

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5483877号  
(P5483877)

(45) 発行日 平成26年5月7日(2014.5.7)

(24) 登録日 平成26年2月28日(2014.2.28)

(51) Int.Cl.

F I

H O 1 M 10/0585 (2010.01)

H O 1 M 10/0585

H O 1 M 10/052 (2010.01)

H O 1 M 10/052

H O 1 M 2/16 (2006.01)

H O 1 M 2/16

M

請求項の数 21 (全 17 頁)

(21) 出願番号 特願2008-529621 (P2008-529621)  
 (86) (22) 出願日 平成18年9月5日(2006.9.5)  
 (65) 公表番号 特表2009-508298 (P2009-508298A)  
 (43) 公表日 平成21年2月26日(2009.2.26)  
 (86) 国際出願番号 PCT/EP2006/066012  
 (87) 国際公開番号 W02007/028790  
 (87) 国際公開日 平成19年3月15日(2007.3.15)  
 審査請求日 平成21年8月10日(2009.8.10)  
 (31) 優先権主張番号 102005042916.5  
 (32) 優先日 平成17年9月8日(2005.9.8)  
 (33) 優先権主張国 ドイツ(DE)

(73) 特許権者 501073862  
 エボニック デグサ ゲーエムベーハー  
 Evonik Degussa GmbH  
 ドイツ連邦共和国 エッセン レリングハ  
 ウザー シュトラーセ 1-11  
 Rellinghauser Stras  
 se 1-11, D-45128 Es  
 sen, Germany  
 (74) 代理人 100061815  
 弁理士 矢野 敏雄  
 (74) 代理人 100099483  
 弁理士 久野 琢也  
 (74) 代理人 100128679  
 弁理士 星 公弘

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る Li 電池用積層体

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る積層体において、  
 前記積層体の第 1 の層および最後の層はそれぞれ 1 つずつ電極を有しており、該電極は  
 それぞれカソードまたはアノードであり、

前記積層体の少なくとも 1 つの側面に、電極とセパレータとを相互に接着する、有機接  
 着剤から成る複数の接着部が、互いに間隔をおいて設けられており、

前記各接着部の前記有機接着剤が前記電極と前記セパレータとの間の面に部分的に浸透  
 していることを特徴とする積層体。

【請求項 2】

積層体の 2 つまたは 3 つの側面および / またはエッジに少なくとも 1 つの接着部が設け  
 られている、請求項 1 記載の積層体。

【請求項 3】

積層体の少なくとも 1 つの側面に複数の接着部が設けられており、各接着部間の間隔は  
 接着部の数に応じて 20 ~ 1 cm の範囲で変化する、請求項 1 または 2 記載の積層体。

【請求項 4】

前記積層体の一つの側面に設けられた全ての接着部の幅の和が、前記側面の幅の 0 . 1  
 % 以上 100 % 未満に相応し、ここで前記側面の幅とは積層体を形成しているカソードま  
 たはアノードの層の幅として定められる、請求項 1 から 3 までのいずれか 1 項記載の積層  
 体。

## 【請求項 5】

個々の接着部の幅は 2 c m より小さい、請求項 1 から 4 までのいずれか 1 項記載の積層体。

## 【請求項 6】

個々の接着部の幅は積層体の一つの側面の幅の 0 . 1 % 以上 1 0 0 % 未満である、請求項 1 から 4 までのいずれか 1 項記載の積層体。

## 【請求項 7】

対向する 2 つの側面に少なくとも 2 つの接着部が存在している、請求項 1 から 6 までのいずれか 1 項記載の積層体。

## 【請求項 8】

有機接着剤はエポキシド接着剤、熱接着剤またはアクリレート接着剤である、請求項 1 から 7 までのいずれか 1 項記載の積層体。

## 【請求項 9】

積層体では、アノードおよびカソードが交互に上下に積層されており、該アノードおよびカソードがセパレータを介して相互に分離されている、請求項 1 から 8 までのいずれか 1 項記載の積層体。

## 【請求項 10】

セパレータは、直接に隣接する電極の活性領域に接しているか、および / または、直接に隣接する電極の活性領域を超えて突出している、請求項 1 から 9 までのいずれか 1 項記載の積層体。

## 【請求項 11】

セパレータはセラミックセパレータであるか、または、セラミック成分を含むセパレータである、請求項 1 から 10 までのいずれか 1 項記載の積層体。

## 【請求項 12】

交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る積層体の製造方法において、

1 つの電極の上にセパレータおよび電極を交互に上下に積層し、前記積層体の第 1 の層および最後の層に 1 つずつ電極をそれぞれカソードまたはアノードとして設け、

このようにして形成された積層体の少なくとも 1 つの側面に、電極とセパレータとを相互に接着する、接着剤からなる複数の接着部を互いに間隔をおいて設け、

当該接着部を設ける際に、前記積層体の全体にわたって圧力をかけて圧着し、

当該プレス過程を、前記接着剤が硬化するまで、または、少なくとも硬化が開始するまで維持することにより、前記各接着部の前記接着剤を前記電極と前記セパレータとの間の面に部分的に浸透させる

ことを特徴とする積層体の製造方法。

## 【請求項 13】

キャタピラ塗布機のスプロケットヘッド、フラットヘッド、スプレーヘッド、調量弁および計量器により、前記接着剤を積層体の少なくとも 1 つの側面に塗布し、続いて積層体に含まれる電極およびセパレータを相互に運動させずに接着剤を硬化させる、請求項 12 記載の方法。

## 【請求項 14】

接着部を形成するために 0 . 1 ~ 6 0 m i n 内で硬化可能な有機接着剤を用いる、請求項 12 または 13 記載の方法。

## 【請求項 15】

積層体の少なくとも 1 つの側面に前記接着剤を塗布し、積層体に圧力をかける、請求項 12 から 14 までのいずれか 1 項記載の方法。

## 【請求項 16】

電極の種類として交互にアノードおよびカソードが上下に積層される際に、各電極間に 1 つずつセパレータが配置され、セパレータは少なくとも 1 種類の電極よりも大きな幅を有する、請求項 12 から 15 までのいずれか 1 項記載の方法。

10

20

30

40

50

## 【請求項 17】

アノードの幅および/またはカソードの幅よりも0.1~10mm大きい幅のセパレータを用いる、請求項16記載の方法。

## 【請求項 18】

カソードの幅よりも大きい幅のセパレータを用いる、請求項16または17記載の方法。

## 【請求項 19】

請求項1から11までのいずれか1項記載の積層体を製造する、請求項12から18までのいずれか1項記載の方法。

## 【請求項 20】

請求項1から11までのいずれか1項記載の積層体をLi電池として用いることを特徴とする積層体の使用。

## 【請求項 21】

請求項1から11までのいずれか1項記載の積層体を含むことを特徴とするLi電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【技術分野】

## 【0001】

本発明は、交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る積層体、こうした積層体の製造方法、および、こうした積層体のLi電池としての使用に関する。

## 【0002】

## 従来技術

リチウムイオン蓄電池いわゆるLi電池は体積および重量に対してきわめて高いエネルギー密度を有する。したがって、こんにちのノート型PC、デジタルカメラ、携帯電話などのモバイル分野においてはほぼ独占的にLi電池が用いられている。蓄電池のサイズが増大するにつれて蓄積されるエネルギーの量も増大するが、一方で、蓄電池の破壊により蓄積されるエネルギーが制御不能となる危険も増大する。このため、Li電池を例えばハイブリッド自動車において用いるには、エネルギーの制御不能を回避する適切な安全機構ないしは安全装置を設けなければならない。

## 【0003】

大型の蓄電池を使用する際には、セルの安全性を最大限まで高め、誤用ないしは事故（特に過電圧または金属成分の侵入）が起こったときにも高度の安全性を保証できるようにしなければならない。ただしそのための手段は受動的な通常動作を妨げないものとすべきである。またその手段は考え得る全ての駆動状態において機能を発揮する必要がある。

## 【0004】

以前からLi電池の安全性を高める多数の手段が考察されてきた。現在では、例えば、熱に起因してガスの過圧が発生したとき開放される安全弁をセルに設けることが行われている。また、PTCセラミックを過電圧保護部として使用し、絶縁までの温度係数の跳躍的上昇によって、外部からのさらなる充電（例えば外部短絡試験の充電）が阻止される。セラミックセパレータを用いることによりセパレータの熱破壊およびこれに起因する短絡が阻止される。セラミックセパレータを含み、過電圧（過負荷試験）および金属成分の侵入（ネイルペネトレーション試験）に対して高い安全性を有する蓄電池はDegussa社のSEP ARION<sup>(R)</sup>として販売されている。また、難燃性ないし耐火性の固体電解質や過電圧耐性を有する電極材料を使用することも議論されてきた。さらに、セルの充放電は電子回路技術に適合するUI充放電サイクルによって制御される。

## 【0005】

電氣的セパレータおよびバッテリーに関する一般的な情報は、例えば、J.O.Besenhard, "Handbook of Battery Materials", VCH-Verlag, Weinheim 1999またはD.Linden, T.B.Reddy, "Handbook of Batteries Third Edition", McGraw-Hill, New York 2002に説明されている。

## 【 0 0 0 6 】

Li 電池は、容量にして数 mA h ~ 数 10 A h の種々のサイズのもの、また、円筒形や角柱形など種々の形状のものが用いられる。積層された角柱形のセルすなわちラミネーテッドシートバッテリー LSB の独特の構造は大型のセルにとって特に重要である。このために正負の電極とこれらの電極を相互に分離するセパレータとが交互に積層される。過電圧が発生するとセル内ではガスの過圧が発生する。ガスの過圧により、相互にずらされて配置されている個々の層のあいだに空間が生じ、電極どうしが短絡する。短絡電流が発生すると温度がさらに上昇する。その結果、ポリマー製のセパレータは熱破壊に至り、セルが完全に破壊されてしまう。

## 【 0 0 0 7 】

10

層のずれを回避するために、こんにちでは通常、各セパレータは点溶接または線溶接により溶接され、正または負の電極を挿入するポケットが形成される。セパレータの熱破壊を回避するために、こんにちでは、ほとんど熱破壊されないセラミックセパレータまたはセラミックハイブリッドセパレータが用いられる。こうしたセパレータは例えば国際公開第2004/021469号明細書、国際公開第2004/021474号明細書、国際公開第2004/02147号6明細書、国際公開第2004/021477号明細書、国際公開第2004/021499号明細書、国際公開第2004/049471号明細書、国際公開第2004/049472号明細書、国際公開第2005/038946号明細書、国際公開第2005/038959号明細書、国際公開第2005/038960号明細書に記載されている。

## 【 0 0 0 8 】

20

セラミック成分が高く、ポリマー成分が低いセパレータを用いると、通常は、各セパレータの溶接（点溶接または線溶接）によるポケットの形成は非常に困難になり、例えば高温高圧のもとでしか行えない。また、ポケットに対してスペースが必要となり、しかも溶接の継ぎ目が積層体の外部に存在することになるため、付加的な重量の発生する原因となる。

## 【 0 0 0 9 】

米国特許第6399240号明細書には、電極の表面の活性物質上にまたは活性物質に接するように接着剤を塗布し、当該の電極と中間層としてのセパレータとを交互に上下に積層し、続いて電極とセパレータとを熱作用により相互に接着する、積層体の製造方法が記載されている。しかし、この手法には、個々の電極上に正確に接着剤を塗布しなければならないという欠点が存在する。

30

## 【 0 0 1 0 】

したがって、本発明の課題は、前述した欠点を有さない交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る積層体ならびに相応の積層体を有する Li 電池を提供することである。

## 【 0 0 1 1 】

驚くべきことに、電極 セパレータ積層体は積層体の一方側を簡単に接着することにより固定でき、こうした接着はセラミックセパレータないしはセラミック成分を多く含むセパレータにも適用可能であることが判明した。

## 【 0 0 1 2 】

40

よって、上述した課題は、交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る積層体において、積層体の少なくとも1つの側面および/またはエッジに有機接着剤から成る少なくとも1つの接着部を設け、この接着部により電極およびセパレータを相互に接着することにより解決される。

## 【 0 0 1 3 】

また、本発明の課題は、1つの電極の上にセパレータおよび電極を交互に上下に積層し、積層体の少なくとも1つの側面に接着部を設け、この接着部により積層体の少なくとも1つの側面で電極およびセパレータを接触させることにより解決される。

## 【 0 0 1 4 】

さらに、本発明は、本発明の積層体を Li 電池として用いる使用、および、本発明の積層体を含む Li 電池をも対象とする。

50

## 【 0 0 1 5 】

本発明の積層体は、従来技術の積層体に比べて、電極およびセパレータが接着により相互に固定され、セルの膨張または機械的応力による損傷が生じる場合にもアノードおよびカソードの接触が排除されるという利点を有する。電極およびセパレータが相互に固定されない積層体では、熱負荷がかかったときにセルが過負荷により膨張し、個々の層がずれやすくなってしまう。その場合、セパレータが同じ電極の面を覆わなくなり、短絡にいたる。他のタイプのバッテリーすなわちPb電池、NiCd電池またはNiMH電池とは異なり、電解質用の溶剤として水ではなく燃焼性溶剤、例えば有機カーボネートが用いられる。そのため短絡するとしばしば爆発が起き、セルが燃焼する。

## 【 0 0 1 6 】

ポケットを用いる積層体とは異なり、本発明の積層体ではスペースも重量も著しく小さくなる。また、本発明の積層体はポケットに電極を収容する積層体よりも安全である。なぜなら、電極の過負荷が起こったとき前述したセルの膨張によって電極がポケットから引き出されるからである。この場合、圧力の放出の際には短絡が発生する。なぜなら必ずしも電極をポケットに収容しなおして直接に対向電極に接触させることができるとはかぎらないからである。そのうえ、ポケットを備えた積層体の製造プロセスは煩雑で時間がかかる。なぜなら、ポケットを個々に溶接または接着するのでそのたびに3s~7sのホールド時間を要し、種々の作業ステップを交互に、例えば、伸展、積層、溶接または接着、積層といったふうに何度も入れ替えて行わなければならない、したがって、つねに作業装置と積層体との相対運動が必要となり、運動部分が摩耗しやすくなるからである。ポケットを

## 【 0 0 1 7 】

本発明の積層体は、さらに、個々の層の縁部を接着することにより体積および重量が節約され、電極の表面、特に電極の活性材料の表面を接着剤が濡らさず、本来の反応が妨げられないという利点を有する。接着剤間に空隙が残る場合、電解質は良好に積層体内へ浸透し、また、過負荷が起こっても発生するガスは良好に放出される。

## 【 0 0 1 8 】

接着剤として熱接着剤が用いられる場合、接着位置がきわめて迅速に冷却され、負荷がかからないので、有利である。したがって硬化に対して付加的なプロセス時間は必要ない。

## 【 0 0 1 9 】

本発明の方法は積層体の2つの対向する側面を完全に接着して行われる。これにより積層体の耐性ひいては積層体の扱いやすさおよび安全性は従来技術に比べてさらに高まる。電解質の浸透および過負荷によるガスの漏出はコーナー部および/または他の側面の開口を介して行われる。

## 【 0 0 2 0 】

本発明の積層体ではセラミックセパレータが用いられることにより、積層体は良好な安全性を有する。こうしたセパレータは、例えば、国際公開第2004/021469明細書、国際公開第2004/021474明細書、国際公開第2004/021476明細書、国際公開第2004/021477明細書、国際公開第2004/021499明細書、国際公開第2004/049471明細書、国際公開第2004/049472明細書、国際公開第2005/038946明細書、国際公開第2005/038959明細書、国際公開第2005/038960明細書に記載されている。

## 【 0 0 2 1 】

セパレータを使用することの利点をまとめると次のようになる。すなわち、高いポーラス密度、理想的なポーラス距離、小さい厚さ、小さい面重量、良好な濡れ性、高い安全性つまりメルトダウン作用を有さずシャットダウン作用を有すること、などである。

## 【 0 0 2 2 】

以下に本発明を実施例に則して説明するが、特許請求の範囲および発明の詳細な説明に記載された本発明の権利範囲は実施例によって制限されるものではない。特許請求の範囲

10

20

30

40

50

そのものも本発明の開示内容に含まれる。以下に示す化学式または化合物クラスは、明示的に言及されている相応の化合物の領域または群のみならず、個々の値を変更して得られる化合物の部分領域または部分群をも含むものとする。

【0023】

本発明は交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る積層体に関し、積層体の少なくとも1つの側面および/またはエッジに有機接着剤から成る少なくとも1つの接着部が設けられており、この接着部により電極およびセパレータが相互に接着されていることを特徴とする。有利には、接着部は積層体内に存在する電極およびセパレータの全てが相互に接合されるように設けられる。接着部は積層体の側面全体にわたって設けてもよいし、積層体の側面の一部の領域のみに設けてもよい。接着部は全ての電極およびセパレータが縁部のみで接触するように構成される。有利には、接着部は、少なくとも1種類の電極および/またはセパレータの縁部のみならず部分的には活性材料の設けられていない少なくとも1つの表面にも設けられる。

10

【0024】

有利には、積層体の2つまたは3つの側面および/またはエッジに少なくとも1つの接着層が設けられる。積層体のジオメトリに応じて、利用される側面の数は変化させることができる。有利には、本発明の積層体は底面が多角形のジオメトリを有する。1つの側面から最大で全ての側面に、有利には2つの側面から最大で全ての側面に、接着部が設けられる。少なくとも1つの側面に接着剤を設けない場合、発生したガスの膨張および漏出が発生し、積層体は障害を受けない。これは接着部のあいだに距離を置くことに起因して発生する。

20

【0025】

本発明の積層体は、有利には、少なくとも1つの側面に、接着部間の距離（観察している接着部の終点から隣接の接着部の始点までの距離）が20～1cm、有利には10～2cm、特に有利には8～3cm、さらに特に有利には6～4cmとなる数の接着部を有する。

【0026】

1つの側面の全ての接着部の和の長さは積層体の一边の長さの0.1%～100%に相応し、ここで積層体の一边の長さは積層体のうち電極の活性のセクションが上下方向に配置された部分によって定められる（図2を参照）。電極の活性のセクションとは活性の電極材料を有する領域であると理解されたい。有利には、全ての接着部の和に対して、積層体の一边の長さの1%～70%、有利には5～50%、特に有利には10～20%である。

30

【0027】

本発明の積層体では個々の接着部の幅は3cm未満、有利には1cm未満、特に有利には0.5cm未満である。接着部間の距離が少なくとも1cm、個々の接着部の幅が2cm未満であることにより、特に簡単かつ良好に積層体に電解質を充填することができる。

【0028】

本発明の積層体の別の有利な実施形態では、接着部の幅は積層体の一边の長さの50%～100%に相応し、ここで、積層体の一边の長さは積層体のうち電極の活性のセクションが上下方向に配置された部分によって定められる。接着部の長さを大きくすることにより、接着部の安定性が高まる。

40

【0029】

積層体は、そのジオメトリに基づいて、はっきりした頂部を有さず、楕円形の底面や丸みを帯びた底面を有するものであってもよい。その場合、積層体の側面は縁領域のうち接着剤の存在しない部分領域25～50%を有する。このようにすれば、底面に角または頂のない積層体においても、発生したガスの膨張および漏出が行われることが保証される。

【0030】

本発明の積層体は、有利には、その形状に関係なく、対向する2つの側面に少なくとも

50

2つの接着部を有する。

【0031】

有機接着剤は、例えば、Degussa社のVestplast<sup>(R)</sup>608などの熱接着剤、ThreeBond社の3121UV-curing epoxy resinなどのUV架橋可能なエポキシド接着剤、または、Roehm社のPlex<sup>(R)</sup>9016-0、Panacol-Elosol社のVitalit<sup>(TM)</sup>4741などのアクリレート接着剤である。有利には、有機接着剤はUV架橋可能なエポキシド接着剤、特に有利にはRoehm社のPlex<sup>(R)</sup>9016-0などのアクリレート接着剤である。

【0032】

本発明の積層体では、有利には、電極としてアノードおよびカソードが交互に上下に積層され、これらの電極がセパレータを介して相互に分離される。各電極のあいだに存在するセパレータは積層体全体で見て同一であってもよいし、異なってもよい。有利には、セパレータは積層体全体で見て同一である。

【0033】

本発明の積層体の第1の層および最後の層はそれぞれ1つずつ電極を有しており、これらはそれぞれカソードまたはアノードである。有利には、積層体どうしを区切る電極はアノードである。

【0034】

積層体内のセパレータは少なくとも直接に隣接する電極の活性領域に接していなければならない。有利には、積層体内のセパレータは直接に隣接する電極の活性領域を超えて突出している。有利には、特に四角形の底面を有する積層体において、セパレータは少なくとも2つの側面でカソードおよび/またはアノードを超えて突出している。有利には、セパレータの長さは、積層体内の少なくとも1種類の電極の長さよりも0.1~10mm大きく、有利には0.5~5mm大きく、特に有利には1~2mm大きい。有利には、セパレータの幅は、積層体内の少なくとも1種類の電極の幅よりも0.1~10mm大きく、有利には1~6mm大きく、特に有利には2~4mm大きい。特に有利には、セパレータの長さおよび幅は積層体内の少なくとも1種類の電極の長さおよび幅よりも大きい。このようにすれば、前述したように、接着部が部分的に少なくともセパレータの表面に接触する。セパレータはアノードと同じ幅および/または長さを有し、有利には同じ幅を有する。カソードはセパレータよりも幾分小さい長さおよび/または幅を有し、有利には小さい幅を有する。これによりアノードおよびセパレータは同一平面に並び、カソードは積層体内で内側へ向かって幾分突出する。このようにすると樹枝状晶の成長を一貫して阻止することができる。

【0035】

本発明の積層体では、電極として、カソードまたはアノードとして使用可能な公知の全ての電極を用いることができる。カソードの製造については、例えば、日本国公開第2003-086174号明細書、国際公開第99/62132号明細書または欧州公開第0744782号明細書に説明されている。積層体は特にLi電池において使用されるので、アノードとして有利には導出シート(Ableiterfolie)を有し、その両側または一方側に活性物質の被着された電極を有する。有利には、アノードは導出シートとして銅シートまたは銅板を有する。活性物質は、例えば炭素、有利にはグラファイトまたはハードカーボン(アモルファス炭素)、金属リチウム、錫ベース合金、リチウムチタン化合物、金属窒化物、内部にリチウムを積層したリン化合物などを有するかこれらのうち1つまたは複数の材料から成る。つまり例えば、 $\text{CoN}_3$ 、 $\text{NiN}_3$ 、 $\text{CuN}_3$ 、 $\text{CoP}_3$ 、 $\text{FeP}_2$ 、 $\text{Li}_x\text{M}_y\text{N}_2$  [MはMo、Mn、Fe、 $x=0.01\sim1$ 、有利には $x=0.2\sim0.9$ 、および、 $y=1-x$ ]、 $\text{Li}_{3-x}\text{M}_x\text{N}$  [Mは遷移金属、 $x=0.1\sim0.9$ 、有利には $x=0.2\sim0.8$ ]、および/または $\text{Li}_x\text{M}_y\text{P}_z$  [MはCu、MnまたはFe、 $x=0.01\sim1$ 、有利には $x=0.2\sim0.9$ 、 $y=1-x$ 、 $z$ は化合物が電荷を有さないように選定された整数]などを含む。こうした適切な電極材料および電極の製造方法は、例えば、米国出願第2002-142217号明細書、日本国公開第2003-176129号明細書、日本国公開第2003-187807号明細書、日本国公開第2003-115296号明細書、日本国公開第2002-289192号明細書、日本国公開

10

20

30

40

50

第2002-270174号明細書、日本国公開第2002-270157号明細書、日本国公開第2002-260657号明細書、米国出願第2003-142466号明細書、日本国公開第10/003923号明細書、日本国公開第2001-266893号明細書、日本国公開第2000-067859号明細書、日本国公開第2000-067858号明細書、日本国公開第2000-067849号明細書、日本国公開第11/003707号明細書、日本国公開第10/302765号明細書、日本国公開第2003-335524号明細書、日本国公開第2003-317706号明細書、EP1249881号明細書、日本国公開第2002-246021号明細書、欧州公開第1168472号明細書、国際公開第01/22520号明細書、欧州公開第0752728号明細書、米国出願第2002-150818号明細書、日本国公開第2002-075376号明細書、欧州公開第0744782号明細書、米国特許第6566011号明細書またはEP1339642号明細書に説明されている。

#### 【0036】

本発明の積層体では、カソードとして有利には導出シートを有し、その両側または一方側に活性物質の被着された電極を有する。有利には、カソードは導出シートとしてアルミニウムシートまたはアルミニウム板を有する。活性物質は、例えば、リチウムコバルト酸化物、リチウムマンガン酸化物（スピネル）、マンガン酸化物、リチウムニッケル酸化物、混合酸化物、リチウムチタン化物、*Olivin*構造または*Nasicon*構造のリチウム金属リン化物、バナジン酸化物などを有するかこれらのうち1つまたは複数の材料から成る。つまり活性物質は、 $LiCoO_2$ 、 $LiMn_2O_4$ 、 $MnO_2$ 、 $LiNiO_2$ 、 $LiNi_{1/3}Co_{1/3}Mn_{1/3}O_2$ 、 $LiNi_{0.8}Co_{0.15}Al_{0.05}O_2$ 、 $Li_4Ti_5O_{12}$ 、 $LiMPO_4$  [MはFe、CoまたはMn]、 $Li_3M_2(PO_4)_3$  [MはFeまたはVまたはその導出物]、 $LiMPO_4F$  [Mは遷移金属]、 $V_2O_5$ または $LiV_3O_8$ などを含む。こうした適切な電極材料および電極の製造方法は、例えば、国際公開第99/62132号明細書、欧州公開第0744782号明細書、国際公開第2004/070862号明細書、欧州公開第1049182号明細書、欧州公開第1325525号明細書、欧州公開第1325526号明細書、米国出願第2002-182497号明細書、米国出願第2002-192551号明細書、欧州公開第1456895号明細書、国際公開第2003/012899号明細書、国際公開第2004/036671号明細書、欧州公開第1333935号明細書、国際公開第02/30815号明細書、日本国公開第2003-203628号明細書、米国出願第2004-002003号明細書、欧州公開第1184920号明細書、欧州公開第1193783号明細書、欧州公開第1193784号明細書、欧州公開第1193785号明細書、欧州公開第1193786号明細書、欧州公開第1193787号明細書、欧州公開第1195827号明細書、欧州公開第1489672号明細書、欧州公開第1261050号明細書、欧州公開第1396038号明細書、国際公開第97/40541号明細書、国際公開第01/53198号明細書、国際公開第03/099715号明細書、米国出願第1252671号明細書、欧州公開第1309021号明細書、国際公開第01/53198号明細書、国際公開第2003/099715号明細書または国際公開第2004/057691号明細書に説明されている。

#### 【0037】

*Li* 電池において使用される電極の製造に関する情報は、例えば、G.A.Nazri, G.Pistola, "Lithium Batteries", Kluwer Academic Publishers, 2004に説明されている。使用される電極は、有利には、導出シートが活性物質によって完全にはコーティングされないように構成されている。当該の電極はバッテリーの極どうしの接続に用いられる導出部（フラグ状導出部）を有する。また、導出シートが直接に導出部（フラグ状導出部）となる電極を用いてもよい。

#### 【0038】

有利には、電極およびセパレータは、積層体において、電極の活性物質がセパレータの縁部を超えた位置に存在しないように配置される。有利には、電極およびセパレータは、積層体において、一方の電極の活性物質がセパレータを介して分離され、他方の電極の活性物質と相似に対向するように配置される。これにより、望ましくない散乱フィールドが生じて電池の寿命が低下することが回避される。

#### 【0039】

本発明の積層体は、バッテリー、特に*Li* 電池での使用に適した公知のセパレータを有する。現在使用されているセパレータは、主として、多孔質の有機ポリマーフィルムもしくは

10

20

30

40

50



は無機不織布材料、例えばガラス材料またはセラミック材料からなる不織布またはセラミックペーパーからなる。これらの材料はCelgard社、Tonen社、Ube社、Asahi社、Binzer社、Mitsubishi社、Daramic社等の種々のメーカーから提供されている。一般的な有機セパレータは例えばポリプロピレンからなるか、または、ポリプロピレン/ポリエチレン/ポリプロピレン複合材料から成る。このようなPP/PE/PP複合材料から成るセパレータとして例えばCelgard LLC社のCelgard<sup>(R)</sup>2325が挙げられる。有利には、本発明の積層体は、ポリマーのほか無機酸化物粒子を含むハイブリッドセパレータを有する。これらのセパレータは例えば独国公開第19918856号明細書に記載されている。

#### 【0040】

特に有利には、本発明の積層体は、多孔質の支持体と、無機接着剤によって接着された酸化物粒子から成る多孔質の無機かつ非導電性のコーティングとを含むセパレータを有する。ここで支持体はポリマーファイバまたはガラスファイバの織布または不織布である。こうしたセパレータとして入手可能なものには、例えば、DegussaAG社のSEPARION<sup>(R)</sup>S240 P25またはSEPARION<sup>(R)</sup>S450P35がある。こうしたセパレータは例えば国際公開第2004/021469号明細書、国際公開第2004/021474号明細書、国際公開第2004/021476号明細書、国際公開第2004/021477号明細書、国際公開第2004/021499号明細書、国際公開第2004/049471号明細書、国際公開第2004/049472号明細書、国際公開第2005/038946号明細書、国際公開第2005/038959号明細書または国際公開第2005/038960号明細書に説明されている。これらの刊行物からは、遮断層を備えたハイブリッドセパレータを構成するための種々の手段が得られる。本発明の積層体が遮断層または遮断粒子を含むセパレータを有する場合、積層体またはこれを含むバッテリーの安全性はさらに高まる。特に有利には、本発明の積層体は遮断層または遮断粒子を備えたセパレータを有する。

#### 【0041】

本発明の積層体は例えば以下に説明する交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る積層体の製造方法によって製造される。

#### 【0042】

本発明の交互に上下に積層され固定されたセパレータおよび電極から成る積層体の製造方法は、1つの電極の上にセパレータおよび電極を交互に上下に積層し、積層体の少なくとも1つの側面に接着部を被着し、この接着部により積層体の少なくとも1つの側面で電極およびセパレータを接触させることを特徴とする。

#### 【0043】

積層体の少なくとも1つの側面に接着部を設ける際には、浸漬を行うか、またはキャタピラ塗布機のスプロケットヘッド、フラットヘッド、スプレーヘッド、調量弁および計量器を用いた射出により、有機接着剤を被着し、続いて積層体に含まれる電極およびセパレータを対向して運動させずに接着剤を硬化させる。使用されるヘッドのタイプおよび/または塗布方法を選択することにより接着部の幅を調整することができる。また、使用される接着剤の量により接着部の厚さを調整することができる。

#### 【0044】

有利には、本発明の接着部の製造方法では有機接着剤が使用され、この接着剤は塗布後直接にまたは60minまで、有利には0.01~60minまで、特に有利には5min~10minまでのあいだに硬化される。有機接着剤は特に熱接着剤、化学接着剤または光活性接着剤である。有利には、有機接着剤として、例えば、Degussa社のVestplast<sup>(R)</sup>608などの熱接着剤、ThreeBond社の3121UV-curing epoxy resinなどのUV架橋可能なエポキシド接着剤、または、Roehm社のPlex<sup>(R)</sup>9016-0、Panacol-Elosol社のVitalit<sup>(TM)</sup>4741などのアクリレート接着剤が用いられる。有利には、有機接着剤として、UV架橋可能なエポキシド接着剤またはUV架橋可能なアクリレート接着剤が用いられる。UV架橋可能な接着剤は、積層体の側面に塗布された後、0.1~60minまで、有利には5min~10minまでのあいだに、波長10~380nm、有利には波長315~380nmのUV光によって硬化される。相応の波長のUV光は例えばPanacol-Elosol社のUV-F400などのUVランプを用いて形成される。

## 【 0 0 4 5 】

有利には、積層体の側面に接着剤が塗布され、少なくとも  $0.1 \text{ N/cm}^2$  の圧力、有利には  $1 \sim 10 \text{ N/cm}^2$  の圧力をかけることにより圧着される。このプレス過程は積層体の全体にわたって相應の圧力をかけることにより行われる。圧力の印加は例えば適切な形態の気圧式加圧機または液圧式加圧機を介して行われる。有利には、当該のプレス過程は、接着剤が硬化するまで、または、少なくとも硬化が開始するまで維持される。このようにすれば、最小限の接着剤を電極とセパレータとのあいだの面に浸透させることができる。これにより、セパレータ面または活性物質面が接着剤によって止められてイオン輸送が生じなくなってしまうことが阻止される。

## 【 0 0 4 6 】

10

有利には、本発明の方法では、少なくとも複数の積層体と使用される接着剤に対して接着力の低い材料から成る分離層とが上下に積層され、続いて1箇所または複数箇所での接着が行われる。分離層の材料は例えばシリコンまたはポリビニレンフッ化物 P V D F である。続いて積層体は分離層の位置で分離される。このようにすれば、1つの作業過程において複数の積層体に接着過程を行い、高速な製造プロセスを達成することができる。

## 【 0 0 4 7 】

本発明の方法では、積層体の電極としてアノードとカソードとが交互に上下に積層される。電極間にはセパレータが積層される。ここでセパレータは有利には電極よりも大きな幅および/または長さを有する。有利には、セパレータの幅は、積層体内の少なくとも1つの電極の幅よりも  $0.1 \sim 10 \text{ mm}$  大きく、有利には  $1 \sim 6 \text{ mm}$  大きく、特に有利には  $2 \sim 4 \text{ mm}$  大きい。有利にはカソードよりも幅の大きなセパレータが用いられる。アノードの幅は、セパレータがカソードよりも大きな幅を有する場合、同様にセパレータの幅よりも小さく、有利には同じ幅である。

20

## 【 0 0 4 8 】

本発明ではセパレータおよび電極として前述したタイプのものが用いられる。有利には、電極およびセパレータは、積層体において、電極の活性物質がセパレータの縁部を超えた位置に存在しないように配置される。有利には、電極およびセパレータは、一方の電極の活性物質がセパレータを介して分離され、他方の電極の活性物質と相似に対向するように配置される。電極は、導出シートが同種の電極に接触しないように積層される（図2を参照）。

30

## 【 0 0 4 9 】

本発明の積層体は例えば L i 電池において使用される。本発明の積層体を含む L i 電池は電解質として大きなアニオンを有するリチウム塩を溶剤としてのカーボナート内に有することができる。適切なリチウム塩は例えば  $\text{LiClO}_4$ 、 $\text{LiBF}_4$ 、 $\text{LiAsF}_6$  または  $\text{LiPF}_6$  であり、このうち  $\text{LiPF}_6$  が特に有利である。溶剤として適切な有機カーボナートは、例えばエチレンカーボナート、プロピレンカーボナート、ジメチルカーボナート、エチルメチルカーボナート、ジエチルカーボナートまたはこれらの混合物である。

## 【 0 0 5 0 】

本発明を以下に図1～図6に則して詳細に説明する。ただし本発明は図示の実施例に制限されるものではない。

40

## 【 0 0 5 1 】

図1には従来技術の電極およびセパレータから成りかつポケットを備えた積層体の縁部が概略的に示されている。ここではカソード K がセパレータポケット S T 内に收容されている。アノード A はカバー層として2つのセパレータポケット S T のあいだに存在している。

## 【 0 0 5 2 】

図2には電極およびセパレータから成る積層体の長手方向側面が概略的に示されている。ここには、セパレータ S、第1の導出シート e A 上に被着された第1の活性物質 a A から成るアノード A、および、第2の導出シート e K 上に被着された第2の活性物質 a K から

50

ら成るカソードKが存在している。一方の電極の活性物質と他方の電極の活性物質とが対向する領域Lも示されている。この領域の長さは理論的には接着剤が塗布されうる長さとして定義される。

【0053】

図3には電極およびセパレータから成る積層体の長手方向側面が概略的に示されている。ここにもセパレータS、アノードAおよびカソードKが存在している。さらに、積層体の側面の2つの接着部K1のあいだの距離aも示されている。

【0054】

図4には電極およびセパレータから成る積層体の長手方向側面が概略的に示されている。ここにもセパレータS、アノードAおよびカソードKが存在している。この場合には、接着部K1は理論的な最大長さLに相応する幅を有している。

【0055】

図5には本発明の電極およびセパレータから成る積層体の縁部の断面が概略的に示されている。接着部K1はカソードK、セパレータSおよびアノードAを接着している。付加的にセパレータSの表面の一部も接着部に接触している。

【0056】

図6には本発明の電極およびセパレータから成る積層体の縁部の断面が概略的に示されている。ここでは積層体の側面に十分な大きさの圧力をかけることなく接着が行われている。この図から、接着部K1の接着剤がカソードK、アノードAおよびセパレータSのあいだの空間に延在しており、電極およびセパレータの表面の大部分を覆っていることがわかる。

【0057】

本発明を以下に実施例に則して説明するが、本発明はこれらの実施例に制限されるものではない。

【0058】

例：

以下の例および比較例の積層体を製造するに際して、セパレータとしてDegussaAG社のSEPARION<sup>(R)</sup>S240P25またはS450P35を用いた。これらについては欧州公開第1509960号明細書および独国公開第10208277号明細書に説明されている。

【0059】

比較例1：接着部を有さない積層体である。図2によれば、アノードAは日本国EnaxInc社のアノードであって寸法70mm×131mm、このうち短辺の7mmはコーティングされていない銅である。その上のセパレータSは独国DegussaAG社のSEPARION<sup>(R)</sup>S240P25であって寸法72mm×126mm、ここでセパレータはアノードのうち活性材料のコーティングされた銅シートの領域で全ての辺につき1mm突出している。その上の対向電極としてのカソードKは日本国EnaxInc社のカソードであって寸法65mm×129mm、このうち短辺の9mmは剥き出しのアルミニウムシートである。この場合、カソードの活性材料のコーティングされたアルミニウムシートの領域はセパレータによって完全に覆われていることに注意されたい。2種類の電極は、カソードの短辺の剥き出しのアルミニウムシートが積層体の1つの側面に位置し、積層体の対向側のアノードの短辺の剥き出しの銅シートから突出するように配置される。2種類の電極がセパレータによって分離されながら交互に積層される。これにより、最上部と最下部にアノードが配置され、16層のアノード、15層のカソードおよび30層のセパレータから成る積層体が得られる。図2によれば、各対向端部で突出している同種の電極の導出シートは非コーティング領域で超音波溶接により相互に溶接され、さらに金属のフラグ状導出部に溶接される。ただし図2にはフラグ状導出部が示されていないことに注意されたい。

【0060】

それぞれの層の接合が劣悪な積層体の取り扱いはいきわめて困難となる。その場合、個々の層が簡単にずれてしまうからである。積層体はラミネートシート電池の構造部として、アルミニウムケーシング内に収容されて用いられる。セルは真空溶接装置Audionvac(

10

20

30

40

50

オランダ国AudionElektroGmbH社のVMS103FA)により溶接される。小さな位置で開放されたケーシングに電解質が充填される。この電解質は日本国UBE社のエチレンカーボナートとジエチレンカーボナートとの比が1:1すなわちEC:DEC=1:1の1M LiPF<sub>6</sub>である。続いてセルは真空溶接装置により閉鎖され、充電機(米国Maccor社のMaccorSeries4000)に接続される。Li電池は、内部のずれにより短絡にいたるため、最初は充電(編成)することはできない。

#### 【0061】

比較例2:溶接されたポケットを備えた積層体である。図1によれば、セパレータポケットSTは、2つのセパレータの長辺のそれぞれ4mmずつを溶接および挿入のために突出させ、この2つの長辺で独国JoKe社の熱プレス機を用いて溶接することにより製造される。セパレータは独国DegussaAG社のS450P35であって、寸法73mm×130mmである。溶接は圧力2500N、280℃で10sにわたって行われている。後にセパレータポケットに寸法65mm×129mmの図1のカソードが収容される。図1によれば積層体は16層のアノードと15層のセパレータポケットおよびその内部のカソードとから形成されている。比較例1と同様に、積層体の各対向端部で突出している同種の電極の導出シートは非コーティング領域で超音波溶接により相互に溶接され、さらに金属のフラグ状導出部に溶接される。

#### 【0062】

それぞれの層の接合が劣悪な積層体の取り扱いがきわめて困難となる。その場合、個々のセパレータポケットとアノードとが相互に簡単にずれてしまうからである。積層体はラミネートシートバッテリーの構造部として、アルミニウムケーシング内に収容されて用いられる。セルは真空溶接装置Audionvac(オランダ国AudionElektroGmbH社のVMS103FA)により溶接される。小さい位置で開放されたケーシングに電解質が充填される。この電解質は日本国UBE社のEC:DEC=1:1の1M LiPF<sub>6</sub>である。続いてセルは真空溶接装置により閉鎖され、充電機(米国Maccor社のMaccorSeries4000)に接続される。このLi電池は問題なく充電可能であり、充放電サイクルが開始される。しかしこのLi電池はポケットの製造プロセスが煩雑で時間がかかるほか、ポケットの突出領域が電池のサイズを長辺側で6mmも不要に増大させ、エネルギー密度が低くなるという欠点を有する。

#### 【0063】

比較例3:接着されたポケットを備えた積層体である。当該の実施例のセパレータポケットは、2つのセパレータの長辺のそれぞれ4mmずつを溶接および挿入のために突出させ、この2つの長辺で接着することにより製造される。セパレータは独国DegussaAG社のS450P35であって、寸法73mm×130mmである。接着剤として、UV硬化可能なアクリレート接着剤すなわち独国RoehmGmbH社のPlex<sup>(R)</sup>9016-0が用いられる。接着剤は表面の縁から幅3mmにわたって塗布される。2つの層は上下に配置され、接着剤はPanacol-Elosol社のタイプUV-F400のUVランプにより波長約315~380nmの光で15minにわたって硬化される。後にポケットに寸法65mm×129mmの図1のカソードが挿入される。図1によれば積層体は16層のアノードと15層のセパレータポケットおよびその内部のカソードとから形成される。比較例1と同様に、積層体の各対向端部で突出している同種の電極の導出シートは非コーティング領域で超音波溶接により相互に溶接され、さらに金属のフラグ状導出部に溶接される。

#### 【0064】

それぞれの層の接合が劣悪な積層体の取り扱いがきわめて困難となる。その場合、個々のセパレータポケットとアノードとが相互に簡単にずれてしまうからである。積層体はラミネートシートバッテリーの構造部として、アルミニウムケーシング内に収容されて用いられる。セルは真空溶接装置Audionvac(オランダ国AudionElektroGmbH社のVMS103FA)により溶接される。小さい位置で開放されたケーシングに電解質が挿入される。この電解質は日本国UBE社のEC:DEC=1:1の1M LiPF<sub>6</sub>である。続いてセルは真空溶接装置により閉鎖され、充電機(米国Maccor社のMaccorSeries4000)に接続される。このLi電池は問題なく充電可能であり、充放電サイクルが開始される。しかしこのLi電池はポケ

ットの製造プロセスが煩雑で時間がかかるほか、ポケットの突出領域が電池のサイズを長辺側で6mmも不要に増大させ、エネルギー密度が低くなるという欠点を有する。

【0065】

本発明の実施例

実施例1：熱接着剤によって線状に接着された積層体である。アノードAは日本国Enax Inc社のアノードであって寸法70mm×131mm、このうち短辺の7mmはコーティングされていない銅である。その上のセパレータSは独国DegussaAG社のSEPARION<sup>(R)</sup>S240P25であって寸法72mm×126mm、ここでセパレータはアノードのうち活性材料のコーティングされた銅シートの領域で全ての辺につき1mm突出している。その上の対向電極としてのカソードKは日本国Enax Inc社のカソードであって寸法65mm×129mm、このうち短辺の9mmは剥き出しのアルミニウムシートである。この場合、カソードの活性材料のコーティングされたアルミニウムシートの領域はセパレータによって完全に覆われていることに注意されたい。2種類の電極は、カソードの短辺の剥き出しのアルミニウムシートが積層体の1つの側面に位置し、積層体の対向側のアノードの短辺の剥き出しの銅シートから突出するように配置される。2種類の電極がセパレータによって分離されながら交互に積層される。これにより、最上部と最下部にアノードが配置され、16層のアノード、15層のカソードおよび30層のセパレータから成る積層体が得られる。

10

【0066】

当該の積層体は積層体の上方および下方の金属プレートを介して10N/cm<sup>2</sup>で軽くプレスされ、図3のように積層体の外側の3個所に独国Bosch社のキャタピラ塗布機GKP20OCEによって接着剤が塗布される。熱接着剤は独国DegussaAG社のVestoplast<sup>(R)</sup>608から成る。

20

【0067】

図2によれば、積層体の各対向端部で突出している同種の電極の導出シートは超音波溶接により非コーティング領域で超音波溶接により相互に溶接され、さらに金属のフラグ状導出部に溶接される。

【0068】

積層体はラミネートシート電池の構造部として、アルミニウムケーシング内に収容されて用いられる。セルは真空溶接装置Audionvac(オランダ国AudionElektroGmbH社のVMS103FA)により溶接される。小さい位置で開放されたケーシングに電解質が充填される。この電解質は日本国UBE社のEC:DEC=1:1の1M LiPF<sub>6</sub>である。続いてセルは真空溶接装置により閉鎖され、充電機(米国Maccor社のMaccorSeries4000)に接続される。

30

【0069】

このLi電池は問題なく充電可能であり、充放電サイクルが開始される。比較例1とは異なり、このLi電池は、各層が良好に相互に固定されているので、いずれの場合にも短絡しない。また、比較例2,3と比べて、積層体全体の接着をパッチごとに並列に行うことができるので、プロセス時間も格段に短縮される。さらに、このLi電池では、ポケットのそれぞれ4mmの突出領域が省略されるので、高いエネルギー密度を有する。

【0070】

40

実施例2：UVによって架橋可能なアクリレート接着剤によって線状に接着された積層体である。アノードAは日本国Enax Inc社のアノードであって寸法70mm×131mm、このうち短辺の7mmはコーティングされていない銅である。その上のセパレータSは独国DegussaAG社のSEPARION<sup>(R)</sup>S240P25であって寸法72mm×126mm、ここでセパレータはアノードのうち活性材料のコーティングされた銅シートの領域で全ての辺につき1mm突出している。その上の対向電極としてのカソードKは日本国Enax Inc社のカソードであって寸法65mm×129mm、このうち短辺の9mmは剥き出しのアルミニウムシートである。この場合、活性材料のコーティングされたアルミニウムシートの領域はセパレータによって完全に覆われていることに注意されたい。2種類の電極は、カソードの剥き出しのアルミニウムシートの短辺が積層体の1つの側面に位置し、積層体の対向側の

50

アノードの剥き出しの銅シートの短辺から突出するように配置される。2種類の電極がセパレータによって分離されながら交互に積層される。これにより、最上部と最下部にアノードが配置され、16層のアノード、15層のカソードおよび30層のセパレータから成る積層体が得られる。

【0071】

当該の積層体は積層体の上方および下方の金属プレートを通して $10\text{ N/cm}^2$ で軽くプレスされ、図3のように積層体の外側の3個所にピペットによって接着剤が線状に塗布される。接着剤として、UV硬化可能なアクリレート接着剤すなわち独国RoehmGmbH社のPlex<sup>(R)</sup>9016-0が用いられる。接着剤はPanacol-Elosol社のタイプUV-F400のUVランプにより波長約 $315\sim380\text{ nm}$ の光で $15\text{ min}$ にわたって硬化される。

10

【0072】

図2によれば、積層体の各対向端部で突出している同種の電極の導出シートは非コーティング領域で超音波溶接により相互に溶接され、さらに金属のフラグ状導出部に溶接される。

【0073】

積層体はラミネートシート電池の構造部として、アルミニウムケーシング内に収容されて用いられる。セルは真空溶接装置Audionvac(AudionElektroGmbH社のVMS103FA)により溶接される。小さい位置で開放されたケーシングに電解質が充填される。この電解質は日本国UBE社の $\text{EC}:\text{DEC}=1:1$ の $1\text{ M LiPF}_6$ である。続いてセルは真空溶接装置により閉鎖され、充電機(米国Maccor社のMaccorSeries4000)に接続される。

20

【0074】

このLi電池は問題なく充電可能であり、充放電サイクルが開始される。比較例1とは異なり、このLi電池は、各層が良好に相互に固定されているので、いずれの場合にも短絡しない。また、比較例2,3と比べて、積層体全体の接着をバッチごとに並列に行うことができるので、プロセス時間も格段に短縮される。さらに、このLi電池では、ポケットのそれぞれ $4\text{ mm}$ の突出領域が省略されるので、高いエネルギー密度を有する。

【0075】

実施例3:UV架橋可能なアクリレート接着剤によって側辺全体を接着された積層体である。アノードAは日本国EnaxInc社のアノードであって寸法 $70\text{ mm}\times131\text{ mm}$ 、このうち短辺の $7\text{ mm}$ はコーティングされていない銅である。その上のセパレータSは独国DegussaAG社のSEPARION<sup>(R)</sup>S240P25であって寸法 $72\text{ mm}\times126\text{ mm}$ 、ここでセパレータはアノードのうち活性材料のコーティングされた銅シートの領域で全ての辺につき $1\text{ mm}$ 突出している。その上の対向電極としてのカソードKは日本国EnaxInc社のカソードであって寸法 $65\text{ mm}\times129\text{ mm}$ 、このうち短辺の $9\text{ mm}$ は剥き出しのアルミニウムシートである。この場合、カソードの活性材料のコーティングされたアルミニウムシートの領域はセパレータによって完全に覆われていることに注意されたい。2種類の電極は、カソードの剥き出しのアルミニウムシートの短辺が積層体の1つの側面に位置し、積層体の対向側のアノードの剥き出しの銅シートの短辺から突出するように配置される。2種類の電極がセパレータによって分離されながら交互に積層される。これにより、最上部と最下部にアノードが配置され、16層のアノード、15層のカソードおよび30層のセパレータから成る積層体を得られる。

30

40

【0076】

当該の積層体は積層体の上方および下方の金属プレートを通して $10\text{ N/cm}^2$ で軽くプレスされ、図4のように幅Lの領域の全面にわたって接着剤層が設けられる。接着剤として、UV硬化可能なアクリレート接着剤すなわち独国RoehmGmbH社のPlex<sup>(R)</sup>9016-0が用いられる。接着剤は側面を接着剤床に浸漬することにより塗布される。接着剤の垂れはパテナイフによって拭き取られる。接着剤はPanacol-Elosol社のタイプUV-F400のUVランプにより波長約 $315\sim380\text{ nm}$ の光で $15\text{ min}$ にわたって硬化される。

【0077】

図2によれば、積層体の各対向端部で突出している同種の電極の導出シートは超音波溶

50

接により非コーティング領域で超音波溶接により相互に溶接され、さらに金属のフラグ状導出部に溶接される。

【 0 0 7 8 】

積層体はラミネートシート電池の構造部として、アルミニウムケーシング内に収容されて用いられる。セルは真空溶接装置Audionvac(オランダ国AudionElektroGmbH社のVMS 103FA)により溶接される。小さい位置で開放されたケーシングに電解質が挿入される。この電解質は日本国UBE社の  $E C : D E C = 1 : 1$  の  $1M LiPF_6$  である。続いてセルは真空溶接装置により閉鎖され、充電機(米国Maccor社のMaccorSeries4000)に接続される。

【 0 0 7 9 】

この  $Li$  電池は問題なく充電可能であり、充放電サイクルが開始される。比較例 1 とは異なり、この  $Li$  電池は、各層が良好に相互に固定されているので、いずれの場合にも短絡しない。また、比較例 2, 3 と比べて、積層体全体の接着をバッチごとに並列に行うことができるので、プロセス時間も格段に短縮される。さらに、この  $Li$  電池では、ポケットのそれぞれ 4 mm の突出領域が省略されるので、高いエネルギー密度を有する。本発明の実施例 1, 2 と比べて、当該の実施例の  $Li$  電池は部分的な接着部を有するため扱いやすさがさらに向上している。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 8 0 】

【図 1】従来技術の積層体の概略図である。

【図 2】従来技術の積層体の概略図である。

【図 3】従来技術の積層体の概略図である。

【図 4】従来技術の積層体の概略図である。

【図 5】本発明の積層体の概略図である。

【図 6】本発明の積層体の概略図である。

【図 1】

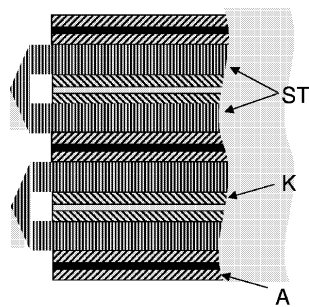


Fig. 1

【図 3】

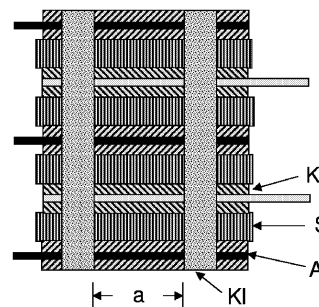


Fig. 3

【図 2】

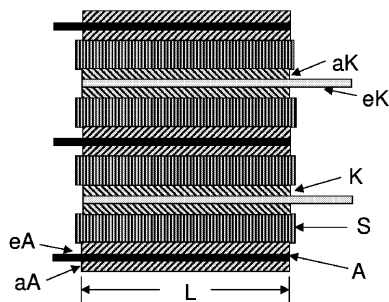


Fig. 2

【図 4】

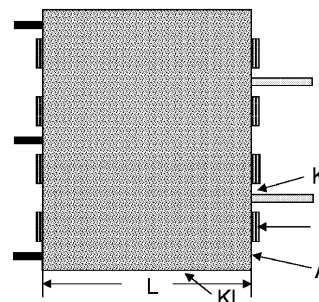


Fig. 4

10

20

【図 5】

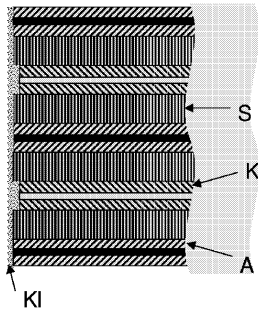


Fig. 5

【図 6】

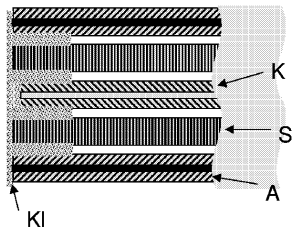


Fig. 6



## フロントページの続き

- (74)代理人 100135633  
弁理士 二宮 浩康
- (74)代理人 100114890  
弁理士 アインゼル・フェリックス＝ラインハルト
- (72)発明者 アンドレアス ショルマン  
ドイツ連邦共和国 ドーバーシャウ ブルーメンシュトラッセ 7
- (72)発明者 フォルカー ヘンニゲ  
ドイツ連邦共和国 デュルメン ゲルステンカンブ 53
- (72)発明者 ゲルハルト ヘルペル  
ドイツ連邦共和国 ノットウルン レルヒエンハイン 84
- (72)発明者 クリスティアン ハインゲ  
ドイツ連邦共和国 レーデ ブルクテラーシュトラッセ 3
- (72)発明者 ペーター ビルグラム  
ドイツ連邦共和国 レックリングハウゼン シュッツェンシュトラッセ 44

審査官 吉田 安子

- (56)参考文献 特開2005-190713(JP,A)  
特開2004-253343(JP,A)  
特開2002-208442(JP,A)  
特開2004-253341(JP,A)  
特開2004-303718(JP,A)  
特開2005-190912(JP,A)  
特開2000-251858(JP,A)  
特開平09-237639(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M 10/0585  
H01M 10/052  
H01M 2/16  
H01M 2/08