



(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 201624820 A

(43)公開日：中華民國 105 (2016) 年 07 月 01 日

(21)申請案號：104143101

(22)申請日：中華民國 104 (2015) 年 12 月 22 日

(51)Int. Cl.：

H01M10/42 (2006.01)

H01M4/62 (2006.01)

H01M4/485 (2010.01)

H01M10/052 (2010.01)

(30)優先權：2014/12/31

中華民國

103146517

(71)申請人：財團法人工業技術研究院 (中華民國) INDUSTRIAL TECHNOLOGY RESEARCH INSTITUTE (TW)

新竹縣竹東鎮中興路 4 段 195 號

(72)發明人：潘金平 PAN, JING PIN (TW)；吳弘俊 WU, HUNG CHUN (TW)；方家振 FANG, JASON (TW)；李仁傑 LEE, JEN JEH (TW)；王宗雄 WANG, TSUNG HSIUNG (TW)；陳振崇 CHEN, CHEN CHUNG (TW)；葉定儒 YEH, TING JU (TW)；李昱翰 LI, YU HAN (TW)；賴冠霖 LAI, GUAN LIN (TW)；羅仁志 LO, JEN CHIH (TW)；許榮木 HSU, JUNG MU (TW)；楊長榮 YANG, CHANG RUNG (TW)

(74)代理人：陳昭誠

申請實體審查：有 申請專利範圍項數：18 項 圖式數：0 共 25 頁

(54)名稱

電池電極漿料組成物

A BATTERY ELECTRODE PASTE COMPOSITION

(57)摘要

一種含有矽烷偶合劑改質之活性物質之電池電極漿料組成物，包括矽烷偶合劑改質之活性物質、導電添加劑、黏著劑以及馬來醯亞胺添加劑。該組成物含有矽烷偶合劑改質之活性物質，可提升電池安全性和循環壽命。

A battery electrode paste composition containing silane coupling agent modified active substance, which comprises silane coupling agent modified active substance, conductive additives, adhesives, and maleimide additives.

發明摘要

※ 申請案號：104143101

※ 申請日：104.12.22

※ I P C 分類：

H01M10/42(2006.01)
H01M4/62(2006.01)
H01M4/485(2010.01)
H01M10/052(2010.01)

【發明名稱】(中文/英文)

電池電極漿料組成物

A BATTERY ELECTRODE PASTE COMPOSITION

【中文】

一種含有矽烷偶合劑改質之活性物質之電池電極漿料組成物，包括矽烷偶合劑改質之活性物質、導電添加劑、黏著劑以及馬來醯亞胺添加劑。該組成物含有矽烷偶合劑改質之活性物質，可提升電池安全性和循環壽命。

【英文】

A battery electrode paste composition containing silane coupling agent modified active substance, which comprises silane coupling agent modified active substance, conductive additives, adhesives, and maleimide additives.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：第（ ）圖。

【本代表圖之符號簡單說明】：無。

本案無圖式

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

本案無化學式。

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

電池電極漿料組成物

A BATTERY ELECTRODE PASTE COMPOSITION

【技術領域】

本發明係關於一種電池電極漿料組成物，尤指一種用於鋰電池之電極漿料組成物。

【先前技術】

近年來，諸如筆記型電腦、摺疊式手機、數位相機與攝影機等 3C 電子產品，朝向輕、薄、短、小的方向發展，已成為電子科技化與通訊產品之趨勢，更進一步增加了攜帶能源供應器“二次電池”的需求。相對的，二次電池的需求與規格亦朝向薄型化、小尺寸與輕質量發展。同時，為了因應電子產品功能多樣化、高速率、高性能與高功率之需求，對於二次電池之電容需求亦逐漸增加。

一般而言，鋰離子電池之能量密度大約 260 至 270 kWh/m³，約為鎳鎘鹼性二次電池的二倍甚至更高。鋰離子/鋰高分子二次電池具有快速充電、高功率放電、能量密度高及循環壽命長等優點，因此，在所有二次電池中，鋰離子電池與鋰高分子電池在小型電子產品的應用上佔有重要的角色。

鋰離子電池或鋰高分子電池的電化學原理與一般電池相同，主要的組成分別為正極、負極、隔離膜與電解液，

在充電過程中，鋰離子由正極移向負極；放電時，鋰離子則由負極移向正極。正極與負極皆包含電子金屬收集板與電極表面塗膜層，其中該正、負電極表面塗膜層皆含電極活化物、導電粉體與電極黏著劑。

由於製作正極表面塗膜之正極漿料組成物中，含有高密度鋰鈷氧化物(LiCoO_2)等正極活性物質之金屬氧化物粉末，與低密度的碳粉與石墨，在電極黏著劑聚二氟乙烯(PVDF)與溶劑 N-甲基吡咯烷酮(NMP)的混合與分散下，容易造成沉降(sedimentation)現象。因此，發展出以巴比土酸改質馬來醯亞胺增加其與電池電極漿料溶劑的相容性。然而，未反應之馬來醯亞胺與巴比土酸可能游離出而與電極黏著劑結合，破壞電極黏著劑之原本柔軟韌性，故易產生正極之脆裂，而使得於高密度輾壓、捲繞成電池芯時易斷裂造成生產良率低與電解質的耗損，造成電容量下降。

因此，如何解決上述缺陷以延長電池產品的循環壽命，實為一重要課題。

【發明內容】

一種電池電極漿料組成物，包括矽烷偶合劑改質之活性物質、導電添加劑、黏著劑以及馬來醯亞胺添加劑。

該矽烷偶合劑改質之活性物質包含鋰及至少一種非鋰之金屬。

該馬來醯亞胺添加劑係具有馬來醯亞胺結構之化合物。

本揭露之矽烷偶合劑改質之活性物質，因其末端含有

活性化學反應基 $-NH_2$ 或 $-CH=CH_2$ ，可在漿料製備、塗佈、乾燥之加工條件下，與漿料配方中之馬來醯亞胺及巴比土酸反應化學鍵結結合，降低馬來醯亞胺與巴比土酸游離出與電極黏著劑結合的機會，並避免造成最終極板過脆與無法提高輾壓密度之缺陷。該矽烷偶合劑改質之活性物質與馬來醯亞胺、巴比土酸、導電粉體及電極黏著劑分散於 N-甲基吡咯烷酮溶液中，形成均一結構漿料塗佈於正極板鋁金屬集電板，做為鋰離子電池或鋰高分子電池正極漿料之組成，可製成兼具安全、降低電池阻抗並提昇電池電容量之鋰電池。

【實施方式】

以下係藉由特定的具體實施例說明本發明之實施方式，熟習此技藝之人士可由本說明書所揭示之內容輕易地瞭解本發明之優點及功效。

本揭露之用於鋰電池之電極漿料組成物，包括矽烷偶合劑改質之活性物質、導電添加劑、黏著劑以及馬來醯亞胺添加劑。

該矽烷偶合劑改質之活性物質包含鋰及至少一種非鋰之金屬。此外，該矽烷偶合劑改質之活性物質係指該矽烷偶合劑鍵結於活性物質而得者。

舉例而言，該矽烷偶合劑改質之活性物質係由矽烷偶合劑與活性物質於溶劑，例如正己烷中反應而得。於該反應之一具體實例中，該矽烷偶合劑改質之活性物質中，該矽烷偶合劑與該活性物質之重量比為 1:10000 至

15:10000，該活性物質與正己烷之重量比為 20:1 至 3:1，該反應溫度為 130°C 至 190°C。

該矽烷偶合劑較佳為具有 $-NH_2$ 反應基或 $-CH=CH_2$ 反應基之矽烷偶合劑，例如：乙烯基矽烷，如乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷；丙烯酸基矽烷，如 3-甲基丙烯酸基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-甲基丙烯酸基丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯酸基丙基甲基二乙氧基矽烷、3-甲基丙烯酸基丙基三乙氧基矽烷、3-丙烯酸基丙基三甲氧基矽烷；及胺基矽烷，如 N-2(胺乙基)3-胺丙基甲基二甲氧基矽烷、N-2(胺乙基)3-胺丙基三甲氧基矽烷、N-2(胺乙基)3-胺丙基三乙氧基矽烷、3-胺丙基三甲氧基矽烷、3-胺丙基三乙氧基矽烷、N-苯基-3-胺丙基三甲氧基矽烷、3-胺基-N-(1,3-二甲基-亞丁基)丙基三乙氧基矽烷。

於一具體實例中，該矽烷偶合劑之化學結構為：



，其中，n 為 1 以上之整數，R 為 C1 至 C12 伸烷基。

該矽烷偶合劑改質之活性物質中，該活性物質的實例包括，但不限於鋰鎳鈷鋁氧化物(NCA)、鋰鎳鈷錳氧化物(LNCM)或金屬氧化物類的活性物質，例如鋰鈷氧化物($LiCoO_2$)、鋰錳氧化物($LiMnO_2$)、鋰鎳氧化物($LiNiO_2$)，或者磷酸鋰鐵氧化物($LiFePO_4$)、鋰鎳鈷錳氧化物($LiNi_{0.5}Co_{0.2}Mn_{0.3}O_2$)。

該馬來醯亞胺添加劑，係具有馬來醯亞胺結構之化合物者。於一具體實例中，該馬來醯亞胺添加劑之含量係佔

該電池電極漿料組成物固含量總重之 0.1 至 5wt%。

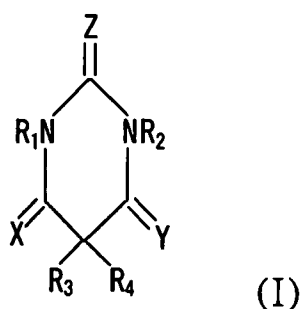
於一具體實例中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係具有聚馬來醯亞胺結構之化合物。該種馬來醯亞胺添加劑之含量係佔本揭露之電池電極漿料組成物固含量總重之 0.1 至 1wt%。此外，該具有聚馬來醯亞胺結構之化合物係具有兩個或更多個馬來醯亞胺結構之化合物。

於另一具體實例中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係具有單馬來醯亞胺結構之化合物或經具有巴比土酸結構之化合物改質者。

於另一具體實例中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係經具有巴比土酸結構之化合物改質者，或可稱為改質型馬來醯亞胺，其係由包括具有巴比土酸結構之化合物與具有馬來醯亞胺結構之化合物反應而得。該種馬來醯亞胺添加劑之含量係佔本揭露之電池電極漿料組成物固含量總重之 0.5 至 5wt%。

為得到該改質型馬來醯亞胺，於一具體實例中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物與具有巴比土酸結構之化合物的反應莫耳比為 25:1 至 1:1。

本揭露使用之具有巴比土酸結構之化合物係具有式(I)之結構：



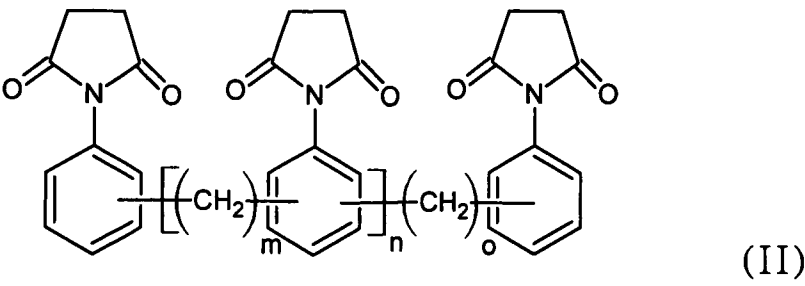
其中，X、Y 及 Z 皆為氧原子或其中至少一者為硫原子替代，且 R₁、R₂、R₃ 及 R₄ 獨立選自氫或 C1 至 C5 烷基。

於一具體實施例中，X、Y 及 Z 皆為氧原子，R₃ 及 R₄ 皆為氫，且 R₁ 及 R₂ 獨立選自氫或 C1 至 C5 烷基，但 R₁ 及 R₂ 不同時為氫。

於又一具體實施例中，X、Y 及 Z 中至少一者為硫原子替代，且 R₁、R₂、R₃ 及 R₄ 獨立選自氫或 C1 至 C5 烷基。

此外，作為馬來醯亞胺添加劑或用以和具有巴比土酸結構之化合物反應的具有馬來醯亞胺結構之化合物可為具有聚馬來醯亞胺結構及/或單馬來醯亞胺結構之化合物。

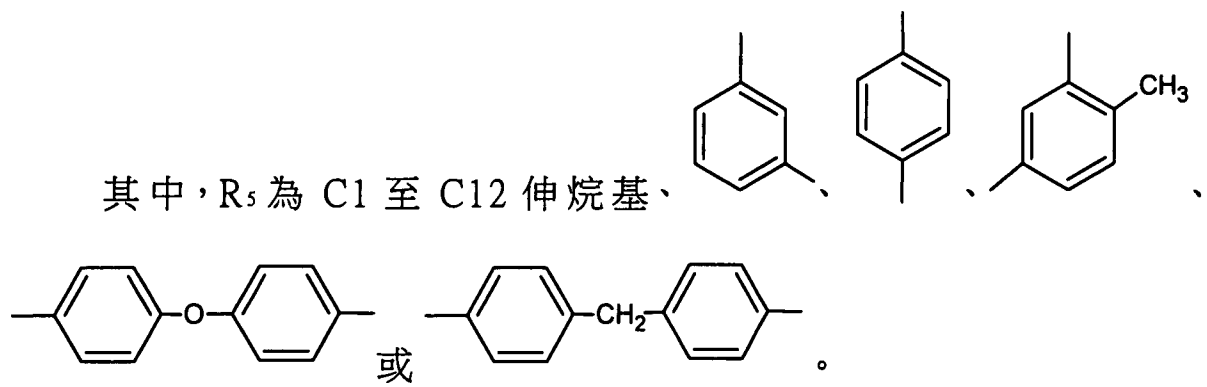
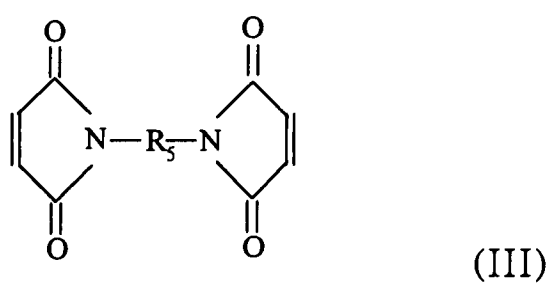
於一具體實施例中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係具有式(II)之結構：



其中，m、n 及 o 各自為 0 以上之整數，但 m、n 及 o 不同時為 0。

於另一具體實施例中，該 m、n 及 o 各自為大於 1 之整數。

於另一具體實施例中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係具有式(III)之結構：



於一具體實施例中，該 C1 至 C12 伸烷基可為 -(CH₂)₂-，
-(CH₂)₆-， -(CH₂)₈-， -(CH₂)₁₂-或
-CH₂-C(CH₃)₂-CH₂-CH(CH₃)-(CH₂)₂-。

於一具體實施例中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係選自下列具有單馬來醯亞胺結構之化合物所組成群組之至少一者：苯基馬來醯亞胺(Phenylmaleimide)、N-(p-甲基苯基)馬來醯亞胺(N-(p-methylphenyl) maleimide)、N-(o-甲基苯基)馬來醯亞胺(N-(o-methylphenyl)maleimide)、N-(m-甲基苯基)馬來醯亞胺(N-(m-methylphenyl)maleimide)、N-環己基馬來醯亞胺(N-cyclohexyl maleimide)、馬來醯亞胺(Maleimide)、馬來醯亞胺基苯酚(Maleimidophenol)、馬來醯亞胺基苯環丁烯(Maleimidobenzocyclobutene)、含磷之馬來醯亞胺(Phosphorus-containing maleimide)、含磷酸根之馬來醯亞胺(Phosphonate-containing maleimide)、含矽氧烷之馬來醯亞胺(Siloxane-containing maleimide)、N-(4-四氫吡喃-氧

苯基)馬來醯亞胺(N-(4-tetrahydropyranyl-oxyphenyl)maleimide)及 2,6-二甲苯基-馬來醯亞胺(2,6-Xylyl-maleimide)。

該改質型馬來醯亞胺之改質反應可使用，例如碳酸亞丙基酯(propylene carbonate, PC)或 N-甲基吡咯烷酮(NMP)作為溶劑；其中，包括具有巴比土酸結構之化合物、自由基捕捉劑與具有馬來醯亞胺結構之化合物的重量合與溶劑重量之重量比係介於 3:97 至 40:60 之範圍內。該改質反應可於 110 至 130℃ 之溫度條件下進行反應，歷時 2 至 7 小時。

該改質型馬來醯亞胺具有類似樹枝狀(dendrimer-like)的高度分枝(hyperbranched)結構，能與電池電極漿料組成物中電極活性物質，例如金屬氧化物，形成穩定的錯化合物，增加分散性，長時間地維持黏度的穩定性。

另外，本揭露可使用介穩相球狀碳(Mesophase Carbon Micro Beads, MCMB)及天然石墨粉所組成群組之至少一者等負極活性物質作為漿料組成物中的電極活性物質。

該活性物質之含量並無特別限制，只要足以提供所需之電容量且不影響電極膜加工特性即可。於一具體實例，該活性物質係佔組成物總重 20 至 80 重量% (wt%)。

該組成物之導電添加劑的實例包括，但非限於顆粒石墨 KS4(4 μ m)、顆粒石墨 KS6(6 μ m)、氣相成長碳纖(Vapor Grown Carbon Fiber, VGCF)以及小顆粒碳黑(SP)之至少一者，通常係使用氣相成長碳纖(VGCF)。

經由表面處理加工，可將官能基導入該導電添加劑，

使該添加劑表面帶有能與馬來醯亞胺進行反應之雙鍵官能基。例如，使用矽烷偶合劑或油酸偶合劑改質該導電添加劑，使該導電添加劑表面帶有能與改質馬來醯亞胺分散劑反應之胺基(-NH₂)或乙烯基雙鍵(-CH=CH₂)官能基。通常，該導電添加劑係佔該組成物總重 0.1 至 5 wt%。

該電池電極漿料組成物之黏著劑的實例包括，但非限於聚二氟乙烯(PVDF)、丙烯酸樹脂(acrylic resin)以及苯乙烯-丁二烯橡膠(SBR)，並可使用至少一種黏著劑。該黏著劑能與改質馬來醯亞胺分散劑混成網狀的均一結構，改善漿料的塗佈特性。於一具體實例中，該黏著劑係佔組成物總重 0.1 至 15 wt%。該電池電極漿料組成物可進一步包括其他添加劑，例如介面活性劑；以及反應起始劑，例如過氧化物或偶氮雙丁腈(2,2'-azobisisobutyronitrile, AIBN)。

以下實施例用以說明本發明，本發明之申請專利範圍並不會因此而受限制。本發明亦可藉由其它不同之實施方式加以施行或應用，本說明書中的各項細節亦可基於不同觀點與應用，在不悖離本發明所揭示之精神下進行各種修飾與變更。

實施例

合成例 1：矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物之製備

將鋰鈷氧化物(LiCoO₂)：3-胺丙基三乙氧基矽烷(APTES)：正己烷以重量比為 87.00：0.02：12.98 混合，將上述混合物以 70℃ 反應約 1 小時後，升溫至 105℃ 再反應 1 小時，最後升溫至 190℃ 再反應 1 小時，即得矽烷偶合劑改質

之鋰鈷氧化物之初產物。將上述矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物之初產物，使用正己烷清洗三次後，置於烘箱內以 110℃ 烘烤 2 至 3 小時獲得最終純化之產物，即為矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物之粉體。

合成例 2：矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物之製備

將鋰三元系氧化物($\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_2$): 3-胺丙基三乙氧基矽烷(APTES): 正己烷以重量比為 87.00: 0.02: 12.98 混合，將上述混合物以 70℃ 反應約 1 小時後，升溫至 105℃ 再反應 1 小時，最後升溫至 190℃ 再反應 1 小時，即得矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物之初產物。將上述矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物之初產物，使用正己烷清洗三次後，置於烘箱內以 110℃ 烘烤 2 至 3 小時獲得最終純化之產物，即為矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物之粉體。

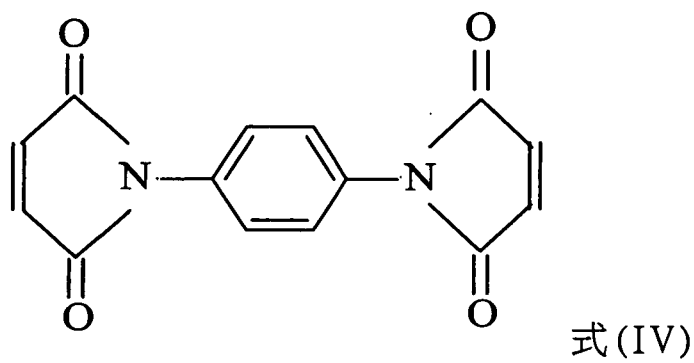
合成例 3：矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物之製備

將鋰鎳鈷鋁氧化物(NCA): 3-胺丙基三乙氧基矽烷(APTES): 正己烷以重量比為 87.00: 0.02: 12.98 混合，將上述混合物以 70℃ 反應約 1 小時後，升溫至 105℃ 再反應 1 小時，最後升溫至 190℃ 再反應 1 小時，即得矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物之初產物。將上述矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物之初產物，使用正己烷清洗三次後，置於烘箱內以 110℃ 烘烤 2 至 3 小時獲得最終純化之產物，即為矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物之粉體。

合成例 4：聚馬來醯亞胺分散劑之製備

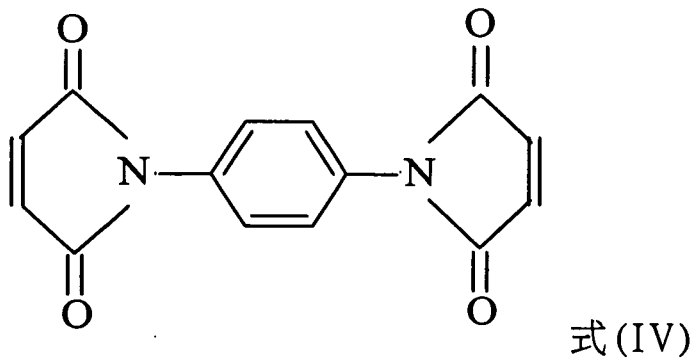
將雙馬來醯亞胺: N-甲基吡咯烷酮(NMP)溶劑以重量比

為 3 : 97 混合，將上述的混合物以 130℃ 反應約 24 小時，獲得以 N-甲基吡咯烷酮為溶劑之聚馬來醯亞胺，做為鋰電池電極材料組成物配方之添加劑使用。該雙馬來醯亞胺為以下式 (IV) 化合物：



合成例 5：改質型馬來醯亞胺分散劑之製備

將雙馬來醯亞胺：巴比土酸 (BTA) (莫耳比為 2 : 1)，加入 N-甲基吡咯烷酮，其間 (雙馬來醯亞胺 + 巴比土酸) : N-甲基吡咯烷酮的重量比為 5 : 95，將上述的混合物以 130℃ 反應約 24 小時，獲得以 N-甲基吡咯烷酮為溶劑之改質馬來醯亞胺，做為鋰電池電極材料組成物配方之添加劑使用。該雙馬來醯亞胺為以下式 (IV) 化合物：



實施例 1：含有矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物的鋰離子電池之製備

首先，將 671.2 克之合成例 1 之矽烷偶合劑改質之鋰

鈷氧化物、17.4 克之助導電劑(Super P)、13.9 克之聚二氟乙烯(PVDF)以及 297.5 克之 N-甲基吡咯烷酮置於行星式混合機 Planetary Mixer)，藉以得到標準鋰離子電池正極漿料，其間加入此正極漿料 2.1g 的合成例 4，做為電池添加劑。

再依標準鋰離子電池正極極板製備法，接著於鋁箔表面上塗佈該漿料得到正極極板。

另外，依標準鋰離子電池負極極板製備法，製備負極漿料及負極極板，亦即將 930 克中間相碳微球(Mesocarbon Microbeads; MCMB 2528)、20 克之導電石墨(KS4)、60 克之聚二氟乙烯(PVDF)、45g 草酸(Oxalic acid)以及 750 克之 N-甲基吡咯烷酮置於行星式混合機(Planetary Mixer)，得到負極極板漿料，接著再於銅箔表面上塗佈該漿料得到負極極板。

接著，組裝正極極板及負極極板得到標準電池芯(Jelly Roll, 503759C)，尺寸為 5mm(高)x 37mm(寬)x 59mm(長)，灌入 4.2 克的液態標準電解液(PC/EC(碳酸亞乙酯)/DEC(碳酸二乙酯)=2/3/5(體積比)，1.1M LiPF₆ 與 2.0 wt% 碳酸亞乙烯酯(VC)之添加)，封裝與化成後即為實施例 1 鋰離子電池。

實施例 2：含有矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1 之方法製備鋰離子電池，但將電池添加劑替換為加入此正極漿料 7.0g 的合成例 5。

比較例 1：含有未改質之鋰鈷氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1 之方法製備鋰離子電池，但不加電池添加劑，且將矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物替換為未改質之鋰鈷氧化物。

比較例 2：含有未改質之鋰鈷氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1 之方法製備鋰離子電池，但將矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物替換為未改質之鋰鈷氧化物。

比較例 3：含有未改質之鋰鈷氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 2 之方法製備鋰離子電池，但將矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物替換為未改質之鋰鈷氧化物。

實施例 1-1：含有矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1 之方法製備鋰離子電池，但將合成例 1 之矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物替換為合成例 2 之矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物。

實施例 2-1：含有矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1-1 之方法製備鋰離子電池，但將電池添加劑替換為加入此正極漿料 7.0g 的合成例 5。

比較例 1-1：含有未改質之鋰三元系氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1-1 之方法製備鋰離子電池，但不加電池添加劑，且將矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物替換為未改質之鋰三元系氧化物。

比較例 2-1：含有未改質之鋰三元系氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1-1 之方法製備鋰離子電池，但將矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物替換為未改質之鋰三元系氧化物。

比較例 3-1：含有未改質之鋰三元系氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 2-1 之方法製備鋰離子電池，但將矽烷偶合劑改質之鋰三元系氧化物替換為未改質之鋰三元系氧化物。

實施例 1-2：含有矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1 之方法製備鋰離子電池，但將合成例 1 之矽烷偶合劑改質之鋰鈷氧化物替換為合成例 3 之矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物。

實施例 2-2：含有矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1-2 之方法製備鋰離子電池，但將電池添加劑替換為加入此正極漿料 7.0g 的合成例 5。

比較例 1-2：含有未改質之鋰鎳鈷鋁氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1-2 之方法製備鋰離子電池，但不加電池添加劑，且將矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物替換為未改質之鋰鎳鈷鋁氧化物。

比較例 2-2：含有未改質之鋰鎳鈷鋁氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 1-2 之方法製備鋰離子電池，但將矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物替換為未改質之鋰鎳鈷鋁氧化物。

比較例 3-2：含有未改質之鋰鎳鈷鋁氧化物的鋰離子電池之製備

如實施例 2-2 之方法製備鋰離子電池，但將矽烷偶合劑改質之鋰鎳鈷鋁氧化物替換為未改質之鋰鎳鈷鋁氧化物。

測試例 1：正極極板最終輾壓密度之測試

以標準製具切割鋁箔基材之上述正極極板，獲得 50cm² 標準圓形面積，其間含特定厚度的鋁箔(於輾壓過程中，厚度、直徑與質量皆視為固定不變)，而塗上鋁箔基材正極組成之特定質量的純固體物，藉由 $M=D \times V$ (M:質量、D:密度與 V:體積)，可分別計算出未輾壓前之初密度，與輾壓後之最終密度；輾壓機為鋰電池製造常用之輾壓機，在本專利發明則採用日本 Ono 輾壓機(最高輸出力量 150 噸，一般操作範圍為 10 至 30 噸)，藉此得到本案實施例與比較例之輾壓密度值，並記錄於表 1 至表 3。

表 1

	實施例		比較例		
	1	2	1	2	3
輾壓密度 (g/cm ³)	4.0	4.0	4.0	3.7	3.6

表 2

	實施例		比較例		
	1-1	2-1	1-1	2-1	3-1
輾壓密度(g/cm ³)	3.4 ^a	3.4 ^a	3.4 ^a	3.4 ^b	3.4 ^b

^a 極板維持原先的柔軟度，二次對折而不斷裂

^b 極板降低原先的柔軟度，二次對折造成斷裂

表 3

	實施例		比較例		
	1-2	2-2	1-2	2-2	3-2
輾壓密度(g/cm ³)	2.9 ^a	2.9 ^a	2.9 ^a	2.9 ^b	2.9 ^b

^a 極板維持原先的柔軟度，二次對折而不斷裂

^b 極板降低原先的柔軟度，二次對折造成斷裂

測試例 2：鋰離子電池之性能測試

在 1C 充放電速率的穩定電流程序下，進行電池性能之評估。測試其間，紀錄第一次放電量、阻抗、於室溫下 500 次循環（cycle，一小時放光電量，一小時充電）充放電後之放電殘餘量(最後 1 次完成充電，該次再放電的電量)與於 55℃ 下 500 次循環充放電後之放電殘量，將測量值紀錄於表 4 至表 6。

表 4

	電池成品性能			
	第一次放電量 (mAh)	阻抗 (mΩ)	1C/1C 500 循環放電 殘餘量(室溫下)(%)	1C/1C 500 循環放電 殘餘量(55℃ 下)(%)
實施例 1	1347	30	92	85
實施例 2	1345	31	90	84
比較例 1	1350	30	82	70
比較例 2	1335	33	86	82
比較例 3	1329	35	84	80

表 5

	電池成品性能			
	第一次放電量 (mAh)	阻抗 (mΩ)	1C/1C 500 循環放電 殘餘量(室溫下)(%)	1C/1C 500 循環放電 殘餘量(55℃ 下)(%)
實施例 1-1	1998	35	93	86
實施例 2-1	1992	36	90	84
比較例 1-1	2000	35	80	68
比較例 2-1	1975	39	87	82
比較例 3-1	1949	41	84	79

表 6

	電池成品性能			
	第一次放電量 (mAh)	阻抗 (mΩ)	1C/1C 500 循環放電 殘餘量(室溫下)(%)	1C/1C 500 循環放電 殘餘量(55℃ 下)(%)
實施例 1-2	4994	41	94	87
實施例 2-2	4998	43	91	85
比較例 1-2	5000	41	81	70
比較例 2-2	4936	45	88	83
比較例 3-2	4870	48	85	81

測試例 3：鋰離子電池之安全性測試

以針徑 2.5mm 之刺針進行電池安全性之測試，其中，
針刺速度為 1mm/S，並測量值紀錄於表 7 至表 9。

表 7

	爆炸起火	針刺時電池中心的溫度（℃）
實施例 2	否	125
比較例 1	是	715
比較例 2	是	701
比較例 3	否	132

表 8

	爆炸起火	針刺時電池中心的溫度（℃）
實施例 2-1	否	129
比較例 1-1	是	680
比較例 2-1	是	645
比較例 3-1	否	131

表 9

	爆炸起火	針刺時電池中心的溫度（℃）
實施例 2-2	否	132
比較例 1-2	是	705
比較例 2-2	是	698
比較例 3-2	否	135

根據表 4 至表 9 之數據可知，將矽烷偶合劑改質之活性物質應用於鋰離子電池中，同時具有安全性、高電容量與常溫或高溫下優異的循環壽命(cycle life)。

【符號說明】

無。

申請專利範圍

1. 一種電池電極漿料組成物，包括：

矽烷偶合劑改質之活性物質，該活性物質包含鋰及至少一種非鋰之金屬，其中，該矽烷偶合劑改質之活性物質係該矽烷偶合劑鍵結於活性物質而得者；

導電添加劑；

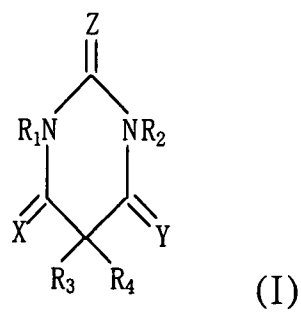
黏著劑；以及

馬來醯亞胺添加劑，係具有馬來醯亞胺結構之化合物。

2. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該矽烷偶合劑係具有 -NH_2 反應基或 -CH=CH_2 反應基。
3. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該矽烷偶合劑之化學結構為 $\text{H}_2\text{N}-(\text{CH}_2)_3\text{Si}(\text{OC}_n\text{H}_{2n+1})_3$ 或 $\text{CH}_2=\text{CH}-\text{R}-\text{Si}(\text{OC}_n\text{H}_{2n+1})_3$ ，其中， n 為 1 以上之整數， R 為 C_1 至 C_{12} 伸烷基。
4. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該矽烷偶合劑為 3-胺丙基三乙氧基矽烷。
5. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該活性物質係金屬氧化物。
6. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該活性物質為鋰鎳鈷鋁氧化物(NCA)、鋰鎳鈷錳氧化物(LNCM)、鋰鈷氧化物(LiCoO_2)、鋰錳氧化物(LiMnO_2)、鋰鎳氧化物(LiNiO_2)、磷酸鋰鐵氧化物

- (LiFePO_4)、或鋰鎳鈷錳氧化物($\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_2$)。
7. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，該馬來醯亞胺添加劑之含量係佔該電池電極漿料組成物固含量總重之 0.1 至 5wt%。
 8. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係具有聚馬來醯亞胺結構之化合物。
 9. 如申請專利範圍第 8 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該馬來醯亞胺添加劑之含量係佔該電池電極漿料組成物固含量總重之 0.1 至 1wt%。
 10. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係經具有巴比土酸結構之化合物改質者。
 11. 如申請專利範圍第 10 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該馬來醯亞胺添加劑之含量係佔該電池電極漿料組成物固含量總重之 0.5 至 5wt%。
 12. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該黏著劑係佔該電池電極漿料組成物總重之 0.1 至 15 wt%。
 13. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該導電添加劑係佔該電池電極漿料組成物總重之 0.1 至 5 wt%。
 14. 如申請專利範圍第 10 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該具有巴比土酸結構之化合物係具有式(I)之結

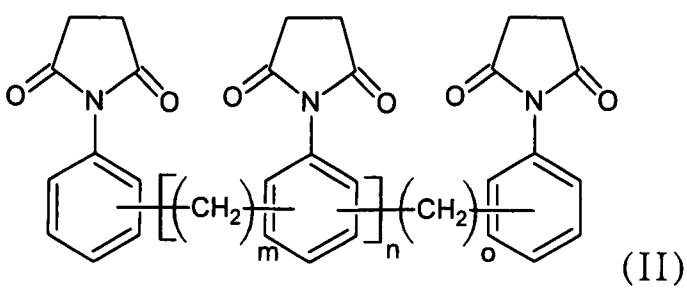
構：



其中，X、Y 及 Z 皆為氧原子或其中至少一者為硫原子替代，且 R₁、R₂、R₃ 及 R₄ 獨立選自氫或 C1 至 C5 烷基。

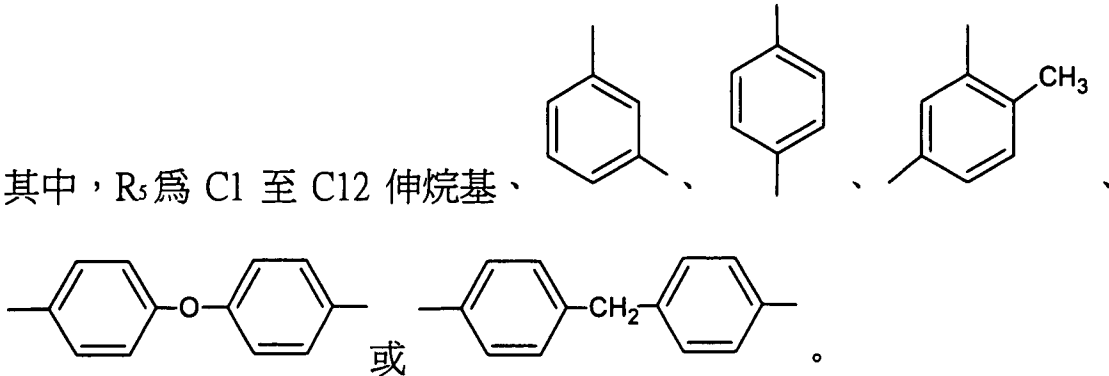
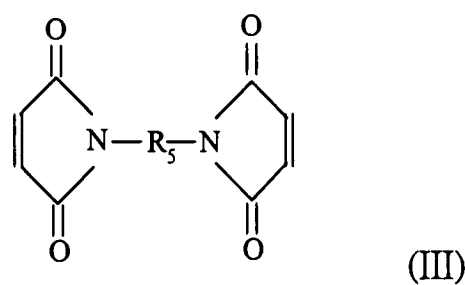
15. 如申請專利範圍第 14 項所述之電池電極漿料組成物，其中，X、Y 及 Z 皆為氧原子，R₃ 及 R₄ 皆為氫，且 R₁ 及 R₂ 獨立選自氫或 C1 至 C5 烷基，但 R₁ 及 R₂ 不同時為氫。

16. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係具有式(II)之結構：



其中，m、n 及 o 各自為 0 以上之整數，且 m、n 及 o 不同時為 0。

17. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係具有式(III)之結構：



18. 如申請專利範圍第 1 項所述之電池電極漿料組成物，其中，該具有馬來醯亞胺結構之化合物係選自下列具有單馬來醯亞胺結構之化合物所組成群組之至少一者：苯基馬來醯亞胺 (Phenylmaleimide)、N-(p-甲基苯基)馬來醯亞胺 (N-(p-methylphenyl) maleimide)、N-(o-甲基苯基)馬來醯亞胺 (N-(o-methylphenyl) maleimide)、N-(m-甲基苯基)馬來醯亞胺 (N-(m-methylphenyl)maleimide)、N-環己基馬來醯亞胺 (N-cyclohexyl maleimide)、馬來醯亞胺 (Maleimide)、馬來醯亞胺基苯酚 (Maleimidophenol)、馬來醯亞胺基苯環丁烯 (Maleimidobenzocyclobutene)、含磷之馬來醯亞胺 (Phosphorus-containing maleimide)、含磷酸根之馬來醯亞胺 (Phosphonate-containing maleimide)、含矽氧烷之馬來醯亞胺 (Siloxane-containing maleimide)、N-(4-四氫吡喃-氧苯基)馬來醯亞胺 (N-(4-tetrahydropyranyl-oxyphenyl)maleimide) 及 2,6-二甲苯基-馬來醯亞胺 (2,6-Xylyl-maleimide)。