

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4096718号
(P4096718)

(45) 発行日 平成20年6月4日(2008.6.4)

(24) 登録日 平成20年3月21日(2008.3.21)

(51) Int. Cl.	F 1	
HO 1 M 2/08 (2006.01)	HO 1 M 2/08	Z H V Z
B 6 O K 1/04 (2006.01)	B 6 O K 1/04	Z
HO 1 M 10/36 (2006.01)	HO 1 M 10/00	1 O 3
B 6 O K 8/00 (2006.01)	HO 1 M 10/00	1 1 O
	HO 1 M 10/00	1 1 7
請求項の数 7 (全 15 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2002-345745 (P2002-345745)	(73) 特許権者	000003997
(22) 出願日	平成14年11月28日(2002.11.28)		日産自動車株式会社
(65) 公開番号	特開2004-179053 (P2004-179053A)		神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地
(43) 公開日	平成16年6月24日(2004.6.24)	(74) 代理人	100072349
審査請求日	平成17年6月24日(2005.6.24)		弁理士 八田 幹雄
		(74) 代理人	100102912
			弁理士 野上 敦
		(74) 代理人	100110995
			弁理士 奈良 泰男
		(74) 代理人	100111464
			弁理士 齋藤 悦子
		(74) 代理人	100114649
			弁理士 宇谷 勝幸

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 バイポーラ電池、バイポーラ電池の製造方法、組電池および車両

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

集電体の一方の面に正極活物質層が形成され他方の面に負極活物質層が形成されてなるバイポーラ電極が、ゲル電解質層を挟んで積層されてなるバイポーラ電池であって、隣接する前記正極活物質層、前記ゲル電解質層、および前記負極活物質層を含んで構成される単電池層の周囲を取り囲むように配置される両面粘着部材を有し、前記両面粘着部材は、基材の役割を果たす絶縁材と、該絶縁材の両面に設けられた粘着剤とからなり、前記単電池層と共に2つの集電体間に挟まれて前記粘着剤により該2つの集電体に接着されてなるバイポーラ電池。

【請求項2】

2つの集電体に挟まれる前記絶縁材および前記粘着剤の合計厚さは、該2つの集電体に挟まれる単電池層の合計厚さに対して誤差30μmである請求項1に記載のバイポーラ電池。

【請求項3】

前記両面粘着部材は、前記基材に、ポリプロピレン、ポリエチレン、ポリアミド系合成繊維からなる群から選択された樹脂が用いられ、前記粘着剤に、合成ゴム、ブチルゴム、合成樹脂、アクリルからなる群から選択された耐溶剤性を有する材料が用いられている請求項1または請求項2に記載のバイポーラ電池。

【請求項4】

前記正極活物質層には、リチウムと遷移金属との複合酸化物が含まれ、
前記負極活物質層には、カーボンもしくはリチウムと遷移金属との複合酸化物が含まれる
請求項 1 ~ 請求項 3 のいずれか一項に記載のバイポーラ電池。

【請求項 5】

集電体の中央に、正極活物質層、ゲル電解質層および負極活物質層の少なくとも一つを積層し、さらに、前記集電体の縁に、基材および該基材の両面に粘着剤が設けられてなる両面粘着部材を積層してなる単セルを複数作製し、
前記単セルを積層するとともに、前記両面粘着部材の前記粘着剤により単セル同士を接着するバイポーラ電池の製造方法。

【請求項 6】

請求項 1 ~ 4 のいずれか一つに記載のバイポーラ電池、または、請求項 5 に記載の製造方法により製造されたバイポーラ電池を複数個、並列および / または直列に接続してなる組電池。

【請求項 7】

請求項 1 ~ 4 のいずれか一つに記載のバイポーラ電池、請求項 5 に記載の製造方法により製造されたバイポーラ電池、または、請求項 6 に記載の組電池を駆動用電源として搭載してなる車両。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、バイポーラ電池に関し、特に電解質に高分子ゲル電解質を用いたバイポーラ電池、該バイポーラ電池の製造方法、組電池、該バイポーラ電池を搭載した車両に関する。

【0002】

【従来の技術】

リチウム二次電池では、その中に封入する電解質として、固体電解質を用いたもの、液体電解質を用いたもの、そして高分子ゲル電解質を用いたものがある。

【0003】

固体電解質には、たとえばポリエチレンオキシドなどの全固体高分子電解質が用いられ、一方、液体電解質には、100%電解液を用いる。高分子ゲル電解質は、これらの中間とも言うべきもので、たとえばポリフッ化ビニリデン(PVDF)などのそのもの自体はリチウムイオン伝導性を持たない高分子の骨格中に電解液を保持させたものである(例えば、特許文献1参照。)

【0004】

【特許文献1】

特開平11-204136号公報

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

この高分子ゲル電解質を用いて単電池層を構成し、この単電池層を複数積層してバイポーラ電池を製作した場合、各単電池層間において電解質が染み出し、他の単電池層の電解質と接触して液絡と称する単電池層同士の短絡が発生してしまうという問題があった。

【0006】

そこで本発明の目的は、高分子ゲル電解質を用いた単電池層を複数積層して電池を構成した場合でも単電池層同士の液絡を防止したバイポーラ電池を提供することである。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明の第1は、集電体の一方の面に正極活物質層が形成され他方の面に負極活物質層が形成されてなるバイポーラ電極が、ゲル電解質層を挟んで積層されてなるバイポーラ電池であって、隣接する前記正極活物質層、前記ゲル電解質層、および前記負極活物質層を含んで構成される単電池層の周囲を取り囲むように配置される両面粘着部材を有し、前記両面粘着部材は、基材の役割を果たす絶縁材と、該絶縁材の両面に設けられた粘着剤とから

10

20

30

40

50

なり、前記単電池層と共に２つの集電体に挟まれて前記粘着剤により該２つの集電体間に接着されてなるバイポーラ電池である。

【０００８】

本発明の第２は、集電体の中央に、正極活物質層、ゲル電解質層および負極活物質層の少なくとも一つを積層し、さらに、前記集電体の縁に、基材および該基材の両面に粘着剤が設けられてなる両面粘着部材を積層してなる単セルを複数作製し、前記単セルを積層するとともに、前記両面粘着部材の前記粘着剤により単セル同士を接着するバイポーラ電池の製造方法である。

【０００９】

【発明の効果】

本発明の第１のバイポーラ電池によれば、単電池層の周囲を取り囲むように配置される両面粘着部材が２つの集電体間に接着されることによりシール層の役割を果たし、単電池層のゲル電解質の漏れ出しによる短絡を防止し、外部からの水分等の浸入を防止することができ、加えて、バイポーラ電池自体の強度を向上することができる。

【００１０】

本発明の第２のバイポーラ電池の製造方法によれば、先に単セルを作製しておき、後で、単セルを積層し接着するので、単セルの製造時にはバイポーラ電池の積層数を考慮することなく大量に製造しておき、個別のバイポーラ電池の製造時に必要な単セルを用意すれば足りる。したがって、単セルの製造と、バイポーラ電池の製造という２段階に分けることができるので、設計変更による積層数の変更にも柔軟に対応することができ、加えて、作業時間を短縮することができる。

【００１１】

【発明の実施の形態】

以下、図面を参照して、本発明の実施の形態を説明する。なお、以下の図面では、説明の明確のために各構成要素を誇張して表現している。

【００１２】

(第１の実施の形態)

本発明の第１は、集電体の一方の面に正極活物質層が形成され他方の面に負極活物質層が形成されてなるバイポーラ電極が、ゲル電解質層を挟んで積層されてなるバイポーラ電池であって、隣接する前記正極活物質層、前記ゲル電解質層、および前記負極活物質層を含んで構成される単電池層の周囲を取り囲むように配置される両面粘着部材を有し、前記両面粘着部材は、基材の役割を果たす絶縁材と、該絶縁材の両面に設けられた粘着剤とからなり、前記単電池層と共に２つの集電体に挟まれて前記粘着剤により該２つの集電体間に接着されてなるバイポーラ電池である。

【００１３】

また、本発明の第２は、集電体の中央に、正極活物質層、ゲル電解質層および負極活物質層の少なくとも一つを積層し、さらに、前記集電体の縁に、基材および該基材の両面に粘着剤が設けられてなる両面粘着部材を積層してなる単セルを複数作製し、前記単セルを積層するとともに、前記両面粘着部材の前記粘着剤により単セル同士を接着するバイポーラ電池の製造方法である。

【００１４】

図１は、本発明を適用したバイポーラ電池の構造を説明するための断面図であり、図２は、このバイポーラ電池を構成する単電池の部分拡大断面図である。

【００１５】

バイポーラ電池１は、両端部以外の一つの集電体２の両面中央に正極活物質層３と負極活物質層４が形成されており、この集電体２の正極活物質層３と負極活物質層４との間に電解質層５を挟んで単電池層６を構成し、この単電池層６が複数積層された構造を持つ。なお、両端部にある集電体（端部集電体７と称する）は、このバイポーラ電池全体の電極と接続される。

【００１６】

10

20

30

40

50

そして、集電体 2 を挟んで正極活物質層 3 と負極活物質層 4 を設けた構成をバイポーラ電極という。

【 0 0 1 7 】

ここで、電解質層 5 は、たとえば、ポリマー骨格中に、数重量% ~ 98 重量% 程度電解液を保持させたゲル電解質で、特に本実施の形態においては、70 重量% 以上電解液を保持したゲル電解質を使用することができる。

【 0 0 1 8 】

このバイポーラ電池 1 では、単電池層 6 からの液漏れを防止するために、一つひとつの単電池層 6 の周囲を取り囲み、集電体 2 間、または、集電体 2 および端部集電体 7 の間に配置される両面粘着部材 9 を設けている。

10

【 0 0 1 9 】

両面粘着部材 9 は、基材 10 と、該基材 10 の両面に設けられた粘着剤 11 とを含んでなる両面テープである。基材 10 は、ポリプロピレン (P P)、ポリエチレン (P E)、ポリアミド系合成繊維などの絶縁性樹脂により形成されている。粘着剤 11 は、合成ゴム、ブチルゴム、合成樹脂、アクリルなどの耐溶剤性のある材料により形成されている。このような材料を両面粘着部材 9 に用いることによって、単電池層 6 からの液漏れを防止することができる、また集電体同士の接触による短絡を防止することができる。

【 0 0 2 0 】

次に、本発明のバイポーラ電池 1 の製造手順について説明する。

【 0 0 2 1 】

20

図 3 ~ 図 7 は本発明のバイポーラ電池の製造手順を説明するための図である。

【 0 0 2 2 】

図 3 は集電体上にゲル電解質層および両面粘着部材を積層する様子を示す図、図 4 は両面粘着部材を積層した様子を示す図、図 5 は図 4 に示す積層物の A - A 断面図、図 6 は単セルを積層する様子を示す平面図、図 7 は単セルを積層する様子を示す側面図である。

【 0 0 2 3 】

本発明のバイポーラ電池 1 の製造手順としては、図 3 に示すように、まず、端部集電体 7 上に電極層 (正極活物質層 3 または負極活物質層 4、例えば、正極活物質層 3) を積層し、その上にさらにゲル電解質層 5 を積層する。そして、端部集電体 7 の縁上に両面粘着部材 9 を配置する。ここで、両面粘着部材 9 は、端部集電体 7 の縁のみを覆うように、中央

30

【 0 0 2 4 】

このように両面粘着部材 9 まで積層されると、図 4 に示すように、両面粘着部材 9 は、ゲル電解質層 5 の周りを取り囲むように配置される。ここで、両面粘着部材 9 は両面に粘着剤 11 が設けられているので、集電体 7 上に積層された瞬間に接着される。

【 0 0 2 5 】

なお、両面粘着部材 9 の厚さは、図 5 に示すように、正極活物質層 3 およびゲル電解質層 5 の厚さより厚い。両面粘着部材 9 の厚さとしては、正極活物質層 3、ゲル電解質層 5、および、後に積層する負極活物質層 4 の合計の厚さ、すなわち、単電池層 6 の厚さの $\pm 30 \mu\text{m}$ 以内であることが望ましい。単電池層 6 の合計厚さに両面粘着部材 9 の厚さをあわせることによって、積層数の増加に伴う集電体 2、7 の歪みを防止でき、歪みによる反応性の低下、短絡を防止することができる。また、両面粘着部材 9 の幅は、バイポーラ電池 1 の小型化の要請から 5 mm 程度が望ましい。

40

【 0 0 2 6 】

以上のように積層された端部集電体 7、正極活物質層 3、ゲル電解質層 5、および両面粘着部材 9 を単セル 12 と称する。なお、バイポーラ電池 1 の中部に位置する単セル 13 については、集電体 2 の両面に電極層を設け、たとえば、上面に正極活物質層 3 を設け下面に負極活物質層 4 を設けたものをいう。すなわち、負極活物質層 4、集電体 2、正極活物質層 3 を積層してなるバイポーラ電極上にゲル電解質層 5 を積層し、集電体 2 の縁に両面粘着部材 9 を積層したものを単セル 13 とする。単セル 13 の積層数を増やすことによ

50

て、バイポーラ電池 1 を所望の積層数にすることができる。

【 0 0 2 7 】

また、バイポーラ電池 1 の最後に積層する単セル 1 4 は、上述の最初に積層する単セル 1 2 とは異なり、負極活物質層 4 に端部集電体 7 を積層したものをいう。

【 0 0 2 8 】

このように、単セル 1 2 ~ 1 4 を一単位として、複数の単セルを予め製作しておき、バイポーラ電池 1 に必要な個数だけ積層する。単セル 1 2 ~ 1 4 を積層する様子について説明する。

【 0 0 2 9 】

図 6 および図 7 に示すように、最初の単セル 1 2 に、中部の単セル 1 3 を積層する。これを繰り返すことによって、単セル 1 2 上の単セル 1 3 の積層数が増加する。単セル 1 2 に単セル 1 3 を積層した場合、単セル 1 2 の両面粘着部材 9 の粘着剤 1 1 が単セル 1 3 の集電体 2 の下面に接着される。同様に、単セル 1 3 上に他の単セル 1 3 を積層した場合にも、下側の単セル 1 3 の粘着剤 1 1 が上側の単セル 1 3 の集電体 2 の下面に接着される。このように、両面粘着部材 9 は、単セル 1 3 が積層されていくたびに集電体 2 と接着されていき、ゲル電解質層 5 を密閉していく。これによりゲル電解質層 5 からの液漏れを防止することができる。

10

【 0 0 3 0 】

最後に、図 7 に示すように、単セル 1 4 を積層して、該単セル 1 4 の集電体 7 が単セル 1 3 の両面粘着部材 9 と接着されることにより、バイポーラ電池 1 が完成する。

20

【 0 0 3 1 】

以上のように、本発明のバイポーラ電池 1 では、単電池層 6 と共に該単電池層 6 を囲い込むように両面粘着部材 9 が集電体間に配置されるようにしたので、両面粘着部材 9 が 2 つの集電体間に接着されることによりシール層の役割を果たし、単電池層 6 のゲル電解質層 5 からの液漏れを防止することができる。したがって、液漏れによる液絡も未然に防止することができる。加えて、両面粘着部材 9 により、外部からの水分等の浸入を防止することができ、バイポーラ電池自体の強度を向上することができる。

【 0 0 3 2 】

また、ゲル電解質層 5 に含まれる電解液の割合が 7 0 重量 % 以上で、ゲル電解質層 5 の液化が起こりやすい場合でも、液漏れがないので液絡を防止することができる。

30

【 0 0 3 3 】

さらに、本発明のバイポーラ電池 1 では、単セル 1 2 ~ 1 4 の積層により形成されるので、単セルの製造時にはバイポーラ電池 1 の積層数を考慮することなく大量に製造しておき、個別のバイポーラ電池 1 の製造時に必要な単セル 1 2 ~ 1 4 を用意すれば足りる。したがって、単セルの製造と、バイポーラ電池 1 の製造という 2 段階に分けることができるので、設計変更による積層数の変更にも柔軟に対応することができ、加えて、作業時間を短縮することができる。

【 0 0 3 4 】

上記バイポーラ電池 1 について、両面粘着部材 9 以外の電池を構成する部材は、一般的なリチウムイオン二次電池に用いられているものと同じでよい。

40

【 0 0 3 5 】

以下に、このバイポーラ電池 1 に使用することのできる集電体、正極、負極、ゲル電解質等について説明する。

【 0 0 3 6 】

[集電体]

集電体は、製法上、スプレーコートなどの薄膜製造技術により、いかような形状を有するものにも製膜積層して形成し得る必要上、たとえば、アルミニウム、銅、チタン、ニッケル、ステンレス鋼 (S U S)、これらの合金などの金属粉末を主成分として、これにバインダー (樹脂)、溶剤を含む集電体金属ペーストを加熱して成形してなるものであり、上記金属粉末およびバインダーにより形成されてなるものである。また、これら金属粉末を

50

1種単独で用いてもよいし、2種以上を混合して用いてもよいし、さらに、製法上の特徴を生かして金属粉末の種類異なるものを多層に積層したものであってもよい。

【0037】

上記バインダーとしては、特に制限されるべきものではなく、たとえば、エポキシ樹脂など、従来公知の樹脂バインダー材料を用いることができるほか、導電性高分子材料を用いても良い。

【0038】

集電体の厚さは、特に限定されないが、通常は1～100μm程度である。

【0039】

[正極活物質層]

正極は、正極活物質を含む。この他にも、イオン伝導性を高めるために電解質、リチウム塩などが含まれ得る。また、電子伝導性を高めるために導電助剤、スラリー粘度の調整溶媒としてNMP(N-メチル-2-ピロリドン)、重合開始材としてAIBN(アゾビスイソブチロニトリル)などが含まれ得る。特に、正極または負極の少なくとも一方に電解質、好ましくは固体高分子電解質が含まれていることが望ましいが、バイポーラ電池の電池特性をより向上させるためには、双方に含まれることが好適である。

【0040】

上記正極活物質としては、溶液系のリチウムイオン電池でも使用される、遷移金属とリチウムとの複合酸化物を使用できる。具体的には、 $LiCoO_2$ などのLi・Co系複合酸化物、 $LiNiO_2$ などのLi・Ni系複合酸化物、スピネル $LiMn_2O_4$ などのLi・Mn系複合酸化物、 $LiFeO_2$ などのLi・Fe系複合酸化物などが挙げられる。この他、 $LiFePO_4$ などの遷移金属とリチウムのリン酸化合物や硫酸化合物； V_2O_5 、 MnO_2 、 TiS_2 、 MoS_2 、 MoO_3 などの遷移金属酸化物や硫化物； PbO_2 、 AgO 、 $NiOOH$ などが挙げられる。

【0041】

正極活物質の粒径は、製法上、正極材料をペースト化してスプレーコートなどにより製膜し得るものであればよい。さらにバイポーラ電池の電極抵抗を低減するために、電解質が固体でない溶液タイプのリチウムイオン電池で用いられ一般に用いられる粒径よりも小さいものを使用するとよい。具体的には、正極活物質の平均粒径が10～0.1μmであるとよい。

【0042】

上記正極に含まれる電解質としては、固体高分子電解質、高分子ゲル電解質、およびこれらを積層したものなどが利用できる。すなわち、正極を多層構造とすることもでき、集電体側と電解質側とで、正極を構成する電解質の種類や活物質の種類や粒径、さらにはこれらの配合比を変えた層を形成することもできる。

【0043】

高分子ゲル電解質は、イオン導伝性を有する固体高分子電解質に、通常リチウムイオン電池で用いられる電解液を含んだものであるが、さらに、リチウムイオン導伝性を持たない高分子の骨格中に、同様の電解液を保持させたものも含まれる。

【0044】

ここで、高分子ゲル電解質に含まれる電解液(電解質塩および可塑剤)としては、通常リチウムイオン電池で用いられるものであればよく、たとえば、 $LiPF_6$ 、 $LiBF_4$ 、 $LiClO_4$ 、 $LiAsF_6$ 、 $LiTaF_6$ 、 $LiAlCl_4$ 、 $Li_2B_{10}Cl_{10}$ 等の無機酸陰イオン塩、 $LiCF_3SO_3$ 、 $Li(CF_3SO_2)_2N$ 、 $Li(C_2F_5SO_2)_2N$ 等の有機酸陰イオン塩の中から選ばれる、少なくとも1種類のリチウム塩(電解質塩)を含み、プロピレンカーボネート、エチレンカーボネート等の環状カーボネート類；ジメチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、ジエチルカーボネート等の鎖状カーボネート類；テトラヒドロフラン、2-メチルテトラヒドロフラン、1,4-ジオキサン、1,2-ジメトキシエタン、1,2-ジブトキシエタン等のエーテル類；γ-ブチロラクトン等のラクトン類；アセトニトリル等のニトリル類；プロピオン酸メチル等のエステル類；ジメチル

10

20

30

40

50

ホルムアミド等のアミド類；酢酸メチル、蟻酸メチルの中から選ばれる少なくともから 1 種類または 2 種以上を混合した、非プロトン性溶媒等の有機溶媒（可塑剤）を用いたものなどが使用できる。ただし、これらに限られるわけではない。

【0045】

高分子ゲル電解質に用いられるリチウムイオン導伝性を持たない高分子としては、たとえば、ポリフッ化ビニリデン（P V D F）、ポリビニルクロライド（P V C）、ポリアクリロニトリル（P A N）、ポリメチルメタクリレート（P M M A）などを使用できる。ただし、これらに限られるわけではない。なお、P A N、P M M Aなどは、どちらかと言うとイオン伝導性がほとんどない部類に入るものであるため、上記イオン伝導性を有する高分子とすることもできるが、ここでは高分子ゲル電解質に用いられるリチウムイオン導伝性を持たない高分子として例示したものである。

10

【0046】

上記リチウム塩としては、たとえば、 LiPF_6 、 LiBF_4 、 LiClO_4 、 LiAsF_6 、 LiTaF_6 、 LiAlCl_4 、 $\text{Li}_2\text{B}_{10}\text{Cl}_{10}$ 等の無機酸陰イオン塩、 $\text{Li}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}$ 、 $\text{Li}(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2\text{N}$ 等の有機酸陰イオン塩、またはこれらの混合物などが使用できる。ただし、これらに限られるわけではない。

【0047】

導電助剤としては、アセチレンブラック、カーボンブラック、グラファイト等が挙げられる。ただし、これらに限られるわけではない。

【0048】

正極における、正極活物質、電解質（好ましくは固体高分子電解質）、リチウム塩、導電助剤の配合量は、電池の使用目的（出力重視、エネルギー重視など）、イオン伝導性を考慮して決定すべきである。たとえば、正極内における電解質、特に固体高分子電解質の配合量が少なすぎると、活物質層内でのイオン伝導抵抗やイオン拡散抵抗が大きくなり、電池性能が低下してしまう。一方、正極内における電解質、特に固体高分子電解質の配合が多すぎると、電池のエネルギー密度が低下してしまう。従って、これらの要因を考慮して、目的に合致した固体高分子電解質量を決定する。

20

【0049】

正極の厚さは、特に限定するものではなく、配合量について述べたように、電池の使用目的（出力重視、エネルギー重視など）、イオン伝導性を考慮して決定すべきである。一般的な正極活物質層の厚さは10～500 μm 程度である。

30

【0050】

[負極活物質層]

負極は、負極活物質を含む。この他にも、イオン伝導性を高めるために電解質、リチウム塩や導電助剤などが含まれ得る。負極活物質の種類以外は、基本的に「正極活物質層」の項で記載した内容と同様であるため、ここでは説明を省略する。

【0051】

負極活物質としては、溶液系のリチウムイオン電池でも使用される負極活物質を用いることができる。たとえば、金属酸化物、リチウム-金属複合酸化物金属、カーボンなどが好ましい。より好ましくは、カーボン、遷移金属酸化物、リチウム-遷移金属複合酸化物である。さらに好ましくは、チタン酸化物、リチウム-チタン複合酸化物、カーボンである。これらは1種単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

40

【0052】

[電解質]

電解質としては、高分子ゲル電解質である。この電解質は多層構造とすることもでき、正極側と負極側とで、電解質の種類や成分配合比を変えた層を形成することもできる。高分子ゲル電解質を用いる場合、該高分子ゲル電解質を構成するポリマーと電解液との比率（質量比）が、20：80～2：98と比較的電解液の比率が大きい範囲である。

【0053】

このような高分子ゲル電解質としては、イオン導伝性を有する固体高分子電解質に、通常

50

リチウムイオン電池で用いられる電解液を含んだものであるが、さらに、リチウムイオン導伝性を持たない高分子の骨格中に、同様の電解液を保持させたものも含まれるものも含まれる。これらについては、[正極]に含まれる電解質の1種として説明した高分子ゲル電解質と同様であるため、ここでの説明は省略する。

【0054】

これら固体高分子電解質もしくは高分子ゲル電解質は、電池を構成する高分子電解質のほか、上記したように正極および/または負極にも含まれ得るが、電池を構成する高分子電解質、正極、負極によって異なる高分子電解質を用いてもよいし、同一の高分子電解質を使用してもよいし、層によって異なる高分子電解質を用いてもよい。

【0055】

電池を構成する電解質の厚さは、特に限定するものではない。しかしながら、コンパクトなバイポーラ電池を得るためには、電解質としての機能が確保できる範囲で極力薄くすることが好ましい。一般的な固体高分子電解質層の厚さは10～100μm程度である。ただし、電解質の形状は、製法上の特徴を生かして、電極(正極または負極)の上面ならびに側面外周部も被覆するように形成することも容易であり、機能、性能面からも部位によらず常に略一定の厚さにする必要はない。

【0056】

[電池外装材(電池ケース)]

バイポーラ電池は、外部からの衝撃、環境劣化を防止するために、使用する際の外部からの衝撃、環境劣化を防止するために、バイポーラ電池本体である型板を含めた電池積層体全体を電池外装材ないし電池ケース(図示せず)に収容するとよい。

【0057】

軽量化の観点からは、アルミニウム、ステンレス、ニッケル、銅などの金属(合金を含む)をポリプロピレンフィルム等の絶縁体で被覆した高分子-金属複合ラミネートフィルムやアルミラミネートパックなど、従来公知の電池外装材を用いて、その周辺部の一部または全部を熱融着にて接合することにより、電池積層体を収納し密封した構成とするのが好ましい。

【0058】

この場合、上記正極および負極リードは、上記熱融着部に挟まれて上記電池外装材の外部に露出される構造とすればよい。また、熱伝導性に優れた高分子-金属複合ラミネートフィルムやアルミラミネートパックなどを用いることが、自動車の熱源から効率よく熱を伝え、電池内部を電池動作温度まですばやく加熱することができる点で好ましい。

【0059】

[正極および負極端子板]

正極および負極端子板は、端子としての機能を有するほか、薄型化の観点からは極力薄い方がよいが、製膜により積層されてなる電極、電解質および集電体はいずれも機械的強度が弱いため、これらを両側から挟み支持するだけの強度を持たせることが望ましい。さらに、端子部での内部抵抗を抑える観点から、正極および負極端子板の厚さは、通常0.1～2mm程度が望ましいといえる。

【0060】

正極および負極端子板の材質は、通常リチウムイオン電池で用いられる材質を用いることができる。たとえば、アルミニウム、銅、チタン、ニッケル、ステンレス鋼(SUS)、これらの合金などを利用することができる。耐蝕性、作り易さ、経済性などの観点からは、アルミニウムを用いることが好ましい。

【0061】

正極端子板と負極端子板との材質は、同一の材質を用いてもよいし、異なる材質のものを用いてもよい。さらに、これら正極および負極端子板は、材質の異なるものを多層に積層したものであってもよい。

【0062】

正極および負極端子板の形状は、型板と兼用する場合には、自動車の熱源外面等をトレー

10

20

30

40

50

スした形状に、また、型板と対極する位置に設けられる端子板では、該端子板を設置する集電体外面をトレースした形状であればよく、プレス成形等によりトレースして形成すればよい。なお、型板と対極する位置に設けられる端子板では、集電体と同様にスプレーコートにより形成してもよい。

【 0 0 6 3 】

[正極および負極リード]

正極および負極リードに関しては、通常リチウムイオン電池で用いられる公知のリードを用いることができる。なお、電池外装材（電池ケース）から取り出された部分は、自動車の熱源との距離がないことから、これらに接触して漏電したりして自動車部品（特に電子機器）に影響を与えないように、耐熱絶縁性の熱収縮チューブなどにより被覆しておくのが好ましい。

10

【 0 0 6 4 】

図 8 は、図 1 および 2 に示したバイポーラ電池 1 をアルミラミネートパックにより電池 20 として構成した場合の外観を示す図面である。この電池 20 は、バイポーラ電池 1 の端部集電体 7 に上記の正極および負極端子板を設け、さらにリードを取り付けて、電極 23 および 24 としている。

【 0 0 6 5 】

次に、実際上記バイポーラ電池 1 を製作して評価を行った実験例について説明する。

【 0 0 6 6 】

実験例

20

< 液絡評価 >

上述した実施の形態と同様にしてバイポーラ電池 1 を製作し、単電池同士の液絡の評価を行った。

【 0 0 6 7 】

(サンプル作製)

実施例として実際に作製したバイポーラ電池 1 は、下記の通りである。

【 0 0 6 8 】

集電体 2 は、20 μm のステンレス (S U S) 箔を使用し、端部集電体 7 には正極活物質層 3 または負極活物質層 4 を形成し、集電体 2 には正極活物質層 3 および負極活物質層 4 を形成した。

30

【 0 0 6 9 】

正極活物質層 3 は、 LiMn_2O_4 に、導電助剤としてアセチレンブラック、バインダーとしてポリフッ化ビニリデン (P V D F)、粘度調整溶媒として N - メチル - 2 - ピロリドン (N M P) を混合して正極スラリーを作製し、これを正極活物質として、集電体であるステンレス箔 (厚さ 20 μm) の片面に塗布し、乾燥させて膜厚 40 μm の正極活物質層 3 としている。

【 0 0 7 0 】

負極活物質層 4 は、 $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ に、導電助剤としてアセチレンブラック、バインダーとして P V D F、粘度調整溶媒として N M P、混合して負極スラリーを作製し、この負極スラリーを正極活物質層 3 を塗布したステンレス箔の反対面に塗布し、乾燥させて膜厚 50 μm の負極活物質層 4 としている。

40

【 0 0 7 1 】

高分子ゲル電解質層 5 は、厚さ 100 μm のポリプロピレン (P P) 不織布に、ポリマー (ポリエチレンオキシドとポリプロピレンオキシドの共重合体) 5 重量 %、混合比 1 : 3 のエチレンカーボネート (E C) + ジメチルカーボネート (D M C) 9.5 重量 %、E C + D M C 電解液に対して 1.0 mol / l の $\text{Li}(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2\text{N}$ 、からなるゲル電解質を保持させたものである。

【 0 0 7 2 】

両面粘着部材 9 は、基材 10 にポリプロピレン (P P) を用い、粘着剤 11 に合成ゴムを用いて、幅 5 mm、厚さ 190 μm のものを用意した。

50

【 0 0 7 3 】

単電池層 6 の積層数は 5 層とし、単セル 1 2 ~ 1 4 の積層時に両面粘着部材 9 の粘着剤 1 1 により各単セル間を接着およびシーリングした。

【 0 0 7 4 】

また、この評価の比較例として、両面粘着部材 9 を持たない、同様構造のバイポーラ電池を形成した。

【 0 0 7 5 】

液絡の評価は、実施例および比較例のバイポーラ電池 1 の充放電サイクル試験を行うことにより評価した。充放電のサイクルは、0 . 5 C の電流で充電し、0 . 5 C の電流で放電を行い、これを 1 サイクルとした。

10

【 0 0 7 6 】

(評価結果)

実施例のバイポーラ電池 1 では、充放電サイクルを 5 0 サイクル超えても電極間の液絡 (短絡) は起こらず、出力電圧が維持されていた。

【 0 0 7 7 】

一方、比較例のバイポーラ電池 1 では、初回の充電を行っている途中に、電解液が単電池層外に染み出し、他の単電池層の電解質層 5 と接触して液絡が起こり、電池電圧が著しく低下した。

【 0 0 7 8 】

この評価結果から、単電池層 6 ごとに、これを取り囲む両面粘着部材 9 を設けることで、単電池同士の液絡を確実に防止できることがわかる。

20

【 0 0 7 9 】

< 両面粘着部材 9 の厚さ試験 >

次に、両面粘着部材 9 の厚さを変えて試験を行った。

【 0 0 8 0 】

(サンプル作製)

実施例として作製したバイポーラ電池 1 は、上記 < 液絡評価 > と同一構造である。実施例のバイポーラ電池が有する両面粘着部材 9 の厚さは、単電池層 6 の厚さ、すなわち、正極活物質層 3 (4 0 μ m)、ゲル電解質層 5 (1 0 0 μ m)、負極活物質層 4 (5 0 μ m) の合計厚さに合わせて 1 9 0 μ m である。

30

【 0 0 8 1 】

評価の比較例としては、両面粘着部材 9 の厚さのみ異なるバイポーラ電池を作製した。比較例 1 ~ 6 として、順に、両面粘着部材 9 の厚さを 1 0 0 μ m、1 2 0 μ m、1 6 0 μ m、2 2 0 μ m、2 6 0 μ m、3 0 0 μ m のバイポーラ電池を作製した。

【 0 0 8 2 】

厚さの評価は、実施例および比較例 1 ~ 6 のバイポーラ電池について、それぞれ、1 0 回充放電サイクルを繰り返し、1 0 サイクル目の放電容量を比較した。充放電のサイクルは、0 . 5 C の電流で充電し、0 . 5 C の電流で放電を行い、これを 1 サイクルとした。

【 0 0 8 3 】

(評価結果)

図 9 は両面粘着部材の厚さに対する放電容量についての評価結果を示す図である。図 9 では、実施例のバイポーラ電池 (厚さ 1 9 0 μ m) の 1 0 サイクル目の放電容量を 1 0 0 % として、比較例の放電容量について示している。図 9 に示すように、比較例 3 および比較例 4 では、比較的放電容量が大きく、比較例 1 , 2、5、6 では放電容量が著しく低下した。

40

【 0 0 8 4 】

この評価結果から、両面粘着部材 9 の厚さが単電池層 6 の厚さに近いほど放電容量がよく、単電池層の厚さに対して両面粘着部材 9 の厚さが誤差 3 0 μ m 程度であれば、電池の性能を保てることがわかる。

【 0 0 8 5 】

50

(第2の実施の形態)

本発明の第3は、上記第1の実施の形態のバイポーラ電池1を複数個、並列および/または直列に接続してなる組電池である。

【0086】

図10は、第2の実施の形態による組電池の斜視図であり、図11は、内部構成を上方から見た図面である。

【0087】

図10および図11に示すように組電池50は、上述した第1の実施の形態によるバイポーラ電池1をラミネートパックによりパッケージした電池20(図8参照)複数個直接に接続したものをさらに並列に接続したものである。電池20同士は、導電バー53により各電池の電極23および24が接続されている。この組電池50には電極ターミナル51および52が、この組電池50の電極として組電池50の一側面に設けられている。

【0088】

この組電池においては、電池20を直接に接続しさらに並列に接続する際の接続方法として、超音波溶接、熱溶接、レーザー溶接、リベット、かしめ、電子ビームなどを用いることができる。このような接続方法をとることで、長期的信頼性のある組電池を製造することができる。

【0089】

本第2の実施の形態による組電池によれば、前述した第1の実施の形態による電池を用いて組電池化することで、高容量、高出力と得ることができ、しかも一つひとつの電池の信頼性が高いために、組電池としての長期的信頼性を向上させることができる。

【0090】

なお、組電池としての電池20の接続は、電池20を複数個全て並列に接続してもよいし、また、電池20を複数個全て直列に接続してもよい。

【0091】

(第3の実施の形態)

本発明の第4は、上記第1実施形態のバイポーラ電池1または第2実施形態の組電池50を駆動用電源として搭載してなる車両である。バイポーラ電池1または組電池50をモータ用電源として用いる車両としては、たとえば電気自動車、ハイブリッド自動車など、車輪をモータによって駆動している自動車である。

【0092】

参考までに、図12に、組電池50を搭載する自動車100の概略図を示す。自動車に搭載される組電池50は、上記説明した特性を有する。このため、組電池50を搭載してなる自動車は高い耐久性を有し、長期間に渡って使用した後であっても十分な出力を提供しうる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明を適用したバイポーラ電池の構造を説明するための断面図である。

【図2】 このバイポーラ電池を構成する単電池の部分拡大断面図である。

【図3】 集電体上にゲル電解質層および両面粘着部材を積層する様子を示す図である。

【図4】 両面粘着部材を積層した様子を示す図、図5は図4に示す積層物の部分断面図である。

【図5】 図4に示す積層物のA-A断面図である。

【図6】 単セルを積層する様子を示す平面図である。

【図7】 単セルを積層する様子を示す側面図である。

【図8】 バイポーラ電池をラミネートパックにした電池の外観を示す斜視図である。

【図9】 両面粘着部材の厚さに対する放電容量についての評価結果を示す図である。

【図10】 組電池の斜視図である。

【図11】 組電池の内部構成を上方から見た図面である。

【図12】 組電池を搭載する自動車の概略図である。

【符号の説明】、

10

20

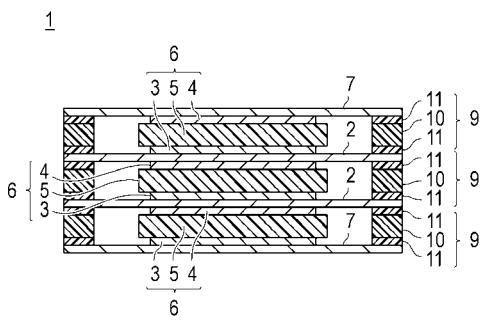
30

40

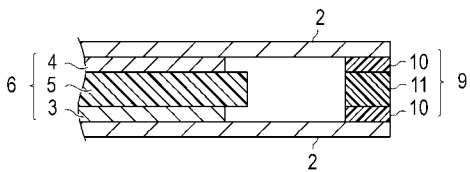
50

- 1 ... バイポーラ電池、
- 2 ... 集電体、
- 3 ... 正極活物質層、
- 4 ... 負極活物質層、
- 5 ... ゲル電解質層、
- 6 ... 単電池層、
- 7 ... 端部集電体、
- 9 ... 両面粘着部材、
- 10 ... 基材、
- 11 ... 粘着剤、
- 12 ~ 14 ... 単セル、
- 50 ... 組電池、
- 100 ... 自動車。

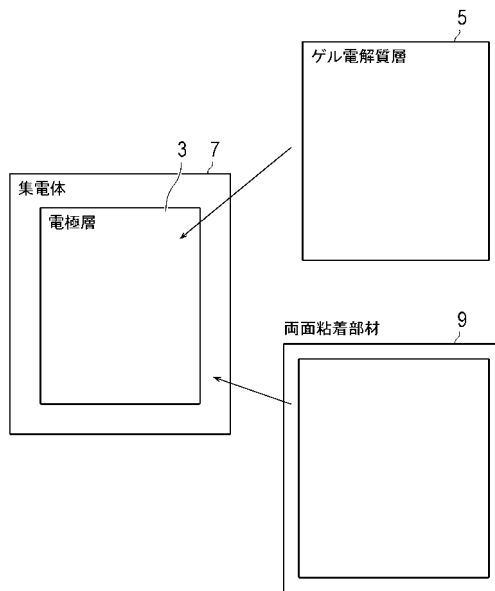
【図1】



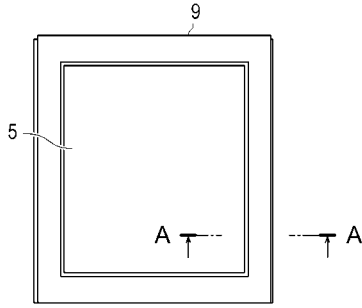
【図2】



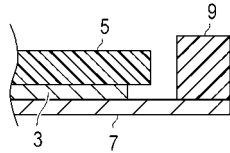
【図3】



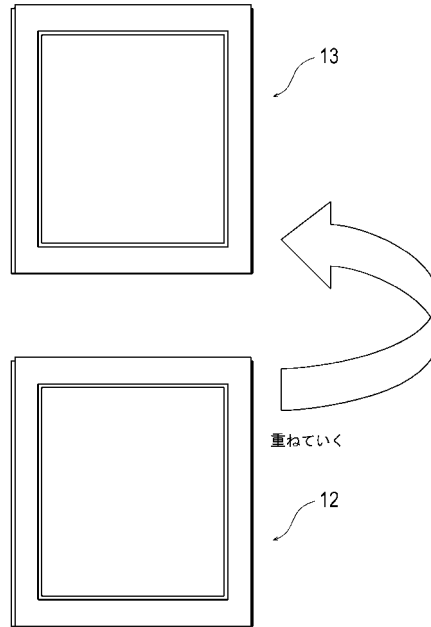
【図4】



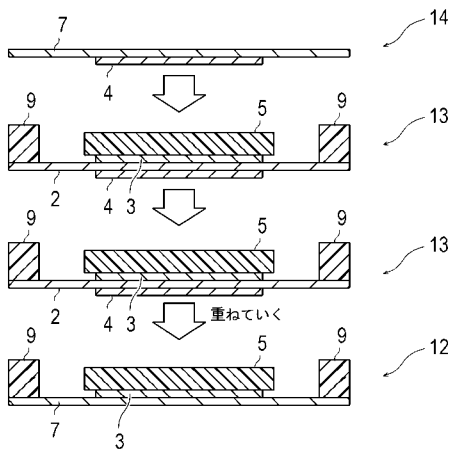
【図5】



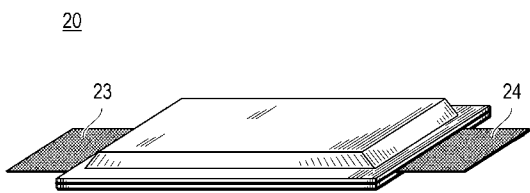
【図6】



【図7】




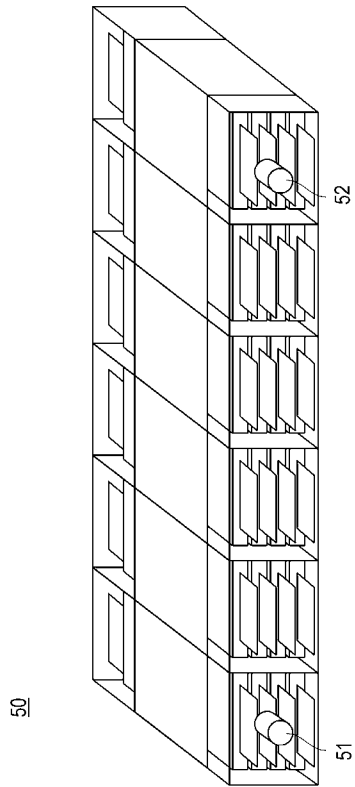
【図8】




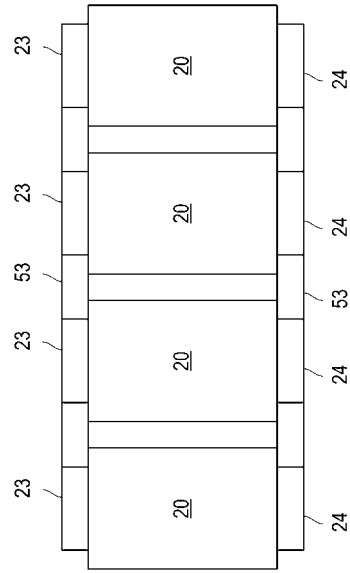
【図9】


比較例1	比較例2	比較例3	実施例	比較例4	比較例5	比較例6
100	120	160	190	220	260	300
70	86	98	100	92	71	65
画面子ーブの厚さ (μm)						
10サイクル目の放電容量 (%)						

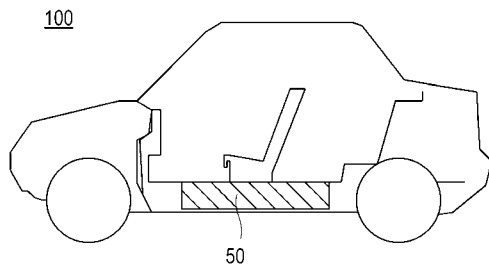
【 1 0】



【 1 1】



【 1 2】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.

F I

B 6 0 K 8/00

(72)発明者 福沢 達弘

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

(72)発明者 保坂 賢司

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

(72)発明者 根本 好一

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内

審査官 高木 正博

(56)参考文献 特開平08-287889(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)

H01M 2/00 - 2/08

H01M 10/36 - 10/40