

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2010-534397

(P2010-534397A)

(43) 公表日 平成22年11月4日 (2010.11.4)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 4/13 (2010.01)	HO 1 M 4/02 1 O 1	5 H O 2 1
HO 1 M 2/16 (2006.01)	HO 1 M 2/16 P	5 H O 2 9
HO 1 M 4/505 (2010.01)	HO 1 M 4/50 1 O 2	5 H O 5 0
HO 1 M 4/525 (2010.01)	HO 1 M 4/52 1 O 2	
HO 1 M 4/58 (2010.01)	HO 1 M 4/58 1 O 1	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 19 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2010-518118 (P2010-518118)	(71) 出願人	500239823
(86) (22) 出願日	平成20年7月24日 (2008.7.24)		エルジー・ケム・リミテッド
(85) 翻訳文提出日	平成22年2月2日 (2010.2.2)		大韓民国・ソウル・150-721・ヤングデウングボグ・ヨイドードング・20
(86) 国際出願番号	PCT/KR2008/004330		
(87) 国際公開番号	W02009/014388	(74) 代理人	100117787
(87) 国際公開日	平成21年1月29日 (2009.1.29)		弁理士 勝沼 宏仁
(31) 優先権主張番号	10-2007-0074403	(74) 代理人	100091487
(32) 優先日	平成19年7月25日 (2007.7.25)		弁理士 中村 行孝
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)	(74) 代理人	100107342
			弁理士 横田 修孝
		(74) 代理人	100109841
			弁理士 堅田 健史

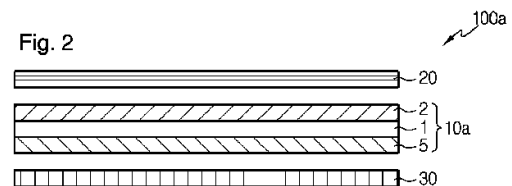
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電気化学素子及びその製造方法

(57) 【要約】

本発明による電気化学素子は、多数の気孔を持つ多孔性基材及び前記多孔性基材の少なくとも一面にコートされており、電極活物質粒子とバインダー高分子との混合物から形成された多孔性コーティング層を備えた複合分離膜が用いられた電極構造体を含む。複合分離膜の多孔性コーティング層は、多孔性基材の熱的安定性を向上させ、電気化学素子の電極活物質層としての機能を行う。これによって、本発明による電気化学素子は、電流集電体の表面に対する電極活物質層のコーティングが省略された電極構造体を備えるので、安全性に優れていながらも経済的である。

Fig. 2



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

電気化学素子であって、

(a) 多数の気孔を持つ多孔性基材と、前記多孔性基材の上面に形成され、カソード活物質粒子及び第 1 バインダー高分子の混合物から形成されてなる第 1 多孔性コーティング層と、並びに前記多孔性基材の下面に形成され、アノード活物質粒子及び第 2 バインダー高分子の混合物から形成されてなる第 2 多孔性コーティング層とを備えた複合分離膜と；

(b) 前記第 1 多孔性コーティング層と対向するように設けられたカソード電流集電体と；並びに

(c) 前記第 2 多孔性コーティング層と対向するように設けられたアノード電流集電体とを備えてなる、電気化学素子。

10

【請求項 2】

(a) 多数の気孔を持つ多孔性基材と、前記多孔性基材の上面に形成され、カソード活物質粒子及び第 1 バインダー高分子の混合物から形成された第 1 多孔性コーティング層を備えた複合分離膜と；

(b) 前記第 1 多孔性コーティング層と対向するように設けられたカソード電流集電体と；及び

(c) 前記多孔性基材の下面と対向するように設けられてなり、アノード活物質層がアノード電流集電体の上面に形成されたアノードから構成されてなる電極構造体とを備えてなる、電気化学素子。

20

【請求項 3】

(a) 多数の気孔を持つ多孔性基材と、前記多孔性基材の下面に形成されアノード活物質粒子及び第 2 バインダー高分子の混合物から形成された第 2 多孔性コーティング層を備えた複合分離膜と；

(b) 前記第 2 多孔性コーティング層と対向するように設けられたアノード電流集電体と；及び

(c) 前記多孔性基材の上面と対向するように設けられており、カソード活物質層がカソード電流集電体の下面に形成されたカソードから構成されてなる電極構造体とを備えてなる、電気化学素子。

30

【請求項 4】

前記カソード活物質粒子が、 LiCoO_2 、 LiNiO_2 、 LiMn_2O_4 、 LiCoPO_4 、 LiFePO_4 、 LiNiMnCoO_2 、 $\text{LiNi}_{1-x-y-z}\text{Co}_x\text{M}_1\text{M}_2\text{O}_2$ (M_1 及び M_2 は、互いに独立して、 Al 、 Ni 、 Co 、 Fe 、 Mn 、 V 、 Cr 、 Ti 、 W 、 Ta 、 Mg 及び Mo からなる群より選択された何れか一つであり、 x 、 y 及び z は、互いに独立して、酸化物組成元素の原子分率として $0 < x < 0.5$ 、 $0 < y < 0.5$ 、 $0 < z < 0.5$ である) からなる群より選択された何れか一つのカソード活物質粒子またはこれらのうち 2 種以上の混合物であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 2 に記載の電気化学素子。

【請求項 5】

前記アノード活物質粒子が、天然黒鉛、人造黒鉛、炭素質材料、 LiTO 、シリコン (Si) 及び錫 (Sn) からなる群より選択された何れか一つのアノード活物質粒子またはこれらのうち 2 種以上の混合物であることを特徴とする請求項 1 または請求項 3 に記載の電気化学素子。

40

【請求項 6】

前記カソード活物質粒子の大きさが、 0.001 ないし $10 \mu\text{m}$ であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 2 に記載の電気化学素子。

【請求項 7】

前記アノード活物質粒子の大きさが、 0.001 ないし $10 \mu\text{m}$ であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 3 に記載の電気化学素子。

【請求項 8】

50

前記第 1 多孔性コーティング層のカソード活物質粒子と第 1 バインダー高分子との重量比が、50:50 ないし 99:1 であることを特徴とする請求項 1 または請求項 2 に記載の電気化学素子。

【請求項 9】

前記第 2 多孔性コーティング層のアノード活物質粒子と第 2 バインダー高分子との重量比が、50:50 ないし 99:1 であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 3 に記載の電気化学素子。

【請求項 10】

前記第 1 バインダー高分子が、溶解度指数が 1.5 ないし 4.5 MPa^{1/2} であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 2 に記載の電気化学素子。

10

【請求項 11】

前記第 2 バインダー高分子が、溶解度指数が 1.5 ないし 4.5 MPa^{1/2} であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 3 に記載の電気化学素子。

【請求項 12】

前記第 1 バインダー高分子が、ポリビニリデンフルオライド - ヘキサフルオロプロピレン (polyvinylidene fluoride-co-hexafluoropropylene)、ポリビニリデンフルオライド - トリクロロエチレン (polyvinylidene fluoride-co-trichloroethylene)、ポリメチルメタクリレート (polymethylmethacrylate)、ポリアクリロニトリル (polyacrylonitrile)、ポリビニルピロリドン (polyvinylpyrrolidone)、ポリビニルアセテート (polyvinylacetate)、エチレンビニルアセテート共重合体 (polyethylene-co-vinyl acetate)、ポリエチレンオキシド (polyethyleneoxide)、セルロースアセテート (cellulose acetate)、セルロースアセテートブチレート (cellulose acetate butyrate)、セルロースアセテートプロピオネート (cellulose acetate propionate)、シアノエチルプルラン (cyanoethylpullulan)、シアノエチルポリビニルアルコール (cyanoethylpolyvinylalcohol)、シアノエチルセルロース (cyanoethylcellulose)、シアノエチルスクロース (cyanoethylsucrose)、プルラン (pullulan) 及びカルボキシルメチルセルロース (carboxymethylcellulose) からなる群より選択された何れか一つのバインダー高分子またはこれらのうち 2 種以上の混合物であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 2 に記載の電気化学素子。

20

30

【請求項 13】

前記第 2 バインダー高分子が、ポリビニリデンフルオライド - ヘキサフルオロプロピレン、ポリビニリデンフルオライド - トリクロロエチレン、ポリメチルメタクリレート、ポリアクリロニトリル、ポリビニルピロリドン、ポリビニルアセテート、エチレンビニルアセテート共重合体、ポリエチレンオキシド、セルロースアセテート、セルロースアセテートブチレート、セルロースアセテートプロピオネート、シアノエチルプルラン、シアノエチルポリビニルアルコール、シアノエチルセルロース、シアノエチルスクロース、プルラン及びカルボキシルメチルセルロースからなる群より選択された何れか一つのバインダー高分子またはこれらのうち 2 種以上の混合物であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 3 に記載の電気化学素子。

40

【請求項 14】

前記第 1 多孔性コーティング層の厚さが、0.01 ないし 200 µm であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 2 に記載の電気化学素子。

【請求項 15】

前記第 2 多孔性コーティング層の厚さが、0.01 ないし 200 µm であることを特徴とする、請求項 1 または請求項 3 に記載の電気化学素子。

【請求項 16】

50

前記多孔性基材が、ポリオレフィン系多孔性基材であることを特徴とする、請求項１～３の何れか一項に記載の電気化学素子。

【請求項１７】

前記多孔性基材の厚さが、１ないし２００μmであることを特徴とする請求項１～３の何れか一項に記載の電気化学素子。

【請求項１８】

前記第１多孔性コーティング層が、導電材をさらに含むことを特徴とする、請求項１または請求項２に記載の電気化学素子。

【請求項１９】

前記第２多孔性コーティング層が、導電材をさらに含むことを特徴とする、請求項１または請求項３に記載の電気化学素子。

【請求項２０】

前記電気化学素子が、リチウム二次電池であることを特徴とする、請求項１～３の何れか一項に記載の電気化学素子。

【請求項２１】

電気化学素子の製造方法であって、

（Ｓ１）多数の気孔を持つ多孔性基材の上面に、カソード活物質粒子が分散された第１バインダー高分子溶液を付与し乾燥させて第１多孔性コーティング層を有する多孔性基材を用意する段階と；

（Ｓ２）前記第１多孔性コーティング層を有する多孔性基材の下面に、アノード活物質粒子が分散された第１バインダー高分子溶液を付与して乾燥させて第２多孔性コーティング層が形成された複合分離膜を製造する段階と；及び

（Ｓ３）カソード電流集電体及びアノード電流集電体の間に、前記複合分離膜の第１多孔性コーティング層及び第２多孔性コーティング層がそれぞれ対向するように複合分離膜を介在させて電極構造体を製造する段階とを含んでなる、製造方法。

【請求項２２】

（Ｓ１）多数の気孔を持つ多孔性基材の上面に、カソード活物質粒子が分散された第１バインダー高分子溶液を付与し乾燥させて第１多孔性コーティング層を有する複合分離膜を用意する段階と；

（Ｓ２）アノード活物質層がアノード電流集電体の上面に形成させてなるアノードを用意する段階と；及び

（Ｓ３）カソード電流集電体及び前記アノードの間に、前記複合分離膜の第１多孔性コーティング層及び多孔性基材の下面がそれぞれ対向するように複合分離膜を介在させて電極構造体を製造する段階とを含んでなる、製造方法。

【請求項２３】

（Ｓ１）多数の気孔を持つ多孔性基材の下面に、アノード活物質粒子が分散された第２バインダー高分子溶液を付与し乾燥させて第２多孔性コーティング層が形成された複合分離膜を用意する段階と；

（Ｓ２）カソード活物質層がカソード電流集電体の下面に形成されたカソードを用意する段階と；及び

（Ｓ３）前記カソード及びアノード電流集電体の間に、前記複合分離膜の多孔性基材の上面及び第２多孔性コーティング層がそれぞれ対向するように複合分離膜を介在させて電極構造体を製造する段階とを含んでなる、製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明は、電気化学素子及びその製造方法に関するものであって、より詳しくは、多孔性基材の表面にフィラー粒子とバインダー高分子との混合物で多孔性コーティング層が形成された複合分離膜を備えた電極構造体が適用された電気化学素子に関する。

【背景技術】

【 0 0 0 2 】

近年、エネルギー貯蔵技術に対する関心がますます高まっている。携帯電話、カムコーダ、及びノートPC、ひいては電気自動車のエネルギーまで適用分野が拡大されるに伴って、電気化学素子の研究及び開発に対する努力がますます具体化されている。電気化学素子はこのような点から最も注目されている分野であり、その中でも充放電の可能な二次電池の開発は関心の焦点になっている。最近には、このような電池を開発するにおいて容量密度及び比エネルギーを向上させるために、新しい電極と電池の設計に対する研究開発が行われている。

【 0 0 0 3 】

現在使用されている二次電池のうち、1990年代の初めに開発されたリチウム二次電池は、水溶液電解液を用いるNi-MH、Ni-Cd、硫酸-鉛電池などの従来の電池に比べて、駆動電圧が高くエネルギー密度が遥かに大きいという長所から脚光を浴びている。しかし、このようなリチウムイオン電池は有機電解液の使用に伴う発火及び爆発などの安全問題が存在し、製造がややこしいという短所がある。近年のリチウムイオン高分子電池は、このようなリチウムイオン電池の弱点を改善して次世代電池の1つとして挙げられているが、いまだに電池の容量がリチウムイオン電池と比較して相対的に低く、特に低温における放電容量が十分ではなく、これに対する改善が求められている。

【 0 0 0 4 】

前述のような電気化学素子は、多くのメーカーで生産されているがそれらの安全性特性はそれぞれ異なる様相を呈する。このような電気化学素子の安全性確保は非常に重要である。最も重要な考慮事項は、電気化学素子が誤作動するときユーザに傷害を負わせてはいけないということであり、このような目的から安全規格では電気化学素子内の発火及び発煙などを厳しく規制している。電気化学素子の安全性特性において、電気化学素子が過熱されて熱暴走が起きるか又は分離膜が貫通される場合には、爆発を起こす恐れが大きい。特に、電気化学素子の分離膜として通常用いられるポリオレフィン系多孔性基材は、材料的特性と延伸を含む製造工程上の特性によって100度以上の温度で激しい熱収縮挙動を見せることで、カソードとアノード間の短絡を起こすという問題点がある。

【 0 0 0 5 】

このような電気化学素子の安全性問題を解決するために、特許文献1（韓国特許公開第10-2006-41649号公報）、特許文献2（韓国特許公開第10-2006-72065号公報）、特許文献3（韓国特許公開第10-2007-231号公報）などには、多数の気孔を持つ多孔性基材の少なくとも一面に、無機物粒子のようなフィラー粒子とバインダー高分子との混合物からなる多孔性コーティング層をコートした複合分離膜を開示している。複合分離膜において、多孔性基材にコートされた多孔性コーティング層内のフィラー粒子は、多孔性コーティング層の物理的形態を維持することができる一種のスペーサの役割をすることで、電気化学素子が過熱される場合にも、多孔性基材の熱収縮が抑制される。また、フィラー粒子の間には空き空間（interstitial volume）が存在して微細気孔を形成する。

【 0 0 0 6 】

このように、多孔性基材に形成された多孔性コーティング層は電気化学素子の安全性向上に寄与する。従来技術に従って多孔性コーティング層の形成に用いられるフィラー粒子としては、 BaTiO_3 、 $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$ （PZT）、 ZrO_2 、 SiO_2 、 Al_2O_3 、 TiO_2 、リチウムホスフェート（ Li_3PO_4 ）、リチウムチタンホスフェート（ $\text{Li}_x\text{Ti}_y(\text{PO}_4)_3$ 、 $0 < x < 2$ 、 $0 < y < 3$ ）などの粒子を用いるが、このようなフィラー粒子は、電気化学的な特性上、電極活物質の機能を代替するのではない。従って、多孔性コーティング層が形成された複合分離膜は、カソード活物質層がコートされたカソード電流集電体と、アノード活物質層がコートされたアノード電流集電体の間に介在されて電極構造体として組み立てられる。このような構造の電極構造体は多孔性コーティング層のコーティング工程及び電極活物質のコーティング工程を経なければならないので、製造工程が複雑であって経済性が低下する。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0007】

【特許文献1】韓国特許公開第10-2006-41649号公報

【特許文献2】韓国特許公開第10-2006-72065号公報

【特許文献3】韓国特許公開第10-2007-231号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0008】

本発明が解決しようとする課題は、多孔性基材に多孔性コーティング層を導入すること
で、熱的安定性に優れていながらも経済的な電気化学素子を提供することにある。 10

【0009】

本発明が解決しようとする他の課題は、熱的安定性に優れている電気化学素子を簡単に
且つ経済的に製造する方法を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0010】

前記課題を達成するために、本発明による電気化学素子は、

(a) 多数の気孔を持つ多孔性基材、前記多孔性基材の上面に付与(コート)され、カ
ソード活物質粒子及び第1バインダー高分子の混合物から形成された第1多孔性コーティ
ング層、並びに前記多孔性基材の下面に付与(コート)され、アノード活物質粒子及び第
2バインダー高分子の混合物から形成された第2多孔性コーティング層を備えた複合分離
膜； 20

(b) 前記第1多孔性コーティング層と対向するように設けられたカソード電流集電体
；及び

(c) 前記第2多孔性コーティング層と対向するように設けられたアノード電流集電体
からなった電極構造体を含む。

【0011】

本発明の他の面による電気化学素子は、

(a) 多数の気孔を持つ多孔性基材、前記多孔性基材の上面に付与(コート)され、カ
ソード活物質粒子及び第1バインダー高分子の混合物から形成された第1多孔性コーティ
ング層を備えた複合分離膜； 30

(b) 前記第1多孔性コーティング層と対向するように設けられたカソード電流集電体
；及び

(c) 前記多孔性基材の下面と対向するように設けられており、アノード活物質層がア
ノード電流集電体の上面にコートされたアノードからなった電極構造体を含む。

【0012】

本発明のさらに他の面による電気化学素子は、

(a) 多数の気孔を持つ多孔性基材、前記多孔性基材の下面に付与(コート)され、ア
ノード活物質粒子及び第2バインダー高分子の混合物から形成された第2多孔性コーティ
ング層を備えた複合分離膜； 40

(b) 前記第2多孔性コーティング層と対向するように設けられたアノード電流集電体
；及び

(c) 前記多孔性基材の上面と対向するように設けられており、カソード活物質層がカ
ソード電流集電体の下面に付与(コート)されたカソードからなった電極構造体を含む。

【0013】

また、本発明による電気化学素子の製造方法は、

(S1) 多数の気孔を持つ多孔性基材の上面に、カソード活物質粒子が分散された第1
バインダー高分子溶液を付与(コート)し乾燥させて第1多孔性コーティング層が形成さ
れた多孔性基材を用意する段階；

(S2) 前記第1多孔性コーティング層が形成された多孔性基材の下面に、アノード活 50

物質粒子が分散された第 1 バインダー高分子溶液を付与（コート）し乾燥させて第 2 多孔性コーティング層が形成された複合分離膜を製造する段階；及び

（S 3）カソード電流集電体及びアノード電流集電体の間に、前記複合分離膜の第 1 多孔性コーティング層及び第 2 多孔性コーティング層がそれぞれ対向するように複合分離膜を介在させて電極構造体を製造する段階を含む。

【0014】

本発明の他の面による電気化学素子の製造方法は、

（S 1）多数の気孔を持つ多孔性基材の上面に、カソード活物質粒子が分散された第 1 バインダー高分子溶液を付与（コート）し乾燥させて第 1 多孔性コーティング層が形成された複合分離膜を用意する段階；

（S 2）アノード活物質層がアノード電流集電体の上面に付与（コート）されたアノードを用意する段階；及び

（S 3）カソード電流集電体及び前記アノードの間に、前記複合分離膜の第 1 多孔性コーティング層及び多孔性基材の下面がそれぞれ対向するように複合分離膜を介在させて電極構造体を製造する段階を含む。

【0015】

本発明のさらに他の面による電気化学素子の製造方法は、

（S 1）多数の気孔を持つ多孔性基材の下面に、アノード活物質粒子が分散された第 2 バインダー高分子溶液を付与（コート）し乾燥させて第 2 多孔性コーティング層が形成された複合分離膜を用意する段階；

（S 2）カソード活物質層がカソード電流集電体の下面に付与（コート）されたカソードを用意する段階；及び

（S 3）前記カソード及びアノード電流集電体の間に、前記複合分離膜の多孔性基材の上面及び第 2 多孔性コーティング層がそれぞれ対向するように複合分離膜を介在させて電極構造体を製造する段階を含む。

【図面の簡単な説明】

【0016】

【図 1】本発明の一実施例に従って電気化学素子の電極構造体に備えられた複合分離膜を概略的に示す断面図である。

【図 2】本発明による電気化学素子の電極構造体を概略的に示す分解断面図である。

【図 3】本発明による電気化学素子の電極構造体を概略的に示す分解断面図である。

【図 4】本発明による電気化学素子の電極構造体を概略的に示す分解断面図である。

【図 5】実施例 1 の電池及び対照群の電池に対する容量を測定したグラフである。

【発明を実施するための形態】

【0017】

以下、本発明について詳しく説明する。これに先立って、本明細書及び請求範囲に使われた用語や単語は通常的や辞書的な意味に限定して解釈されてはいけず、発明者は自らの発明を最善の方法で説明するために用語の概念を適切に定義することができるという原則に則して、本発明の技術的思想に符合する意味と概念とに解釈されなければならない。

【0018】

図 1 は、本発明の一実施例に従って電気化学素子の電極構造体に備えられた複合分離膜を概略的に示す断面図であり、図 2 は、図 1 の複合分離膜を備えた電極構造体を概略的に示す分解断面図である。

【0019】

複合分離膜 10 a は、多数の気孔を持つ多孔性基材 1 の両面にそれぞれコートされた第 1 多孔性コーティング層 2 及び第 2 多孔性コーティング層 5 を備える。多孔性基材 1 の上面にコートされた第 1 多孔性コーティング層はカソード活物質粒子 3 及び第 1 バインダー高分子 4 の混合物を含んで形成される。また、多孔性基材 1 の下面にコートされた第 2 多孔性コーティング層はアノード活物質粒子 6 及び第 2 バインダー高分子 7 の混合物を含んで形成される。

【 0 0 2 0 】

このような複合分離膜 1 0 a の多孔性コーティング層 2、5 は知られたように多孔性基材 1 の熱的安定性を向上させる。さらに、カソード活物質粒子 3 を含む第 1 多孔性コーティング層 2 は電気化学素子のカソード活物質層としての機能を行う。また、アノード活物質粒子 6 を含む第 2 多孔性コーティング層 5 は電気化学素子のアノード活物質層としての機能を行う。

【 0 0 2 1 】

これによって、図 1 の複合分離膜 1 0 a を備える電極構造体は電流集電体の表面に対するカソード活物質層とアノード活物質層のコーティングが省略される。すなわち、図 2 に示すように、多数の気孔を持つ多孔性基材 1 の両面にそれぞれコートされた第 1 多孔性コーティング層 2 及び第 2 多孔性コーティング層 5 を備えた複合分離膜 1 0 a は、電極活物質層のコーティングが省略されたカソード電流集電体 2 0 とアノード電流集電体 3 0 の間に介在されて電極構造体 1 0 0 a として製造される。カソード電流集電体 2 0 はカソード活物質粒子を含む第 1 多孔性コーティング層 2 と対向するように設けられ、アノード電流集電体 3 0 はアノード活物質粒子を含む第 2 多孔性コーティング層 5 と対向するように設けられる。

【 0 0 2 2 】

本発明の他の面によれば、多孔性基材の一面に第 1 多孔性コーティング層のみコートされた複合分離膜が電極構造体に適用できる。

【 0 0 2 3 】

図 3 を参照すれば、複合分離膜 1 0 b は、多数の気孔を持つ多孔性基材 1 の上面にのみコートされた第 1 多孔性コーティング層 2 を備える。多孔性基材 1 の上面にコートされた第 1 多孔性コーティング層 2 はカソード活物質粒子及び第 1 バインダー高分子の混合物を含んで形成される。第 1 多孔性コーティング層 2 は知られたように多孔性基材 1 の熱的安定性を向上させる。さらに、カソード活物質粒子を含む第 1 多孔性コーティング層 2 は電気化学素子のカソード活物質層としての機能を行う。

【 0 0 2 4 】

前述の複合分離膜 1 0 b を備える電極構造体 1 0 0 b は、カソード電流集電体の表面に対するカソード活物質層のコーティングが省略される。すなわち、図 3 に示すように、多数の気孔を持つ多孔性基材 1 の上面にコートされた第 1 多孔性コーティング層 2 を備えた複合分離膜 1 0 b は、カソード活物質層のコーティングが省略されたカソード電流集電体 2 0 と、アノード活物質層 4 0 がアノード電流集電体 3 0 の上面にコートされたアノードの間に介在されて電極構造体 1 0 0 b として製造される。カソード電流集電体 2 0 はカソード活物質粒子を含む第 1 多孔性コーティング層 2 と対向するように設けられ、アノードはアノード活物質層 4 0 が多孔性基材 1 の下面と対向するように設けられる。

【 0 0 2 5 】

本発明のさらに他の面によれば、多孔性基材の一面に第 2 多孔性コーティング層のみコートされた複合分離膜が電極構造体に適用できる。

【 0 0 2 6 】

図 4 を参照すれば、複合分離膜 1 0 c は、多数の気孔を持つ多孔性基材 1 の下面にのみコートされた第 2 多孔性コーティング層 5 を備える。多孔性基材 1 の下面にコートされた第 2 多孔性コーティング層 5 はアノード活物質粒子及び第 2 バインダー高分子の混合物を含んで形成される。第 2 多孔性コーティング層 5 は知られたように多孔性基材 1 の熱的安定性を向上させる。さらに、アノード活物質粒子を含む第 2 多孔性コーティング層 5 は電気化学素子のアノード活物質層の機能を行う。

【 0 0 2 7 】

前述の複合分離膜 1 0 c を備える電極構造体 1 0 0 c は、アノード電流集電体の表面に対するアノード活物質層のコーティングが省略される。すなわち、図 4 に示すように、多数の気孔を持つ多孔性基材 1 の下面にコートされた第 2 多孔性コーティング層 5 を備えた複合分離膜 1 0 c は、アノード活物質層のコーティングが省略されたアノード電流集電体

30と、カソード活物質層50がカソード電流集電体20の下面にコートされたカソードの間に介在されて電極構造体100cとして製造される。アノード電流集電体30はアノード活物質粒子を含む第2多孔性コーティング層5と対向するように設けられ、カソードはカソード活物質層50が多孔性基材1の上面と対向するように設けられる。

【0028】

前述の電極構造体100a、100bにおいて、第1多孔性コーティング層2に含有されるカソード活物質粒子としては、電気化学素子に用いられる通常のカソード活物質粒子を用いることができる。例えば、従来電気化学素子に用いられる通常のカソード活物質粒子である、 LiCoO_2 、 LiNiO_2 、 LiMn_2O_4 、 LiCoPO_4 、 LiFePO_4 、 LiNiMnCoO_2 、 $\text{LiNi}_{1-x-y-z}\text{Co}_x\text{M1}_y\text{M2}_z\text{O}_2$ (M1及びM2は、互いに独立して、Al、Ni、Co、Fe、Mn、V、Cr、Ti、W、Ta、Mg及びMoからなる群より選択された何れか一つであり、x、y及びzは、互いに独立して、酸化物組成元素の原子分率として $0 < x < 0.5$ 、 $0 < y < 0.5$ 、 $0 < z < 0.5$ である) などからなった粒子が用いられ得るが、これに限定されない。これらはそれぞれ単独でまたはこれらのうち2種以上を混合して用いることができる。

【0029】

また、第1多孔性コーティング層2に含有される第1バインダー高分子としては、当業界で多孔性基材に多孔性コーティング層を形成するのに通常用いられる高分子を用いることができる。特に、ガラス転移温度 (glass transition temperature、Tg) が -200ないし200 である高分子を用いることが望ましい。これは、最終的に形成される多孔性コーティング層の柔軟性及び弾性などのような機械的物性を向上させることができるからである。このような第1バインダー高分子はカソード活物質粒子の間を連結及び安定的に固定させるバインダーの役割を充実に行うことで、第1多孔性コーティング層が導入された複合分離膜の機械的物性の低下防止に寄与する。

【0030】

また、第1バインダー高分子はイオン伝導能力を必ず有する必要はないが、イオン伝導能力を有する高分子を用いる場合電気化学素子の性能をさらに向上させることができる。従って、第1バインダー高分子は可能な限り誘電率定数が高いことが望ましい。実際に、電解液における塩の解離度は電解液溶媒の誘電率定数に依存するので、第1バインダー高分子の誘電率定数が高いほど電解質における塩の解離度を向上させることができる。このようなバインダー高分子の誘電率定数は1.0ないし100 (測定周波数 = 1 kHz) の範囲が使用可能であり、特に10以上であることが望ましい。

【0031】

前述の機能の以外に、第1バインダー高分子は液体電解液の含浸時にゲル化されることで高い電解液含浸率 (degree of swelling) を示すことができる特徴を持つことができる。これによって、溶解度指数が1.5ないし4.5 $\text{MPa}^{-1/2}$ である高分子が望ましく、さらに望ましくは1.5ないし2.5 $\text{MPa}^{-1/2}$ 及び3.0ないし4.5 $\text{MPa}^{-1/2}$ の範囲である。従って、ポリオレフィン類のような疎水性高分子よりは極性基を多く持つ親水性高分子を用いることが望ましい。溶解度指数が1.5 $\text{MPa}^{-1/2}$ 未満及び4.5 $\text{MPa}^{-1/2}$ を超過する場合、通常の電池用液体電解液によって含浸されにくいからである。

【0032】

このような高分子の非制限的な例としては、ポリビニリデンフルオライド - ヘキサフルオロプロピレン (polyvinylidene fluoride - co - hexafluoropropylene)、ポリビニリデンフルオライド - トリクロロエチレン (polyvinylidene fluoride - co - trichloroethylene)、ポリメチルメタクリレート (polymethylmethacrylate)、ポリアクリロニトリル (polyacrylonitrile)、ポリビニルピロリドン (polyvinylpyrrolidone)、ポリビニルアセテート (polyvinylacetate)、エチレンビニルアセテート共重合体 (polyethylene vinyl acetate copolymer) 等である。

lene-co-vinyl acetate)、ポリエチレンオキシド(polyethylene oxide)、セルロースアセテート(cellulose acetate)、セルロースアセテートブチレート(cellulose acetate butyrate)、セルロースアセテートプロピオネート(cellulose acetate propionate)、シアノエチルプルラン(cyanoethylpullulan)、シアノエチルポリビニルアルコール(cyanoethylpolyvinyl alcohol)、シアノエチルセルロース(cyanoethylcellulose)、シアノエチルスクロース(cyanoethylsucrose)、プルラン(pullulan)、カルボキシメチルセルロース(carboxymethylcellulose)などを挙げることができる。

10

【0033】

また、前述の電極構造体100a、100cにおいて、第2多孔性コーティング層5に含有されるアノード活物質粒子としては、電気化学素子に用いられる通常のアノード活物質粒子を用いることができる。例えば、アノード活物質粒子としては、電気化学素子のアノード活物質粒子として用いられる通常のアノード活物質粒子である、天然黒鉛、人造黒鉛、炭素質材料、LTO、シリコン(Si)、錫(Sn)などからなった粒子を挙げることができ、これらはそれぞれ単独でまたはこれらのうち2種以上を混合して用いることができる。

【0034】

第2多孔性コーティング層5に含有される第2バインダー高分子としては、前述の第1バインダー高分子のように当業界で多孔性基材に多孔性コーティング層を形成するのに通常用いられる高分子を用いることができ、第2バインダー高分子と同一であるか相違なるバインダー高分子を用いることができる。

20

【0035】

また、前述の電極構造体100a、100b、100cにおいて、複合分離膜10a、10b、10cの第1多孔性コーティング層2及び第2多孔性コーティング層5には、それぞれカソード活物質粒子及びアノード活物質粒子の以外に、電気化学素子の出力を過度に低下させない限度内で通常は無機物フィラー粒子、すなわち電気化学素子の作動電圧範囲(例えば、 Li/Li^+ を基準にして0~5V)で酸化及び/または還元反応が起きない無機物粒子をそれぞれさらに添加して用いることができる。また、第1多孔性コーティング層2及び第2多孔性コーティング層5が電極活物質層の機能を充実に行うことができるように、必要に応じて導電材をさらに添加することができるのは言うまでもない。

30

【0036】

前述の電極構造体100a、100b、100cにおいて、複合分離膜10a、10b、10cの第1多孔性コーティング層2及び第2多孔性コーティング層5の電極活物質粒子の大きさには制限はないが、均一な厚さのコーティング層を形成し適切な孔隙率を維持するために、それぞれ0.001ないし10 μ mであることが望ましい。0.001 μ m未満である場合電極活物質粒子の分散性が低下し得、10 μ mを超過する場合多孔性コーティング層の厚さが増加して機械的物性が低下し得、また大き過ぎる気孔の大きさによって電池の充放電時に内部短絡が起きる確率が高くなる。

40

【0037】

本発明によって多孔性基材1に形成された第1多孔性コーティング層2または第2多孔性コーティング層5の電極活物質粒子とバインダー高分子との組成比は、例えば50:50ないし99:1の範囲が望ましく、さらに望ましくは70:30ないし95:5である。バインダー高分子に対する電極活物質粒子の含量比が50:50未満である場合バインダー高分子の含量が多くなることで複合分離膜10a、10b、10cの熱的安定性の改善及び電気化学素子の性能が低下する恐れがある。また、電極活物質粒子の間に形成される空き空間の減少によって気孔の大きさ及び気孔度が減少し、最終的に電池性能の低下が惹起され得る。電極活物質粒子とバインダー高分子とから構成される第1多孔性コーティング層及び第2多孔性コーティング層の厚さは特に制限はないが、互いに独立して、それぞ

50

れ 0.01 ないし 200 μm の範囲が望ましい。また、気孔の大きさ及び気孔度も特に制限はないが、気孔の大きさは 0.001 ないし 10 μm の範囲が望ましく、気孔度は 10 ないし 90 % の範囲が望ましい。気孔の大きさ及び気孔度は主に電極活物質粒子の大きさに依存するが、例えば粒径が 1 μm 以下である電極活物質粒子を用いる場合、形成される気孔も約 1 μm 以下になる。このような気孔の構造は、以後注入される電解液で満たされ、このように満たされた電解液はイオン伝達の役割を果たすことになる。気孔の大きさ及び気孔度がそれぞれ 0.001 μm 及び 10 % 未満である場合抵抗層として作用することがあり、気孔の大きさ及び気孔度が 10 μm 及び 90 % をそれぞれ超過する場合には機械的物性が低下し得る。

【0038】

また、前述の電極構造体 100 a、100 b、100 c において、複合分離膜 10 a、10 b、10 c の多孔性基材 1 としては、ポリオレフィン系多孔性基材のように通常電気化学素子に用いられる多孔性基材であればすべて使用可能である。ポリオレフィン系多孔性基材としては、例えば、高密度ポリエチレン、線形低密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、超高分子量ポリエチレンのようなポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブチレン、ポリペンテンなどのポリオレフィン系高分子をそれぞれ単独でまたはこれらを混合した高分子から形成した膜 (membrane) や不織布またはこれらの積層体を挙げることができる。多孔性基材の厚さは特に制限されないが、望ましくは 1 ないし 200 μm 、さらに望ましくは 5 ないし 50 μm であり、多孔性基材に存在する気孔の大きさ及び気孔度も特に制限されないが、それぞれ 0.01 ないし 50 μm 及び 10 ないし 95 % であることが望ましい。

【0039】

前述の複合分離膜 10 a、10 b、10 c は、以下のような方法で製造することができるが、これに限定されるのではない。

【0040】

まず、バインダー高分子を溶媒に溶解させてバインダー高分子溶液を製造し、電極活物質粒子を添加して分散させる。溶媒としては、用いようとするバインダー高分子と溶解度指数が類似しており、沸点が低いものが望ましい。これは、均一な混合と、以後の溶媒除去を容易にするためである。使用可能な溶媒の非制限的な例としては、アセトン (acetone)、テトラヒドロフラン (tetrahydrofuran)、メチレンクロライド (methylene chloride)、クロロホルム (chloroform)、ジメチルホルムアミド (dimethylformamide)、N-メチル-2-ピロリドン (N-methyl-2-pyrrolidone, NMP)、シクロヘキサン (cyclohexane)、水またはこれらの混合物などがある。バインダー高分子溶液に電極活物質粒子を添加した後、電極活物質粒子を破碎することが望ましい。このとき、破碎時間は 1 ないし 20 時間が適切であり、破碎された電極活物質粒子の粒度は前述のように 0.001 ないし 10 μm が望ましい。破碎方法としては通常の方法を用いることができ、特にボールミル (ball mill) 法が望ましい。

【0041】

それから、電極活物質粒子が分散されたバインダー高分子の溶液を 10 ないし 80 % の湿度条件下で多孔性基材にコートし乾燥させて第 1 多孔性コーティング層または第 2 多孔性コーティング層を形成する。こうすることで、第 1 多孔性コーティング層または第 2 多孔性コーティング層が形成された複合分離膜 10 b、10 c が完成される。

【0042】

電極活物質粒子が分散されたバインダー高分子の溶液を多孔性基材上にコートする方法は、当業界に知られた通常のコーティング方法を用いることができ、例えば、ダイ (Die) コーティング、ロール (roll) コーティングなどを用いることができる。

【0043】

必要に応じて、第 1 多孔性コーティング層が一面に形成された多孔性基材の他面に、前述の方法に従って第 2 多孔性コーティング層を形成することができる。こうすることで、

第 1 多孔性コーティング層及び第 2 多孔性コーティング層が形成された複合分離膜 10a が完成される。

【0044】

このように製造された複合分離膜 10a、10b、10c を用いて電気化学素子の電極構造体を製造する方法は以下のである。

【0045】

第一、第 1 多孔性コーティング層 2 及び第 2 多孔性コーティング層 5 がそれぞれ多孔性基材 1 の両面にコートされた複合分離膜 10a は、カソード電流集電体 20 及びアノード電流集電体 30 の間に、複合分離膜 10a の第 1 多孔性コーティング層 2 及び第 2 多孔性コーティング層 5 がそれぞれ対向するように介在させて図 2 の電極構造体 100a を製造する。

10

【0046】

第二、第 1 多孔性コーティング層 2 が多孔性基材 1 の上面にコートされた複合分離膜 10b は、カソード電流集電体 20 と、アノード活物質層 40 がアノード電流集電体 30 の上面にコートされたアノードの間に介在させて図 3 の電極構造体 100b を製造する。

【0047】

第三、第 2 多孔性コーティング層 5 が多孔性基材 1 の下面にコートされた複合分離膜 10c は、アノード電流集電体 30 と、カソード活物質層 50 がカソード電流集電体 20 の下面にコートされたカソードの間に介在させて図 4 の電極構造体 100c を製造する。

【0048】

前述の方法に従って製造した電極構造体 100a、100b、100c において、複合分離膜と電極電流集電体または電極は互い物理的に接触が十分であれば、必要に応じてこれらをラミネーションすることができる。

20

【0049】

前述の電極構造体 100a、100b、100c において、カソード電流集電体及びアノード電流集電体としては、電気化学素子のカソード及びアノードの電流集電体として通常用いられる電流集電体であれば、すべて使用可能である。例えば、カソード電流集電体としてはアルミニウム、ニッケルなどから製造されたホイルを用いることができ、アノード電流集電体としては銅、金、ニッケルまたは銅合金などから製造されたホイルを用いることができるが、これに限定されない。また、アノード及びカソードにそれぞれコートされるアノード活物質層 40 またはカソード活物質層 50 は電気化学素子に用いられる通常の方法に従って形成することができる。電極に用いられる電極活物質粒子としては、従来電気化学素子のカソード及びアノードに用いることができる通常の電極活物質粒子を用いることができ、具体的な例は前述のようである。

30

【0050】

電気化学素子は電気化学反応をするすべての素子を含み、具体的に例を挙げれば、すべての種類の一次、二次電池、燃料電池、太陽電池またはスーパーキャパシター素子のようなキャパシターなどがある。特に、前記二次電池の中で、リチウム金属二次電池、リチウムイオン二次電池、リチウムポリマー二次電池またはリチウムイオンポリマー二次電池などを含むリチウム二次電池が望ましい。

40

【0051】

電気化学素子は当技術分野に知られた通常の方法に従って製造することができ、その一実施例を挙げれば、前述の電極構造体 100a、100b、100c を組み立てた後電解液を注入することで製造することができる。

【0052】

用いることができる電解液は、 A^+B^- のような構造の塩であり、 A^+ は Li^+ 、 Na^+ 、 K^+ のようなアルカリ金属陽イオン、またはこれらの組み合わせからなるイオンを含み、 B^- は PF_6^- 、 BF_4^- 、 Cl^- 、 Br^- 、 I^- 、 ClO_4^- 、 AsF_6^- 、 $CH_3CO_2^-$ 、 $CF_3SO_3^-$ 、 $N(CF_3SO_2)_2^-$ 、 $C(CF_2SO_2)_3^-$ のような陰イオン、またはこれらの組み合わせからなるイオンを含む塩が、プロピレンカーボネ

50

ート（PC）、エチレンカーボネート（EC）、ジエチルカーボネート（DEC）、ジメチルカーボネート（DMC）、ジプロピルカーボネート（DPC）、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル、ジメトキシエタン、ジエトキシエタン、テトラヒドロフラン、N-メチル-2-ピロリドン（NMP）、エチルメチルカーボネート（EMC）、ガンマブチロラクトン（ γ -ブチロラクトン）、またはこれらの混合物からなる有機溶媒に溶解または解離されたものがあるが、これに限定されるのではない。

【0053】

前記電解液の注入は最終製品の製造工程及び要求物性に応じて、電池製造工程のうち適切な段階で行うことができる。すなわち、電池組み立ての前または電池組み立ての最終段階などで行うことができる。

【実施例】

【0054】

以下、本発明を具体的に説明するために実施例を挙げて詳しく説明する。しかし、本発明による実施例は種々の形態に変形され得、本発明の範囲は以下で詳述する実施例に限定されると解釈されてはいけない。本発明の実施例は当業界で平均的な知識を持つ者に本発明をより完全に説明するために提供されるものである。

【0055】

実施例 1

複合分離膜の製造

PVdF-CTFE（ポリビニリデンフルオライド-クロロトリフルオロエチレン共重合体）及びシアノエチルプルランを10:2の重量比でそれぞれアセトンに添加し、50で約12時間以上溶解させて高分子溶液を製造した。このように製造された高分子溶液にカソード活物質粉末（ LiCoO_2 ）及び導電材を高分子混合物/カソード活物質粉末/導電材=6/90/4の重量比になるように添加し、12時間以上ボールミル法を用いて活性炭素粉末を破碎及び分散してスラリーを製造した。このように製造されたスラリーのカソード活物質粒子の粒径はボールミルに用いられるビーズのサイズ（粒度）及びボールミル時間によって制御することができるが、本実施例1においては約600nmに粉碎してスラリーを製造した。

【0056】

このように製造されたスラリーをロールコーティング法で厚さが12 μm であるポリエチレン多孔性膜（気孔度45%）の一面にコートし乾燥させて第1多孔性コーティング層を形成した。コーティング厚さは約100 μm 程度に調節した。ポリエチレン多孔性膜にコートされた多孔性コーティング層内の気孔の大きさは0.4 μm レベルであり、気孔度は66%レベルであった。

【0057】

前述の方法に従って第1多孔性コーティング層が形成されたポリエチレン多孔性膜の他面に、以下の方法に従って第2多孔性コーティング層を形成した。

【0058】

PVdF-CTFE及びシアノエチルプルランを10:2の重量比でそれぞれアセトンに添加し、50で約12時間以上溶解させて高分子溶液を製造した。このように製造された高分子溶液にグラファイトからなるアノード活物質粉末を高分子混合物/グラファイト粉末/導電材=6/93/1の重量比になるように添加し、12時間以上ボールミル法を用いてグラファイト粉末を約800nmに破碎及び分散してスラリーを製造した。このように製造されたスラリーをロールコーティング法でポリエチレン多孔性膜の他面にコートし乾燥させて第2多孔性コーティング層を形成した。コーティング厚さは約50 μm 程度に調節した。

【0059】

電池の製造

前述の方法に従って製造した複合分離膜を厚さが20 μm であるカソード電流集電体のアルミニウム（Al）薄膜と厚さが10 μm であるアノード集電体である銅（Cu）薄膜

10

20

30

40

50

の間に介在させた後巻き取りして組み立て、組み立てられた電池に電解液（エチレンカーボネート（EC）／エチルメチルカーボネート（EMC）＝１／２（体積比）、リチウムヘキサフルオロホスフェート（LiPF₆）１モル）を注入してリチウム二次電池を製造した。

【００６０】

実施例 2

複合分離膜の製造

PVdF - CTFE 及びシアノエチルブランを 10 : 2 の重量比でそれぞれアセトンに添加し、50 で約 12 時間以上溶解させて高分子溶液を製造した。このように製造された高分子溶液にカソード活物質粉末（LiCoO₂）及び導電材を高分子混合物／カソード活物質粉末／導電材＝6 / 90 / 4 の重量比になるように添加し、12 時間以上ボールミル法を用いて活性炭素粉末を破碎及び分散してスラリーを製造した。スラリー内のカソード活物質粒子の粒径は約 600 nm である。

10

【００６１】

このように製造されたスラリーをロールコーティング法で厚さが 12 μm であるポリエチレン多孔性膜（気孔度 45 %）の一面にコートし乾燥させて多孔性コーティング層を形成した。コーティング厚さは約 100 μm 程度に調節した。ポリエチレン多孔性膜にコートされた多孔性コーティング層内の気孔の大きさは 0.4 μm レベルであり、気孔度は 66 % レベルであった。

【００６２】

20

電池の製造

前述の方法に従って製造した複合分離膜を多孔性コーティング層がカソード電流集電体と対向するように、厚さが 20 μm であるアルミニウム薄膜とグラファイトがコートされた銅薄膜の間に介在させた後巻き取りして組み立て、組み立てられた電池に電解液（エチレンカーボネート（EC）／エチルメチルカーボネート（EMC）＝１／２（体積比）、リチウムヘキサフルオロホスフェート（LiPF₆）１モル）を注入してリチウム二次電池を製造した。

【００６３】

実施例 3

複合分離膜の製造

30

PVdF - CTFE 及びシアノエチルブランを 10 : 2 の重量比でそれぞれアセトンに添加し、50 で約 12 時間以上溶解させて高分子溶液を製造した。このように製造された高分子溶液にグラファイトからなるアノード活物質粉末を高分子混合物／グラファイト粉末／導電材＝6 / 93 / 1 の重量比になるように添加し、12 時間以上ボールミル法を用いてグラファイト粉末を約 800 nm に破碎及び分散してスラリーを製造した。このように製造されたスラリーをロールコーティング法でポリエチレン多孔性膜の他面にコートし乾燥させて多孔性コーティング層を形成した。コーティング厚さは約 50 μm 程度に調節した。

【００６４】

40

電池の製造

前述の方法に従って製造した複合分離膜を多孔性コーティング層がアノード電流集電体と対向するように、厚さが 10 μm である銅薄膜とカソード活物質粉末である LiCoO₂ がコートされたアルミニウム薄膜の間に介在させた後巻き取りして組み立て、組み立てられた電池に電解液（エチレンカーボネート（EC）／エチルメチルカーボネート（EMC）＝１／２（体積比）、リチウムヘキサフルオロホスフェート（LiPF₆）１モル）を注入してリチウム二次電池を製造した。

【００６５】

分離膜の熱収縮率評価

実施例 1 ないし実施例 3 の複合分離膜を 150 度で 1 時間保管した後の熱収縮率を評価して以下の表 1 に示した。

50

【 0 0 6 6 】

実験の結果、多孔性コーティング層が形成されない通常のポリエチレン多孔性膜からなった分離膜（対照群）は 80 % 以上の熱収縮率を示した反面、本発明による複合分離膜は 5 % 未満の熱収縮率を示した。

【表 1】

条件	実施例 1 ～ 3	対照群
熱収縮率	< 5 %	> 80 %

【 0 0 6 7 】

10

分離膜の絶縁抵抗評価

絶縁抵抗計（megohmmeter）を利用して分離膜の両面に存在する各点を連結し Hi - p o t t e s t を施して測定した。250 V の電圧を印加しながら 0.5 mA の電流を流した後その抵抗値を測定し、100 Mohm を基準にしてパス / フェイル（pass / fail）を判断した。

【 0 0 6 8 】

測定の結果、実施例 1 ないし実施例 3 の複合分離膜の絶縁抵抗は、すべてパスであった。

【 0 0 6 9 】

20

電池の容量評価

充放電による実施例 1 の電池及びポリエチレン分離膜を備えた対照群の電池の容量を測定し、その結果を図 5 に示した。

【 0 0 7 0 】

図 5 を参照すれば、本発明の複合分離膜を備えた実施例 1 の電池は、通常のポリオレフィン分離膜を備えた対照群の電池とほぼ同一の容量を示すことが分かる。

【産業上の利用可能性】

【 0 0 7 1 】

本発明の電気化学素子の電極構造体に備えられた複合分離膜の少なくとも一面に形成された多孔性コーティング層は、多孔性基材の熱的安定性を向上させ、電気化学素子の電極活物質層としての機能を行う。これによって、本発明による電気化学素子に用いられた電極構造体は、電流集電体の表面に対するカソード活物質層、アノード活物質層、またはカソード活物質層とアノード活物質層のコーティングが省略された電極構造体を備えるので、短縮された工程によって経済的に製造される。

30

【符号の説明】

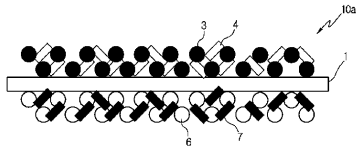
【 0 0 7 2 】

- 1 ... 多孔性基材
- 2 ... 第 1 多孔性コーティング層
- 3 ... カソード活物質粒子
- 4 ... 第 1 バインダー高分子
- 5 ... 第 2 多孔性コーティング層
- 6 ... アノード活物質粒子
- 7 ... 第 2 バインダー高分子
- 10 a、10 b、10 c ... 複合分離膜
- 20 ... カソード電流集電体
- 30 ... アノード電流集電体
- 40 ... アノード活物質層
- 50 ... カソード活物質層
- 100 a、100 b、100 c ... 電極構造体

40

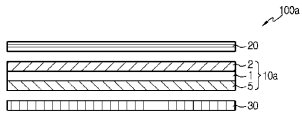
【 図 1 】

[Fig. 1]



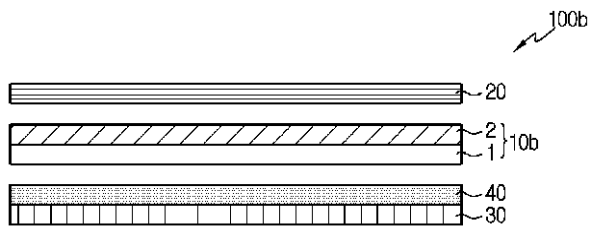
【 図 2 】

[Fig. 2]



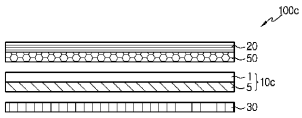
【 図 3 】

[Fig. 3]

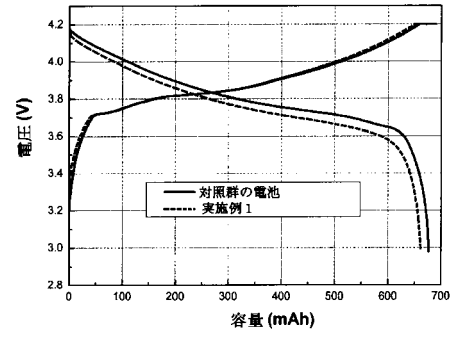


【 図 4 】

[Fig. 4]



【 図 5 】



【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/KR2008/004330
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
<i>H01M 10/04(2006.01)i</i>		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 8 H01M 10/04, H01M 10/02		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) eKIPASS (KIPO internal) "coating", "mixture", "layer", "PVdF"		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	KR 1020020071204 A(LG CHEM. LTD.) 12 September 2002 See abstract, pages1-11, claims 1-30, figures 1-7.	1-23
A	KR 1020060003665 A(LG CHEM. LTD.) 01 November 2006 See abstract, pages1-7, claims 1-15, figure 1.	1-23
A	KR 1020060021221 A(LG CHEM. LTD.) 07 March 2006 See abstract, pages1-8, claims 1-13, figure 1.	1-23
A	JP 11080395 A(NITTO DENKO CORP.) 26 March 1999 See abstract, paragraphs [0005]-[0057], claims 1-6.	1-23
A	JP 17332809 A(MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD.) 02 December 2005 See abstract, paragraphs <1>-<88>, claims 1-9, figure 1.	1-23
☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 09 JANUARY 2009 (09.01.2009)		Date of mailing of the international search report 09 JANUARY 2009 (09.01.2009)
Name and mailing address of the ISA/KR  Korean Intellectual Property Office Government Complex-Daejeon, 139 Seonsa-ro, Seo-gu, Daejeon 302-701, Republic of Korea Facsimile No. 82-42-472-7140		Authorized officer CHOI Byung Chul Telephone No. 82-42-481-8402 

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2008/004330

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
KR 102002071204A	12.09.2002	CN 1274036 C CN 1457517 A DE 60212274 D1 DE 60212274 T2 EP 1285468 A1 EP 1285468 B1 EP 1285468 A4 JP 2004-519824 T US 2003-0104273 A1 WO 0207-1509A1	06.09.2006 19.11.2003 27.07.2006 31.05.2007 26.02.2003 14.06.2006 21.07.2004 02.07.2004 05.06.2003 12.09.2002
KR 1020060003665A	01.11.2006	PI 0511309 A CN 1969407 A EP 1782489 A1 JP 2008-503049 US 2006-008700 A1 WO 2006-004366 A1	04.12.2007 23.05.2007 09.05.2007 31.01.2008 12.01.2006 12.01.2006
KR 1020060021221A	07.03.2006	CN 101002347 A EP 1784876 A1 JP 2008-508391 WO 2006-025662 A1	18.07.2007 16.05.2007 21.03.2008 09.03.2006
JP 11080395A	26.03.1999	None	
JP 17332809A	02.12.2005	CN 1969411 A EP 1739770 A1 KR 20070010179 A WO 2005-104270 A1	23.05.2007 03.01.2007 22.01.2007 03.11.2005

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
H 0 1 M 4/587 (2010.01)	H 0 1 M 4/58 1 0 3	
H 0 1 M 4/38 (2006.01)	H 0 1 M 4/38 Z	
H 0 1 M 10/052 (2010.01)	H 0 1 M 10/00 1 0 2	
H 0 1 M 10/058 (2010.01)	H 0 1 M 10/00 1 1 5	
H 0 1 M 4/62 (2006.01)	H 0 1 M 4/62 Z	

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LS,MW,MZ,NA,SD,SL,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,MD,RU,TJ,TM),EP(AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV,MC,MT,NL,NO,PL,PT,RO,SE,SI,SK,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CN,CO,CR,CU,CZ,DE,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IS,JP,KE,KG,KM,KN,KP,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LT,LU,LY,MA,MD,ME,MG,MK,MN,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PG,PH,PL,PT,RO,RS,RU,SC,SD,SE,SG,SK,SL,SM,ST,SV,SY,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,ZA,ZM,ZW

(72)発明者 バク、ピル - キュ

大韓民国テジョン、ジュン - グ、サンソン - ドン、 1 3 5 - 1 1

(72)発明者 リー、サン - ヤン

大韓民国テジョン、ユソン - グ、ジョンミン - ドン、エクスボ、アパート、 1 0 3 - 9 0 4

Fターム(参考) 5H021 AA06 BB12 BB13 CC03 EE04 HH00 HH03
5H029 AJ14 AK01 AK03 AL06 AL11 AM03 AM04 AM05 AM07 BJ12
CJ22 DJ04 DJ07 EJ12 HJ00 HJ04 HJ05
5H050 AA10 AA19 BA15 CA01 CA08 CA09 CB03 CB07 CB11 DA19
EA23 EA24 EA28 FA05 FA13 FA18 GA22 HA00 HA01 HA04
HA05