

CONFÉDÉRATION SUISSE
INSTITUT FÉDÉRAL DE LA PROPRIÉTÉ INTELLECTUELLE

(11) **CH** **718 219 A2**

Demande de brevet pour la Suisse et le Liechtenstein

Traité sur les brevets, du 22 décembre 1978, entre la Suisse et le Liechtenstein

(51) Int. Cl.: **H01M 50/417** (2021.01)
H01M 50/429 (2021.01)
B32B 23/08 (2006.01)
B32B 23/02 (2006.01)
B32B 27/12 (2006.01)
B32B 27/32 (2006.01)

(12) **DEMANDE DE BREVET**

(21) Numéro de la demande: 01679/20

(22) Date de dépôt: 29.12.2020

(43) Demande publiée: 30.06.2022

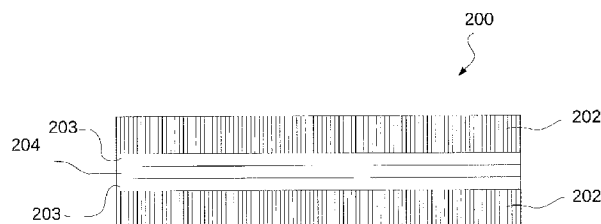
(71) Requérant:
Renata AG, Kreuzenstrasse 30
4452 Itingen (CH)

(72) Inventeur(s):
Oussama El Baradai, 4057 Basel (CH)
Pascal Haering, 4132 Muttenz (CH)

(74) Mandataire:
ICB Ingénieurs Conseils en Brevets SA,
Faubourg de l'Hôpital 3
2001 Neuchâtel (CH)

(54) **Séparateur multicouche pour une batterie.**

(57) La présente invention concerne un séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion ayant une structure comprenant au moins une couche de substrat à base de polyoléfine (204) formant la couche intérieure du séparateur multicouche (200); une couche de résine (203) empilée sur les deux surfaces de la couche de substrat à base de polyoléfine (204); la couche de résine (203) étant formée à partir d'une polyoléfine; et une couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) empilée sur la surface de chaque couche de résine (203).



Description

Domaine de l'invention

[0001] La présente invention concerne un séparateur conducteur ionique multicouche pour une batterie et un procédé de fabrication d'un tel séparateur multicouche.

[0002] Plus spécifiquement, la présente invention concerne un séparateur conducteur ionique multicouche pour une batterie lithium-ion et un procédé de fabrication d'un tel séparateur.

Contexte de l'invention

[0003] Au cours de ces dernières décennies, un intérêt croissant a été porté aux batteries lithium-ion en tant que technologie mature pour remplacer des combustibles fossiles et garantir une source d'énergie propre et durable assurant une grande densité d'énergie et une longue durée de vie.

[0004] Parmi les composants d'une batterie, le séparateur conducteur ionique joue un rôle essentiel pour éviter tout court-circuit et pour garantir un bon fonctionnement de la batterie.

[0005] En effet, le séparateur inséré entre les deux électrodes est électriquement isolé et conducteur ionique. En outre, le séparateur doit maintenir les propriétés susmentionnées, en particulier dans des conditions dangereuses, comme à hautes températures.

[0006] Conventionnellement, les séparateurs de batteries lithium-ion sont constitués d'une couche de polyoléfine, comme du polypropylène (PP) ou du polyéthylène (PE) ou une combinaison de ces composés.

[0007] Dans le domaine de la conception de batterie, il est bien connu que l'utilisation d'une couche de polyoléfine, en tant que séparateur, assure un effet d'arrêt à une température élevée, pour éviter un emballement thermique catastrophique. Néanmoins, la mouillabilité de cette couche de polyoléfine est faible.

[0008] Cette propriété de mouillabilité est beaucoup plus critique et problématique pour des batteries lithium-ion dans lesquelles l'électrolyte liquide est conventionnellement utilisé pour une durée de vie fiable.

[0009] La résistance au rétrécissement du séparateur est également faible en raison de la basse température de fusion du PE et du PP, entre 130°C et 160°C, ce qui exclut l'utilisation de tels séparateurs à une température élevée.

[0010] Au cours de ces dernières années, plusieurs efforts ont été axés sur le dépassement de ces limitations de faible mouillabilité et de fort rétrécissement du séparateur à base de polyoléfine sans affecter les propriétés susmentionnées, en particulier l'effet d'arrêt.

[0011] „A low cost shutdown sandwich-like composite membrane with superior thermos-stability for lithium-ion battery“, Li et al, Journal of Membrane Science 542, page 1-7, 2017, décrit une membrane poreuse de polybenzimidazole (PBI) en tant que séparateur pour batteries lithium-ion ayant une grande stabilité thermique et une forte mouillabilité d'électrolyte. Une couche PE conventionnelle est immergée dans une solution de PBI et séchée dans une étuve à vide à 70 °C pendant 24 heures. La membrane poreuse de PBI obtenue assure une grande conductivité ionique et une grande stabilité thermique sans réduction dimensionnelle jusqu'à 200 °C. Néanmoins, la préparation de la membrane poreuse de PBI exige plusieurs longues étapes de fabrication impliquant l'utilisation de processus de chimie organique, de purification et de précipitation qui nuisent considérablement au développement et à l'évolutivité du processus.

[0012] Pour promouvoir le développement d'une chimie à faible impact environnemental, le document „Porous cellulose diacetate-SiO₂ composite coating on polyethylene separator for high-performance lithium-ion battery“, Chen et al, Carbohydrate Polymers 147, pages 517-524, 2016, propose un séparateur polyoléfine comprenant une couche de PE revêtue d'un enduit composite constitué par la combinaison de di-acétate de cellulose et de SiO₂ (dioxyde de silicium).

[0013] Le rapport de poids du SiO₂ a une influence directe sur la taille de pores du séparateur composite. La quantité de SiO₂ doit être établie sur mesure et avec précaution pour éviter la formation de grandes tailles de pores susceptibles de promouvoir une migration de dendrites dans la structure du séparateur et d'engendrer des défaillances de batterie.

[0014] La même approche a été suivie dans le document „Ethylcellulosecoated polyolefin separators for lithium-ion batteries with improved safety performance“, Xiong et al, Carbohydrates Polymers 101, pages 1140-1146, 2014. Ce document propose une solution pour améliorer considérablement la mouillabilité, la durée de vie et la résistance au rétrécissement thermique d'un séparateur à base de polyoléfine grâce à l'application d'une couche d'éthylcellulose comme revêtement.

[0015] Néanmoins, la dimension des pores de la couche enduite telle que proposée est d'environ 3 µm, ce qui reste très éloigné des exigences sousmicrométriques requises des séparateurs conducteurs ioniques dans le domaine des batteries lithium-ion.

[0016] Le document US 2014 0 335 424 divulgue un séparateur pour batterie secondaire incluant des nanofibres de cellulose. Le séparateur est une structure poreuse composée de micropores formés entre les nanofibres de cellulose. L'utilisation de nanofibres de cellulose améliore la mouillabilité et la stabilité thermique des séparateurs en comparaison avec un séparateur à base de polyoléfine conventionnel. Néanmoins, la structure poreuse a une porosité qui peut atteindre

80 % et la taille de pores peut aller jusqu'à 10 µm. Toutefois, ces valeurs ne sont toujours pas conformes aux exigences des batteries lithium-ion, et de telles solutions ne sont pas directement applicables aux batteries lithium-ion.

[0017] Le document US 2018 0 013 117 concerne un séparateur pour une batterie secondaire, qui est capable d'améliorer la fonction d'arrêt d'un séparateur multicouche à base de cellulose. Le séparateur multicouche comprend un substrat formé de nanofibres à base de cellulose et de nanoparticules de polyéthylène, et une couche de résine empilée sur une surface des deux surfaces du substrat, la résine étant formée de polyoléfine. L'utilisation de nanofibres ayant des tailles nanométriques „ferme“ la structure de pores du séparateur et réduit la pénétration de dendrites. Néanmoins, le recouvrement avec une résine de polyoléfine des surfaces de substrat de nanocellulose réduit la rétention d'électrolytes et n'assure pas une répartition centrée de tailles de pores, comme dans le cas d'un séparateur à base de membrane, comme par exemple la membrane poreuse de PBI.

[0018] Dans le contexte susmentionné, un objectif de la présente invention est au moins d'atténuer les inconvénients identifiés ci-dessus et d'autres inconvénients associés à l'état de la technique.

Résumé de l'invention

[0019] L'objectif fixé ci-dessus est atteint au moyen du séparateur multicouche pour une batterie lithium-ion et d'un procédé de fabrication d'un tel séparateur multicouche selon les revendications indépendantes, et par les modes de réalisation selon les revendications dépendantes.

[0020] Plus spécifiquement, le premier aspect de la présente invention concerne un séparateur multicouche pour une batterie lithium-ion ayant une structure comprenant au moins une couche de substrat à base de polyoléfine formant la couche intérieure du séparateur multicouche, une couche de résine empilée sur les deux surfaces de la couche de substrat à base de polyoléfine, la couche de résine étant formée à partir d'une polyoléfine, et une couche extérieure à base de fibres de cellulose empilée sur la surface de chaque couche de résine.

[0021] Le séparateur multicouche selon l'invention incluant des couches de cellulose en tant que couches les plus extérieures de la structure multicouche augmente la stabilité thermique et fournit une plus grande rétention d'électrolytes.

[0022] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine est constituée d'au moins un élément sélectionné dans le groupe se composant de polyéthylène, de polypropylène ou d'un mélange comprenant sensiblement du polypropylène ou du polyéthylène.

[0023] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine est constituée de polyéthylène à faible densité (LPDE), de polyéthylène à faible densité linéaire (LLDPE) ou d'un mélange comprenant sensiblement du LPDE, du LLDPE ou un mélange de ceux-ci.

[0024] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine est constituée d'un copolymère aléatoire d'éthylène et d'alpha-oléfines sélectionnées dans le groupe se composant de co-alpha-oléfines ayant une teneur en alpha-oléfines polymérisées d'environ 20 % en poids, et de préférence de 16 % en poids.

[0025] De préférence, la couche de résine est constituée d'au moins un élément sélectionné dans le groupe se composant de polyéthylène, de polypropylène ou d'un mélange comprenant sensiblement du polypropylène ou du polyéthylène.

[0026] De préférence, la couche extérieure à base de fibres de cellulose est constituée d'au moins un élément sélectionné dans le groupe se composant d'éthyle cellulose, de méthyle cellulose, d'hydroxypropyle cellulose, d'hydroxyéthyle cellulose, d'hydroxypropyle méthyle cellulose, d'hydroxyéthyle méthyle cellulose, de carboxyméthyle cellulose, d'acétate de cellulose, de tri-acétate de cellulose, d'acétate phtalate de cellulose, de nitrocellulose, d'acétate butylate de cellulose, d'acétate propionate de cellulose, d'ammonium de ceux-ci, et sel de ceux-ci.

[0027] De préférence, les fibres de cellulose de la couche extérieure à base de fibres de cellulose sont des fibres de cellulose affinées, des microfibrilles de cellulose, des nanofibrilles de cellulose, de la lignine et des dérivées de celles-ci.

[0028] De préférence, la couche extérieure à base de fibres de cellulose a une taille de fibres comprise entre 2 nm et 100 nm de longueur.

[0029] De préférence, les fibres de cellulose de la couche extérieure à base de fibres de cellulose sont des fibres de cellulose affinées ayant une longueur de 200 nm.

[0030] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine a une épaisseur de 5 à 15 µm, la couche de résine a une épaisseur de 12 à 75 µm, de préférence 25 µm, et la couche extérieure à base de fibres de cellulose a une épaisseur de 1 à 5 µm, de préférence 2 µm.

[0031] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine a un point de fusion de 80 à 124 °C et la couche de résine a un point de fusion de 130 à 160 °C.

[0032] De préférence, la couche de résine est empilée par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique ou un procédé de filtration.

[0033] De préférence, la couche extérieure à base de fibres de cellulose est empilée par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique, un procédé de filtration ou un procédé de revêtement à fentes („slot dye coating method“ en langue anglaise).

[0034] En outre, le deuxième aspect de la présente invention est une batterie lithium-ion comprenant un séparateur multicouche selon l'invention.

[0035] En outre, le troisième aspect de la présente invention concerne un procédé de fabrication d'un séparateur multicouche pour une batterie lithium-ion, ledit procédé comprenant les étapes suivantes :

- une étape de formation d'une couche de substrat à base de polyoléfine ;
- une étape d'empilement d'une couche de résine formée d'une polyoléfine sur les deux surfaces de la couche de substrat à base de polyoléfine formée à l'étape précédente, par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique ou un procédé de filtration ;
- une étape d'empilement d'une couche extérieure à base de fibres de cellulose sur la surface de chaque couche de résine par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique, un procédé de filtration ou un procédé de revêtement à fentes.

[0036] De préférence, l'étape de la formation d'une couche de substrat à base de polyoléfine comprend :

- une sous-étape de formation d'un mélange d'un composé de polyéthylène à faible densité linéaire avec des particules de carbonate de calcium ;
- une sous-étape d'extrusion dudit mélange dans un film précurseur ;
- une sous-étape de refroidissement et de contrainte dudit film précurseur afin d'obtenir ladite couche de substrat à base de polyoléfine.

[0037] De préférence, le mélange comprend entre 40 % et 45 % en poids de polyéthylène de faible densité linéaire et 50 % en poids de carbonate de calcium.

[0038] De préférence, l'étape de l'empilement d'une couche extérieure à base de fibres de celluloses est une étape d'empilement d'une couche de cellulose à nanofibrilles sur la surface de chaque couche de résine.

[0039] D'autres avantages et caractéristiques de modes de réalisation vont devenir apparents à la lecture de la description détaillée ci-après en référence aux dessins annexés.

Brève description des dessins

[0040] La présente invention va être décrite en détail ci-après, à titre d'exemple et sans caractère limitatif, en référence au dessin annexé, sur lequel :

- la figure 1 est une vue en coupe transversale d'un séparateur multicouche pour une batterie lithium-ion selon un mode de réalisation de la présente invention.

Description détaillée de l'invention

[0041] La figure 1 est une vue en coupe transversale d'un séparateur multicouche 10 pour une batterie lithium-ion selon un mode de réalisation de la présente invention.

[0042] Le séparateur multicouche 200 est un séparateur conducteur ionique apte à être inséré entre les deux électrodes de la batterie lithium-ion afin d'assurer une isolation électrique et une conduction ionique.

[0043] Le séparateur multicouche 200 de l'invention présente une structure comprenant :

- une couche de substrat à base de polyoléfine 204 formant la couche intérieure de la structure multicouche,
- une couche de résine 203 empilée sur les deux surfaces de la couche de substrat à base de polyoléfine 204, la couche de résine 203 étant formée à partir d'une polyoléfine,
- une couche extérieure à base de fibres de cellulose 202 empilée sur la surface de chaque couche de résine 203.

[0044] Ainsi, le séparateur multicouche 200 de l'invention présente une structure comprenant deux couches extérieures à base de fibres de cellulose 202 et trois couches intérieures à base de polyoléfine 203, 204, 203 prises en sandwich entre les deux couches extérieures à base de fibres de cellulose 202.

[0045] La couche de substrat à base de polyoléfine 204 fournit un effet d'arrêt et peut être au moins un élément sélectionné dans le groupe se composant de polyéthylène, de polypropylène ou d'un mélange comprenant sensiblement du polypropylène ou du polyéthylène.

[0046] De préférence, pour obtenir des températures d'arrêt inférieures, la couche de substrat à base de polyoléfine 204 peut être du polyéthylène à faible densité (LPDE), du polyéthylène à faible densité linéaire (LLDPE) ou un mélange comprenant sensiblement du LPDE, du LLDPE ou un mélange de ceux-ci.

[0047] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine 204 peut être au moins élément sélectionné dans le groupe se composant d'un copolymère aléatoire d'éthylène et d'alpha-oléfines sélectionnées dans le groupe se composant

de co-alpha-oléfinés ayant une teneur en alpha-oléfinés polymérisés d'environ 20 % en poids, et de préférence de 16 % en poids.

[0048] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine 204 peut inclure des copolymères d'éthylène-butène et des copolymères d'éthylène-hexène.

[0049] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine 204 a un point de fusion de 80 à 124 °C.

[0050] La couche de résine à base de polyoléfine 203 fournit des propriétés mécaniques supérieures (plus grande résistance à la perforation) et peut être au moins élément sélectionné dans le groupe se composant de polyéthylène, de polypropylène ou d'un mélange comprenant sensiblement du polypropylène ou du polyéthylène.

[0051] De préférence, le polyéthylène peut être du polyéthylène à faible densité (LPDE), du polyéthylène à faible densité linéaire (LLDPE) ou un mélange comprenant sensiblement du LPDE, du LLDPE ou un mélange de ceux-ci.

[0052] De préférence, la couche de résine à base de polyoléfine 203 a un point de fusion de 130 à 160 °C.

[0053] L'épaisseur de la couche de résine 203 peut être de 12 à 75 µm et l'épaisseur de la couche de substrat à base de polyoléfine 204 peut être de 5 à 15 µm.

[0054] De préférence, la couche de substrat à base de polyoléfine 204 est du polyéthylène et la couche de résine à base de polyoléfine 203 est du polypropylène.

[0055] La couche de résine 203 peut être préparée sous la forme de film, et elle peut être empilée sur les deux surfaces de la couche de substrat à base de polyoléfine 204 par un procédé de stratification. Dans le cas d'un procédé de revêtement général, une résine polymérique est fondue dans un solvant puis appliquée, mais ce procédé présente des inconvénients de longue durée de traitement et de faible productivité. Puisque la couche de résine selon l'invention est préparée sous la forme de film et empilée par un procédé de stratification, il n'est pas nécessaire d'utiliser un solvant, ce qui simplifie le processus de préparation.

[0056] En outre, puisque la couche de résine 203 est préparée séparément, des caractéristiques comme l'épaisseur, la porosité, la composition et des éléments similaires de la couche de résine peuvent être facilement ajustés.

[0057] Dans un autre mode de réalisation, la couche de résine 203 peut être préparée sous la forme de film, et elle peut être empilée sur les deux surfaces de la couche de substrat à base de polyoléfine 204 par un procédé de pression hydraulique ou par un procédé de filtration.

[0058] Les couches extérieures 202 sont constituées de fibres de cellulose d'un groupe se composant d'éthyle cellulosique, de méthyle cellulosique, d'hydroxypropyle cellulosique, d'hydroxyéthyle cellulosique, d'hydroxypropyle méthyle cellulosique, d'hydroxyéthyle méthyle cellulosique, de carboxyméthyle cellulosique, d'acétate de cellulose, de tri-acétate de cellulose, d'acétate phtalate de cellulose, de nitrocellulose, d'acétate butylate de cellulose, d'acétate propionate de cellulose, d'ammonium de ceux-ci, et sel de ceux-ci.

[0059] Les fibres de cellulose sont de préférence des fibres de cellulose affinées, des microfibrilles de cellulose, des nanofibrilles de cellulose, de la lignine et des dérivées de celles-ci.

[0060] Les fibres de cellulose

[0061] Les fibres de cellulose de la couche extérieure 203 ont une longueur inférieure ou égale à 2 mm.

[0062] De préférence, les fibres de cellulose ont une longueur comprise entre environ 2 mm et environ 100 nm afin d'éviter la migration de dendrites dans la structure du séparateur.

[0063] De préférence, les fibres de cellulose de la couche extérieure 203 sont des fibres de cellulose affinées ou des nanofibrilles de cellulose ayant une longueur d'environ 200 nm.

[0064] La couche extérieure à base de fibres de cellulose 202 peut être préparée séparément et peut être empilée sur la surface extérieure de chaque couche de résine 203 par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique, un procédé de filtration, ou un procédé de revêtement à fentes („slot dye coating method“ en langue anglaise)

[0065] Selon un mode de réalisation de l'invention, les fibres de celluloses affinées (FBr) de la couche extérieure à base de fibres de cellulose 202 peuvent être obtenues par un procédé d'affinement comprenant les étapes suivantes :

- a) une étape de dispersion, dans un milieu aqueux, de fibres de cellulose préalablement séchées, pour obtenir une pâte de fibres de cellulose dans laquelle la teneur en fibres de cellulose varie de 1 à 15 % en poids par rapport au poids total de ladite pâte de fibres de cellulose ;
- b) une étape de cisaillement de ladite pâte de fibres de cellulose de manière à obtenir des fibres de cellulose affinées, c'est-à-dire des fibres de cellulose présentant un degré de Schopper-Riegler variant approximativement de 30 à 95 °SR.

[0066] Comme dans le domaine de l'industrie du papier, le procédé d'affinement selon la présente invention est un traitement mécanique des fibres de cellulose afin d'obtenir leur hydratation (étape a), leur fibrillation et leur raccourcissement, ainsi que la création d'éléments minces (étapes b).

[0067] La couche extérieure à base de fibres de cellulose 202 selon l'invention assure une plus grande rétention d'électrolytes et une plus grande stabilité thermique, alors que les couches de résine à base de polyoléfine 203 assurent une plus grande résistance à la perforation et la répartition étroite de tailles de pores, ce qui est fondamental pour limiter la pénétration de dendrites dans le séparateur (en particulier à l'intérieur de la couche de substrat à base de polyoléfine 204) et pour éviter tout court-circuit de la batterie.

[0068] La plus grande résistance à la perforation de la couche de résine 203 réduit les risques de détérioration de séparateur en cas de croissance de dendrites. L'utilisation des couches de résine à base de polyoléfine 203 de chaque côté de la couche de substrat à base de polyoléfine 204 permet de réduire considérablement le risque de défaillance.

[0069] Grâce au séparateur multicouche 200 de l'invention, les avantages des matériaux à base de cellulose et de polyoléfine sont associés pour fournir un séparateur multicouche, comprenant la structure de matériaux suivante : matériau de cellulose/matériau de polyoléfine/matériau de cellulose, et présentant une grande stabilité thermique, un rétrécissement réduit, une grande rétention d'électrolyte et un effet d'arrêt.

[0070] Le séparateur multicouche 200 de l'invention peut être préparé selon un exemple de fabrication décrit ci-après, mais cet exemple n'a aucun caractère limitatif.

[0071] Un polyéthylène à faible densité linéaire (LLDPE) avec un indice d'écoulement en fusion de 2,0 est mélangé avec des particules de carbonate de calcium qui sont traitées par traitement de surface avec du stéarate de calcium. Le carbonate de calcium a une taille de particule moyenne de 1 µm. Des compositions de polymères ayant du LLDPE remplies respectivement à 40 %, 45 % et 50 % en poids de CaCO sont ensuite coulées-extrudées en films précurseurs, chacun d'eux ayant une épaisseur d'environ 25 µm. Chaque film précurseur résultant est refroidi et soumis à une contrainte d'étiement dans la direction transversale avec un rapport d'étiement de 2,5 à 1.

[0072] Une couche du film poreux blanc résultant, formant la couche de substrat à base de polyoléfine 204, est ensuite prise en sandwich entre deux membranes microporeuses de polypropylène (PP) étirées, formant la couche de résine 203, et elles sont liées l'une à l'autre pour former une structure à trois couches PP/PE/PP formant les couches intérieures à base de polyoléfine 203, 204, 203. Enfin, la structure à trois couches est revêtue, par une technique de revêtement à fentes, d'une couche de cellulose à nanofibrilles (NFC) présentant une épaisseur de 2 µm des deux côtés de la structure à trois couches et séchée du jour au lendemain à 80 °C. Une fois séché, le séparateur multicouche selon l'invention a la structure suivante :
NFC/PP/PE/PP/NFC.

[0073] Dans les dessins et la description, il est divulgué des modes de réalisation préférés types de l'invention et, bien que des termes spécifiques soient employés, ils sont utilisés uniquement dans un sens générique et descriptif, sans aucun caractère limitatif. Le périmètre de l'invention est défini dans les revendications annexées.

Revendications

1. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion ayant une structure comprenant au moins :
 - une couche de substrat à base de polyoléfine (204) formant la couche intérieure du séparateur multicouche (200) ;
 - une couche de résine (203) empilée sur les deux surfaces de la couche de substrat à base de polyoléfine (204), la couche de résine (203) étant formée à partir d'une polyoléfine ;
 - une couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) empilée sur la surface de chaque couche de résine (203).
2. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon la revendication 1, dans lequel ladite couche de substrat à base de polyoléfine (204) est constituée d'au moins un élément sélectionné dans le groupe se composant de polyéthylène, de polypropylène ou d'un mélange comprenant sensiblement du polypropylène ou du polyéthylène.
3. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon la revendication 1, dans lequel ladite couche de substrat à base de polyoléfine (204) est constituée de polyéthylène à faible densité (LPDE), de polyéthylène à faible densité linéaire (LLDPE) ou d'un mélange comprenant sensiblement du LPDE, du LLDPE ou un mélange de ceux-ci.
4. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon la revendication 1, dans lequel ladite couche de substrat à base de polyoléfine (204) est constituée d'un copolymère aléatoire d'éthylène et d'alpha-oléfines sélectionnées dans le groupe se composant de co-alpha-oléfines ayant une teneur en alpha-oléfines polymérisées d'environ 20 % en poids, et de préférence de 16 % en poids.
5. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel ladite couche de résine à base de polyoléfine (203) est constituée d'au moins un élément sélectionné dans le groupe se composant de polyéthylène, de polypropylène ou d'un mélange comprenant sensiblement du polypropylène ou du polyéthylène.

6. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel ladite couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) est constituée d'au moins un élément sélectionné dans le groupe se composant d'éthyle cellulose, de méthyle cellulose, d'hydroxypropyle cellulose, d'hydroxyéthyle cellulose, d'hydroxypropyle méthyle cellulose, d'hydroxyéthyle méthyle cellulose, de carboxyméthyle cellulose, d'acétate de cellulose, de tri-acétate de cellulose, d'acétate phtalate de cellulose, de nitrocellulose, d'acétate butylate de cellulose, d'acétate propionate de cellulose, d'ammonium de ceux-ci, et sel de ceux-ci.
7. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel lesdites fibres de cellulose de la couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) sont des fibres de cellulose affinées, des microfibrilles de cellulose, des nanofibrilles de cellulose, de la lignine et des dérivées de celles-ci.
8. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel ladite couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) a une taille de fibres comprise entre 2 mm et 100 nm de longueur.
9. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel lesdites fibres de cellulose de la couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) sont des fibres de cellulose affinées ayant une longueur de 200 nm.
10. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel la couche de substrat à base de polyoléfine (204) a une épaisseur de 5 à 15 μm , la couche de résine (203) a une épaisseur de 12 à 75 μm , de préférence 25 μm , et la couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) a une épaisseur de 1 à 5 μm , de préférence 2 μm .
11. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel la couche de substrat à base de polyoléfine (204) a un point de fusion de 80 à 124 °C et la couche de résine (203) a un point de fusion de 130 à 160 °C.
12. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel la couche de résine (203) est empilée par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique ou un procédé de filtration.
13. Séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, dans lequel la couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) est empilée par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique, un procédé de filtration ou un procédé de revêtement à fentes.
14. Batterie lithium-ion, dans laquelle ladite batterie lithium-ion comprend un séparateur multicouche (200) selon l'une des revendications 1 à 13.
15. Procédé de préparation d'un séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon l'une des revendications précédentes, ledit procédé comprenant :
 - une étape de formation d'une couche de substrat à base de polyoléfine (204) ;
 - une étape d'empilement d'une couche de résine (203) formée d'une polyoléfine sur les deux surfaces de la couche de substrat à base de polyoléfine (204) formée à l'étape précédente, par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique ou un procédé de filtration ;
 - une étape d'empilement d'une couche extérieure à base de fibres de cellulose (202) sur la surface de chaque couche de résine (203) par un procédé de stratification, un procédé de pression hydraulique, un procédé de filtration ou un procédé de revêtement à fentes.
16. Procédé de préparation d'un séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon la revendication précédente, dans lequel l'étape de la formation d'une couche de substrat à base de polyoléfine (204) comprend :
 - une sous-étape de formation d'un mélange d'un composé de polyéthylène à faible densité linéaire avec des particules de carbonate de calcium ;
 - une sous-étape d'extrusion dudit mélange dans un film précurseur ;
 - une sous-étape de refroidissement et de contrainte dudit film précurseur afin d'obtenir ladite couche de substrat à base de polyoléfine (204).
17. Procédé de préparation d'un séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon la revendication précédente, dans lequel le mélange comprend entre 40 % et 45 % en poids de polyéthylène de faible densité linéaire et 50 % en poids de carbonate de calcium.
18. Procédé de préparation d'un séparateur multicouche (200) pour une batterie lithium-ion selon les revendications 15 à 17, dans lequel ladite étape de l'empilement d'une couche extérieure à base de fibres de celluloses (202) est une étape d'empilement d'une couche de cellulose à nanofibrilles sur la surface de chaque couche de résine (203).

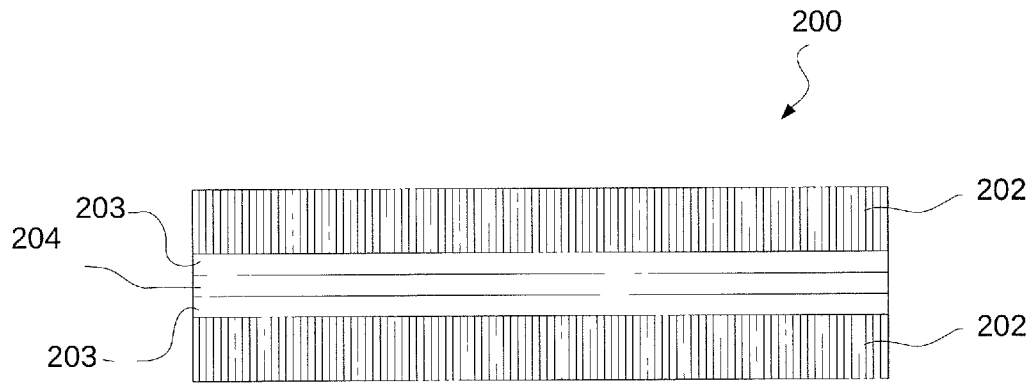


FIG.1