

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2020-173955

(P2020-173955A)

(43) 公開日 令和2年10月22日 (2020. 10. 22)

(51) Int. Cl.	F 1	テーマコード (参考)
HO 1 M 10/04 (2006.01)	HO 1 M 10/04 W	5 H O 2 8
HO 1 M 10/0587 (2010.01)	HO 1 M 10/0587	5 H O 2 9
HO 1 M 10/0562 (2010.01)	HO 1 M 10/0562	
HO 1 M 10/0565 (2010.01)	HO 1 M 10/0565	
HO 1 M 10/052 (2010.01)	HO 1 M 10/052	
審査請求 未請求 請求項の数 18 O L (全 17 頁)		

(21) 出願番号 特願2019-74861 (P2019-74861)
 (22) 出願日 平成31年4月10日 (2019. 4. 10)

(71) 出願人 000005326
 本田技研工業株式会社
 東京都港区南青山二丁目1番1号
 (74) 代理人 100165179
 弁理士 田▲崎▼ 聡
 (74) 代理人 100126664
 弁理士 鈴木 慎吾
 (74) 代理人 100154852
 弁理士 酒井 太一
 (74) 代理人 100194087
 弁理士 渡辺 伸一
 (72) 発明者 大田 正弘
 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会
 社本田技術研究所内

最終頁に続く

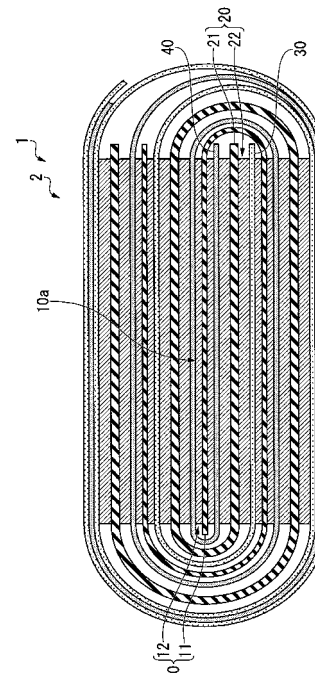
(54) 【発明の名称】 電池用電極群、該電極群を備える巻回型電池および電池用電極群の製造方法

(57) 【要約】

【課題】 電池の歩留りを向上し且つ体積エネルギー密度の向上を図ることができる電池用電極群を提供する。

【解決手段】 電池用電極群 1 は、長尺状の正極集電体 1 1 上に正極活物質層 1 2 が形成された正極層 1 0 と、長尺状の負極集電体 2 1 上に負極活物質層 2 2 が形成された負極層 2 0 とを有し、正極層 1 0 と負極層 2 0 とが扁平状に巻回された積層体 2 で構成されている。正極層 1 0 の長手方向端部 1 0 a が、積層体 2 の巻回コアを構成している。

【選択図】 図 1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

長尺状の正極集電体上に正極活物質層が形成された正極層と、長尺状の負極集電体上に負極活物質層が形成された負極層とを有し、前記正極層と前記負極層とが扁平状に巻回された積層体で構成される電池用電極群であって、

前記正極層の長手方向端部および前記負極層の長手方向端部のうちの一方が、前記積層体の巻回コアを構成する、電池用電極群。

【請求項 2】

前記正極層が、長尺状の正極集電体と、前記正極集電体の少なくとも一方の主面に間欠的に形成された複数の正極活物質層とを有し、

前記負極層が、長尺状の負極集電体と、前記負極集電体の少なくとも一方の主面に間欠的に形成された複数の負極活物質層とを有し、

前記正極層と前記負極層とが巻回された状態で、前記積層体の積層方向に関して、前記複数の正極活物質層と前記複数の負極活物質層とが交互に配置されている、請求項 1 に記載の電池用電極群。

【請求項 3】

前記正極層の長手方向端部に位置する正極活物質層の厚みが、前記正極層の長手方向端部以外に位置する正極活物質層の厚みよりも大きい、または、前記負極層の長手方向端部に位置する負極活物質の厚みが、前記負極層の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の厚みよりも大きい、請求項 1 または 2 に記載の電池用電極群。

【請求項 4】

前記正極層の長手方向端部に位置する正極活物質層の目付量が、前記正極層の長手方向端部以外に位置する正極活物質層の目付量よりも大きい、または、前記負極層の長手方向端部に位置する負極活物質層の目付量が、前記負極層の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の目付量よりも大きい、請求項 1 ～ 3 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群。

【請求項 5】

前記正極層と前記負極層の間に配置された第 1 固体電解質層と、

前記負極層の前記第 1 固体電解質層とは反対側に配置された第 2 固体電解質層とを備える、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群。

【請求項 6】

折り曲げられた状態で前記正極層の両側に一体で配置されるか、又は折り曲げられた状態で前記負極層の両側に一体で配置された長尺状の第 3 固体電解質層を備える、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群。

【請求項 7】

前記正極層と前記負極層の間に配置された長尺状の第 1 セパレータと、

前記負極層の前記第 1 セパレータとは反対側に配置された長尺状の第 2 セパレータとを備える、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群。

【請求項 8】

折り曲げられた状態で前記正極層の両側に一体で配置されるか、又は折り曲げられた状態で前記負極層の両側に一体で配置された長尺状の第 3 セパレータを備える、請求項 1 ～ 4 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群。

【請求項 9】

請求項 1 ～ 8 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群を備える、巻回型電池。

【請求項 10】

長尺状の正極集電体上に正極活物質層が形成された正極層と、長尺状の負極集電体上に負極活物質層が形成された負極層とを、前記正極層と前記負極層の巻き始め位置が異なるように、互いに長手方向にずれた状態で積層させ、

前記正極層の長手方向端部および前記負極層の長手方向端部のうちのいずれかを巻回コアとして、前記正極層および前記負極層を扁平状に巻回して積層体を形成する、電池用電極群の製造方法。

10

20

30

40

50

【請求項 1 1】

前記正極集電体の少なくとも一方の主面に複数の正極活物質層を間欠的に形成して前記正極層を作製し、

前記負極集電体の少なくとも一方の主面に複数の負極活物質層を間欠的に形成して前記負極層を作製し、

前記正極層と前記負極層とを巻回することで、前記積層体の積層方向に関して、前記複数の正極活物質層と前記複数の負極活物質層とを交互に配置する、請求項 1 0 に記載の電池用電極群の製造方法。

【請求項 1 2】

前記正極層の長手方向端部に位置する正極活物質層の厚みが、前記正極層の長手方向端部以外に位置する正極活物質層の厚みよりも大きくなるように前記正極活物質層を形成するか、または、前記負極層の長手方向端部に位置する負極活物質層の厚みが、前記負極層の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の厚みよりも大きくなるように前記負極活物質層を形成する、請求項 1 0 または 1 1 に記載の電池用電極群の製造方法。

【請求項 1 3】

前記正極層の長手方向端部に位置する正極活物質層の目付量が、前記正極層の長手方向端部以外に位置する正極活物質層の目付量よりも大きくなるように前記正極活物質層を形成するか、または、前記負極層の長手方向端部に位置する負極活物質層の目付量が、前記負極層の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の目付量よりも大きくなるように前記負極活物質層を形成する、請求項 1 0 ～ 1 2 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群の製造方法。

【請求項 1 4】

前記正極層と前記負極層の間に第 1 固体電解質層を配置し、且つ前記負極層の前記第 1 固体電解質層とは反対側に第 2 固体電解質層を配置し、

前記正極層及び負極層の一方、前記第 1 固体電解質層、前記正極層及び前記負極層の他方および前記第 2 固体電解質層を、この順に積層した状態で巻回する、請求項 1 0 ～ 1 3 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群の製造方法。

【請求項 1 5】

長尺状の第 3 固体電解質層を折り曲げて、前記正極層の両側に配置するか又は前記負極層の両側に配置し、

前記正極層及び負極層の一方、前記第 3 固体電解質層、前記正極層及び前記負極層の他方および前記第 3 固体電解質層をこの順に積層した状態で巻回する、請求項 1 0 ～ 1 3 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群の製造方法。

【請求項 1 6】

前記正極層と前記負極層の間に長尺状の第 1 セパレータを配置し、且つ前記負極層の前記第 1 セパレータとは反対側に長尺状の第 2 セパレータを配置し、

前記正極層及び負極層の一方、前記第 1 セパレータ、前記正極層及び前記負極層の他方および前記第 2 セパレータをこの順に積層した状態で巻回する、請求項 1 0 ～ 1 3 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群の製造方法。

【請求項 1 7】

長尺状の第 3 セパレータを折り曲げて、前記正極層の両側に配置するか又は前記負極層の両側に配置し、

前記正極層及び負極層の一方、前記第 3 セパレータ、前記正極層及び前記負極層の他方および前記第 3 セパレータをこの順に積層した状態で巻回する、請求項 1 0 ～ 1 3 のいずれか 1 項に記載の電池用電極群の製造方法。

【請求項 1 8】

請求項 1 0 ～ 1 7 のいずれか 1 項に記載の製造方法によって製造された電池用電極群を備える、巻回型電池。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電池用電極群、該電極群を備える巻回型電池および電池用電極群の製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

固体電池は設計時の性能を確保、維持するため、積層体を形成した状態で、高い面圧でのプレス成形、および、その後の高い拘束圧力が必要である。そのため、巻回で電極群を形成する場合、電極は扁平状である必要がある。従来のリチウムイオン電池（液系LIB）やニッケル水素電池（NiMH）などに見られる巻回型セルには、巻き始め部（コア）に電池として機能しないセパレータや、紙が設けられている。

10

【0003】

例えば、二次電池において、正極集電体上に正極合材層が形成された正極板、および負極集電体上に負極合材層が形成された負極板を、セパレータを介して巻回して形成された扁平状の電極群がある。この電極群では、その径方向断面略中央にセパレータが配置されている（特許文献1）。

また、円筒型密閉鉛蓄電池において、平板状の集電体に活物質を充填した正極板と負極板との間にセパレータが介在しており、径方向断面略中央にセパレータの一部が配置された電極群がある（特許文献2）。

【先行技術文献】

【特許文献】

20

【0004】

【特許文献1】特許第4744617号公報

【特許文献2】特許第4852779号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

しかしながら、電池を製造する際、通常、正極および負極を巻回して全固体電池をアッセンブリパッケージとしてプレス成形するため、電極にかかる面圧のばらつきや位置ずれが生じ易く、その結果、電池の初期性能のばらつきや、電極合材の脱落を引き起こし、歩留まりを悪化させるという問題がある。また、電池として機能しないセパレータなどの部材がコアに配置されていると、コアがデッドスペースとなることから、電池の体積エネルギー密度を低下させる要因となっている。

30

【0006】

本発明の目的は、電池の歩留りを向上し且つ体積エネルギー密度の向上を図ることができる電池用電極群、該電極群を備える巻回型電池および電池用電極群の製造方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0007】

上記目的を達成するために、本発明は以下の手段を提供する。

【0008】

40

〔1〕長尺状の正極集電体上に正極活物質層が形成された正極層と、長尺状の負極集電体上に負極活物質層が形成された負極層とを有し、前記正極層と前記負極層とが扁平状に巻回された積層体で構成される電池用電極群であって、

前記正極層の長手方向端部および前記負極層の長手方向端部のうちの一方が、前記積層体の巻回コアを構成する、電池用電極群。

【0009】

〔2〕前記正極層が、長尺状の正極集電体と、前記正極集電体の少なくとも一方の主面に間欠的に形成された複数の正極活物質層とを有し、

前記負極層が、長尺状の負極集電体と、前記負極集電体の少なくとも一方の主面に間欠的に形成された複数の負極活物質層とを有し、

50

前記正極層と前記負極層とが巻回された状態で、前記積層体の積層方向に関して、前記複数の正極活物質層と前記複数の負極活物質層とが交互に配置されている、上記〔１〕に記載の電池用電極群。

【００１０】

〔３〕前記正極層の長手方向端部に位置する正極活物質層の厚みが、前記正極層の長手方向端部以外に位置する正極活物質層の厚みよりも大きい、または、前記負極層の長手方向端部に位置する負極活物質の厚みが、前記負極層の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の厚みよりも大きい、上記〔１〕または〔２〕に記載の電池用電極群。

【００１１】

〔４〕前記正極層の長手方向端部に位置する正極活物質層の目付量が、前記正極層の長手方向端部以外に位置する正極活物質層の目付量よりも大きい、または、前記負極層の長手方向端部に位置する負極活物質層の目付量が、前記負極層の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の目付量よりも大きい、上記〔１〕～〔３〕のいずれかに記載の電池用電極群。

10

【００１２】

〔５〕前記正極層と前記負極層の間に配置された第１固体電解質層と、前記負極層の前記第１固体電解質層とは反対側に配置された第２固体電解質層とを備える、上記〔１〕～〔４〕のいずれかに記載の電池用電極群。

【００１３】

〔６〕折り曲げられた状態で前記正極層の両側に一体で配置されるか、又は折り曲げられた状態で前記負極層の両側に一体で配置された長尺状の第３固体電解質層を備える、上記〔１〕～〔４〕のいずれかに記載の電池用電極群。

20

【００１４】

〔７〕前記正極層と前記負極層の間に配置された長尺状の第１セパレータと、前記負極層の前記第１セパレータとは反対側に配置された長尺状の第２セパレータとを備える、上記〔１〕～〔４〕のいずれか１項に記載の電池用電極群。

【００１５】

〔８〕折り曲げられた状態で前記正極層の両側に一体で配置されるか、又は折り曲げられた状態で前記負極層の両側に一体で配置された長尺状の第３セパレータを備える、上記〔１〕～〔４〕のいずれかに記載の電池用電極群。

30

【００１６】

〔９〕上記〔１〕～〔８〕のいずれかに記載の電池用電極群を備える、巻回型電池。

【００１７】

〔１０〕長尺状の正極集電体上に正極活物質層が形成された正極層と、長尺状の負極集電体上に負極活物質層が形成された負極層とを、前記正極層と前記負極層の巻き始め位置が異なるように、互いに長手方向にずれた状態で積層させ、

前記正極層の長手方向端部および前記負極層の長手方向端部のうちのいずれかを巻回コアとして、前記正極層および前記負極層を扁平状に巻回して積層体を形成する、電池用電極群の製造方法。

【００１８】

〔１１〕前記正極集電体の少なくとも一方の主面に複数の正極活物質層を間欠的に形成して前記正極層を作製し、

前記負極集電体の少なくとも一方の主面に複数の負極活物質層を間欠的に形成して前記負極層を作製し、

前記正極層と前記負極層とを巻回することで、前記積層体の積層方向に関して、前記複数の正極活物質層と前記複数の負極活物質層とを交互に配置する、上記〔１０〕に記載の電池用電極群の製造方法。

40

【００１９】

〔１２〕前記正極層の長手方向端部に位置する正極活物質層の厚みが、前記正極層の長手方向端部以外に位置する正極活物質層の厚みよりも大きくなるように前記正極活物質層を

50

形成するか、または、前記負極層の長手方向端部に位置する負極活物質層の厚みが、前記負極層の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の厚みよりも大きくなるように前記負極活物質層を形成する、上記〔１０〕または〔１１〕に記載の電池用電極群の製造方法。

【００２０】

〔１３〕前記正極層の長手方向端部に位置する正極活物質層の目付量が、前記正極層の長手方向端部以外に位置する正極活物質層の目付量よりも大きくなるように前記正極活物質層を形成するか、または、前記負極層の長手方向端部に位置する負極活物質層の目付量が、前記負極層の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の目付量よりも大きくなるように前記負極活物質層を形成する、上記〔１０〕～〔１２〕のいずれかに記載の電池用電極群の製造方法。

10

【００２１】

〔１４〕前記正極層と前記負極層の間に第１固体電解質層を配置し、且つ前記負極層の前記第１固体電解質層とは反対側に第２固体電解質層を配置し、

前記正極層、前記第１固体電解質層、前記負極層および前記第２固体電解質層をこの順に積層した状態で巻回する、上記〔１０〕～〔１３〕のいずれかに記載の電池用電極群の製造方法。

【００２２】

〔１５〕長尺状の第３固体電解質層を折り曲げて、前記正極層の両側に配置するか又は前記負極層の両側に配置し、

前記正極層及び負極層の一方、前記第３固体電解質層、前記正極層及び前記負極層の他方および前記第３固体電解質層をこの順に積層した状態で巻回する、上記〔１０〕～〔１３〕のいずれかに記載の電池用電極群の製造方法。

20

【００２３】

〔１６〕前記正極層と前記負極層の間に長尺状の第１セパレータを配置し、且つ前記負極層の前記第１セパレータとは反対側に長尺状の第２セパレータを配置し、

前記正極層、前記第１セパレータ、前記負極層および前記第２セパレータをこの順に積層した状態で巻回する、上記〔１０〕～〔１３〕のいずれかに記載の電池用電極群の製造方法。

【００２４】

〔１７〕長尺状の第３セパレータを折り曲げて、前記正極層の両側に配置するか又は前記負極層の両側に配置し、

前記正極層及び負極層の一方、前記第３セパレータ、前記正極層及び前記負極層の他方および前記第３セパレータをこの順に積層した状態で巻回する、上記〔１０〕～〔１３〕のいずれかに記載の電池用電極群の製造方法。

30

【００２５】

〔１８〕上記〔１０〕～〔１７〕のいずれかに記載の製造方法によって製造された電池用電極群を備える、巻回型電池。

【発明の効果】

【００２６】

本発明によれば、巻回型電池の歩留りを向上し且つ体積エネルギー密度の向上を図ることができる。

40

【図面の簡単な説明】

【００２７】

【図１】図１は、本発明の実施形態に係る電池用電極群の構成の一例を示す断面図である。

【図２】図２は、図１の電池用電極群を展開した状態の分解断面図である。

【図３】図３（ａ）は、図２における正極層の変形例を示す断面図であり、図３（ｂ）は、図２における正極層の他の変形例を示す断面図である。

【図４】図４（ａ）は、図２の電池用正極群の他の変形例を示す断面図であり、図４（ｂ）は、図４（ａ）における正極層の変形例を示す断面図である。

50

【図 5】図 5 は、図 1 の電池用電極群を備える巻回型電池の製造方法の一例を説明する図である。

【図 6】図 6 は、図 2 の電池用電極群の変形例を示す断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0028】

以下、本発明の実施形態について、図面を参照して詳細に説明する。以下の説明で用いる図面は、本実施形態の特徴をわかりやすくするために便宜上特徴となる部分を拡大して示している場合があり、各構成要素の寸法比率などは実際とは異なっていることがある。また、以下の説明において例示される物質、寸法等は一例であって、本実施形態はそれらに限定されるものではなく、本発明の効果を奏する範囲で適宜変更して実施することが可能である。

10

【0029】

〔巻回型電池の構成〕

図 1 は、本発明の実施形態に係る電池用電極群の構成の一例を示す断面図であり、図 2 は、図 1 の電池用電極群を展開した状態の分解断面図である。本実施形態では、巻回型電池として、巻回型全固体電池を例に挙げて説明する。巻回型全固体電池としては、例えば、全固体リチウムイオン二次電池、全固体ナトリウムイオン二次電池、全固体マグネシウムイオン二次電池等が挙げられる。

【0030】

図 1 に示すように、電池用電極群 1 は、長尺状の正極集電体 11 上に正極活物質層 12 が形成された正極層 10 と、長尺状の負極集電体 21 上に負極活物質層 22 が形成された負極層 20 とを有し、正極層 10 と負極層 20 とが扁平状に巻回された積層体 2 で構成されている。本実施形態では、正極層 10 の長手方向端部 10a が、積層体 2 の巻回コアを構成している。

20

【0031】

正極層 10 は、図 2 に示すように、例えば、長尺状の正極集電体 11 と、正極集電体 11 の両主面に間欠的に形成された複数の正極活物質層 12A、12B とを有している。本実施形態では、正極集電体 11 の両主面に形成された一对の正極活物質層 12A、12B が正極層ユニット 10A を画定し、複数の正極層ユニット 10A が正極層 10 を構成する。但し、正極層 10 が、正極集電体 11 の一方の主面のみに間欠的に形成された複数の正極活物質層 12A（または複数の正極活物質層 12B）を有していてもよい。また、正極集電体 11 と正極活物質層 12A、12B が一体となって正極層 10 を構成していてもよい。

30

【0032】

正極集電体 11 は、導電率が高い少なくとも 1 つの物質で構成されるのが好ましい。導電性が高い物質としては、例えば、銀 (Ag)、パラジウム (Pd)、金 (Au)、プラチナ (Pt)、アルミニウム (Al)、銅 (Cu)、クロム (Cr)、及びニッケル (Ni) の少なくともいずれか一つの金属元素を含む金属又はステンレスなどの合金、あるいはカーボン (C) の非金属が挙げられる。導電性の高さに加えて、製造コストも考慮すると、アルミニウム、ニッケルまたはステンレスが好ましい。更に、アルミニウム (Al) は、正極活物質、負極活物質及び固体電解質と反応し難い。そのため、正極集電体 11 にアルミニウム (Al) を用いると、全固体電池の内部抵抗を低減することができる。

40

【0033】

正極集電体 11 の形状としては、例えば、箔状、板状、メッシュ状、不織布状、発泡状等を挙げることができる。また、正極活物質層 12A、12B との密着性を高めるために、正極集電体 11 の表面にカーボンなどが配置されていてもよいし、表面が粗化されていてもよい。

【0034】

正極活物質層 12A、12B は、例えばリチウムイオンと電子を授受する正極活物質を含む。正極活物質としては、リチウムイオンを可逆に放出・吸蔵でき、電子輸送が行える

50

材料であれば特に限定されず、全固体型リチウムイオン電池の正極層に適用可能な公知の正極活物質を用いることができる。例えば、リチウムコバルト酸化物 (LiCoO_2)、リチウムニッケル酸化物 (LiNiO_2)、リチウムマンガン酸化物 (LiMn_2O_4)、固溶体酸化物 ($\text{Li}_2\text{MnO}_3 - \text{LiMO}_2$ ($\text{M} = \text{Co}, \text{Ni}$ など))、リチウム-マンガン-ニッケル-コバルト酸化物 ($\text{LiNi}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{O}_2$)、オリビン型リチウムリン酸化物 (LiFePO_4) 等の複合酸化物；ポリアニリン、ポリピロール等の導電性高分子； Li_2S 、 CuS 、 Li-Cu-S 化合物、 TiS_2 、 FeS 、 MoS_2 、 Li-Mo-S 化合物等の硫化物；硫黄とカーボンの混合物；等が挙げられる。正極活物質は、上記材料の 1 種単独で構成されてもよいし、2 種以上で構成されてもよい。

10

【0035】

正極活物質層 12A、12B は、正極活物質とリチウムイオンの授受をする固体電解質を含む。固体電解質としては、リチウムイオン伝導性を有するものであれば特に制限は無く、一般的に全固体型リチウムイオン電池に用いられる材料を用いることができる。例えば、硫化物固体電解質材料、酸化物固体電解質材料、リチウム含有塩などの無機固体電解質や、ポリエチレンオキシドなどのポリマー系の固体電解質、リチウム含有塩やリチウムイオン伝導性のイオン液体を含むゲル系の固体電解質等を挙げることができる。固体電解質は、上記材料の 1 種単独で構成されてもよいし、2 種以上で構成されてもよい。

正極活物質層 12A、12B に含まれる固体電解質は、負極活物質層 22A、22B や、後述する固体電解質層に含まれる固体電解質と同様のものでもよいし、異なってもよい。

20

【0036】

正極活物質層 12A、12B は、正極層 10 の導電性を向上させる観点から、導電助剤を含んでもよい。導電助剤としては一般的に全固体型リチウムイオン電池に使用可能な導電助剤を用いることができる。例えば、アセチレンブラック、ケチエンブラック等のカーボンブラック；カーボンファイバー；気相法炭素繊維；黒鉛粉末；カーボンナノチューブ等の炭素材料、を挙げることができる。導電助剤は、上記材料の 1 種単独で構成されてもよいし、2 種以上で構成されてもよい。

【0037】

また、正極活物質層 12A、12B は、正極活物質同士および正極活物質と集電体とを結着させる役割をもつバインダーを含んでもよい。

30

【0038】

正極層 10 の厚みは、 $10\ \mu\text{m}$ 以上 $1000\ \mu\text{m}$ 以下であるのが好ましく、 $70\ \mu\text{m}$ 以上 $1000\ \mu\text{m}$ 以下であるのがより好ましい。正極層 10 の厚みが $70\ \mu\text{m}$ 以上であると、巻回コアを構成する正極層 10 の長手方向端部 10a の剛性を高めることができ、積層体 2 をプレス成形する際に、電極にかかる面圧のばらつきや位置ずれを防止することができる。一方、正極層 10 の厚みが $1000\ \mu\text{m}$ を超えると、正極抵抗が著しく増大するので好ましくない。

【0039】

複数の正極活物質層 12A、12B の厚みおよび目付量は基本的に同じであるが、異なってもよい。例えば、図 3 (a) に示すように、正極層 10 の長手方向端部 10a に位置する正極活物質層 13A、13B の厚み t_2 が、正極層 10 の長手方向端部 10a 以外に位置する正極活物質層 12A、12B の厚み t_1 よりも大きくてもよい。また、正極層 10 の長手方向端部 10a に位置する正極活物質層 13A、13B (あるいは正極活物質層 12A、12B) の目付量が、正極層 10 の長手方向端部 10a 以外に位置する正極活物質層 12A、12B の目付量より大きくてもよい。これにより、巻回コアを構成する正極層 10 の長手方向端部 10a の剛性を高めることができる。

40

【0040】

また、複数の正極活物質層 12A、12B の配列ピッチは、基本的に同じであるが、異なってもよい。例えば、図 3 (b) に示すように、複数の正極活物質層 12A、12

50

Bの配列ピッチが、正極層10の長手方向一端（長手方向端部10a）から他端に向かって大きくなっているのが好ましい。換言すれば、隣り合う複数の正極活物質層12A、12Aの間隔が、正極層10の長手方向一端（長手方向端部10a）から他端に向かって大きくなっているのが好ましい。これにより、正極層10を巻回し易くなり、また、電池として機能しない折り返し部分に正極活電解質を極力設けないことで、軽量化、低コスト化を図ることができる。

【0041】

正極層10は、正極集電体11の両主面に間欠的に形成された複数の正極活物質層12A、12Bを有するが、これに限られない。例えば、図4（a）に示すように、正極層10が、正極集電体11の両主面に連続的に形成された正極活物質層14A、14Bを有していてもよい。また、正極層10は、正極集電体11の一方の主面に連続的に形成された正極活物質層14A（または正極活物質層14B）を有していてもよい。更に、正極層10が、図4（b）に示すように、正極層10の長手方向端部10aにおける正極活物質層14A、14Bの厚み t_4 が、正極層10を構成する正極活物質層14A、14Bの厚み t_3 よりも大きくてもよい。

【0042】

負極層20は、長尺状の負極集電体21と、負極集電体21の両主面に間欠的に形成された複数の負極活物質層22A、22Bとを有している（図2）。本実施形態では、一对の負極活物質層22A、22Bが負極層ユニット20Aを画定し、複数の負極層ユニット20Aが負極層20を構成する。但し、負極層20が、負極集電体21の一方の主面のみに間欠的に形成された複数の負極活物質層22A（または複数の負極活物質層22B）を有していてもよい。また、負極集電体21と負極活物質層22A、22Bが一体となって負極層20を構成していてもよい。

【0043】

負極集電体21は、正極集電体11と同様、導電率が高い少なくとも1つの物質で構成されるのが好ましい。導電性が高い物質としては、例えば、銀（Ag）、パラジウム（Pd）、金（Au）、プラチナ（Pt）、アルミニウム（Al）、銅（Cu）、クロム（Cr）及びニッケル（Ni）の少なくともいずれか一つの金属元素を含む金属又はステンレスなどの合金、あるいはカーボン（C）の非金属が挙げられる。導電性の高さに加えて、製造コストも考慮すると、銅、ニッケルまたはステンレスが好ましい。更に、ステンレスは、正極活物質、負極活物質及び固体電解質と反応し難い。そのため、負極集電体21にステンレスを用いると、全固体電池の内部抵抗を低減することができる。

【0044】

負極集電体21の形状としては、例えば、箔状、板状、メッシュ状、不織布状、発泡状等を挙げることができる。また、負極活物質層22A、22Bとの密着性を高めるために、負極集電体21の表面にカーボンなどが配置されていてもよいし、表面が粗化されていても良い。

【0045】

負極活物質層22Aおよび負極活物質層22Bは、リチウムイオンと電子を授受する負極活物質を含む。負極活物質としては、リチウムイオンを可逆に放出・吸蔵でき、電子輸送が行なえる材料であれば特に限定されず、全固体型リチウムイオン電池の負極層に適用可能な公知の負極活物質を用いることができる。例えば、天然黒鉛、人造黒鉛、樹脂炭、炭素繊維、活性炭、ハードカーボン、ソフトカーボン等の炭素質材料；スズ、スズ合金、シリコン、シリコン合金、ガリウム、ガリウム合金、インジウム、インジウム合金、アルミニウム、アルミニウム合金等を主体とした合金系材料；ポリアセン、ポリアセチレン、ポリピロール等の導電性ポリマー；金属リチウム；リチウムチタン複合酸化物（例えば $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ ）等が挙げられる。これらの負極活物質は、上記材料の1種単独で構成されてもよいし、2種以上で構成されてもよい。

【0046】

負極活物質層22A、22Bは、負極活物質とリチウムイオンの授受をする固体電解質

を含む。固体電解質としては、リチウムイオン伝導性を有するものであれば特に制限は無く、一般的に全固体型リチウムイオン電池に用いられる材料を用いることができる。例えば、硫化物固体電解質材料、酸化物固体電解質材料、リチウム含有塩などの無機固体電解質や、ポリエチレンオキシドなどのポリマー系の固体電解質、リチウム含有塩やリチウムイオン伝導性のイオン液体を含むゲル系の固体電解質等を挙げることができる。固体電解質は、上記材料の1種単独で構成されてもよいし、2種以上で構成されてもよい。

負極活物質層22A、22Bに含まれる固体電解質は、正極活物質層12A、12Bや、後述する固体電解質層に含まれる固体電解質と同様のものでもよいし、異なってもよい。

【0047】

負極活物質層22Bは、導電助剤およびバインダー等を含んでいてもよい。これらの材料としては、特に制限は無いが、例えば上述した正極活物質層12Bに用いられる材料と同様のものを用いることができる。

【0048】

負極層20の厚みは、特に制限されないが、例えば10μm以上1000μm以下である。

【0049】

負極層20は、負極集電体21の両主面に間欠的に形成された複数の負極活物質層22A、22Bを有するが、これに限られない。例えば図4(a)に示すように、負極層20は、負極集電体21の両主面に連続的に形成された負極活物質層23A、23Bを有していてもよい。また、負極層20は、負極集電体21の一方の主面に連続的に形成された負極活物質層23A（または負極活物質層23B）を有していてもよい。

【0050】

本実施形態では、負極層20の長手方向端部が、積層体2の巻回コアを構成するが、これに限られず、正極層10と負極層20が逆位置に配置されて、負極層20の長手方向端部が、積層体2の巻回コアを構成していてもよい。この場合、負極層20の構成は、上述した正極層10と同様の構成とすることができる。

【0051】

負極層20の長手方向端部が積層体2の巻回コアを構成する場合、負極層20の長手方向端部に位置する負極活物質層の厚みを、負極層20の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の厚みよりも大きくすることができる。また、負極層20の長手方向端部に位置する負極活物質層の目付量を、負極層20の長手方向端部以外に位置する負極活物質層の目付量よりも大きくすることができる。これにより、巻回コアを構成する負極層20の長手方向端部の剛性を高めることができる。また、負極層20を巻回し易くなり、また、電池として機能しない折り返し部分に負極活電解質を極力設けないことで、軽量化、低コスト化を図ることができる。

【0052】

積層体2では、正極層10と負極層20とが巻回された状態で、積層体2の積層方向に関して、複数の正極活物質層12と複数の負極活物質層22とが交互に配置されている（図1）。このとき、積層体2の最外層（例えば、最上層および最下層）に位置する電極は、負極活物質層22を有する負極層20であるのが好ましい。

【0053】

正極層10の平面視において、複数の正極活物質層12A、12Bの面積及び形状は同じであるのが好ましい。これにより、積層体2を成形する際に、複数の正極活物質層12A、12Bの端面を揃えて、これらを積層することができる。

【0054】

また、負極層20の平面視において、複数の負極活物質層22A、22Bの面積及び形状は同じであるのが好ましい。これにより、積層体2を成形する際に、複数の負極活物質層22A、22Bの端面を揃えて、これらを積層することができる。

【0055】

10

20

30

40

50

また、正極層 10 の平面視における正極活物質層 12 A, 12 B の面積及び形状は、負極層 20 の平面視における負極活物質層 22 A, 22 B の面積及び形状と同じであってもよい。あるいは、正極層 10 の平面視における正極活物質層 12 A, 12 B の形状が負極層 20 の平面視における負極活物質層 22 A, 22 B の形状と同じであって、正極層 10 の平面視における正極活物質層 12 A, 12 B の面積が負極層 20 の平面視における負極活物質層 22 A, 22 B の面積よりも小さくてもよい。

【0056】

電池用電極群 1 は、正極層 10 と負極層 20 の間に配置された第 1 固体電解質層 30 と、負極層 20 の第 1 固体電解質層 30 とは反対側に配置された第 2 固体電解質層 40 とを備えている。

10

【0057】

第 1 固体電解質層 30 および第 2 固体電解質層 40 は、例えば固体電解質シートで構成されている。固体電解質シートは、例えば長尺状の多孔性基材と、該多孔性基材に保持された固体電解質とを有している。上記多孔性基材の形態としては、特に制限は無いが、例えば、織布、不織布、メッシュクロス、多孔性膜、エキスパンドシート、パンチングシート等が挙げられる。これらの形態のうち、固体電解質の保持力や取扱性の観点から、不織布が好ましい。

【0058】

上記多孔性基材は、絶縁性材料により構成されていることが好ましい。これにより、固体電解質シートの絶縁性を向上させることができる。絶縁性材料としては、例えば、ナイロン、ポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリテトラフルオロエチレン、エチレン-テトラフルオロエチレン共重合体、ポリフッ化ビニリデン、ポリ塩化ビニリデン、ポリ塩化ビニル、ポリウレタン、ビニロン、ポリベンズイミダゾール、ポリイミド、ポリフェニレンサルファイト、ポリエーテルエーテルケトン、セルロース、アクリル樹脂等の樹脂材料；麻、木材パルプ、コットンリントー等の天然繊維、ガラス等が挙げられる。

20

【0059】

上記固体電解質としては、リチウムイオン伝導性および絶縁性を有するものであれば特に制限は無く、一般的に全固体型リチウムイオン電池に用いられる材料を用いることができる。例えば、硫化物固体電解質材料、酸化物固体電解質材料、リチウム含有塩などの無機固体電解質や、ポリエチレンオキシドなどのポリマー系の固体電解質、リチウム含有塩

30

【0060】

第 1 固体電解質層 30 および第 2 固体電解質層 40 は、固体電解質シートに連続的に形成されている。これにより第 1 固体電解質層 30 および第 2 固体電解質層 40 を容易に作製することができる。但し、第 1 固体電解質層 30 および第 2 固体電解質層 40 は、その長手方向に沿って固体電解質シートに間欠的に形成されてもよい。これにより、第 1 固体電解質層 30 および第 2 固体電解質層 40 を巻回し易くなり、また、電池として機能しない折り返し部分に固体電解質を極力設けないことで、軽量化、低コスト化を図ることができる。

40

【0061】

本実施形態の固体電解質シートは、多孔性基材を有しているが、これに限らず、多孔性基材を有さず、固体電解質で構成されてもよい。例えば、PET フィルム等の塗工基材に固体電解質スラリーを塗布し、乾燥、必要に応じて圧延加工を行った後、塗工基材から引きはがすことにより、固体電解質で構成される固体電解質シートを作成することができる。

また、正極層 10 や負極層 20 が対極と向かい合う主面上に、固体電解質スラリーを塗布し、乾燥、必要に応じて圧延加工を行うことで、第 1 固体電解質層 30 および第 2 固体電解質層 40 を形成してもよい。これらの第 1 固体電解質層 30 および第 2 固体電解質層 40

50

0は、正極層10及び負極層20のうちの一方に配設されていてもよいし、両方に配設されていてもよい。

【0062】

また、第1固体電解質層30および第2固体電解質層40は、機械的強度や柔軟性を付与するための粘着剤を含んでいてもよい。

【0063】

図5は、図1の電池用電極群1を備える巻回型電池の製造方法の一例を説明するための斜視図である。

先ず、例えば正極活物質と、固体電解質と、導電助剤と、バインダーとを混合して正極合材を調製し、この正極合材を所定の溶剤に分散させた正極合材スラリーを作製する。次に、長尺状（带状）の正極集電体11に、その長手方向に関して上記と同様の正極合材スラリーを間欠的に塗布して正極層前駆体（グリーンシート）作製した後、溶剤を乾燥させ、ロールプレス機などで圧縮することにより正極活物質層12A、12Bを形成し、正極層ユニット10Aを複数有する正極層10を作製する。

【0064】

上記正極層10の作製工程において、正極層10の長手方向端部10aに位置する正極活物質層12A、12Bの厚みが、正極層10の長手方向端部10a以外に位置する正極活物質層12A、12Bの厚みよりも大きくなるように正極活物質層を形成することができる。また、正極層10の長手方向端部10aに位置する正極活物質層12A、12Bの目付量が、正極層10の長手方向端部10a以外に位置する正極活物質層12A、12Bの目付量よりも大きくなるように正極活物質層を形成することができる。

【0065】

次に、固体電解質を所定の溶剤に分散させた固体電解質スラリーを作製する。そして、带状の多孔性基材に、その長手方向に関して固体電解質スラリーを連続的に塗布して固体電解質層前駆体（グリーンシート）を作製した後、溶剤を乾燥させ、ロールプレス機などで圧縮することにより第1固体電解質層30を作製する。

【0066】

上記第1固体電解質層30の作製工程において、带状の多孔性基材に、その長手方向に関して固体電解質スラリーを間欠的に塗布して固体電解質層前駆体（グリーンシート）を作製してもよい。

【0067】

次いで、例えば負極活物質と、固体電解質と、バインダーとを混合して負極合材を調製し、この負極合材を所定の溶剤に分散させた負極合材スラリーを作製する。そして、長尺状（带状）の負極集電体21に、その長手方向に関して負極合材スラリーを間欠的に塗布して負極層前駆体（グリーンシート）作製した後、溶剤を乾燥させ、ロールプレス機などで圧縮することにより負極活物質層22A、22Bを形成し、負極層ユニット20Aを複数有する負極層20を作製する。

【0068】

更に、第1固体電解質層30と同様、固体電解質を所定の溶剤に分散させた固体電解質スラリーを作製する。そして、带状の多孔性基材に、その長手方向に関して固体電解質スラリーを連続的に塗布して固体電解質層前駆体（グリーンシート）を作製した後、溶剤を乾燥させ、ロールプレス機などで圧縮することにより第2固体電解質層40を作製する。

【0069】

上記第2固体電解質層40の作製工程において、带状の多孔性基材に、その長手方向に関して固体電解質スラリーを間欠的に塗布して固体電解質層前駆体（グリーンシート）を作製してもよい。

【0070】

その後、正極層10、第1固体電解質層30、負極層20および第2固体電解質層40をこの順に積層した状態で、これらを巻回して積層体2を形成する。このとき、長尺状の正極集電体11上に正極活物質層12A、12Bが形成された正極層10と、長尺状の負

極集電体 21 上に負極活物質層 22 A, 22 B が形成された負極層 20 とを、正極層 10 と負極層 20 の巻き始め位置が異なるように、互いに長手方向にずれた状態で積層させる。例えば、正極層 10、第 1 固体電解質層 30、負極層 20 および第 2 固体電解質層 40 を積層する際に、第 1 固体電解質層 30、負極層 20 および第 2 固体電解質層 40 のそれぞれの長手方向端部を基準位置 L に位置させ、正極層 10 の長手方向端部 10 a のみを基準位置 L から延在させる（図 2）。そして、正極層 10 の長手方向端部 10 a を 180 度折り返し、正極層 10 の長手方向端部 10 a を巻回コアとして、正極層 10 および負極層 20 を扁平状に巻回して積層体を形成する。例えば、正極層 10 の長手方向端部 10 a に位置する正極層ユニット 10 A を折り返して、当該正極層ユニット 10 A を巻回コアとすることができる。

10

【0071】

本実施形態では、正極層 10 の長手方向端部 10 a を巻回コアとして、正極層 10 および負極層 20 を扁平状に巻回して積層体を形成するが、これに限られない。正極層 10 の位置と負極層 20 を逆に配置して、負極層 20、第 1 固体電解質層 30、正極層 10 および第 2 固体電解質層 40 をこの順に積層した状態で、これらを巻回して積層体を形成してもよい。この場合、負極層 20 の長手方向端部を巻回コアとして、正極層 10 および負極層 20 を扁平状に巻回して積層体を形成することができる。

【0072】

その場合、負極層 20 の作製工程において、負極層 20 の長手方向端部に位置する負極活物質層 22 A, 22 B の厚みが、負極層 20 の長手方向端部以外に位置する負極活物質層 22 A, 22 B の厚みよりも大きくなるように負極活物質層を形成することができる。また、負極層 20 の長手方向端部に位置する負極活物質層 22 A, 22 B の目付量が、負極層 20 の長手方向端部以外に位置する負極活物質層 22 A, 22 B の目付量よりも大きくなるように負極活物質層を形成することができる。

20

【0073】

その後、プレス成形にて当該積層体を上下方向に押圧して積層体 2 を成形し、これにより積層体 2 で構成される電池用電極群 1 を得る。その後、積層体 2 の正極集電体 11 および負極集電体 21 をそれぞれ不図示の外部電極と接続する。積層体 2 の最上層および最下層に、不図示の保護層が形成されてもよい。そして、積層体 2 をフィルムなどの不図示の外装材に密封状態で収容して、巻回型電池 3 を得る。

30

【0074】

上述したように、本実施形態によれば、正極層 10 の長手方向端部 10 a が積層体 2 の巻回コアを構成するので、巻回コアとしての正極層 10 の長手方向端部 10 a が、従来のセパレータや紙などの部材と比較して高い剛性を有する。よって、積層体 2 のプレス成形時に、正極層 10 の長手方向端部 10 a を中心として上下方向から圧力が加えられることにより、正極層 10 や負極層 20 に掛かる面圧のばらつきや位置ずれが抑制され、巻回型電池 3 の初期性能のばらつきを抑制することができる。また、正極層 10 に掛かる面圧のばらつきや位置ずれが抑制されることにより、正極層 10 おける正極活物質の脱落を抑制することができ、巻回型電池 3 の歩留まりを向上することができる。更に、積層体 2 の巻回コアが、電池として機能する正極層 10 で構成されるので、デッドスペースをなくすことができ、巻回型電池 3 の体積エネルギー密度を向上することができる。

40

【0075】

以上、本発明の実施形態について詳述したが、本発明は上記実施形態に限定されるものではなく、特許請求の範囲内に記載された本発明の要旨の範囲内において、種々の変形・変更が可能である。

【0076】

例えば、上記実施形態では、電池用電極群 1 は、正極層 10 と負極層 20 の間に配置された第 1 固体電解質層 30 と、負極層 20 の第 1 固体電解質層 30 とは反対側に配置された第 2 固体電解質層 40 とを備えるが、これに限られない。電池用電極群 1 が、折り曲げられた状態で正極層 10 の両側に一体で配置されるか、又は折り曲げられた状態で負極層

50

20の両側に一体で配置された長尺状の第3固体電解質層を備えていてもよい。この場合、例えば、長尺状の上記第3固体電解質層を折り曲げて、正極層10の両側に配置するか又は負極層20の両側に配置し、正極層10及び負極層20の一方、上記第3固体電解質層、正極層10及び負極層20の他方および上記第3固体電解質層をこの順に積層した状態で巻回することで、電池用電極群1を製造することができる。

【0077】

また、上記実施形態では、電池用電極群1が巻回型全固体電池に適用されるが、これに限られず、電解液を介して充放電が行われる巻回型液系電池に適用されてもよい。巻回型液系電池としては、例えば、巻回型液系リチウムイオン電池が挙げられる。

【0078】

この場合、図6に示すように、電池用電極群1は、正極層10と負極層20の間に配置された長尺状の第1セパレータ50と、負極層20の第1セパレータ50とは反対側に配置された長尺状の第2セパレータ60とを備えることができる。

【0079】

第1セパレータ50および第2セパレータ60は、絶縁性の薄膜であり、例えばポリエチレン樹脂、ポリプロピレン樹脂あるいはアラミド樹脂等の材料で形成された多孔質体である。また、第1セパレータ50および第2セパレータ60は、多孔質体と、該多孔質体の表面に形成されたコーティング層とを有していてもよい。コーティング層としては、例えば酸化ケイ素(SiO_x)、酸化アルミニウム(Al_2O_3)等で構成されるセラミック、あるいはアラミド樹脂などを用いることができる。

【0080】

本変形例によれば、第1セパレータ50および第2セパレータ60を含む積層体をプレス成形する場合であっても、巻回コアとしての正極層10の長手方向端部10aが従来よりも高い剛性を有するので、正極層10や負極層20に掛かる面圧のばらつきや位置ずれを抑制することができる。よって、巻回型液系電池の初期性能のばらつきを抑制すると共に、巻回型液系電池の歩留まりを向上することができ、加えて巻回型液系電池の体積エネルギー密度を向上することができる。

【0081】

また、上記変形例では、電池用電極群1は、正極層10と負極層20の間に配置された長尺状の第1セパレータ50と、負極層20の第1セパレータ50とは反対側に配置された長尺状の第2セパレータ60とを備えるが、これに限られない。電池用電極群1が、折り曲げられた状態で正極層10の両側に一体で配置されるか、又は折り曲げられた状態で負極層20の両側に一体で配置された第3セパレータを備えていてもよい。この場合、例えば、長尺状の上記第3セパレータを折り曲げて、正極層10の両側に配置するか又は負極層20の両側に配置し、正極層10及び負極層20の一方、上記第3セパレータ、正極層10及び負極層20の他方および上記第3セパレータをこの順に積層した状態で巻回することで、電池用電極群1を製造することができる。

【0082】

また、本発明の電池用電極群は、一次電池や二次電池などの各種電池に適用することができる。また、本発明の巻回型電池は、二輪車、四輪車などの電気車両(EV)に適用することができ、特に電気自動車やハイブリッド車に好適である。

【符号の説明】

【0083】

- 1 電池用電極群
- 2 積層体
- 3 巻回型電池
- 10 正極層
- 10A 正極層ユニット
- 10a 長手方向端部
- 11 正極集電体

10

20

30

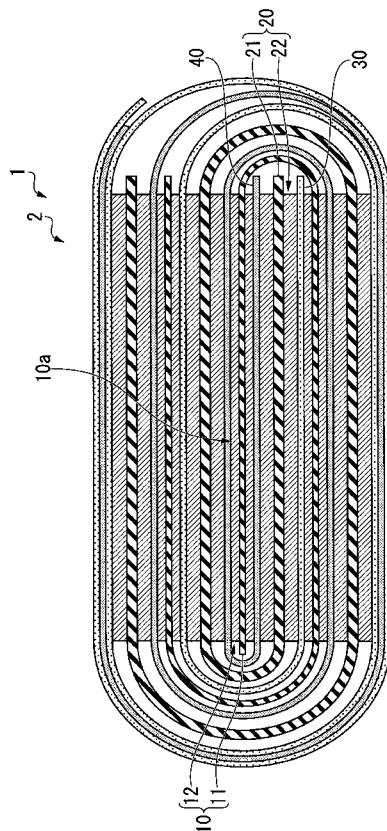
40

50

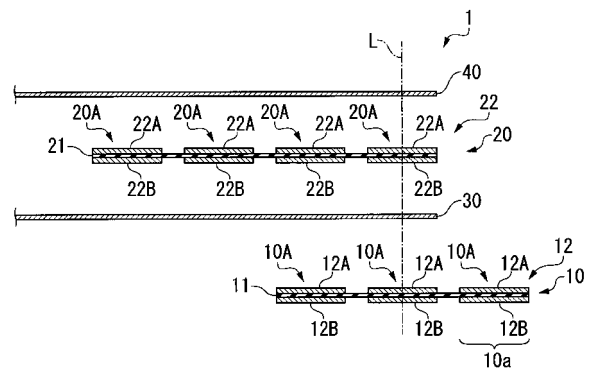
- 1 2 正極活物質層
- 1 2 A 正極活物質層
- 1 2 B 正極活物質層
- 1 3 A 正極活物質層
- 1 3 B 正極活物質層
- 1 4 A 正極活物質層
- 1 4 B 正極活物質層
- 2 0 負極層
- 2 0 A 負極層ユニット
- 2 1 負極集電体
- 2 2 負極活物質層
- 2 2 A 負極活物質層
- 2 2 B 負極活物質層
- 2 3 A 負極活物質層
- 2 3 B 負極活物質層
- 3 0 第1固体電解質層
- 4 0 第2固体電解質層
- 5 0 第1セパレータ
- 6 0 第2セパレータ

10

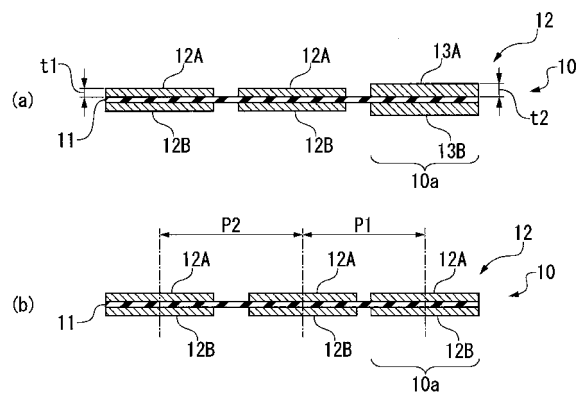
【図 1】



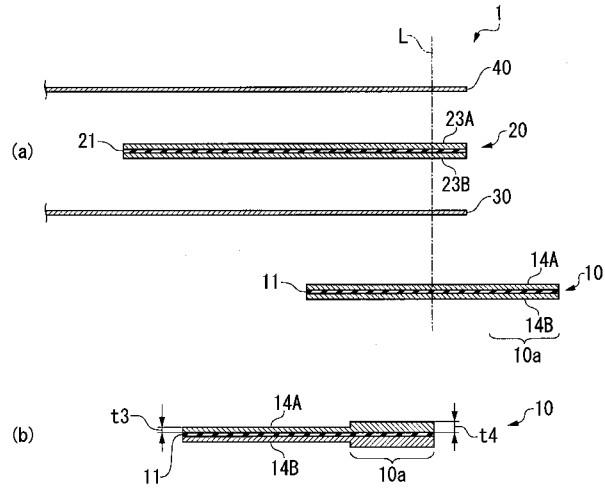
【図 2】



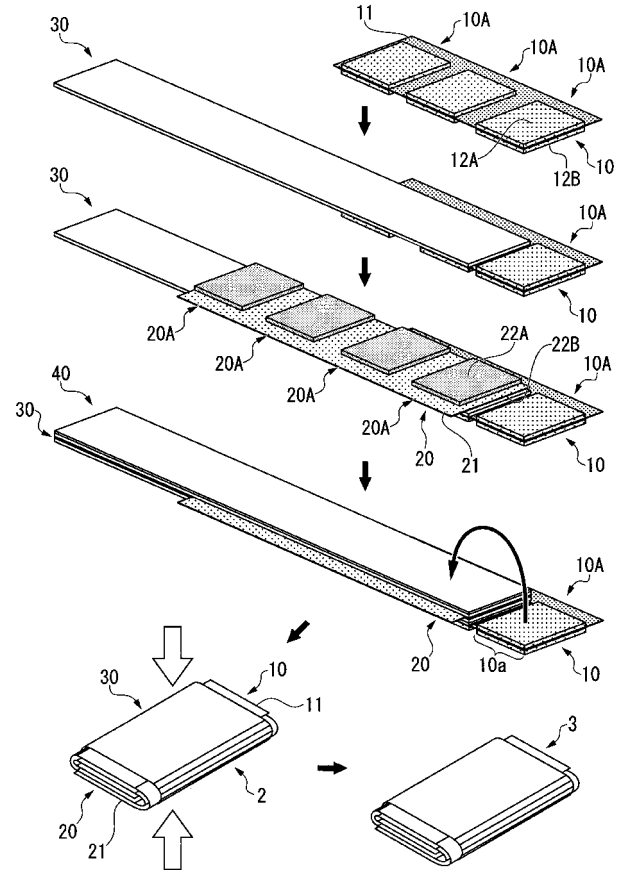
【図 3】



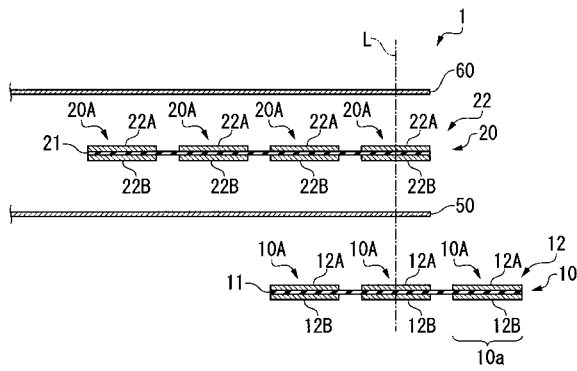
【図 4】



【図 5】



【図 6】



フロントページの続き

(72)発明者 清水 航

埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内

Fターム(参考) 5H028 AA05 BB07 CC08 CC10 CC13

5H029 AJ03 AJ14 AK01 AK03 AK05 AK16 AL03 AL06 AL07 AL08

AL11 AL12 AL16 AM12 AM16 BJ14 CJ07 HJ12