



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 698 38 186 T2** 2008.04.24

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 114 481 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **698 38 186.6**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/KR98/00494**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **98 961 686.7**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2000/016421**

(86) PCT-Anmeldetag: **31.12.1998**

(87) Veröffentlichungstag

der PCT-Anmeldung: **23.03.2000**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **11.07.2001**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **01.08.2007**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **24.04.2008**

(51) Int Cl.⁸: **H01M 6/18** (2006.01)

H01M 6/22 (2006.01)

H01M 10/40 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

9837423 10.09.1998 KR

(73) Patentinhaber:

**Korea Institute of Science and Technology,
Seoul/Soul, KR**

(74) Vertreter:

**Patent- und Rechtsanwälte Kraus & Weisert,
80539 München**

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,
LI, LU, MC, NL, PT, SE**

(72) Erfinder:

**YUN, Kyung Suk, Dongjak-Ku, Seoul 156-092, KR;
CHO, Byung Won, Seodaemoon-Ku, Seoul
120-103, KR; CHO, Won Il, Nowon-Ku, Seoul
139-242, KR; PAIK, Chi Hum, Sungbook-Ku, Seoul
136-791, KR; KIM, Hyung Sun, Sanchun-Dong,
Yongsan-Ku, Seoul 140-040, KR; KIM, Un Sek,
Kwanak-Ku, Seoul 151-015, KR**

(54) Bezeichnung: **ELEKTROLYT AUS FESTER POLYMERZUSAMMENSETZUNG IN HOMOGENEM ZUSTAND UND HERSTELLUNGSVERFAHREN UND KOMPOSITELEKTRODE, LITHIUMPOLYMERBATTERIE UND LITHIUMIONENBATTERIE DIE DIESE VERWENDEN UND HERSTELLUNGSVERFAHREN**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

TECHNISCHES GEBIET

[0001] Die vorliegende Erfindung ist auf einen amorphen, homogenen und kompatiblen festen Polymerlegierungselektrolyten und ein Herstellungsverfahren dafür, und auf eine Verbundelektrode, eine Lithiumpolymerbatterie und eine Lithiumionenpolymerbatterie, die diesen verwendet, und Herstellungsverfahren dafür gerichtet.

STAND DER TECHNIK

[0002] Ein herkömmlicher fester Polymerelektrolyt für eine Lithiumbatterie und ähnliches wird bisher hauptsächlich aus Polyethylenoxid (PEO) hergestellt, jedoch wird seit kurzem ein fester Polymerelektrolyt vom Gel- oder Hybridtyp, der eine Ionenleitfähigkeit besitzt, die größer als 10^{-3} S/cm bei Raumtemperatur beträgt, entwickelt. Insbesondere sind die festen Polymerelektrolyte, die für eine Lithiumpolymerbatterie verwendet werden können, Polyacrylnitril-basierte (im Folgenden hierin als „PAN“ bezeichnet) feste Polymerelektrolyte vom Geltyp, die beschrieben wurden im US-Patent Nr. 5,219,679, erteilt an K. M. Abraham et al. und im US-Patent Nr. 5,240,790, erteilt an D. L. Chua et al., und ein Polyvinylidenfluorid-basierter (im Folgenden hierin als „PVdF“ bezeichnet) fester Polymerelektrolyt vom Hybridtyp, der in den US-Patenten Nr. 5,296,318 und 5,460,904, erteilt an A.S. Gozdz et al., beschrieben wurde.

[0003] Der PAN-basierte Elektrolyt vom Geltyp weist eine hervorragende Adhäsion auf, so dass eine Verbundelektrode fest auf einem Metallsubstrat adhärert werden kann. Es gibt daher somit Vorteile dergestalt, dass der Kontaktwiderstand beim Laden oder Entladen einer Batterie gering ist und aktives Material sich weniger abscheidet („separated“). Jedoch ist der Elektrolyt mehr oder weniger weich, wodurch er die mechanische Stabilität, genauer die Festigkeit („strength“) verringert. Eine solche geringe Festigkeit kann ein ernsthaftes Problem bei der Herstellung der Elektrode und der Batterie verursachen.

[0004] Der PVdF-basierte Elektrolyt vom Hybridtyp wird hergestellt durch Herstellen einer Polymermatrix mit einer Porosität, die geringer ist als ein Submikron, und durch Injizieren eines organischen Lösungsmitttelektrolyten in die Pore. Er besitzt eine hervorragende Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmitttelektrolyten und kann in stabiler Weise verwendet werden, da der organische Lösungsmitttelektrolyt, der in die kleinen Poren injiziert wird, nicht ausläuft („leak“). Daneben kann die Polymermatrix in der Umgebungsatmosphäre hergestellt werden, da der organische Lösungsmitttelektrolyt später injiziert wird. Jedoch ist ein Herstellungsverfahren dafür recht kompliziert, d.h. ein Verfahren zur Extraktion eines Weichmachers und ein Verfahren zur Infiltration des organischen Lösungsmitttelektrolyten sind für die Herstellung der festen Polymermatrix erforderlich. Zusätzlich ist die Adhäsion des PVdF-basierten Elektrolyten schlechter, während die mechanische Festigkeit hervorragend ist, wodurch ein Verfahren zur Herstellung einer dünnen Schicht durch Erhitzen und der Extraktionsprozess zur Herstellung der Elektrode und Batterie erforderlich wird.

[0005] Gemäß einem Artikel von O. Bohnke, G. Frand et al., in Solid State Ionics, 66, 97, 105 (1993), besitzt ein Poly(methylmethacrylat)-basierter (im Folgenden hierin als „PMMA“ bezeichnet), fester Polymerelektrolyt eine Ionenleitfähigkeit von etwa 10^{-3} S/cm bei Raumtemperatur, eine starke Adhäsion und eine hervorragende Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmitttelektrolyten. Jedoch ist die mechanische Festigkeit desselben extrem gering und daher für eine Lithiumpolymerbatterie nicht angemessen. Darüber hinaus hat gemäß einem Artikel von M. Alamgir und K. M. Abraham in J. Electrochem. Soc., 140, L96 (1993) ein Poly(vinylchlorid)-basierter (im Folgenden hierin als „PVC“ bezeichnet) fester Polymerelektrolyt eine Ionenleitfähigkeit von etwa 10^{-3} S/cm bei Umgebungstemperatur und hervorragende mechanische Festigkeit. Jedoch gibt es Nachteile dergestalt, dass die Niedrigtemperatureigenschaften schlechter sind und der Kontaktwiderstand gut bzw. groß ist („great“).

[0006] Ebenso wurde ein fester Polymerelektrolyt, der durch Mischen hergestellt wurde, entwickelt. Z.B. ist das US-Patent Nr. 5,585,039, erteilt an M. Matsumoto et al., das von NTT in Japan angemeldet wurde, auf einen festen Polymerelektrolyten, einschließlich einer Multiphasen-Polymermatrix und einer organischen Lösungsmitttelektrolytlösung, gerichtet. Die vielphasige bzw. Polyphasen-Polymermatrix umfasst eine hochpolare polymere (HPP)-Phase und eine weniger polare polymere (LPP)-Phase. Die HPP-Phase zeigt Ionenleitfähigkeit durch Einschleusen des organischen Lösungsmitttelektrolyten, und die LPP-Phase wird als Trägerkörper verwendet. Demgemäß werden die Polymere, die allgemein zur Herstellung des festen Polymerelektrolyten verwendet werden, wie z.B. PEO, PAN, PVdF, Polypropylenoxid und dergleichen, für die HPP-Phase verwendet. Die Polymere, die als Trägerkörper verwendet werden, wie z.B. Polystyrol, Polypropylen, Polyethy-

len und dergleichen, können für die LPP-Phase verwendet werden. Ein solcher fester Polymerelektrolyt besitzt eine Ionenleitfähigkeit zwischen 10^{-4} und 10^{-3} S/cm bei Raumtemperatur, was für eine Lithiumpolymerbatterie nicht ausreicht. Insbesondere ist die Ionenleitfähigkeit bei einer Temperatur unter 0°C ziemlich niedrig. Dieser feste Polymerelektrolyt ist für die Lithiumpolymerbatterie unzufriedenstellend, da er die wesentlichen Eigenschaften, die die Lithiumpolymerbatterie haben sollte, wie z.B. Adhäsion an der Elektrode, Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmittel und mechanische Festigkeit, nicht aufweist. Daneben ist dieser Polymerelektrolyt mehrphasig und die Polymere sind in verschiedenen Phasen und die Phasentrennung schreitet durch Wiederholen des Ladungs-/Entladungszyklus und des Temperaturzyklus fort. Im Ergebnis verschlechtert sich die Batterieleistung schnell.

[0007] Andererseits sind die US-Patente Nr. 5,631,103, 5,639,573 und 5,681,357, erteilt an M. Oliver et al. von Motorola in USA, im Wesentlichen bezüglich ihres Konzepts mit der oben beschriebenen Erfindung von NTT in Japan identisch, und im Wesentlichen auf ein Verfahren zur Herstellung eines gemischten festen Polymerelektrolyten gerichtet. Der feste Polymerelektrolyt gemäß den oben erwähnten Patenten umfasst zwei verschiedene Phasen. Die erste Phase dient dazu, den organischen Lösungsmittellektrolyten zu absorbieren, und eine zweite Phase absorbiert den organischen Lösungsmittellektrolyten nicht ohne Reaktivität und dient dazu, dem Expandieren eines Gelelektrolyten vorzubeugen, um als Trägerkörper verwendet zu werden, und um die mechanische Härte zu erhöhen. Die erste Phase umfasst im Wesentlichen PVdF, Polyurethan, PEO, PAN und dergleichen, die zur Herstellung des festen Polymerelektrolyten verwendet werden, und die zweite Phase umfasst Polyethylen, Polypropylen, Polytetrafluorethylen (PTFE) und dergleichen. Dieser feste Polymerelektrolyt besitzt eine Ionenleitfähigkeit von etwa 10^{-4} S/cm bei Raumtemperatur und ist für eine Lithiumpolymerbatterie vom Raumtemperaturtyp mehr oder weniger schwach. Insbesondere ist die Ionenleitfähigkeit bei einer Temperatur unterhalb 0°C schlechter. Daneben besitzt der feste Polymerelektrolyt nicht die wesentlichen Eigenschaften für die Lithiumpolymerbatterie, wie z.B. Adhäsion auf der Elektrode, Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmittellektrolyten und mechanische Festigkeit, ähnlich zum festen Polymerelektrolyten von NTT in Japan, und ist daher für einen Lithiumpolymerelektrolyten nicht geeignet. Darüber hinaus umfasst der feste Polymerelektrolyt eine heterogene Phase und daher wird die Phasentrennung durch Wiederholung des Ladungs-/Entladungszyklus und Temperaturzyklus erhöht, was die Batterieleistung schnell verringert.

[0008] Andererseits wurde eine herkömmliche Lithiumsekundärbatterie vom normalen Temperaturtyp („normal temperature type lithium secondary battery“) als erstes von Sony in Japan entwickelt. Hier wurde eine Lithiumionenbatterie weltweit verwendet und es wird erwartet, dass eine Lithiumpolymerbatterie weit reichend in ein paar Jahren verwendet werden wird.

[0009] In der Lithiumionenbatterie wird ein Trennelement, genauer ein PE(Polyethylen)- oder PP(Polypropylen)-Trennelement verwendet. Es ist schwierig, eine Batterie durch Stapeln der Elektrode und des Trennelements in flacher Plattenform („flat-plate form“) herzustellen. Daher wird die Batterie durch Aufwickeln von Elektrode und Trennelement sowie Einsetzen in eine zylindrische oder rechteckige Röhre (D. Linden, Handbook of batteries, McGRAW-HILL INC., New York (1995)) hergestellt. Obwohl die Lithiumionenbatterie weithin verwendet worden ist, gibt es dennoch einige Sicherheitsprobleme. Daneben ist das Herstellungsverfahren für die Batterie kompliziert, was eine geringe Produktivität zur Folge hat. Des Weiteren ist die Auswahl der Batterieform beschränkt und die Batteriekapazität eingeschränkt. Es wird erwartet, dass die Lithiumpolymerbatterie die oben beschriebenen Nachteile überwindet. Die Lithiumpolymerbatterie verwendet einen festen Polymerelektrolyten, der sowohl als Trennelement als auch als Elektrolyt fungiert. Die Batterie kann durch Stapeln der Elektrode und des Polymerelektrolyten in flacher Plattenform hergestellt werden. Zusätzlich ist das Herstellungsverfahren dafür ähnlich zur Methode der Herstellung des Polymerfilms, was eine verbesserte Produktivität zur Folge hat. Jedoch wird sie nicht weithin verwendet, da ein fester Polymerelektrolyt, der Adhäsion auf der Elektrode, mechanische Festigkeit, Niedrig- und Hochtemperatureigenschaften und Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmittellektrolyten für die Lithiumsekundärbatterie aufweist, nicht entwickelt worden ist.

[0010] Kürzlich wurde der PVdF-basierte feste Polymerelektrolyt vom Hybridtyp entwickelt, der in den US-Patenten Nrn. 5,296,318 und 5,460,904, erteilt an A.S. Gozdz et al., beschrieben wurde. Es gibt somit einen Plan, die Lithiumpolymerbatterie vom Hybridtyp früher oder später in Massenproduktion herzustellen. Jedoch wird gemäß diesem Batteriesystem ein Weichmacher bei der Herstellung des festen Polymerelektrolyten und der Kathode/Anode verwendet und daher werden ein Verfahren zur Extraktion des Weichmachers und ein Verfahren zur Infiltration des organischen Lösungsmittellektrolyten des Weiteren benötigt, was einen komplizierten Herstellungsprozess zur Folge hat. Daneben weist der PVdF-basierte Elektrolyt eine hohe mechanische Festigkeit, jedoch eine schlechtere Adhäsion auf. Demgemäß muss ein Verfahren zur Herstellung eines dünnen Films durch Erhitzen bei der Herstellung der Elektrode und der Batterie ausgeführt werden. Die Batterieleistung wird verringert, da die Elektrode und der feste Polymerelektrolyt während des Extraktionsprozesses getrennt

werden. Zusätzlich gibt es einen Nachteil dergestalt, dass die Porosität in der Elektrode im Vergleich zur Lithiumionenbatterie relativ hoch ist und daher der organische Lösungsmittielelektrolyt stark infiltriert ist („is much infiltrated“), wobei die Energiedichte verringert wird und die Hochgeschwindigkeits-Ladungs-/Entladungseigenschaften verschlechtert werden. Des Weiteren hat der PVdF-basierte Elektrolyt vom Hybridtyp schlechtere Niedrig- und Hochtemperatureigenschaften.

OFFENBARUNG DER ERFINDUNG

[0011] Es ist daher die primäre Aufgabe der vorliegenden Erfindung, einen festen Polymerlegierungselektrolyt in homogenem Zustand, der hervorragende Eigenschaften, wie z.B. Ionenkonduktivität, Adhäsion an der Elektrode, Kompatibilität mit einem organischen Lösungsmittielelektrolyten, mechanische Festigkeit und dergleichen, aufweist, und ein Herstellungsverfahren dafür bereitzustellen.

[0012] Es ist eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung, eine Verbundanode und eine Verbundkathode, die den gemäß der vorliegenden Erfindung hergestellten festen Polymerelektrolyten verwenden, sowie ein Herstellungsverfahren dafür zu liefern.

[0013] Es ist noch eine andere Aufgabe der vorliegenden Erfindung, eine Hochleistungs-Lithiumpolymerbatterie, die hervorragende Energiedichte, Zykluslebensdauer-Eigenschaften („cycle life characteristics“), Niedrig- und Hochtemperatureigenschaften und Hochgeschwindigkeits-Entladungseigenschaften besitzt, durch Verwendung des festen Polymerlegierungselektrolyts und seiner Verbundkathode (Anode) gemäß der vorliegenden Erfindung und ein Herstellungsverfahren dafür bereitzustellen.

[0014] Es ist noch eine weitere Aufgabe der vorliegenden Erfindung, eine Lithiumionenpolymerbatterie zu liefern, die besten Gebrauch von oben beschriebenen Vorteilen der Lithiumionenbatterie und Lithiumpolymerbatterie macht, und bessere bzw. überlegene („superior“) Energiedichte, Lebensdauer, Niedrig- und Hochtemperatureigenschaften, Hochgeschwindigkeits-Entladungseigenschaften und Stabilität besitzt, und ein Herstellungsverfahren dafür bereitzustellen. Das Verfahren zur Herstellung einer Lithiumionenpolymerbatterie gemäß dieser Erfindung ist vergleichsweise einfach und eine Vergrößerung der Batterie ist möglich. Diese Aufgaben werden durch den Elektrolyt gemäß Anspruch 1 gelöst.

KURZE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

[0015] Die vorliegende Erfindung wird in Bezug auf die begleitenden Zeichnungen besser verstanden werden, die nur zum Zweck der Illustration gegeben werden und nicht-einschränkend für die vorliegende Erfindung sind, wobei:

[0016] **Fig. 1** ein Graph ist, der die Ionenkonduktivität eines festen Polymerlegierungselektrolyten in homogenem Zustand gemäß der vorliegenden Erfindung beschreibt;

[0017] **Fig. 2** ein Graph ist, der ein Testergebnis aus einer Röntgenbeugung bzw. Röntgendiffraktometrie („X-ray diffraction“) des festen Polymerlegierungselektrolyten in homogenem Zustand gemäß der vorliegenden Erfindung beschreibt, und bei dem der feste Polymerlegierungselektrolyt eine amorphe Struktur aufweist;

[0018] **Fig. 3** ein Graph ist, der ein Testergebnis einer Zeitdifferenz-Hitzemenge-Scanninganalyse („time difference scanning heat quantity analysis“) des festen Polymerlegierungselektrolyten in homogenem Zustand gemäß der vorliegenden Erfindung beschreibt, wobei der Elektrolyt eine gemischte homogene Glasübergangstemperaturregion bei einer Temperatur zwischen 90°C und 110°C aufweist;

[0019] **Fig. 4** den festen Polymerlegierungselektrolyten in homogenem Zustand gemäß der vorliegenden Erfindung beschreibt, wie durch ein optisches Mikroskop (X50) beobachtet, wobei der Elektrolyt eine gemischte homogene und amorphe Struktur aufweist;

[0020] **Fig. 5a** bis **Fig. 5c** jeweils Verfahren zur Herstellung einer Lithiumionenpolymerbatterie beschreiben, wobei:

[0021] **Fig. 5a** ein Verfahren zur Bildung einer Struktur aus festem Polymerlegierungselektrolyten/Anode/festem Polymerlegierungselektrolyten durch ein Laminierverfahren und anschließendes alternatives-Stapeln der Struktur mit einer Kathode beschreibt;

[0022] [Fig. 5b](#) ein Verfahren zur Bildung einer Struktur aus einer Anode/festem Polymerlegierungselektrolyten und einer Struktur aus Kathode/festem Polymerlegierungselektrolyten und anschließendes alternatives-Stapeln der zwei Strukturen beschreibt; und

[0023] [Fig. 5c](#) ein Verfahren zur Bildung einer Struktur aus Kathode/festem Polymerlegierungselektrolyten/Anode/fester Polymerlegierung/Kathode und anschließendem alternativem Stapeln der Struktur beschreibt;

[0024] [Fig. 6](#) ein Graph ist, der die Elektrodenkapazität und das Lebensdauer-Testergebnis der Lithiumionenpolymerbatterie gemäß der vorliegenden Erfindung beschreibt;

[0025] [Fig. 7a](#) und [Fig. 7b](#) Graphen sind, die jeweils die Testergebnisse der Niedrig/Hochtemperatureigenschaften der Lithiumionenpolymerbatterie (a) gemäß der vorliegenden Erfindung und einer Batterie (b) gemäß einem Vergleichsbeispiel beschreiben; und

[0026] [Fig. 8a](#) und [Fig. 8b](#) Graphen sind, die jeweils die Testergebnisse der Hochgeschwindigkeits-Entladungseigenschaften der Lithiumionenpolymerbatterie (a) gemäß der vorliegenden Erfindung und der Batterie (b) gemäß dem Vergleichsbeispiel beschreiben.

ART UND WEISE ZUR AUSFÜHRUNG DER BEVORZUGTEN AUSFÜHRUNGSFORMEN

[0027] Wenn angenommen wird, dass das Gesamtgewicht einer Polymermischung 100 Gew.-% beträgt, so umfasst ein fester Polymerlegierungselektrolyt gemäß der vorliegenden Erfindung eine Mischung aus Funktion-I-Polymeren in einer Menge von 5 bis 90 Gew.-%, umfassend eines ausgewählt aus der Gruppe von Polyacrylnitril-basierten (hierin im Folgenden als „PAN“ bezeichnet) Polymeren und Poly(methylmethacrylat)-basierten (hierin im Folgenden als „PMMA“ bezeichnet) Polymeren, die eine überlegene Adhäsion und Ionenkonduktivität aufweisen; Funktion-II-Polymeren in einer Menge von 5 bis 80 Gew.-%, umfassend eines ausgewählt aus der Gruppe aus Polyvinylidenfluorid-basierten (im Folgenden als „PVdF“ bezeichnet) Polymeren und den PMMA-basierten Polymeren, die eine überlegene Kompatibilität mit einem organischen Lösungsmittелеlektrolyten besitzen, und Funktion-III-Polymeren in einer Menge von 5 bis 80 Gew.-%, umfassend eines ausgewählt aus den Gruppen von Poly(vinylchlorid)-basierten (im Folgenden als „PVC“ bezeichnet) Polymeren und den PVdF-basierten Polymeren, die überlegene mechanische Festigkeit aufweisen.

[0028] Die PAN-basierten Polymere sind ausgewählt aus der Gruppe von Polyacrylnitril und Poly(acrylnitril-co-methylacrylat), die PMMA-basierten festen Polymere sind ausgewählt aus den Gruppen von Poly(methylmethacrylat), Poly(methylmethacrylat-co-ethylacrylat) und Poly(methylmethacrylat-co-methacrylsäure), die PVdF-basierten Polymere sind ausgewählt aus den Gruppen von Poly(vinylidenfluorid) und Poly(vinylidenfluorid-co-hexafluorpropylen) und die PVC-basierten Polymere sind ausgewählt aus den Gruppen von Poly(vinylchlorid) und Poly(vinylidenchlorid-co-acrylnitril).

[0029] Das Mischverhältnis der Polymermischung hängt von den physikalischen Eigenschaften des festen Polymerlegierungselektrolyten, der erforderlich ist, ab. Wird eine gute Adhäsion gefordert, so steigt das Zusammensetzungsverhältnis der Funktion-I-Polymere (PAN-basierte oder PMMA-basierte). Im Falle, dass die Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmittелеlektrolyten vorzugsweise erfordert wird, steigt das Zusammensetzungsverhältnis der Funktion-II-Polymere (PMMA-basierte oder PVdF-basierte) an. Daneben steigt das Zusammensetzungsverhältnis der Funktion-III-Polymere (PVdF-basierte oder PVC-basierte) an, wenn in erster Linie mechanische Festigkeit gefordert wird.

[0030] Ein Weichmacher, ein organischer Lösungsmittелеlektrolyt, SiO₂ oder Al₂O₃ und dergleichen können des Weiteren zum festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung gegebenenfalls zugegeben werden.

[0031] Der Weichmacher umfasst eines oder mehrere Element(e), ausgewählt aus der Gruppe aus Dimethylacetamid (DMA), N,N-Dimethylformamid (DMF), Dimethylcarbonat (DMC), Ethylencarbonat (EC), Ethylmethylcarbonat (EMC), Propylencarbonat (PC) und Acetonitril (AN). Die Menge des zuzugebenden Weichmachers beträgt näherungsweise ein bis fünf Mal (100 bis 500 Gew.-%) soviel, wie die Polymermischung Funktion-I-Polymere/Funktion-II-Polymere/Funktion-III-Polymere umfasst.

[0032] Der organische Lösungsmittелеlektrolyt umfasst eines oder mehrere Elemente ausgewählt aus der Gruppe von einer Ethylencarbonat-Dimethylcarbonat-(im Folgenden als „EC-DMC“ bezeichnet)-Lösung, in der

ein Lithiumsalz gelöst ist, einer Ethylencarbonat-Diethylcarbonat-(im Folgenden als „EC-DEC“ bezeichnet)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, und einer Ethylencarbonat-Ethylmethylcarbonat-(im Folgenden als „EC-EMC“ bezeichnet)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist. Zusätzlich können die obigen Lösungen des Weiteren einen oder mehrere Verbundstoffe bzw. Verbindungen („composites“), ausgewählt aus der Gruppe, bestehend aus Methylacetat (MA), Methylpropionat (MP), Ethylacetat (EA) und Ethylpropionat (EP), enthalten, um die Niedertemperatureigenschaften der oben erwähnten Lösungen zu verbessern. Die Menge an zuzugebendem organischem Lösungsmittel beträgt näherungsweise ein bis fünf Mal (100 bis 500 Gew.-%) soviel wie die Polymermischung, umfassend Funktion-I-Polymere/Funktion-II-Polymere/Funktion-III-Polymere. Das relative Zusammensetzungsverhältnis der Polymermischung, die Funktion-I-Polymere/Funktion-II-Polymere/Funktion-III-Polymere umfasst, und dem organischen Lösungsmittellektrolyten, der das Lithiumsalz enthält, beeinflusst die Ionenleitfähigkeit und die mechanische Stabilität. Falls das Zusammensetzungsverhältnis der Polymermischung ansteigt, wird die mechanische Stabilität verbessert, jedoch die Ionenleitfähigkeit verringert. Andererseits wird für den Fall, dass das Zusammensetzungsverhältnis des das Lithiumsalz enthaltenden organischen Lösungsmittels heraufgesetzt wird, die Ionenleitfähigkeit verbessert, jedoch die mechanische Stabilität verringert.

[0033] Zusätzlich kann zur Verbesserung der mechanischen Festigkeit und der Ionenleitfähigkeit des festen Polymerlegierungselektrolyten SiO_2 oder Al_2O_3 in einer Menge von 0 bis 20 Gew.-% der Polymermischung, die Funktion-I-Polymeren/Funktion-II-Polymere/Funktion-III-Polymere umfasst, zugegeben werden.

[0034] Ein Verfahren zur Herstellung der oben beschriebenen festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung wird im Folgenden beschrieben werden.

[0035] Wie oben erörtert, werden die Polymermischung (aus 100 Gew.-%) einschließlich der Funktion-I-Polymere in einer Menge von 5 bis 90 Gew.-%, umfassend eines der PAN-basierten Polymere und PMMA-basierten Polymere, die eine überlegene Adhäsion und Ionenleitfähigkeit haben, der Funktion-II-Polymere in einer Menge von 5 bis 80 Gew.-%, umfassend eines aus dem PVdF-basierten Polymer und dem PMMA-basierten Polymer, die eine überlegene Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmittellektrolyten haben, und der Funktion-III-Polymere in einer Menge von 5 bis 80 Gew.-%, umfassend eines aus dem PVC-basierten Polymer und dem PVdF-basierten Polymer, die überlegene mechanische Festigkeit haben; gegebenenfalls dem Weichmacher, dessen Gewicht ein bis fünf Mal so schwer ist wie die Polymermischung; dem organischen Lösungsmittellektrolyten, dessen Menge ebenfalls gewichtsmäßig ein bis fünf Mal soviel wie die der Polymermischung beträgt; und SiO_2 oder Al_2O_3 in einer Menge von 0 bis 20 Gew.-% der Polymermischung in ausreichender Weise gemischt (vorzugsweise für mehr als 12 Stunden), auf eine Temperatur zwischen 100°C und 180°C erhitzt, und anschließend wird ein Polymermischen bzw. Polymerblending für 10 Minuten bis 2 Stunden durchgeführt. Ist eine Matrix aus dem festen Polymerlegierungselektrolyten in ausreichender Weise gebildet worden und ist die Viskosität desselben honigartig, so wird mittels Werkzeug- bzw. Form-Casting bzw. Form-Gießen („die casting“) das Gießen bzw. das Casting („casting“) durchgeführt und so eine Folie eines festen Polymerlegierungselektrolyten hergestellt. Die Folie eines festen Polymerlegierungselektrolyten wird zur Herstellung der Lithiumpolymerbatterie, die im Folgenden beschrieben werden wird, verwendet.

[0036] Der Löslichkeitsparameter ist ein wichtiger Faktor beim Polymermischen bzw. Polymerblending. In Bezug auf das CRC-Handbuch „Polymer-Liquid Interaction Parameters and Solubility Parameters“ von A. F. M. Baton et al., besitzt der Hilderbrand-Parameter die Werte $'23,3 \sim 31,5 \text{ MP}_a^{1/2}$, $'18,6 \sim 26,3 \text{ MP}_a^{1/2}$, $'12 \sim 30 \text{ MP}_a^{1/2}$, und $'19,1 \sim 22,1 \text{ MP}_a^{1/2}$ in PAN-, PMMA-, PVdF-basiertem P(VdF-HFP) bzw. PVC. Demgemäß kann ein Polymerlegierungselektrolyt in homogenem Zustand durch Bestimmen des Weichmachers und Lösungsmittels und der Mischbedingungen in geeigneter Weise hergestellt werden.

[0037] Gemäß der vorliegenden Erfindung werden auch eine Verbundanode und eine Verbundkathode unter Verwendung des oben beschriebenen festen Polymerlegierungselektrolyten bereitgestellt und ein Herstellungsverfahren dafür wird im Folgenden beschrieben.

[0038] Die Verbundanode umfasst: ein Anoden-aktives Material in einer Menge von 25 bis 35 Gew.-%, umfassend ein Material oder mehrere Materialien, vorzugsweise ausgewählt aus einem Graphit, einem Koks, einer Hartkohle und einem Zinnoxid; ein elektrisch leitfähiges Material in einer Menge von 0,5 bis 2 Gew.-%, umfassend ein oder mehrere Materialien, ausgewählt aus Acetylenruß und Graphit; den festen Polymerlegierungselektrolyten der vorliegenden Erfindung in einer Menge von 15 bis 25 Gew.-% und den Weichmacher in einer Menge in Höhe der verbleibenden Gew.-%, der ein Material oder mehrere Materialien, ausgewählt aus der Gruppe aus DMA, DMF, DMC, EC, EMC, PC und AN, umfasst.

[0039] Zur Herstellung der Verbundanode der vorliegenden Erfindung werden die oben erwähnten Materialien zusammengemischt und auf eine Temperatur zwischen 100 bis 180°C für 10 Minuten bis 2 Stunden erhitzt. Ist die Matrix aus dem festen Polymerlegierungselektrolyten voll gebildet und ist die Viskosität derselben honigartig, so wird die Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten auf beide Seiten eines Kupfergitters unter Verwendung des Formguss- bzw. Form-casting- oder Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet und anschließend getrocknet und gewalzt, wobei die erfindungsgemäße Verbundanode fertiggestellt wird.

[0040] Die Verbundkathode umfasst: ein Kathoden-aktives Material in einer Menge von 25 bis 35 Gew.-%, umfassend ein oder mehrere Element(e), vorzugsweise ausgewählt aus der Gruppe aus LiCoO_2 , LiMn_2O_4 , LiNiO_2 , V_2O_5 und V_6O_{13} ; ein leitfähiges Material in einer Menge von 0,5 bis 2 Gew.-%, umfassend ein Material oder mehrere Materialien, ausgewählt aus Acetylenruß und Graphit; den festen Polymerlegierungselektrolyten der vorliegenden Erfindung in einer Menge von 15 bis 25 Gew.-%; und den Weichmacher in einer Menge in Höhe der verbleibenden Gew.-%, der ein Element, ausgewählt aus der Gruppe aus DMA, DMF, DMC, EC, EMC, PC und AN, enthält.

[0041] Um eine erfindungsgemäße Verbundkathode herzustellen, werden die oben erwähnten Materialien zusammengemischt und bei einer Temperatur zwischen 100 bis 180°C für 10 Minuten bis 2 Stunden erhitzt. Ist die Matrix aus dem festen Polymerlegierungselektrolyten voll gebildet und ist die Viskosität derselben honigartig, so wird die Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten auf beide Seiten eines Aluminiumgitters unter Verwendung des Formguss- bzw. Form-casting- oder Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet, und anschließend wird sie unter Raumtemperatur 1 bis 24 Stunden getrocknet und unter einem Druck von 0,1 bis 5 kg/cm^2 gewalzt, wodurch die erfindungsgemäße Verbundkathode fertiggestellt wird. Die so hergestellte Verbundanode und Verbundkathode kann zur Herstellung der Lithium(ionen)polymerbatterie gemäß der Erfindung verwendet werden.

[0042] Die unter Verwendung der homogenen festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung hergestellte Lithiumpolymerbatterie wird nun beschrieben.

[0043] Die Lithiumpolymerbatterie wird durch aufeinander folgendes Stapeln von Schichten (d.h. Laminieren) in der Reihenfolge Verbundanode/fester Polymerlegierungselektrolyt/Verbundkathode/fester Polymerlegierungselektrolyt/Verbundanode und Einsetzen der gestapelten Schichten in einen blauen Beutel und Vakuumverschließen desselben durch Verwendung des festen Polymerlegierungselektrolyten (der Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten) und der Verbundanode (Verbundkathode) hergestellt. Hier kann eine Anode, umfassend Lithium, eine Lithiumlegierung oder eine Mischung daraus, die Verbundanode ersetzen.

[0044] Zusätzlich kann die Lithiumionenpolymerbatterie durch aufeinander folgendes Stapeln von Schichten in der Reihenfolge Anode/homogener erfindungsgemäßer fester Polymerlegierungselektrolyt/Kathode/homogener erfindungsgemäßer fester Polymerlegierungselektrolyt/Anode, Einsetzen der gestapelten Schichten in den blauen Beutel, Injizieren des organischen Lösungsmittellektrolyten, um ihn in Anode und Kathode infiltrieren zu lassen ("infiltrate"), und Vakuumverschließen bzw. Vakuumversiegeln des Beutels hergestellt werden. In diesem Fall werden die zur Herstellung der Lithiumionenpolymerbatterie verwendete Anode und Kathode durch Mischen einer gewissen Menge eines aktiven Materials, eines elektrisch leitfähigen Materials, eines Adhäsivs und eines organischen Lösungsmittels, Ausführen des Gießens bzw. Castings auf beide Seiten der Gitter aus dünnen Kupfer- und Aluminiumplatten und Trocknen und Walzen, was allgemein beim Herstellungsverfahren einer konventionellen Lithiumionenbatterie angewendet wird, hergestellt. Genauer umfasst die Anode eines oder mehrere Element(e), ausgewählt aus der Gruppe aus einem Graphit, einem Koks, einer Hartkohle, einem Zinnoxid, einem vor-lithiierten Material davon, Lithium und einer Lithiumlegierung. Die Kathode umfasst eines oder mehrere Element(e), ausgewählt aus der Gruppe aus LiCoO_2 , LiNiO_2 , LiMn_2O_4 , V_2O_5 und V_6O_{13} .

[0045] [Fig. 5a](#) bis [Fig. 5c](#) beschreiben drei Verfahren zur Herstellung der Lithiumpolymerbatterie oder Lithiumionenpolymerbatterie gemäß der vorliegenden Erfindung. In den Zeichnungen 5a bis 5c werden eine Anodenrolle (1), eine feste-Polymerlegierungselektrolyt-Rolle (2), eine Kathodenrolle (3) bereitgestellt und S1 bezeichnet einen Laminierprozess, S2 das Schneiden einer laminierten Struktur oder Kathode, S3 das Stapeln der geschnittenen Strukturen, S4 das Injizieren des organischen Lösungsmittellektrolyten, S5 das Verschweißen der Enden bzw. Terminals mit der entsprechenden Anode und Kathode, S6 das Einsetzen in ein Batteriegehäuse, S7 ein Injizieren des organischen Lösungsmittellektrolyten, S8 ein Vakuumverschließen bzw. -versiegeln („vacuum sealing“). Gemäß einem ersten Herstellungsverfahren in [Fig. 5a](#) wird der feste Polymerlegierungselektrolyt mit jeder Seite der Anode durch ein kontinuierliches Laminierverfahren verbunden und bildet so eine Einzelstruktur. Die verbundene Struktur aus Polymerlegierungselektrolyt/Anode/fester Polymerlegierungselektrolyt und die Kathode werden auf eine vorbestimmte Größe geschnitten und abwechselnd ein paar

Mal zur Bildung einer gestapelten Struktur gestapelt. Anschließend werden die Anschlüsse bzw. Terminals mit der Anode bzw. Kathode verbunden und die gestapelte Struktur wird in ein Batteriegehäuse eingesetzt. Der organische Lösungsmittellektrolyt wird anschließend dort hinein injiziert. Das Injektionsverfahren des organischen Lösungsmittellektrolyten kann während der Zeit des Stapelns von Anode und Kathode vervollständigt werden. Im Fall der Lithiumpolymerbatterie unter Verwendung der oben beschriebenen Verbundanode und Verbundkathode kann der Lösungsmittellektrolyt nicht injiziert werden. Dann wird die Herstellung der Lithiumpolymerbatterie oder Lithiumionenpolymerbatterie durch das Vakuumverschlussverfahren bzw. Vakuumversiegelungsverfahren vervollständigt.

[0046] Gemäß einem zweiten, in [Fig. 5b](#) illustrierten Herstellungsverfahren wird der feste Polymerlegierungselektrolyt an eine Seite der Anode durch ein kontinuierliches Laminierverfahren gebunden, wodurch eine Einzelstruktur gebildet wird. In ähnlicher Weise wird der feste Polymerlegierungselektrolyt an eine Seite der Kathode durch ein kontinuierliches Laminierverfahren gebunden, wobei so eine Einzelstruktur gebildet wird. Zwei gebundene Einzelstrukturen werden auf eine vorbestimmte Größe geschnitten und ein paar Mal abwechselnd unter Bildung einer gestapelten Struktur gestapelt. Anschließend werden die Anschlüsse mit der Anode bzw. Kathode verbunden und die gestapelte Struktur wird in ein Batteriegehäuse eingesetzt. Der organische Lösungsmittellektrolyt wird anschließend dort hinein injiziert. Das Injektionsverfahren des organischen Lösungsmittellektrolyten kann während der Zeit des Stapelns von Anode und Kathode vervollständigt werden. Im Fall der Lithiumpolymerbatterie unter Verwendung der oben beschriebenen Verbundanode und Verbundkathode kann der organische Lösungsmittellektrolyt nicht injiziert werden. Dann wird die Herstellung der Lithiumpolymerbatterie oder Lithiumionenpolymerbatterie durch das Vakuumverschlussverfahren bzw. Vakuumversiegelungsverfahren vervollständigt.

[0047] Gemäß einem dritten, in [Fig. 5c](#) beschriebenen Herstellungsverfahren wird der feste Polymerlegierungselektrolyt auf beiden Seiten der Anode positioniert und die Kathode auf der Schicht des festen Polymerlegierungselektrolyten auf jeder Seite positioniert. Die so positionierten Elemente werden durch das Laminierverfahren gebunden, wodurch eine Einzelstruktur, d.h. eine Kathode/fester Polymerlegierungselektrolyt/Anode/fester Polymerlegierungselektrolyt/Kathoden-Struktur, gebildet wird. Die Einzelstruktur wird auf eine vorbestimmte Größe geschnitten und abwechselnd mehrmals zur Bildung einer gestapelten Struktur gestapelt. Die Anschlüsse werden mit der Anode bzw. Kathode verbunden und die gestapelte Struktur wird in ein Batteriegehäuse eingesetzt und anschließend wird der organische Lösungsmittellektrolyt dort hinein injiziert. Das Injektionsverfahren des organischen Lösungsmittellektrolyten kann während der Zeit des Stapelns von Anode und Kathode vervollständigt werden. Im Fall der Lithiumpolymerbatterie unter Verwendung der oben beschriebenen Verbundanode und Verbundkathode kann der organische Lösungsmittellektrolyt nicht injiziert werden. Die Herstellung der Lithiumpolymerbatterie oder Lithiumionenpolymerbatterie gemäß der vorliegenden Erfindung wird durch das Vakuumverschlussverfahren bzw. Vakuumversiegelungsverfahren vervollständigt.

[0048] Der organische zu injizierende Lösungsmittellektrolyt umfasst eine Lösung, ausgewählt aus der Gruppe aus EC(Ethylencarbonat)-DMC(Dimethylcarbonat)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, EC(Ethylencarbonat)-DEC(Diethylcarbonat)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, und EC(Ethylencarbonat)-EMC(Ethylmethylcarbonat)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist. Zusätzlich können die obigen Lösungen des Weiteren eine oder mehrere Verbindungen („composite“) enthalten, ausgewählt aus der Gruppe aus Methylacetat (MA), Methylpropionat (MP), Ethylacetat (EA) und Ethylpropionat (EP), um die Niedertemperatureigenschaften der oben erwähnten Lösungen zu verbessern.

[0049] Eine Platte, eine perforierte Platte („punched plate“) oder eine Maschenplatte („mesh plate“) können als Kupfer- und Aluminiumgitter verwendet werden. Im Falle, dass der organische Lösungsmittellektrolyt nach dem Stapeln injiziert wird, werden die perforierte Platte und expandierte Platte stärker bevorzugt, um ein effizientes Injizieren der Lösung zu ermöglichen.

[0050] Die vorliegende Erfindung wird durch die im Folgenden erörterten Beispiele genauer beschrieben. Es sollte jedoch erkannt werden, dass die vorliegende Erfindung nicht durch die folgenden Beispiele eingeschränkt ist.

BEISPIELE

[Beispiel 1]

[0051] 1,5 g Polyacrylnitril (bezogen von Polyscience Company, Molekulargewicht: 150.000 und im Folgenden als „PAN“ bezeichnet) als PAN-basiertes Polymer, 1,5 g Poly(vinylidenfluorid-hexafluorpropylen) (Atochem

Kynar 2801; im Folgenden hierin als „P(VdF-HFP)“ bezeichnet) als PVdF-basiertes Polymer, 0,15 g Siliciumdioxid, EC-DMC-Lösung in einer Menge von 6 g, die 1M gelöstes LiPF₆ enthielt, und 0 g DMA-Lösung als Weichmacher wurden 12 Stunden zusammengemischt. Die Mischung wurde für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet und für 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wobei eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten hergestellt wurde.

[0052] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurde Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, 3,7 g des festen Polymerlegierungselektrolyten, der wie oben hergestellt worden war, und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt. Die Mischung wurde für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting zu erleichtern, wurde die Mischung auf eine Kupferplatte unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gecastet und 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt, wodurch eine Verbundelektrode erhalten wurde. Um die LiCoO₂-Verbundkathode zu bilden, wurde LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt in einer Menge von 3,7 g, der wie oben beschrieben hergestellt worden war, und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt. Die Mischung wurde für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten ausreichend zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix auf eine Aluminiumplatte unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt, wobei die Verbundkathode erhalten wurde.

[0053] Zur Herstellung einer Lithiumpolymerbatterie wurde der feste Polymerlegierungselektrolyt auf beiden Seiten der Kohlenstoff-Verbundanode bereitgestellt und ein Laminierverfahren zum Binden und Bilden einer Struktur aus festem Polymerlegierungselektrolyten/Verbundanode/festem Polymerlegierungselektrolyten wurde durchgeführt und anschließend wurde die Struktur auf eine Größe von 3 cm × 8 cm geschnitten und die Verbundkathode wurde wie oben auf eine Größe von 2,8 cm × 8 cm geschnitten. Die geschnittene Struktur aus festem Polymerlegierungselektrolyten/Verbundanode/festem Polymerlegierungselektrolyten und die Verbundkathode wurden abwechselnd zur Bildung einer gestapelten Struktur gestapelt. Nach dem Stapeln wurden die entsprechenden Enden bzw. Terminals zur Anode und Kathode verbunden und die mit den Enden verbundene gestapelte Struktur wurde in einen blauen Beutel platziert und Vakuum-versiegelt, um so eine Lithiumpolymerbatterie herzustellen. Der Ladungs/Entladungs-Test für die Batterie wurde unter Verwendung des Ladungs/Entladungs-Verfahrens ausgeführt, bei dem die Batterie unter C/3-konstantem Strom („C/3 constant current“) und 4,2 V konstanter Spannung geladen und unter C/3-konstantem Strom entladen wurde, wodurch die Elektrodenkapazität und die Zyklenlebensdauer auf Basis der Kathode bestimmt wurden.

[Beispiel 2]

[0054] 1,5 g PAN, 1,0 g P(VdF-HFP) und 0,5 g Poly(vinylchlorid) (bezogen von Aldrich Company, Molekulargewicht: 150.000 und im Folgenden hierin als „PVC“ bezeichnet) wurden gemischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6,0 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g DMA-Lösung als Weichmacher wurden weiter zuge-mischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet und die gecastete Matrix wurde dann etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten hergestellt wurde.

[0055] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurden Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, und für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² ausgewalzt. Zur Bildung einer LiCoO₂-Verbundkathode wurde LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in

einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und sodann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0056] Die Batterieherstellung und die Ladungs/Entladungstests wurden unter Verwendung von zu Beispiel 1 identischen Verfahren ausgeführt.

[Beispiel 3]

[0057] 1,5 g PAN, 0,6 g Poly(methylmethacrylat) (erhältlich von Polyscience Company, Molekulargewicht: 100.000 und im Folgenden hierin als „PMMA“ bezeichnet) und 0,9 g P(VdF-HFP) wurden zusammen vermischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g DMA-Lösung als Weichmacher wurden weiter zugemischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet und für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0058] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurden Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix ein honigartig viskoses Material wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung einer LiCoO₂-Verbundkathode wurden LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0059] Die Batterieherstellung und der Ladungs-/Entladungstest wurden unter Verwendung von zu Beispiel 1 identischen Verfahren ausgeführt.

[Beispiel 4]

[0060] 1,5 g PAN, 1,0 g PMMA und 1,0 g PVC wurden gemischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6,0 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g DMA-Lösung als Weichmacher wurden weiter zugemischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0061] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurden Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung einer LiCoO₂-Verbundkathode wurde LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt, Struktur wie oben,

in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0062] Die Batterieherstellung und der Ladungs/Entladungstest wurden unter Verwendung von zu Beispiel 1 identischem Verfahren ausgeführt.

[Beispiel 5]

[0063] 1,5 g PMMA, 0,9 g P(VdF-HPF) und 0,6 g PVC wurden zusammen vermischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g DMA-Lösung als Weichmacher wurden weiter zugemischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0064] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurden Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung einer LiCoO₂-Verbundkathode wurden LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt in einer Menge von 3,7 g (Struktur wie oben) und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0065] Die Batterieherstellung und der Ladungs/Entladungstest wurden unter Verwendung von zu Beispiel 1 identischem Verfahren ausgeführt.

[Beispiel 6]

[0066] 2,0 g PMMA und 1,0 g P(VdF-HFP) wurden zusammen vermischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g DMA-Lösung als Weichmacher wurden weiter zugemischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet und für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0067] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurden Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung einer LiCoO₂-Verbundkathode wurde LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in aus-

reichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0068] Die Batterieherstellung und der Ladungs/Entladungstest wurden unter Verwendung von zu Beispiel 1 identischem Verfahren ausgeführt.

[Beispiel 7]

[0069] 1,0 g PAN, 0,5 g PMMA, 1,0 g P(VdF-HFP) und 0,5 g PVC wurden zusammen vermischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g DMA-Lösung als Weichmacher wurden weiter zugemischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet und für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0070] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurden Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung einer LiCoO₂-Verbundkathode wurden LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt in einer Menge von 3,7 g (Struktur wie oben) und DMA-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0071] Die Batterieherstellung und der Ladungs/Entladungstest wurden unter Verwendung von zu Beispiel 1 identischem Verfahren ausgeführt.

[Beispiel 8]

[0072] 1,0 g PAN, 0,5 g PMMA, 1,0 g P(VdF-HFP) und 0,5 g PVC wurden zusammen vermischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6,0 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g EC-DMC-Lösung als Weichmacher wurden weiter zugemischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet und für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0073] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurden Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und EC-DMC-Lösung, in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung einer LiCoO₂-Verbundkathode wurden LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und die EC-DMC-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklin-

gen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0074] Die Batterieherstellung und der Ladungs/Entladungstest wurden unter Verwendung von zu Beispiel 1 identischem Verfahren ausgeführt.

[Beispiel 9]

[0075] 1,0 g PAN, 0,5 g PMMA, 1,0 g P(VdF-HFP) und 0,5 g PVC wurden zusammen vermischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6,0 g EC-EMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g EC-EMC-Lösung als Weichmacher wurden weiter zugemischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0076] Um die Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurden Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt (Struktur wie oben) in einer Menge von 3,7 g und EC-EMC-Lösung, in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung einer LiCoO₂-Verbundkathode wurden LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerlegierungselektrolyt, Struktur wie oben, in einer Menge von 3,7 g und die EC-EMC-Lösung in einer Menge von 10 g als Weichmacher zusammengemischt und für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyt in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0077] Die Batterieherstellung und der Ladungs/Entladungstest wurden unter Verwendung von zu Beispiel 1 identischem Verfahren ausgeführt.

[Beispiel 10]

[0078] 1,5 g PAN, 1,5 g PVdF wurden zusammen vermischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6,0 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g EC-DMC-Lösung als Weichmacher wurden weiter zugemischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0079] Um eine Kohlenstoff-Verbundanode, die allgemein für die konventionelle Lithiumionenbatterie verwendet wird, herzustellen, wurden eine Zusammensetzung aus Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g und PVdF in einer Menge von 0,4 g mit 4 g Aceton und 4 g NMP (N-Methyl-2-pyrrolidinon) zugemischt. Wenn das Gemisch die Viskosität von Honig erreicht hatte, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde das Material unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung eines herkömmlichen Typs einer LiCoO₂-Kathode, wurden eine Zusammensetzung von LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g und PVdF in einer Menge von 0,4 g mit NMP (N-Methyl-2-pyrrolidinon) in einer Menge von 4 g und Aceton in einer Menge von 4 g zugemischt. Wenn das Gemisch die Viskosität von Honig erreicht hatte, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde das Material unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0080] Der feste Polymerlegierungselektrolyt wurde auf beiden Seiten der Kohlenstoff-Verbundanode zur Ver-

fügung gestellt und ein Laminierverfahren wurde zum Binden und zur Bildung eines festen Polymerlegierungselektrolyten/einer Kohlenstoffanode/einer festen Polymerlegierungselektrolytstruktur vervollständigt, und die Struktur wurde auf eine Größe von 3 cm × 4 cm zugeschnitten. Zusätzlich wurde eine LiCoO₂-Kathode vom herkömmlichen Typ auf eine Größe von 2,8 cm × 3,8 cm zugeschnitten und dann wurden die geschnittene Struktur und die Kathode abwechselnd gestapelt, wobei eine gestapelte Struktur gebildet wurde. Dann wurden die Enden mit den Elektroden verschweißt und die abschließend-geschweißte gestapelte Struktur wurde in einen blauen Beutel platziert. Dann wurde die EC-EMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, in den Beutel injiziert und der Beutel wurde Vakuum-versiegelt, wobei eine Lithiumionenpolymerbatterie hergestellt wurde. Der Ladungs/Entladungstest für die Batterie wurde unter Verwendung eines Ladungs/Entladungsverfahrens durchgeführt, bei dem die Batterie unter C/3-konstantem Strom und 4,2 V konstanter Spannung geladen und unter C/3-konstantem Strom entladen wurde, wodurch die Elektrodenkapazität und die Zyklenlebensdauer auf Basis der Kathode bestimmt wurden.

[Beispiel 11]

[0081] 1,5 g PAN, 0,6 g PMMA und 0,9 g P(VdF-HFP) wurden zusammen vermischt und 0,15 g Siliciumdioxid, 6,0 g EC-DMC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, und 10 g DMA-Lösung als Weichmacher wurden weiter zuge-mischt. Die Mischung wurde etwa 12 Stunden gemischt und etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um eine Matrix aus festem Polymerlegierungselektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um dadurch das nachfolgende Casting bzw. Gießen zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet, wodurch eine Folie aus festem Polymerlegierungselektrolyten erhalten wurde.

[0082] Um eine Kohlenstoff-Verbundanode herzustellen, wurde die Zusammensetzung aus Gr (Graphit) in einer Menge von 6 g, AB (Acetylenruß) in einer Menge von 0,3 g und PVdF in einer Menge von 0,4 g mit 4 g NMP (N-Methyl-2-pyrrolidinon) und 4 g Aceton vermischt. Wenn das Gemisch die Viskosität von Honig erreicht hatte, wurde das Material unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Kupferplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und sodann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Zur Bildung eines herkömmlichen Typs einer LiCoO₂-Verbundkathode wurden 5,7 g LiCoO₂, 0,6 g AB und 0,4 g PVdF mit 4 g NMP (N-Methyl-2-pyrrolidinon) und 4 g Aceton vermischt. Wenn das Gemisch die Viskosität von Honig erreicht hatte, wurde das Gemisch unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens auf eine Aluminiumplatte gegossen bzw. gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann bei einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0083] Die Batterieherstellung und der Ladungs/Entladungstest wurden unter Verwendung des gleichen (Verfahrens) wie in Beispiel 10 ausgeführt.

[Vergleichsbeispiel]

[0084] Gemäß der herkömmlichen Methode wurden 3,0 g PAN mit 9,0 g EC-PC-Lösung, gelöst durch 1M LiPF₆, vermischt und für etwa 12 Stunden gemischt. Die Mischung wurde für etwa eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wobei eine feste Polymerelektrolytmatrix gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, um das nachfolgende Casting zu erleichtern, wurde die Matrix unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens zur Bildung einer Folie aus festem Polymerelektrolyten gecastet.

[0085] Um die Kohlenstoffanode zu bilden, wurden Gr in einer Menge von 6 g, AB in einer Menge von 0,3 g, der (wie oben strukturierte) Polymerelektrolyt in einer Menge von 3,7 g und EC-PC-Lösung in einer Menge von 10 g zusammengemischt und für eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, wodurch die feste Polymerelektrolytmatrix in ausreichender Weise gebildet wurde. Als die Matrix honigartig viskos wurde, wurde sie auf einer Kupferplatte unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt. Um die LiCoO₂-Verbundkathode zu bilden, wurden LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, der feste Polymerelektrolyt (wie oben strukturiert) in einer Menge von 3,7 g und die EC-PC-Lösung in einer Menge von 10 g vermischt und für eine Stunde bei einer Temperatur von 130°C erhitzt, um die Matrix aus festem Polymerelektrolyten zu bilden. Als die Matrix honigartig viskos wurde, wurde sie auf einer Aluminiumplatte unter Verwendung des Schaberklingen-Verfahrens gecastet, für etwa 12 Stunden bei Raumtemperatur getrocknet und dann unter einem Druck von etwa 1 kg/cm² gewalzt.

[0086] Die Batterie wurde durch aufeinanderfolgendes Stapeln der Kohlenstoff-Verbundanode, des festen Polymerelektrolyten und der LiCoO₂-Verbundkathode in mehrfacher Weise gebildet. Die Elektrodenkapazität

und die Zyklen-Lebensdauer wurden auf Basis der Kathode unter der Ladungs/Entladungsgeschwindigkeit C/3 bestimmt.

[Tabelle]

	Zusammensetzung des festen Polymerlegierungselektrolyten						Verbundelektrode Weichmacher	Bemerkungen
	PAN (g)	PMMA (g)	P(VdF-HFP) (g)	PVC (g)	organischer Lösungsmittellektrolyt	Weichmacher		
Bsp. 1	1,5	–	1,5	–	EC-DMC 6	DMA 10	DMA 10	
Bsp. 2	1,5	–	1,0	0,5	EC-DMC 6	DMA 10	DMA 10	
Bsp. 3	1,5	0,6	0,9	–	EC-DMC 6	DMA 10	DMA 10	
Bsp. 4	1,5	1,0	–	1,0	EC-DMC 6	DMA 10	DMA 10	
Bsp. 5	–	1,5	0,9	0,6	EC-DMC 6	DMA 10	DMA 10	
Bsp. 6	–	2,0	1,0	0,5	EC-DMC 6	DMA 10	DMA 10	
Bsp. 7	1,0	0,5	1,0	0,5	EC-DMC 6	DMA 10	DMA 10	
Bsp. 8	1,0	0,5	1,0	0,5	EC-DMC 6	DMA 10	EC-DMC	
Bsp. 9	1,0	0,5	1,0	0,5	EC-DMC 6	EC-DMC -10	EC-EMC	
Bsp. 10	1,5	–	1,5	–	EC-DMC 6	EC-EMC 10	NMP 4+ Aceton 4	Elektrode des Standes der Technik
Bsp. 11	1,5	0,6	0,9	–	EC-DMC 6	EC-DMC 10	NMP 4+ Aceton 4	Elektrode des Standes der Technik
Vgl.-bsp.	3,0	–	–	–	EC-PC 9	DMA 10	EC-PC	

* Der feste Polymerlegierungselektrolyt umfasst allgemein SiO₂ in einer Menge von 0,15 g.

* Die Verbundanode in jedem der Beispiele 1 bis 9 umfasst Gr in einer Menge von 6 g, AB in einer Menge von 0,3 g und den entsprechenden festen Polymerlegierungselektrolyten in einer Menge von 3,7 g, während die Anoden-Beispiele 10 und 11 Gr in einer Menge von 6 g, AB in einer Menge von 0,3 g und PVdF in einer Menge von 0,4 g umfassen.

* Jede Verbundkathode aus den Beispielen 1 bis 9 umfasst LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g, den entsprechenden festen Polymerlegierungselektrolyten in einer Menge von 3,7 g, während jede Kathode aus den Beispielen 10 und 11 LiCoO₂ in einer Menge von 5,7 g, AB in einer Menge von 0,6 g und PVdF in einer Menge von 0,4 g umfasst.

[0087] Die Eigenschaften des festen Polymerlegierungselektrolyten und der Lithium(ionen)polymerbatterie gemäß der vorliegenden Erfindung werden im Folgenden hinsichtlich des Vergleichs zwischen den vorausgehenden Beispielen und dem Vergleichsbeispiel erläutert.

[0088] Um zunächst die Ionenleitfähigkeit des erfindungsgemäßen festen Polymerlegierungselektrolyten zu prüfen, wird die Ionenleitfähigkeit des festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß den Beispielen 1 bis 11 und dem Vergleichsbeispiel, wie oben beschrieben, unter Verwendung eines Impedanz-Verfahrens gemessen; das Messergebnis ist in [Fig. 1](#) gezeigt. Wie darin beschrieben, zeigten alle festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung (Beispiele 1 bis 11) eine Ionenleitfähigkeit von mehr als 10^{-3} S/cm bei Raum- und Niedertemperaturen und können daher als geeigneter Elektrolyt für eine Lithium(Ionen)polymerbatterie verwendet werden. Insbesondere lieferten die festen Polymerlegierungselektrolyte gemäß der vorliegenden Erfindung eine Ionenleitfähigkeit von etwa 10^{-3} S/cm, selbst bei einer niedrigen Temperatur von etwa 0°C , was sich von Vergleichsbeispiel, bei dem Ionenleitfähigkeit bei einer niedrigen Temperatur abfällt, unterscheidet und daher gemäß der vorliegenden Erfindung eine verbesserte Ionenleitfähigkeit bei niedriger Temperatur liefert.

[0089] Ebenso wurden die Adhäsion und mechanische Festigkeit (oder Stabilität) der festen, gemäß den Beispielen 1 bis 11 und des Vergleichsbeispiels hergestellten Polymerlegierungselektrolyten gemessen. Die Messung der mechanischen Festigkeit des hergestellten festen Polymerlegierungselektrolyten wurde durch Messung der Zugfestigkeit unter Verwendung einer UTM-Ausrüstung von Instron Company gemäß dem unter ASTM D82-88 regulierten Testverfahren gemessen. Die Zugfestigkeit („tensile strength“) des herkömmlichen PAN-basierten festen Polymerelektrolyten betrug etwa 300 kg/cm^2 (2940 N/cm^2), wobei der erfindungsgemäße feste Polymerlegierungselektrolyt einen Zugfestigkeitswert von etwa $330\text{--}400\text{ kg/cm}^2$ ($3240\text{--}3920\text{ N/cm}^2$) erzielte. Demgemäß hat sich die mechanische Festigkeit der erfindungsgemäßen Elektrolyte gegenüber denen des Stands der Technik um 10 bis 30% verbessert.

[0090] Der gemäß dem Vergleichsbeispiel hergestellte feste Polymerelektrolyt zeigt eine gute Adhäsion, die jedoch zu Schwierigkeiten in seiner Handhabung aufgrund einer übermäßigen adhäsiven Eigenschaft führt. Es gibt auch ein signifikantes Problem bei der Herstellung einer Batterie, da der feste Polymerelektrolyt des Vergleichsbeispiels eine schlechtere mechanische Festigkeit besitzt, wodurch er für die Massenproduktion ungeeignet ist. Im Gegensatz dazu zeigten die festen Polymerlegierungselektrolyte, die erfindungsgemäß hergestellt wurden, eine geeignete Adhäsion zu dem Maße, dass der Elektrolyt sich nicht abschied, wenn er mit den Elektroden gestapelt wurde, um eine einzelne Struktur zu bilden, während er eine hohe mechanische Festigkeit zu dem Ausmaß, dass er durch das Ziehen von Hand nicht zerrissen wurde, zeigte, wodurch die Batterieherstellung erleichtert wird. In ähnlicher Weise haben die Verbundelektroden unter Verwendung des festen Polymerlegierungselektrolyten hervorragende Leistungsmerkmale, wodurch sie hoch geeignet sind für einen festen Polymerelektrolyten für eine Lithium(Ionen)polymerbatterie.

[0091] [Fig. 2](#) bis [Fig. 4](#) beschreiben die analytischen Ergebnisse aus der Röntgenbeugung (XRD), der differentiellen dynamischen Kalorimetrie (DSC) und dem optischen Mikroskop im Hinblick auf die gemäß Beispielen 1 bis 3 hergestellten festen Polymerlegierungselektrolyte. Die XRD-Ergebnisse zeigen, dass die festen Polymerlegierungselektrolyte gemäß der vorliegenden Erfindung eine typische amorphe Phase aufweisen. Gemäß den DSC-Ergebnissen werden die gemischten Polymere gut miteinander aufgelöst, wobei sie in einer homogenen Phase existieren. Bei Untersuchung mit einem optischen Mikroskop ist zu verstehen, dass sich die gemischten festen Polymerlegierungselektrolyte gemäß der vorliegenden Erfindung in einer amorphen Phase und einer kompatiblen homogenen Phase befinden, da sie sehr transparent sind und keine abgetrennte Phase bilden.

[0092] Daher liefert die vorliegende Erfindung verbessert kompatible und homogene feste Polymerlegierungselektrolyte mit hervorragenden Eigenschaften, wie z.B. Ionenleitfähigkeit, Kompatibilität mit organischen Lösungsmittellektrolyten und mechanische Festigkeit.

[0093] Die Eigenschaften der Lithium(Ionen)polymerbatterie, die unter Verwendung des festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß der vorliegenden Erfindung hergestellt wird, werden nun im Vergleich zu dem Vergleichsbeispiel beschrieben.

[0094] [Fig. 6](#) zeigt die Ladungs/Entladungseigenschaften der Lithium(Ionen)polymerbatterie, die gemäß den Beispielen 1 bis 11 und dem Vergleichsbeispiel hergestellt worden war, wobei die Ladungs/Entladungseigenschaften unter Verwendung eines Ladungs/Entladungsverfahrens, bei dem die Batterie unter einem konstanten Strom von C/3, einer konstanten Spannung von 4,2V geladen und einem konstanten Strom von C/3 entladen wurde, gemessen. Wie in [Fig. 6](#) gezeigt, waren die Entladungskapazität- und Zykluseigenschaften der Lithium(Ionen)polymerbatterie, die gemäß den obigen Beispielen der vorliegenden Erfindung hergestellt worden waren, viel besser als diese der Lithiumpolymerbatterie, die gemäß dem Vergleichsbeispiel hergestellt worden war, und daher kann die Entladekapazität und die Zyklenlebensdauer der Batterie durch die vorliegende Erfin-

dung verbessert werden.

[0095] Fig. 7 zeigt die Niedrig- und Hochtemperatureigenschaften der Lithium(ionen)polymerbatterie, die gemäß Beispiel 10 bzw. dem Vergleichsbeispiel hergestellt worden war. Wie darin gezeigt, wurden die Niedrig- und Hochtemperatureigenschaften der Batterie unter Verwendung eines Lade/Entladungsverfahrens, bei dem jede Batterie unter einem konstanten Strom von C/2 und einer konstanten Spannung von 4,2V geladen und unter einem konstanten Strom von C/5 entladen wurde, gemessen. In Bezug auf das Schaubild in Fig. 7 wird verstanden, dass die Niedrig- und Hochtemperatureigenschaften der Lithium(ionen)polymerbatterie, die gemäß den obigen Beispielen der vorliegenden Erfindung hergestellt worden waren, viel überlegener waren als diejenigen der Lithiumpolymerbatterie, die gemäß dem Vergleichsbeispiel hergestellt worden war. Insbesondere zeigt die erfindungsgemäße Batterie selbst bei hohen Temperaturen von mehr als 90°C eine ähnliche Leistung wie bei Raumtemperatur. Ebenso betrug die Leistung bei einer niedrigen Temperatur von -10°C etwa 85% derjenigen bei Raumtemperatur. Im Fall des Vergleichsbeispiels besaß die Batterie die Leistungen von 90% bzw. 65% bei 90°C bzw. -10°C im Vergleich zu derjenigen bei Raumtemperatur.

[0096] Fig. 8 beschreibt die Hochgeschwindigkeits-Entladungseigenschaften der Lithium(ionen)polymerbatterie. Wie darin gezeigt, wurden die Hochgeschwindigkeits-Entladungseigenschaften der Lithium(ionen)polymerbatterie, die gemäß Beispiel 10 und dem Vergleichsbeispiel hergestellt worden war, unter Verwendung eines Ladungs/Entladungsverfahrens, bei dem jede Batterie unter einem statischen Strom von C/2 und einer statischen Spannung von 4,2V geladen und unter den verschiedenen statischen Strömen von C/5 bis C/2, 1C und 2C entladen wurde, gemessen. Bezüglich des Schaubilds in Fig. 7a und Fig. 7b zeigte die erfindungsgemäße Batterie die Kapazitäten von 92% bzw. 80% bei 1C- bzw. 2C-Entladung (Fig. 7a), im Vergleich zu der bei 0,2C-Entladung, während die Batterie gemäß dem Vergleichsbeispiel niedrige Leistungen von 87% und 56%, verglichen mit einer Kapazität mit dem Entladestrom von 0,2C, zeigte. Daher sind die Hochgeschwindigkeits-Entladungseigenschaften der erfindungsgemäß hergestellten Lithium(ionen)polymerbatterie viel hervorragender als diejenigen der gemäß dem Vergleichsbeispiel hergestellten Lithiumpolymerbatterie.

[0097] Erfindungsgemäß werden eine Vielfalt von Polymeren mit verschiedenen Funktionen geeigneterweise gemischt, um verbesserte, kompatible und homogene feste Polymerlegierungselektrolyten mit guter Leistung in Ionenleitfähigkeit, Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmittellektrolyten und mechanischer Festigkeit zu erhalten.

[0098] Ebenso werden bei der Herstellung einer Verbundanode(kathode) unter Verwendung des erfindungsgemäßen festen Polymerlegierungselektrolyten und einer Lithium(ionen)polymerbatterie durch Stapeln der Verbundanode, Verbundkathode (oder für die herkömmliche Lithiumionenbatterie verwendete Anode und Kathode) und dem festen Polymerlegierungselektrolyten eine verbesserte Batterieadhäsion und mechanische Festigkeit verwirklicht, ebenso wie eine Lithium(ionen)polymerbatterie mit hervorragenden Batterieleistungsmerkmalen, wie z.B. Niedrig/Hochtemperatureigenschaften, der Hochgeschwindigkeits-Entladungseigenschaft, Batteriekapazität und Zyklenlebensdauer der Batterie und daher haben solche Batterien Anwendungsvorteile in einer Vielzahl industrieller Gebiete, wie z.B. kompakte elektronische Geräte, Kommunikationsvorrichtungen und Stromquellen für elektrische Fahrzeuge.

Patentansprüche

1. Elektrolyt, umfassend eine homogene feste Polymerlegierung, bestehend aus einer 100 Gew.-%-Mischung von

a) 5 bis 90 Gew.-% von einem aus Polyacrylnitrilbasierten (PAN-basierten) festen Polymeren und Poly(methylmethacrylat)-basierten (PMMA-basierten) festen Polymeren, die überlegene Adhäsion und Ionenleitfähigkeit besitzen;

b) 5 bis 80 Gew.-% von einem aus Polyvinylidenfluoridbasierten (PVdF-basierten) festen Polymeren und PMMA-basierten festen Polymeren, die eine überlegene Kompatibilität mit einem organischen Lösungsmittellektrolyten besitzen; und

c) 5 bis 80 Gew.-% von einem aus Poly(vinylchlorid)-basierten (PVC-basierten) festen Polymeren und PVdF-basierten festen Polymeren, die überlegene mechanische Festigkeit besitzen, und wobei die PAN-basierten festen Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe von Polyacrylnitril und Poly(acrylnitril-co-methylacrylat), die PMMA-basierten festen Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe von Poly(methylacrylat), Poly(methylmethacrylat-co-ethylacrylat) und Poly(methylmethacrylat-co-methacrylsäure), die PVdF-basierten festen Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe von Poly(vinylidenfluorid) und Poly(vinylidenfluorid-co-hexafluorpropylen) und die PVC-basierten festen Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe von Poly(vinylchlorid) und Poly(vinylidenchlorid-co-acrylnitril); und wobei der Elektrolyt des Weiteren einen organischen Lösungsmittel-

telelektrolyten, umfassend ein oder mehrere Elemente ausgewählt aus der Gruppe von einer Ethylencarbonat-Dimethylcarbonat-(EC-DMC)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, einer Ethylencarbonat-Diethylcarbonat-(EC-DEC)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, einer Ethylencarbonat-Ethylmethylcarbonat-(EC-EMC)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, umfasst, und des Weiteren eine oder mehrere Verbindungen enthält, ausgewählt aus der Gruppe aus Methylacetat (MA), Methylpropionat (MP), Ethylacetat (EA) und Ethylpropionat (EP), um die Niedrigtemperatureigenschaften der oben erwähnten Lösungen zu verbessern, wobei die Menge des zuzugebenden organischen Lösungsmittels ein- bis fünfmal (100 bis 500 Gew.-%) des Gewichts des festen Polymerlegierungselektrolyten beträgt.

2. Fester Polymerlegierungselektrolyt nach Anspruch 1, wobei das Verhältnis der PAN-basierten oder PMMA-basierten Polymere ansteigt, wenn eine starke Adhäsion benötigt wird, das Verhältnis der PMMA-basierten oder PVdF-basierten Polymere ansteigt, wenn die Kompatibilität mit dem organischen Lösungsmittellektrolyten notwendig ist, und das Verhältnis der PVdF-basierten und PVC-basierten Polymere ansteigt, wenn eine mechanische Festigkeit erforderlich ist.

3. Fester Polymerlegierungselektrolyt nach Anspruch 1, wobei der Weichmacher eines oder mehrere Elemente umfasst, ausgewählt aus der Gruppe aus Dimethylacetamid (DMA), N,N-Dimethylformamid (DMF), Dimethylcarbonat (DMC), Ethylencarbonat (EC), Ethylmethylcarbonat (EMC), Propylencarbonat (PC) und Acetonitril (AN), und die Menge des zuzugebenden Weichmachers das ein- bis fünffache (100 bis 500 Gew.-%) des Gewichts des festen Polymerlegierungselektrolyten aus Anspruch 1 als Gewichtsverhältnis beträgt.

4. Fester Polymerlegierungselektrolyt nach Anspruch 1, wobei eines aus SiO_2 und Al_2O_3 zugegeben wird, um die mechanische Festigkeit und Ionenleitfähigkeit des festen Polymerlegierungselektrolyten zu verbessern und die zuzugebende Menge von einem aus SiO_2 und Al_2O_3 0 bis 20 Gew.-% des festen Polymerlegierungselektrolyten nach Anspruch 1 beträgt.

5. Verfahren zur Herstellung eines festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 in homogenem Zustand, umfassend:

Zusammenmischen über einen vorbestimmten Zeitraum von (a) einer insgesamt 100 Gew.-% festen Polymermischung aus 5 bis 90 Gew.-% von einem aus Polyacrylnitril-basierten (PAN-basierten) festen Polymeren und Poly(methylmethacrylat)-basierten (PMMA-basierten) festen Polymeren, 5 bis 80 Gew.-% von einem aus Poly(vinylidenfluorid)-basierten (PVdF-basierten) festen Polymeren und PMMA-basierten festen Polymeren; und 5 bis 80 Gew.-% von einem aus Poly(vinylchlorid)-basierten (PVC-basierten) festen Polymeren und PVdF-basierten festen Polymeren;

wobei die PAN-basierten festen Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe von Polyacrylnitril und Poly(acrylnitril-co-methylacrylat), die PMMA-basierten festen Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe aus Poly(methylmethacrylat), Poly(methylmethacrylat-co-ethylacrylat) und Poly(methylmethacrylat-co-methacrylsäure), die PVdF-basierten festen Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe aus Poly(vinylidenfluorid) und Poly(vinylidenfluorid-co-hexafluorpropylen) und die PVC-basierten festen Polymere ausgewählt sind aus der Gruppe von Poly(vinylchlorid) und Poly(vinylidenchlorid-co-acrylnitril);

(b) einem Weichmacher, dessen Gewicht das ein- bis fünffache des Gewichts der festen Polymermischung beträgt,

(c) einem organischen Lösungsmittellektrolyten, dessen das ein- bis fünffache des Gewichts der festen Polymermischung beträgt,

wobei der organische Lösungsmittellektrolyt eine oder mehrere Verbindung(en) umfasst, ausgewählt aus der Gruppe aus einer Ethylencarbonat-Dimethylcarbonat-(EC-DMC)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, einer Ethylencarbonat-Diethylcarbonat-(EC-DEC)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, einer Ethylencarbonat-Ethylmethylcarbonat-(EC-EMC)-Lösung, in der ein Lithiumsalz gelöst ist, und die Lösungen des Weiteren eine oder mehrere Verbindungen enthalten, ausgewählt aus der Gruppe aus Methylacetat (MA), Methylpropionat (MP), Ethylacetat (EA) und Ethylpropionat (EP), um die Niedrigtemperatureigenschaften der oben erwähnten Lösungen zu verbessern; und

(d) eines aus SiO_2 und Al_2O_3 , dessen Gewicht 0 bis 20 Gew.-% des Gewichts der festen Polymermischung beträgt;

Bilden einer Matrix des festen Polymerlegierungselektrolyten durch Erhitzen der oben genannten Mischung auf eine Temperatur zwischen 100°C bis 180°C und durch Polymermischen für 10 bis 120 Minuten; und Formen bzw. Gießen des festen Polymerlegierungselektrolyten.

6. Verfahren nach Anspruch 5, wobei der Weichmacher eine oder mehrere Verbindungen, ausgewählt aus der Gruppe aus Dimethylacetamid (DMA), N,N-Dimethylformamid (DMF), Dimethylcarbonat (DMC), Ethylencarbonat (EC), Ethylmethylcarbonat (EMC), Propylencarbonat (PC) und Acetonitril (AN) umfasst.

7. Verbundanode, umfassend:

den festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 in einer Menge von 15 bis 25 Gew.-%;

ein anodenaktives Material in einer Menge von 25 bis 35 Gew.-%,

ein leitfähiges Material in einer Menge von 0,5 bis 2 Gew.-% und

einen Weichmacher in Höhe der verbleibenden Gewichtsprozente.

8. Verbundanode nach Anspruch 7, wobei das anodenaktive Material ein Material oder mehrere Materialien, ausgewählt aus der Gruppe aus Graphit, einem Koks, einer Hartkohle, einem Zinnoxid und den vorlithiierten Formen der vorstehend genannten Materialien umfasst.

9. Verbundanode nach Anspruch 7, wobei das leitfähige Material ein Material oder mehrere Materialien, ausgewählt aus Acetylenruß, einem Graphit und einer Mischung davon umfasst.

10. Verbundanode nach Anspruch 7, wobei der Weichmacher eine oder mehrere Verbindungen umfasst, ausgewählt aus der Gruppe aus Dimethylacetamid (DMA), N,N-Dimethylformamid (DMF), Dimethylcarbonat (DMC), Ethylencarbonat (EC), Ethylmethylcarbonat (EMC), Propylencarbonat (PC) und Acetonitril (AN).

11. Verbundkathode, umfassend:

den festen Polymerlegierungselektrolyten nach einem der Ansprüche 1 bis 4 in einer Menge von 15 bis 25 Gew.-%;

ein kathodenaktives Material in einer Menge von 25 bis 35 Gew.-%,

ein leitfähiges Material in einer Menge von 0,5 bis 2 Gew.-% und

einen Weichmacher in Höhe der verbleibenden Gewichtsprozente.

12. Verbundkathode nach Anspruch 11, wobei das aktive Kathodenmaterial eine oder mehrere Verbindungen, ausgewählt aus der Gruppe aus LiCoO_2 , LiMn_2O_4 , LiNiO_2 , V_2O_5 und V_6O_{13} , umfasst.

13. Verbundkathode nach Anspruch 11, wobei das leitfähige Material ausgewählt ist aus einem Acetylenruß, einem Graphit und einer Mischung davon.

14. Verbundkathode nach Anspruch 11, wobei der Weichmacher eine oder mehrere Verbindungen umfasst, ausgewählt aus der Gruppe aus Dimethylacetamid (DMA), N,N-Dimethylformamid (DMF), Dimethylcarbonat (DMC), Ethylencarbonat (EC), Ethylmethylcarbonat (EMC), Propylencarbonat (PC) und Acetonitril (AN).

15. Lithiumpolymerbatterie, umfassend:

eine gestapelte Struktur, die in der Reihenfolge der Verbundanode gemäß einem der Ansprüche 7 bis 10/dem festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4/der Verbundkathode gemäß einem der Ansprüche 11 bis 14/dem festen Polymerlegierungselektrolyten nach einem der Ansprüche 1 bis 4/der Verbundanode nach einem der Ansprüche 7 bis 10 gestapelt ist;

Pole bzw. Anschlüsse, die mit der Anode bzw. Kathode verbunden sind, und ein Batteriegehäuse, welches die gestapelte Struktur umgibt und verschließt.

16. Lithiumpolymerbatterie, umfassend:

eine gestapelte Struktur, die in der Reihenfolge einer Anode, umfassend eines aus Lithium und Lithiumlegierung/dem festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4/der Verbundkathode gemäß einem der Ansprüche 11 bis 14/dem festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4/der Anode, umfassend eines aus Lithium und der Lithiumlegierung, gestapelt ist;

Pole bzw. Anschlüsse, die mit der Anode bzw. Kathode verbunden sind, und ein Batteriegehäuse, welches die gestapelte Struktur umgibt und verschließt.

17. Verfahren zur Herstellung einer Lithiumpolymerbatterie, umfassend:

Bilden einer Struktur aus einem festen Polymerlegierungselektrolyten/einer Anode/einem festen Polymerlegierungselektrolyten durch Binden des festen Polymerelektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 an beide Seite einer Anode, umfassend ein Material oder mehrere Materialien aus Lithium, einer Lithiumlegierung und der Verbundanode gemäß einem der Ansprüche 7 bis 10 unter Verwendung eines Laminiervorgangs und Schneiden der Struktur in eine vorbestimmte Größe;

Bilden einer gestapelten Struktur durch abwechselndes mehrfaches Stapeln der Verbundkathode gemäß einem der Ansprüche 11 bis 14, die auf eine kleinere Größe als die obige abgeschnittene Struktur geschnitten wird und der obigen geschnittenen Struktur; und

entsprechendes Verbinden der Anschlüsse zur Anode und Kathode der gestapelten Struktur und Einsetzen der gestapelten Struktur in ein Batteriegehäuse.

18. Verfahren zur Herstellung einer Lithiumpolymerbatterie, umfassend:

Bilden einer ersten Struktur aus Anode/festem Polymerlegierungselektrolyten durch Binden des festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 an eine Seite einer Anode, umfassend eines oder mehrere Materialien aus Lithium, einer Lithiumlegierung und der Verbundanode gemäß einem der Ansprüche 7 bis 10 unter Verwendung eines Laminierverfahrens und Schneiden der ersten Struktur in eine vorbestimmte Größe;

Bilden einer zweiten Struktur aus Kathode/festem Polymerlegierungselektrolyten durch Binden des festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 an eine Seite der Verbundkathode gemäß einem der Ansprüche 11 bis 14 unter Verwendung eines Laminierverfahrens und Schneiden der zweiten Struktur zu einer der dem obigen Schritt entsprechenden Größe;

Bilden einer gestapelten Struktur durch abwechselndes mehrfaches Stapeln der obigen geschnittenen ersten Struktur aus Anode/festem Polymerlegierungselektrolyten und der geschnittenen zweiten Struktur aus Kathode/festem Polymerlegierungselektrolyten;

und Verbinden der Anschlüsse zur Anode bzw. Kathode der gestapelten Struktur und Einsetzen der Struktur in ein Batteriegehäuse.

19. Verfahren zur Herstellung einer Lithiumpolymerbatterie, umfassend: Binden des festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 an beide Seiten einer Anode, umfassend ein Material oder mehreren Materialien aus Lithium, einer Lithiumlegierung und der Verbundanode gemäß einem der Ansprüche 7 bis 10, Positionieren der Verbundkathode gemäß einem der Ansprüche 11 bis 14 an die beiden gebundenen festen Polymerlegierungselektrolyten, Bilden einer Struktur aus Kathode/Elektrolyt/Anode/Elektrolyt/Kathode unter Verwendung eines Laminierverfahrens und Schneiden der laminierten Struktur in eine vorbestimmte Größe;

Bilden einer gestapelten Struktur durch abwechselndes mehrfaches Stapeln der obigen geschnittenen Strukturen; und

Verbinden der Anschlüsse zur Anode bzw. Kathode der gestapelten Struktur und Einsetzen der Struktur in ein Batteriegehäuse.

20. Verwendung eines homogenen festen Polymerlegierungselektrolyten gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4 zur Herstellung einer Lithiumionenbatterie.

Es folgen 6 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

FIG. 1

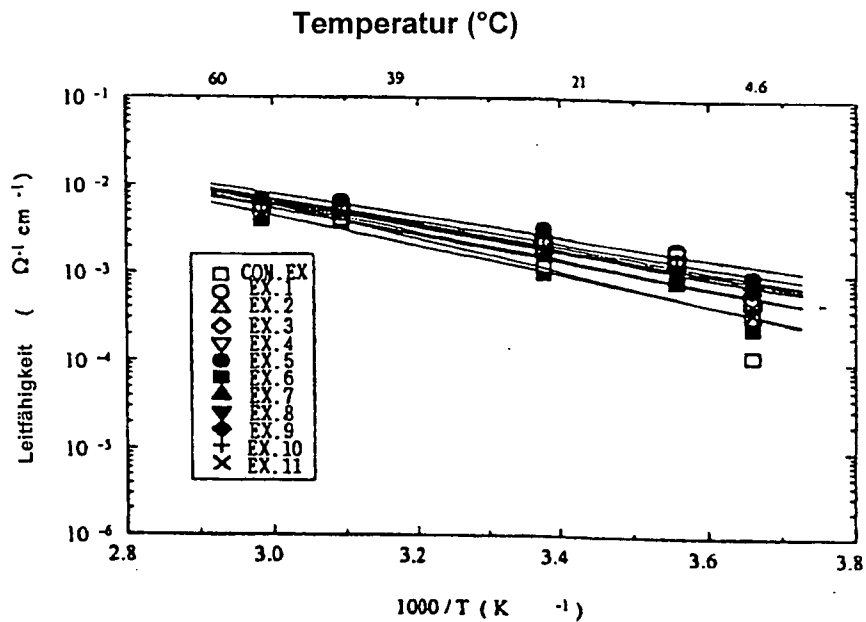


FIG. 2

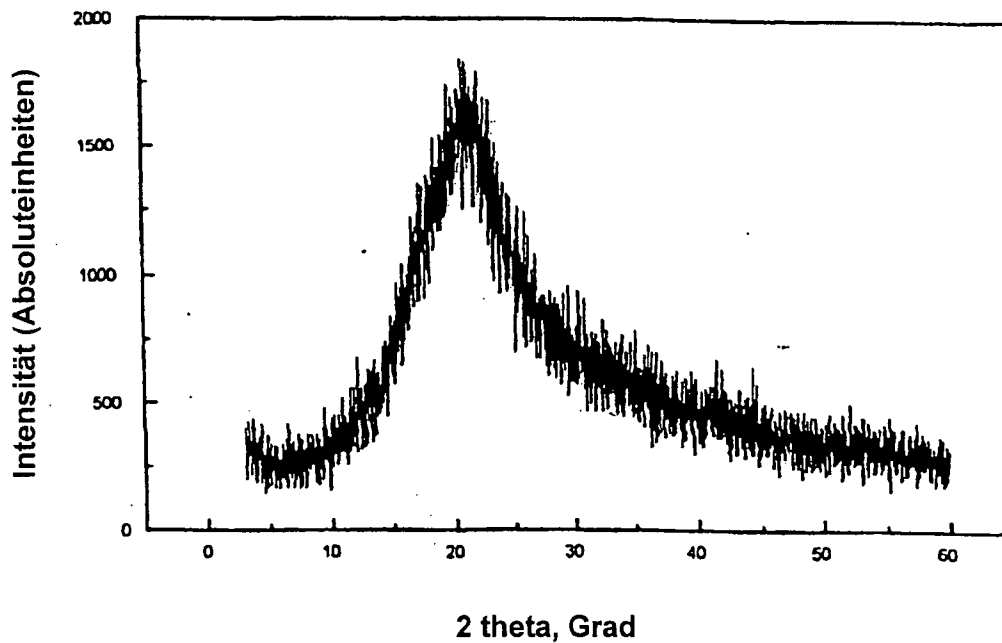


FIG. 3

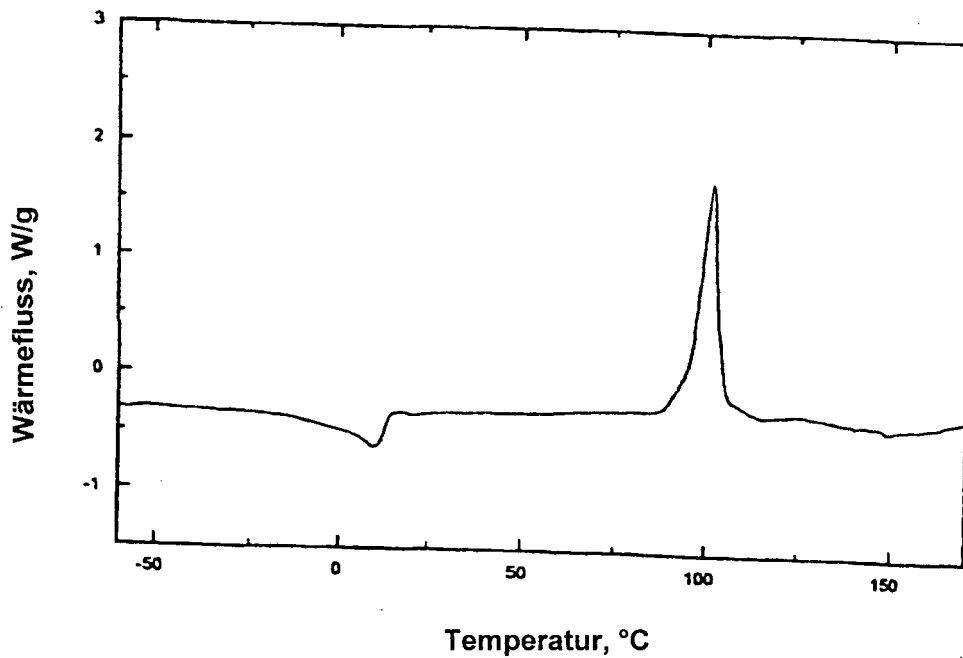


FIG. 4

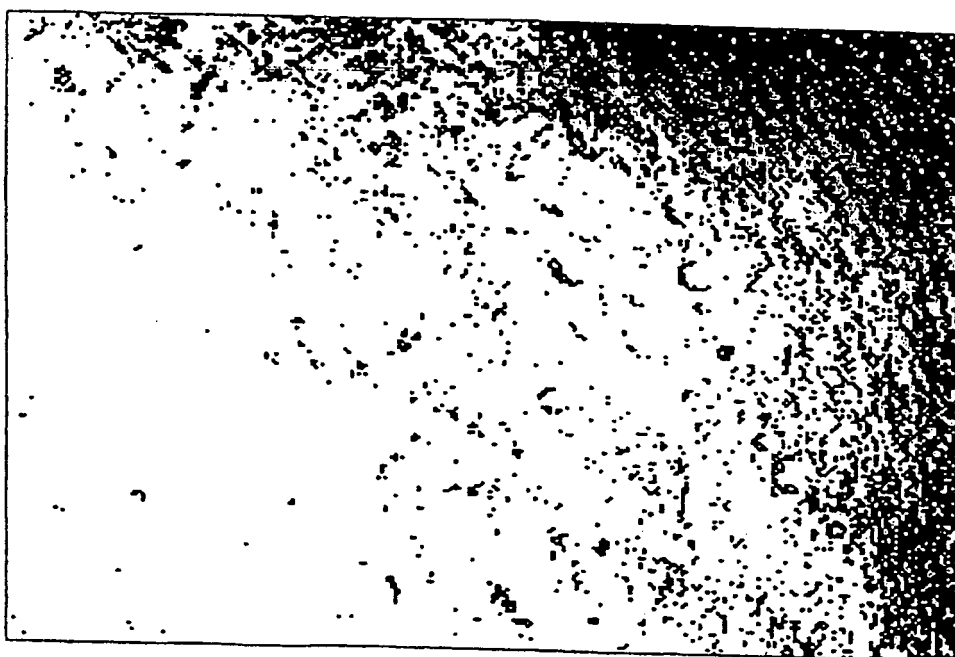


FIG. 5c

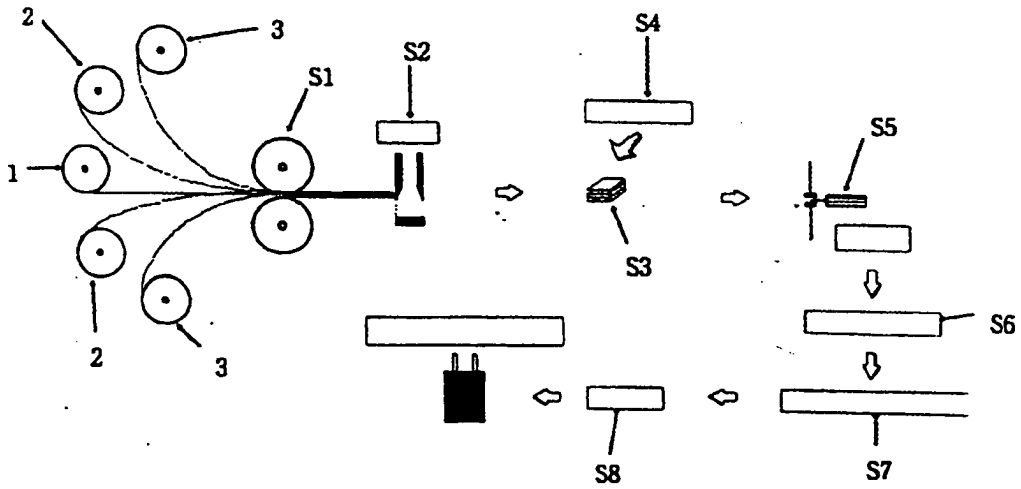


FIG. 6

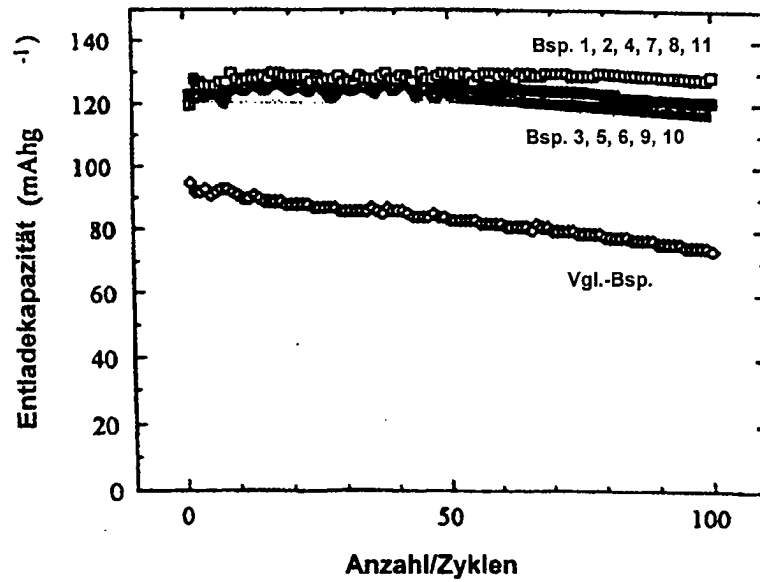


FIG. 7a

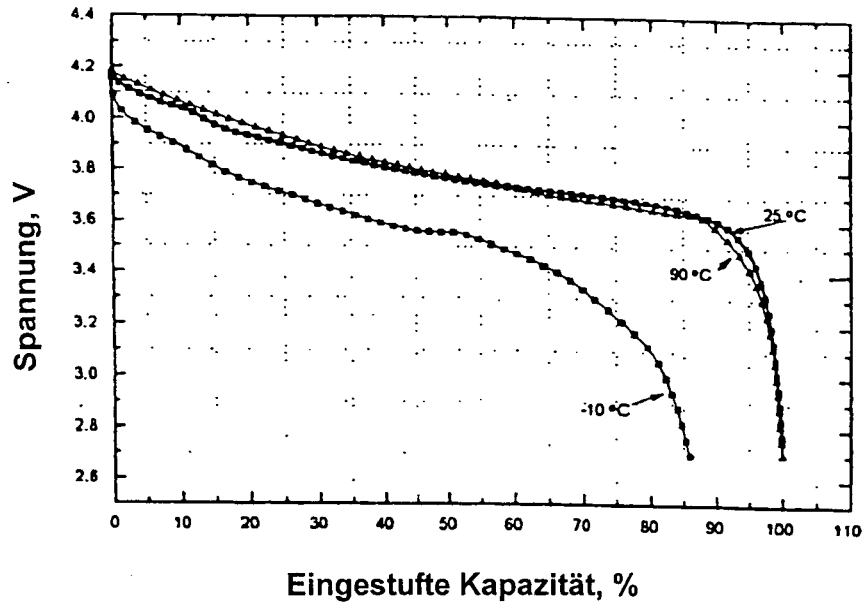


FIG. 7b

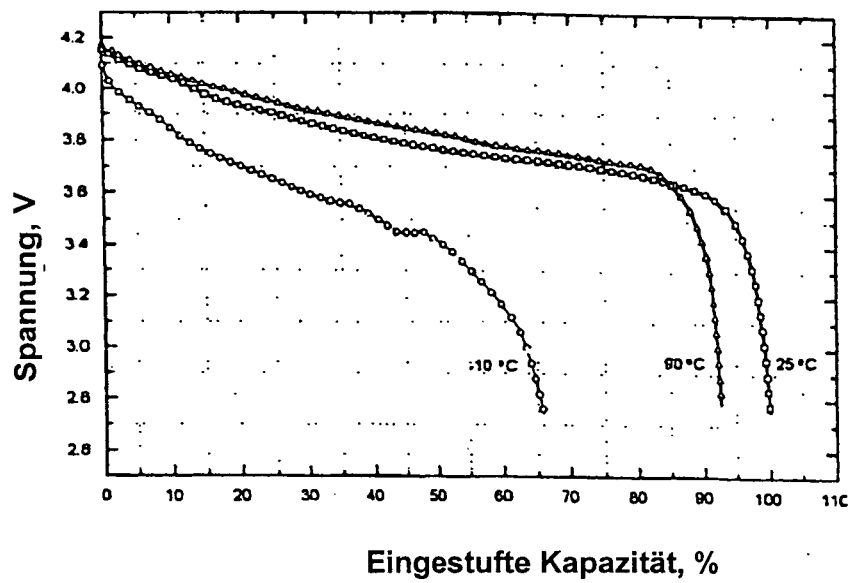


FIG. 8a

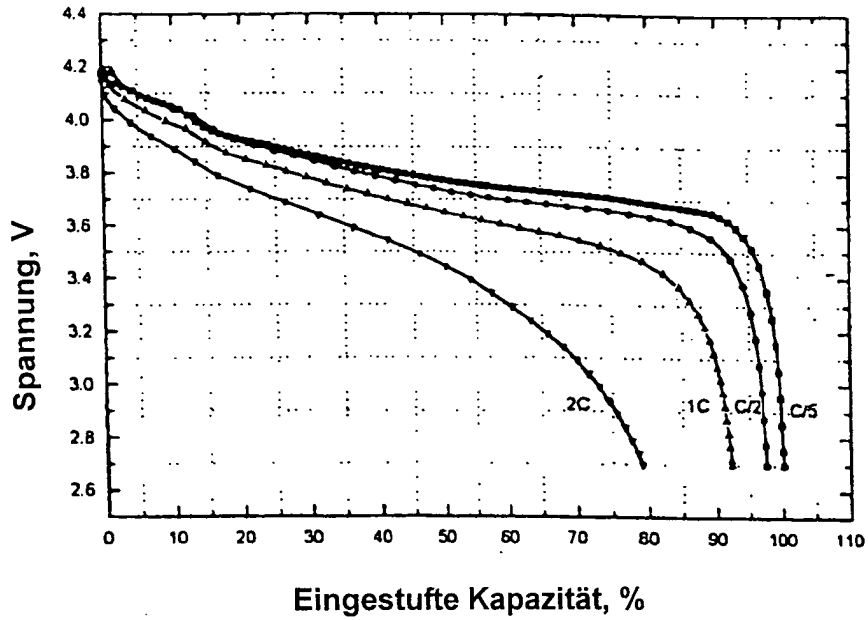


FIG. 8b

