

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2013-178952

(P2013-178952A)

(43) 公開日 平成25年9月9日(2013.9.9)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1M 10/052 (2010.01)	HO 1M 10/00 1 O 2	5H021
HO 1M 4/13 (2010.01)	HO 1M 4/02 1 O 1	5H029
HO 1M 2/16 (2006.01)	HO 1M 2/16 M	5H050
	HO 1M 2/16 P	
	HO 1M 2/16 L	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 18 頁)

(21) 出願番号 特願2012-42134 (P2012-42134)
 (22) 出願日 平成24年2月28日 (2012.2.28)

(71) 出願人 000003997
 日産自動車株式会社
 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地
 (74) 代理人 110000671
 八田国際特許業務法人
 (72) 発明者 寺戸 美由紀
 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産
 自動車株式会社内
 Fターム(参考) 5H021 AA06 CC04 EE02 EE03 EE04
 EE05 EE07 EE10 EE21 EE22
 HH03

最終頁に続く

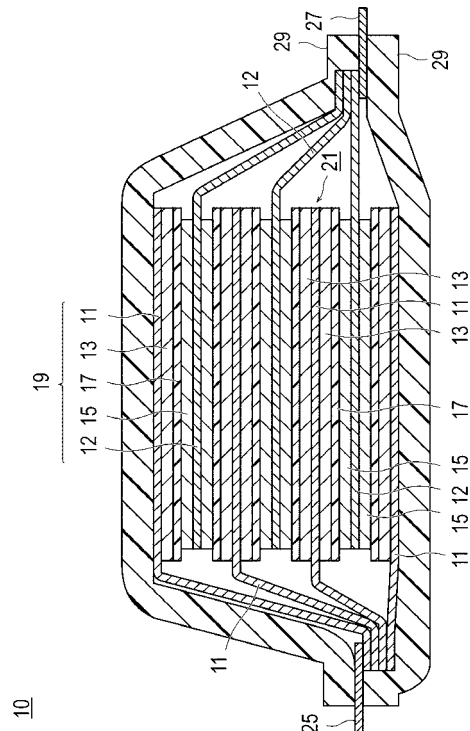
(54) 【発明の名称】 非水電解質二次電池

(57) 【要約】

【課題】非水電解質二次電池を製造する際の積層工程において、積層ずれの発生を効果的に抑制しうる手段を提供する。

【解決手段】本発明の一形態に係る非水電解質二次電池は、正極集電体の表面に正極活物質層が形成されてなる正極と、負極集電体の表面に負極活物質層が形成されてなる負極と、正極活物質層と負極活物質層との間に負極活物質層に接するように介在し、非水電解質を内蔵するセパレータと、を含む単電池層を備える発電要素を有するものである。そして、この非水電解質二次電池は、セパレータに接する側の負極活物質層の表面の表面粗さ ($R_{zjis}(1)$) に対する、負極活物質層に接する側のセパレータの表面の表面粗さ ($R_{zjis}(2)$) の比の値 $R_A (= R_{zjis}(2) / R_{zjis}(1))$ が、 $0.15 \sim 0.85$ である点に特徴を有する。

【選択図】 図1



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

正極集電体の表面に正極活物質層が形成されてなる正極と、
負極集電体の表面に負極活物質層が形成されてなる負極と、
前記正極活物質層と前記負極活物質層との間に前記負極活物質層に接するように介在し、
非水電解質を内蔵するセパレータと、

を含む単電池層を備える発電要素を有する非水電解質二次電池であって、

前記セパレータに接する側の前記負極活物質層の表面の表面粗さ ($R_{zjiss}(1)$)
に対する、前記負極活物質層に接する側の前記セパレータの表面の表面粗さ ($R_{zjiss}(2)$)
の比の値 $R_A (= R_{zjiss}(2) / R_{zjiss}(1))$ が、 $0.15 \sim 0.85$ であることを特徴とする、非水電解質二次電池。

10

【請求項 2】

前記セパレータが、

多孔質基体層と、

前記多孔質基体層の片面または両面に形成された無機粒子およびバインダを含む耐熱絶縁層と、

を備える耐熱絶縁層付セパレータである、請求項 1 に記載の非水電解質二次電池。

【請求項 3】

前記セパレータが前記正極活物質層にも接するように前記正極活物質層と前記負極活物質層との間に介在し、前記セパレータに接する側の正極活物質層の表面の表面粗さ ($R_{zjiss}(3)$)
に対する、前記正極活物質層に接する側の前記セパレータの表面の表面粗さ ($R_{zjiss}(4)$)
の比の値 $R_B (= R_{zjiss}(4) / R_{zjiss}(3))$ が、 $0.15 \sim 1.5$ である、請求項 1 または 2 に記載の非水電解質二次電池。

20

【請求項 4】

前記 R_B が、前記 R_A よりも大きい、請求項 3 に記載の非水電解質二次電池。

【請求項 5】

前記 R_B が、 0.5 以上である、請求項 3 または 4 に記載の非水電解質二次電池。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、非水電解質二次電池に関する。

30

【背景技術】

【0002】

近年、環境保護運動の高まりを背景として、電気自動車 (EV)、ハイブリッド電気自動車 (HEV)、および燃料電池車 (FCV) の開発が進められている。これらのモータ駆動用電源としては繰り返し充放電可能な二次電池が適しており、特に高容量、高出力が期待できるリチウムイオン二次電池などの非水電解質二次電池が注目を集めている。

【0003】

非水電解質二次電池は、その構成要素として、正極、負極、および正極と負極との間に介在する電解質層を含む単電池層が積層されてなる発電要素を有している。

40

【0004】

電解質層の構成として、例えば、微多孔質樹脂シートからなるセパレータに液体電解質またはゲル電解質といった非水電解質が内蔵されてなるものが知られている。これらの非水電解質は、有機溶媒と、リチウムイオン二次電池においてはリチウム塩とをその必須成分として含む。

【0005】

ところで、単電池層の中で電解質層を構成するセパレータは、非水電解質を保持して正極と負極との間のイオン伝導性を確保する機能；正極と負極との間の隔壁としての機能；を併せ持つことが求められる。また、電池が高温となった場合に充放電反応を停止させるために、イオンの移動を遮断する機能を有していることが望ましく、このようなセパレー

50

タとして、従来はポリオレフィンなどの熱可塑性樹脂から構成される微多孔膜が用いられていた。

【0006】

しかしながら、ポリオレフィンなどの柔らかい材料からなるセパレータを用いた場合、電池製造時に混入した異物片や、電極より剥離した電極活物質層片などがセパレータを貫通し、内部短絡が生じる虞があった。

【0007】

このような問題に対し、例えば特許文献1では、ポリオレフィン等からなる多孔質構造を有する膜の少なくとも片面に、無機微粒子を含む通気性を有する表面保護層（耐熱絶縁層）を形成することによって、内部短絡を防ぐことが提案されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0008】

【特許文献1】特開平11-80395号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

上述したような構成を有する非水電解質二次電池の製造における主要なプロセスとして、電極（正極または負極）とセパレータとを交互に積層することにより複数の単電池層が積層されてなる発電要素を作製する工程（積層工程）がある。この積層工程においては、積層される各要素が面方向にずれないように、積層方向に向かってまっすぐ積層される必要がある。この積層工程において各要素が積層ずれを起こすと、活物質層に含まれる活物質が十分に充放電に利用されない結果として所望の充放電容量が得られない場合がある。

【0010】

従来、積層工程におけるこのような積層ずれを抑制するための手段として十分に有効なものは知られていないのが現状である。そして、本発明者の検討によれば、このような積層ずれは、負極活物質層とセパレータとの界面において顕著に発生することが判明した。

【0011】

そこで本発明は、非水電解質二次電池を製造する際の積層工程において、積層ずれの発生を効果的に抑制しうる手段を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0012】

本発明者は、上記課題を解決するために鋭意検討を行なった。その結果、直接隣接する負極活物質層とセパレータとの界面を構成するこれらの2つの要素の各表面の表面粗さの比の値を所定の範囲内に制御することで上記課題が解決されうることを見出した。

【0013】

このようにして完成された本発明の一形態に係る非水電解質二次電池は、正極集電体の表面に正極活物質層が形成されてなる正極と、負極集電体の表面に負極活物質層が形成されてなる負極と、正極活物質層と負極活物質層との間に負極活物質層に接するように介在し、非水電解質を内蔵するセパレータと、を含む単電池層を備える発電要素を有するものである。そして、この非水電解質二次電池は、セパレータに接する側の負極活物質層の表面の表面粗さ（ $R_{zjiss}(1)$ ）に対する、負極活物質層に接する側のセパレータの表面の表面粗さ（ $R_{zjiss}(2)$ ）の比の値（以下、この比の値を「表面粗さ比」とも称する） $R_A (= R_{zjiss}(2) / R_{zjiss}(1))$ が、 $0.15 \sim 0.85$ である点に特徴を有する。

【発明の効果】

【0014】

本発明の一形態に係る非水電解質二次電池によれば、負極活物質層とセパレータとの間の動摩擦係数が比較的大きい値に制御される。その結果、非水電解質二次電池を製造する際の積層工程において、特に負極活物質層とセパレータとを積層する際の積層ずれの発生

10

20

30

40

50

が効果的に抑制されうる。

【図面の簡単な説明】

【0015】

【図1】本発明の一実施形態に係るリチウムイオン二次電池を示す模式断面図である。

【図2】本発明の一実施形態に係る耐熱絶縁層付セパレータを模式的に表した断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0016】

以下、添付した図面を参照しながら、本発明の実施形態を説明する。なお、図面の説明において同一の要素には同一の符号を付し、重複する説明を省略する。また、図面の寸法比率は、説明の都合上誇張されており、実際の比率とは異なる場合がある。

10

【0017】

非水電解質二次電池は、たとえば、形態・構造で区別した場合には、積層型（扁平型）電池、巻回型（円筒型）電池などさまざまな形態・構造が存在する。本発明においても、これらのうちの任意の形態が適用可能であるが、本発明によれば、平板積層型（扁平型）電池構造を有する非水電解質二次電池において特に顕著な効果が発現しうる。よって、以下では、平板積層型（扁平型）電池構造を有する非水電解質二次電池について、リチウムイオン二次電池を例に挙げて説明する。

【0018】

図1は、本発明の一実施形態に係るリチウムイオン二次電池を示す模式断面図である。

20

【0019】

図1に示すように、本実施形態のリチウムイオン二次電池10は、実際に充放電反応が進行する略矩形の発電要素21が、外装であるラミネートシート29の内部に封止された構成を有する。詳しくは、高分子-金属複合ラミネートシートを電池の外装として用いて、その周辺部の全部を熱融着にて接合することにより、発電要素21を収納し密封した構成を有している。

【0020】

発電要素21は、負極集電体11の両面に負極活物質層13が配置された負極と、セパレータ17と、正極集電体12の両面に正極活物質層15が配置された正極とを積層した構成を有している。具体的には、1つの負極活物質層13とこれに隣接する正極活物質層15とが、セパレータ17を介して対向するようにして、負極、セパレータおよび正極がこの順に積層されている。なお、セパレータ17は、非水電解質（例えば、液体電解質）を内蔵している。

30

【0021】

これにより、隣接する負極、セパレータおよび正極は、1つの単電池層19を構成する。したがって、本実施形態のリチウムイオン電池10は、単電池層19が複数積層されることで、電氣的に並列接続されてなる構成を有するともいえる。発電要素21の両最外層に位置する最外層負極集電体には、いずれも片面のみに負極活物質層13が配置されている。なお、図1とは負極および正極の配置を逆にすることで、発電要素21の両最外層に最外層正極集電体が位置するようにし、該最外層正極集電体の片面のみに正極活物質層が配置されているようにしてもよい。もちろん、図1に示すように発電要素21の両最外層に負極が位置する場合に、最外層（負極）集電体の両面に負極活物質層を配置して、発電要素の最外層に位置する負極活物質層を機能させない構成としてもよい。

40

【0022】

負極集電体11および正極集電体12には、各電極（正極および負極）と導通される負極集電板25および正極集電板27がそれぞれ取り付けられている。そして、これらの集電板（25、27）はそれぞれ、ラミネートシート29の端部に挟まれるようにしてラミネートシート29の外部に導出されている。負極集電板25および正極集電板27はそれぞれ、必要に応じて負極リードおよび正極リード（図示せず）を介して、各電極の負極集電体11および正極集電体12に超音波溶接や抵抗溶接等により取り付けられていてもよ

50

い。

【0023】

[表面粗さ比]

本実施形態に係るリチウムイオン二次電池10は、セパレータ17に接する側の負極活物質層13の表面の表面粗さ($R_{zjis}(1)$)に対する、負極活物質層13に接する側のセパレータ17の表面の表面粗さ($R_{zjis}(2)$)の比の値として定義される表面粗さ比 $R_A(=R_{zjis}(2)/R_{zjis}(1))$ が、0.15~0.85である点に特徴を有する。

【0024】

ここで、表面粗さ(R_{zjis})は、「十点平均粗さ」とも称されるパラメータであり、後述する実施例に記載の手法により測定される。 R_A の値は上述した範囲内のものであればよいが、好ましくは0.6以下であり、より好ましくは0.5以下であり、さらに好ましくは0.4以下であり、特に好ましくは0.3以下であり、最も好ましくは0.25以下である。一方、 R_A の下限値についても特に制限はないが、実現可能性の観点から、通常は0.2以上程度の値となる。

10

【0025】

このように、 R_A の値が0.15~0.85の範囲内の値であると、後述する実施例の欄において実証されているように、負極活物質層とセパレータとの間の動摩擦係数が比較的大きい値に制御される。その結果、非水電解質二次電池を製造する際の積層工程において、特に負極活物質層とセパレータとを積層する際の積層ずれの発生が効果的に抑制され

20

【0026】

本発明の好ましい実施形態では、上述した R_A に加えて、正極活物質層とセパレータとの間の表面粗さ比もまた、制御される。具体的には、本発明の非水電解質二次電池においては、セパレータ17に接する側の正極活物質層15の表面の表面粗さ($R_{zjis}(3)$)に対する、正極活物質層15に接する側のセパレータ17の表面の表面粗さ($R_{zjis}(4)$)の比の値として定義される表面粗さ比 $R_B(=R_{zjis}(4)/R_{zjis}(3))$ が、0.15~1.5である。

【0027】

R_B の値が上述した範囲内のものであると、これも後述する実施例の欄において実証されているように、負極活物質層とセパレータとの間の動摩擦係数、および、正極活物質層とセパレータとの間の動摩擦係数が互いに近接した値となり、正負極間で滑りやすさが類似した構成が達成される。一般に、非水電解質二次電池を製造する際の積層工程においては、活物質層とセパレータとの間の滑りやすさ(動摩擦係数)の絶対値も重要な考慮因子であるが、この動摩擦係数のようなパラメータについては、正負極間でバランスが取れていることが生産性の観点からはより好ましいものといえる。なお、 R_B の値は上述した範囲内のものであればよいが、好ましくは0.5以上であり、より好ましくは0.5~1.25であり、さらに好ましくは0.5~0.8以上であり、特に好ましくは0.5~0.6である。また、他の好ましい実施形態では、 R_B が R_A よりも大きい。これらの構成とすることにより、本発明の作用効果がより一層顕著に発揮されうる。

30

40

【0028】

表面粗さ比(R_A 、 R_B)の値を上述した好ましい範囲内に制御するための具体的な手法について特に制限はなく、本願の出願時における技術常識が適宜参照されうる。一例として、例えば活物質層表面の表面粗さを制御する手法としては、活物質層に含まれる活物質の粒子径を調節するという方法が例示される。この場合、活物質の粒子径を大きくすると、活物質層表面の表面粗さを大きくすることができる。また、活物質層の表面粗さを制御する他の手法としては、活物質層を形成する際に施されることがあるプレス処理の条件を適宜調節して、活物質層の表面の平坦度を制御する方法もある。

【0029】

一方、セパレータ表面の表面粗さを制御する手法としては、後述する耐熱絶縁層付セパ

50

レータ（図2を参照）を採用する場合には、耐熱絶縁層に含まれる無機粒子のBET比表面積や粒子径を調節するという方法が例示される。この場合、耐熱絶縁層に含まれる無機粒子のBET比表面積または粒子径を大きくすると、セパレータ表面の表面粗さを大きくすることができる。また、さらに、セパレータとして耐熱絶縁層付セパレータ以外のもの（例えば、樹脂フィルムなど）を用いる場合には、樹脂の融点以下の温度で圧延ロールで圧縮するという方法により、セパレータ表面の表面粗さを制御することが可能である。

【0030】

以下、上述したリチウムイオン二次電池の構成要素について説明するが、下記の形態のみには限定されない。

【0031】

[負極（負極活物質層）]

負極は、負極集電体11の表面に負極活物質層13が形成されてなる構造を有する。

【0032】

負極集電体11は、負極活物質層13と外部とを電気的に接続するための部材であって、導電性の材料から構成される。集電体の具体的な形態について特に制限はなく、正極集電体12について上述した形態が同様に採用されうる。

【0033】

負極活物質層15は負極活物質を含み、必要に応じて電気伝導性を高めるための導電性材料、バインダなどをさらに含む。負極活物質層13は電解質を含んでもよい。

【0034】

負極活物質は、リチウムを吸蔵・放出可能な材料からなるものであれば特に制限されない。負極活物質の例としては、SiやSnなどの金属、あるいはTiO、Ti₂O₃、TiO₂、もしくはSiO₂、SiO、SnO₂などの金属酸化物、Li_{4/3}Ti_{5/3}O₄もしくはLi₇MnNなどのリチウムと遷移金属との複合酸化物、Li-Pb系合金、Li-Al系合金、Li、または天然黒鉛、人造黒鉛、カーボンブラック、活性炭、カーボンファイバー、コークス、ソフトカーボン、もしくはハードカーボンなどの炭素材料などが好ましく挙げられる。また、負極活物質は、リチウムと合金化する元素を含むことが好ましい。リチウムと合金化する元素を用いることにより、従来の炭素系材料に比べて高いエネルギー密度を有する高容量および優れた出力特性の電池を得ることが可能となる。上記負極活物質は、単独で使用されてもあるいは2種以上の混合物の形態で使用されてもよい。

【0035】

上記のリチウムと合金化する元素としては、以下に制限されることはないが、具体的には、Si、Ge、Sn、Pb、Al、In、Zn、H、Ca、Sr、Ba、Ru、Rh、Ir、Pd、Pt、Ag、Au、Cd、Hg、Ga、Tl、C、N、Sb、Bi、O、S、Se、Te、Cl等が挙げられる。これらの中でも、容量およびエネルギー密度に優れた電池を構成できる観点から、炭素材料、ならびに/またはSi、Ge、Sn、Pb、Al、In、およびZnからなる群より選択される少なくとも1種以上の元素を含むことが好ましく、炭素材料、Si、またはSnの元素を含むことが特に好ましい。これらは1種単独で使用しても良いし、2種以上を併用してもよい。

【0036】

負極活物質の平均粒子径は、特に制限されないが、負極活物質の高容量化、反応性、サイクル耐久性の観点からは、好ましくは1~100μm、より好ましくは1~20μmである。このような範囲であれば、二次電池は、高出力条件下での充放電時における電池の内部抵抗の増大が抑制され、十分な電流を取り出しうる。なお、負極活物質が2次粒子である場合には該2次粒子を構成する1次粒子の平均粒子径が10nm~1μmの範囲であるのが望ましいといえるが、本発明では、必ずしも上記範囲に制限されるものではない。ただし、製造方法にもよるが、負極活物質が凝集、塊状などにより2次粒子化したものでなくてもよい。かかる負極活物質の粒径および1次粒子の粒径は、レーザー回折・散乱法により測定されるモード径が採用される。なお、負極活物質の形状は、その種類や製造方

10

20

30

40

50

法等によって取り得る形状が異なり、例えば、球状（粉末状）、板状、針状、柱状、角状などが挙げられるがこれらに限定されるものではなく、いずれの形状であれ問題なく使用できる。好ましくは、充放電特性などの電池特性を向上し得る最適の形状を適宜選択するのが望ましい。

【0037】

導電性材料は、活物質層の導電性を向上させることを目的として配合される。本実施形態において用いられうる導電性材料は特に制限されず、従来公知の形態が適宜参照されうる。例えば、アセチレンブラック、ファーネスブラック、チャンネルブラック、サーマルブラック等のカーボンブラック；気相成長炭素繊維（V G C F）等の炭素繊維；グラファイトなどの炭素材料が挙げられる。活物質層が導電性材料を含むと、活物質層の内部における電子ネットワークが効果的に形成され、電池の出力特性の向上に寄与しうる。

10

【0038】

（バインダ）

バインダとしては、以下に制限されることはないが、ポリフッ化ビニリデン（P V D F）、カルボキシメチルセルロース（C M C）、ポリテトラフルオロエチレン（P T F E）、ポリ酢酸ビニル、およびアクリル樹脂（例えば、L S R）などの熱可塑性樹脂、ポリイミド、エポキシ樹脂、ポリウレタン樹脂、およびユリア樹脂などの熱硬化性樹脂、ならびにスチレン-ブタジエンゴム（S B R）などのゴム系材料が挙げられる。

【0039】

なお、セパレータ17に接する側の負極活物質層13の表面の表面粗さ（ $R_{zj i s}(1)$ ）の具体的な値について特に制限はなく、上述した規定を満足するように適宜調節されうる。ただし、 $R_{zj i s}(1)$ は、好ましくは $3.0 \sim 10.0 \mu m$ であり、より好ましくは $3.0 \sim 6.0 \mu m$ である。

20

【0040】

〔正極（正極活物質層）〕

正極は、正極集電体12の表面に正極活物質層15が形成されてなる構造を有する。

【0041】

正極集電体12は、正極活物質層15と外部とを電気的に接続するための部材であって、導電性の材料から構成される。集電体の具体的な形態について特に制限はない。導電性を有する限り、その材料は特に限定されず、一般的なリチウムイオン二次電池に用いられている従来公知の形態が採用されうる。集電体の構成材料としては、例えば、金属や導電性高分子が採用されうる。具体的には、鉄、クロム、ニッケル、マンガン、チタン、モリブデン、バナジウム、ニオブ、銅、銀、白金、ステンレスまたはカーボンが挙げられ、これらは単体、合金または複合体をなしてもよい。なお、非導電性高分子からなる基材に導電性フィラーが分散されてなる構成を有する構造体もまた、集電体の一形態として採用されうる。集電体の厚さは特に限定されないが、通常は $1 \sim 100 \mu m$ 程度である。集電体の大きさは、リチウムイオン二次電池の使用用途に応じて決定される。

30

【0042】

正極活物質層13は正極活物質を含み、必要に応じて電気伝導性を高めるための導電性材料、バインダなどをさらに含む。正極活物質層15は電解質を含んでもよい。

40

【0043】

正極活物質は、特にリチウムの吸蔵放出が可能な材料であれば特に限定されず、リチウムイオン二次電池に通常用いられる正極活物質が利用されうる。具体的には、リチウム-遷移金属複合酸化物が好ましく、例えば、 $LiMn_2O_4$ などのLi-Mn系複合酸化物、 $LiNiO_2$ などのLi-Ni系複合酸化物、 $LiNi_{0.5}Mn_{0.5}O_2$ などのLi-Ni-Mn系複合酸化物が挙げられる。場合によっては、2種以上の正極活物質が併用されてもよい。

【0044】

正極活物質の平均粒子径は、特に制限されないが、正極活物質の高容量化、反応性、サイクル耐久性の観点からは、好ましくは $1 \sim 100 \mu m$ 、より好ましくは $1 \sim 20 \mu m$ で

50

ある。このような範囲であれば、二次電池は、高出力条件下での充放電時における電池の内部抵抗の増大が抑制され、十分な電流を取り出しうる。なお、正極活物質が2次粒子である場合には該2次粒子を構成する1次粒子の平均粒子径が10nm～1μmの範囲であるのが望ましいといえるが、本発明では、必ずしも上記範囲に制限されるものではない。ただし、製造方法にもよるが、正極活物質が凝集、塊状などにより2次粒子化したものでなくてもよい。かかる正極活物質の粒径および1次粒子の粒径は、レーザ回折・散乱法により測定されるモード径が採用される。なお、正極活物質の形状は、その種類や製造方法等によって取り得る形状が異なり、例えば、球状（粉末状）、板状、針状、柱状、角状などが挙げられるがこれらに限定されるものではなく、いずれの形状であれ問題なく使用できる。好ましくは、充放電特性などの電池特性を向上し得る最適の形状を適宜選択するのが望ましい。

10

【0045】

なお、正極活物質層15に含まれうる導電性材料やバインダの具体的な形態については、負極活物質層13について上述した形態が挙げられるため、ここでは詳細な説明を省略する。

【0046】

また、セパレータ17に接する側の正極活物質層15の表面の表面粗さ（ R_{zjis} （3））の具体的な値について特に制限はなく、上述した規定を満足するように適宜調節されうる。ただし、 R_{zjis} （3）は、好ましくは1.5～3.5μmであり、より好ましくは2.0～3.0μmである。

20

【0047】

〔セパレータ〕

セパレータ17は、負極活物質層13と正極活物質層15との間の空間的な隔壁（スペーサ）として機能する。また、これと併せて、充放電時における正負極間でのリチウムイオンの移動媒体である非水電解質を内蔵する機能をも有する。

【0048】

セパレータ17は、上述したように非水電解質を内蔵する。セパレータ17に内蔵される非水電解質の具体的な形態について特に制限はなく、液体電解質および高分子ゲル電解質が採用されうる。

【0049】

液体電解質は、有機溶媒にリチウム塩が溶解したものである。有機溶媒としては、例えば、ジメチルカーボネート（DMC）、ジエチルカーボネート（DEC）、ジプロピルカーボネート（DPC）、エチルメチルカーボネート（EMC）、プロピオン酸メチル（MP）、酢酸メチル（MA）、ギ酸メチル（MF）、4-メチルジオキソラン（4MeDOL）、ジオキソラン（DOL）、2-メチルテトラヒドロフラン（2MeTHF）、テトラヒドロフラン（THF）、ジメトキシエタン（DME）、エチレンカーボネート（EC）、プロピレンカーボネート（PC）、ブチレンカーボネート（BC）、およびγ-ブチロラクトン（GBL）などが挙げられる。これらの溶媒は、1種を単独で使用してもよいし、2種以上を組み合わせた混合物として使用してもよい。

30

【0050】

また、リチウム塩としては、特に制限はないが、 $LiPF_6$ 、 $LiBF_4$ 、 $LiClO_4$ 、 $LiAsF_6$ 、 $LiTaF_6$ 、 $LiSbF_6$ 、 $LiAlCl_4$ 、 $Li_2B_{10}Cl_{10}$ 、 LiI 、 $LiBr$ 、 $LiCl$ 、 $LiAlCl_2$ 、 $LiHF_2$ 、 $LiSCN$ 等の無機酸陰イオン塩、 $LiCF_3SO_3$ 、 $Li(CF_3SO_2)_2N$ 、 $LiBOB$ （リチウムビスオキサイドボレート）、 $LiBETI$ （リチウムビス（パーフルオロエチレンスルホニルイミド）； $Li(C_2F_5SO_2)_2N$ とも記載）等の有機酸陰イオン塩などが挙げられる。これらのリチウム塩は、単独で使用されてもあるいは2種以上の混合物の形態で使用されてもよい。

40

【0051】

一方、ゲル電解質は、リチウムイオン伝導性を有するマトリックスポリマーに、上記の

50

液体電解質が注入されてなる構成を有する。リチウムイオン伝導性を有するマトリックスポリマーとしては、例えば、ポリエチレンオキシドを主鎖または側鎖に持つポリマー（PEO）、ポリプロピレンオキシドを主鎖または側鎖に持つポリマー（PPO）、ポリエチレングリコール（PEG）、ポリアクリロニトリル（PAN）、ポリメタクリル酸エステル、ポリフッ化ビニリデン（PVdF）、ポリフッ化ビニリデンとヘキサフルオロプロピレンの共重合体（PVdF-HFP）、ポリアクリロニトリル（PAN）、ポリ（メチルアクリレート）（PMA）、ポリ（メチルメタクリレート）（PMMA）などが挙げられる。また、上記のポリマー等の混合物、変成体、誘導体、ランダム共重合体、交互共重合体、グラフト共重合体、ブロック共重合体なども使用できる。これらのうち、PEO、PPOおよびそれらの共重合体、PVdF、PVdF-HFPを用いることが望ましい。か
10
よようなマトリックスポリマーには、リチウム塩がよく溶解しうる。なお、高分子ゲル電解質のマトリックスポリマーは、架橋構造を形成することによって、優れた機械的強度を發揮しうる。架橋構造を形成させるには、適当な重合開始剤を用いて、高分子電解質形成用の重合性ポリマー（例えば、PEOやPPO）に対して熱重合、紫外線重合、放射線重合、電子線重合などの重合処理を施せばよい。また、上述した非水電解質は、電極の活物質層中に含まれていてもよい。

【0052】

一方、セパレータ17の具体的な構成材料等の形態としては、例えば、ポリエチレンやポリプロピレンといったポリオレフィンやポリフッ化ビニリデン-ヘキサフルオロプロピレン（PVdF-HFP）等の炭化水素、ガラス繊維などからなる微多孔膜が挙げられる
20

【0053】

ここで、本発明者の検討によれば、非水電解質二次電池を製造する際の積層工程における負極活物質層とセパレータとの界面での積層ずれの問題が、上述した特許文献1に記載されているような耐熱絶縁層付セパレータを用いた場合に特に顕著に発現することが判明した。そして本実施形態の構成とすることで、このような耐熱絶縁層付セパレータを用いた際の積層ずれの発生も効果的に抑制されうることも見出した。したがって、本発明の好ましい一実施形態では、非水電解質二次電池を構成するセパレータ17として、いわゆる耐熱絶縁層付セパレータが用いられる。以下、セパレータ17が耐熱絶縁層付セパレータである場合の好ましい形態について、説明する。
30

【0054】

図2に、本発明の一実施形態に係る耐熱絶縁層付セパレータを模式的に表した断面図を示す。図2に示す耐熱絶縁層付セパレータ1は、多孔質基体層3の両面に耐熱絶縁層（5a、5b）が形成されてなる。多孔質基体層3は、例えばポリエチレンから構成される微多孔膜の構成を有する。また、耐熱絶縁層（5a、5b）は、例えばバインダであるカルボキシメチルセルロース（CMC）を介してアルミナ（ Al_2O_3 ）粒子が連結されてなる構成を有する。耐熱絶縁層（5a、5b）は、アルミナ粒子が形成する隙間により多孔質構造となっているため、耐熱絶縁層付セパレータ1は、全体として多孔質構造を有する。したがって、耐熱絶縁層付セパレータ1は、全体としてリチウムイオン伝導性を有するセパレータとして機能する。以下、図2に示す形態の耐熱絶縁層付セパレータの各部材について、説明する。
40

【0055】

（多孔質基体層）

図2に示す形態において、多孔質基体層3は、耐熱絶縁層（5a、5b）を形成する際の基体として機能する。多孔質基体層3を構成する材料は、特に制限はないが、熱可塑性樹脂および熱硬化性樹脂などの樹脂材料、金属材料、セルロース系材料などが使用できる。このうち、耐熱絶縁層付セパレータにシャットダウン機能を付与する観点から、樹脂材料からなる多孔質基体層（以下、「樹脂多孔質基体層」とも称する）を用いることが好ましい。

【0056】

10

20

30

40

50

樹脂多孔質基体層を構成する樹脂材料としては、例えば、ポリエチレン（PE）、ポリプロピレン（PP）、またはエチレンおよびプロピレンを共重合して得られる共重合体（エチレン-プロピレン共重合体）、エチレンまたはプロピレンとエチレンおよびプロピレン以外の他のモノマーとを共重合してなる共重合体、ポリスチレン（PS）、ポリ酢酸ビニル（PVAc）、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリフッ化ビニリデン（PFDV）、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリスルホン（PSF）、ポリエーテルスルホン（PES）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、ポリイミド（PI）、ポリアミドイミド（PAI）、フェノール樹脂（PF）、エポキシ樹脂（EP）、メラミン樹脂（MF）、尿素樹脂（UF）、アルキド樹脂、ポリウレタン（PUR）が挙げられる。これらの樹脂は、1種のみが単独で使用されてもよいし、2種以上の混合物として使用されもよい。

10

【0057】

樹脂多孔質基体層を構成する樹脂材料は、耐熱絶縁層付セパレータに120～200の温度範囲においてシャットダウン機能を発現させるために、溶融温度が120～200である樹脂を含むことが好ましい。具体的には、ポリエチレン（PE）、ポリプロピレン（PP）、またはエチレンおよびプロピレンを共重合して得られる共重合体（エチレン-プロピレン共重合体）、エチレンまたはプロピレンとエチレンおよびプロピレン以外の他のモノマーとを共重合してなる共重合体を含む樹脂多孔質基体層を用いることが好ましい。樹脂多孔質基体層を構成する樹脂材料が、溶融温度が120～200である樹脂を含む場合、溶融温度が200を超える熱可塑性樹脂または熱硬化性樹脂と併用されてもよい。その際の樹脂多孔質基体層全体における溶融温度が120～200である樹脂の割合は、好ましくは50質量%以上であり、より好ましくは70%以上であり、さらに好ましくは90%以上であり、特に好ましくは95%以上であり、最も好ましくは100%である。

20

【0058】

また、上述の材料からなる層を2以上積層させた積層体を樹脂多孔質基体層として用いてもよい。一例を挙げると、PP/PE/PPの3層構造の樹脂多孔質基体層が挙げられる。当該3層構造の樹脂多孔質基体層は、PEの溶融温度が130であることから、電池温度が130に達した場合にシャットダウン機能が発現される。万が一さらに電池温度が上昇した場合であっても、PPの溶融温度が170であることから全面短絡に達するのを防ぐことができ、より安全性の高いセパレータとすることができる。

30

【0059】

樹脂多孔質基体層の形状は、特に制限されず、織布、不織布、および微多孔膜などが使用可能である。このうち、高いリチウムイオン伝導性を確保する観点から、微多孔膜であることが好ましい。また、樹脂多孔質基体層の空隙率は、40～85%であることが好ましく、50～70%であることが好ましく、55～60%であることがさらに好ましい。空隙率を上記範囲とすることにより、十分なリチウムイオン伝導性および強度を確保することができる。

【0060】

樹脂多孔質基体の厚さは、特に制限はないが、好ましくは1～200μmであり、より好ましくは5～100μmであり、さらに好ましくは7～30μmであり、特に好ましくは10～20μmである。厚さが5μm以上であれば電解質の保持性が良好であり、200μm以下であれば抵抗が過度に増大しにくい。

40

【0061】

（耐熱絶縁層）

耐熱絶縁層（5a、5b）は、上記多孔質基体層の片面または両面に配置され、セパレータの強度を補強する機能を有する。特に多孔質基体層が樹脂材料から構成される樹脂多孔質基体層である場合、電池温度が上昇することにより生じる内部応力を緩和し、セパレータの熱収縮による変形等を抑制する役割も果たす。当該耐熱絶縁層は、無機粒子およびバインダを含む。

50

【0062】

無機粒子は、耐熱絶縁層の機械的強度や熱収縮抑制効果に寄与する。無機粒子として使用される材料は特に制限されない。例えば、ケイ素、アルミニウム、ジルコニウム、チタンの酸化物 (SiO_2 、 Al_2O_3 、 ZrO_2 、 TiO_2)、水酸化物、および窒化物、ならびにこれらの複合体が挙げられる。これらの無機粒子は、ベーマイト、ゼオライト、アパタイト、カオリン、ムライト、スピネル、オリビン、マイカなどの鉱物資源由来のものであってもよいし、人工的に製造されたものであってもよい。また、これらの無機粒子は1種のみが単独で使用されてもよいし、2種以上が併用されてもよい。これらのうち、コストの観点から、シリカ (SiO_2) またはアルミナ (Al_2O_3) を用いることが好ましく、アルミナ (Al_2O_3) を用いることがより好ましい。

10

【0063】

バインダは、無機粒子どうしや、無機粒子と樹脂多孔質基体層とを接着させる役割を有する。当該バインダによって、耐熱絶縁層が安定に形成され、また多孔質基体層および耐熱絶縁層の間の剥離を防止される。

【0064】

本形態の耐熱絶縁層に使用されるバインダは、特に制限はなく、従来公知のものを当業者は適宜採用できる。例えば、カルボキシメチルセルロース (CMC)、ポリアクリロニトリル、セルロース、エチレン-酢酸ビニル共重合体、ポリ塩化ビニル、スチレン-ブタジエンゴム (SBR)、イソプレンゴム、ブタジエンゴム、ポリフッ化ビニリデン (PVDF)、ポリテトラフルオロエチレン (PTFE)、ポリフッ化ビニル (PVF)、アクリル酸メチルなどの化合物がバインダとして用いられうる。このうち、カルボキシメチルセルロース (CMC)、アクリル酸メチル、またはポリフッ化ビニリデン (PVDF) を用いることが好ましい。これらの化合物は、1種のみが単独で使用されてもよいし、2種以上が併用されてもよい。

20

【0065】

耐熱絶縁層におけるバインダの含有量は、耐熱絶縁層100質量%に対して、2~20質量%であることが好ましい。バインダの含有量が2質量%以上であると、耐熱絶縁層と多孔質基体層との間の剥離強度を高めることができ、セパレータの耐振動性を向上させることができる。一方、バインダの含有量が20質量%以下であると、無機粒子の隙間が適度に保たれるため、十分なリチウムイオン伝導性を確保することができる。

30

【0066】

耐熱絶縁層の1層分の厚さは、好ましくは1~20 μm であり、より好ましくは2~10 μm であり、さらに好ましくは3~7 μm である。耐熱絶縁層の厚さがこのような範囲にあると、耐熱絶縁層付セパレータに十分な強度を付与できるとともに、セパレータ自体の嵩や重さが大きくなりすぎないため好ましい。

【0067】

耐熱絶縁層が多孔質基体層の両面に設けられる場合、2つの耐熱絶縁層の組成は同一であっても異なってもよいが、生産時の取り扱いの観点からは同一であることが好ましい。

【0068】

本形態の耐熱絶縁層付セパレータの全体の厚さは、十分な強度を確保することができる限りにおいて、特に制限はない。ただし、電池のサイズをよりコンパクトにする観点からは、厚すぎない方が好ましい。具体的には、耐熱絶縁層付セパレータの厚さは、10~50 μm であることが好ましく、15~30 μm であることがより好ましい。

40

【0069】

本形態の耐熱絶縁層付セパレータの製造方法については、特に制限はなく、従来公知の技術を適宜参照することにより製造されうる。以下、多孔質基体層として樹脂多孔質基体層を用いた場合の耐熱絶縁層付セパレータの製造方法について説明する。

【0070】

樹脂多孔質基体としてポリオレフィンの微多孔膜を製造する場合、まずポリオレフィン

50

をパラフィン、流動パラフィン、パラフィン油、テトラリン、エチレングリコール、グリセリン、デカリンなどの溶剤に溶解させる。その後これをシート状に押し出し、溶剤を除き、一軸延伸、二軸延伸（同時、逐次）を行うことによって製造されうる。

【0071】

次に、樹脂多孔質基体に耐熱絶縁層を形成する方法について説明する。まず無機粒子およびバインダを溶媒に分散した分散液を調製する。そして分散液を樹脂多孔質基体の一方の面または両面に塗布し、溶媒を乾燥させることによって耐熱絶縁層を形成する。

【0072】

この際に用いられる溶媒として、例えば、N-メチル-2-ピロリドン（NMP）、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、メチルホルムアミド、シクロヘキサン、ヘキサン、水等が用いられる。バインダとしてポリフッ化ビニリデン（PVDF）を採用する場合には、NMPを溶媒として用いることが好ましい。

10

【0073】

その後、上記分散液を樹脂多孔質基体に塗工する。塗工方法も特に制限はなく、例えば、ナイフコーター法、グラビアコーター法、スクリーン印刷法、マイヤーバー法、ダイコーター法、リパースロールコーター法、インクジェット法、スプレー法、ロールコーター法などが挙げられる。この際、樹脂多孔質基体に対する分散液の塗工量を調節することにより、上述の目付比を所定の範囲に制御することができる。一例を挙げると、耐熱絶縁層の目付が $5 \sim 20 \text{ g/m}^2$ 程度となるように塗工量が調節されうる。

【0074】

分散液を塗工した後、溶剤を除去する温度は、特に制限はなく、使用される溶剤によって適宜設定されうる。例えば、水を溶剤として用いた場合には $50 \sim 70$ であることが好ましく、NMPを溶剤として用いた場合には、 $70 \sim 90$ であることが好ましい。必要により減圧下で溶媒を乾燥させてもよい。また、溶剤を完全に除去せずに、一部残存させてもよい。

20

【0075】

以上、セパレータ17の好ましい実施形態である耐熱絶縁層付セパレータについて詳細に説明したが、本発明の技術的範囲はかような形態のみに限定されるわけではない。言い換えると、耐熱絶縁層付セパレータ以外の構成を有するセパレータであっても、請求項において規定されている要件を満足するものである限り、本願所定の作用効果が同様に発揮されうるのである。

30

【0076】

なお、セパレータ17の表面の表面粗さ（負極活物質層側： $R_{zjiss}(2)$ 、正極活物質層側： $R_{zjiss}(4)$ ）の具体的な値について特に制限はなく、上述した規定を満足するように適宜調節されうる。ただし、 $R_{zjiss}(2)$ および $R_{zjiss}(4)$ は、それぞれ、好ましくは $1.0 \sim 4.0 \mu\text{m}$ であり、より好ましくは $1.0 \sim 3.0 \mu\text{m}$ である。なお、 $R_{zjiss}(2)$ と $R_{zjiss}(4)$ とは同一であっても異なってもよいが、同一であることが好ましい。

【0077】

[正極集電板および負極集電板]

集電板（25、27）を構成する材料は、特に制限されず、リチウムイオン二次電池用の集電板として従来用いられている公知の高導電性材料が用いられうる。集電板の構成材料としては、例えば、アルミニウム、銅、チタン、ニッケル、ステンレス鋼（SUS）、これらの合金等の金属材料が好ましい。軽量、耐食性、高導電性の観点から、より好ましくはアルミニウム、銅であり、特に好ましくはアルミニウムである。なお、正極集電板25と負極集電板27とは、同一の材料が用いられてもよいし、異なる材料が用いられてもよい。

40

【0078】

[正極リードおよび負極リード]

また、図示は省略するが、集電体11と集電板（25、27）との間を正極リードや負

50

極リードを介して電氣的に接続してもよい。正極および負極リードの構成材料としては、公知のリチウムイオン二次電池において用いられる材料が同様に採用されうる。なお、外装から取り出された部分は、周辺機器や配線などに接触して漏電したりして製品（例えば、自動車部品、特に電子機器等）に影響を与えないように、耐熱絶縁性の熱収縮チューブなどにより被覆することが好ましい。

【0079】

[外装]

外装としては、図1に示すようなラミネートシート29が用いられうる。ラミネートシートは、例えば、ポリプロピレン、アルミニウム、ナイロンがこの順に積層されてなる3層構造として構成されうる。なお、場合によっては、従来公知の金属缶ケースもまた、外装として用いられうる。

10

【実施例】

【0080】

以下、本発明を実施例に基づいて具体的に説明する。なお、本発明の技術的範囲は、これらの実施例のみに限定されることはない。

【0081】

[各種の測定方法]

以下の実施例・比較例において、部材表面の表面粗さ (R_{zjis}) および動摩擦係数は、以下の手法により測定した。

【0082】

(表面粗さ (R_{zjis}) の測定)

レーザー顕微鏡にて、部材 (セパレータまたは活物質層) 表面の表面粗さ (R_{zjis}) を測定した。具体的には、 $128\mu\text{m} \times 100\mu\text{m}$ の表面を観察し、任意箇所の上断面プロファイルより、 $128\mu\text{m}$ の範囲の表面粗さ (R_{zjis}) を測定した。

20

【0083】

(動摩擦係数の測定)

JIS No. K7125に規定される摩擦係数測定法に準拠し、セパレータ上に電極 (正極または負極) を載せ、さらにその上にすべり片200gを載せて、電極の端部を引張試験機を用いて100mm/minの速度で引張った際の荷重変位を測定した。測定開始部より20~100mmの荷重平均値を動摩擦力とし、すべり片の法線力で除して動摩擦係数を算出した。

30

【0084】

[実施例1]

(負極の作製)

負極活物質として人造グラファイト (平均粒子径: $15\mu\text{m}$) 96.5質量%、バインダとしてポリフッ化ビニリデン (PVDF) 3.5質量%をN-メチル-2-ピロリドン (NMP) 中に分散させてスラリーを調製した。

【0085】

このスラリーを負極集電体となる厚さ $10\mu\text{m}$ の銅箔の片面にダイコーターで塗布し、120で3分間乾燥後、ロールプレス機で圧縮成形した。このとき、負極の固形分 (活物質、およびバインダ) の塗布量 (目付) は $106\text{g}/\text{m}^2$ とし、活物質層かさ密度は $1.35\text{g}/\text{cm}^3$ となるようにスラリー塗布量およびプレス条件を調整した。

40

【0086】

このようにして作製された負極の負極活物質層の表面の表面粗さ ($R_{zjis}(1)$) は $5.91\mu\text{m}$ であった。

【0087】

(正極の作製)

正極活物質としてリチウムコバルト複合酸化物 (LiCoO_2) を92.2質量%、導電性材料としてアセチレンブラックを4.6質量%、バインダとしてポリフッ化ビニリデン (PVDF) 3.2質量%をN-メチル-2-ピロリドン (NMP) 中に分散させてス

50

ラリーを調製した。

【0088】

このスラリーを正極集電体となる厚さ $20\mu\text{m}$ のアルミニウム箔の片面にダイコーターで塗布し、 130°C で3分間乾燥後、ロールプレス機で圧縮成形した。このとき、正極の固形分（活物質、導電性材料、およびバインダ）の塗布量（目付）は $250\text{g}/\text{m}^2$ とし、活物質層かさ密度は $3.00\text{g}/\text{cm}^3$ となるようにスラリー塗布量およびプレス条件を調整した。

【0089】

このようにして作製された正極の正極活物質層の表面の表面粗さ（ $R_{zj i s}(3)$ ）は $2.46\mu\text{m}$ であった。

10

【0090】

（非水電解液の調製）

エチレンカーボネート：エチルメチルカーボネート = 1：2（体積比）の混合溶媒に、溶質として LiPF_6 を濃度 $1.0\text{mol}/\text{L}$ となるように溶解させて、非水電解液を調製した。

【0091】

（セパレータの作製）

2軸延伸して得られたポリオレフィン樹脂多孔膜（厚さ： $30\mu\text{m}$ ）の両表面に耐熱絶縁層（厚さ：各 $5\mu\text{m}$ ）が配置されてなる耐熱絶縁層付セパレータを作製した。具体的には、まず、無機粒子であるアルミナ粒子（BET比表面積： $5\text{m}^2/\text{g}$ 、平均粒子径： $0.48\mu\text{m}$ ）95質量%およびバインダであるポリエチレン5質量%を水に分散させてスラリーを調製した。次いで、このスラリーをポリオレフィン樹脂多孔膜（厚さ： $16\mu\text{m}$ ）上にグラビアコーターを用いて塗布した後、 60°C で乾燥して水を除去することで、耐熱絶縁層付セパレータを作製した。

20

【0092】

このようにして作製されたセパレータの表面の表面粗さは、両面（ $R_{zj i s}(2)$ および $R_{zj i s}(4)$ ）ともに $1.38\mu\text{m}$ であった。すなわち、セパレータの表面と負極活物質層の表面との表面粗さ比（ R_A ）は $R_A = R_{zj i s}(2) / R_{zj i s}(1) = 1.38 / 5.91 = 0.23$ であった。また、セパレータの表面と正極活物質層の表面との表面粗さ比（ R_B ）は $R_B = R_{zj i s}(4) / R_{zj i s}(3) = 1.38 / 2.46 = 0.56$ であった。さらに、セパレータの表面と負極活物質層の表面との間の動摩擦係数は 0.27 であり、セパレータの表面と正極活物質層の表面との間の動摩擦係数は 0.35 であった。

30

【0093】

[実施例2]

耐熱絶縁層付セパレータを構成する耐熱絶縁層において、無機粒子であるアルミナ粒子としてBET比表面積： $15\text{m}^2/\text{g}$ 、平均粒子径： $0.55\mu\text{m}$ のものを用いたこと以外は、上述した実施例1と同様の手法により、各部材を作製・調製した。

【0094】

このようにして作製されたセパレータの表面の表面粗さは、両面（ $R_{zj i s}(2)$ および $R_{zj i s}(4)$ ）ともに $1.48\mu\text{m}$ であった。すなわち、セパレータの表面と負極活物質層の表面との表面粗さ比（ R_A ）は $R_A = R_{zj i s}(2) / R_{zj i s}(1) = 1.48 / 5.91 = 0.25$ であった。また、セパレータの表面と正極活物質層の表面との表面粗さ比（ R_B ）は $R_B = R_{zj i s}(4) / R_{zj i s}(3) = 1.48 / 2.46 = 0.60$ であった。さらに、セパレータの表面と負極活物質層の表面との間の動摩擦係数は 0.23 であり、セパレータの表面と正極活物質層の表面との間の動摩擦係数は 0.35 であった。

40

【0095】

[実施例3]

耐熱絶縁層付セパレータを構成する耐熱絶縁層において、無機粒子であるアルミナ粒子

50

としてBET比表面積： $52 \text{ m}^2 / \text{g}$ 、平均粒子径： $2.8 \mu\text{m}$ のものを用いたこと以外は、上述した実施例1と同様の手法により、各部材を作製・調製した。

【0096】

このようにして作製されたセパレータの表面の表面粗さは、両面（ $R_{zjiss}(2)$ および $R_{zjiss}(4)$ ）ともに $2.97 \mu\text{m}$ であった。すなわち、セパレータの表面と負極活物質層の表面との表面粗さ比（ R_A ）は $R_A = R_{zjiss}(2) / R_{zjiss}(1) = 2.97 / 5.91 = 0.50$ であった。また、セパレータの表面と正極活物質層の表面との表面粗さ比（ R_B ）は $R_B = R_{zjiss}(4) / R_{zjiss}(3) = 2.97 / 2.46 = 1.21$ であった。さらに、セパレータの表面と負極活物質層の表面との間の動摩擦係数は 0.22 であり、セパレータの表面と正極活物質層の表面との間の動摩擦係数は 0.44 であった。

10

【0097】

[比較例]

負極活物質層に含まれる負極活物質として平均粒子径： $12 \mu\text{m}$ のものを用いたこと以外は、上述した実施例3と同様の手法により、各部材を作製・調製した。

【0098】

このようにして作製された負極の負極活物質層の表面の表面粗さ（ $R_{zjiss}(1)$ ）は $3.34 \mu\text{m}$ であった。すなわち、セパレータの表面と負極活物質層の表面との表面粗さ比（ R_A ）は $R_A = R_{zjiss}(2) / R_{zjiss}(1) = 2.97 / 3.34 = 0.89$ であった。また、セパレータの表面と正極活物質層の表面との表面粗さ比（ R_B ）は $R_B = R_{zjiss}(4) / R_{zjiss}(3) = 2.97 / 2.46 = 1.21$ であった。さらに、セパレータの表面と負極活物質層の表面との間の動摩擦係数は 0.19 であり、セパレータの表面と正極活物質層の表面との間の動摩擦係数は 0.47 であった。

20

【0099】

【表 1】

	アルミナ BET比表面積 m^2/g	負極活物質 平均粒子径 μm	$R_{zjis}(1)$ μm	$R_{zjis}(3)$ μm	$R_{zjis}(2)$ $R_{zjis}(4)$ μm		R_A	R_B	動摩擦係数	
					μm	μm			負極	正極
実施例1	5	15	5.91	2.46	1.38	1.38	0.23	0.56	0.27	0.35
実施例2	15	15	5.91	2.46	1.48	1.48	0.25	0.60	0.23	0.35
実施例3	52	15	5.91	2.46	2.97	2.97	0.50	1.21	0.22	0.44
比較例1	52	12	3.34	2.46	2.97	2.97	0.89	1.21	0.19	0.47

【0100】

表1に示すように、負極活物質層とセパレータとの表面粗さ比 (R_A) が所定の範囲内の値であると、負極活物質層とセパレータとの間の動摩擦係数が高い値に制御されることがわかる。このため、本発明の構成とすることで、非水電解質二次電池を製造する際の積

10

20

30

40

50

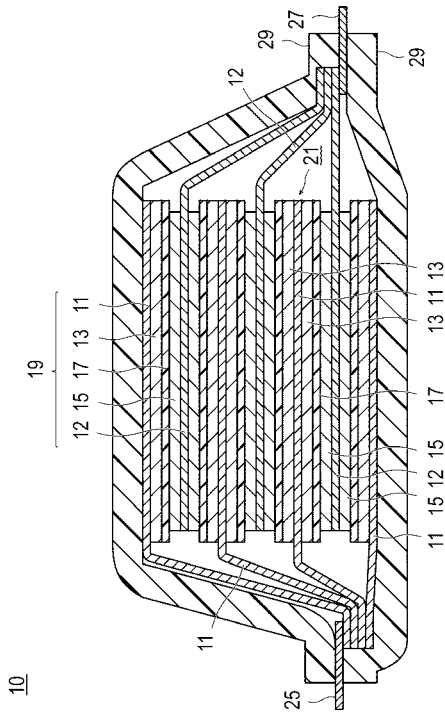
層工程において、積層ずれの発生を効果的に抑制しうることが期待される。

【符号の説明】

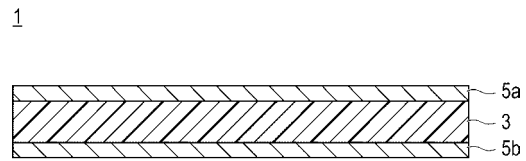
【0101】

- 1 耐熱絶縁層付セパレータ、
- 3 樹脂多孔質基体層、
- 5 a、5 b 耐熱絶縁層、
- 10 リチウムイオン二次電池、
- 11 負極集電体、
- 12 正極集電体、
- 13 負極活物質層、
- 15 正極活物質層、
- 17 電解質層、
- 19 単電池層、
- 21 発電要素、
- 25 負極集電板、
- 27 正極集電板、
- 29 ラミネートシート。

【図1】



【図2】



フロントページの続き

Fターム(参考) 5H029 AJ03 AJ14 AK03 AK18 AL01 AL02 AL03 AL06 AL07 AL08
AL11 AL12 AL18 AM03 AM05 AM07 AM16 BJ04 BJ12 DJ04
EJ12 HJ03
5H050 AA08 AA19 BA17 BA18 CA08 CA09 CB01 CB02 CB03 CB07
CB08 CB09 CB11 CB12 DA19 EA10 EA12 EA23 EA24 FA02
HA03