

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2021年9月23日(23.09.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/186716 A1

(51) 国際特許分類:
H01M 4/13 (2010.01) *H01M 10/052* (2010.01)
H01M 4/485 (2010.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/012460

(22) 国際出願日: 2020年3月19日(19.03.2020)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(71) 出願人: 株式会社 東芝 (**KABUSHIKI KAISHA TOSHIBA**) [JP/JP]; 〒1050023 東京都港区芝浦一丁目1番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 菊地 佑磨 (**KIKUCHI, Yuma**); 〒1050023 東京都港区芝浦一丁目1番1号 株式会社東芝内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 蔵田 昌俊, 外 (**KURATA, Masatoshi et al.**); 〒1050014 東京都港区芝三丁目2 3 番 1

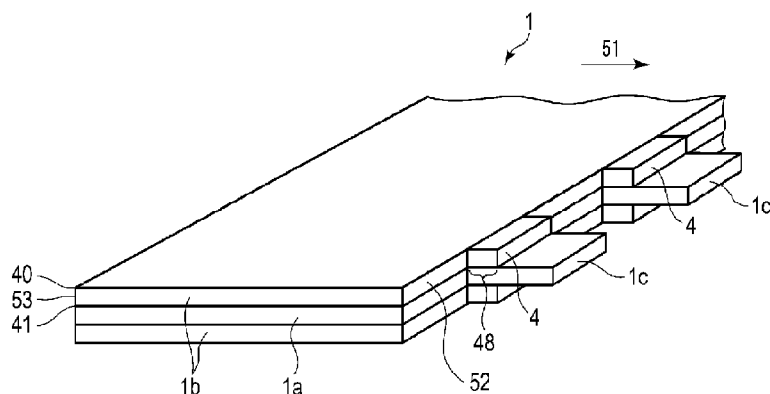
号 セレスティン芝三井ビルディング 1 1 階
鈴榮特許総合事務所内 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM,

(54) **Title:** ELECTRODE, MULTILAYER BODY AND SECONDARY BATTERY

(54) 発明の名称: 電極、積層体及び二次電池



(57) **Abstract:** One embodiment of the present invention provides an electrode which comprises: a first current collector; a first current collection tab that extends in a first direction from at least a part of a first lateral surface of the first current collector; a first active material-containing layer; and a first insulating layer that contains an inorganic material. The back surface of the first active material-containing layer is supported by at least an edge of the front surface and/or the back surface of the first current collector, said edge being adjacent to the first lateral surface. The first active material-containing layer comprises a first end face that is adjacent to the first current collection tab. The first insulating layer covers at least a part of the first end face of the first active material-containing layer and portions of the front surface and the back surface of the first current collection tab, said portions being adjacent to the first end face.

ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

- 一 国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：実施形態によれば、第1の集電体と、第1の集電体の第1側面の少なくとも一部から第1方向に延出した第1の集電タブと、第1の活物質含有層と、無機材料を含む第1の絶縁層とを含む電極が提供される。第1の活物質含有層は、裏面が、第1の集電体の表面及び／又は裏面のうちの少なくとも第1側面と隣接する端部に担持される。第1の活物質含有層は、第1の集電タブと隣接する第1端面を含む。第1の絶縁層が、少なくとも、第1の活物質含有層の第1端面の少なくとも一部と、第1の集電タブの表面及び裏面のうちの第1端面と隣接する部分とを被覆している。

明 細 書

発明の名称：電極、積層体及び二次電池

技術分野

[0001] 本発明の実施形態は、電極、積層体及び二次電池に関する。

背景技術

[0002] リチウム二次電池等の二次電池においては、正極と負極との接触を回避するために正極と負極の間に多孔質のセパレータが配置されている。セパレータには、正極および負極とは別個の自立膜が使用されている。この一例として、ポリオレフィン系樹脂製微多孔膜が挙げられる。こうしたセパレータは、例えば、ポリオレフィン系樹脂組成物を含む溶融物をシート状に押出成形し、ポリオレフィン系樹脂以外の物質を抽出除去した後、そのシートを延伸することによって製造される。

[0003] 電池の体積エネルギー密度を向上させるためには、セパレータは薄いことが望ましい。これは、正極及び負極は、その間にセパレータを介在させつつ、積層または捲回されているので、セパレータが厚いと、電池の単位容積あたりに収納可能な正極及び負極の層数が制限されてしまうためである。しかしながら、樹脂フィルム製のセパレータは、電池の作製時に破断しないよう機械的強度を有する必要があるため、ある程度を超えて薄くすることが難しい。セパレータを薄くすると、正極又は負極が有する集電体または集電タブの端面に存在するバリが、セパレータを突き破りやすくなるという問題がある。電極集電体のバリがセパレータを突き破ると、それが対極と接触して短絡を生じるため、結果として高容量な電池が得られない。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：日本国特開2017-188371号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 実施形態によれば、高容量化の妨げになる内部短絡の問題が改善された電極、該電極を含む積層体、及び、該積層体を含む二次電池が提供される。

課題を解決するための手段

[0006] 実施形態によれば、表面及び裏面と、表面及び裏面と交差する第1側面とを有する第1の集電体と、第1の集電体の第1側面の少なくとも一部から第1方向に延出した第1の集電タブと、第1の活物質含有層と、無機材料を含む第1の絶縁層とを含む電極が提供される。第1の活物質含有層は、裏面が、第1の集電体の表面及び／又は裏面のうちの少なくとも第1側面と隣接する端部に担持される。第1の活物質含有層は、第1の集電タブと隣接する第1端面を含む。第1の絶縁層が、少なくとも、第1の活物質含有層の第1端面の少なくとも一部と、第1の集電タブの表面及び裏面のうちの第1端面と隣接する部分とを被覆している。

[0007] 他の実施形態によれば、実施形態の電極を含む積層体が提供される。

[0008] 他の実施形態によれば、実施形態の積層体を含む二次電池が提供される。

図面の簡単な説明

[0009] [図1]実施形態の積層体の一例を示す断面図。

[図2]図1に示す積層体を含む第1の電極を示す斜視図。

[図3]図2に示す第1の電極を示す平面図。

[図4]図1に示す積層体を含む第2の電極の第2の絶縁層で被覆される前の状態を示す平面図。

[図5]図4に示す第2の電極が第2の絶縁層で被覆されている状態を示す斜視図。

[図6]実施形態の積層体の別の例を示す断面図。

[図7]実施形態の積層体の別の例を示す斜視図。

[図8]実施形態の積層体の別の例を示す断面図。

[図9]実施形態の積層体の別の例を示す断面図。

[図10]実施形態の積層体の別の例を示す断面図。

[図11]実施形態の積層体の別の例を示す断面図。

[図12]第1の電極の別の例を示す平面図。

[図13]図12に示す第1の電極の斜視図。

[図14]第2の電極の別の例を示す平面図。

[図15]図14に示す第2の電極の第2の絶縁層で被覆された状態を示す斜視図。

[図16]第1の電極の別の例を示す斜視図。

[図17]実施形態の積層体の別の例を示す断面図。

[図18]実施形態の積層体の製造方法における一工程の概略図。

[図19]実施形態の積層体の製造方法における一工程の概略図。

[図20]実施形態の二次電池の一例を示す、部分切欠き斜視図。

[図21]実施形態の二次電池の別の例の分解図。

[図22]実施形態の積層体の製造方法における一工程の概略図。

[図23]実施形態の積層体の製造方法における一工程の概略図。

発明を実施するための形態

[0010] (第1の実施形態及び第2の実施形態)

第1の実施形態に係る電極、及び、第2の実施形態に係る積層体を、図面を参照して説明する。

[0011] 図1は、実施形態の積層体の一例を示す断面図である。図1の断面図は、積層体100を集電タブの延出方向である第一方向に切断した断面図である。図1に示す積層体100は、第1の電極1、第2の電極2及びセパレータ3を含む。第1の電極1は、図1及び図2に示す通り、第1の集電体1a、第1の活物質含有層1b、及び第1の集電タブ1cを含む。第1の実施形態に係る電極は、例えば、第1の電極1である。第1の活物質含有層1bは、第1の表面40及び第1の裏面41を有する。第1の集電タブ1cは、第1の集電体1aの一側面（第1側面）の一部または全体から第1方向51に延出したものである。図2と図3の場合、第1の集電タブ1cは、第1の集電体1aの一側面（第1側面）の複数個所から突出した複数の帯状部である。第1の集電体1aは、表面及び裏面を有する導電性のシートである。第1の

集電体 1 a の一方の主面が表面であり、他方の主面が裏面である。第 1 の集電体 1 a の 4 つの側面それぞれが、表面及び裏面と交差（例えば直交）する。

[0012] 第 1 の活物質含有層 1 b は、第 1 の集電体 1 a の表面及び／又は裏面のうちの少なくとも第 1 側面と隣接する端部を含むように保持されている。具体的には、第 1 の活物質含有層 1 b は、第 1 の集電体 1 a の表面及び／又は裏面のうち、前述の端部に加え、少なくとも反対極と対向する部分に保持されている。好ましい形態は、第 1 の活物質含有層 1 b が第 1 の集電体 1 a の表面の全面及び／又は裏面の全面に保持されているものである。この形態を有する第 1 の電極を用いて電池を作製する場合に、或る容積を有する外装部材内の単位容積当たりの第 1 の活物質含有層 1 b の容積を高めることができる。即ち、電池の体積エネルギー密度を高めることができる。第 1 の集電タブ 1 c の表面及び裏面のそれぞれにおいて、第 1 の活物質含有層 1 b は担持されていない。第 1 の活物質含有層 1 b が有する第 1 の表面 4 0 及び第 1 の裏面 4 1 のうち、第 1 の集電体 1 a と接している面は第 1 の裏面 4 1 である。

[0013] 第 1 の活物質含有層 1 b は、互いに向き合う二組の端面を有する。そのうちの一組の端面は、第 1 方向 5 1 に対して垂直である。この一組の端面のうちの一つの端面が、第 1 の集電タブ 1 c と隣接する第 1 端面 5 2 である。第 1 端面 5 2 は、第 1 方向 5 1 において第 2 端面 5 3 と向き合っている。

[0014] 図 2 及び図 3 に示す通り、第 1 の電極 1 は、無機材料を含む第 1 の絶縁層 4 を含む。図 2 に示しているように、第 1 の絶縁層 4 は、少なくとも、第 1 の活物質含有層 1 b の第 1 端面 5 2 のうち第 1 の集電タブ 1 c と隣接する部分と、第 1 の集電タブ 1 c の表面及び裏面のうちの第 1 端面 5 2 と隣接する部分 4 8 とを被覆している。第 1 の絶縁層 4 は、複数の第 1 の集電タブ 1 c のそれぞれについて、その表面及び裏面上に形成されている。

[0015] 第 2 の電極 2 は、図 5 に示す通り、第 2 の集電体 2 a、第 2 の活物質含有層 2 b 及び、第 2 の集電タブ 2 c を含む。第 2 の活物質含有層 2 b は第 2 の表面 4 2 及び第 2 の裏面 4 3 を有する。第 2 の集電タブ 2 c は、第 2 の集電

体 2 a から第 2 方向 5 4 に延出したものである。第 2 方向 5 4 は、第 1 方向 5 1 と略同一の方向であってもよく、第 1 方向 5 1 と反対方向であってもよい。例えば、図 1 に示す積層体 1 0 0 では、第 1 の電極 1 が有する第 1 の集電タブ 1 c が延出している方向と、第 2 の電極 2 が有する第 2 の集電タブ 2 c が延出している方向とは、互いに反対方向である。後述する図 7 及び図 1 7 では、第 1 の電極 1 が有する第 1 の集電タブ 1 c と、第 2 の電極 2 が有する第 2 の集電タブ 2 c とが同一方向に沿って延出している場合を示している。

[0016] 図 4 に示す通り、第 2 の集電タブ 2 c は、第 2 の集電体 2 a の一側面の複数個所から突出した複数の帯状部でありうる。第 2 の集電体 2 a は、表面及び裏面を有する導電性のシートである。第 2 の集電体 2 a の一方の主面が表面であり、他方の主面が裏面である。

[0017] 第 2 の集電体 2 a は、互いに向き合う二組の端面を有する。そのうちの二組の端面は、第 2 方向 5 4 に対して垂直である。そのうちの一つの端面が、第 2 の集電タブ 2 c が延出している側に位置する端面 4 4 である。端面 4 4 は、第 2 方向 5 4 において端面 4 5 と向き合っている。端面 4 4 及び 4 5 を含め、第 2 の集電体 2 a の 4 つの側面それぞれが、第 2 の集電体 2 a の表面及び裏面と交差(例えば直交)する。

[0018] 第 2 の活物質含有層 2 b は、第 2 の集電体 2 a の表面及び裏面のそれぞれに保持されている。第 2 の集電タブ 2 c の表面及び裏面のそれぞれにおいて、第 2 の活物質含有層 2 b は担持されていない。第 2 の活物質含有層 2 b の第 2 の表面 4 2 及び第 2 の裏面 4 3 のうち、第 2 の集電体 2 a と接している面が第 2 の裏面 4 3 である。第 2 の活物質含有層 2 b は、互いに向き合う二組の端面を有する。そのうちの二組の端面は、第 2 方向 5 4 に対して垂直である。この二組の端面のうちの二つの端面が、第 2 の集電タブ 2 c と隣接する第 1 端面 5 5 である。第 1 端面 5 5 は、第 2 方向 5 4 において、第 2 端面 5 6 と向き合っている。

[0019] 図 1 に示すように、セパレータ 3 は、無機材料を含む第 1 の絶縁層 4 と、

有機繊維を含む第2の絶縁層5とを含む。二つの第1の活物質含有層1bそれぞれについて、主面に対して交差（例えば直交）する四側面のうちの第1端面52の集電タブ1cと隣接する部分が第1の絶縁層4で被覆されている。図2に示すように、第1の絶縁層4は、第1の活物質含有層1bの第1端面52と隣接する部分48を被覆する。また、図1に示すように、第1の絶縁層4は、第2の電極2の第2の集電タブ2cが延出している側の反対側に位置する端面45に近い位置にある。第2の集電体2aが有する端面45は、製造工程において不可避免的に形成されるバリを有していることがある。このバリが第1の集電タブ1cと接触すると内部短絡を生じてしまうが、第1の電極1が第1の絶縁層4を備えているため、第1の集電タブ1cと、第2の集電体2aが有する端面45とが接触することによる内部短絡を低減することができる。第1の絶縁層4が、第1の活物質含有層1b及び第1の集電タブ1cにどのようにして固定されているかは特に限定されるものではないが、例えば、接着、熱融着が挙げられる。

[0020] 一方、第2の絶縁層5は、図5に示す通り、第2の活物質含有層2bそれぞれの第2の表面42と、第2の表面42に交差（例えば直交）する四側面と、第2の集電タブ2cの表面及び裏面における第2の活物質含有層2bの端面55と隣接する部分46とを被覆している。第2の活物質含有層2bは、第2の絶縁層5を介して第1の活物質含有層1bと対向している。

[0021] 第2の絶縁層5は、図5に示すように、第2の電極2に一体化されていても良いが、これに限られるものではない。例えば、第2の絶縁層5は、後述する図10及び図11に示すように、第1の電極1に一体化されていても良い。第2の絶縁層5が、第2の活物質含有層2bにどのように一体化されているかは特に限定されるものではないが、例えば、第2の絶縁層中の有機繊維が第2の活物質含有層の表面にめり込む、あるいははまり込む状態が挙げられる。

[0022] 図6は、他の例に係る積層体を示す断面図である。図6では、第1の電極1が含む第1の絶縁層4が、第2の活物質含有層2bを介して第2の集電体

2 aと向き合う第1部分4 aと、第2の集電体2 aと向き合わない第2部分4 bとを含む。第1の絶縁層4が含む第2部分4 bは、例えば、第1の集電タブ1 cが延出する第1方向5 1に向かって、第2の集電体2 aの端面4 5の位置よりも突出している。この場合、第2の集電体2 aの端面4 5がバリを有していたとしても、バリが第1の電極1の第1の集電タブ1 cに接触することをより抑制することができる。それ故、図6に示す積層体1 0 0によると、内部短絡の発生を抑えることができ、高容量な電池を提供することができる。

[0023] 図7は、実施形態に係る積層体の他の例を模式的に示す斜視図である。積層体1 0 0は、第1の電極1と、第2の電極2とを含む。第1の電極1は、図2及び図3を参照しながら説明した長尺の電極である。第2の電極2は、図4及び図5を参照しながら説明した長尺の電極である。積層体1 0 0は、第2の電極2が外周に位置するようにして、第1の電極1及び第2の電極2が捲回されてなる。第1の電極1が有する複数の第1の集電タブ1 cと、第2の電極2が有する複数の第2の集電タブ2 cとは、同一方向に沿って延出している。図7に示しているように、第1の電極1と、第2の電極2とは、それらが有する複数の集電タブが重ならないようにして積層されている。なお、積層体1 0 0において、複数の第1の集電タブ1 cは互いに重ね合わされて溶接等により互いに電氣的に接続されている。また、複数の第2の集電タブ2 cについても、互いに重ね合わされて溶接等により互いに電氣的に接続されている。第2の電極2には、第2の絶縁層5が一体化されており、第2の絶縁層5がセパレータとして機能する。更に、以下に説明するように、第1の絶縁層4もセパレータとして機能し得る。

[0024] 複数の第1の集電タブ1 cのそれぞれは、表面及び裏面が、第1の絶縁層4を備えている。これら第1の絶縁層4は、図2を参照しながら説明したように、少なくとも、第1の活物質含有層1 bの第1端面5 2における第1の集電タブ1 cと隣接する部分と、第1の集電タブ1 cの表面及び裏面のうち、第1端面5 2と隣接する部分4 8とを被覆している。

[0025] 図5は、或る第2の集電タブ2cと、これと隣り合った他の第2の集電タブ2cとの間において、第2の集電体2aの端面44が第2の絶縁層5で被覆されている状態を示しているが、第2の集電体2aの端面44全体が第2の絶縁層5で被覆されていなくても良い。よって、図7において、或る第2の集電タブ2cと、これと隣り合った他の第2の集電タブ2cとの間では、第2の集電体2aの端面44が露出した状態であり得る。図8に、或る第2の集電タブ2cと、これと隣り合った他の第2の集電タブ2cとの間の位置における積層体100の断面を模式的に示す。図8は、図7におけるVI-VI線に沿って積層体100を切断した場合の断面を模式的に示す図である。第2の集電体2aが有する端面44は、製造工程において不可避免的に形成されるバリを有していることがある。このバリが第1の集電タブ1cと接触すると内部短絡を生じてしまうが、第1の電極1が第1の絶縁層4を備えているため、第1の集電タブ1cと、第2の集電体2aが有する端面44とが接触することによる内部短絡を低減することができる。更に、図8に示す第1の絶縁層4は、第2の活物質含有層2bを介して第2の集電体2aと向き合う第1部分4aと、第2の集電体2aと向き合わない第2部分4bとを含んでいる。言い換えれば、第2部分4bは、第1部分4aから第1方向に突出している。それ故、この積層体100によれば、第2の集電体2aが有する端面44が有するバリと、第1の集電体1cとが接触することによる内部短絡を低減することができる。

[0026] 以上説明した例に示す通り、第1の実施形態の電極では、第1の絶縁層が、第1の活物質含有層の第1端面の少なくとも一部と、第1の集電タブの表面及び裏面のうちの第1端面と隣接する部分とを被覆している。それ故、高容量を得るために、当該電極及び対極としての第2の電極を渦巻き状に捲回するか又は積層させることにより電極群（積層体）を作製する際に、第2の電極が含む第2の集電体又は第2の集電タブの端面がバリを有していたとしても、このバリが第1の電極の第1の集電タブに接触することを抑制することができる。つまり、このバリが、第1の集電タブに接触するのではなく、

第1の絶縁層に接触するため、内部短絡の発生を抑えることができ、高容量な電池を提供することができる。

[0027] 図1では、第1の活物質含有層の表面を第1の絶縁層4で被覆していないが、第1の電極の形態は、この形態に限定されるものではない。図9に示すように、第1の活物質含有層1bの表面を、第1の絶縁層4で被覆してもよい。第1の絶縁層4は、第1の活物質含有層1bの第1端面52の全面と、第1の集電タブの表面及び裏面のうち、第1端面52と隣接する部分とを更に被覆している。この場合、第1の活物質含有層と、第2の活物質含有層との間に、セパレータとして、第1の絶縁層4及び第2の絶縁層5が存在する。それ故、第1の電極と第2の電極の間の絶縁をより確実なものにすることができる。また、第1の電極及び第2の電極の双方に第1の絶縁層を形成しても良い。

[0028] 第2の絶縁層5は、第1の電極1に一体化させても良い。この場合の積層体100を示す例を図10及び図11に示す。図10では、第1の絶縁層4は、第1の活物質含有層1bの第1端面52と、第1の集電タブ1cの表面及び裏面における第1端面52と隣接する部分とを被覆している。第2の絶縁層5は、第1の絶縁層4の表面と、第1の絶縁層4で覆われていない電極表面すなわち第1の活物質含有層1bの表面と、第1の集電タブ1cが延出していない3つの電極端面とを被覆している。

[0029] 一方、図11では、第1の絶縁層4が第1の活物質含有層1b上を被覆している。第2の絶縁層5は、第1の活物質含有層1b上を被覆している第1の絶縁層4の表面と、第1の絶縁層4で覆われていない電極端面すなわち第1の集電タブ1cが延出していない3つの電極端面と、第1の集電タブ1c上であり且つ第1の絶縁層4と隣接した部分とを被覆している。

[0030] 図10及び図11を参照しながら説明した積層体の構成によると、第1の電極と第2の電極間に必要な絶縁性を確保しつつ、第1の絶縁層が第1の活物質含有層から剥離するのを抑制することができる。そのため、電池の容量及び充放電サイクル寿命を向上することができる。

[0031] 第1の電極の第1の集電タブ1cの形状は、図2に例示されるような、第1の集電体1aの一側面（第1側面）の複数箇所から突出した複数の帯状部に限られない。第1の集電タブ1cは、例えば、第1の集電体1aの一側面（第1側面）の全面から突出し、突出した部分が凹凸構造を有するものにすることができる。この例を図12及び図13に示す。第1の集電タブ1cは、第1の集電体1aの一側面（第1側面）の全体から第1方向51に延出した部分である。延出部分は、凹凸形状を有する。複数の凸部が第1方向51に沿って突出している。第1の絶縁層4は、第1の集電タブ1cの表面及び裏面（凸部先端部を除く）を被覆している。よって、第1の絶縁層4は、第1の活物質含有層1bの第1端面52の全面と、第1の集電タブ1cの表面及び裏面のうちの第1端面52と隣接する部分とを被覆している。

[0032] 第2の電極の第2の集電タブ2cの形状は、図4に例示されるような、第2の集電体2aの一側面の複数箇所から突出した複数の帯状部に限られない。第2の集電タブ2cは、例えば、第2の集電体2aの一側面の全面から突出し、突出した部分が凹凸構造を有するものにするすることができる。この例を図14及び図15に示す。第2の集電タブ2cは、第2の集電体2aの一側面の全体から第2方向54に延出した部分である。延出部分は、凹凸形状を有する。複数の凸部が第2方向54に沿って突出している。第2の絶縁層5は、図15に示す通り、第2の活物質含有層2bそれぞれの第2の表面42と、第2の表面42に交差（例えば直交）する四側面と、第2の集電タブ2cの表面及び裏面における凸部先端部を除いた部分46とを被覆している。よって、第2の集電タブ2cの表面及び裏面のうちの第2の活物質含有層2bの端面55と隣接する部分は、第2の絶縁層5で被覆されている。

[0033] 第2の絶縁層は、図5及び図15に例示されるように、第2の電極における第2の集電タブ2cの先端部を除いた部分に形成しても良い。この場合、第2の活物質含有層2bの互いに向き合う二組の端面全てが第2の絶縁層5で被覆される。しかし、実施形態は、この場合に限られない。第2の活物質含有層の互いに向き合う二組の端面の少なくとも一部が第2の絶縁層で被覆

されていても良い。これら端面のうち、少なくとも、第2の集電タブと隣接する端面が第2の絶縁層で被覆されていると良い。

[0034] 上述の実施形態では、第1、第2の集電タブの突出部及び凸部に活物質含有層を設けずに第1、第2の絶縁層を直接形成したが、これに限られない。第1、第2の集電タブの突出部上または凸部上に活物質含有層を形成し、この活物質含有層上に第1、第2の絶縁層を形成しても良い。第1の電極に適用した例を図16に示す。第1の集電タブ1cは、第1の集電体1aの一側面（第1側面）の複数箇所から第1方向51に延出した部分であり、複数の突出部からなる。第1の活物質含有層101は、第1の集電タブ1cの表面及び裏面のうちの第1端面52と隣接する部分に形成されている。第1の絶縁層4は、第1の活物質含有層101それぞれの上と、第1の活物質含有層101それぞれの端面とを覆うように形成されている。また、ここでは図示しないが、第1の絶縁層4は、第1の活物質含有層1bの表面を被覆しても良い。このような図16に例示される構造は、第2の電極にも同様に適用できる。第1、第2の集電タブの突出部上または凸部上に形成された活物質含有層は、充放電反応への寄与が小さい。そのため、活物質含有層が活物質としてチタン含有酸化物を含む場合、絶縁層として機能し得る。この活物質含有層上に第1絶縁層または第2絶縁層を設けることにより、絶縁性能をより向上することができる。

[0035] 第1の電極と第2の電極の組合せは、上記に示したものに限られず、任意である。上記に示した第1の電極と第2の電極のいずれを組合わせても良い。また、積層体において、第1の集電タブが延出している方向と、第2の集電タブが延出している方向は、互いに逆向きに限らず、同じ向きでも良い。一例を図17に示す。

[0036] 図17に示す積層体は、図13に示す構造の第1の電極1と、図15に示す構造の第2の電極2を含む。第1の電極1と第2の電極2は、複数の第1の集電タブ1Cそれぞれが延出している方向51と、複数の第2の集電タブ2cそれぞれが延出している方向が同じ向きになるように積層されている。

複数の第1の集電タブ1Cの直下に複数の第2の集電タブ2cは配置されておらず、複数の第2の集電タブ2cは、複数の第1の集電タブ1Cに対し、方向51に直交する方向にずれて配置されている。また、第1の活物質含有層1bの四辺それぞれから第2の活物質含有層2bが突出する（あるいははみ出す）ように、第1の電極1と第2の電極2が積層されている。第1の活物質含有層1bと第2の活物質含有層2bとの間には、第2の絶縁層5が配置されている。第1の集電タブ1cの表面及び裏面のうちの第1端面52と隣接する部分上に位置する第1の絶縁層4は、第2の集電タブ2cの近傍に位置している。第2の集電タブ2cの表面及び裏面のうちの第2の活物質含有層2bの端面55と隣接する部分上に第2の絶縁層5が位置している。第2の集電タブ2cがバリを有していたとしても、第1の絶縁層4と第2の絶縁層5によりバリが第1の電極1に接触することを抑制することができる。それ故、図17に示す積層体100によると、内部短絡の発生を抑えることができ、高容量な電池を提供することができる。

[0037] 図17に示す積層体では、第1の活物質含有層1bの四辺それぞれから第2の活物質含有層2bが突出する、あるいははみ出している。これにより、第1の活物質含有層中に未充電領域が生じるのを防止できるため、第1の電極に含まれる活物質の溶出に起因する内部短絡を防止することができる。なお、第1の活物質含有層と第2の活物質含有層の面積の関係はこれに限定されるものではなく、互いの面積が同じであっても、第1の活物質含有層の面積が第2の活物質含有層の面積よりも大きくても良い。

[0038] 積層体を構成する第1の電極1と第2の電極2の数は、1つまたは複数にすることができる。第1の電極1と第2の電極2の数は、互いに同じでも互いに異なっても良い。

[0039] 以下、第1、第2の電極、第1の絶縁層、第2の絶縁層について説明する。

[0040] （第1、第2の電極）

第1の電極の反対極が、第2の電極である。第1の電極が正極で、第2の

電極が負極であっても、第1の電極が負極で、第2の電極が正極であっても良い。

[0041] 第1の電極は、第1の表面及び第1の裏面を有する多孔質の第1の活物質含有層を含む。一方、第2の電極は、第2の表面及び第2の裏面を有する多孔質の第2の活物質含有層を含む。

[0042] 第1の電極は、第1の集電体及び第1の集電タブをさらに含んでも良い。一方、第2の電極は、第2の集電体及び第2の集電タブをさらに含んでも良い。この場合、第1、第2の活物質含有層は、それぞれ、第1、第2の集電体の表面及び裏面の双方に形成しても良いが、片面のみに形成することも可能である。

[0043] 第1、第2の活物質含有層の活物質には、正極活物質、負極活物質が用いられる。活物質の種類は1種類または2種類以上にすることができる。

[0044] 正極活物質としては、例えばリチウム遷移金属複合酸化物を用いることができる。例えば、 LiCoO_2 、 $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$ ($0 < x < 0.3$)、 $\text{LiMn}_x\text{Ni}_y\text{Co}_z\text{O}_2$ ($0 < x < 0.5$ 、 $0 < y < 0.5$ 、 $0 \leq z < 0.5$)、 $\text{LiMn}_{2-x}\text{M}_x\text{O}_4$ (MはMg、Co、Al及びNiからなる群より選択される少なくとも1種類の元素、 $0 < x < 0.2$)、 LiMPO_4 (MはFe、Co及びNiからなる群より選択される少なくとも1種類の元素) などである。

[0045] 負極活物質としては、グラファイトをはじめとした炭素材料、スズ・シリコン系合金材料等を用いることができるが、チタン酸リチウムなどのチタン含有酸化物を用いることが好ましい。また、(ニオブ)Nbなど他金属を含むチタン酸化物あるいはチタン酸リチウムも負極活物質として挙げられる。チタン酸リチウムとしては、例えば、スピネル構造を有する $\text{Li}_{4+x}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ ($0 \leq x \leq 3$) や、ラムステライド構造を有する $\text{Li}_{2+y}\text{Ti}_3\text{O}_7$ ($0 \leq y \leq 3$) が挙げられる。

[0046] 第1の活物質含有層または第2の活物質含有層が、活物質としてチタン含有酸化物を含むことにより、第1の活物質含有層または第2の活物質含有層にリチウムデンドライトが析出するのを回避することができるため、二次電

池の充放電サイクル寿命を向上することができる。

[0047] 活物質は、単独の一次粒子、一次粒子が凝集した二次粒子、あるいは一次粒子と二次粒子の混合物であり得る。

[0048] 負極活物質の一次粒子の平均粒径は、 0.001 以上 $1\mu\text{m}$ 以下の範囲内であることが好ましい。平均粒径は、例えば負極活物質をSEMで観察することで求めることができる。粒子形状は、粒状、繊維状のいずれであってもよい。繊維状の場合は、繊維径が $0.1\mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。負極活物質の一次粒子の平均粒径は、具体的には、電子顕微鏡（SEM）で観察した像から測長することができる。平均粒径 $1\mu\text{m}$ 以下のチタン酸リチウムが負極活物質として用いられる場合には、表面の平坦性の高い負極活物質含有層が得られる。また、チタン酸リチウムが用いられると、一般的なカーボン負極を用いるリチウムイオン二次電池と比較して負極電位が貴なものとなるので、リチウム金属の析出は原理的に生じない。チタン酸リチウムを含む負極活物質は、充放電反応に伴う膨張収縮が、小さいため、活物質の結晶構造の崩壊を防止することができる。

[0049] 第1、第2の活物質含有層は、活物質以外に、結着剤、及び導電剤を含んでいても良い。導電剤としては、例えばアセチレンブラック、カーボンブラック、黒鉛又はこれらの混合物を挙げることができる。結着剤としては、例えばポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリフッ化ビニリデン（PVdF）、フッ素系ゴム、スチレンブタジエンゴム又はこれらの混合物が挙げられる。結着剤は、活物質と導電剤とを結着させる機能を有する。

[0050] 正極活物質含有層において、活物質、導電剤及び結着剤の含有量は、それぞれ80質量%以上97質量%以下、2質量%以上18質量%以下、及び1質量%以上17質量%以下であることが好ましい。負極活物質含有層において、負極活物質、導電剤及び結着剤の含有量は、それぞれ70質量%以上98質量%以下、1質量%以上28質量%以下、1質量%以上28質量%以下であることが好ましい。

[0051] 第1、第2の活物質含有層の厚さは、それぞれ、 $5\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以

下にすることができる。

[0052] 第1, 第2の集電体は、導電性シートであり得る。導電性シートの例には、導電性材料からなる箔が含まれる。導電性材料の例には、アルミニウム、及びアルミニウム合金が含まれる。

[0053] 第1, 第2の集電体の厚さは、それぞれ、 $5\ \mu\text{m}$ 以上 $40\ \mu\text{m}$ 以下にすることができる。

[0054] 第1, 第2の集電タブは、集電体と同じ材料から形成されていても良いが、集電体とは別に集電タブを用意し、これを集電体の少なくとも一端面に溶接等で接続したものを用いてもよい。

[0055] (第1の絶縁層)

第1の絶縁層は、それぞれ、表面及び裏面を有し、無機材料を含む。第1の絶縁層の一方の主面が表面で、他方の主面が裏面に相当する。無機材料の例としては、酸化物（例えば、 Li_2O 、 BeO 、 B_2O_3 、 Na_2O 、 MgO 、 Al_2O_3 、 SiO_2 、 P_2O_5 、 CaO 、 Cr_2O_3 、 Fe_2O_3 、 ZnO 、 ZrO_2 、二酸化チタン（例えばアナターゼ、ルチルまたはブロンズ型の TiO_2 ）、酸化マグネシウム、酸化ケイ素、アルミナ、ジルコニア、酸化チタン等のIIA~VA族、遷移金属、IIIB、IVBの酸化物）、ゼオライト（ $\text{M}_{2/n}\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ （式中、MはNa、K、Ca及びBa等の金属原子、nは金属陽イオン M^{n+} の電荷に相当する数、x及びyは SiO_2 及び H_2O のモル数であり $2 \leq x \leq 10$ 、 $2 \leq y$ ）、窒化物（例えば、BN、AlN、 Si_3N_4 及び Ba_3N_2 等）、炭化ケイ素（ SiC ）、ジルコン（ ZrSiO_4 ）、炭酸塩（例えば、 MgCO_3 及び CaCO_3 等）、硫酸塩（例えば、 CaSO_4 及び BaSO_4 等）及びこれらの複合体（例えば磁器の一種である、ステアタイト（ $\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$ ）、フォルステライト（ $2\text{MgO} \cdot \text{SiO}_2$ ）及び、コージェライト（ $2\text{MgO} \cdot 2\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{SiO}_2$ ））、酸化タングステン又はこれらの混合物を挙げることができる。酸化物の他の例として、スピネル構造を有するチタン酸リチウム（例えば、 $\text{Li}_{4+x}\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ 、 $0 \leq x \leq 3$ ）等のリチウムチタン酸化物を挙げることができる。

[0056] その他の無機材料の例としては、チタン酸バリウム、チタン酸カルシウム、チタン酸鉛、 $\gamma\text{-LiAlO}_2$ 、 LiTiO_3 、固体電解質又はこれらの混合物を挙げることができる。

[0057] 固体電解質の例には、リチウムイオン伝導性がないまたは低い固体電解質、リチウムイオン伝導性を有する固体電解質が含まれる。リチウムイオン伝導性がないまたは低い酸化物粒子としては、リチウムアルミニウム酸化物（例えば、 LiAlO_2 、 $\text{Li}_x\text{Al}_2\text{O}_3$ ここで $0 < x \leq 1$ ）、リチウムシリコン酸化物、リチウムジルコニウム酸化物が挙げられる。

[0058] リチウムイオン伝導性を有する固体電解質の例に、ガーネット型構造の酸化物固体電解質が含まれる。ガーネット型構造の酸化物固体電解質は耐還元性が高く、電気化学窓が広い利点がある。ガーネット型構造の酸化物固体電解質の例には、 $\text{Li}_{5+x}\text{Al}_x\text{La}_{3-x}\text{M}_2\text{O}_{12}$ （AはCa、Sr及びBaよりなる群から選択される少なくとも一種類の元素、MはNb及び／またはTa、xは0.5以下（0を含む）の範囲が好ましい。）、 $\text{Li}_3\text{M}_{2-x}\text{La}_2\text{O}_{12}$ （MはNb及び／またはTa、LはZrを含む、xは0.5以下（0を含む）の範囲が好ましい）、 $\text{Li}_{7-3x}\text{Al}_x\text{La}_3\text{Zr}_3\text{O}_{12}$ （xは0.5以下（0を含む）の範囲が好ましい）、 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ が含まれる。中でも、 $\text{Li}_{6.25}\text{Al}_{0.25}\text{La}_3\text{Zr}_3\text{O}_{12}$ 、 $\text{Li}_{6.4}\text{La}_3\text{Zr}_{1.4}\text{Ta}_{0.6}\text{O}_{12}$ 、 $\text{Li}_{6.4}\text{La}_3\text{Zr}_{1.6}\text{Ta}_{0.6}\text{O}_{12}$ 、 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ は、イオン伝導性が高く、電気化学的に安定なため、放電性能とサイクル寿命性能に優れる。

[0059] また、リチウムイオン伝導性を有する固体電解質の例に、NASICON型構造を有するリチウムリン酸固体電解質が含まれる。NASICON型構造のリチウムリン酸固体電解質の例には、 $\text{LiM}_2(\text{PO}_4)_3$ 、ここでM1は、Ti、Ge、Sr、Zr、Sn及びAlよりなる群から選ばれる一種以上の元素、が含まれる。好ましい例として、 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ 、 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Zr}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ 、 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ti}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ 、が挙げられる。ここで、それぞれにおいて、xは0以上0.5以下の範囲が好ましい。また、例示した固体電解質は、それぞれ、イオン伝導性が高く、

電気化学的安定性が高い。NASICON型構造を有するリチウムリン酸固体電解質と、ガーネット型構造の酸化物固体電解質の双方をリチウムイオン伝導性を有する固体電解質として使用しても良い。

[0060] 上記から選択される少なくとも1種類の無機材料を含む第1の絶縁層は、無機材料粒子の集合体からなる多孔質膜である。例えば固体電解質のようにリチウムイオン導電性を有する無機材料は存在するものの、無機材料の多くは電子伝導性が低いか、絶縁性を有する。そのため、第1の絶縁層は、正極と負極を隔てる隔壁として機能し得る。その結果、第1の活物質含有層と、これと第1の絶縁層を介して対向する第2の活物質含有層との導電を抑えることができるため、内部短絡及び自己放電を抑制することができる。

[0061] また、第1の絶縁層は、多孔質の部分に非水電解質を保持することができるため、Liイオンの透過を阻害することはない。

[0062] 上記種類の無機材料を含む第1の絶縁層は、Liイオン透過性を持ちつつ、高い絶縁性を有する。実用面等を考慮すると、アルミナ、チタン酸化物及びリチウムチタン酸化物よりなる群から選択される少なくとも1種を含む第1の絶縁層が好ましい。ルチル型の二酸化チタン粒子は、凝集し難く、第1の絶縁層中に均一に分散しやすく、好適である。スピネル構造を有するチタン酸リチウム、二酸化チタンは、それぞれ、フッ化水素(HF)に対する耐性に優れ、また、正極での耐酸化性にも優れている。チタン酸化物及び／またはリチウムチタン酸化物を含む第1の絶縁層を、活物質含有層の表面の少なくとも一部に形成すると、後述するロールプレスで用いるロールの摩耗を抑制することができる。

[0063] 無機材料の形態は、例えば、粒状、繊維状等であり得る。

[0064] 無機材料粒子の平均粒径D50は、0.5 μm 以上2 μm 以下にすることができる。

[0065] 第1の絶縁層中の無機材料の含有量は80質量%以上99.9質量%以下の範囲にすることが望ましい。これにより、第1の絶縁層の絶縁性を高くすることができる。

[0066] 第1の絶縁層は、バインダーを含み得る。バインダーとして、例えばポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリフッ化ビニリデン（PVdF）、フッ素系ゴム、スチレンブタジエンゴム又はこれらの混合物が挙げられる。第1の絶縁層中のバインダーの含有量は0.01質量%以上20質量%以下の範囲にすることが望ましい。

[0067] 第1の絶縁層の厚さは1 μm 以上30 μm 以下にすることができる。

[0068] （第2の絶縁層）

第2の絶縁層は有機繊維を含み得る。第2の絶縁層は、有機繊維を面方向に堆積させた多孔質膜であり得る。第2の絶縁層は、表面及び裏面を有する。第2の絶縁層の一方の主面が表面で、他方の主面が裏面に相当する。第2の絶縁層は、ポリエチレン（polyethylene；PE）、ポリプロピレン（polypropylene；PP）、セルロース、若しくはポリフッ化ビニリデン（polyvinylidene fluoride；PVdF）を含む多孔質フィルム、又は合成樹脂製不織布であってもよい。

[0069] 有機繊維は、例えば、ポリアミドイミド、ポリアミド、ポリオレフィン、ポリエーテル、ポリイミド、ポリケトン、ポリスルホン、セルロース、ポリビニルアルコール（PVA）及びポリフッ化ビニリデン（PVdF）からなる群から選択される少なくとも1つの有機材料を含む。ポリオレフィンとしては、例えば、ポリプロピレン（PP）およびポリエチレン（PE）などが挙げられる。有機繊維の種類は1種類又は2種類以上にすることができる。好ましいのは、ポリイミド、ポリアミド、ポリアミドイミド、セルロース、PVdF、及びPVAからなる群より選ばれる少なくとも1種類であり、より好ましいのは、ポリイミド、ポリアミド、ポリアミドイミド、セルロース、及びPVdFからなる群より選ばれる少なくとも1種類である。

[0070] ポリイミドは、250～400℃においても不溶・不融であって分解もしないので、耐熱性に優れた第2の絶縁層を得ることができる。

[0071] 有機繊維は、長さ1 mm以上、平均直径2 μm 以下であることが好ましく、平均直径1 μm 以下であることがより好ましい。こうした第2の絶縁層は

、十分な強度、気孔率、透気度、孔径、耐電解質性、耐酸化還元性等を有するので、セパレータとして良好に機能する。有機繊維の平均直径は、集束イオンビーム（F I B）装置での観察により測定することができる。また、有機繊維の長さは、F I B装置での観察での測長に基づいて得られる。

[0072] イオン透過性および電解質保持性の確保が必要であることから、第2の絶縁層を形成している繊維全体の体積の30%以上は、平均直径1 μ m以下の有機繊維であることが好ましく、350 nm以下の有機繊維であることがより好ましく、50 nm以下の有機繊維であることが更に好ましい。

[0073] また、平均直径1 μ m以下（より好ましくは350 nm以下、さらに好ましくは50 nm以下）の有機繊維の体積は、第2の絶縁層を形成している繊維全体の体積の80%以上を占めることがより好ましい。こうした状態は、第2の絶縁層の走査イオン顕微鏡（S I M）観察によって確認することができる。太さ40 nm以下の有機繊維が、第2の絶縁層を形成している繊維全体の体積の40%以上を占めることがより好ましい。有機繊維の径が小さいことは、イオンの移動を妨害する影響が小さいことになる。

[0074] 有機繊維の表面及び裏面を含む全表面の少なくとも一部には、カチオン交換基が存在することが好ましい。カチオン交換基によって、セパレータを通過するリチウムイオンなどのイオンの移動が促進されるので、電池の性能が高められる。具体的には、長期にわたって急速充電、急速放電を行なうことが可能となる。カチオン交換基は特に限定されないが、例えばスルホン酸基およびカルボン酸基が挙げられる。カチオン交換基を表面に有する繊維は、例えば、スルホン化された有機材料を用いてエレクトロスピンニング法により形成することができる。

[0075] 第2の絶縁層は空孔を有し、空孔の平均孔径5 nm以上10 μ m以下であることが好ましい。また、気孔率は70%以上90%以下であることが好ましい。こうした空孔を備えていれば、イオンの透過性に優れ、電解質の含浸性も良好なセパレータが得られる。気孔率は、80%以上であることがより好ましい。空孔の平均孔径および気孔率は、水銀圧入法、体積と密度からの

算出、SEM観察、SIM観察、ガス脱吸着法によって確認することができる。気孔率は、第2の絶縁層の体積と密度から算出することが望ましい。また、平均孔径は、水銀圧入法かガス吸着法により測定することが望ましい。第2の絶縁層における気孔率が大きいことは、イオンの移動を妨害する影響が小さいことになる。

[0076] 第2の絶縁層の厚さは12 μm 以下の範囲にすることが望ましい。厚さの下限値は、特に限定されないが、1 μm でありえる。

[0077] 第2の絶縁層においては、含まれる有機繊維を疎の状態とすれば気孔率が高められるので、例えば気孔率が90%程度の層を得るのも困難ではない。そのような気孔率の大きな層を粒子で形成するのは、極めて困難である。

[0078] 第2の絶縁層は、凹凸、割れやすさ、含電解質性、密着性、曲げ特性、気孔率、及びイオン透過性の点で、無機繊維の堆積物より有利である。

[0079] 第2の絶縁層は、有機化合物の粒子を含んでいてもよい。この粒子は、例えば、有機繊維と同じ材料からなる。この粒子は、有機繊維と一体的に形成されていてもよい。

[0080] 第1の絶縁層及び第2の絶縁層の厚さは、JIS規格（JIS B 7503-1997）に準拠した方法で測定される。具体的には、これらの厚さは、接触式デジタルゲージを用いて測定される。石定盤上に資料をのせ、石定盤に固定されたデジタルゲージを使用する。測定端子に先端が $\phi 5.0\text{mm}$ の平型を用い、測定端子を試料の上方1.5mm以上5.0mm未満の距離から近づけ、試料と接触した距離が試料の厚さとなる。

[0081] 第2の絶縁層は、例えば、エレクトロスピニング法により形成される。エレクトロスピニング法では、第2の絶縁層の形成対象である、第1の電極または第2の電極をアースしてアース電極とする。第1の電極に形成する場合、第1の絶縁層を形成済みの第1の電極を用意する。

[0082] 紡糸ノズルに印加された電圧により液状の原料（例えば原料溶液）が帯電すると共に、原料溶液からの溶媒の揮発により原料溶液の単位体積当たりの帯電量が増加する。溶媒の揮発とそれに伴う単位体積あたりの帯電量の増加

が連続して生じることで、紡糸ノズルから吐出された原料溶液は長手方向に延び、ナノサイズの有機繊維として、アース電極である第1の電極または第2の電極に堆積する。有機繊維とアース電極間には、ノズルとアース電極間の電位差によりクーロン力が生じる。よって、ナノサイズの有機繊維により第1の絶縁層との接触面積を増加させることができ、この有機繊維をクーロン力により第1の電極または第2の電極上に堆積することができるため、第2の絶縁層の電極からの剥離強度を高めることが可能となる。剥離強度は、例えば、溶液濃度、サンプルノズル間距離等を調節することにより制御することが可能である。

[0083] なお、第1、第2の集電タブに第2の絶縁層を形成しない場合、第1、第2の集電タブをマスクしてから第2の絶縁層を形成すると良い。この例を図18に示す。図18は、第2の電極に第2の絶縁層を形成する工程を示す斜視図である。図18に示す通り、第2の絶縁層5は、ノズルNから吐出される原料溶液が第2の活物質含有層2b及び第2の集電タブ2c上に、有機繊維として堆積することで直接形成される。第2の集電タブ2cの一辺及びその近傍がマスクMで被覆されている。そのため、第2の絶縁層5は、第2の活物質含有層2bの表面と、第2の集電タブ2c表面における第2の活物質含有層2bと隣接する部分に跨がるように堆積された有機繊維を含む多孔質膜となる。

[0084] エレクトロスピニング法を用いることによって、第2の絶縁層を電極表面に容易に形成することができる。エレクトロスピニング法は、原理的には連続した1本の繊維を形成するので、曲げによる破断、膜の割れへの耐性を薄膜で確保できる。第2の絶縁層を構成する有機繊維が継ぎ目のない連続したものであることは、第2の絶縁層のほつれや一部欠損の確率が低く、自己放電の抑制の点で有利である。

[0085] エレクトロスピニングに用いられる液状の原料には、例えば、有機材料を溶媒に溶解して調製された原料溶液が用いられる。有機材料の例は、有機繊維を構成する有機材料で挙げたものと同様なものを挙げるができる。有

機材料は、例えば5～60質量%程度の濃度で溶媒に溶解して用いられる。有機材料を溶解する溶媒は特に限定されず、ジメチルアセトアミド（DMAc）、ジメチルスルホキシド（DMSO）、N，N‘ジメチルホルムアミド（DMF）、N－メチルピロリドン（NMP）、水、アルコール類等、任意の溶媒を用いることができる。また、溶解性の低い有機材料に対しては、レーザー等でシート状の有機材料を溶融しながらエレクトロスピニングする。加えて、高沸点有機溶剤と低融点の溶剤とを混合することも許容される。

[0086] 高圧発生器を用いて紡糸ノズルに電圧を印加しつつ、紡糸ノズルから所定の電極の表面にわたって原料を吐出することによって、第2の絶縁層が形成される。印加電圧は、溶媒・溶質種、溶媒の沸点・蒸気圧曲線、溶液濃度、温度、ノズル形状、サンプルノズル間距離等に応じて適宜決定され、例えばノズルとワーク間の電位差を0.1～100kVとすることができる。原料の供給速度もまた、溶液濃度、溶液粘度、温度、圧力、印加電圧、ノズル形状等に応じて適宜決定される。シリンジタイプの場合には、例えば、1ノズルあたり0.1～500 μ l/min程度とすることができる。また、多ノズルやスリットの場合には、その開口面積に応じて供給速度を決定すればよい。

[0087] 有機繊維が乾燥状態で電極の表面に直接形成されるので、電極内部に原料に含まれる溶媒が浸み込むことは実質的に避けられる。電極内部の溶媒残留量は、ppmレベル以下と極めて低いものとなる。電極内部の残留溶媒は、酸化還元反応を生じて電池のロスを引き起こし、電池性能の低下につながる。本実施形態によれば、こうした不都合が生じるおそれは極力低減されることから、電池の性能を高めることができる。

[0088] 実施形態に係る電極、及び、積層体の製造方法を以下に説明する。

[0089] （第1の製造方法）

第1の集電体の表面及び裏面のうちの少なくとも一方に、第1の活物質を含むスラリー（以下、スラリーⅠとする）と、無機材料を含むスラリー（以下、スラリーⅡとする）を同時に塗工する。塗工工程の一例を図19及び

図 2 2 に示す。この塗工例によると、例えば、図 9 を参照しながら説明した第 1 の電極を製造することができる。

[0090] 塗工装置 3 0 は、スラリー I を収容するタンク 3 2 と、スラリー II を収容するタンク 3 3 とを備え、基材にスラリー I 及びスラリー II を同時に塗布する構成になっている。スラリー I の吐出口における塗工方向と直交する幅は、活物質含有層の塗工幅と対応している。また、スラリー I の吐出口における塗工方向と直交する幅は、第 1 の絶縁層の塗工幅と対応している。所定の寸法に裁断される前の長尺状の第 1 の集電体 1 a を、搬送ローラ 3 1 によって、塗工装置 3 0 のスラリー吐出口に搬送する。図 2 2 において、スラリー I 吐出口 3 2 a は、スラリー II 吐出口 3 3 a よりも集電体の上流側に位置している。スラリー I 吐出口 3 2 a の塗工方向と直交する幅は、スラリー II 吐出口 3 3 a の塗工方向と直交する幅よりも狭くなっている。塗工装置 3 0 から第 1 の集電体 1 a 上に、短辺方向の両端部を除き、スラリー I が塗布される。これとほぼ同時期に、スラリー II がスラリー I の塗布領域からはみ出すように重ね塗りされる。次いで、スラリーを乾燥させた後、第 1 の集電体 1 a を乾燥後のスラリーと共に打ち抜くことにより、第 1 の集電体 1 a の一側面の少なくとも一部（図 9 の場合、一側面の複数個所）から突出した複数の第 1 の集電タブ 1 c を形成する。打ち抜かれたものにロールプレスを施し、所定のサイズに裁断して第 1 の電極を得る。なお、第 1 の集電タブ 1 c の形成は、第 1 の集電体 1 a からダイス等を用いて打ち抜く代わりに、レーザで第 1 の集電体 1 a を目的形状に裁断しても良い。

[0091] なお、スラリー II 吐出口 3 3 a の配置を変更することにより、第 1 の活物質含有層の第 1 端面と第 1 の集電タブの表面のうちの第 1 端面と隣接する部分のみを第 1 の絶縁層で被覆することができる。この例を図 2 3 に示す。この塗工例によると、例えば、図 1 又は図 2 を参照しながら説明した第 1 の電極を製造することができる。

[0092] 図 2 3 に示す通り、スラリー II 吐出口 3 3 a は、スラリー I 吐出口 3 2 a の塗工方向と直交する方向の一端部上に配置されている。塗工装置 3 0 か

ら第1の集電体1 a上に、短辺方向の両端部を除き、スラリーIが塗布される。これとほぼ同時期に、スラリーIIがスラリーIの塗布領域1 bの塗工方向の一辺及びこれと隣接する第1の集電体1 a表面上に重ね塗りされる。次いで、スラリーを乾燥させた後、第1の集電体1 aを乾燥後のスラリーと共に打ち抜くことにより、第1の集電体1 aの一側面の少なくとも一部（図1, 2の場合、一側面の複数箇所）から突出した複数の第1の集電タブ1 cを形成する。打ち抜かれたものにロールプレスを施し、所定のサイズに裁断して第1の電極を得る。なお、第1の集電タブ1 cの形成は、第1の集電体1 aからダイス等を用いて打ち抜く代わりに、レーザで第1の集電体1 aを目的形状に裁断しても良い。

[0093] 一方、第2の集電体に第2の活物質を含むスラリーを塗布した後、スラリーを乾燥させ、乾燥後のものにロールプレスを施し、所定のサイズに裁断して第2の電極を得る。第2の電極にエレクトロスピニング法により第2の絶縁層を形成する。次いで、プレスを施しても良い。プレス方法としては、ロールプレスでもよく、平板プレスでもよい。

[0094] 第2の集電タブは、例えば、次の方法により得られる。第1方法として、予め第2の集電タブを有する第2の集電体を用い、これにスラリーの塗布、乾燥等の必要な処理を施して第2の電極を得る。第2方法として、裁断工程において、第2の集電体を目的形状に裁断して第2の集電タブを得る。第3方法として、エレクトロスピニング法により第2の絶縁層を形成後、第2の集電体を目的形状に裁断して第2の集電タブを得る。裁断は、例えば、ダイス等を用いての打ち抜き、レーザによる切断などにより行われる。

[0095] 第1の電極と第2の電極とを、第1の活物質含有層及び第2の活物質含有層とが第2の絶縁層及び／または第1の絶縁層を介して対向するように積層して実施形態の積層体を得る。

[0096] （第2の製造方法）

第1の製造方法により作製した第1の電極に、エレクトロスピニング法により第2の絶縁層を形成する。次いで、プレスを施しても良い。

- [0097] 一方、第2の集電体に第2の活物質を含むスラリーを塗布した後、スラリーを乾燥させ、乾燥後のものにロールプレスを施し、所定のサイズに裁断して第2の電極を得る。
- [0098] 第1の電極と第2の電極とを、第1の活物質含有層及び第2の活物質含有層とが第2の絶縁層及び／または第1の絶縁層を介して対向するように積層して実施形態の積層体を得る。
- [0099] 第1又は第2の製造方法で得られた積層体をそのまま電極群として用いても、複数の積層体を積み重ねたものを電極群として用いても、一組または複数の積層体を渦巻き状に捲回したものを電極群として用いても良い。なお、電極群に、プレスを施しても良い。
- [0100] 上記では、第1の絶縁層及び／または第2の絶縁層をセパレータとして用いる例を説明したが、これに限られない。第1、第2の絶縁層以外の絶縁性膜をセパレータとして使用しても良い。複数種類を組合わせたものをセパレータとしても良い。絶縁性膜の例には、合成樹脂製不織布、ポリエチレン製多孔質フィルムやポリプロピレン製多孔質フィルムを一例とするポリオレフィン製多孔質フィルム、およびセルロース系のセパレータが含まれる。また、これらの材料を複合したセパレータ、例えば、ポリオレフィン製多孔質フィルムとセルロースとからなるセパレータを用いることができる。絶縁性膜は、多孔質構造を有することが好ましい。
- [0101] 以上説明した第1の実施形態の電極によれば、無機材料を含む第1の絶縁層が、少なくとも、第1の活物質含有層の第1端面の少なくとも一部と、第1の集電タブの表面及び裏面のうちの第1端面と隣接する部分とを被覆している。それ故、高容量を得るために、当該電極及び対極としての第2の電極を渦巻き状に捲回することにより電極群（積層体）を作製する際に、第2の電極が含む第2の集電体または第2の集電タブの端面がバリを有していたとしても、このバリが第1の電極の第1の集電タブに接触することを抑制することができる。
- [0102] また、第2の実施形態に係る積層体は、第1の実施形態に係る電極を含む

ため、内部短絡の発生を抑制して高容量な電池を実現することができる。

[0103] (第3の実施形態)

第3の実施形態の二次電池は、第2の実施形態の積層体を含む。二次電池は、電解質と、電解質及び積層体を収容可能な外装部材とをさらに含んでも良い。

[0104] 複数の積層体を、第1の活物質含有層と第2の活物質含有層との間にセパレータが位置するように積層したものを電極群として二次電池に使用しても良い。電極群の形状は、この形状に限られず、一以上の積層体を渦巻きあるいは扁平の渦巻状に捲回したものを電極群として使用しても良い。セパレータの例には、第1、第2の絶縁層、第1、第2の絶縁層以外の絶縁性膜が含まれる。複数種類を組合わせたものをセパレータとしても良い。絶縁性膜の例は、前述した通りである。

[0105] 二次電池は、第1の集電タブと電氣的に接続される第1の電極端子と、第2の集電タブと電氣的に接続される第2の電極端子とをさらに備えることも可能である。

[0106] 電解質としては、例えば、非水電解質が用いられる。非水電解質としては、電解質を有機溶媒に溶解することにより調整される液状非水電解質、液状電解質と高分子材料を複合化したゲル状非水電解質等が挙げられる。液状非水電解質は、例えば電解質を 0.5 mol/L 以上、 2.5 mol/L 以下の濃度で有機溶媒に溶解することによって、調製することができる。

[0107] 電解質としては、例えば、過塩素酸リチウム (LiClO_4)、六フッ化リン酸リチウム (LiPF_6)、四フッ化ホウ酸リチウム (LiBF_4)、六フッ化砒素リチウム (LiAsF_6)、トリフルオロメタスルホン酸リチウム (LiCF_3SO_3)、ビストリフルオロメチルスルホニルイミドリチウム [$\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$] 等のリチウム塩、あるいはこれらの混合物を挙げることができる。高電位でも酸化し難いものであることが好ましく、 LiPF_6 が最も好ましい。

[0108] 有機溶媒としては、例えば、プロピレンカーボネート (PC)、エチレン

カーボネート（EC）、ビニレンカーボネート等の環状カーボネートや、ジエチルカーボネート（DEC）、ジメチルカーボネート（DMC）、メチルエチルカーボネート（MEC）等の鎖状カーボネートや、テトラヒドロフラン（THF）、2メチルテトラヒドロフラン（2MeTHF）、ジオキサラン（DOX）等の環状エーテルや、ジメトキシエタン（DME）、ジエトキシエタン（DEE）等の鎖状エーテルや、 γ -ブチロラクトン（GBL）、アセトニトリル（AN）、およびスルホラン（SL）等が挙げられる。こうした有機溶媒は、単独でも2種以上の混合物として用いてもよい。

[0109] 高分子材料としては、例えば、ポリフッ化ビニリデン（PVdF）、ポリアクリロニトリル（PAN）、ポリエチレンオキサイド（PEO）等を挙げることができる。

[0110] なお、非水電解質として、リチウムイオンを含有した常温溶融塩（イオン性融体）、高分子固体電解質、無機固体電解質等を用いてもよい。

[0111] 外装部材としては、例えば、金属製容器、又はラミネートフィルム製容器などを用いることができる。

[0112] 二次電池の形態は、特に限定されず、例えば、円筒型、扁平型、薄型、角型、コイン型等の様々な形態にすることができる。

[0113] 図20は、実施形態に係る二次電池の一例を示す部分切欠斜視図である。図20は、外装部材としてラミネートフィルムを用いた二次電池の一例を示す図である。図20に示す二次電池10は、ラミネートフィルム製の外装部材20と、電極群12と、第1の電極端子13と、第2の電極端子14と、非水電解質（図示しない）とを含む。電極群12は、実施形態の積層体を複数含み、第1の電極と第2の電極とがセパレータを介して積層された構造を有する。非水電解質（図示しない）は、電極群12に保持あるいは含浸されている。第1の電極端子13には、第1の電極の第1の集電タブが電氣的に接続されている。第2の電極端子14には、第2の電極の第2の集電タブが電氣的に接続されている。図12に示すように、第1の電極端子13と第2の電極端子14とは、互いに距離を隔てた状態でそれぞれの先端が外装部材

11の一辺から外部に突出している。

[0114] 図21は、実施形態に係る二次電池の他の例を示す概略断面図である。より詳細には、図21は、第1の集電体1aから第1の集電体1cが延出されている方向に沿って切断することで得られる断面である。図21に示す二次電池10は、外装部材11と、複数の第1の電極1及び複数の第2の電極2とが交互に積層されてなる電極群12とを具備する。電極群12は、外装部材11内に収納されている。

[0115] 外装部材11は、2つの樹脂層とこれらの間に介在した金属層とを含むラミネートフィルムからなる袋状外装部材である。

[0116] 電極群12は、図21に示すように、積層型の電極群である。積層型の電極群12は、第2の実施形態に係る積層体の態様の一例である。ここでは、第2の電極2は負極2とみなし、第1の電極1は正極1とみなす。

[0117] 電極群12は、複数の負極2を含んでいる。複数の負極2は、それぞれが、負極集電体2aと、負極集電体2aの両面に担持された負極活物質含有層2bとを備えている。各負極2の負極集電体2aは、その一辺において何れの表面にも負極活物質含有層2bが担持されていない部分2cを含む。部分2cは、負極集電タブ2cとして機能する。各負極2は、図3を参照しながら説明した第2の絶縁層5を備えている。各負極2から延出する複数の負極集電タブ2cは、帯状の負極端子24に電氣的に接続されている。帯状の負極端子24の先端は、外装部材11の外部に引き出されている。

[0118] また、電極群12は、複数の正極1を含んでいる。複数の正極1は、それぞれが、正極集電体1aと、正極集電体1aの両面に担持された正極活物質含有層1bとを備えている。正極活物質含有層1bは、正極集電体1aの表面の全面及び裏面の全面に設けられている。

[0119] 各正極1の正極集電体1aは、その一辺において何れの表面にも正極活物質含有層1bが担持されていない部分1cを含む。部分1cは、正極集電タブ1cとして機能する。正極集電タブ1cは、負極集電タブ2cが延出する方向とは反対側に向かって延出している。正極活物質含有層1bは、正極集

電タブ 1 c と隣接する第 1 端面を有している。正極集電タブ 1 c 上の表面及び裏面において、正極活物質含有層 1 b が有する第 1 端面と、この端面に隣接する部分には第 1 の絶縁層 4 が担持されている。それ故、負極集電体 2 a の端面の一部がバリを有していたとしても、このバリが第 2 の絶縁層 5 を突き破って第 1 の集電タブ 1 c と接触するのを抑制することができる。

[0120] 以上説明した第 3 の実施形態の二次電池によれば、第 2 の実施形態の積層体を含むため、高容量化の妨げとなる内部短絡を抑制して容量及び寿命性能に優れた二次電池を提供することができる。

実施例

[0121] 第 1 の電極を正極、第 2 の電極を負極とした非水電解質電池を以下の方法で作製した。

[0122] (実施例 1)

正極が含む第 1 の絶縁層としての絶縁性無機材料層、負極が含む第 2 の絶縁層としてのナノファイバ層を以下の方法で作製した。

[0123] 正極活物質として $\text{LiNi}_{0.33}\text{Co}_{0.33}\text{Mn}_{0.33}\text{O}_2$ 粒子、導電剤としてカーボンブラック、バインダーとしてポリフッ化ビニリデン (PVdF) を用意した。これらを、90 : 5 : 5 の質量比で混合して混合物を得た。次に、得られた混合物を *n*-メチルピロリドン (NMP) 溶媒中に分散して正極スラリーを調製した。

[0124] 絶縁性無機材料として平均粒径が $1\ \mu\text{m}$ の Al_2O_3 粒子と PVdF を用意した。これらを、100 : 4 の質量比で混合して混合物を得た。次に、得られた混合物を NMP に分散してアルミナ含有スラリーを調製した。

[0125] 次に、図 23 を参照しながら説明した塗工方法により、以下の通り第 1 の電極を作製した。まず、厚さ $15\ \mu\text{m}$ のアルミニウム箔上に正極スラリーを塗布した。これとほぼ同時期に、アルミナ含有スラリーを、正極スラリーの塗布領域の塗工方向の一辺及びこれと隣接するアルミニウム箔表面上に平行して塗布した。次いで、正極スラリー及びアルミナ含有スラリーを乾燥させて正極活物質含有層及び絶縁性無機材料層を形成した。これをアルミニウム

箔の両面で行った。その後、ロールプレスを施した後に金型で打ち抜き、集電体の一側面の複数個所から突出した複数の集電タブを備える第1の電極を得た。得られた第1の電極は、図2を参照しながら説明した構造を有していた。即ち、絶縁性無機材料層は、正極活物質含有層の端面と、複数の集電タブの表面及び裏面のそれぞれにおいて、当該端面と隣接する部分とを被覆していた。

[0126] 正極活物質含有層それぞれの厚さは $20\mu\text{m}$ 、正極活物質含有層からはみ出してアルミニウム箔上に形成された絶縁性無機材料層の厚さは、 $20\mu\text{m}$ であった。

[0127] 負極活物質として一次粒子の平均粒径が $0.5\mu\text{m}$ のチタン酸リチウム粒子と、導電剤としてカーボンブラック、バインダーとしてポリフッ化ビニリデンを用意した。これらを、 $90:5:5$ の質量比で混合して混合物を得た。得られた混合物を n -メチルピロリドン（NMP）溶媒中に分散して、スラリーを調製した。

[0128] 得られたスラリーを、厚さ $15\mu\text{m}$ のアルミニウム箔の両面に塗布し、乾燥させた。次いで、乾燥させた塗膜をプレスして負極を得た。負極活物質含有層それぞれの厚さは $30\mu\text{m}$ であった。なお、集電体の一方の長辺に負極活物質含有層無担持の部分の設け、この箇所を負極集電タブとした。

[0129] この負極上に、エレクトロスピンニング法によって有機繊維を堆積させてナノファイバ層を形成した。有機材料としては、ポリイミドを用いた。このポリイミドを、溶媒としてのDMAcに 20 質量%の濃度で溶解して、液体原料として原料溶液を調製した。得られた原料溶液を、定量ポンプを使用して $5\mu\text{l}/\text{min}$ の供給速度で紡糸ノズルから負極の表面に供給した。高電圧発生器を用いて、紡糸ノズルに 20kV の電圧を印加し、この紡糸ノズル1本で $100\times 200\text{mm}$ の範囲を動かしながら負極活物質含有層表面に $2\mu\text{m}$ の有機繊維の層を形成した。なお、負極集電タブの両方の表面（主面）における負極活物質含有層との境界から 10mm の部分を除き、負極集電タブの表面をマスクした状態でエレクトロスピンニング法を実施して負極を得た。

[0130] 続いて、負極集電体の一側面の複数箇所から突出した複数の負極集電タブが形成されるように金型で打ち抜き、ナノファイバ層が一体化された負極を得た。

[0131] ナノファイバ層は、図7と図8に示す通り、負極活物質含有層のそれぞれの表面と、負極活物質含有層のそれぞれの表面及び裏面に交差（例えば直交）する四側面のうち、負極集電体から負極集電タブが延出している面を除いた三側面と、残りの一側面の負極集電タブと隣接する部分と、負極集電タブの表面及び裏面における負極活物質含有層の端面と隣接する部分とを被覆していた。

[0132] 作製した正極及び負極を、ナノファイバ層を介して、正極活物質含有層及び負極活物質含有層とが対向するように積層した後に、図7を参照しながら説明したように捲回して捲回型電極群を作製した。

[0133] 得られた電極群を室温で一晩真空乾燥した後、露点 -80°C 以下のグローブボックス内に1日放置した。これを、電解液とともに金属製容器に収容して、非水電解質電池を得た。なお、用いた電解液は、エチレンカーボネート（EC）とジメチルカーボネート（DMC）に LiPF_6 を溶解させたものであった。

[0134] （実施例2）

第1の絶縁層を構成する絶縁性無機材料として、平均粒径 $D50$ が $0.5\mu\text{m}$ のチタン酸リチウム粒子を使用したことを除いて、実施例1と同様に非水電解質電池を作製した。

[0135] （実施例3）

第1の絶縁層を構成する絶縁性無機材料として、平均粒径 $D50$ が $1\mu\text{m}$ のルチル型の二酸化チタン（ TiO_2 ）を使用したことを除いて、実施例1と同様に非水電解質電池を作製した。

[0136] （実施例4）

正極スラリーとして、実施例1で調製したものと同一のスラリーを用意した。

アルミナ含有スラリーとして、実施例 1 で調製したものと同一のスラリーを用意した。

[0137] 次に、図 22 を参照しながら説明した塗工方法により、以下の通り第 1 の電極を作製した。厚さ $15\ \mu\text{m}$ のアルミニウム箔上に、下層に正極スラリー、上層にアルミナ含有スラリーとなるように、かつ、上層のアルミナ含有スラリーがはみ出すように重ね塗りをし、乾燥を行った。これをアルミニウム箔の両面で行った。その後、ロールプレスを施した後に金型で打ち抜き、集電体の一側面から突出した複数の集電タブを備える第 1 の電極を得た。得られた第 1 の電極は、図 9 に示す第 1 の電極 1 と同様の構造を有していた。即ち、絶縁性無機材料層は、正極活物質含有層の端面と、複数の集電タブの表面及び裏面のそれぞれにおいて、当該端面と隣接する部分とを被覆していた。更に、絶縁性無機材料層は、正極活物質含有層それぞれの表面上を被覆していた。

[0138] 正極活物質含有層それぞれの厚さは $20\ \mu\text{m}$ 、正極活物質含有層上の絶縁性無機材料層の厚さは $3\ \mu\text{m}$ 、正極活物質含有層からはみ出してアルミニウム箔上に形成された絶縁性無機材料層の厚さは、 $20\ \mu\text{m}$ であった。

[0139] 次に、実施例 1 と同様の方法で負極を作製した。

その後、実施例 1 と同様の方法で非水電解質電池を作製した。

[0140] (実施例 5)

第 1 の絶縁層を構成する絶縁性無機材料として、平均粒径 D_{50} が $0.5\ \mu\text{m}$ のチタン酸リチウム粒子を使用したことを除いて、実施例 4 と同様に非水電解質電池を作製した。

[0141] (実施例 6)

第 1 の絶縁層を構成する絶縁性無機材料として、平均粒径 D_{50} が $1\ \mu\text{m}$ のルチル型の二酸化チタン (TiO_2) を使用したことを除いて、実施例 4 と同様に非水電解質電池を作製した。

[0142] (比較例)

第 1 の電極を作製する際に、絶縁性無機材料層の形成を省略したことを除

いて、実施例 1 と同様の方法で非水電解質電池を作製した。

[0143] <歩留まり評価>

実施例 1 に係る非水電解質電池を 50 個作製し、それぞれの非水電解質電池について内部抵抗測定を行い、抵抗値が 10 k Ω 以上である電池を良品と判断し、抵抗値が 10 k Ω 未満である電池を不良品と判断する場合の歩留まりを評価した。この結果、実施例 1 に係る非水電解質電池は、50 個全てが良品であった。即ち、実施例 1 に係る非水電解質電池の歩留まりは 100% であった。

[0144] 実施例 2～6 についても、実施例 1 と同様にそれぞれ 50 個の非水電解質電池を作製して歩留まりを評価したところ、いずれも歩留まりは 100% であった。

[0145] これに対して、比較例について 50 個の非水電解質電池を作製して歩留まりを評価したところ、良品は 16 個であり、不良品は 34 個であった。即ち、比較例に係る非水電解質電池の歩留まりは 32% であった。

[0146] 実施例 1～6 に係る非水電解質電池が含む正極は、いずれも、絶縁性無機材料層が、正極活物質含有層の端面と、この端面と隣接する正極集電タブ上の一部を被覆していたことから、負極集電体の端面が有するバリと、正極集電タブとが直接接触するのを抑制し、内部短絡を抑制できたと考えられる。

[0147] 以上に説明した少なくとも一つの実施形態及び実施例に係る電極では、第 1 の絶縁層が、第 1 の活物質含有層の第 1 端面の少なくとも一部と、第 1 の集電タブにおける第 1 端面と隣接する部分とを被覆している。それ故、高容量を得るために、当該電極及び対極としての第 2 の電極を渦巻き状に捲回するか又は積層させることにより電極群（積層体）を作製する際に、第 2 の電極が含む第 2 の集電体または第 2 の集電タブの端面がバリを有していたとしても、このバリが第 1 の電極の第 1 の集電タブに接触することを抑制することができる。その結果、高容量化を妨げる要因となる内部短絡を抑制することができる。

[0148] 本発明のいくつかの実施形態を説明したが、これらの実施形態は、例とし

て提示したものであり、発明の範囲を限定することは意図していない。これら新規な実施形態は、その他の様々な形態で実施されることが可能であり、発明の要旨を逸脱しない範囲で、種々の省略、置き換え、変更を行うことができる。これら実施形態やその変形は、発明の範囲や要旨に含まれるとともに、特許請求の範囲に記載された発明とその均等の範囲に含まれる。

符号の説明

[0149] 1…第1の電極、1 a…第1の集電体、1 b…第1の活物質含有層、1 c…第1の集電タブ、2…第2の電極、2 a…第2の集電体、2 b…第2の活物質含有層、2 c…第2の集電タブ、3…セパレータ、4…第1の絶縁層、5…第2の絶縁層、10…二次電池、11…外装部材、12…電極群、13…第1の電極端子、14…第2の電極端子、20…外装部材、23…正極端子、24…負極端子、40…第1の表面、41…第1の裏面、42…第2の表面、43…第2の裏面、45…第2の集電体の端面、46…第2の集電タブの第2の活物質含有層との境界を含む部分、51…第1方向、52、55…第1端面、53、56…第2端面、54…第2方向、100…積層体。

請求の範囲

- [請求項1] 表面及び裏面と、前記表面及び前記裏面と交差する第1側面とを有する第1の集電体と、
- 前記第1の集電体の前記第1側面の少なくとも一部から第1方向に延出した第1の集電タブと、
- 表面及び裏面を有し、前記裏面が、前記第1の集電体の前記表面及び／又は前記裏面のうちの少なくとも前記第1側面と隣接する端部に担持され、前記第1の集電タブと隣接する第1端面を含む第1の活物質含有層と、
- 無機材料を含む第1の絶縁層とを含み、
- 前記第1の絶縁層が、少なくとも、前記第1の活物質含有層の前記第1端面の少なくとも一部と、前記第1の集電タブの前記表面及び前記裏面のうちの前記第1端面と隣接する部分とを被覆している電極。
- [請求項2] 前記第1の絶縁層が、前記第1の活物質含有層の前記表面をさらに被覆する、請求項1に記載の電極。
- [請求項3] 前記第1の集電タブは、前記第1側面の複数箇所から第1方向に延出している、請求項1又は2に記載の電極。
- [請求項4] 前記第1の集電タブは、前記第1側面の全体から第1方向に延出している、請求項1又は2に記載の電極。
- [請求項5] 請求項1～4のいずれか1項に記載の電極である第1電極と、
- 前記第1電極の対極としての第2電極とを備えた積層体であって、
- 前記第2電極は、
- 表面及び裏面を有する第2の集電体と、
- 前記第2の集電体から、前記第1方向に沿って延出するか、又は、前記第1方向とは反対側に向かって延出する第2の集電タブと、
- 表面及び裏面を有し、前記裏面が、前記第2の集電体の前記表面及び前記裏面のうちの少なくとも一部に担持され、前記第1の活物質含有層と対向する第2の活物質含有層とを含み、

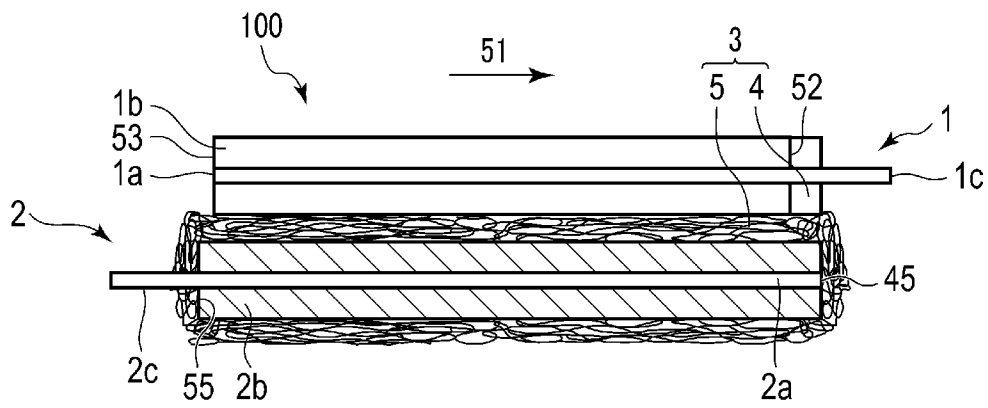
前記積層体は、前記第 1 の活物質含有層と前記第 2 の活物質含有層の間に配置された、有機繊維を含む第 2 の絶縁層を更に含む、積層体。

[請求項6] 前記第 1 の絶縁層は、前記第 2 の活物質含有層を介して前記第 2 の集電体と向き合う第 1 部分と、前記第 2 の集電体と向き合わない第 2 部分とを含む請求項 5 に記載の積層体。

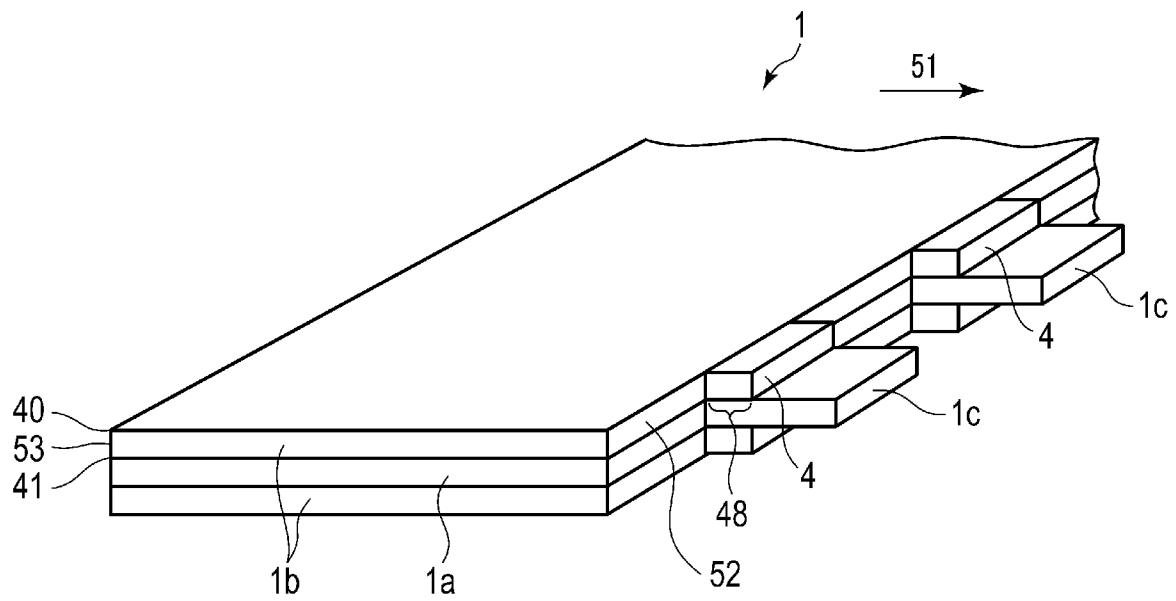
[請求項7] 前記第 2 の活物質含有層が、活物質としてチタン含有酸化物を含む、請求項 5 又は 6 に記載の積層体。

[請求項8] 請求項 5 ～ 7 のいずれか 1 項に記載の積層体を含む二次電池。

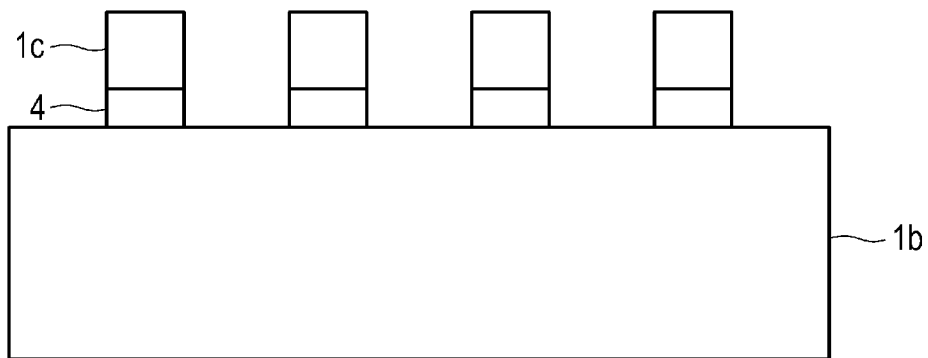
[図1]



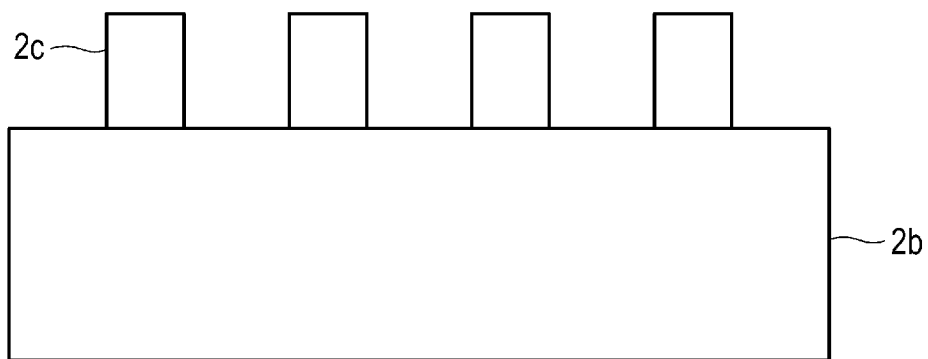
[図2]



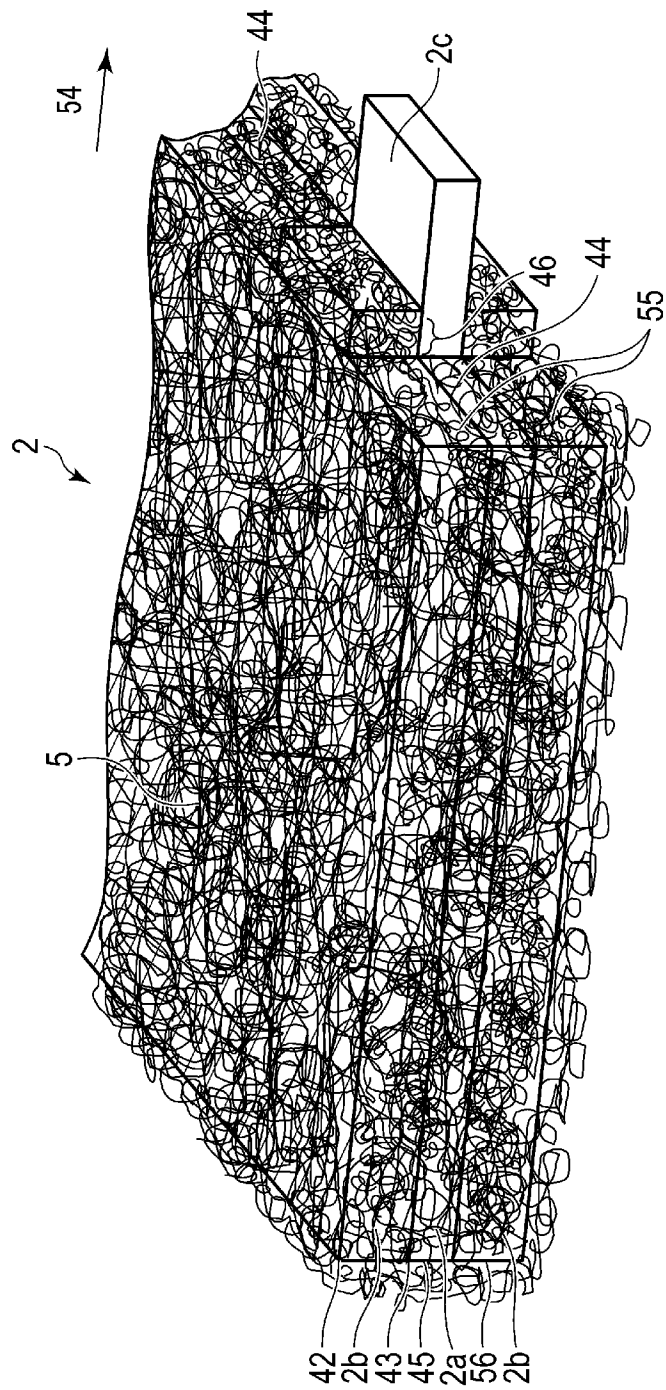
[図3]



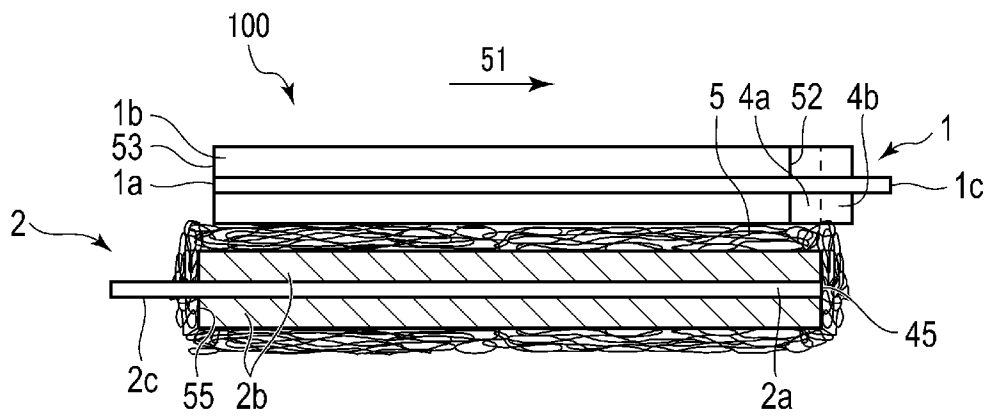
[図4]



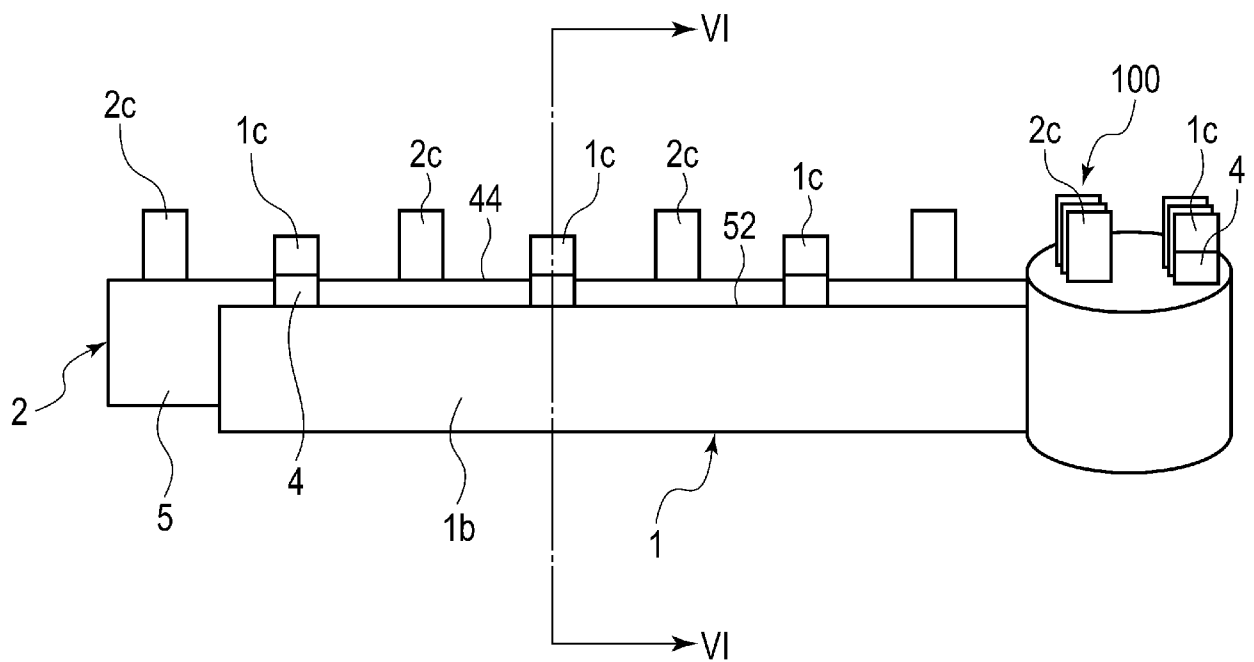
[図5]



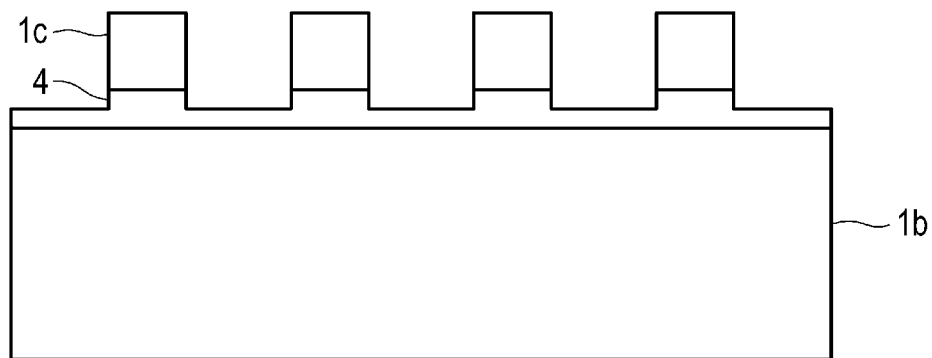
[図6]



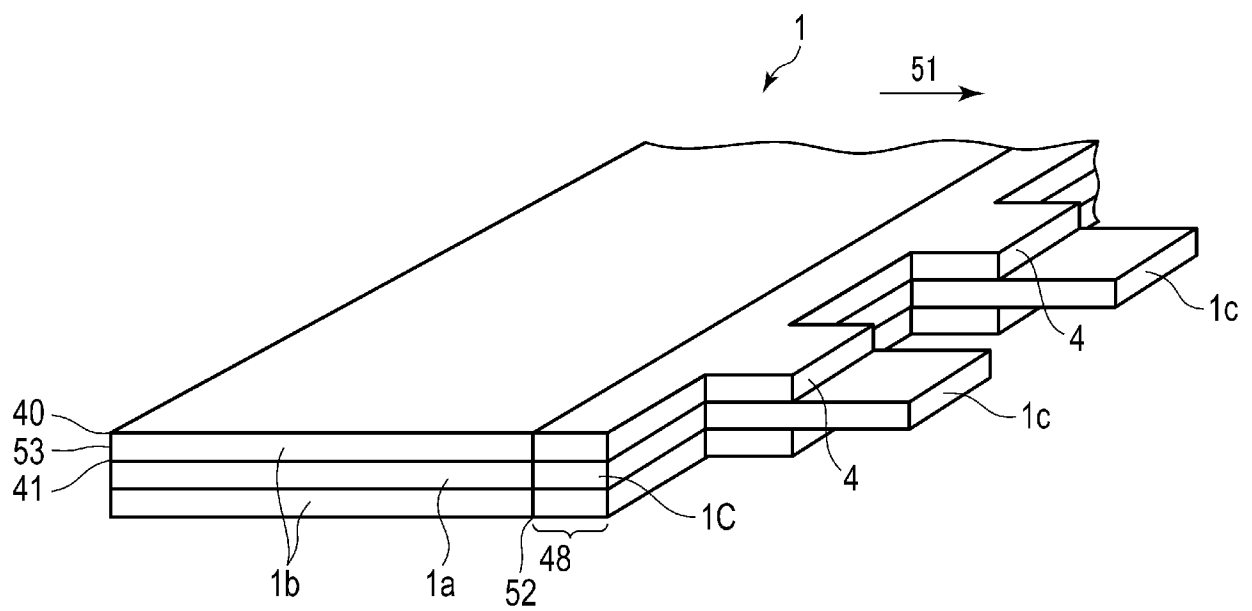
[図7]



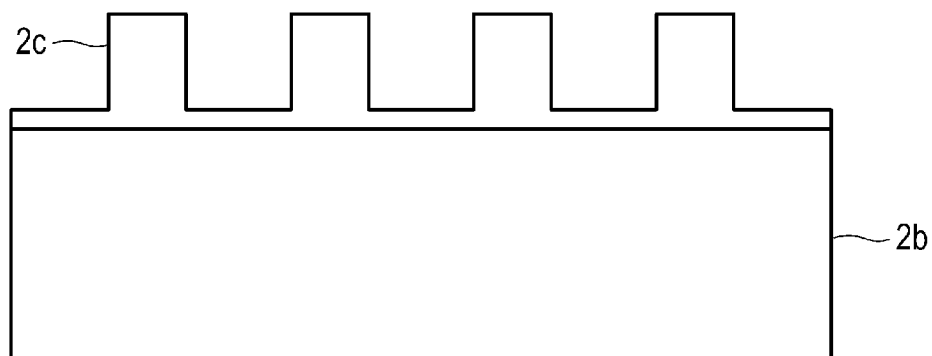
[図12]



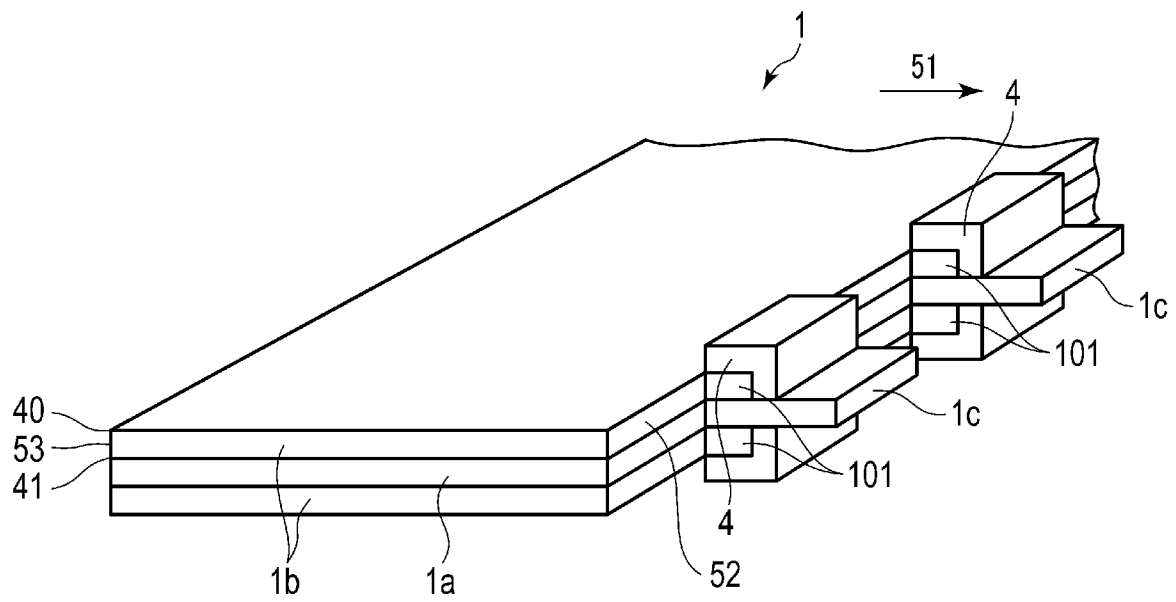
[図13]



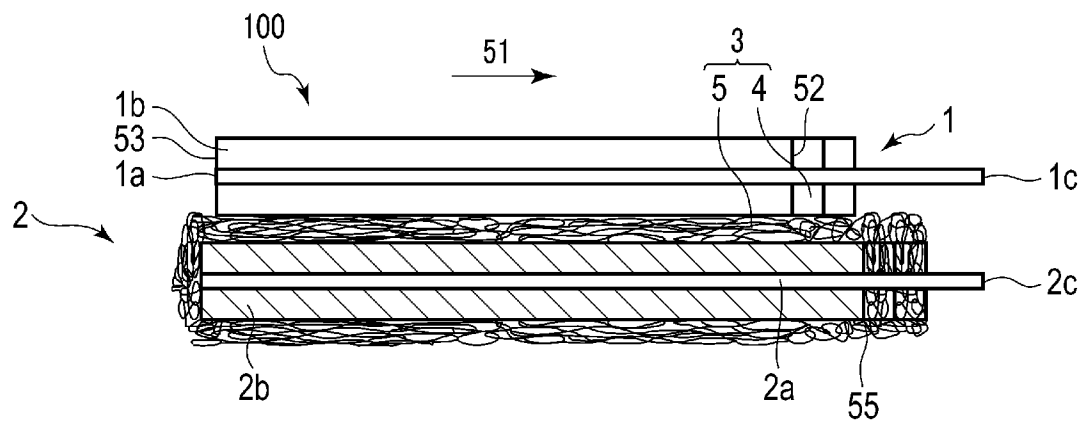
[図14]



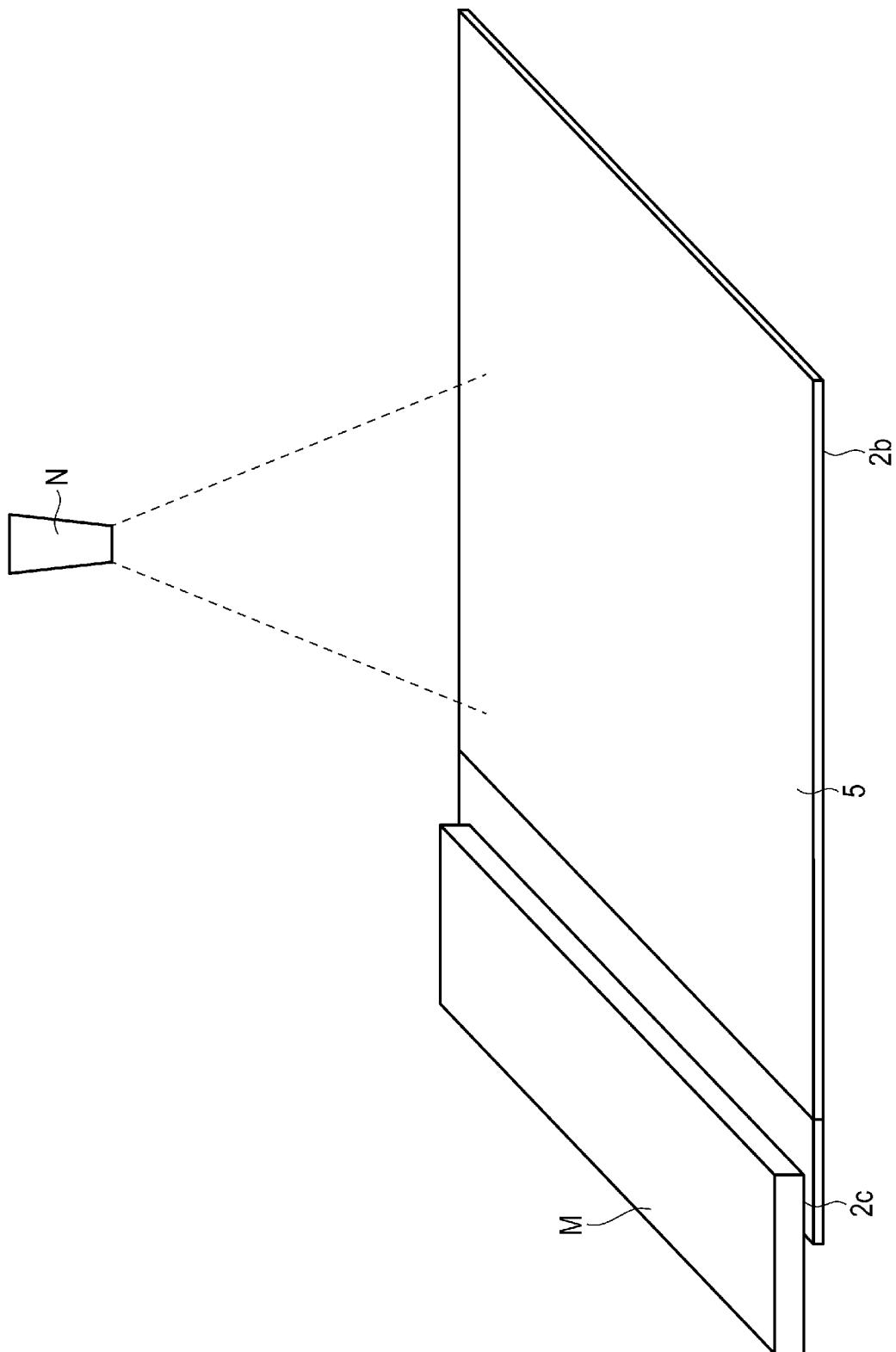
[図16]



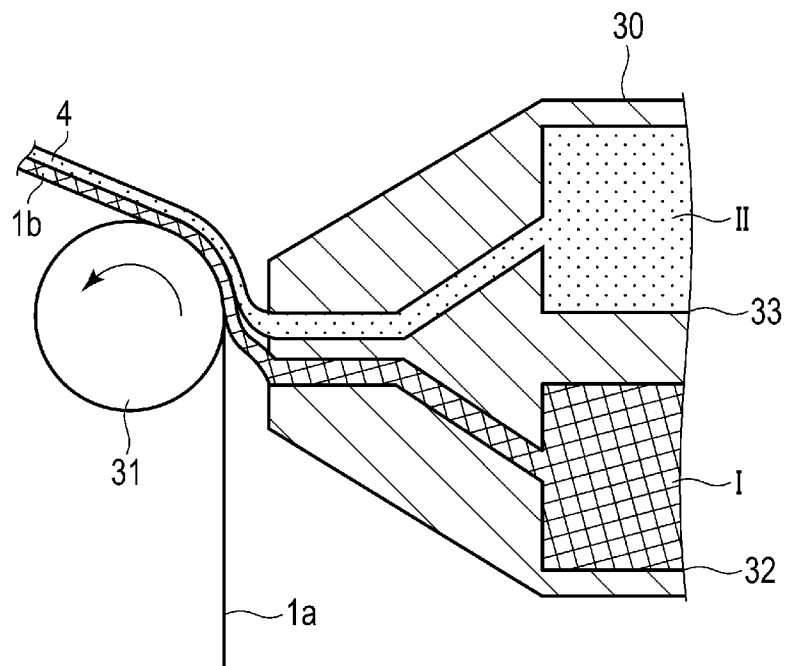
[図17]



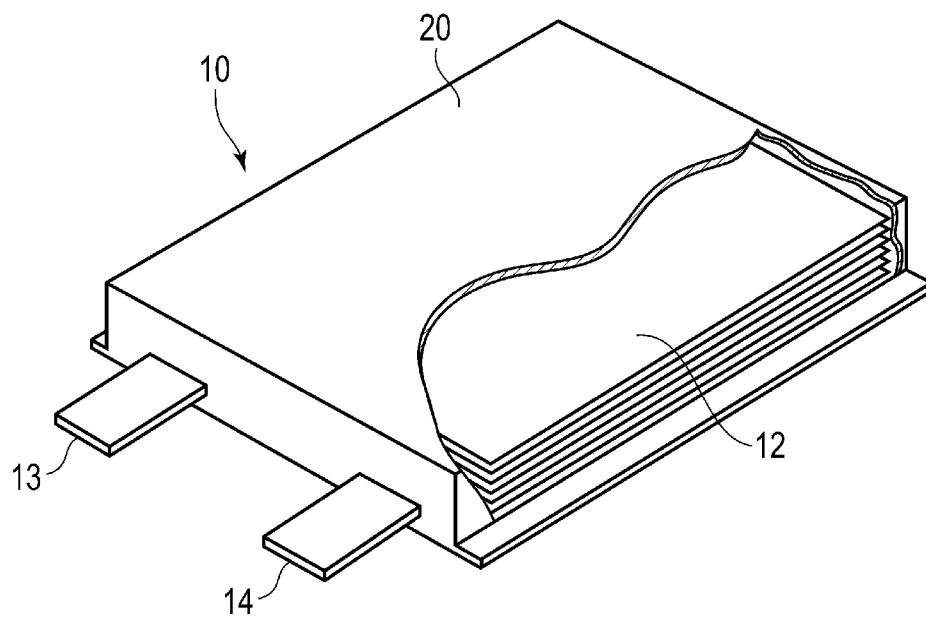
[図18]



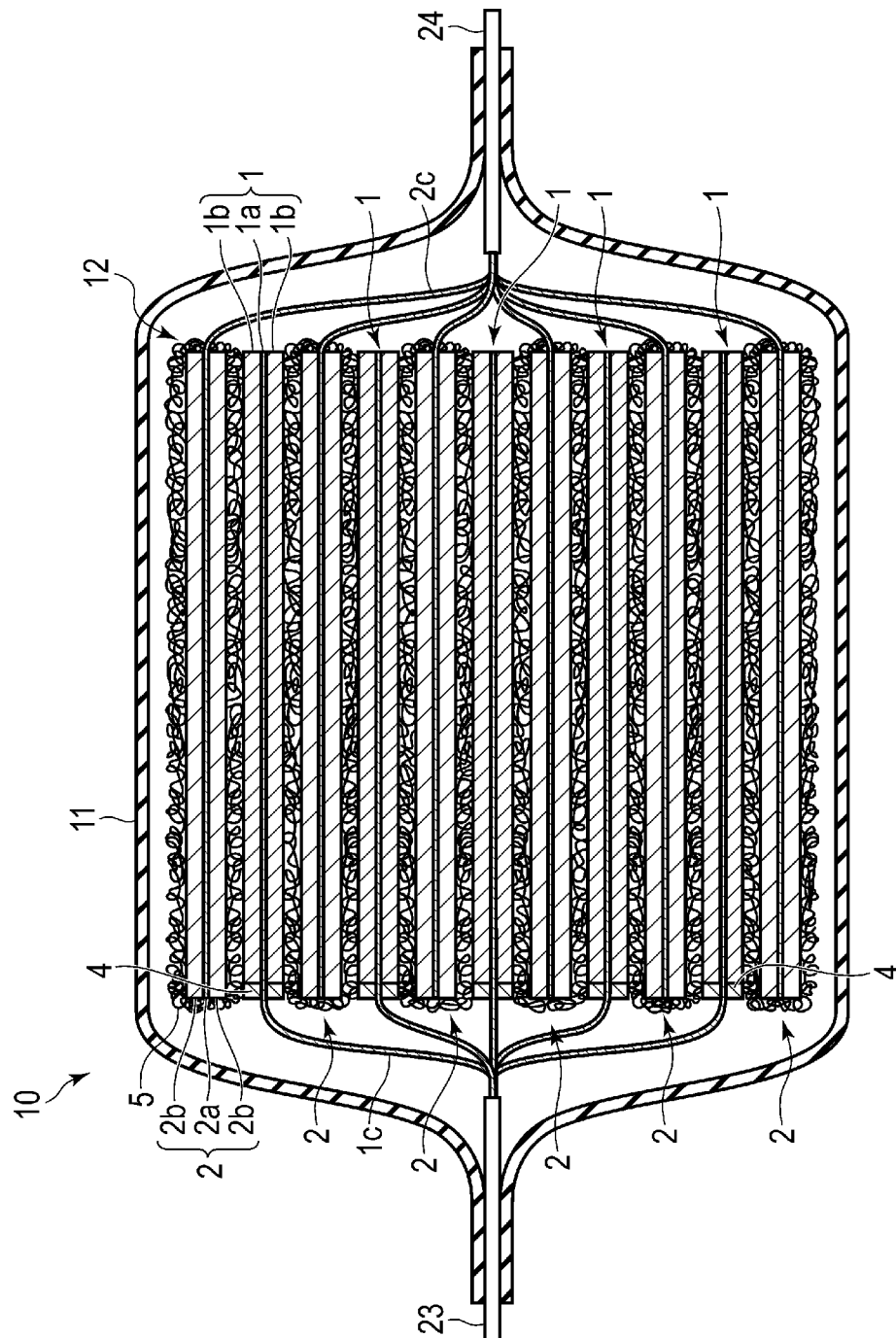
[図19]



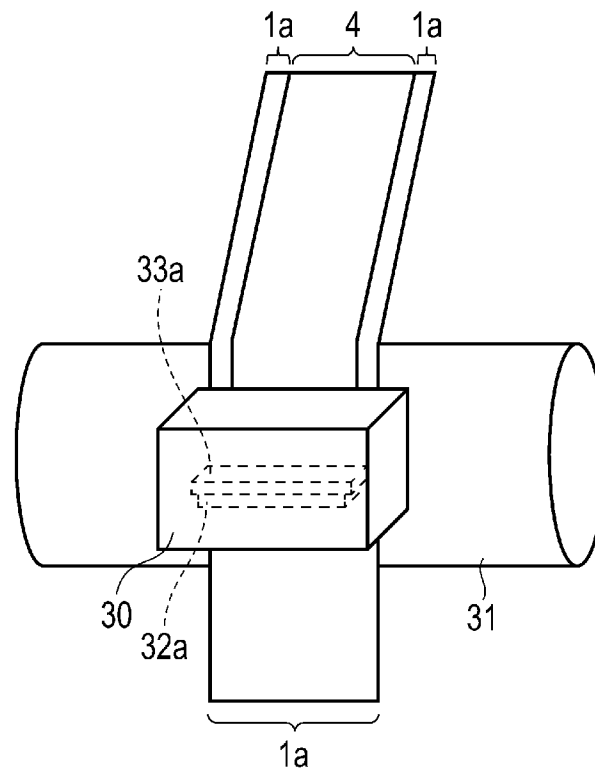
[図20]



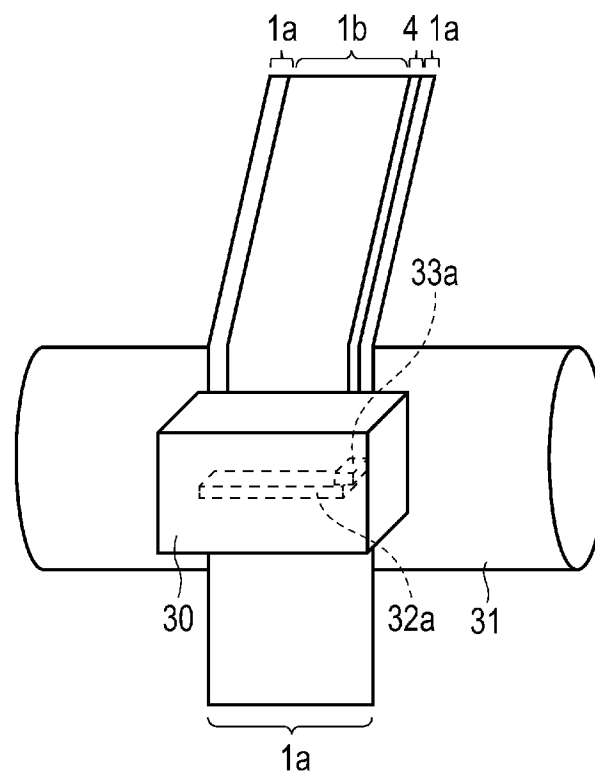
[図21]



[図22]



[図23]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/012460

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int. Cl. H01M4/13 (2010.01) i, H01M4/485 (2010.01) i, H01M10/052 (2010.01) i
FI: H01M4/13, H01M10/052, H01M4/485

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int. Cl. H01M4/13, H01M4/485, H01M10/052

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996

Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020

Registered utility model specifications of Japan 1996-2020

Published registered utility model applications of Japan 1994-2020

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2017/057762 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 06	1-2
Y	April 2017, claims 1, 3, paragraphs [0019]-[0027], [0034], fig. 1, 3	3-8
X	JP 2015-72758 A (HITACHI MAXELL, LTD.) 16 April	1-2
Y	2015, claims 1-2, paragraphs [0058], [0093]-[0096]	3, 5-8
Y	JP 2018-137079 A (TDK CORP.) 30 August 2018, claim 1, paragraphs [0018], [0041]	3, 5-8
Y	JP 2018-56099 A (LITHIUM ENERGY & POWER GMBH & CO KG) 05 April 2018, claim 1, paragraphs [0086], [0094]	4-8

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☒ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
29.05.2020

Date of mailing of the international search report
16.06.2020

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/012460

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2014-107061 A (TOSHIBA CORP.) 09 June 2014, claim 1, paragraphs [0002], [0056], [0057]	5-8
A	JP 2016-119183 A (TOYOTA MOTOR CORP.) 30 June 2016	1-8
A	JP 2013-51035 A (GS YUASA INTERNATIONAL LTD.) 14 March 2013	1-8
A	JP 2017-54706 A (TOSHIBA CORP.) 16 March 2017	1-8
A	KR 10-2012-0095039 A (LG CHEMICAL LTD.) 28 August 2012	1-8

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/012460

Patent Documents referred to in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
WO 2017/057762 A1	06.04.2017	TW 201729451 A	
JP 2015-72758 A	16.04.2015	(Family: none)	
JP 2018-137079 A	30.08.2018	(Family: none)	
JP 2018-56099 A	05.04.2018	(Family: none)	
JP 2014-107061 A	09.06.2014	(Family: none)	
JP 2016-119183 A	30.06.2016	(Family: none)	
JP 2013-51035 A	14.03.2013	US 2013/0048340 A1	
		CN 102969480 A	
		KR 10-2013-0024766 A	
JP 2017-54706 A	16.03.2017	(Family: none)	
KR 10-2012-0095039 A	28.08.2012	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） H01M 4/13(2010.01)i; H01M 4/485(2010.01)i; H01M 10/052(2010.01)i FI: H01M4/13; H01M10/052; H01M4/485		
B. 調査を行った分野		
調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC）） H01M4/13; H01M4/485; H01M10/052		
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020年		
国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）		
C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2017/057762 A1（積水化学工業株式会社）06.04.2017（2017-04-06） 請求項1, 3、段落0019-0027, 0034、図1, 3	1-2
Y		3-8
X	JP 2015-72758 A（日立マクセル株式会社）16.04.2015（2015-04-16） 請求項1-2、段落0058, 0093-0096	1-2
Y		3, 5-8
Y	JP 2018-137079 A（TDK株式会社）30.08.2018（2018-08-30） 請求項1、段落0018, 0041	3, 5-8
Y	JP 2018-56099 A（リチウム エナジー アンド パワー ゲゼルシャフト ミット ベシュレンクテル ハフツング ウント コンパニー コマンデイトゲゼルシャフ ト）05.04.2018（2018-04-05） 請求項1、段落0086, 0094	4-8
Y	JP 2014-107061 A（株式会社東芝）09.06.2014（2014-06-09） 請求項1、段落0002, 0056-0057	5-8
A	JP 2016-119183 A（トヨタ自動車株式会社）30.06.2016（2016-06-30）	1-8
☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。 ☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。		
* 引用文献のカテゴリー “A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの “E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの “L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す） “O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 “P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献 “T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 29.05.2020		国際調査報告の発送日 16.06.2020
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 松村 駿一 4X 1148 電話番号 03-3581-1101 内線 3435

C. 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2013-51035 A (株式会社 G S ユアサ) 14.03.2013 (2013 - 03 - 14)	1-8
A	JP 2017-54706 A (株式会社 東芝) 16.03.2017 (2017 - 03 - 16)	1-8
A	KR 10-2012-0095039 A (LG CHEMICAL LTD.) 28.08.2012 (2012 - 08 - 28)	1-8

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/012460

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2017/057762	A1	06.04.2017	TW	201729451	A	
JP	2015-72758	A	16.04.2015	(ファミリーなし)			
JP	2018-137079	A	30.08.2018	(ファミリーなし)			
JP	2018-56099	A	05.04.2018	(ファミリーなし)			
JP	2014-107061	A	09.06.2014	(ファミリーなし)			
JP	2016-119183	A	30.06.2016	(ファミリーなし)			
JP	2013-51035	A	14.03.2013	US	2013/0048340	A1	
				CN	102969480	A	
				KR	10-2013-0024766	A	
JP	2017-54706	A	16.03.2017	(ファミリーなし)			
KR	10-2012-0095039	A	28.08.2012	(ファミリーなし)			