

公告本

申請日期	89. 8. 24
案 號	89 11 70 21
類 別	H01M 4/36

A4
C4

480767

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

一、發明 名稱	中 文	用於非水電池之元件，特別是電極，該元件之製法，該元件做為陰極、陽極、分離器及電池之應用
	英 文	ELEMENT, IN PARTICULAR AN ELECTRODE, FOR USE IN A NON-AQUEOUS BATTERY, A METHOD OF MANUFACTURING SUCH AN ELEMENT, THE APPLICATION OF SUCH AN ELEMENT AS A CATHODE, AN ANODE AND A SEPARATOR AS WELL AS A BATTERY
二、發明人 創作	姓 名	瑞法特 亞塔 穆斯塔法 海克梅特
	國 籍	賽普勒斯
	住、居所	荷蘭愛因和文市普羅何斯蘭路6號
三、申請人	姓 名 (名稱)	荷蘭商皇家飛利浦電子股份有限公司
	國 籍	荷蘭
	住、居所 (事務所)	荷蘭愛因和文市格羅尼渥街1號
	代 表 人 姓 名	J.L. 凡 德 渥

(由本局填寫)

承辦人代碼：
大 類：
I P C 分類：

A6
B6

本案已向：

國（地區） 申請專利，申請日期： 案號： ，☐有 ☐無主張優先權

歐洲專利機構 1999 年 03 月 31 日 99201023.1 ☐有 ☒無主張優先權

有關微生物已寄存於： ，寄存日期： ，寄存號碼：

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄）

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

五、發明說明(1)

本發明係關於供使用於非水電池中之元件，特別是電極，此元件包括由無機，視需要之導電粒子、具有高分子量之聚合物及含有煙類之化合物所組成之至少一微孔片板。本發明另外係關於製造此元件之方法以及應用此元件各自作為陰極、陽極和分離器。本發明另外係關於電池此電池係連續由一或數層的電流收集器、陽極、分離器、陰極和電流收集器所組成。

如開頭一段中所述之元件就其本身而論自美國專利說明書5,143,805號中得知。其中所揭示之元件，特別是陰極電極包含微孔片板，它是由具有下列各項之一種基本上均勻組合物所組成之自撐式箔：大概70-98重量%具有電化活性且導電之顆粒物料，大概2-30重量%具有重量平均分子量150,000至大概5百萬之聚乙烯和0至大概5重量%之聚乙烯的有機柔軟劑，及由導電材料所組成之電流收集器，該電流收集器與微孔片板的至少一面呈密切接觸。

此電極的缺點是少量的無機粒子在聚合物中。少量的無機粒子降低最後所獲得之電極的活性。但是事實上，增加無機粒子的數量導致減少微孔片板的完整性而致使微孔片板易於形成裂紋及散解。

因此之故，本發明的一個目的在提供一種元件，特別是電極其中可處理甚大數量的無機粒子。

本發明的另外目的是提供一種元件，特別是電極，儘管具有高含量的無機粒子，它不易於形成裂紋和散解。

依照本發明，如開頭段中所述之元件其特徵為：如果使

五、發明說明(2)

用微孔片板作為陽極和分離器，該微孔片板包含80-99.9重量%無機，視需要之導電粒子，具有高分子量之0.1-20重量%聚烯烴化合物及0-20.0重量%聚合物，於接觸電解質時，此聚合物膨脹；如果使用微孔片板作為陰極(其中含有0.1-1.9重量%的定量之具有高分子量之聚烯烴化合物)，則該微孔片板包含80至99.9重量%無機，視需要之導電粒子及0-20重量%聚合物，於接觸電解質時此聚合物膨脹，而如果使用微孔片板作為陰極其中含有1.9-20重量%的定量之具有高分子量之聚烯烴化合物，則該微孔片板包含80-98重量%無機，視需要之導電粒子及0.1-20重量%聚合物，於接觸電解質時，此聚合物膨脹。

顯然可見：如本文中所使用之術語陰極係述及正電極而術語陽極係述及負電極。

關於具有高分子之聚烯烴化合物，較佳使用具有自1-10百萬範圍內之重量平均分子量之超高分子量聚乙烯(UHMWP)或超高分子量聚丙烯(UHMWPP)。

使用於本發明中之此聚烯烴化合物可另外由具有高分子量之聚乙烯和具有低分子之聚乙烯混合物所組成。然而，交替式可能使用具有高分子量之聚乙烯和具有高分子量之聚丙烯混合物。此種混合物顯示對於高溫之高抗性和低收縮。

為了獲得具有高溫穩定性之撓性，導電電極，需要將聚烯烴化合物連接。連接可經由使用游離輻射，電子輻射或K-輻射而發生。聚合物的數量(在與電解質接觸後此聚合

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

五、發明說明 (3)

物顯示膨脹)範圍較佳自0.1至5重量%而較佳係選自經由聚苯乙烯、聚氧化乙烯、聚氧化丙烯、聚丙烯酸酯、聚碳酸酯及其共聚物所形成之該團中。

可將依照本發明之元件適當使用作為陰極。如果使用該元件作為陰極，較佳使用無機粒子例如由下列各氧化物中選出之粒子：3d-過渡金屬氧化物例如 LiMn_2O_4 ， LiCoO_2 ， LiNiO_2 ，視需要可將導電粒子例如碳及/或金屬加至其中。

亦可適當使用相關之元件作為陽極。如果使用相關元件作為陽極，較佳使用碳及/或石墨作為無機，導電粒子。

亦可適當使用相關之元件作為分離器。如果使用相關元件作為分離器，較佳使用無機，非電粒子，此等粒子宜選自陶瓷材料及/或氧化物。關於陶瓷物料，較佳使用 $\text{Li}_{(1+x)}\text{Al}_x\text{Ti}_{(2-x)}(\text{PO}_4)_3$ 及/或 $\text{Li}_{3x}\text{La}_{(2/3-x)}\text{TiO}_3$ 。關於氧化物，可適當使用 Al_2O_3 及/或 SiO_2 。

本發明另外係關於由一或數層的電流收集器、陽極、分離器、陰極和電流收集器所組成之電池，依照本發明之電池其特徵為：至少一種的下列組件：陰極、陽極和分離器是上述之陰極、陽極和分離器。

本發明另外係關於製造如上文中所述之元件的方法，該方法之特徵為：將各種出發原料，即：無機，視需要之導電粒子、聚烯烴化合物和聚合物與一種溶劑混合物，其後將所產生之混合物供應至擠壓機以便形成箔，其後將溶劑自箔中移出而獲得微孔片板。

依照本發明之方法，可將陽極、陰極和分離器以此種方

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝
訂
線

五、發明說明(4)

式製造。如上文所述，如果製造分離器可使用陶瓷粒子。

可隨後使用經如此獲得之元件來製造鋰離子電池。製造程序可以許多不同方法而進行。可將陽極和陰極經由在壓力下加熱與電流收集器層合。此操作可以乾態或有溶劑存在下進，隨後將溶劑自該系統中移出。以此種方式，製造成連續電流收集器/陽極/分離器/陰極/電流收集器的複合片板。

另種可能是使陽極、陰極以及分離器連合歷經共擠壓處理。可將所產生之複合元件隨後提供以電流收集器並配置而製成電池。

亦可能使陽極或陰極連同分離器歷經共擠壓處理。隨後可將所產生之複合片板材料提供以電流收集器並配置而製成電池。

依照更另外之方法，在其製造期間，將陽極和陰極兩者均提供以電流收集器。隨後可將此等自撐式片板材料與習用之分離器聯合而製成電池。

可將上文中所述之系統最後提供以有機離子導電之液體而獲得成品電池。本發明將藉許多實例予以解釋，不應將此等實例解釋為限制本發明之範圍。

陽極之製造

製備具有分子量高於1百萬之5.3克，內消旋碳微粒，5克，十氫化萘和0.05克，UHMWPE的混合物。將混合物溶入一種惰性溶劑中並製成薄膜。在移除過量溶劑後，使薄

五、發明說明 (5)

膜歷經輥壓操作而獲得微孔片板。

陰極之製造

除去首先製備包含5克 LiCoO_2 、5克，十氫化萘、0.05克具有分子量高於1百萬之UHMWPE和0.3克，烟炱之混合物以外，陰極以與陽極相同之方式而製成。隨後將該混合物溶入一種惰性溶劑中並以與陽極相似之方式處理。在移除溶劑後，獲得乾微孔片板。實驗顯示：片板的模數係隨著聚合物含量增加而增加。

分離器之製造

分離器係使用具有分子量高於1百萬之1克，UHMWPE和具有大概1 Tm之粒子大小之9克， $\text{Li}_{0.55}\text{La}_{0.35}\text{TiO}_3$ 粒子而製成。將兩種出發原料溶入十氫化萘中其後形成一種多孔聚合物膜。發現：包含丙烯碳酸鹽溶液中之1莫耳% LiPF_6 之此種薄膜在室溫下的傳導度是1.2 mS/cm。

電池之製造

使用適合陽極之銅電流收集器及適合陰極之鋁電流收集器，製成由交替陽極，陰極和分離器各層所組成之電池。隨後將該電池浸沒入1：1 EC：DEC溶液中之1莫耳 LiPF_6 中。隨後，將電池提供在鋁層合之合成樹脂容器中。可將電池充電而不須任何外壓(力)。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

四、中文發明摘要（發明之名稱：用於非水電池之元件，特別是電極，該元件之製法，該元件做為陰極、陽極、分離器及電池之應用）

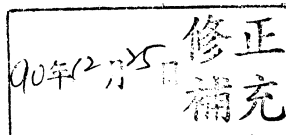
本發明係關於用於非水電池中之元件，特別是電極，此元件包括由無機，視需要之導電粒子、具有高分子量之聚合物及含有烴類之化合物所組成之至少一微孔片板。

可使用該元件作為陰極、陽極和分離器在由一或數層的電流收集器、陽極、分離器、陰極、電流收集器和電解質所組成之電池中，特別在可充電之Li離子電池中。

英文發明摘要（發明之名稱：ELEMENT, IN PARTICULAR AN ELECTRODE, FOR USE IN A NON-AQUEOUS BATTERY, A METHOD OF MANUFACTURING SUCH AN ELEMENT, THE APPLICATION OF SUCH AN ELEMENT AS A CATHODE, AN ANODE AND A SEPARATOR AS WELL AS A BATTERY）

The invention relates to an element, in particular an electrode, to be used in a non-aqueous battery, which element comprises at least a microporous sheet, consisting of inorganic, optionally electroconductive, particles, a polymer having a high molecular weight and a hydrocarbon-containing compound.

The element can be used as a cathode, an anode and a separator in a battery built up of one or more layers of a current collector, an anode, a separator, a cathode, a current collector and an electrolyte, in particular a rechargeable Li-ion battery.



六、申請專利範圍

1. 一種供用於非水電池中之元件，特別是電極，此元件包括由無機，視需要之導電粒子，具有高分子量之聚合物及含有烴類之化合物所組成之至少一微孔片板，其特徵為：如果使用微孔片板作為陽極和分離器，該微孔片板包含80-99.9重量%無機，可能之導電粒子，具有高分子量0.1-20重量%聚烯烴化合物及0-20重量%聚合物，於接觸電解質時此聚合物膨脹；如果使用微孔片板作為陰極（其中含有0.1-1.9重量%的定量之具有高分子量之聚烯烴化合物），則該微孔片板包含80至99.9重量%無機，視需要之導電粒子及0-20重量%聚合物，於接觸電解質時此聚合物膨脹，而如果使用微孔片板作為陰極其中含有1.9-20重量%的定量之具有高分子量之聚烯烴化合物，則該微孔片板包含80-98重量%無機，視需要之導電粒子及0.1-20重量%聚合物，於接觸電解質時此聚合物膨脹。
2. 如申請專利範圍第1項之元件，其特徵為：使用具有範圍自1至10百萬之重量平均分子之UHMW-聚乙烯作為具有高分子量之聚烯烴化合物。
3. 如申請專利範圍第1項之元件，其特徵為：使用具有範圍自1至10百萬之重量平均分子之UHMW-聚丙烯作為具有高分子量之聚烯烴化合物。
4. 如申請專利範圍第1-3項中任一項之元件，其特徵為：將具有高分子量之聚烯烴化合物連接。
5. 如申請專利範圍第1-3項中任一項之元件，其特徵為：

六、申請專利範圍

聚合物的數量範圍自0.1至5重量%。

6. 如申請專利範圍第1-3項中任一項之元件，其特徵為：
在與電解質接觸後顯示膨脹之聚合物係選自經由聚苯乙烯、聚氧化乙烯、聚氧化丙烯、聚丙烯酸酯、聚碳酸酯及其共聚物所形成之該團中。
7. 如申請專利範圍第1-3項中任一項之元件，其係作為陰極。
8. 一種依申請專利範圍第7項元件所獲得之陰極，其特徵為：無機，導電之粒子係選自經由 LiMn_2O_4 ， LiCoO_2 ， LiNiO_2 所形成之該團中，視需要將導電粒子例如碳及/或金屬添加至其中。
9. 如申請專利範圍第1至3項中任一項之元件，其係作為陽極。
10. 一種依申請專利範圍第9項元件所獲得之陽極，其特徵為：無機粒子係選自碳及/或石墨。
11. 如申請專利範圍第1-3項中任一項之元件，其係作為分離器。
12. 一種依申請專利範圍第11項元件所獲得之分離器，其特徵為：無機粒子係選自陶瓷材料及/或氧化物。
13. 如申請專利範圍第12項之分離器，其特徵為：使用 $\text{Li}_{(1+x)}\text{Al}_x\text{Ti}_{(2-x)}(\text{PO}_4)_3$ 及/或 $\text{Li}_{3x}\text{La}_{(2/3-x)}\text{TiO}_3$ 作為陶瓷物料。
14. 如申請專利範圍第12項之分離器，其特徵為：使用 Al_2O_3 及/或 SiO_2 作為氧化物。

六、申請專利範圍

15. 一種由一或數層的電流收集器、陽極、分離器、陰極和電流收集器及電解質所組成之電池，其特徵為：至少一種的下列組件：陰極、陽極和分離器是申請專利範圍第8項之陰極、申請專利範圍第10項之陽極及申請專利範圍第12項之分離器。
16. 一種製造申請專利範圍第1-6項中任一項之元件的方法，其特徵為：起始原料是無機，視需要之導電粒子、一種聚烯烴化合物和一種聚合物、將彼等與一種溶劑混合，其後將如此獲得之混合物供應至擠壓機而形成箔，其後將溶劑自箔中移出而獲得微孔片板。