(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2025-0048148
(43) 공개일자 2025년04월07일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01M 10/0585 (2010.01) *H01M 10/0525* (2010.01)
H01M 50/46 (2021.01)
(52) CPC특허분류
H01M 10/0585 (2013.01)
H01M 10/0525 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2025-7010337(분할)
(22) 출원일자(국제) 2019년02월01일
심사청구일자 2025년03월28일
(62) 원출원 특허 10-2020-7022731
원출원일자(국제) 2019년02월01일
심사청구일자 2021년12월06일
(85) 번역문제출일자 2025년03월28일
(86) 국제출원번호 PCT/JP2019/003729
(87) 국제공개번호 WO 2019/163489
국제공개일자 2019년08월29일
(30) 우선권주장
JP-P-2018-032347 2018년02월26일 일본(JP)

(71) 출원인
니폰 제온 가부시키가이샤
일본국 도쿄도 치요다구 마루노우치 1쵸메 6반 2고
(72) 발명자
사토 마사노부
일본국 도쿄도 치요다구 마루노우치 1쵸메 6반 2고 니폰 제온 가부시키가이샤 내
오오니시 마스히로
일본국 도쿄도 치요다구 마루노우치 1쵸메 6반 2고 니폰 제온 가부시키가이샤 내
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인우인

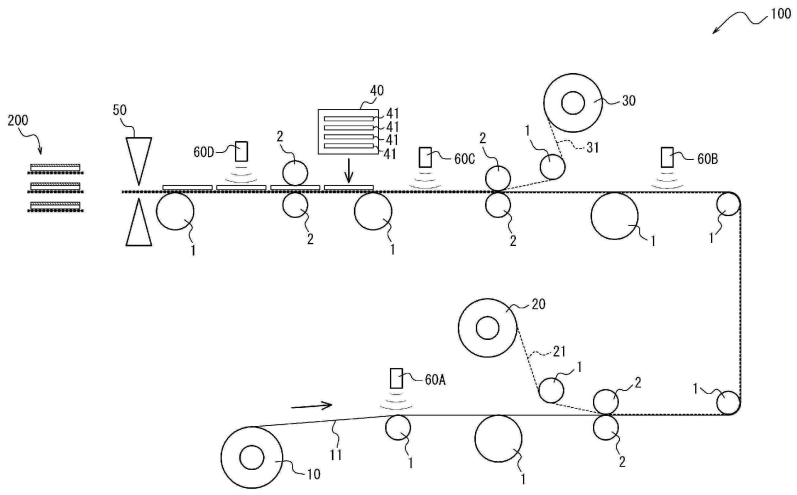
전체 청구항 수 : 총 8 항

(54) 발명의 명칭 **이차 전지용 적층체의 제조 방법**

(57) 요 약

본 발명은, 전극과 세퍼레이터를 첩합하여 이루어지는 이차 전지용 적층체를, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 확보하면서 효율적으로 제조할 수 있는 방법을 제공한다. 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 전극 및 세퍼레이터 중 적어도 일방의 첩합면에 접착 재료를 형성하는 공정(A)와, 공정(A) 후, 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지 않고, 전극 및 세퍼레이터를 첩합 개시 위치까지 반송하는 공정(B)와, 공정(B) 후, 첩합면을 개재하여 전극과 세퍼레이터를 첩합하는 공정(C)를 포함하고, 공정(A)에 있어서의 접착 재료의 형성량이 0.1 g/m^2 이상 100 g/m^2 이하이다.

대 표 도



(52) CPC특허분류
H01M 50/461 (2021.01)
Y02E 60/10 (2020.08)
(72) 발명자
코가 히로시
일본국 도쿄도 치요다구 마루노우치 1쵸메 6반 2고 니폰 제온 가부시키가이샤 내
타나카 케이이치로
일본국 도쿄도 치요다구 마루노우치 1쵸메 6반 2고 니폰 제온 가부시키가이샤 내

명 세 서

청구범위

청구항 1

전극과, 세퍼레이터를 첩합하여 이루어지는 이차 전지용 적층체의 제조 방법으로서,

상기 전극 및 상기 세퍼레이터 중 적어도 일방의 첩합면에 접착 재료를 형성하는 공정(A)와,

상기 공정(A) 후, 상기 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지 않고, 상기 전극 및 상기 세퍼레이터를 첩합 개시 위치까지 반송하는 공정(B)와,

상기 공정(B) 후, 상기 첩합면을 개재하여 상기 전극과 상기 세퍼레이터를 첩합하는 공정(C)

를 포함하고,

상기 공정(A)에 있어서의 상기 접착 재료의 형성량이 0.1 g/m^2 이상 100 g/m^2 이하이고,

형성된 상기 접착 재료의 단면 형상이 요철 형상인, 이차 전지용 적층체의 제조 방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 접착 재료는, 평면시에 있어서 스트라이프상의 패턴이 되도록 배열시켜 배치되어 있는, 이차 전지용 적층체의 제조 방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 접착 재료는, 미소한 도트상으로 형성되어 있는, 이차 전지용 적층체의 제조 방법.

청구항 4

제3항에 있어서,

상기 미소한 도트상의 접착 재료는, 평면시에 있어서 스트라이프상의 패턴이 되도록 배열시켜 배치되어 있는, 이차 전지용 적층체의 제조 방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 공정(A)에서는, 상기 접착 재료의 형성을, 상기 접착 재료와 용매를 포함하는 접착용 조성물을 상기 첩합면에 공급함으로써 행하고,

상기 접착용 조성물의 표면 장력이 20 mN/m 이상 65 mN/m 이하인, 이차 전지용 적층체의 제조 방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 접착 재료가 중합체로 이루어지는, 이차 전지용 적층체의 제조 방법.

청구항 7

제6항에 있어서,

상기 중합체가, 유리 전이 온도가 25℃ 이하인 저(低)Tg 중합체를 포함하는, 이차 전지용 적층체의 제조 방법.

청구항 8

제1항 내지 제7항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 공정(A)에 있어서의, 상기 접착 재료의 형성을 잉크젯법에 의해 행하는, 이차 전지용 적층체의 제조 방법.

발명의 설명

기 술 분 야

[0001] 본 발명은, 이차 전지용 적층체의 제조 방법에 관한 것이다.

배 경 기 술

[0002] 리튬 이온 이차 전지 등의 이차 전지는, 소형이고 경량이며, 또한 에너지 밀도가 높고, 나아가 반복 충방전이 가능하다는 특성이 있어, 폭넓은 용도로 사용되고 있다. 그리고, 이차 전지는, 일반적으로, 정극, 부극, 및 정극과 부극을 격리하여 정극과 부극 사이의 단락을 방지하는 세퍼레이터 등의 전지 부재를 구비하고 있다.

[0003] 여기서, 이차 전지의 제조 프로세스에 있어서는, 전해액에 침지하기 전의 전극과 세퍼레이터를 압착시켜 적층체(이하, 「이차 전지용 적층체」라고 칭하는 경우가 있다.)로 하고, 필요에 따라 원하는 사이즈로 절단하거나, 적층, 절첩 또는 권회하거나 하는 경우가 있다. 그리고, 당해 절단, 적층, 절첩 또는 권회시에는, 압착된 전극과 세퍼레이터가 위치 어긋남 등을 일으켜, 불량의 발생, 생산성의 저하와 같은 문제를 발생시키는 경우가 있다.

[0004] 이에, 근년에는, 표면에 접착층을 갖는 세퍼레이터를 사용함으로써, 이차 전지의 제조 프로세스에 있어서 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착시키는 기술이 제안되어 있다. 구체적으로는, 예를 들어 특허문헌 1에서는, 무기물 입자 및 바인더 고분자를 포함하는 코팅 용액을 다공성 기재 상에 도포하여 건조함으로써 다공성 코팅층을 형성한 후, 당해 다공성 코팅층의 표면에 소정의 표면 에너지 및 접촉각을 갖는 바인더 용액을 도포하여 건조함으로써, 다공성 기재 상에 다공성 코팅층 및 접착층을 갖는 세퍼레이터를 제조하여, 이차 전지의 조립에 사용하고 있다.

[0005] 또한, 일반적으로, 접착층을 갖는 세퍼레이터 등의, 접착층을 갖는 전지 부재는, 접착층을 형성한 후, 이차 전지용 적층체의 형성에 사용될 때까지, 롤상으로 권취한 상태로 보관되어 있다(예를 들어, 특허문헌 2 참조).

선행기술문헌

특허문헌

[0006] (특허문헌 0001) 일본 공표특허공보 2014-534570호

(특허문헌 0002) 일본 공개특허공보 2015-41603호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 그러나, 접착층을 갖는 전지 부재는, 롤상으로 권취한 상태로 보관하면, 접착층을 개재하여 인접하는 전지 부재끼리가 교착(블로킹)될 우려가 있다. 그리고, 전지 부재끼리가 교착되면, 롤로부터 접착층을 갖는 전지 부재를 권출하여 이차 전지용 적층체를 제조할 때에, 교착된 전지 부재끼리를 박리하는 작업이 필요하게 되거나, 접착층이 박리되거나 하여, 생산성이 저하된다.

[0008] 이에, 본 발명은, 전극과 세퍼레이터를 첩합하여 이루어지는 이차 전지용 적층체를, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 확보하면서 효율적으로 제조할 수 있는 방법을 제공하는 것을 목적으로 한다.

과제의 해결 수단

[0009] 본 발명자는, 상기 과제를 해결하는 것을 목적으로 하여 예의 검토를 행하였다. 그리고, 본 발명자는, 전극과 세퍼레이터를 첩합하여 이루어지는 이차 전지용 적층체를 제조함에 있어서, 첩합면에 형성하는 접착 재료의 양을 소정의 범위 내로 하는 동시에, 접착 재료를 형성 후, 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지

않고 전극과 세퍼레이터를 첩합하면, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 확보하면서 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있는 것을 알아내어, 본 발명을 완성시켰다.

[0010] 즉, 이 발명은, 상기 과제를 유리하게 해결하는 것을 목적으로 하는 것으로, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 전극과, 세퍼레이터를 첩합하여 이루어지는 이차 전지용 적층체의 제조 방법으로서, 상기 전극 및 상기 세퍼레이터 중 적어도 일방의 첩합면에 접착 재료를 형성하는 공정(A)와, 상기 공정(A) 후, 상기 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지 않고, 상기 전극 및 상기 세퍼레이터를 첩합 개시 위치까지 반송하는 공정(B)와, 상기 공정(B) 후, 상기 첩합면을 개재하여 상기 전극과 상기 세퍼레이터를 첩합하는 공정(C)를 포함하고, 상기 공정(A)에 있어서의 상기 접착 재료의 형성량이 0.1 g/m^2 이상 100 g/m^2 이하인 것을 특징으로 한다. 이와 같이, 공정(A)에 있어서 형성하는 접착 재료의 양을 소정의 범위 내로 하는 동시에, 공정(B) 및 공정(C)에 있어서 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지 않고 전극과 세퍼레이터를 첩합하면, 전극과 세퍼레이터를 충분히 접착시키면서, 접착 재료를 형성한 전지 부재(전극 및/또는 세퍼레이터)를 일단 롤상으로 권취하여 보관 등을 하는 경우와 비교하여, 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다.

[0011] 여기서, 본 발명에 있어서, 「첩합 개시 위치」란, 전극과 세퍼레이터의 첩합에 있어서, 전극의 첩합면과 세퍼레이터의 첩합면을 맞닿게 하는 위치를 가리킨다. 또한, 본 발명에 있어서, 「접착 재료의 형성량」이란, 첩합면의 단위 면적당에 형성되는 접착 재료의 양을 가리키며, 첩합면 상에 형성된 접착 재료의 질량을, 당해 접착 재료가 형성된 첩합면의 면적으로 나눔으로써 산출할 수 있다. 한편, 「첩합면의 면적」이란, 전극과 세퍼레이터를 첩합하였을 때에 서로 맞닿는 부분의 면적을 가리킨다(즉, 전극 및 세퍼레이터의 일방이 타방보다 작은 경우에는, 전극 및 세퍼레이터의 첩합면의 면적은, 작은 측의 첩합면의 면적과 일치한다).

[0012] 여기서, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 상기 접착 재료가 중합체로 이루어지는 것이 바람직하다. 중합체로 이루어지는 접착 재료를 사용하면, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착시킬 수 있다.

[0013] 또한, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 상기 중합체가, 유리 전이 온도가 25℃ 이하인 저(低)Tg 중합체를 포함하는 것이 바람직하다. 저Tg 중합체를 포함하는 중합체를 접착 재료로서 사용하면, 전극과 세퍼레이터의 접착 강도를 더욱 높일 수 있다.

[0014] 한편, 본 발명에 있어서, 「유리 전이 온도」는, JIS K7121에 따라 측정할 수 있다.

[0015] 또한, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 상기 공정(A)에서는, 상기 접착 재료와 용매를 포함하는 접착용 조성물을 상기 첩합면에 공급하고, 상기 접착용 조성물에 포함되어 있는 직경 10㎛ 이상의 조대 입자의 양이 100ppm 이하인 것이 바람직하다. 조대 입자의 양이 상기 상한값 이하이면, 이차 전지용 적층체를 사용하여 제작한 이차 전지의 에너지 밀도를 높일 수 있다.

[0016] 여기서, 본 발명에 있어서, 「조대 입자의 양」은, 본 명세서의 실시예에 기재된 측정 방법을 이용하여 측정할 수 있다.

[0017] 또한, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 상기 공정(A)에서는, 첩합면 상의 1개소 이상에 상기 접착 재료를 형성하고, 상기 접착 재료의 형성 면적이, 1개소당, 25 μm^2 이상 250000 μm^2 이하인 것이 바람직하다. 접착 재료의 1개소당의 형성 면적이 상기 범위 내이면, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착시키면서, 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다.

[0018] 그리고, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 상기 공정(A)에 있어서, 상기 접착 재료의 형성을 잉크젯법에 의해 행하는 것이 바람직하다. 잉크젯법에 의해 접착 재료를 형성하면, 전극과 세퍼레이터를 더욱 양호하게 접착시킬 수 있다.

발명의 효과

[0019] 본 발명에 의하면, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 확보하면서 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다.

도면의 간단한 설명

[0020] 도 1은 이차 전지용 적층체의 제조 장치의 일례의 개략 구성을 나타내는 설명도이다.

도 2는 접착용 조성물의 도공 패턴의 일례를 나타내는 평면도이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0021] 이하, 본 발명의 실시형태에 대하여 상세하게 설명한다.

[0022] 여기서, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 전극(정극 및/또는 부극)과, 세퍼레이터를 첩합하여 이루어지는 이차 전지용 적층체를 제조할 때에 이용된다. 그리고, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법을 이용하여 제조한 이차 전지용 적층체는, 비수계 이차 전지(예를 들어, 리튬 이온 이차 전지) 등의 이차 전지를 제조할 때에 사용할 수 있다.

[0023] 한편, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 이차 전지용 적층체를 연속적으로 제조할 때에 특히 호적하게 이용할 수 있다.

[0024] (이차 전지용 적층체의 제조 방법)

[0025] 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법은, 전극과, 세퍼레이터를 첩합하여 이차 전지용 적층체를 제조하는 방법이다. 그리고, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법에서는, 전극 및 세퍼레이터의 적어도 일방의 첩합면에 접착 재료를 0.1 g/m^2 이상 100 g/m^2 이하의 양으로 형성하는 공정(A)를 실시한 후, 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지 않고, 전극 및 세퍼레이터를 첩합 개시 위치까지 반송하는 공정(B)를 실시하고, 또한, 첩합면을 개재하여 전극과 세퍼레이터를 첩합하는 공정(C)를 실시하여, 이차 전지용 적층체를 제조한다. 이와 같이, 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지 않고 전극 및 세퍼레이터를 첩합 개시 위치까지 반송하여 첩합하면, 접착 재료가 형성된 전지 부재(전극 및/또는 세퍼레이터)가 블로킹을 일으키는 일이 없다. 또한, 접착 재료의 형성량을 소정의 범위 내로 하면, 접착 재료가 형성된 전지 부재(전극 및/또는 세퍼레이터)를 그대로 첩합에 사용하는 경우라도, 전극과 세퍼레이터를 충분히 접착시킬 수 있다. 따라서, 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다.

[0026] <이차 전지용 적층체>

[0027] 본 발명의 제조 방법에 의해 제조되는 이차 전지용 적층체는, 전극과 세퍼레이터가 첩합면을 개재하여 첩합된 것이다. 여기서, 세퍼레이터와 첩합되어 이차 전지용 적층체를 구성하는 전극은, 정극뿐이어도 되고, 부극뿐이어도 되며, 정극 및 부극의 쌍방이어도 된다. 또한, 정극 및 부극의 쌍방을 세퍼레이터와 첩합하여 이차 전지용 적층체로 하는 경우, 이차 전지용 적층체가 갖는 정극, 부극 및 세퍼레이터의 수는, 각각, 1개여도 되고, 2개 이상이어도 된다.

[0028] 즉, 본 발명의 제조 방법을 이용하여 제조하는 이차 전지용 적층체의 구조는, 하기 (1) ~ (6) 중 어느 것이어도 된다.

[0029] (1) 정극 / 세퍼레이터

[0030] (2) 부극 / 세퍼레이터

[0031] (3) 정극 / 세퍼레이터 / 부극

[0032] (4) 정극 / 세퍼레이터 / 부극 / 세퍼레이터

[0033] (5) 세퍼레이터 / 정극 / 세퍼레이터 / 부극

[0034] (6) 복수의 정극 및 부극이 세퍼레이터를 개재하여 번갈아 적층된 구조(예를 들어, 「세퍼레이터 / 부극 / 세퍼레이터 / 정극 / 세퍼레이터 / 부극 · · · · · / 세퍼레이터 / 정극」 등)

[0035] 한편, 복수의 전극 및/또는 세퍼레이터를 갖는 이차 전지용 적층체는, 상술한 공정(A) ~ (C)를 반복하여 실시함으로써 제조할 수 있다.

[0036] <전극>

[0037] 여기서, 전극으로는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어, 집전체의 편면 또는 양면에 전극 합재층을 형성하여 이루어지는 전극 기재로 이루어지는 전극, 혹은, 전극 기재의 전극 합재층 상에 다공막층을 더 형성하여 이루어지는 전극을 사용할 수 있다.

[0038] 한편, 집전체, 전극 합재층 및 다공막층으로는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어 일본 공개특허공보 2013-145763호에 기재된 것 등, 이차 전지의 분야에 있어서 사용될 수 있는 임의의 집전체, 전극 합재층 및 다공막층

을 사용할 수 있다. 여기서, 다공막층이란, 예를 들어 일본 공개특허공보 2013-145763호에 기재되어 있는 바와 같은 비도전성 입자를 포함하는 층을 가리킨다.

[0039] 그리고, 이차 전지용 적층체의 제조에 사용되는 전극은, 롤상으로 감겨 있어도 되고, 미리 절단되어 있어도 된다.

[0040] <세퍼레이터>

[0041] 또한, 세퍼레이터로는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어, 세퍼레이터 기재로 이루어지는 세퍼레이터, 또는, 세퍼레이터 기재의 편면 또는 양면에 다공막층을 형성하여 이루어지는 세퍼레이터를 사용할 수 있다.

[0042] 한편, 세퍼레이터 기재 및 다공막층으로는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어 일본 공개특허공보 2012-204303호나 일본 공개특허공보 2013-145763호에 기재된 것 등, 이차 전지의 분야에 있어서 사용될 수 있는 임의의 세퍼레이터 기재 및 다공막층을 사용할 수 있다.

[0043] 그리고, 이차 전지용 적층체의 제조에 사용되는 세퍼레이터는, 롤상으로 감겨 있어도 되고, 미리 절단되어 있어도 된다. 그 중에서도, 이차 전지용 적층체를 효율 좋게 연속적으로 제조하는 관점에서는, 세퍼레이터로는, 롤상으로 감겨 있는 것을 사용하는 것이 바람직하다.

[0044] <접착 재료>

[0045] 또한, 전극과 세퍼레이터를 접착시키는 접착 재료로는, 전극과 세퍼레이터를 접착 가능하고, 또한, 전지 반응을 저해하지 않는 것이면, 특별히 한정되지 않고, 이차 전지의 분야에 있어서 사용되고 있는 임의의 접착 재료를 사용할 수 있다. 그 중에서도, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착시키는 관점에서는, 접착 재료로는, 중합체로 이루어지는 접착 재료를 사용하는 것이 바람직하다. 한편, 접착 재료를 구성하는 중합체는, 1종류뿐이어도 되고, 2종류 이상이어도 된다.

[0046] 여기서, 접착 재료로서 사용할 수 있는 중합체로는, 특별히 한정되지 않고, 폴리불화비닐리덴, 폴리비닐리덴플루오라이드-헥사플루오로프로필렌(PVdF-HFP) 공중합체 등의 불소계 중합체; 스티렌-부타디엔 공중합체(SBR), 아크릴로니트릴-부타디엔 공중합체(NBR) 등의 공액 디엔계 중합체; 공액 디엔계 중합체의 수소화물; (메트)아크릴산알킬에스테르 단량체 단위를 포함하는 중합체(아크릴계 중합체); 폴리비닐알코올(PVA) 등의 폴리비닐알코올계 중합체; 등을 들 수 있다.

[0047] 한편, 본 발명에 있어서, 「(메트)아크릴산」이란, 아크릴산 및/또는 메타크릴산을 의미한다.

[0048] 그리고, 중합체로 이루어지는 접착 재료의 형상은, 특별히 한정되지 않고, 입자상이어도 되고, 비입자상이어도 되며, 입자상과 비입자상의 조합이어도 된다.

[0049] 한편, 중합체로 이루어지는 접착 재료가 입자상인 경우, 당해 입자상의 접착 재료는, 단일의 중합체로 형성된 단일상 구조의 입자여도 되고, 서로 다른 2개 이상의 중합체가 물리적 또는 화학적으로 결합하여 형성된 이상(異相) 구조의 입자여도 된다. 여기서, 이상 구조의 구체예로는, 구상의 입자로서 중심부(코어부)와 외각부(쉘부)가 다른 중합체로 형성되어 있는 코어쉘 구조; 2개 이상의 중합체가 병치된 구조인 사이드 바이 사이드 구조; 등을 들 수 있다. 한편, 본 발명에 있어서, 「코어쉘 구조」에는, 코어부의 외표면을 쉘부가 완전히 덮는 구조 외에, 코어부의 외표면을 쉘부가 부분적으로 덮는 구조도 포함되는 것으로 한다. 그리고, 본 발명에서는, 외관상, 코어부의 외표면이 쉘부에 의해 완전히 덮여 있는 것처럼 보이는 경우라도, 쉘부의 내외를 연통하는 구멍이 형성되어 있으면, 그 쉘부는 코어부의 외표면을 부분적으로 덮는 쉘부로 한다.

[0050] 또한, 중합체로 이루어지는 접착 재료가 입자상인 경우, 당해 입자상의 접착 재료의 체적 평균 입자경은, 0.1㎛ 이상인 것이 바람직하고, 0.15㎛ 이상인 것이 보다 바람직하고, 0.18㎛ 이상인 것이 더욱 바람직하며, 5㎛ 이하인 것이 바람직하고, 3㎛ 이하인 것이 보다 바람직하고, 2㎛ 이하인 것이 더욱 바람직하다. 입자상의 접착 재료의 체적 평균 입자경이 상기 하한값 이상이면, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 높일 수 있다. 또한, 입자상의 접착 재료의 체적 평균 입자경이 상기 상한값 이하이면, 이차 전지용 적층체를 사용하여 제작한 이차 전지의 에너지 밀도를 높일 수 있다.

[0051] 한편, 본 발명에 있어서, 「체적 평균 입자경」이란, 레이저 회절법으로 측정된 체적 기준의 입자경 분포에 있어서, 소경측으로부터 계산한 누적 체적이 50%가 되는 입자경을 나타낸다.

[0052] 또한, 입자상의 접착 재료가 코어쉘 구조를 갖는 중합체를 포함하는 경우, 당해 코어쉘 구조를 갖는 중합체의 체적 평균 입자경은, 0.1㎛ 이상인 것이 바람직하고, 0.15㎛ 이상인 것이 보다 바람직하고, 0.2㎛ 이상인 것

이 더욱 바람직하며, 5㎛ 이하인 것이 바람직하고, 3㎛ 이하인 것이 보다 바람직하고, 2㎛ 이하인 것이 더욱 바람직하다. 코어쉘 구조를 갖는 중합체로 이루어지는 접착 재료의 체적 평균 입자경이 상기 하한값 이상이면, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 높일 수 있다. 또한, 코어쉘 구조를 갖는 중합체로 이루어지는 접착 재료의 체적 평균 입자경이 상기 상한값 이하이면, 이차 전지용 적층체를 사용하여 제작한 이차 전지의 에너지 밀도를 높일 수 있다.

[0053] 또한, 입자상의 접착 재료가 코어쉘 구조를 갖는 중합체를 포함하는 경우, 코어쉘 구조를 갖는 중합체로 이루어지는 접착 재료는, 체적 평균 입자경(D50)에 대한, 체적 기준의 입자경 분포에 있어서 소경측으로부터 계산한 누적 체적이 10%가 되는 입자경(D10)의 비(D10/D50)가, 0.5 이상 1.0 이하인 것이 바람직하고, 0.55 이상 1.0 이하인 것이 보다 바람직하며, 0.6 이상 1.0 이하인 것이 더욱 바람직하다. D10/D50이 상기 하한값 이상이면, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 높일 수 있다.

[0054] 또한, 입자상의 접착 재료가 코어쉘 구조를 갖는 중합체를 포함하는 경우, 코어쉘 구조를 갖는 중합체로 이루어지는 접착 재료는, 체적 평균 입자경(D50)에 대한, 체적 기준의 입자경 분포에 있어서 소경측으로부터 계산한 누적 체적이 90%가 되는 입자경(D90)의 비(D90/D50)가, 1.5 이하인 것이 바람직하고, 1.45 이하인 것이 보다 바람직하며, 1.4 이하인 것이 더욱 바람직하다. D90/D50이 상기 상한값 이하이면, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 높일 수 있다.

[0055] 또한, 입자상의 접착 재료가 코어쉘 구조를 갖는 중합체를 포함하는 경우, 당해 코어쉘 구조를 갖는 중합체는, 코어부의 직경이, 코어쉘 구조를 갖는 중합체의 체적 평균 입자경 100%에 대하여, 바람직하게는 5% 이상 100% 미만, 보다 바람직하게는 10% 이상 100% 미만, 더욱 바람직하게는 20% 이상 100% 미만이다. 코어부의 직경이 상기 하한값 이상이면, 첩합면에 공급된 후에도 입자 형상을 양호하게 유지하여, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착할 수 있다.

[0056] 또한, 접착 재료가 중합체로 이루어지는 경우, 접착 재료를 구성하는 중합체는, 유리 전이 온도가 25℃ 이하인 저Tg 중합체를 포함하는 것이 바람직하다. 접착 재료를 구성하는 중합체가 저Tg 중합체를 함유하고 있으면, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 높일 수 있다. 한편, 저Tg 중합체의 유리 전이 온도는, -120℃ 이상인 것이 바람직하다.

[0057] 한편, 접착 재료가 코어쉘 구조를 갖는 중합체를 포함하는 경우, 당해 코어쉘 구조를 갖는 중합체는, 코어부의 유리 전이 온도가 쉘부의 유리 전이 온도보다 높은 것이 바람직하다. 코어부의 유리 전이 온도가 쉘부의 유리 전이 온도보다 높으면, 첩합면에 공급된 후에도 입자 형상을 양호하게 유지하면서 쉘부에 충분히 높은 접착력을 발휘시켜, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착할 수 있다.

[0058] 그리고, 코어쉘 구조를 갖는 중합체의 코어부의 유리 전이 온도는, -40℃ 이상 110℃ 이하인 것이 바람직하고, -40℃ 이상 60℃ 이하인 것이 보다 바람직하며, -40℃ 이상 25℃ 이하인 것이 더욱 바람직하다. 코어부의 유리 전이 온도가 상기 하한값 이상이면, 첩합면에 공급된 후에도 입자 형상을 양호하게 유지할 수 있다. 또한, 코어부의 유리 전이 온도가 상기 상한값 이하이면, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착할 수 있다.

[0059] 또한, 코어쉘 구조를 갖는 중합체의 쉘부의 유리 전이 온도는, -40℃ 이상인 것이 바람직하고, -35℃ 이상인 것이 보다 바람직하고, -30℃ 이상인 것이 더욱 바람직하며, 50℃ 이하인 것이 바람직하고, 40℃ 이하인 것이 보다 바람직하고, 30℃ 이하인 것이 더욱 바람직하고, 25℃ 이하인 것이 특히 바람직하다. 쉘부의 유리 전이 온도가 상기 하한값 이상이면, 첩합면에 공급된 후에도 입자 형상을 양호하게 유지할 수 있다. 또한, 쉘부의 유리 전이 온도가 상기 상한값 이하이면, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착할 수 있다.

[0060] 여기서, 코어쉘 구조를 갖는 중합체는, 25℃ 이하에 적어도 하나의 유리 전이 온도를 갖는 것이 바람직하다.

[0061] <공정(A)>

[0062] 공정(A)에서는, 전극 및 세퍼레이터 중 적어도 일방의 첩합면에 상술한 접착 재료를 형성한다.

[0063] 여기서, 첩합면에 형성하는 접착 재료의 양은, 0.1 g/m^2 이상 100 g/m^2 이하일 필요가 있고, 0.1 g/m^2 이상 50 g/m^2 이하인 것이 바람직하고, 0.1 g/m^2 이상 10 g/m^2 이하인 것이 보다 바람직하며, 0.1 g/m^2 이상 1 g/m^2 이하인 것이 더욱 바람직하다. 접착 재료의 형성량이 0.1 g/m^2 이상이면, 전극과 세퍼레이터를 충분히 접착시킬 수 있다. 또한, 접착 재료의 형성량이 100 g/m^2 이하이면, 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다.

[0064] 그리고, 공정(A)에 있어서 전극측의 첩합면과 세퍼레이터측의 첩합면의 쌍방에 접착 재료를 형성하는 경우에는, 각 첩합면에 있어서 접착 재료의 형성량이 0.1 g/m^2 이상 100 g/m^2 이하가 되도록 하면 된다.

[0065] 한편, 접착 재료는, 고체 상태, 용융 상태, 용매에 용해시킨 상태 또는 용매에 분산시킨 상태 등의 임의의 상태에서 첩합면으로 공급할 수 있다. 그 중에서도, 접착 재료는, 용매에 용해시킨 상태 또는 용매에 분산시킨 상태에서 공급하는 것이 바람직하고, 용매에 분산시킨 상태에서 공급하는 것이 보다 바람직하다.

[0066] 그리고, 공정(A)에 있어서 접착 재료를 용매에 용해시킨 상태 또는 용매에 분산시킨 상태에서 첩합면에 공급하는 경우, 즉, 접착 재료와 용매를 포함하는 접착용 조성물을 첩합면에 공급하는 경우, 접착용 조성물의 용매로는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어, 물, 유기 용매 및 그들의 혼합물을 사용할 수 있다. 한편, 유기 용매로는, 특별히 한정되지 않고, 시클로펜탄, 시클로헥산 등의 고리형 지방족 탄화수소류; 톨루엔, 크실렌 등의 방향족 탄화수소류; 에틸메틸케톤, 시클로헥사논 등의 케톤류; 아세트산에틸, 아세트산부틸, γ-부티로락톤, ε-카프로락톤 등의 에스테르류; 아세토니트릴, 프로피오니트릴 등의 니트릴류; 테트라하이드로푸란, 에틸렌글리콜디에틸에테르 등의 에테르류: 메탄올, 에탄올, 이소프로판올, 에틸렌글리콜, 에틸렌글리콜모노메틸에테르 등의 알코올류; 등을 들 수 있다.

[0067] 상술한 것 중에서도, 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조하는 관점에서는, 용매로는, 물 및 알코올이 바람직하고, 물이 보다 바람직하다.

[0068] 또한, 접착용 조성물 중의 접착 재료의 농도는, 1 질량% 이상 40 질량% 이하인 것이 바람직하고, 1 질량% 이상 30 질량% 이하인 것이 보다 바람직하며, 1 질량% 이상 15 질량% 이하인 것이 더욱 바람직하다. 접착 재료의 농도가 상기 범위 내이면, 이차 전지용 적층체를 더욱 효율적으로 제조할 수 있다.

[0069] 또한, 접착용 조성물의 점도는, 1 mPa·s 이상 50 mPa·s 이하인 것이 바람직하고, 1 mPa·s 이상 40 mPa·s 이하인 것이 보다 바람직하며, 1 mPa·s 이상 30 mPa·s 이하인 것이 더욱 바람직하다. 접착용 조성물의 점도가 상기 범위 내이면, 첩합면 상의 원하는 위치에 접착용 조성물을 용이하게 공급하여, 원하는 형성량으로 할 수 있으므로, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착시킬 수 있다.

[0070] 한편, 본 발명에 있어서, 「점도」란, 브룩필드 점도계(B형 점도계)를 사용하여 측정된, 온도 20℃에서의 정적 점도의 값을 가리킨다.

[0071] 또한, 접착용 조성물의 표면 장력은, 10 mN/m 이상인 것이 바람직하고, 15 mN/m 이상인 것이 보다 바람직하고, 20 mN/m 이상인 것이 더욱 바람직하며, 72 mN/m 이하인 것이 바람직하고, 70 mN/m 이하인 것이 보다 바람직하고, 65 mN/m 이하인 것이 더욱 바람직하다. 접착용 조성물의 표면 장력이 상기 하한값 이상이면, 접착용 조성물을 첩합면 상에 원하는 형상으로 공급하여, 원하는 형성량으로 할 수 있어, 이차 전지용 적층체를 더욱 효율적으로 제조할 수 있다. 또한, 접착용 조성물의 표면 장력이 상기 상한값 이하이면, 첩합면 상의 원하는 위치에 접착용 조성물을 공급하여, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착시킬 수 있다.

[0072] 한편, 본 발명에 있어서, 「표면 장력」은, JIS K2241에 준거하여 측정한 값을 가리킨다.

[0073] 또한, 접착용 조성물에 포함되어 있는 직경 10㎛ 이상의 조대 입자의 양은, 100ppm 이하인 것이 바람직하고, 50ppm 이하인 것이 보다 바람직하며, 10ppm 이하인 것이 더욱 바람직하다. 조대 입자의 양이 상기 상한값 이하이면, 이차 전지용 적층체를 사용하여 제작한 이차 전지의 에너지 밀도를 높일 수 있다. 한편, 접착용 조성물에 포함되어 있는 조대 입자는, 통상, 중합체로 이루어지는 입자상의 접착 재료로 이루어진다.

[0074] 그리고, 첩합면으로의 접착 재료의 형성은, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어, 잉크젯법, 스프레이법, 디스펜서법, 그라비아 코팅법, 스크린 인쇄법 등의 방법을 이용하여 행할 수 있다. 그 중에서도, 생산성 및 형성 형상의 자유도의 높이의 관점에서는, 접착 재료의 형성 방법은, 잉크젯법인 것이 바람직하다.

[0075] 한편, 접착 재료는, 첩합면의 전체면에 형성해도 되고, 첩합면의 일부에만 형성해도 된다. 그리고, 첩합면의 일부에만 접착 재료를 형성하는 경우, 접착 재료는, 특별히 한정되지 않고, 스트라이프상, 도트상, 격자상 등의 임의의 평면시 형상이 되도록 형성할 수 있다. 그 중에서도, 이차 전지용 적층체를 사용하여 이차 전지를 제조할 때의 전해액의 주액성을 높이는 관점에서는, 접착 재료는, 도트상으로 형성하는 것이 바람직하다. 그리고, 도트상의 접착 재료는, 첩합면의 전체면에 균일하게 배치(형성)해도 되고, 스트라이프상, 도트상, 격자상 등의 소정의 패턴이 되도록 배열시켜 배치(형성)해도 된다. 그 중에서도, 이차 전지용 적층체를 사용하여 이차 전지를 제조할 때의 전해액의 주액성을 높이는 관점에서는, 도트상의 접착 재료는 스트라이프상으로 배열시켜 배치(형성)하는 것이 바람직하다. 한편, 미소한 도트상의 접착 재료를 소정의 패턴으로 배열하는 경우에는, 접착

재료의 형성 및 배열의 용이함의 관점에서, 잉크젯법에 의해 접착용 조성물을 원하는 패턴으로 도공하여 접착 재료를 형성하는 것이 바람직하다.

[0076] 또한, 접착 재료의 단면 형상은, 특별히 한정되지 않고, 볼록 형상, 요철 형상, 오목 형상으로 할 수 있고, 그 중에서도, 전극과 세퍼레이터를 더욱 양호하게 접착시키는 관점에서는, 요철 형상인 것이 바람직하다. 한편, 접착 재료의 단면 형상은, 예를 들어, 접착용 조성물을 사용하여 접착 재료를 형성할 때의 건조 조건을 조정함으로써 변경할 수 있다.

[0077] 여기서, 첩합면 상의 1개소 이상, 바람직하게는 2개소 이상에 접착 재료를 형성하는 경우, 첩합면에 형성하는 접착 재료의 형성 면적은, 1개소당, $25\,\mu m^2$ 이상인 것이 바람직하고, $50\,\mu m^2$ 이상인 것이 보다 바람직하고, $100\,\mu m^2$ 이상인 것이 더욱 바람직하며, $250000\,\mu m^2$ 이하인 것이 바람직하고, $200000\,\mu m^2$ 이하인 것이 보다 바람직하고, $100000\,\mu m^2$ 이하인 것이 더욱 바람직하다. 1개소당의 접착 재료의 형성 면적이 $25\,\mu m^2$ 이상이면, 전극과 세퍼레이터를 충분히 접착시킬 수 있다. 또한, 1개소당의 접착 재료의 형성 면적이 $250000\,\mu m^2$ 이하이면, 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다.

[0078] 한편, 상기의 형성 면적은, 접착 재료 또는 접착용 조성물을 첩합면에 도공하는 양, 형상 및 범위를 변경함으로써 조정할 수 있다. 구체적으로는, 형성 면적은, 예를 들어, 접착용 조성물을 사용하여 잉크젯법에 의해 접착 재료를 형성하는 경우에는, 잉크젯 헤드의 노즐로부터의 접착용 조성물의 토출의 해조(諧調)(동일한 포인트에 토출한 횟수)를 변경함으로써 조정할 수 있다.

[0079] <공정(B)>

[0080] 공정(B)에서는, 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지 않고, 전극 및 세퍼레이터를 첩합 개시 위치까지 반송한다. 이와 같이, 접착 재료가 형성된 첩합면에 다른 부재를 접촉시키지 않으면, 블로킹 등의 문제가 발생하지 않으므로, 접착성이 우수한 접착 재료를 사용할 수 있는 동시에, 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다.

[0081] 한편, 전극 및 세퍼레이터의 반송은, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어, 롤러, 벨트 컨베이어, 머니퓰레이터, 흡착 밴드 등의 임의의 반송 기구를 사용하여 행할 수 있다. 그 중에서도, 이차 전지용 적층체의 제조 효율을 더욱 높이는 관점에서는, 전극 및 세퍼레이터 중 적어도 일방을 롤러를 사용하여 반송하는 것이 바람직하다.

[0082] 또한, 공정(A)에 있어서 접착 재료를 접착용 조성물로서 공급한 경우에는, 공정(B)에 있어서의 반송 중에 첩합면 상의 접착용 조성물을 건조시켜도 된다. 여기서, 건조는, 특별히 한정되지 않고, 히터, 드라이어, 히트 롤러 등의 가열 장치를 사용하여 행할 수 있다. 한편, 접착용 조성물이 공급된 전극 및/또는 세퍼레이터의 건조시의 온도는, 특별히 한정되지 않고, 0℃ 이상으로 하는 것이 바람직하고, 10℃ 이상으로 하는 것이 보다 바람직하고, 15℃ 이상으로 하는 것이 더욱 바람직하며, 200℃ 이하로 하는 것이 바람직하고, 150℃ 이하로 하는 것이 보다 바람직하고, 100℃ 이하로 하는 것이 더욱 바람직하다. 건조시의 온도를 상기 하한값 이상으로 하면, 건조 속도를 충분히 높여 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다. 또한, 건조시의 온도를 상기 상한값 이하로 하면, 건조 후의 접착 재료의 형상을 양호한 것으로 하여, 전극과 세퍼레이터를 양호하게 접착시킬 수 있다.

[0083] <공정(C)>

[0084] 공정(C)에서는, 첩합면을 개재하여 전극과 세퍼레이터를 첩합한다. 여기서, 첩합은, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어, 첩합면을 개재하여 중첩한 전극과 세퍼레이터의 적층체를 가압 및/또는 가열함으로써 행할 수 있다.

[0085] 한편, 공정(C)에 있어서 적층체에 가하는 압력, 전극과 세퍼레이터를 첩합할 때의 온도, 그리고, 적층체를 가압 및/또는 가열하는 시간은, 사용하는 접착 재료의 종류 및 양 등에 따라 적당히 조정할 수 있다.

[0086] <이차 전지용 적층체의 제조 장치의 일례>

[0087] 그리고, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법을 이용한 이차 전지용 적층체의 제조는, 특별히 한정되지 않고, 예를 들어 도 1에 나타내는 바와 같은 제조 장치(100)를 사용하여 행할 수 있다.

[0088] 여기서, 도 1에 나타내는 제조 장치(100)는, 전극(정극 및 부극) 그리고 세퍼레이터가 상측으로부터 하측을 향하여 「정극 / 세퍼레이터 / 부극 / 세퍼레이터」의 순서로 적층되어 이루어지는 이차 전지용 적층체(200)를 제조하는 장치이다. 한편, 이 제조 장치(100)에서는, 얻어진 이차 전지용 적층체(200)는, 적당한 사이즈로 절단

된 후, 또한 중첩하고 나서 이차 전지의 제조에 사용된다.

[0089] 그리고, 제조 장치(100)는, 부극(11)을 롤상으로 권취하여 이루어지는 부극 롤(10)과, 세퍼레이터(21, 31)를 롤상으로 권취하여 이루어지는 제 1 세퍼레이터 롤(20) 및 제 2 세퍼레이터 롤(30)과, 미리 절단된 정극(41)을 수용하는 정극 스토커(40)를 구비하고 있다. 또한, 제조 장치(100)는, 복수(도시예에서는 9개)의 반송 롤러(1)와, 복수(도시예에서는 3세트)의 프레스 롤러(2)와, 복수(도시예에서는 4개)의 접착 재료 공급기(60A, 60B, 60C, 60D)와, 절단기(50)를 더 구비하고 있다.

[0090] 이 제조 장치(100)에서는, 먼저, 부극 롤(10)로부터 권출되어 반송 롤러(1)를 통하여 반송되는 부극(11)의 표면(도시예에서는 상측의 표면)에 대하여, 예를 들어 도 2에 나타내는 바와 같은 경사 스트라이프 형상의 도공 패턴이 되도록, 접착 재료 공급기(60A)로부터 접착 재료를 포함하는 접착용 조성물(61)이 공급된다(공정(A)). 여기서, 도 2에 나타내는 경사 스트라이프 형상의 도공 패턴은, 평면시에 있어서, 반송 방향과 직교하는 방향과 이루는 각도가 협각(狭角)측에서 측정하였을 때 Θ이고, 배설(配設) 피치가 P이고, 폭이 W이다. 그리고, 접착 재료가 공급된 부극(11) 및 제 1 세퍼레이터 롤(20)로부터 권출된 세퍼레이터(21)가 프레스 롤러(2)가 위치하는 첩합 개시 위치까지 반송되고(공정(B)), 프레스 롤러(2)에 의해 첩합된다(공정(C)).

[0091] 한편, 접착 재료 공급기(60A)로부터 접착용 조성물을 공급하는 경우에는, 제조 장치(100)에서는, 접착 재료 공급기(60A)와 프레스 롤러(2) 사이에 위치하는 반송 롤러(1)를 히트 롤러로 하여, 접착용 조성물을 건조시켜도 된다.

[0092] 또한, 제조 장치(100)에서는, 접착 재료를 사용하여 첩합된 부극(11)과 세퍼레이터(21)의 적층체의 부극(11)측의 표면에 대하여, 예를 들어 도 2에 나타내는 바와 같은 경사 스트라이프 형상의 도공 패턴이 되도록, 접착 재료 공급기(60B)로부터 접착 재료를 포함하는 접착용 조성물(61)이 공급된다(공정(A)). 그리고, 접착 재료가 공급된 부극(11)과 세퍼레이터(21)의 적층체, 및 제 2 세퍼레이터 롤(30)로부터 권출된 세퍼레이터(31)가 프레스 롤러(2)가 위치하는 첩합 개시 위치까지 반송되고(공정(B)), 프레스 롤러(2)에 의해 첩합된다(공정(C)).

[0093] 한편, 접착 재료 공급기(60B)로부터 접착용 조성물을 공급하는 경우에는, 제조 장치(100)에서는, 접착 재료 공급기(60B)와 프레스 롤러(2) 사이에 위치하는 반송 롤러(1)를 히트 롤러로 하여, 접착용 조성물을 건조시켜도 된다.

[0094] 또한, 제조 장치(100)에서는, 접착 재료를 사용하여 첩합된 부극(11)과 세퍼레이터(21, 31)의 적층체의 세퍼레이터(31)측의 표면에 대하여, 예를 들어 도 2에 나타내는 것과 동일한 경사 스트라이프 형상의 도공 패턴이 되도록, 접착 재료 공급기(60C)로부터 접착 재료를 포함하는 접착용 조성물(61)이 공급된다(공정(A)). 그리고, 첩합 개시 위치에 있어서, 접착 재료가 공급된 부극(11)과 세퍼레이터(21, 31)의 적층체의 세퍼레이터(31) 상에 정극(41)이 재치되고(공정(B)), 프레스 롤러(2)에 의해 첩합된다(공정(C)).

[0095] 한편, 접착 재료 공급기(60C)로부터 접착용 조성물을 공급하는 경우에는, 제조 장치(100)에서는, 접착 재료 공급기(60C)와 프레스 롤러(2) 사이에 위치하는 반송 롤러(1)를 히트 롤러로 하여, 접착용 조성물을 건조시켜도 된다.

[0096] 그리고, 제조 장치(100)에서는, 상측으로부터 하측을 향하여 「정극 / 세퍼레이터 / 부극 / 세퍼레이터」의 순서로 적층되어 이루어지는 이차 전지용 적층체(200)의 정극측의 표면에 대하여, 예를 들어 도 2에 나타내는 것과 동일한 경사 스트라이프 형상의 도공 패턴이 되도록, 접착 재료 공급기(60D)로부터 접착 재료를 포함하는 접착용 조성물(61)을 공급한 후, 절단기(50)로 이차 전지용 적층체(200)를 절단한다.

[0097] 한편, 절단기(50)로 이차 전지용 적층체(200)를 절단하여 얻어지는 적층체는, 더 중첩하고 나서 이차 전지의 제조에 사용된다.

[0098] (이차 전지의 제조 방법)

[0099] 이차 전지용 적층체를 사용한 이차 전지의 제조 방법은, 상술한 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법을 이용하여 이차 전지용 적층체를 제조하는 공정과, 이차 전지용 적층체와, 전해액을 사용하여 이차 전지를 조립하는 공정(조립 공정)을 포함한다.

[0100] <조립 공정>

[0101] 여기서, 전해액으로는, 통상, 유기 용매에 지지 전해질을 용해시킨 유기 전해액이 사용된다. 예를 들어, 이차 전지가 리튬 이온 이차 전지인 경우에는, 지지 전해질로는, 리튬염이 사용된다. 리튬염으로는, 예를 들어,

$LiPF_6$, $LiAsF_6$, $LiBF_4$, $LiSbF_6$, $LiAlCl_4$, $LiClO_4$, CF_3SO_3Li, $C_4F_9SO_3Li$, CF_3COOLi, $(CF_3CO)_2NLi$, $(CF_3SO_2)_2NLi$, $(C_2F_5SO_2)NLi$ 등을 들 수 있다. 그 중에서도, 용매에 녹기 쉬워 높은 해리도를 나타내므로, $LiPF_6$, $LiClO_4$, CF_3SO_3Li가 바람직하고, $LiPF_6$이 특히 바람직하다. 한편, 전해질은 1종류를 단독으로 사용해도 되고, 2종류 이상을 임의의 비율로 조합하여 사용해도 된다. 통상은, 해리도가 높은 지지 전해질을 사용할수록 리튬 이온 전도도가 높아지는 경향이 있으므로, 지지 전해질의 종류에 의해 리튬 이온 전도도를 조절할 수 있다.

[0102] 또한, 전해액에 사용하는 유기 용매로는, 지지 전해질을 용해할 수 있는 것이면 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어, 디메틸카보네이트(DMC), 에틸렌카보네이트(EC), 디에틸카보네이트(DEC), 프로필렌카보네이트(PC), 부틸렌카보네이트(BC), 에틸메틸카보네이트(EMC), 비닐렌카보네이트(VC) 등의 카보네이트류; γ-부티로락톤, 포름산메틸 등의 에스테르류; 1,2-디메톡시에탄, 테트라하이드로푸란 등의 에테르류; 술포란, 디메틸술폭시드 등의 함황 화합물류; 등이 호적하게 사용된다. 또한, 이들 용매의 혼합액을 사용해도 된다. 그 중에서도, 유전율이 높고, 안정적인 전위 영역이 넓으므로 카보네이트류를 사용하는 것이 바람직하다. 통상, 사용하는 용매의 점도가 낮을수록 리튬 이온 전도도가 높아지는 경향이 있으므로, 용매의 종류에 의해 리튬 이온 전도도를 조절할 수 있다.

[0103] 한편, 전해액 중의 전해질의 농도는 적당히 조정할 수 있다. 또한, 전해액에는, 기지의 첨가제를 첨가해도 된다.

[0104] 그리고, 이차 전지는, 본 발명의 이차 전지용 적층체의 제조 방법에 따라 제조한 이차 전지용 적층체에 대하여, 필요에 따라 추가의 전지 부재(전극 및/또는 세퍼레이터 등)를 더 적층한 후, 얻어진 적층체를 필요에 따라 전지 형상에 따라 감기, 접기 등을 하여 전지 용기에 넣고, 전지 용기에 전해액을 주입하여 봉구함으로써 조립할 수 있다. 한편, 이차 전지의 내부의 압력 상승, 과충방전 등의 발생을 방지하기 위하여, 필요에 따라, 퓨즈, PTC 소자 등의 과전류 방지 소자, 익스팬디드 메탈, 리드판 등을 설치해도 된다. 또한, 이차 전지의 형상은, 예를 들어, 코인형, 버튼형, 시트형, 원통형, 각형, 편평형 등, 어느 것이어도 된다.

[0105] **실시예**

[0106] 이하, 본 발명에 대하여 실시예에 기초하여 구체적으로 설명하는데, 본 발명은 이들 실시예에 한정되는 것은 아니다. 한편, 이하의 설명에 있어서, 양을 나타내는 「%」 및 「부」는, 특별히 언급하지 않는 한, 질량 기준이다.

[0107] 실시예 및 비교예에 있어서, 접착 재료를 구성하는 중합체의 유리 전이 온도, 체적 평균 입자경 D50 및 입자경 분포, 접착용 조성물의 점도, 표면 장력 및 직경 10㎛ 이상의 조대 입자의 함유량, 전극과 세퍼레이터의 드라이 접착력, 그리고, 이차 전지의 전해액 주액성, 출력 특성 및 사이클 특성은, 하기의 방법으로 측정 및 평가하였다.

[0108] <유리 전이 온도>

[0109] JIS K7121에 준거하여, 측정 온도 -100℃ ~ 180℃, 승온 속도 5℃/분으로, 시차 주사 열량 분석계(나노테크놀로지사 제조, DSC6220SII)를 사용하여 측정하였다.

[0110] <체적 평균 입자경 D50 및 입자경 분포>

[0111] 입자상의 중합체의 수분산액에 대하여, 레이저 회절식 입자경 분포 측정 장치(시마즈 제작소사 제조, 제품명 「SALD-3100」)에 의해 입자경 분포(체적 기준)를 측정하였다. 그리고, 측정된 입자경 분포에 있어서, 소경측으로부터 계산한 누적 체적이 50%가 되는 입자경을 각 입자의 체적 평균 입자경(D50)으로 하였다. 또한, 측정된 입자경 분포를 사용하여, 소경측으로부터 계산한 누적 체적이 10%가 되는 입자경(D10) 및 소경측으로부터 계산한 누적 체적이 90%가 되는 입자경(D90)을 구하여, D10/D50 및 D90/D50을 산출하였다.

[0112] <점도>

[0113] 조제한 접착용 조성물에 대하여, 브룩필드 점도계(에코 정기 주식회사 제조, DV1M)를 사용하여, 온도 20℃에서의 정적 점도를 측정하였다.

[0114] <표면 장력>

[0115] 조제한 접착용 조성물에 대하여, JIS K2241에 준거하여, 표면 장력 측정 장치(쿄와 계면 화학 주식회사 제조, DY-700)를 사용하여, 온도 25℃에서의 표면 장력을 측정하였다.

[0116] <조대 입자의 함유량>

[0117] 평균 공경 10㎛의 나일론 메시의 질량(B)를 측정하고, 깔때기에 세트하였다. 거기에, 접착용 조성물 100g을 붓고, 여과하였다. 여기에, 이온 교환수를 부어, 혼탁이 없어질 때까지 세정하고, 90℃의 오븐으로, 60분 이상 건조하였다. 방랭 후, 나일론 메시의 질량(A)를 측정하여 메시 잔사량의 측정을 행하였다. 메시 잔사량, 즉 접착용 조성물 중의 입자경이 10㎛ 이상인 조대 입자량은, 하기 식에 의해 구하였다.

[0118] 조대 입자의 함유량(ppm) = (A - B)/(C × D/100) × 1000000

[0119] A: 메시 + 건조물의 질량(g)

[0120] B: 메시의 질량(g)

[0121] C: 여과한 접착용 조성물의 질량(g)

[0122] D: 접착용 조성물의 전체 고형분 농도(%)

[0123] <접착 재료의 1개소당의 형성 면적>

[0124] 접착 재료의 1개소당의 형성 면적 S_{50}은, 레이저 현미경(키엔스사 제조, VR-3100)을 사용하여, $2mm^2$의 영역에 형성되어 있는 도트상의 접착 재료의 장축 직경 x와 단축 직경 y를 측정하고, z = (x + y)/2를 평균 직경으로서, 각 도트의 면적을 $S = 1/4\pi z^2$로서 산출하여, 50개의 도트의 면적 S의 평균값으로서 산출하였다.

[0125] <드라이 접착력>

[0126] 실시예 및 비교예에서 작성한 정극, 부극, 및 세퍼레이터를 각각 10mm폭, 길이 50mm폭으로 잘라내어, 정극과 세퍼레이터, 및 부극과 세퍼레이터를 적층시키고, 온도 70℃, 하중 1 MPa 상당의 압력의 롤 프레스로 적층체를 10 m/분으로 프레스하여, 시험편으로 하였다.

[0127] 이 시험편을, 전극(정극 또는 부극)의 집전체측의 면을 아래로 하여, 전극의 표면에 셀로판 테이프를 첩부하였다. 이 때, 셀로판 테이프로는 JIS Z1522에 규정되는 것을 사용하였다. 또한, 셀로판 테이프는 수평한 시험대에 고정해 두었다. 그리고, 세퍼레이터의 일단을 연직 상방으로 인장 속도 50 mm/분으로 잡아당겨 벗겼을 때의 응력을 측정하였다.

[0128] 이 측정을, 정극 및 세퍼레이터를 구비하는 적층체, 그리고, 부극 및 세퍼레이터를 구비하는 적층체에서 각각 3회, 합계 6회 행하고, 응력의 평균값을 필 강도로서 구하여, 전극과 세퍼레이터의 접착성을 하기의 기준으로 평가하였다. 필 강도가 클수록, 접착성이 높은 것을 나타낸다.

[0129] A: 필 강도가 3 N/m 이상

[0130] B: 필 강도가 1 N/m 이상 3 N/m 미만

[0131] C: 필 강도가 1 N/m 미만

[0132] <전해액 주액성>

[0133] 제작한 이차 전지용 적층체를 전지의 외장으로서의 알루미늄 포장재 외장으로 감싸고, 전해액(용매: 에틸렌카보네이트 / 디에틸카보네이트 / 비닐렌카보네이트 = 68.5 / 30 / 1.5(체적비), 전해질: 농도 1M의 $LiPF_6$)을 주액 시간을 다르게 하면서 공기가 남지 않도록 주입하였다.

[0134] 그리고, 주액시에 전해액이 끓어 넘치지 않는 최단의 주액 시간을 구하고, 하기의 기준으로 평가하였다. 최단의 주액 시간이 짧을수록, 전해액 주액성이 우수한 것을 나타낸다.

[0135] A: 최단의 주액 시간이 100초 미만

[0136] B: 최단의 주액 시간이 100초 이상 300초 미만

[0137] C: 최단의 주액 시간이 300초 이상 500초 미만

[0138] D: 최단의 주액 시간이 500초 이상

[0139] <출력 특성>

[0140] 제작한 이차 전지를, 온도 25℃의 분위기하에서, 4.3V까지 정전류 정전압(CCCV) 충전하였다. 그 후, 온도 -10℃의 분위기하에서, 0.2C의 정전류법에 의해 3.0V까지 방전하였을 때의 전기 용량과, 1C의 정전류법에 의해 3.0V까지 방전하였을 때의 전기 용량을 구하였다.

[0141] 그리고, 전기 용량의 비(=(1C에서의 전기 용량/0.2C에서의 전기 용량) × 100(%))로 나타내어지는 방전 용량 유지율을 구하였다. 이들 측정을, 이차 전지 5셀에 대하여 행하고, 각 셀의 방전 용량 유지율의 평균값을, 저온 출력 특성으로서, 이하의 기준으로 평가하였다. 이 값이 클수록, 출력 특성이 우수한 것을 나타낸다.

[0142] A: 저온 출력 특성이 80% 이상

[0143] B: 저온 출력 특성이 70% 이상 80% 미만

[0144] C: 저온 출력 특성이 60% 이상 70% 미만

[0145] D: 저온 출력 특성이 60% 미만

[0146] <사이클 특성>

[0147] 제작한 이차 전지를, 온도 45℃의 분위기하에서, 0.5C의 정전류법에 의해 4.4V로 충전하고, 3.0V까지 방전하는 충방전을, 200 사이클 반복하였다. 그리고, 200 사이클 종료시의 전기 용량과, 5 사이클 종료시의 전기 용량의 비(=(200 사이클 종료시의 전기 용량/5 사이클 종료시의 전기 용량) × 100(%))로 나타내어지는 충방전 용량 유지율을 구하였다. 이들 측정을, 이차 전지 5셀에 대하여 행하고, 각 셀의 충방전 용량 유지율의 평균값을, 고전압 사이클 특성으로서, 이하의 기준으로 평가하였다. 이 값이 클수록, 사이클 특성이 우수한 것을 나타낸다.

[0148] A: 고전압 사이클 특성이 95% 이상

[0149] B: 고전압 사이클 특성이 90% 이상 95% 미만

[0150] C: 고전압 사이클 특성이 90% 미만

[0151] (실시예 1)

[0152] <접착 재료의 준비>

[0153] 코어쉘 구조를 갖는 중합체로 이루어지는 입자상의 제 1 접착 재료로서, 유리 전이 온도 108℃의 중합체로 이루어지는 코어부와, 코어부의 외표면을 부분적으로 덮는, 유리 전이 온도가 -17℃인 중합체로 이루어지는 쉘부를 갖는 코어쉘 입자의 수분산액을 준비하였다.

[0154] 또한, 단일상 구조의 중합체로 이루어지는 입자상의 제 2 접착 재료로서, 스티렌-부타디엔 공중합체(SBR)의 수분산액을 준비하였다.

[0155] 그리고, 접착 재료를 구성하는 중합체의 유리 전이 온도, 체적 평균 입자경 D50 및 입자경 분포를 측정하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.

[0156] <접착용 조성물의 조제>

[0157] 고형분 상당으로, 제 2 접착 재료의 수분산액 10 부와, 제 1 접착 재료의 수분산액 100 부를 교반 용기 내에서 혼합하고, 이온 교환수에 의해 희석하여, 고형분 농도 10%의 접착용 조성물을 얻었다.

[0158] 그리고, 접착용 조성물의 점도, 표면 장력, 및 직경 10㎛ 이상의 조대 입자의 함유량을 측정하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.

[0159] <부극의 형성>

[0160] 교반기 장착 5 MPa 내압 용기에, 1,3-부타디엔 33 부, 이타콘산 3.5 부, 스티렌 63.5 부, 유화제로서 도데실벤젠술폰산나트륨 0.4 부, 이온 교환수 150 부 및 중합 개시제로서의 과황산칼륨 0.5 부를 넣고, 충분히 교반한 후, 50℃로 가온하여 중합을 개시하였다. 중합 전화율이 96%가 된 시점에서 냉각하여 반응을 정지시켜, 부극 합재층용 결착재(SBR)를 포함하는 혼합물을 얻었다. 상기 부극 합재층용 결착재를 포함하는 혼합물에, 5% 수산화나트륨 수용액을 첨가하여, pH 8로 조정 후, 가열 감압 증류에 의해 미반응 단량체의 제거를 행하였다. 그 후, 30℃ 이하까지 냉각하여, 원하는 부극 합재층용 결착재를 포함하는 수분산액을 얻었다.

[0161] 다음으로, 부극 활물질로서의 인조 흑연(체적 평균 입자경: 15.6㎛) 100 부, 점도 조정제로서의 카르복시메틸셀룰로오스나트륨염(닛폰 제지사 제조, 제품명 「MAC350HC」)의 2% 수용액을 고형분 상당으로 1 부, 및 이온 교

환수를 혼합하여 고형분 농도 68%로 조정한 후, 25℃에서 60분간 다시 혼합하였다. 또한, 이온 교환수로 고형분 농도를 62%로 조정한 후, 25℃에서 15분간 다시 혼합하였다. 얻어진 혼합액에, 상기의 부극 합재층용 결착재를 포함하는 수분산액을 고형분 상당으로 1.5 부, 및 이온 교환수를 넣어, 최종 고형분 농도가 52%가 되도록 조정하고, 다시 10분간 혼합하였다. 이것을 감압하에서 탈포 처리하여 유동성이 좋은 이차 전지 부극용 슬러리 조성물을 얻었다.

[0162] 얻어진 이차 전지 부극용 슬러리 조성물을, 콤마 코터로, 집전체인 두께 20㎛의 구리박 상에, 건조 후의 막두께가 150㎛ 정도가 되도록 도포하고, 건조시켰다. 이 건조는, 구리박을 0.5 m/분의 속도로 60℃의 오븐 내를 2분간에 걸쳐 반송함으로써 행하였다. 그 후, 120℃에서 2분간 가열 처리하여, 프레스 전의 부극 원단을 얻었다. 이 프레스 전의 부극 원단을 롤 프레스로 압연하여, 부극 합재층의 두께가 80㎛인 프레스 후의 부극을 얻었다.

[0163] <정극의 형성>

[0164] 정극 활물질로서의 체적 평균 입자경 12㎛의 $LiCoO_2$를 100 부와, 도전재로서의 아세틸렌 블랙(덴키 화학 공업사 제조, 제품명 「HS-100」)을 2 부와, 결착재로서의 폴리불화비닐리덴(쿠레하사 제조, 제품명 「#7208」)을 고형분 상당으로 2 부와, 용매로서의 N-메틸피롤리돈을 혼합하여 전체 고형분 농도를 70%로 하였다. 이들을 플래네터리 믹서에 의해 혼합하여, 이차 전지 정극용 슬러리 조성물을 얻었다.

[0165] 얻어진 이차 전지 정극용 슬러리 조성물을, 콤마 코터로, 집전체인 두께 20㎛의 알루미늄박 상에, 건조 후의 막두께가 150㎛ 정도가 되도록 도포하고, 건조시켰다. 이 건조는, 알루미늄박을 0.5 m/분의 속도로 60℃의 오븐 내를 2분간에 걸쳐 반송함으로써 행하였다. 그 후, 120℃에서 2분간 가열 처리하여, 정극 원단을 얻었다.

[0166] 그리고, 얻어진 정극 원단을, 롤 프레스기를 사용하여 압연함으로써, 정극 합재층을 구비하는 정극을 얻었다.

[0167] <세퍼레이터의 준비>

[0168] 폴리프로필렌(PP)제의 세퍼레이터(제품명 「셀가드 2500」)를 준비하였다.

[0169] <이차 전지용 적층체의 제조>

[0170] 준비한 접착용 조성물, 부극, 정극 및 세퍼레이터를 사용하여, 도 1에 나타내는 제조 장치로 리튬 이온 이차 전지용 적층체를 제조하고, 절단하였다.

[0171] 한편, 접착 재료 공급기로는, 잉크젯 헤드(코니카 제조, KM1024(시어 모드 타입))를 구비하는 잉크젯 방식의 접착 재료 공급기를 사용하였다.

[0172] 또한, 반송 속도는 10 m/분으로 하고, 접착용 조성물은 도 2에 나타내는 스트라이프 형상(Θ: 45°, P: 200㎛, W: 30㎛)의 도공 패턴으로 공급하고, 그 밖의 제조 조건은 표 1에 나타내는 조건으로 하였다.

[0173] 한편, 공급한 접착용 조성물은, 반송 롤러의 일부에 히트 롤러를 사용함으로써 건조하였다. 그리고, 건조 후의 접착 재료를 레이저 현미경으로 관측한 결과, 접착 재료는, 미소한 도트상을 하고 있었다. 즉, 첩합면에는, 미소한 도트상의 복수의 접착 재료가 경사 스트라이프상의 패턴으로 배열되어 존재하고 있었다. 또한, 레이저 현미경으로 단면을 관찰하여 접착 재료의 평균 높이(두께) 및 최대 높이(두께)를 확인한 결과, 단면은 요철 형상을 하고 있고, 평균 높이는 1㎛이고, 최대 높이는 3㎛였다.

[0174] 그리고, 이차 전지용 적층체의 드라이 접착력을 평가하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.

[0175] <이차 전지의 제조>

[0176] 절단한 이차 전지용 적층체를 5개 중첩하고, 온도 70℃, 압력 1 MPa로 10초간 프레스하여 중첩체로 하였다.

[0177] 제작한 중첩체를 전지의 외장으로서의 알루미늄 포장재 외장으로 감싸고, 전해액(용매: 에틸렌카보네이트 / 디에틸카보네이트 / 비닐렌카보네이트 = 68.5 / 30 / 1.5(체적비), 전해질: 농도 1M의 $LiPF_6$)을 주액하였다. 그 후, 알루미늄 포장재 외장의 개구를 150℃의 히트 시일로 폐구하여, 용량 800 mAh의 적층형 리튬 이온 이차 전지를 제조하였다.

[0178] 그리고, 이차 전지의 전해액 주액성, 출력 특성, 및 사이클 특성을 평가하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.

[0179] (실시예 2)

[0180] 이차 전지용 적층체의 제조시에, 접착용 조성물을 도트 형상의 도공 패턴(직경: 50㎛, 도트 간의 거리: 200㎛)으로 공급한 것 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 접착 재료, 접착용 조성물, 부극, 정극, 세퍼레이터, 이차 전지용 적층체 및 이차 전지를 준비 또는 제조하였다. 한편, 접착 재료는, 미소한 도트상을 하고 있었다. 즉, 첩합면에는, 미소한 도트상의 복수의 접착 재료가 집합하여 이루어지는 큰 도트가 복수 존재하고 있었다. 또한, 레이저 현미경으로 접착 재료의 단면을 관찰한 결과, 단면은 요철 형상을 하고 있었다. 그리고, 실시예 1과 동일하게 하여 평가를 행하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.

[0181] (실시예 3)

[0182] 이차 전지용 적층체의 제조시에, 제조 조건을 표 1에 나타내는 바와 같이 변경한 것 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 접착 재료, 접착용 조성물, 부극, 정극, 세퍼레이터, 이차 전지용 적층체 및 이차 전지를 준비 또는 제조하였다. 한편, 접착 재료는, 미소한 도트상을 하고 있었다. 즉, 첩합면에는, 미소한 도트상의 복수의 접착 재료가 경사 스트라이프상의 패턴으로 배열되어 존재하고 있었다. 또한, 레이저 현미경으로 접착 재료의 단면을 관찰한 결과, 단면은 볼록 형상을 하고 있었다. 그리고, 실시예 1과 동일하게 하여 평가를 행하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.

[0183] (실시예 4)

[0184] 제 1 접착 재료로서, 유리 전이 온도 15℃의 단일상 구조의 입자상 중합체를 사용하고, 이차 전지용 적층체의 제조시에, 스트라이프 형상(Θ: 45°, P: 400㎛, W: 30㎛) 및 제조 조건을 표 1에 나타내는 바와 같이 변경하고, 이차 전지의 제조시에, 절단한 이차 전지용 적층체를 5개 중첩하고, 온도 40℃, 압력 1 MPa로 5초간 프레스하여 중첩체로 한 것 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 접착 재료, 접착용 조성물, 부극, 정극, 세퍼레이터, 이차 전지용 적층체 및 이차 전지를 준비 또는 제조하였다. 한편, 접착 재료는, 미소한 도트상을 하고 있었다. 즉, 첩합면에는, 미소한 도트상의 복수의 접착 재료가 경사 스트라이프상의 패턴으로 배열되어 존재하고 있었다. 또한, 레이저 현미경으로 접착 재료의 단면을 관찰한 결과, 단면은 요철 형상을 하고 있었다. 그리고, 실시예 1과 동일하게 하여 평가를 행하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.

[0185] (비교예 1)

[0186] 세퍼레이터로서, 폴리프로필렌(PP)제의 세퍼레이터(제품명 「셀가드 2500」)의 편면(세퍼레이터(21)용) 또는 양면(세퍼레이터(31)용)에 접착용 조성물을 그라비아 롤로 도트상의 도공 패턴으로 도공하고, 온도 70℃에서 열풍 건조(건조 시간: 6초)하여 이루어지는 것을 사용하고, 접착 재료 공급기(60A ~ 60D) 및 히트 롤을 갖지 않는 것 이외에는 도 1에 나타내는 제조 장치와 동일한 구성을 갖는 제조 장치를 사용하여 이차 전지용 적층체를 제조한 것 이외에는 실시예 1과 동일하게 하여, 접착 재료, 접착용 조성물, 부극, 정극, 세퍼레이터, 이차 전지용 적층체 및 이차 전지를 준비 또는 제조하였다. 한편, 접착 재료는, 미소한 도트상을 하고 있었다. 즉, 첩합면에는, 미소한 도트상의 복수의 접착 재료가 집합하여 이루어지는 큰 도트가 복수 존재하고 있었다. 또한, 레이저 현미경으로 접착 재료의 단면을 관찰한 결과, 단면은 볼록 형상을 하고 있었다. 그리고, 실시예 1과 동일하게 하여 평가를 행하였다. 결과를 표 1에 나타낸다.

[0187] 한편, 이차 전지용 적층체의 제조시에는, 롤상으로 권취한 세퍼레이터가 블로킹을 일으키고 있었기 때문에, 박리하면서 제조를 행하였다.

표 1

					실시예 1	실시예 2	실시예 3	실시예 4	비교예 1
접착용 조성물	접착 재료	제1 접착 재료	코어쉘 입자	코어부의 유리 전이 온도 [℃]	108	108	108	-	108
				쉘부의 유리 전이 온도 [℃]	-17	-17	-17	-	-17
				코어부의 직경 [%]	50	50	50	-	50
				체적 평균 입자경 [μm]	0.5	0.5	0.5	-	0.5
				D10/D50 [-]	0.8	0.8	0.8	-	0.8
				D90/D50 [-]	1.3	1.3	1.3	-	1.3
				배합량 [질량부]	100	100	100	-	100
			입자상 중합체	유리 전이 온도 [℃]	-	-	-	15	-
				체적 평균 입자경 [μm]	-	-	-	0.5	-
				D10/D50 [-]	-	-	-	0.8	-
				D90/D50 [-]	-	-	-	1.3	-
				배합량 [질량부]	-	-	-	100	-
		제2 접착 재료	S B R	유리 전이 온도 [℃]	11	11	11	11	11
				체적 평균 입자경 [μm]	0.18	0.18	0.18	0.18	0.18
				배합량 [질량부]	10	10	10	10	10
	용매				물	물	물	물	물
	고형분 농도 [질량%]				10	10	10	10	10
	점도 [mPa · s]				5	5	5	5	5
	표면 장력 [mN / m]				30	30	30	30	30
	조대 입자량 [ppm]				3	3	3	3	3
제조 조건	형성 방법				잉크젯	잉크젯	잉크젯	잉크젯	그라비아 롤
	도공 패턴				스트라이프	도트	스트라이프	스트라이프	도트
	해조 수				5	5	5	2	-
	접착 재료의 형성량 [g / m^2]				0.5	0.5	0.5	0.2	0.5
	접착 재료의 형성 형상				도트	도트	도트	도트	도트
	평균 두께 [μm]				1	1	1	1	1
	최대 두께 [μm]				3	3	2	3	1.3
	형성 면적 (1개소당) [$μm^2$]				5000	5000	5000	2000	50000
	접착 재료의 단면 형상				요철 형상	요철 형상	볼록 형상	요철 형상	볼록 형상
	건조 온도 [℃]				70	70	25	70	70
	건조 시간 [초]				1	1	6	1	6
	첩합 압력 [MPa]				1	1	1	1	1
	첩합 온도 [℃]				70	70	70	40	70
평가	드라이 접착력				A	A	B	A	C
	전해액 주액성				A	C	A	A	C
	출력 특성				A	A	A	A	A
	사이클 특성				A	A	A	A	A

[0188]

[0189] 표 1로부터, 실시예 1 ~ 4에서는, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 확보하면서 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다. 한편, 표 1로부터, 비교예 1에서는, 세퍼레이터의 블로킹에 의해 접착 재료가 박리되어, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 충분히 확보할 수 없는 동시에, 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 없는 것을 알 수 있다.

[0190] **산업상 이용가능성**

[0191] 본 발명에 의하면, 전극과 세퍼레이터의 접착력을 확보하면서 이차 전지용 적층체를 효율적으로 제조할 수 있다.

부호의 설명

[0192] 1 반송 롤러

2 프레스 롤러

10 부극 롤

11 부극

20 제 1 세퍼레이터 롤

30 제 2 세퍼레이터 롤

21, 31 세퍼레이터

40 정극 스토커

41 정극

50 절단기

60A, 60B, 60C, 60D 접착 재료 공급기

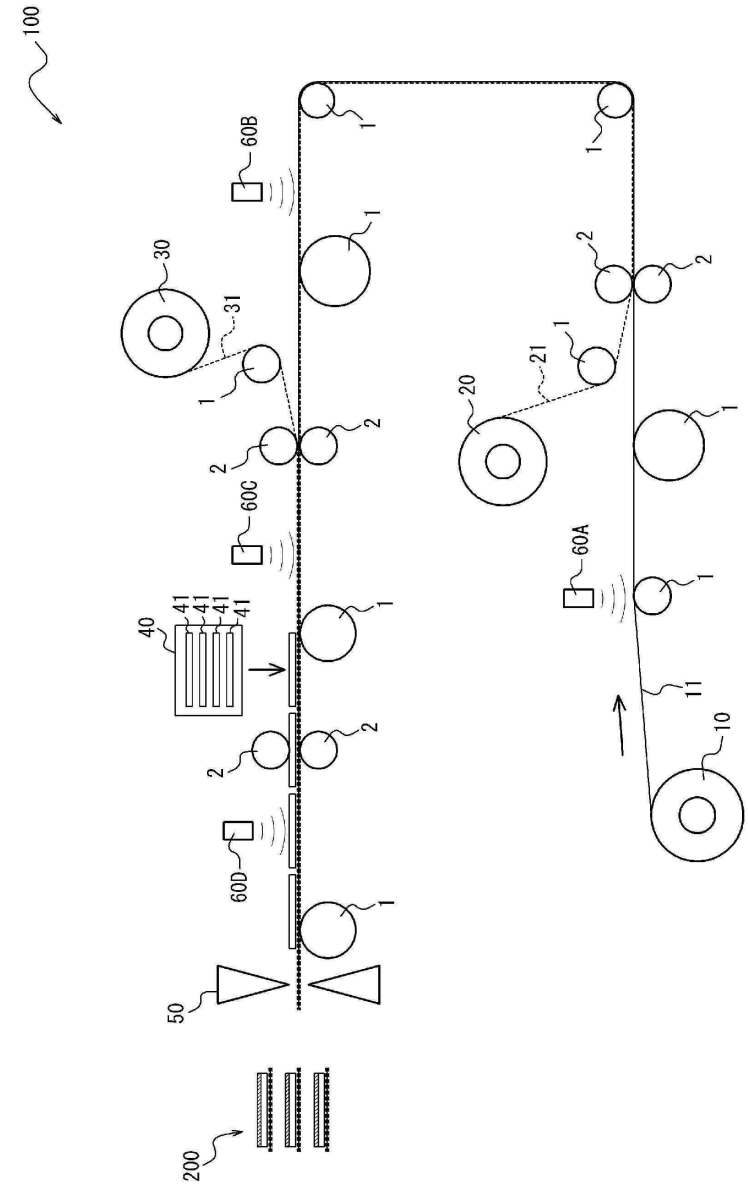
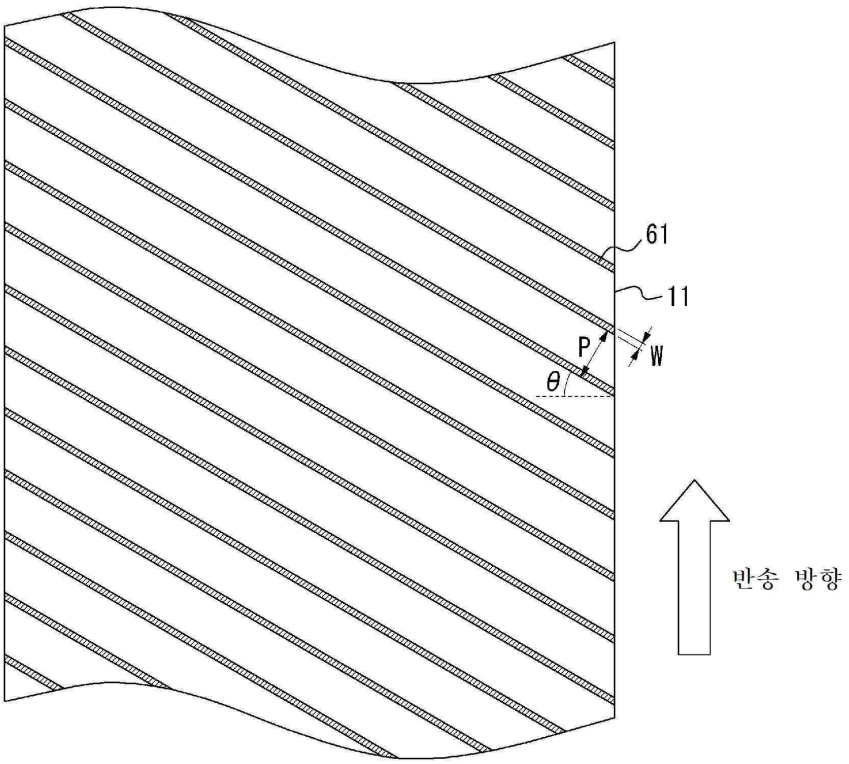
61 접착 재료

100 제조 장치

200 이차 전지용 적층체

도면

도면1



도면2