

(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2010-62109

(P2010-62109A)

(43) 公開日 平成22年3月18日(2010.3.18)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H01M 10/04 (2006.01)	H01M 10/04 Z	5H011
H01M 10/0585 (2010.01)	H01M 10/00 117	5H021
H01M 2/16 (2006.01)	H01M 2/16 P	5H028
H01M 2/02 (2006.01)	H01M 2/02 K	5H029
H01M 2/26 (2006.01)	H01M 2/26 A	5H043
審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 9 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2008-229293 (P2008-229293)
 (22) 出願日 平成20年9月8日(2008.9.8)

(71) 出願人 000134257
 NECトーキン株式会社
 宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号
 (74) 代理人 100091971
 弁理士 米澤 明
 (74) 代理人 100088041
 弁理士 阿部 龍吉
 (74) 代理人 100139114
 弁理士 田中 貞嗣
 (74) 代理人 100139103
 弁理士 小山 卓志
 (72) 発明者 大道寺 孝夫
 宮城県仙台市太白区郡山6丁目7番1号
 NECトーキン株式会社内

最終頁に続く

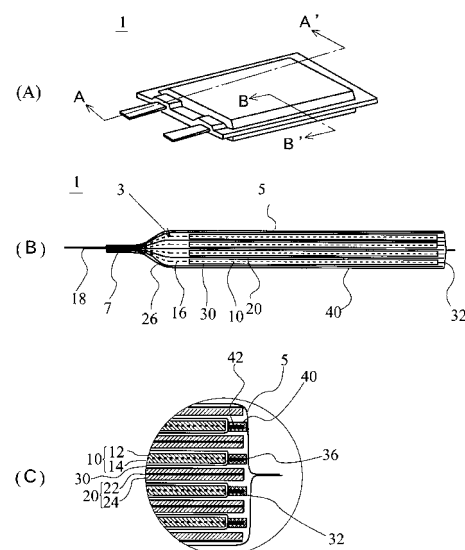
(54) 【発明の名称】 積層型二次電池

(57) 【要約】

【課題】 過充電に対する特性が優れた積層型二次電池を提供する。

【解決手段】 平板状の正極又は平板状の負極のいずれか一方は、正極引出端子又は負極引出端子の取り出し方向をセパレータの機械方向に一致させた袋状セパレータに収納されており、袋状セパレータの外側の両面には、セパレータの機械方向と一致した稜を越えてセパレータの熱収縮応力よりも接着強度が大きく、軟化点がセパレータよりも高い合成樹脂フィルムが貼着されており、袋状セパレータに収納した正極又は負極を、袋状セパレータに収納していない対極とを対向させて積層した電池要素の積層体をフィルム状外装材によって封口した積層型二次電池。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

平板状の正極又は平板状の負極のいずれか一方は、正極引出端子又は負極引出端子の取り出し方向をセパレータの機械方向に一致させた袋状セパレータに収納されており、袋状セパレータの接合部の稜を越えた両面にはセパレータの熱収縮応力よりも接着強度が大きく、軟化点がセパレータよりも高い合成樹脂フィルムが貼着されており、袋状セパレータに収納した正極又は負極を、袋状セパレータに収納していない対極とを対向させて積層した電池要素の積層体をフィルム状外装材によって封口したことを特徴とする積層型二次電池。

【請求項 2】

袋状セパレータの接合部の稜を越えた両面に接合された合成樹脂フィルムはの一部は、袋状セパレータ内部の正極又は負極を積層方向に投影した部分に存在することを特徴とする請求項 1 記載の積層型二次電池。

【請求項 3】

袋状セパレータの外周部と負極の電極引出端子を取り出した稜を除く隣接する 2 辺によって位置合わせして積層したものであることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の積層型二次電池。

【請求項 4】

袋状セパレータの内部には収納する正極又は負極の位置決め部を形成したことを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項記載の積層型二次電池。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、平板状の正極又は負極のいずれか一方を袋状セパレータに収納して対極と積層した電池要素をフィルム状外装材によって封口した積層型二次電池に関するものである。

【背景技術】

【0002】

携帯電話をはじめとした携帯型の電池使用機器には充放電容量が大きなりチウムイオン電池等が広く用いられている。また、電気自動車、電動自転車、電動工具、電力貯蔵等の用途においても、充放電容量が大きく、効率が優れた二次電池が求められている。

【0003】

これらの高出力の電池においては、板状の正極と板状の負極とをセパレータを介して積層した電池が用いられており、正極としては、集電体としての作用をするアルミニウム箔上にリチウム遷移金属複合酸化物粒子をカーボンブラック等の導電性付与材とともに塗布したものが用いられている。また、負極には、集電体として作用する銅箔等の黒鉛等の炭素粒子にカーボンブラック等の導電性付与材とともに塗布したものが用いられている。

板状の正極、負極は、それぞれ集電体用の帯状のアルミニウム箔あるいは銅箔上に電極活物質を所定の部位に塗布した後、導電接続用のタブを接続するために活物質層を形成していない部分を一体に作製している。

【0004】

リチウムイオン電池等の積層型二次電池は、平板状の正極および負極をセパレータを介して積層した電池要素をフィルム状外装材によって封口することが行われている。

フィルム状外装材によって封口した積層型二次電池は、容積エネルギー密度、質量エネルギー密度に優れているものの剛体の外装容器によって封口されていないので、過充電時に電池要素に膨張等が起こると周囲に影響を及ぼす可能性があるため、高容量の積層型二次電池においては、過充電時の対策が重要となっている。

【0005】

積層型のリチウムイオン電池では、平板状の正極を袋状のセパレータに収納して負極と積層することが行われており、袋状のセパレータである故に、枚葉のセパレータを一枚ず

10

20

30

40

50

つ配置する場合に比べて信頼性を高めることが可能となるが、現在の試験規格を超える過酷な条件での過充電の際には、電解液の分解によって発生した気体の圧力、あるいはセパレータの過度の加熱によってセパレータの熱収縮によって、袋状のセパレータが変形して熱融着等によって接合した部分が破断して、正極と負極が接触することがあった。

【 0 0 0 6 】

また、巻回型の電池要素を金属製の外装容器に収納した非水電解液二次電池において、セパレータの熱収縮による外装缶との電氣的接触をセパレータよりも高い絶縁性部材を介挿することによって防止することが提案されており（例えば、特許文献 1 参照）、また、同様に、巻回型の電池要素のセパレータに絶縁性部材を貼着した非水電解液二次電池が提案されている（例えば、特許文献 2 参照）。

10

【 0 0 0 7 】

【特許文献 1】特開 2 0 0 0 - 2 5 1 8 6 6 号公報

【特許文献 2】特開 2 0 0 6 - 1 9 6 2 7 6 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 8 】

本発明は、正極又は負極のいずれか一方を袋状セパレータに収納した平板状の正極と平板の負極とを積層した積層型二次電池において、現在の過充電の対策として要求されている性能を遙かに超える試験条件でも、電池の暴走が生じることがない積層型二次電池を提供することを課題とするものであり、具体的にはリチウムイオン電池の場合には、IEC 規格による 1 0 V - 1 C の条件を遙かに超える試験条件である、3 6 V - 1 C の条件においても暴走が生じることがない積層型二次電池を提供することを課題とするものである。

20

【課題を解決するための手段】

【 0 0 0 9 】

本発明は、平板状の正極又は平板状の負極のいずれか一方は、正極引出端子又は負極引出端子の取り出し方向をセパレータの機械方向に一致させた袋状セパレータに収納されており、袋状セパレータの接合部の稜を越えた両面にはセパレータの熱収縮応力よりも接着強度が大きく、軟化点がセパレータよりも高い合成樹脂フィルムが貼着されており、袋状セパレータに収納した正極又は負極を、袋状セパレータに収納していない対極とを対向させて積層した電池要素の積層体をフィルム状外装材によって封口した積層型二次電池である。

30

袋状セパレータの接合部の稜を越えた両面に接合された合成樹脂フィルムの一部は、袋状セパレータ内部の正極又は負極を積層方向に投影した部分に存在する前記の積層型二次電池である。

また、袋状セパレータの外周部と負極の電極引出端子を取り出した稜を除く隣接する 2 辺によって位置合わせして積層したものである前記の積層型二次電池である。

袋状セパレータの内部には収納する正極又は負極の位置決め部を形成した前記の積層型二次電池である。

【発明の効果】

【 0 0 1 0 】

40

本発明は、正極又は負極のいずれか一方が電極引出端子の取り出し方向をセパレータの機械方向に一致させた袋状セパレータに収納されており、袋状セパレータの外側の両面には、セパレータの機械方向と一致した稜を越えてセパレータの熱収縮応力よりも接着強度が大きな合成樹脂フィルムが貼着された正極又は負極を収納したセパレータと、平板状の対極を積層した電池要素の積層体をフィルム状外装材によって封口したものであるもので、予想を大きく超える電圧の印加による過充電の際に発生した気体の圧力、あるいは加熱によるセパレータの熱収縮応力によって袋状セパレータの接合部の破断を防止することができるので、セパレータの破断による正極と負極の接触による暴走を未然に防止することが可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

50

【 0 0 1 1 】

本発明の積層型二次電池がリチウムイオン電池である場合について説明すると、正極を袋状セパレータに収納して負極と積層した電池要素をフィルム状外装材によって封口した積層型のリチウムイオン電池においては、過充電時の国際的な安全規格として定められている 10 V - 1 C の条件を遙かに超える高電圧、高充電率によって充電した場合には、セパレータのヒューズ機能が作動する前に、電解液の分解によって発生した気体の圧力、あるいはセパレータの熱収縮応力によって袋状セパレータの接合部が破断して、破断部の近傍の正極と負極が直接接触する等の現象が生じて正極と負極とが接触を起こすことがある点に着目したものである。

そこで、セパレータのヒューズ機能が作動して、セパレータのイオンの透過が遮断される前に袋状セパレータの接合部が破断することを防止することによって、想定を超える高電圧と高率の過充電が行われても周囲に影響を及ぼすことがない積層型二次電池を提供することが可能であることを見出したものである。

【 0 0 1 2 】

以下に図面を参照して本発明を説明する。

図 1 は、本発明の積層型二次電池の一実施例を説明する図である。

図 1 (A) は、積層型二次電池を説明する斜視図であり、図 1 (B) は、図 1 (A) の A - A ' 線における切断面を説明する図であり、図 1 (C) は、図 1 (B) の 1 C の部分を拡大して説明する図である。

本発明の積層型二次電池 1 は、リチウムイオン電池を例に挙げて説明しており、矩形状である板状の正極と、矩形状である板状の負極から構成されている。

積層型二次電池 1 は、電池要素 3 がフィルム状外装材 5 によって封口されており、電池要素 3 は、矩形の板状体状の正極 10 を収納した袋状セパレータ 30 と矩形の板状体状の負極 20 が袋状セパレータ 30 を介して積層されている。

正極 10 は正極集電体 12 上に正極活物質層 14 が形成されており、正極に結合した正極引出端子 16 の複数個が相互に接合された後に正極端子 18 に結合して封口部 7 を介して外部へ取り出されている。同様に、負極 20 は負極集電体 22 上に負極活物質層 24 が形成されており、負極に結合した負極引出端子 26 の複数個が相互に接合されて負極端子 (図示せず) から外部へ取り出されている。

【 0 0 1 3 】

袋状セパレータ 30 は正極引出端子 16 が位置する稜の部分を除き、熱融着等によって接合部 32 が形成されている。図 1 (C) に接合部を拡大して説明するように、正極引出端子を取り出した方向と直角方向に位置する幅方向の接合部 32 には、合成樹脂製フィルム 40 が袋状セパレータの稜 36 を越えて接合部 32 の外面に粘着層 42 によって接合されている。

前記合成樹脂製フィルム 40 は、セパレータの熱収縮応力よりも大きな接着強度で貼着されている。また、前記合成樹脂フィルム 40 はセパレータの軟化温度以下では軟化することがない耐熱性が大きなものを用いることができる。

【 0 0 1 4 】

また、一般にセパレータ原反は、セパレータ用材料を延伸と同時に又は延伸とは別の工程において所定の多孔度の開孔を形成する工程を経て製造されている。したがって、製造時の機械方向すなわち M D に繊維が配向しており、一般には機械方向に巻き取られたものが提供されている。

したがって、セパレータ原反から袋状セパレータを製造する際には、機械方向に巻き取られており、袋状セパレータを製造する際には、一般に矩形状の電極の長さ方向を機械方向に一致させたものが用いられている。

【 0 0 1 5 】

その結果、セパレータが熱収縮を起こす場合には、機械方向に対して縦方向すなわち T D 方向に熱収縮応力が発生して T D 方向が収縮を起こすのに対して、M D 方向の収縮応力は小さいものである。

10

20

30

40

50

したがって、図 1 で示す積層型二次電池にあっては、袋状セパレータの接合部のうち M D 方向の端部に位置する M D 端部接合部 3 2 M は、合成樹脂フィルムを貼着しなくても実質的に特性には影響を及ぼすことがない。

【 0 0 1 6 】

図 2 は、本発明の積層型二次電池の製造工程を説明する図である。

図 1 (A) に示すように、袋状セパレータ 3 0 は、セパレータ原反を所定の大きさに裁断して、正極を収納する部分を除く三方を熱融着等によって接合部 3 2 を形成することによって製造する。

セパレータの繊維方向である機械方向すなわち M D と機械方向に直角方向 T D を有しており、ロール状の原反から機械方向に引出して所定の大きさに裁断した後に、長方形状の正極の長辺状の辺に沿って機械方向が位置するように配置した後に接合部 3 2 において接合されて袋状とされる。

【 0 0 1 7 】

また、セパレータを接合して袋状セパレータを作製する際には、袋状セパレータに正極を収納した際に正極がセパレータの外周部から所定の距離の場所に位置するように、袋状セパレータの内部には正極を位置決めする位置決め部 3 4 を同時に形成しても良い。

また、位置決め部 3 4 の形成に代えて、接合部 3 2 の袋状セパレータ 3 0 の内面に位置する部分 3 2 A を位置決め部としても良い。

【 0 0 1 8 】

次いで、図 2 (B) に示すように、袋状セパレータの接合部 3 2 に合成樹脂製フィルム 4 0 を袋状セパレータの接合部 3 2 の稜 3 6 を越えて貼着する。図 2 (B) において、A - A ' 線で切断した部分を拡大した図を図 2 (D) に示す。

袋状セパレータの 3 0 の接合部 3 2 の稜 3 6 を越えて接合部 3 2 の外面の両面には、合成樹脂製フィルム 4 0 が貼着されている。

合成樹脂製フィルム 4 0 としては、ポリプロピレンフィルム等のセパレータに比べて軟化点が高く、またセパレータの熱収縮応力によっては変形することがないものを用いることができる。具体的には、ポリスチレン、ポリイミド等のフィルムを挙げることができる。また、合成樹脂製フィルム 4 0 に形成する粘着層 4 2 には、アクリル系粘着剤等の耐薬品性が良好なものを用いることができる。

【 0 0 1 9 】

次いで、図 2 (C) に示すように、袋状セパレータ 3 0 の内部に正極 1 0 を収納する。正極は袋状セパレータの内部に設けた位置決め部 3 4 あるいは位置決め部の代わりの作用をする袋状セパレータ 3 0 の接合部内面 3 2 A によって正極 1 0 が位置決めされる。その結果、正極を収納した袋状セパレータの正極の積層面に平行な面に投影した外形の幅が X 、高さが Y であって、外形から所定の距離を隔てた位置に正極を配置した袋状セパレータが得られる。

【 0 0 2 0 】

次いで、図 2 (F) において、図 2 (E) に示す幅が X 、高さが Y である負極と、図 2 (C) で示す正極を収納した袋状セパレータとの所定個数を位置決め治具 5 0 によって隣接する 2 辺を位置決めして交互に積層し、正極及び負極がずれないように固定した後に、各正極の正極引出端子 1 6 同士及び各負極の負極引出端子 2 6 同士を接合する。

更に、正極引出端子には正極端子を接合し、負極引出端子には負極端子を接合して電池要素を作製した後に、フィルム状外装材によって封口して積層型二次電池を作製することができる。

以上の説明では、積層型二次電池がリチウムイオン電池である場合について説明を行った。すなわち、負極の面積を対向する正極よりも大きくする電池を例に挙げて述べたものである。これに対して、正極を負極の面積よりも大きくする場合には、袋状セパレータに負極を収納することによって同様に作製することができる。

【 0 0 2 1 】

図 3 は、本発明の他の実施態様を説明する図である。

図 3 (A) は、積層型二次電池を説明する斜視図であり、図 3 (B) は、図 3 (A) の A - A ' 線における切断面を説明する図であり、図 3 (C) は、図 3 (B) の 1 C の部分を拡大して説明する図である。

図 3 に示した積層型二次電池は図 1 で説明した積層型二次電池と同様の構成を有しており、正極引出端子を取り出した方向と直角方向に位置する幅方向の接合部 3 2 に接合した合成樹脂製フィルム 4 0 の接合位置が図 1 に示した積層型二次電池とは異なっている。

すなわち、積層型二次電池 1 は、電池要素 3 がフィルム状外装材 5 によって封口されており、電池要素 3 は、矩形の板状体状の正極 1 0 を収納した袋状セパレータ 3 0 と矩形の板状体状の負極 2 0 が袋状セパレータ 3 0 を介して積層されている。

正極 1 0 は正極集電体 1 2 上に正極活物質層 1 4 が形成されており、正極に結合した正極引出端子 1 6 の複数個が相互に接合された後に正極端子 1 8 に結合して封口部 7 を介して外部へ取り出されている。同様に、負極 2 0 は負極集電体 2 2 上に負極活物質層 2 4 が形成されており、負極に結合した負極引出端子 2 6 の複数個が相互に接合されて負極端子 (図示せず) から外部へ取り出されている。

【 0 0 2 2 】

袋状セパレータ 3 0 は正極引出端子 1 6 が位置する稜の部分を除き、熱融着等によって接合部 3 2 が形成されている。図 3 (C) に接合部を拡大して説明するように、正極引出端子を取り出した方向と直角方向に位置する幅方向の接合部 3 2 には、合成樹脂製フィルム 4 0 が粘着層 4 2 によって袋状セパレータの稜 3 6 を越えて接合部 3 2 の外面にセパレータの熱収縮応力よりも大きな接着強度で接合されている。

また、接合された合成樹脂製フィルム 4 0 の両端部 4 4 , 4 6 は、正極を積層方向に投影した投影部は袋状セパレータと接合されているので、正極の端部の積層方向への投影部のセパレータは、合成樹脂フィルムによって補強されることとなる。

その結果、セパレータが熱収縮によって正極面と平行方向に引っ張られた際にも、セパレータが正極の角部との接触によって裂けたり穴が生じることを防止することができるので、合成樹脂製フィルムの接合による効果をより大きくすることができる。

【 実施例 】

【 0 0 2 3 】

実施例 1

リチウムマンガン複合酸化物 6 3 質量部、個数平均粒径 $7 \mu\text{m}$ のアセチレンブラック 4 . 2 質量部、ポリフッ化ビニリデン 2 . 8 質量部、N - メチル - 2 - ピロリドン 5 0 質量部からなるスラリーを調製した。

集電体用の厚さ $20 \mu\text{m}$ 、幅 150mm のアルミニウム箔の全幅に、塗布していない長さを 20mm として、塗布長さ 130mm で間欠的に塗布し、乾燥して押圧して厚さ $180 \mu\text{m}$ の正極活物質層を形成した。

塗布していない部分に電極引出端子が幅 13mm 、長さ 17mm で形成されるようにして塗布幅 65mm 、塗布長さ 125mm の正極を作製した。

次いで正極を厚さ $25 \mu\text{m}$ のポリプロピレン製セパレータで覆い、正極の端部の 1.5mm を熱融着によって接合した。

次いで、アクリル系粘着層を有する厚さ $30 \mu\text{m}$ のポリプロピレン製テープを用いてセパレータの機械方向の端部を越えて、正極のセパレータへの積層方向の投影部の端部から 1mm までの長さに接着した。

【 0 0 2 4 】

次いで、袋状セパレータで被覆した 1 4 個の正極と、1 5 個の負極をとを積層して、正極引出および負極引出端子を接合した後に、フィルム状外装材によって作製した袋に収納し、1 M 濃度の LiPF_6 を含有したエチレンカーボネートとジエチルカーボネートとの混合溶媒を電解液として注液した後に封口して 1 0 個のリチウムイオン電池を作製した。

得られた 1 0 個のリチウムイオン電池を 1 C の電流で 3.6V に達するまで過充電状態に通電したが発煙は生じたりチウムイオン電池はなかった。

10

20

30

40

50

【 0 0 2 5 】

比較例 1

セパレータの接合部を越えて粘着層を有する合成樹脂製テープを接合しない点を除き実施例 1 と同様に 1 0 個のリチウムイオン電池を作製して同様に過充電試験を行ったところ、1 C の電流で 2 5 V に達すると 4 のリチウムイオン電池に発煙を生じた。

【産業上の利用可能性】

【 0 0 2 6 】

平板状の正極、又は負極のいずれか一方を正極引出端子の取り出し方向をセパレータの機械方向に一致させた袋状セパレータに収納した積層型二次電池において、袋状セパレータの外側の両面の接合部には、セパレータの機械方向に延びる稜を越えてセパレータの熱収縮応力よりも接着強度が大きく、セパレータの軟化温度よりも軟化点が高い合成樹脂フィルムが貼着された正極を収納したセパレータと、平板状の負極を積層した電池要素の積層体をフィルム状外装材によって封口したので、袋状セパレータは、想定を超える高い電圧によって高充電率の充電が行われた場合にも、電池の暴走を防止する安全性能に優れた積層型二次電池を提供することができる。

10

【図面の簡単な説明】

【 0 0 2 7 】

【図 1】図 1 は、本発明の積層型二次電池の一実施例を説明する図である。

【図 2】図 2 は、本発明の積層型二次電池の製造工程を説明する図である。

【図 3】図 3 は、本発明の積層型二次電池の他の実施例を説明する図である。

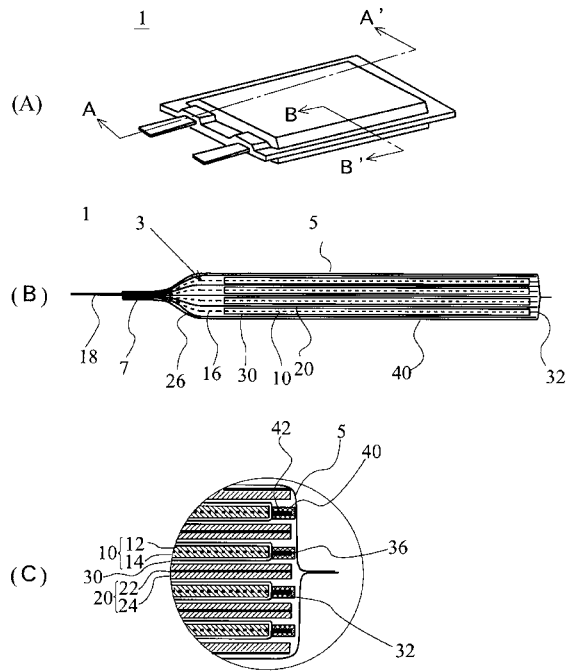
20

【符号の説明】

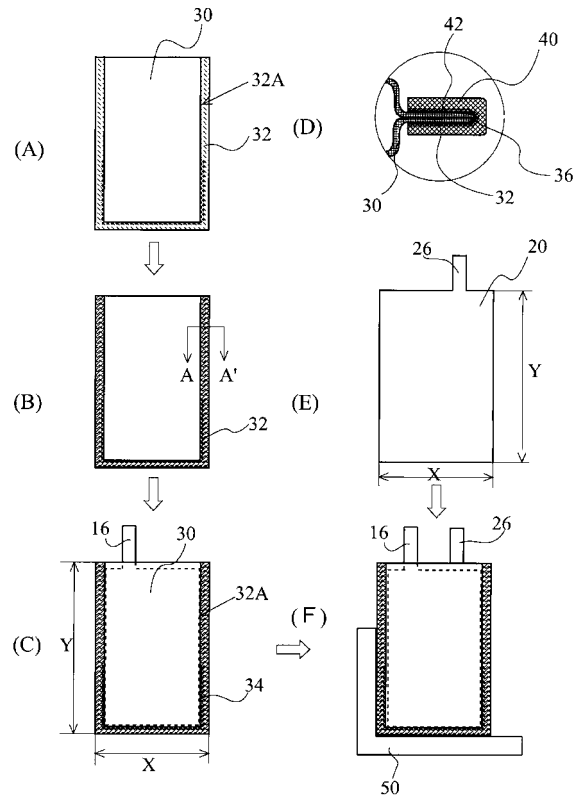
【 0 0 2 8 】

1 ... 積層型二次電池、3 ... 電池要素、5 ... フィルム状外装材、7 ... 封口部、1 0 ... 正極、1 2 ... 正極集電体、1 4 ... 正極活物質層、1 6 ... 正極引出端子、1 8 ... 正極端子、2 0 ... 負極、2 2 ... 負極集電体、2 4 ... 負極活物質層、2 6 ... 負極引出端子、3 0 ... 袋状セパレータ、3 2 ... 接合部、3 2 A ... 接合部内面、3 2 M ... M D 端部接合部、3 4 ... 位置決め部、3 6 ... 袋状セパレータの稜、4 0 ... 合成樹脂製フィルム、4 2 ... 粘着層、4 4 , 4 6 ... 両端部、5 0 ... 位置決め治具

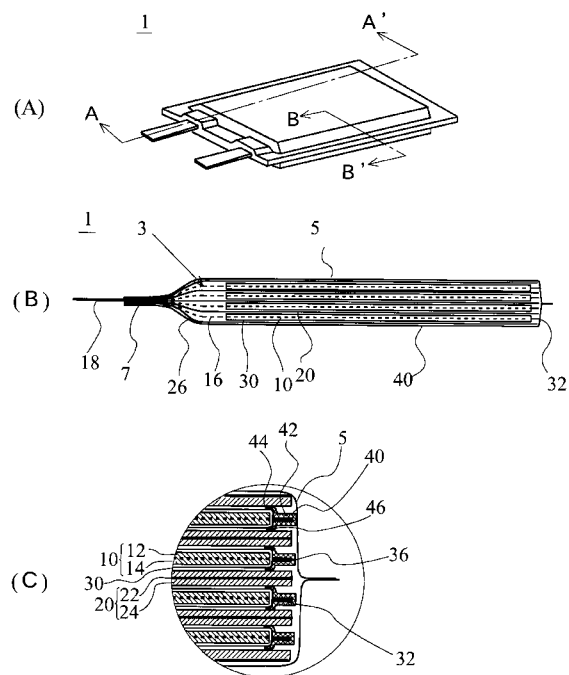
【図 1】



【図 2】



【図 3】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I テーマコード(参考)
H 0 1 M 2/18 (2006.01) H 0 1 M 2/18 Z

(72)発明者 座間 浩一

宮城県仙台市太白区郡山六丁目7番1号 N E C トーキン株式会社内

F ターム(参考) 5H011 AA13 BB04 BB05
5H021 AA06 BB11 CC18 EE02 HH06 HH10
5H028 AA08 BB01 BB03 CC02 EE06 HH00
5H029 AJ12 AK03 AM03 AM05 AM07 BJ04 CJ05 DJ04 DJ05 EJ01
EJ04 EJ12 HJ00 HJ12
5H043 AA04 BA11 BA19 CA08 CA13 DA02 DA09 DA13 EA08 EA16
EA22 EA32 HA11E JA13D JA13E KA09D KA09E