を占めていてもよい。負極活物質層 2 4 a は、負極活物質以外の任意成分、例えば、バインダ、分散剤、各種添加成分等を含んでもよい。バインダとしては、例えばスチレンブタジエンゴム (S B R) 等のゴム類を使用し得る。分散剤としては、例えばカルボキシメチルセルロース (C M C) 等のセルロール類を使用し得る。

30

【 0 0 3 8 】

好適な一態様では、負極板 2 4 の負極タブ 2 4 t を除く本体部の幅 W 1 は、2 0 c m 以上である。負極板 2 4 の本体部の幅 W 1 は、例えば、2 0 c m 以上 4 5 c m 以下であることが好ましく、2 5 c m 以上 3 5 c m 以下であることがより好ましい。このような比較的大きな本体部を有する電池においては、高容量化が実現される一方で、電解液が巻回電極体 2 0 の内部まで浸透し難い。このため、ここに開示される技術の効果がより一層発揮される。なお、負極板の本体部の幅とは、帯状の負極板の短手方向の長さのことをいう。

【 0 0 3 9 】

図 8 に示すように、巻回電極体 2 0 は、2 枚のセパレータ 2 6 を備えている。各々のセパレータ 2 6 は、正極板 2 2 の正極活物質層 2 2 a と、負極板 2 4 の負極活物質層 2 4 a と、を絶縁する部材である。セパレータ 2 6 は、巻回電極体 2 0 の外表面を構成している。図 9 は、巻回電極体 2 0 の正極板 2 2 と負極板 2 4 とセパレータ 2 6 との界面を模式的に示す図である。本実施形態におけるセパレータ 2 6 は、帯状の基材層 2 6 a と、当該基材層 2 6 a の表面 (両面) に形成された接着層 2 6 b と、を有している。本実施形態では、上記構成のセパレータ 2 6 の一方の接着層 2 6 b と正極板 2 2 とが接着し、他方の接着層 2 6 b と負極板 2 4 とが接着している。これにより、巻回電極体 2 0 の平坦部 2 0 f (図 4 参照) が厚み方向 (短辺方向 X) に膨張することが抑制され、後述する配置工程 S 1 0 において、複数の巻回電極体 2 0 を有する電極体群 2 0 0 であっても電池ケース 1 0 へ

40

50

の挿入が容易になる。

【0040】

セパレータ26の厚み t_1 (図9参照)は、例えば、 $5\mu\text{m}$ 以上 $40\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $8\mu\text{m}$ 以上 $30\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $12\mu\text{m}$ 以上 $20\mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。なお、本明細書における「セパレータ26の厚み t_1 」は、図9に示すように、基材層26aと接着層26bとの合計の厚みであり、特に言及しない限りにおいて、プレス成形処理前の厚みを示すものとする。

【0041】

基材層26aは、従来公知の二次電池のセパレータにおいて用いられるものを特に制限なく使用することができる。例えば、基材層26aは、ポリエチレン(PE)、ポリプロピレン(PP)等のポリオレフィン樹脂からなる樹脂製の多孔性シートであることが好ましい。基材層26aの厚み t_2 (図9参照)は、特に限定されないが、例えば、 $4\mu\text{m}$ 以上 $35\mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $8\mu\text{m}$ 以上 $25\mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $10\mu\text{m}$ 以上 $20\mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。また、基材層26aの空隙率は、例えば、 $20\% \sim 70\%$ が好ましく、 $30\% \sim 60\%$ がより好ましい。これにより、正極板22と負極板24との間で、適切に電荷担体を移動させることができる。なお、本明細書における「基材層26aの厚み」および「基材層26aの空隙率」は、特に言及しない限りにおいて、プレス成形処理前の厚みおよび空隙率を示すものとする。

【0042】

図9に示すように、本実施形態における接着層26bは、基材層26aの両面に形成された層である。接着層26bは、バインダと無機粒子とが含まれている。なお、接着層26bは、正極板22と対向する側と負極板24と対向する側とで同じ構成であってもよいし、異なる構成であってもよい。

なお、セパレータ26は、ポリオレフィン樹脂製の多孔性の基材層26aを含み、両表面が接着層26bであることが好ましい。接着層26bはポリフッ化ビニリデン(PVdF)を含むことが好ましい。接着層26bと基材層26aの間に、他の層が形成されていてもよい。

【0043】

接着層26bに含まれるバインダとしては、一定の接着性を有する従来公知の樹脂材料を特に制限なく使用できる。接着層26bのバインダとしては、熱可塑性樹脂が好ましく、例えば、ポリフッ化ビニリデン(PVdF)、ポリテトラフルオロエチレン(PTFE)等のフッ素系樹脂；ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル樹脂；ポリアミド系樹脂；ポリイミド系樹脂；アクリル樹脂；等が挙げられる。また、接着層26bは、これらのバインダ樹脂を二種以上含んでもよい。なお、上述したバインダ樹脂の中でも、PVdFは、電極板に対する接着性をより好適に発揮できるため、好ましく用いられる。接着層26bに含まれるバインダの含有量は、接着層26bを100質量%としたときに、10質量%以上であることが好ましく、15質量%以上であることがより好ましく、20質量%以上であることがさらに好ましい。接着層26bに含まれるバインダの含有量の上限は、特に限定するものではないが、例えば50質量%以下であってよく、45質量%以下であってよく、40質量%以下であってよい。接着層26bに含まれるバインダが、

上記範囲内であることにより、好適な接着性が発揮され得る。

なお、正極板22及び負極板24と、接着層26bとは、例えば押圧により接着することが好ましい。押圧は、例えば、常温、あるいは加熱状態で行うことができる。

【0044】

無機粒子としては、例えば、アルミナ、ベーマイト、水酸化アルミニウム、チタニア、炭酸マグネシウム、マグネシア、ジルコニア、酸化亜鉛、酸化鉄、セリア、イットリア等のセラミックを主成分として含むセラミック粒子が挙げられる。接着層26bにおける無機粒子の含有量は、正極板22(または負極板24)に対して所定の接着性が発揮されるように調整されていることが好ましい。

【0045】

10

20

30

40

50

また、接着層 26b は、複数の空隙を含む三次元網目状構造を有していることが好ましい。かかる三次元網目状構造において、無機粒子が分散していることが好ましい。例えば、接着層 26b は、複数の繊維状の PVdF が多数の空隙を有するようにランダムに積層して三次元網目状構造が形成され、当該三次元網目状構造の内部にアルミナ、ベーマイト等の無機粒子が分散するように構成されているとよい。

【0046】

接着層 26b の厚み t_3 は、例えば、 $0.5 \mu\text{m}$ 以上であることが好ましく、 $1.0 \mu\text{m}$ 以上であることがより好ましく、 $1.5 \mu\text{m}$ 以上であることがさらに好ましい。接着層 26b の厚み t_3 は、特に限定されないが、例えば $10 \mu\text{m}$ 以下であることが好ましく、 $8 \mu\text{m}$ 以下であることがより好ましく、 $6 \mu\text{m}$ 以下であることがさらに好ましい。これにより、好適な接着性を発揮し得る。また、接着層 26b の目付量は、 $1 \text{g}/\text{m}^2$ 以上であることが好ましく、 $2 \text{g}/\text{m}^2$ 以上であることがより好ましく、 $2.5 \text{g}/\text{m}^2$ 以上であることがさらに好ましい。また、接着層 26b の目付量は、例えば、 $8 \text{g}/\text{m}^2$ 以下であることが好ましく、 $6 \text{g}/\text{m}^2$ 以下であることがより好ましく、 $5.5 \text{g}/\text{m}^2$ 以下であることがさらに好ましい。また、接着層 26b の空隙率は、 10% 以上であることが好ましく、 30% 以上であることがより好ましく、 50% 以上であることがさらに好ましい。また、接着層 26b の空隙率は、 90% 以下であることが好ましく、 80% 以下であることがより好ましい。なお、本明細書における「接着層 26b の厚み」および「接着層 26b の空隙率」は、特に言及しない限りにおいて、プレス成形処理前の厚みおよび空隙率を示すものとする。

【0047】

2. 二次電池の製造方法

以上、作成対象である二次電池 100 の構成を説明した。次に、図 1 を参照しながら、かかる二次電池 100 の製造方法について説明する。上記したように、ここに開示される二次電池の製造方法は、剥離工程 S20 において、複数の巻回電極体 20 のそれぞれに剥離領域が形成された状態とするように、各巻回電極体 20 の正極板 22 および負極板 24 の少なくとも一方と、セパレータ 26 との間を剥離させることよって特徴づけられており、それ以外の製造プロセスは従来と同様であってもよい。

【0048】

(1) 配置工程 S10

配置工程 S10 では、上記したような電極体群 200 を電池ケース 10 の内部に配置する。具体的には、まず、上記したような電極体群 200 (3つの巻回電極体 20) と、電池ケース 10 (外装体 12 および封口板 14) と、正極端子 30 と、負極端子 40 と、正極集電部 50 (正極第 1 集電部 51 および正極第 2 集電部 52) と、負極集電部 60 (負極第 1 集電部 61 および負極第 2 集電部 62) と、を用意する。そして電極体群 200 を電池ケース 10 に挿入する。

【0049】

(a) 巻回処理

巻回処理では、2枚のセパレータ 26 を介して正極板 22 と負極板 24 とを積層して、巻回することによって巻回電極体 20 を用意する。より詳細には、帯状のセパレータ 26、帯状の負極板 24、帯状のセパレータ 26、帯状の正極板 22 を、この順序で積層した積層体を作製する (図 8 参照)。このとき、長辺方向 Y の一方 (図 8 の左側) の側縁から正極板 22 の正極タブ 22t のみ突出し、かつ、他方 (図 8 の右側) の側縁から負極板 24 の負極タブ 24t のみ突出するように、各々のシート部材の長辺方向 Y における積層位置を調節する。そして、作製した積層体を巻回して筒状体を作製する。このときの巻回数は、目的とする巻回電極体 20 の性能や製造効率などを考慮して適宜調節することが好ましい。一例として、巻回電極体 20 における正極板 22 の巻回数は、10回 ~ 60回が好ましく、30回 ~ 40回がより好ましい。

【0050】

(b) プレス成形処理

プレス成形処理では、上記作製した筒状体に対してプレス成形をすることによって、扁平形状の巻回電極体 20 を用意する。プレス成形は、常温で実施してもよく、加熱した状態（例えば、40 ~ 80 程度）で実施してもよい。巻回された筒状体をプレス成形すると、成形された巻回電極体 20 の湾曲部 20 r に残留した弾性作用によって、平坦部 20 f の厚みが膨張するスプリングバックが生じ得る。ここに開示される製造方法で製造される二次電池 100 は、複数の巻回電極体 20 を有しており、スプリングバックが生じた場合には、後述する配置処理において、電池ケース 10 への収容が難しくなる虞がある。しかしながら、ここに開示される技術によれば、セパレータ 26 が所定の接着性を有する接着層 26 b を有しているため、当該接着層 26 b を有する巻回電極体 20 に対してプレス成形を実施した結果、セパレータ 26 の接着層 26 b と正極板 22、および、接着層 26 b と負極板 24 とがより好適に接着され、スプリングバックが抑制される。このため、複数の巻回電極体 20 を有する電極体群 200 を好適に電池ケース 10 に収容することができる。

10

一方で、正極板 22、負極板 24 が接着層 26 b と過度に接着された場合には、後述する剥離工程 S 20 において、複数の巻回電極体 20 のそれぞれに剥離領域を生じさせることが困難になる可能性がある。そこで、プレス成形処理において巻回された筒状体をプレスするプレス圧は、剥離工程において各巻回電極体 20 のそれぞれに好適な剥離領域が形成されるように調整されることが好ましい。プレス圧は、接着層 26 b の性状（例えば材質や厚み）や、巻回電極体 20 の大きさ等によって異なるため、一概には言えないが、例えば 50 kN 程度 ~ 400 kN 程度であるとよい。これにより、配置工程 S 10 においては、電極体群 200 をスムーズに収容でき、剥離工程 S 20 においては、各巻回電極体 20 のそれぞれに剥離領域を形成させやすくすることができる。

20

【0051】

(b) 配置処理

配置処理では、上記用意した複数の巻回電極体 20 を有する電極体群 200 を電池ケース 10 内に収容する。まず、図 6 に示すように、電極体群 200 に正極集電部 50、負極集電部 60 および封口板 14 が取り付けられた合体部材を用意する。まず、巻回電極体 20 の正極タブ群 23 に正極第 2 集電部 52 を接合し、負極タブ群 25 に負極第 2 集電部 62 を接合する。次いで、図 6 に示すように、複数個（ここでは 3 つ）の巻回電極体 20 を、平坦部 20 f が対向するように並列に配置する。そして、複数個の巻回電極体 20 の上方に封口板 14 を配置し、各正極第 2 集電部 52 と巻回電極体 20 の一方の側面 20 e とが対向するように、各々の巻回電極体の正極タブ群 23 を折り曲げる。これによって、正極第 1 集電部 51 と正極第 2 集電部 52 とが接続される。同様に、各負極第 2 集電部 62 と巻回電極体 20 の他方の側面 20 g とが対向するように、各々の巻回電極体の負極タブ群 25 を折り曲げる。これによって、負極第 1 集電部 61 と負極第 2 集電部 62 とが接続される。この結果、正極集電部 50 と、負極集電部 60 とを介して、封口板 14 に電極体群 200 が取り付けられる。

30

【0052】

封口板 14 に取り付けられた電極体群 200 を、電極体ホルダ 29（図 4 参照）に収容する。そして、電極体ホルダ 29 で覆われた電極体群 200 を、外装体 12 に挿入する。このとき、巻回軸 WL が底壁 12 a に沿った向き（すなわち、巻回軸 WL が長辺方向 Y と平行になる向き）で外装体 12 の内部に配置されるように挿入することが好ましい。また、巻回電極体 20 の下端側の湾曲部 20 r が電極体ホルダ 29 を介して、電池ケース 10 の底壁 12 a と接触するように配置することが好ましい。これにより、後述する加熱処理において効率よく電極体群 200 を加熱することができる。特に限定されないが、電極体群 200 の重量が重い場合、概ね 1 kg 以上、例えば 1.5 kg 以上、さらには 2 ~ 3 kg である場合には、図 10 に示すように、外装体 12 の長側壁 12 b が重力方向と交差するように（外装体 12 を横向きに）配置して、電極体群 200 を外装体 12 に挿入するとよい。

40

そして、外装体 12 の開口 12 h の縁部に封口板 14 を接合して、開口 12 h を封止す

50

る。例えば、外装体 1 2 と封口板 1 4 とが溶接接合されることによって封止されることが好ましい。外装体 1 2 と封口板 1 4 との溶接接合は、例えばレーザー溶接等で行うことができる。これにより、電極体群 2 0 0 が電池ケース 1 0 内に配置された電池組立体を用意することができる。

【 0 0 5 3 】

(2) 剥離工程 S 2 0

剥離工程 S 2 0 は、上記配置工程 S 1 0 において用意した電池組立体に收容される複数の巻回電極体 2 0 のそれぞれに剥離領域を生じさせる工程である。剥離領域は、正極板 2 2 および負極板 2 4 の数なくとも一方と、セパレータ 2 6 との接触面が剥離された領域である。具体的には、正極板 2 2 とセパレータ 2 6 とが接着層 2 6 b により接着され、負極板 2 4 とセパレータ 2 6 とが接着層 2 6 b により接着された状態の各巻回電極体 2 0 に対して、後述する加熱処理および第 1 減圧処理を実施する。これにより、各巻回電極体 2 0 のそれぞれにおいて、正極板 2 2 および負極板 2 4 の少なくとも一方と、セパレータ 2 6 との間に剥離領域を生じさせる。

ここで、剥離領域では、正極板 2 2 又は負極板 2 4 と、セパレータ 2 6 との間に隙間が生じた状態であることが好ましい。剥離領域の有無は、巻回電極体 2 0 の巻回軸方向の中央部において巻回軸 W L に対して垂直な断面の X 線 C T 画像から判断できる。

【 0 0 5 4 】

(a) 加熱処理

加熱処理は、上記したような巻回電極体 2 0 のセパレータ 2 6 の接着層 2 6 b を軟化させ、正極板 2 2 および負極板 2 4 からセパレータ 2 6 をより剥離させやすくするための処理である。かかる加熱処理は、各巻回電極体 2 0 のそれぞれの温度が概ね同じとなるように均一に加熱することが好ましい。これにより、各巻回電極体 2 0 のそれぞれに剥離領域が形成されやすくなる。加熱処理の加熱温度は、接着層 2 6 b に用いられるバインダの種類によって異なるため、一概には言えないが、各巻回電極体 2 0 のそれぞれの温度が 8 0

以上となるように保持することが好ましい。例えば、加熱処理は、各巻回電極体 2 0 のそれぞれの温度が 9 0 以上となるように保持することがより好ましく、各巻回電極体 2 0 のそれぞれの温度が 1 0 0 以上となるように保持することがさらに好ましい。温度が高すぎる場合には、二次電池 1 0 0 の内部で意図しない副反応が発生して電池特性が悪化することが懸念されるため、好ましくない。このため、加熱処理の温度は、各巻回電極体 2 0 のそれぞれの温度が例えば 1 3 0 以下となるように保持することが好ましく、1 2 0 以下となるように保持することがより好ましい。昇温速度は、特に限定されないが、例えば 4 ~ 8 / m i n 程度に設定するとよい。

【 0 0 5 5 】

また、加熱処理の時間は、二次電池 1 0 0 の大きさ等によって異なるために一概には言えないが、例えば、約 1 時間 ~ 6 時間程度であってもよく、約 1 . 5 時間 ~ 4 時間程度を目安に設定することができる。一例として、各巻回電極体 2 0 のそれぞれの温度が 8 0 以上に保持された状態で 1 時間以上保持することが好ましく、各巻回電極体 2 0 のそれぞれの温度が 9 0 以上に保持された状態で 1 時間以上保持することがさらに好ましい。

【 0 0 5 6 】

加熱処理は、各巻回電極体 2 0 のそれぞれを概ね均一に加熱することができればよく、加熱の手段は特に限定されない。加熱の手段は、例えば、内部に電気ヒーターが収納された台座状の加熱プレートの上に電池組立体を設置することによって実施してもよい。あるいは、所定の温度を保持するように設定された恒温槽等に電池組立体を静置することによって実施してもよい。

【 0 0 5 7 】

(b) 第 1 減圧処理

第 1 減圧処理は、上記加熱処理後の電池組立体の内部を大気圧（すなわち、電池組立体の外側の空気の圧力）よりも低くなるように減圧し、正極板 2 2 および負極板 2 4 とセパレータ 2 6 とを剥離させるための処理である。かかる第 1 減圧処理において、従来よりも

10

20

30

40

50

減圧速度を速く設定することにより、各巻回電極体 20 の正極板 22 および負極板 24 と、セパレータ 26 との間に好適に隙間を生じさせ、各巻回電極体 20 のそれぞれに剥離領域を形成できる。

【0058】

第1減圧処理における減圧速度は、上記したように従来よりも比較的速い速度に設定され、少なくとも $30\text{ kPa}/\text{min}$ 以上であることが好ましい。減圧速度は、例えば、 $40\text{ kPa}/\text{min}$ 以上であることがより好ましく、 $50\text{ kPa}/\text{min}$ 以上であることがさらに好ましい。減圧速度の上限は特に限定されないが、 $500\text{ kPa}/\text{min}$ 以下であることが好ましく、 $250\text{ kPa}/\text{min}$ 以下であることがより好ましく、 $100\text{ kPa}/\text{min}$ 以下であることがさらに好ましい。また、電池組立体の内部の圧力は、絶対圧力で 1 kPa 以下まで減圧することが好ましく、 100 Pa 以下まで減圧することがより好ましく、 50 Pa 以下まで減圧することがさらに好ましい。かかる条件で第1減圧処理を実施することにより、各巻回電極体 20 の正極板 22 および負極板 24 と、セパレータ 26 とを剥離させ、各巻回電極体 20 のそれぞれに剥離領域を生じさせることができる。これにより、電池ケース 10 に複数の巻回電極体 20 が収容されている場合であっても、後述する注液工程 S30 での注液時間が短縮され、かつ、各巻回電極体間における電解液の含浸が不均一になることを抑制することができる。したがって、電池ケース 10 に収容される複数の巻回電極体 20 の全てにおいて電極体内部での電解液の不足や、リチウム析出等による電池特性の低下が改善され、高容量かつ信頼性の高い電池を製造することができる。

10

20

【0059】

上記した減圧状態を保持する時間は特に限定されないが、例えば、約1時間～8時間程度であってもよく、約1時間～5時間程度を目安に設定することができる。また、第1減圧処理の開始のタイミングは特に限定されないが、複数の巻回電極体 20 のそれぞれに剥離領域を形成する観点からは、加熱処理によって複数の巻回電極体 20 が概ね均一に加熱された後に、第1減圧処理を開始することが好ましい。第1減圧処理は、典型的には加熱処理の開始から約2時間後以降に減圧を開始するとよく、例えば加熱処理の開始から約4時間後に減圧を開始するとよい。

【0060】

第1減圧処理は、上記した条件を満たすように実施されればよく、減圧の手段は特に限定されない。減圧は、例えば、電池ケース 10 内から気体を排出させて減圧するとよい。例えば、封口板 14 の注液孔 15 にノズルの一方を取り付けて、他方を真空ポンプと接続する。この状態で真空ポンプを稼働させることにより、電池組立体の内部の気体を注液孔 15 から排出し、電池組立体内を減圧することができる。

30

【0061】

(3) 加圧工程

加圧工程は、上記第1減圧処理によって減圧された電池組立体の内部を大気圧程度まで加圧（復圧）する工程である。当該加圧工程はここに開示される技術において必須の工程ではなく、適宜省略することも可能である。例えば、上記第1減圧処理の実施後に後述する注液工程 S30（より詳細には注液処理）を実施してもよい。当該加圧工程を以下の条件で剥離工程 S20 の後に実施することにより、複数の巻回電極体 20 のそれぞれにおいて剥離領域を好ましい状態に維持することができる。

40

【0062】

加圧工程では、典型的には、電池組立体の内部の圧力が大気圧程度まで加圧（復圧）されればよく、例えば、絶対圧力で 5 kPa 以上となるまで加圧することが好ましく、 10 kPa 以上となるまで加圧することがより好ましい。また、上限は特に限定されないが、電池組立体の内部の圧力は、絶対圧力で 200 kPa 以下となるまで加圧することが好ましく、 100 kPa 以下となるまで加圧することがより好ましい。このときの加圧（復圧）速度は、上記剥離工程 S20 において剥離させた巻回電極体 20 が再び接着されないよう、比較的ゆっくり加圧することが好ましい。電池組立体の大きさ等により異なるため、

50

一概には言えないが、加圧速度は、例えば5000 Pa/min以上80000 Pa/min以下に設定するとよい。

【0063】

加圧工程を実施する場合には、上記したように比較的ゆっくり加圧するように制御できる方法によって実施されればよく、加圧の手段は特に限定されない。例えば、封口板14の注液孔15にノズルの一方を取り付けて、他方を気体が貯留されたタンクに接続する。この状態で、タンクに貯留されている気体を、制御しながら電池組立体の内部に導入することにより、大気圧程度まで加圧（復圧）することができる。ここで導入される気体は、従来と同様であってよく、例えば、窒素（N₂）等の不活性ガス、乾燥空気等が挙げられる。

10

【0064】

（4）注液工程S30

注液工程S30は、電池組立体の内部に電解液を注液する工程である。ここに開示される技術においては、上記した剥離工程S20によって各巻回電極体20のそれぞれに剥離領域が形成された状態であり、かかる状態の巻回電極体20を有する電極体群200に電解液を注液することにより、電解液の注液時間の短縮と、電極体群200全体への電解液の含浸が不均一となることを抑制できる。

【0065】

（a）第2減圧処理

第2減圧処理は、上記した加圧工程を実施した場合において、後述する注液処理を好適に実施するために、電池組立体の内部を減圧する処理である。当該第2減圧処理は、ここに開示される技術において必須の処理ではなく、適宜省略することも可能である。例えば、上記第1減圧処理の実施後（すなわち、減圧状態を維持した状態で）後述する注液処理を実施してもよい。また、加圧工程後、第2減圧処理を実施せずに後述する注液処理を実施してもよい。加圧工程を実施した場合において、第2減圧処理を実施することにより、電池組立体を減圧した状態で注液処理を実施できる。これにより、注液処理の時間が短縮され、かつ、巻回電極体20の内部まで電解液が浸透しやすくなるため好ましい。

20

【0066】

第2減圧処理は、注液処理が好適に実施されるように電池組立体の内部が減圧される限り、特に限定されない。例えば、電池組立体の内部の圧力は、絶対圧力で5～50 kPa程度となるように減圧するとよい。上記減圧状態を保持する時間は、例えば、約100秒～400秒で程度を目安に設定することができる。また、減圧速度は、例えば、1 kPa/min以上800 kPa/min以下に設定するとよい。なお、第2減圧処理の減圧の手段は特に限定されず、上記した第1減圧処理と同様の手段を用いて減圧するとよい。

30

【0067】

（b）注液処理

注液処理は、電池組立体の内部に電解液を注液する処理である。当該注液処理は、大気圧雰囲気でもよいし、減圧雰囲気でもよい。好ましくは、減圧雰囲気で実施されるとよい。これにより、電解液をより早く注液することができる。注液処理では、電解液が巻回電極体20の全体にいきわたる分量となるよう電解液を注液する。当該注液処理は、従来公知の電解液注液装置を適宜利用することができる。なお、このとき、電解液を圧送するために用いられ得る圧送ガスとしては、従来と同様、窒素（N₂）等の不活性ガス、乾燥空気等が挙げられる。

40

電解液の注液後、電池組立体の封口板14の注液孔15を封止する。注液孔15の封止は、当該注液孔15に適合した形状の封止部材16を組み付けることによって実施することができる。これにより、密閉された二次電池100を構築することができる。

【0068】

（5）初期充電工程

ここに開示される製造方法においては、上記注液工程の後に、初期充電工程を好ましく行うことができる。より好ましい一態様では、上記構築した二次電池100を拘束した状

50

態で初期充電工程を実施するとよい。二次電池 100 の拘束は、外装体 12 の長側壁 12 b (図 2 参照) を短辺方向 X に沿って所定の大きさの荷重を付与することによって実施することができる。初期充電の条件は、従来と同様であってよい。例えば、二次電池 100 は、拘束された状態において、電池駆動電圧範囲を 0.1 ~ 2 C の充電レートで充電及び放電するサイクルを、1 ~ 5 回程度実施するとよい。以上のようにして、二次電池 100 を製造することができる。

【0069】

ここに開示される製造方法は、例えば、複数の電極体を備える高容量タイプの密閉型電池において好ましく用いることができる。また、かかる製造方法によって製造される二次電池 100 は、各種用途に利用可能であるが、例えば、乗用車、トラック等の車両に搭載されるモータ用の動力源(駆動用電源)として好適に用いることができる。車両の種類は特に限定されないが、例えば、プラグインハイブリッド自動車(PHEV)、ハイブリッド自動車(HEV)、電気自動車(BEV)等が挙げられる。また、二次電池 100 は、組電池の構築に好適に用いることができる。

10

【0070】

<試験例>

以下、本発明に関する試験例を説明する。なお、以下に記載する試験例の内容は、本発明を限定することを意図したものではない。

【0071】

1. 配置工程

正極活物質粉末としての $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{O}_2$ と、導電材としてのアセチレンブラック(AB)と、バインダとしてのポリフッ化ビニリデン(PVdF)との質量比が、97.5 : 1.5 : 1.0 となるように秤量し、これらの材料を溶媒としての N-メチルピロリドン(NMP)に分散させてペースト状の正極活物質層形成用組成物を調製した。該組成物を帯状の正極芯体(アルミニウム箔)の両面に塗布し、乾燥させることで正極芯体上に正極活物質層を備える、帯状の正極板を作製した。

20

負極活物質としての天然黒鉛(C)と、バインダとしてのスチレンブタジエンゴム(SBR)と、増粘剤としてのカルボキシメチルセルロース(CMC)との質量比が、98.3 : 0.7 : 1.0 となるように秤量し、これらの材料を溶媒としてのイオン交換水に分散させてペースト状の負極活物質層形成用組成物を調製した。該組成物を帯状の負極芯体(銅箔)の両面に塗布し、乾燥させることで負極芯体上に負極活物質層を備える、帯状の負極板を作製した。

30

また、セパレータとしては、ポリエチレン(PE)製の多孔質基材層の表面にアルミナ粉末とポリフッ化ビニリデン(PVdF)とを含む接着層が形成されたものを使用した。なお、セパレータは接着層の目付量が異なるものを 2 種類用意した。

【0072】

上記用意したセパレータを介して、上記作製した帯状の正極板および帯状の負極板を積層させた積層体を作製し、当該積層体を巻回することによって筒状体を作製した。そして巻回後の積層体をプレス成形処理を実施して押しつぶすことにより、扁平形状の巻回電極体を作製した。同様の手順にしたがって、巻回電極体を 3 つ作製した。当該作製した 3 つの巻回電極体に正極端子および負極端子を接続し、注液口を有する電池ケースに配置した。これにより、複数の巻回電極体が電池ケースに収容された評価用電池組立体を作製した。

40

【0073】

2. 剥離工程および各巻回電極体の観察

本試験では、上記用意した評価用電池組立体に対して、第 1 減圧処理の減圧速度を変更して剥離工程を実施し、その後加圧工程を実施した。そして、各巻回電極体における剥離領域の有無を確認した。

【0074】

(1) 実施例 1

まず、上記作製した評価用二次電池組立体に対して、最高温度 105 の条件で加熱処

50

理を実施した。次いで、加熱開始4時間後に、第1減圧処理を実施した。第1減圧処理は、減圧速度90kPa/min、評価用電池組立体の内部の圧力を絶対圧力で10Paまで減圧し、減圧維持時間4時間の条件で実施した。第1減圧処理後、大気圧まで加圧（復圧）する加圧工程を実施した。

【0075】

(2) 実施例2

まず、上記作製した評価用二次電池組立体に対して、最高温度105の条件で加熱処理を実施した。次いで、加熱開始4時間後に、第1減圧処理を実施した。第1減圧処理は実施例1と同様の条件で実施した。第1減圧処理後、大気圧まで加圧（復圧）する加圧工程を実施した。なお、実施例2のセパレータの接着層の目付量は、実施例1のセパレータの接着層の目付量よりも少ないものを使用した。

10

【0076】

(3) 比較例1

まず、上記作製した評価用二次電池組立体に対して、最高温度105の条件で加熱処理を実施した。次いで、加熱開始4時間後に、第1減圧処理を実施した。第1減圧処理は減圧速度を10kPa/minに変更したこと以外は、実施例1と同様の条件で実施した。第1減圧処理後、大気圧まで加圧（復圧）する加圧工程を実施した。なお、比較例1のセパレータは、実施例1のセパレータと同じものを使用した。

【0077】

(4) 比較例2

まず、上記作製した評価用二次電池組立体に対して、最高温度105の条件で加熱処理を実施した。次いで、加熱開始4時間後に、第1減圧処理を実施した。第1減圧処理は減圧速度を10kPa/minに変更したこと以外は、実施例1と同様の条件で実施した。第1減圧処理後、大気圧まで加圧（復圧）する加圧工程を実施した。なお、比較例2のセパレータの接着層の目付量は、実施例1のセパレータの接着層の目付量よりも少ないものを使用した。

20

【0078】

(5) X線CT画像の取得

上記用意した各実施例および各比較例の巻回電極体の中央部（巻回軸方向の中央部）において、X線CT装置（東芝ITコントロールシステム社製）を用いて巻回軸に対して垂直な断面を撮影し、X線CT画像を取得した。

30

そして、当該X線CT画像において、巻回電極体20の平坦部20fにおいて、剥離領域の有無を確認した。

巻回電極体20の平坦部20fにおいて、正極板22の積層方向において隣接する2層の正極板22の一方の正極板22の厚み方向の中心と他方の正極板22の厚み方向の中心との距離を距離D(μm)とする。前述の2つの中心の間に存在する各部材の合計の厚み（一方の正極板22の厚みの半分、一方のセパレータ26の厚み、負極板24の厚み、他方のセパレータ26の厚み、及び他方の正極板22の厚みの半分の合計の厚み）を、厚みT(μm)とする。そして、距離D(μm)が、厚みT(μm)よりも30μm以上大きい部分には剥離領域が存在すると判断した。

40

3つの巻回電極体の全てにおいて剥離領域が形成されたものを「○」とした。また、3つの巻回電極体のうち、いずれかの巻回電極体において剥離領域が確認できなかったものを「×」とした。結果を表1に示す。

【0079】

3. 注液工程

剥離工程の条件を上記したように変更した各実施例および各比較例に対して、注液工程を実施した。注液工程で用いる電解液は、エチレンカーボネート(EC)と、エチルメチルカーボネート(EMC)と、ジメチルカーボネート(DMC)とをEC:EMC:DMC=3:4:3の体積比で含む混合溶媒に、支持塩としてのLiPF₆を、1.1mol/Lの濃度で溶解したものを用意した。注液工程は、評価用電池組立体の内部の圧力を絶

50

対圧力で5 kPaまで減圧する第2減圧処理を実施し、その後、上記した電解液を注液する注液処理を実施した。

注液工程において、注液が完了するまでの時間を計測した。比較例2の注液時間を1としたときの各実施例および各比較例の注液時間の比を表1に示す。

【0080】

【表1】

表1

	減圧速度 (kPa/min)	剥離領域の 形成状態	注液時間の比
実施例1	90	○	0.44
実施例2	90	○	0.4
比較例1	10	×	1.2
比較例2	10	×	1

10

【0081】

4. 試験結果

剥離工程において、複数の巻回電極体の全てに剥離領域が形成された実施例1および2は、注液時間が比較例と比べて非常に短くなっていることがわかる。これは、上記したように比較的速い減圧速度で第1減圧処理を実施することにより、各巻回電極体に剥離領域が形成されたことにより、電解液が含浸しやすくなったためと推測される。したがって、剥離工程において、複数の巻回電極体のそれぞれに剥離領域を形成させることにより高容量かつ電池全体としての注液性が向上した二次電池を製造することができる。

20

【0082】

なお、巻回電極体20の平坦部20fにおいて、積層方向において隣接する2層の正極板22のそれぞれの正極芯体22cの間に存在する、一方の正極活物質層22a、一方のセパレータ26、負極板24、他方のセパレータ26、及び他方の正極活物質層22aを一つのユニットとする。当該ユニット内に存在する正極板22とセパレータ26の境界面及び負極板24とセパレータ26の境界面の少なくとも一方に剥離領域が形成されたユニットが、巻回電極体20の平坦部20fにおいて、3ユニット以上形成されていることが好ましく、5ユニット以上形成されていることが好ましい。

30

一つの巻回電極体20の平坦部20fにおいて、正極板22の総積層数がN層である場合、剥離領域が形成されたユニットが0.1N以上形成されていることが好ましく、0.2N以上形成されていることがより好ましい。

巻回電極体20の巻回軸方向の中央部において巻回軸に対して垂直な断面において、剥離領域の幅は、10mm以上であることが好ましく、20mm以上であることがより好ましく、30mm以上であることがさらに好ましい。

巻回電極体20の巻回軸方向の中央部において巻回軸に対して垂直な断面において、巻回電極体20の平坦部20fにおける正極板22の幅を幅W2(mm)とし、一つの層における剥離領域の幅を幅W3(mm)とした場合、W3/W2が0.1以上であることが好ましく、0.2以上であることがより好ましく、0.3以上であることがさらに好ましい。

40

【0083】

なお、複数の巻回電極体20のうち、剥離領域が形成されたユニットの数が最も少ない巻回電極体の剥離領域が形成されたユニット数をAとし、剥離領域が形成されたユニットの数が最も多い巻回電極体の剥離領域が形成されたユニット数をBとする。この場合、B/Aの値が1~5であることが好ましい。これにより、巻回電極体20への電解液の含浸の不均一がより効果的に抑制される。なお、B/Aの値が1~3であることがより好ましく、1~2であることがさらに好ましい。

50

【 0 0 8 4 】

以上、本発明を詳細に説明したが、上述の説明は例示にすぎない。すなわち、ここで開示される技術には、上述した具体例を様々に変形、変更したものが含まれる。

【 符号の説明 】

【 0 0 8 5 】

1 0	電池ケース	
1 4	封口板（蓋体）	
1 5	注液孔	
1 6	封止部材	
2 0	巻回電極体	10
2 2	正極板	
2 4	負極板	
2 6	セパレータ	
2 6 a	基材層	
2 6 b	接着層	
3 0	正極端子	
4 0	負極端子	
5 0	正極集電部	
6 0	負極集電部	
1 0 0	二次電池	20
2 0 0	電極体群	

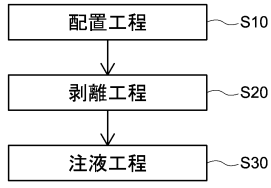
30

40

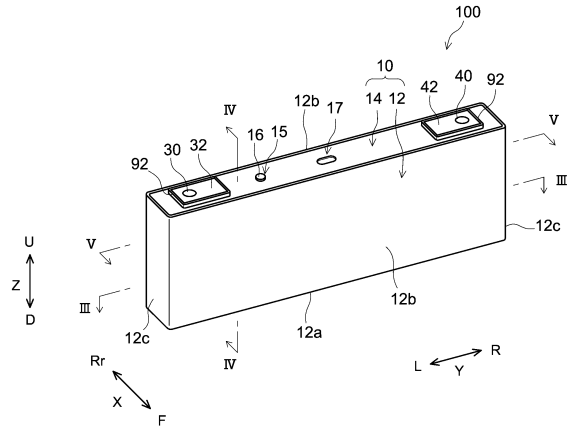
50

【図面】

【図 1】

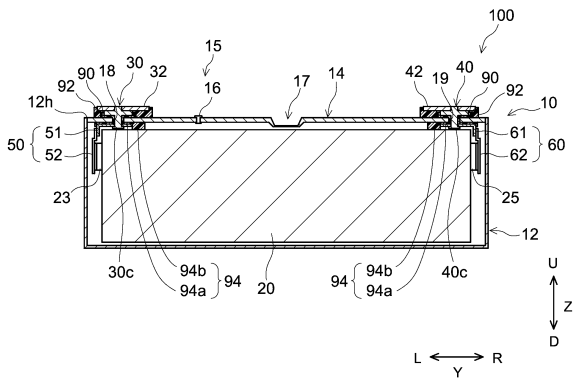


【図 2】

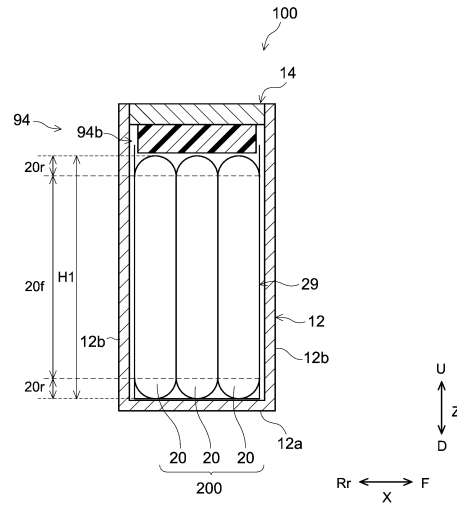


10

【図 3】



【図 4】



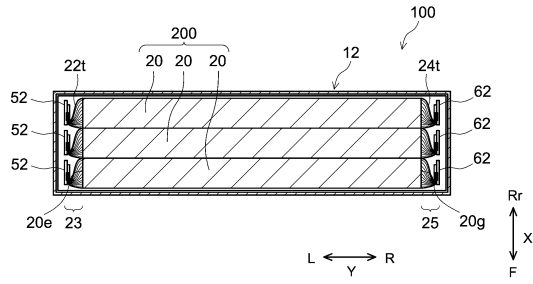
20

30

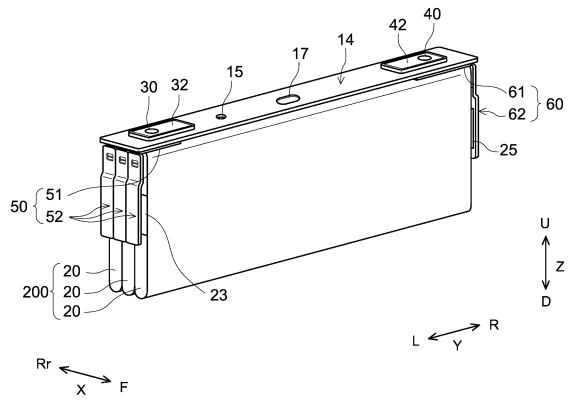
40

50

【図5】

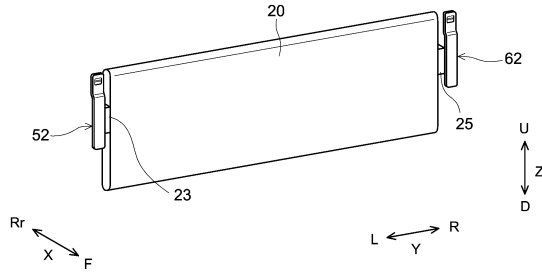


【図6】

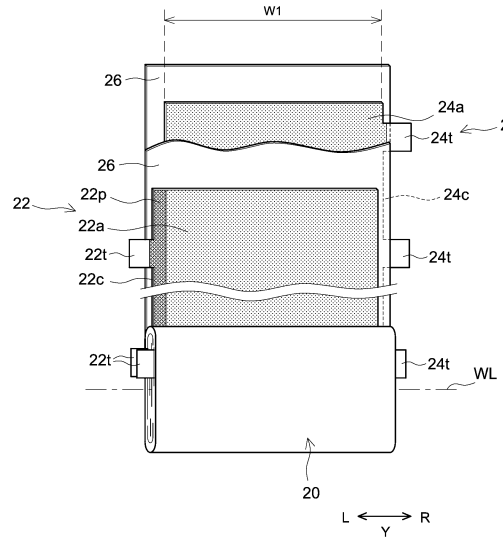


10

【図7】



【図8】



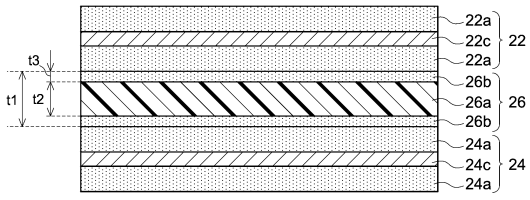
20

30

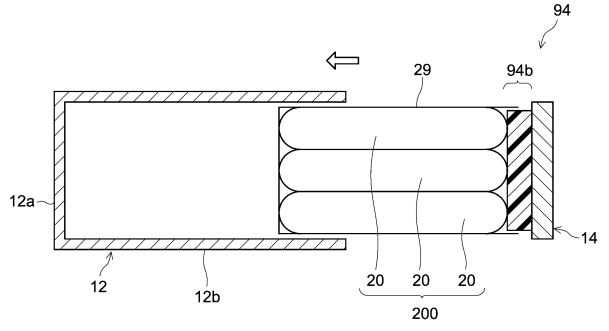
40

50

【 9 】



【 1 0 】



10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51)国際特許分類

F I

<i>H 0 1 M</i>	<i>4/133(2010.01)</i>	<i>H 0 1 M</i>	<i>4/133</i>
<i>H 0 1 M</i>	<i>50/103(2021.01)</i>	<i>H 0 1 M</i>	<i>50/103</i>
<i>H 0 1 G</i>	<i>11/84 (2013.01)</i>	<i>H 0 1 G</i>	<i>11/84</i>
<i>H 0 1 G</i>	<i>11/52 (2013.01)</i>	<i>H 0 1 G</i>	<i>11/52</i>
<i>H 0 1 M</i>	<i>50/46 (2021.01)</i>	<i>H 0 1 M</i>	<i>50/46</i>
<i>H 0 1 M</i>	<i>10/0525(2010.01)</i>	<i>H 0 1 M</i>	<i>10/0525</i>
<i>H 0 1 M</i>	<i>10/0566(2010.01)</i>	<i>H 0 1 M</i>	<i>10/0566</i>
<i>H 0 1 M</i>	<i>10/0587(2010.01)</i>	<i>H 0 1 M</i>	<i>10/0587</i>

シヨonz株式会社内

審査官 佐溝 茂良

(56)参考文献

特開2021-144888(JP,A)

特開2014-212060(JP,A)

特開2001-319641(JP,A)

(58)調査した分野 (Int.Cl., DB名)

H 0 1 M 1 0 / 0 0 - 1 0 / 3 9

H 0 1 M 4 / 0 0 - 4 / 6 2

H 0 1 M 5 0 / 4 0 - 5 0 / 4 9 7

H 0 1 M 6 / 0 0 - 6 / 2 2

H 0 1 G 1 1 / 0 0 - 1 1 / 8 6