

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B1)

(11) 特許番号

特許第6863541号
(P6863541)

(45) 発行日 令和3年4月21日 (2021.4.21)

(24) 登録日 令和3年4月5日 (2021.4.5)

(51) Int.Cl.	F I
HO 1 M 50/183 (2021.01)	HO 1 M 2/08 K
HO 1 M 50/172 (2021.01)	HO 1 M 2/06 K
HO 1 M 50/543 (2021.01)	HO 1 M 2/30 D
HO 1 G 11/74 (2013.01)	HO 1 G 11/74

請求項の数 13 (全 34 頁)

(21) 出願番号	特願2020-568842 (P2020-568842)	(73) 特許権者	000002897
(86) (22) 出願日	令和2年11月9日 (2020.11.9)		大日本印刷株式会社
(86) 国際出願番号	PCT/JP2020/041773		東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号
審査請求日	令和2年12月10日 (2020.12.10)	(74) 代理人	100124431
(31) 優先権主張番号	特願2019-203559 (P2019-203559)		弁理士 田中 順也
(32) 優先日	令和1年11月8日 (2019.11.8)	(74) 代理人	100174160
(33) 優先権主張国・地域又は機関	日本国 (JP)		弁理士 水谷 馨也
早期審査対象出願		(72) 発明者	加藤 貴大
			東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号
			大日本印刷株式会社内
		(72) 発明者	望月 洋一
			東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号
			大日本印刷株式会社内
		審査官	前田 寛之
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 金属端子用接着性フィルム、金属端子用接着性フィルムの製造方法、金属端子用接着性フィルム付き金属端子、当該金属端子用接着性フィルムを用いた蓄電デバイス、及び蓄電デバイスの製造

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

蓄電デバイス素子の電極に電気的に接続された金属端子と、前記蓄電デバイス素子を封止する蓄電デバイス用外装材との間に介在される、金属端子用接着性フィルムであって、

前記金属端子用接着性フィルムは、前記金属端子側に配置される第1ポリオレフィン層と、基材と、前記蓄電デバイス用外装材側に配置される第2ポリオレフィン層とをこの順に備える積層体から構成されており、

前記基材は、ホモポリプロピレンを含み、

前記第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像に海島構造が観察され、

前記断面画像は、前記第1ポリオレフィン層の厚みを100%とした場合に、前記基材側の表面とは反対側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像であり、

前記金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaの加熱加圧環境で12秒間静置し、さらに、温度25 の環境で1時間静置した場合の前記断面画像において、前記海島構造の島部の合計面積の割合が、28.0%以上35.0%以下であり、

前記断面画像において、前記島部の粒子径偏差が、0.3以下である、金属端子用接着性フィルム。

【請求項 2】

10

20

前記断面画像において、前記島部の平均粒子径が、 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 以上である、請求項 1 に記載の金属端子用接着性フィルム。

【請求項 3】

前記断面画像において、前記島部の真円度が、 0.75 以上である、請求項 1 又は 2 に記載の金属端子用接着性フィルム。

【請求項 4】

前記第 1 ポリオレフィン層の厚みが、 $60\text{ }\mu\text{m}$ 以下である、請求項 1 ~ 3 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

【請求項 5】

前記基材の厚みが、 $60\text{ }\mu\text{m}$ 以下である、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

【請求項 6】

前記第 2 ポリオレフィン層の厚みが、 $60\text{ }\mu\text{m}$ 以下である、請求項 1 ~ 5 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

【請求項 7】

前記金属端子用接着性フィルムの厚みが、 $180\text{ }\mu\text{m}$ 以下である、請求項 1 ~ 6 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

【請求項 8】

前記第 1 ポリオレフィン層は、顔料を含む、請求項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

【請求項 9】

前記基材は、ポリオレフィン骨格を含む、請求項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

【請求項 10】

蓄電デバイス素子の電極に電気的に接続された金属端子と、前記蓄電デバイス素子を封止する蓄電デバイス用外装材との間に介在される、金属端子用接着性フィルムの製造方法であって、

前記金属端子用接着性フィルムは、前記金属端子側に配置される第 1 ポリオレフィン層と、基材と、前記蓄電デバイス用外装材側に配置される第 2 ポリオレフィン層とをこの順に備える積層体から構成されており、

前記基材は、ホモポリプロピレンを含み、

前記第 1 ポリオレフィン層、前記基材、及び前記第 2 ポリオレフィン層をこの順に備える積層体を得る工程を備えており、

前記第 1 ポリオレフィン層の TD に平行な方向かつ厚み方向の断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像に海島構造が観察され、

前記断面画像は、前記第 1 ポリオレフィン層の厚みを 100% とした場合に、前記基材側の表面とは反対側の表面から 30% の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像であり、

前記金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 0.016 MPa の加熱加圧環境で 12 秒間静置し、さらに、温度 25 の環境で 1 時間静置した場合の前記断面画像において、前記海島構造の島部の合計面積の割合が、 28.0% 以上 35.0% 以下であり、

前記断面画像において、前記島部の粒子径偏差が、 0.3 以下である、金属端子用接着性フィルムの製造方法。

【請求項 11】

金属端子に、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルムが取り付けられてなる、金属端子用接着性フィルム付き金属端子。

【請求項 12】

少なくとも、正極、負極、及び電解質を備えた前記蓄電デバイス素子と、当該蓄電デバイス素子を封止する前記蓄電デバイス用外装材と、前記正極及び前記負極のそれぞれに電

10

20

30

40

50

氣的に接続され、前記蓄電デバイス用外装材の外側に突出した前記金属端子とを備える蓄電デバイスであって、

前記金属端子と前記蓄電デバイス用外装材との間に、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルムが介在されてなる、蓄電デバイス。

【請求項 1 3】

少なくとも、正極、負極、及び電解質を備えた前記蓄電デバイス素子と、当該蓄電デバイス素子を封止する前記蓄電デバイス用外装材と、前記正極及び前記負極のそれぞれに電氣的に接続され、前記蓄電デバイス用外装材の外側に突出した前記金属端子とを備える蓄電デバイスの製造方法であって、

前記金属端子と前記蓄電デバイス用外装材との間に、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルムを介在させて、前記蓄電デバイス素子を前記蓄電デバイス用外装材で封止する工程を備える、蓄電デバイスの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、金属端子用接着性フィルム、金属端子用接着性フィルムの製造方法、金属端子用接着性フィルム付き金属端子、金属端子用接着性フィルムを用いた蓄電デバイス、及び蓄電デバイスの製造方法に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、様々なタイプの蓄電デバイスが開発されているが、あらゆる蓄電デバイスにおいて電極や電解質等の蓄電デバイス素子を封止するために蓄電デバイス用外装材が不可欠な部材になっている。従来、蓄電デバイス用外装材として金属製の蓄電デバイス用外装材が多用されていたが、近年、電気自動車、ハイブリッド電気自動車、パソコン、カメラ、携帯電話等の高性能化に伴い、蓄電デバイスには、多様な形状が要求されると共に、薄型化や軽量化が求められている。しかしながら、従来多用されていた金属製の蓄電デバイス用外装材では、形状の多様化に追従することが困難であり、しかも軽量化にも限界があるという欠点がある。

【0003】

そこで、近年、多様な形状に加工が容易で、薄型化や軽量化を実現し得る蓄電デバイス用外装材として、基材層／接着層／バリア層／熱融着性樹脂層が順次積層された積層シートが提案されている。このようなフィルム状の蓄電デバイス用外装材を用いる場合、蓄電デバイス用外装材の最内層に位置する熱融着性樹脂層同士を対向させた状態で、蓄電デバイス用外装材の周縁部をヒートシールにて熱融着させることにより、蓄電デバイス用外装材によって蓄電デバイス素子が封止される。

【0004】

蓄電デバイス用外装材のヒートシール部分からは、金属端子が突出しており、蓄電デバイス用外装材によって封止された蓄電デバイス素子は、蓄電デバイス素子の電極に電氣的に接続された金属端子によって外部と電氣的に接続される。すなわち、蓄電デバイス用外装材がヒートシールされた部分のうち、金属端子が存在する部分は、金属端子が熱融着性樹脂層に挟持された状態でヒートシールされている。金属端子と熱融着性樹脂層とは、互いに異種材料により構成されているため、金属端子と熱融着性樹脂層との界面において、密着性が低下しやすい。

【0005】

このため、金属端子と熱融着性樹脂層との間には、これらの密着性を高めることなどを目的として、接着性フィルムが配されることがある。このような接着性フィルムとしては、例えば特許文献 1 に記載されたものが挙げられる。

【先行技術文献】

【特許文献】

10

20

30

40

50

【 0 0 0 6 】

【特許文献 1】特開 2 0 1 5 - 7 9 6 3 8 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 7 】

このような接着性フィルムには、ヒートシールした際の金属端子との優れた密着性が求められる。

【 0 0 0 8 】

さらに、接着性フィルムには、包装材料によって封止されている電解液が接着性フィルムに接触した場合にも、金属端子に対する密着性の低下が好適に抑制されていることが求められる。

10

【 0 0 0 9 】

しかしながら、従来の接着性フィルムは、電解液が接触した場合の金属端子に対する密着性について十分に検討されておらず、本開示の発明者等は、ヒートシールによる接着性フィルムの金属端子への優れた密着性に加えて、金属端子に密着した接着性フィルムに対して電解液が付着した場合において、金属端子に対する密着性の低下を抑制することを追求した。

【 0 0 1 0 】

本開示は、ヒートシールによる接着性フィルムの金属端子への密着性に優れ、さらに、金属端子に密着した接着性フィルムに対して電解液が付着した場合にも、金属端子に対する密着性の低下が好適に抑制された、金属端子用接着性フィルムを提供することを主な目的とする。さらに、本開示は、当該金属端子用接着性フィルムの製造方法、当該金属端子用接着性フィルムを利用した金属端子用接着性フィルム付き金属端子、当該金属端子用接着性フィルムを用いた蓄電デバイス及び当該蓄電デバイスの製造方法を提供することも目的とする。

20

【課題を解決するための手段】

【 0 0 1 1 】

本開示の発明者等は、上記の課題を解決すべく鋭意検討を行った。その結果、金属端子側に配置される第 1 ポリオレフィン層と、基材と、蓄電デバイス用外装材側に配置される第 2 ポリオレフィン層とをこの順に備える積層体から構成された金属端子用接着性フィルムであって、金属端子用接着性フィルムを温度 1 9 0 及び面圧 0 . 0 1 6 M P a の加熱加圧環境で 1 2 秒間静置し、さらに、温度 2 5 の環境で 1 時間静置した後（ヒートシール時の一般的な加熱条件である）の第 1 ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分の断面画像において、海島構造の島部の合計面積の割合が所定範囲内にることにより、ヒートシールによる接着性フィルムの金属端子への密着性に優れ、さらに、ヒートシールによって金属端子に密着した接着性フィルムに対して電解液が付着した場合にも、金属端子に対する密着性の低下が好適に抑制されることを見出した。本開示は、かかる知見に基づいて更に検討を重ねることにより完成したものである。

30

【 0 0 1 2 】

即ち、本開示は、下記に掲げる態様の発明を提供する。

40

蓄電デバイス素子の電極に電氣的に接続された金属端子と、前記蓄電デバイス素子を封止する蓄電デバイス用外装材との間に介在される、金属端子用接着性フィルムであって、

前記金属端子用接着性フィルムは、前記金属端子側に配置される第 1 ポリオレフィン層と、基材と、前記蓄電デバイス用外装材側に配置される第 2 ポリオレフィン層とをこの順に備える積層体から構成されており、

前記第 1 ポリオレフィン層の T D (T r a n s v e r s e D i r e c t i o n) に平行な方向かつ厚み方向の断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像に海島構造が観察され、

前記断面画像は、前記第 1 ポリオレフィン層の厚みを 1 0 0 % とした場合に、前記基材側の表面とは反対側の表面から 3 0 % の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像であ

50

り、

前記金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 0.016 MPa の加熱加圧環境で 12 秒間静置し、さらに、温度 25 の環境で 1 時間静置した後の前記断面画像において、前記海島構造の島部の合計面積の割合が、25.0% 以上 35.0% 以下である、金属端子用接着性フィルム。

【発明の効果】

【0013】

本開示によれば、ヒートシールによる接着性フィルムの金属端子への密着性に優れ、さらに、ヒートシールによって金属端子に密着した接着性フィルムに対して電解液が付着した場合にも、金属端子に対する密着性の低下が好適に抑制された、金属端子用接着性フィルムを提供することができる。さらに、本開示は、当該金属端子用接着性フィルムの製造方法、当該金属端子用接着性フィルムを利用した金属端子用接着性フィルム付き金属端子、当該金属端子用接着性フィルムを用いた蓄電デバイス及び当該蓄電デバイスの製造方法を提供することも目的とする。

【図面の簡単な説明】

【0014】

【図1】本開示の蓄電デバイスの略図的平面図である。

【図2】図1の線A-A'における略図的断面図である。

【図3】図1の線B-B'における略図的断面図である。

【図4】本開示の金属端子用接着性フィルムの略図的断面図である。

【図5】本開示の金属端子用接着性フィルムの略図的断面図である。

【図6】本開示の蓄電デバイス用外装材の略図的断面図である。

【図7】実施例において、2枚の接着性フィルムの間に、金属端子を挟み、熱融着させることで得た接着性フィルム/金属端子/接着性フィルムの積層体（金属端子用接着性フィルム付き金属端子）の模式的断面図である。

【図8】実施例1で得られた金属端子用接着性フィルムの第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面（金属端子側（基材とは反対側）の表面部分）について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像（画像処理ソフトで二値化したもの）である。第1ポリオレフィン層の基材側の表面とは反対側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像である。左側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016 MPaで12秒間加熱する前のものであり、右側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016 MPaで12秒間加熱した後のものである。

【図9】実施例1で得られた金属端子用接着性フィルムの第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面（基材側の表面部分）について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像（画像処理ソフトで二値化したもの）である。第1ポリオレフィン層の基材側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像である。左側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016 MPaで12秒間加熱する前のものであり、右側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016 MPaで12秒間加熱した後のものである。

【図10】比較例1で得られた金属端子用接着性フィルムの第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面（金属端子側（基材とは反対側）の表面部分）について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像（画像処理ソフトで二値化したもの）である。第1ポリオレフィン層の基材側の表面とは反対側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像である。左側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016 MPaで12秒間加熱する前のものであり、右側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016 MPaで12秒間加熱した後のものである。

【図11】比較例1で得られた金属端子用接着性フィルムの第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面（基材側の表面部分）について、電界放出形走査型電子

10

20

30

40

50

顕微鏡を用いて取得した断面画像（画像処理ソフトで二値化したもの）である。第1ポリオレフィン層の基材側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像である。左側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前のものであり、右側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後のものである。

【図12】比較例2で得られた金属端子用接着性フィルムの第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面（金属端子側（基材とは反対側）の表面部分）について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像（画像処理ソフトで二値化したもの）である。第1ポリオレフィン層の基材側の表面とは反対側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像である。左側の断面画像は、第1ポリオレフィン層を温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前のものであり、右側の断面画像は、第1ポリオレフィン層を温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後のものである。

10

【図13】比較例2で得られた金属端子用接着性フィルムの第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面（基材側の表面部分）について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像（画像処理ソフトで二値化したもの）である。第1ポリオレフィン層の基材側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像である。左側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前のものであり、右側の断面画像は、金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後のものである。

20

【図14】金属端子用接着性フィルムの製造ラインにおけるMD、TD、厚み方向（y）を示す模式図である。

【発明を実施するための形態】

【0015】

本開示の金属端子用接着性フィルムは、蓄電デバイス素子の電極に電氣的に接続された金属端子と、前記蓄電デバイス素子を封止する蓄電デバイス用外装材との間に介在される、金属端子用接着性フィルムであって、前記金属端子用接着性フィルムは、前記金属端子側に配置される第1ポリオレフィン層と、基材と、前記蓄電デバイス用外装材側に配置される第2ポリオレフィン層とをこの順に備える積層体から構成されており、前記第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像に海島構造が観察され、前記断面画像は、前記第1ポリオレフィン層の厚みを100%とした場合に、前記基材側の表面とは反対側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像であり、前記金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の前記断面画像において、前記海島構造の島部の合計面積の割合が、25.0%以上35.0%以下であることを特徴とする。

30

【0016】

本開示の金属端子用接着性フィルムは、金属端子側に配置される第1ポリオレフィン層の表面部分の断面画像（具体的には、第1ポリオレフィン層の厚みを100%とした場合に、基材側の表面とは反対側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像）であって、金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の断面画像において、海島構造の島部の合計面積の割合が、25.0%以上35.0%以下に設定されているため、ヒートシールによる接着性フィルムの金属端子への密着性に優れ、さらに、ヒートシールによって金属端子に密着した接着性フィルムに対して電解液が付着した場合にも、金属端子に対する密着性の低下が好適に抑制される。

40

【0017】

また、本開示の蓄電デバイスは、少なくとも、正極、負極、及び電解質を備えた蓄電デバイス素子と、当該蓄電デバイス素子を封止する蓄電デバイス用外装材と、前記正極及び前記負極のそれぞれに電氣的に接続され、前記蓄電デバイス用外装材の外側に突出した金

50

属端子とを備える蓄電デバイスであって、金属端子と蓄電デバイス用外装材との間に、本開示の金属端子用接着性フィルムが介在されてなることを特徴とする。以下、本開示の金属端子用接着性フィルム及びその製造方法、当該金属端子用接着性フィルムを用いた蓄電デバイス及びその製造方法について詳述する。

【0018】

なお、本明細書において、数値範囲については、「～」で示される数値範囲は「以上」、「以下」を意味する。例えば、2～15mmとの表記は、2mm以上15mm以下を意味する。

【0019】

また、金属端子用接着性フィルムのMDの確認方法として、金属端子用接着性フィルムの断面（例えば、第1ポリオレフィン層、基材、又は第2ポリオレフィン層の断面）を電子顕微鏡で観察し海島構造を確認する方法がある。当該方法においては、金属端子用接着性フィルムの厚み方向に対して垂直な方向の島の形状の径の平均が最大であった断面と平行な方向を、MDと判断することができる。具体的には、金属端子用接着性フィルムの長さ方向の断面と、当該長さ方向の断面と平行な方向から10度ずつ角度を変更し、長さ方向の断面に対して垂直な方向までの各断面（合計10の断面）について、それぞれ、電子顕微鏡写真で観察して海島構造を確認する。次に、各断面において、それぞれ、個々の島の形状を観察する。個々の島の形状について、金属端子用接着性フィルムの厚み方向に対して垂直方向の最左端と、当該垂直方向の最右端とを結ぶ直線距離を径yとする。各断面において、島の形状の当該径yが大きい順に上位20個の径yの平均を算出する。島の形状の当該径yの平均が最も大きかった断面と平行な方向をMDと判断する。

【0020】

1. 金属端子用接着性フィルム

本開示の金属端子用接着性フィルムは、蓄電デバイス素子の電極に電気的に接続された金属端子と、蓄電デバイス素子を封止する蓄電デバイス用外装材との間に介在されるものである。具体的には、例えば図1から図3に示されるように、本開示の金属端子用接着性フィルム1は、蓄電デバイス素子4の電極に電気的に接続されている金属端子2と、蓄電デバイス素子4を封止する蓄電デバイス用外装材3との間に介在されている。また、金属端子2は、蓄電デバイス用外装材3の外側に突出しており、ヒートシールされた蓄電デバイス用外装材3の周縁部3aにおいて、金属端子用接着性フィルム1を介して、蓄電デバイス用外装材3に挟持されている。なお、本開示において、蓄電デバイス用外装材をヒートシールする際の加熱温度としては、通常160～190程度の範囲、圧力としては、通常1.0～2.0MPa程度の範囲である。なお、接着性フィルムを介して金属端子と蓄電デバイス用外装材とを接着する工程では、例えば、金属端子への仮接着工程及び本接着工程というように、複数回の加熱及び加圧が行われることが一般的である。仮接着工程は、金属端子への接着性フィルムへの仮止めや気泡抜きを行う工程であり、本接着工程は、仮接着工程よりも高温条件で1回又は複数回の加熱・加圧を行って接着性フィルムを金属端子に接着させる工程である。金属端子用接着性フィルムの金属端子への仮接着工程は、例えば、温度140～160程度の範囲、圧力0.01～1.0MPa程度、時間3～15秒間程度、回数3～6回程度の条件で行われ、本接着工程は、例えば、温度160～240程度の範囲、圧力0.01～1.0MPa程度、時間3～15秒間程度、回数1～3回程度の条件で行われる。

【0021】

本開示の金属端子用接着性フィルム1は、金属端子2と蓄電デバイス用外装材3との密着性を高めるために設けられている。金属端子2と蓄電デバイス用外装材3との密着性が高められることにより、蓄電デバイス素子4の密封性が向上する。上述のとおり、蓄電デバイス素子4をヒートシールする際には、蓄電デバイス素子4の電極に電気的に接続された金属端子2が蓄電デバイス用外装材3の外側に突出するようにして、蓄電デバイス素子が封止される。このとき、金属により形成された金属端子2と、蓄電デバイス用外装材3の最内層に位置する熱融着性樹脂層35（ポリオレフィンなどの熱融着性樹脂により形成

された層)とは異種材料により形成されているため、このような接着性フィルムを用いない場合には、金属端子2と熱融着性樹脂層35との界面において、蓄電デバイス素子の密封性が低くなりやすい。

【0022】

本開示の金属端子用接着性フィルム1は、図4及び図5に示すように、少なくとも、第1ポリオレフィン層12aと、基材11と、第2ポリオレフィン層12bとがこの順に積層された構成を含んでいる。第1ポリオレフィン層12aが金属端子2側に配置される。また、第2ポリオレフィン層12bが、蓄電デバイス用外装材3側に配置される。本開示の金属端子用接着性フィルム1においては、両面側の表面に、それぞれ第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bが位置している。

10

【0023】

本開示の金属端子用接着性フィルム1において、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bは、それぞれ、ポリオレフィン系樹脂を含む層である。ポリオレフィン系樹脂としては、ポリオレフィン、酸変性ポリオレフィンなどが挙げられる。第1ポリオレフィン層12aは、ポリオレフィン系樹脂の中でも、酸変性ポリオレフィンを含むことが好ましく、酸変性ポリオレフィンにより形成された層であることがより好ましい。また、第2ポリオレフィン層12bは、ポリオレフィン系樹脂の中でも、ポリオレフィンまたは酸変性ポリオレフィンを含むことが好ましく、ポリオレフィンを含むことがより好ましく、ポリオレフィンにより形成された層であることがさらに好ましい。蓄電デバイス用外装材3側に配置される第2ポリオレフィン層12bを形成する樹脂は、蓄電デバイス用外装材3の熱融着性樹脂層35を形成する樹脂と同じ樹脂とすることによって、本開示の金属端子用接着性フィルム1と蓄電デバイス用外装材との密着性が高められる。

20

【0024】

また、基材11は、ポリオレフィン系樹脂を含むことが好ましく、ポリオレフィンを含むことが好ましく、ポリオレフィンにより形成された層であることがさらに好ましい。

【0025】

第1ポリオレフィン層12a、第2ポリオレフィン層12b及び基材11において、それぞれ、ポリオレフィン系樹脂は、ポリプロピレン系樹脂であることが好ましく、ポリオレフィンは、ポリプロピレンであることが好ましく、酸変性ポリオレフィンは、酸変性ポリプロピレンであることが好ましい。なお、ポリオレフィン、酸変性ポリオレフィンなどのポリオレフィン系樹脂には、公知の添加剤や後述する充填剤、顔料などが含まれていてもよい。

30

【0026】

本開示の金属端子用接着性フィルム1の好ましい積層構成の具体例としては、酸変性ポリプロピレンにより形成された第1ポリオレフィン層/ポリプロピレンにより形成された基材/ポリプロピレンにより形成された第2ポリオレフィン層がこの順に積層された3層構成;酸変性ポリプロピレンにより形成された第1ポリオレフィン層/ポリプロピレンにより形成された基材/酸変性ポリプロピレンにより形成された第2ポリオレフィン層がこの順に積層された3層構成などが挙げられ、これらの中でも、酸変性ポリプロピレンにより形成された第1ポリオレフィン層/ポリプロピレンにより形成された基材/ポリプロピレンにより形成された第2ポリオレフィン層がこの順に積層された3層構成が特に好ましい。

40

【0027】

第1ポリオレフィン層12a、第2ポリオレフィン層12b及び基材11を構成する素材の詳細については、後述する。

【0028】

蓄電デバイス10の金属端子2と蓄電デバイス用外装材3との間に、本開示の金属端子用接着性フィルム1が配置されると、金属により構成された金属端子2の表面と、蓄電デバイス用外装材3の熱融着性樹脂層35(ポリオレフィンなどの熱融着性樹脂により形成された層)とが、金属端子用接着性フィルム1を介して接着される。金属端子用接着性フ

50

フィルム 1 の第 1 ポリオレフィン層 1 2 a が金属端子 2 側に配置され、第 2 ポリオレフィン層 1 2 b が蓄電デバイス用外装材 3 側に配置され、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a が金属端子 2 と密着し、第 2 ポリオレフィン層 1 2 b が蓄電デバイス用外装材 3 の熱融着性樹脂層 3 5 と密着する。

【 0 0 2 9 】

本開示の金属端子用接着性フィルム 1 において、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a の T D に平行な方向かつ厚み方向の断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像に海島構造が観察される。当該断面画像は、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a の厚みを 1 0 0 % とした場合に、基材 1 1 側の表面とは反対側の表面から 3 0 % の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像である。また、金属端子用接着性フィルムを温度 1 9 0 及び面圧 0 . 0 1 6 M P a で 1 2 秒間加熱した後に取得した当該断面画像において、海島構造の島部の合計面積の割合が、2 5 . 0 ~ 3 5 . 0 % である。なお、金属端子用接着性フィルムを温度 1 9 0 及び面圧 0 . 0 1 6 M P a で 1 2 秒間加熱する方法については、後述する実施例の密着強度の測定と同様にして、1 9 0 に加熱されたホットプレートで 1 2 秒間加熱する方法を採用する。

【 0 0 3 0 】

なお、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a の厚みを 1 0 0 % とした場合に、基材 1 1 側の表面とは反対側の表面から 3 0 % の厚みの部分までの範囲内を、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a の基材 1 1 側の表面とは反対側の表面部分（又は第 1 ポリオレフィン層 1 2 a の金属端子 2 側の表面部分）などと省略して表記することがある。同様に、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a の厚みを 1 0 0 % とした場合に、基材 1 1 側の表面から 3 0 % の厚みの部分までの範囲内を、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a の基材 1 1 側の表面部分などと省略して表記することがある。

【 0 0 3 1 】

当該海島構造の島部の合計面積の割合は、2 5 . 0 ~ 3 5 . 0 % の範囲にあればよいが、ヒートシールによる接着性フィルムの金属端子への密着性に特に優れ、さらに、ヒートシールによって金属端子に密着した接着性フィルムに対して電解液が付着した場合にも、金属端子に対する密着性の低下がより好適に抑制されることから、当該海島構造の島部の合計面積の割合は、好ましくは約 2 6 . 0 % 以上、さらに好ましくは約 2 8 . 0 % 以上である。また、当該海島構造の島部の合計面積の割合は、好ましくは約 3 2 . 0 % 以下であり、より好ましくは約 3 0 . 0 % 以下である。当該海島構造の島部の合計面積の割合の好ましい範囲としては、2 6 . 0 ~ 3 2 . 0 % 程度、2 6 . 0 ~ 3 0 . 0 % 程度、2 8 . 0 ~ 3 5 . 0 % 程度、2 8 . 0 ~ 3 2 . 0 % 程度、2 8 . 0 ~ 3 0 . 0 % 程度である。

【 0 0 3 2 】

第 1 ポリオレフィン層の断面画像における海島構造の観察は、以下のようにして行う。

【 0 0 3 3 】

< 断面画像における海島構造の観察 >

熱硬化性のエポキシ樹脂内に金属端子用接着性フィルムを包埋し硬化させる。市販品の回転式マイクロトーム（例えば、L E I C A 製 U C 6 ）と、ダイヤモンドナイフを用いて目的とする方向の断面（T D に沿った断面）を作製し、その際、液体窒素を用いたクライオマイクロトームにて、- 7 0 にて断面作製を行う。包埋樹脂ごと四酸化ルテニウムにて一晩染色する。染色すると、ポリプロピレンが膨張するため、膨張部分をマイクロトームでトリミングし、M D の方向に向かって 1 0 0 n m から 3 0 0 n m ずつ切り進め、合計で 1 μ m から 2 μ m ほど切断したところで、露出している断面を次のようにして観察する。染色した断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡（例えば、日立ハイテクノロジーズ社製 S - 4 8 0 0 T Y P E 1 , 測定条件：3 k V 2 0 m A H i g h W D 6 m m 検出器（U p p e r ））で観測して画像（倍率は 1 0 0 0 0 倍）を取得する。なお、断面画像は、第 1 ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分（第 1 ポリオレフィン層の厚みを 1 0 0 % とした場合に、基材側の表面とは反対側の表面から 3 0 % の厚みの部分までの範囲内である。図 4 を参照。）について取得する。なお、第 1 ポリオレフィン層の基材側の

表面部分（第1ポリオレフィン層の厚みを100%とした場合に、基材側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内）についても、観察箇所を変更することにより、同様にして断面画像を取得することができる。次に、画像を二値化できる画像処理ソフト（例えば、三谷商事製画像解析ソフトWinROOF（Ver7.4）を用い、当該画像について、海島構造の島の部分と海の部分とを二値化して、島部の個数、島部の合計面積の割合（島部の合計面積／画像の測定範囲の面積）、島部の平均粒子径、島部の粒子径偏差 σ 、及び島部の真円度などが求められる。

【0034】

実施例1及び比較例1, 2における二値化した断面画像を、それぞれ図8～図13に示す。図8が実施例1の第1ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分であり、図9が実施例1の第1ポリオレフィン層の基材側の表面部分であり、図10が比較例1の第1ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分であり、図11が比較例1の第1ポリオレフィン層の基材側の表面部分であり、図12が比較例2の第1ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分であり、図13が比較例2の第1ポリオレフィン層の基材側の表面部分である。また、図8～図13のそれぞれにおいて、左側の画像が、金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前のものであり、右側の画像が、金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後（後述の密着強度の測定と同様にして、190℃に加熱されたホットプレートで金属端子用接着性フィルムを面圧0.016MPaの条件で12秒間加熱（第1ポリオレフィン層側がホットプレート側となるように加熱）した後）のものである。なお、本測定では、島部分が海部分よりも染色されたため、島部分が海部分よりも明るく観察された。

〔画像処理条件〕

画像処理は、画像解析ソフトImageJを用いて行うことができる。具体的には、SEM画像をグレースケール画像（JPEG形式など）のデジタルファイルとして取得し、下記の二値化処理手順とパラメーターに沿って処理を行い、閾値以上の階調（明るい）のピクセルを1、閾値未満の階調（暗い）のピクセルを0として出力し、各々を島部、海部と規定する。

<二値化処理>

1. スパイクノイズ除去（Despeckle）
2. 島部の輪郭除去（Remove Outliers radius = 4 threshold = 1 which = Bright）
3. 海部の輪郭除去（Remove Outliers radius = 4 threshold = 1 which = Dark）
4. スパイクノイズ除去（Despeckle）
5. X軸（サンプル短手）方向にガウスぼかし（閾値 = 3ピクセル）
6. コントラスト強調（saturated = 0.2）
7. 島部の輪郭除去（Remove Outliers radius = 4 threshold = 1 which = Bright）
8. 海部の輪郭除去（Remove Outliers radius = 4 threshold = 1 which = Dark）
9. 大津の二値化

【0035】

前記の島部の平均粒子径は、画像解析ソフトImageJにより二値化後の画像の島部の最大フェレ径から算出される値である。また、前記の島部の粒子径偏差 σ は、上記平均粒子径の標準偏差により算出される値である。また、前記の島部の真円度は、画像解析ソフトImageJにより二値化後の画像の島部を同心の2つの幾何学的円で挟んだとき、同心円の間隔が最小となる場合の、2つの同心円の半径の差で算出される値である。

【0036】

前記の断面画像は、例えば図4の模式図に示すように、第1ポリオレフィン層12aの合計厚みを100%とした場合に、金属端子側（基材11とは反対側）の表面から30%

の厚みの部分までの範囲内（図4のクロスハッチングが付された領域）で取得した断面画像である。第1ポリオレフィン層12aの基材11とは反対側の表面が、厚み0%となる。具体例で説明すると、例えば後述の実施例1のように、第1ポリオレフィン層（厚さ50 μ m）/基材（厚さ50 μ m）/第2ポリオレフィン層（厚さ50 μ m）が順に積層された金属端子用接着性フィルムであれば、第1ポリオレフィン層の厚さ50 μ mを100%とする。また、第1ポリオレフィン層12aの基材11とは反対側の表面の位置の厚さを0%とする。そして、当該表面（厚み0%）から厚み30%の位置（すなわち、50 μ mを100%として、厚み30%の位置は、第1ポリオレフィン層の基材層側とは反対側の表面から基材側に向かって厚みが15 μ mの位置）までの範囲内で、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて断面画像を取得する。

10

【0037】

また、断面画像に海島構造が観察されるとは、断面画像に海の部分（海部）と島の部分（島部）とが観察されることをいう。例えば、第1ポリオレフィン層12aを形成する樹脂組成物として、酸変性ポリプロピレンに対して少量のポリエチレンを添加し、溶融押出成形によって第1ポリオレフィン層12aを形成すると、酸変性ポリプロピレンの海部に、ポリエチレンの島部が分散した海島構造が形成される。なお、当該海島構造を観察するには、前述の通り、第1ポリオレフィン層12aの断面を四酸化ルテニウムなどで染色し、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて断面画像を取得して観察する。

【0038】

本開示の金属端子用接着性フィルム1においては、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の金属端子側の表面部分（具体的には、金属端子側（基材11とは反対側）の表面から30%の厚みの部分）の前記断面画像において、海島構造の島部の合計面積の割合が、25.0~35.0%である。本開示の金属端子用接着性フィルム1は、このような特徴を備えていることにより、ヒートシールによる接着性フィルムの金属端子への密着性に優れ、さらに、ヒートシールによって金属端子に密着した接着性フィルムに対して電解液が付着した場合にも、金属端子に対する密着性の低下が好適に抑制される。より具体的には、本開示の金属端子用接着性フィルム1の金属端子側に配置される第1ポリオレフィン層12aにおいて、金属端子2側の表面部分の海島構造の島部（島部は、例えば、第1ポリオレフィン層12aを柔軟にし、密着性を向上させる一方、耐電解液性についてはやや劣る、ポリエチレンによって主に形成される）の合計面積が25.0~35.0%という適切な範囲に設定されていることにより、金属端子に対する優れた密着性を担保しつつ、電解液の浸透が好適に抑制され、結果として、電解液が付着した場合の金属端子に対する密着性の低下が抑制されていると考えられる。金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の金属端子側の表面部分は、第1ポリオレフィン層12aがヒートシールによって金属端子2に密着した後の表面部分に相当しており、本開示の金属端子用接着性フィルム1においては、第1ポリオレフィン層12aのヒートシール後の金属端子2側の表面部分の海島構造の島部の合計面積の割合が25.0~35.0%という適切な範囲に設定されているといえる。

20

30

【0039】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、第1ポリオレフィン層12aの厚みを100%とした場合に、基材11側の表面部分（具体的には、基材11側の表面から30%の厚みの部分）までの範囲内で取得した断面画像であって、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の当該断面画像においても、通常、海島構造が観察される。基材11側の表面部分の断面画像における、海島構造の島部の合計面積の割合としては、特に制限されないが、好ましくは約25.0%以上、より好ましくは約30.0%以上である。また、当該島部の合計面積の割合としては、好ましくは約35.0%以下、より好ましくは約33.0%以下である。当該島部の合計面積の割合の好ましい範囲としては、25.0~35.0%程度、25.0~33.0%程度、30.0~35.0%程度、30.0~33.0%程度である。なお、金属端

40

50

子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する方法については、前記のとおり、後述する実施例の密着強度の測定と同様にして、190 に加熱されたホットプレートで12秒間加熱する方法を採用する。

【0040】

本開示の金属端子用接着性フィルム1は、例えば、金属端子用接着性フィルム1を温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の金属端子2側の表面部分の前記断面画像における海島構造の島部の合計面積の割合が、基材11側の表面部分の前記断面画像における海島構造の島部の合計面積の割合よりも小さくてもよいし、大きくてもよいが、同程度であることが望ましい。すなわち、本開示の金属端子用接着性フィルム1においては、金属端子2側の表面部分の方が、基材11側の表面部分よりも、島部の合計面積の割合が小さくてもよいし、大きくてもよいが、同程度であることが望ましい。また、金属端子用接着性フィルム1を温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前後において、金属端子2側の表面部分の前記断面画像における海島構造の島部の合計面積の割合は同程度であることが好ましく、また、基材11側の表面部分の前記断面画像における海島構造の島部の合計面積の割合は、同程度であることが好ましい。

10

【0041】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、第1ポリオレフィン層12aの厚みを100%とした場合に、金属端子2側の表面部分（具体的には、基材11とは反対側の表面から30%の厚みの部分）までの範囲内で取得した断面画像であって、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前の当該断面画像においても、通常、海島構造が観察される。加熱前の第1ポリオレフィン層12aの金属端子2側の表面部分の断面画像における、海島構造の島部の合計面積の割合としては、特に制限されないが、好ましくは約22.0%以上、より好ましくは約24.0%以上である。また、当該島部の合計面積の割合としては、好ましくは約32.0%以下、より好ましくは約28.0%以下である。当該島部の合計面積の割合の好ましい範囲としては、22.0~32.0%程度、22.0~28.0%程度、24.0~32.0%程度、24.0~28.0%程度である。

20

【0042】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、第1ポリオレフィン層12aの厚みを100%とした場合に、基材11側の表面部分（具体的には、基材11側の表面から30%の厚みの部分）までの範囲内で取得した断面画像であって、第1ポリオレフィン層12aを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前の当該断面画像においても、通常、海島構造が観察される。加熱前の第1ポリオレフィン層12aの基材11側の表面部分の断面画像における、海島構造の島部の合計面積の割合としては、特に制限されないが、好ましくは約26.0%以上、より好ましくは約28.0%以上である。また、当該島部の合計面積の割合としては、好ましくは約35.0%以下、より好ましくは約32.0%以下である。当該島部の合計面積の割合の好ましい範囲としては、26.0~35.0%程度、26.0~32.0%程度、28.0~35.0%程度、28.0~32.0%程度である。

30

【0043】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の金属端子2側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の平均粒子径としては、好ましくは約0.3μm以上、より好ましくは約0.4μm以上である。また、当該島部の平均粒子径は、好ましくは約0.6μm以下、より好ましくは約0.5μm以下である。また、当該島部の平均粒子径の好ましい範囲としては、0.3~0.6μm程度、0.3~0.5μm程度、0.4~0.6μm程度、0.4~0.5μm程度が挙げられる。

40

【0044】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の基材11側の表面部分の前

50

記断面画像において、海島構造の島部の平均粒子径としては、好ましくは約 $0.3\ \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは約 $0.4\ \mu\text{m}$ 以上である。また、当該島部の平均粒子径は、好ましくは約 $0.6\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは約 $0.5\ \mu\text{m}$ 以下である。また、当該島部の平均粒子径の好ましい範囲としては、 $0.3\sim 0.6\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.3\sim 0.5\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.4\sim 0.6\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.4\sim 0.5\ \mu\text{m}$ 程度が挙げられる。

【0045】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 $0.016\ \text{MPa}$ で 12 秒間加熱する前の金属端子2側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の平均粒子径としては、好ましくは約 $0.2\ \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは約 $0.3\ \mu\text{m}$ 以上である。また、当該島部の平均粒子径は、好ましくは約 $0.5\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは約 $0.4\ \mu\text{m}$ 以下である。また、当該島部の平均粒子径の好ましい範囲としては、 $0.2\sim 0.5\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.2\sim 0.4\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.3\sim 0.5\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.3\sim 0.4\ \mu\text{m}$ 程度が挙げられる。

10

【0046】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 $0.016\ \text{MPa}$ で 12 秒間加熱する前の基材11側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の平均粒子径としては、好ましくは約 $0.3\ \mu\text{m}$ 以上、より好ましくは約 $0.4\ \mu\text{m}$ 以上である。また、当該島部の平均粒子径は、好ましくは約 $0.6\ \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは約 $0.5\ \mu\text{m}$ 以下である。また、当該島部の平均粒子径の好ましい範囲としては、 $0.3\sim 0.6\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.3\sim 0.5\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.4\sim 0.6\ \mu\text{m}$ 程度、 $0.4\sim 0.5\ \mu\text{m}$ 程度が挙げられる。

20

【0047】

なお、断面画像における島部の平均粒子径は、画像解析ソフト Image J により算出される値である。

【0048】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 $0.016\ \text{MPa}$ で 12 秒間加熱した後の金属端子2側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の粒子径偏差 σ としては、好ましくは 0.4 以下、より好ましくは約 0.3 以下である。また、当該島部の粒子径偏差 σ は、例えば 0.1 以上である。また、当該島部の粒子径偏差 σ の好ましい範囲としては、 $0.1\sim 0.4$ 程度、 $0.1\sim 0.3$ 程度が挙げられる。

30

【0049】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 $0.016\ \text{MPa}$ で 12 秒間加熱した後の基材11側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の粒子径偏差 σ としては、好ましくは 0.4 以下、より好ましくは約 0.3 以下である。また、当該島部の粒子径偏差 σ は、例えば 0.1 以上である。また、当該島部の粒子径偏差 σ の好ましい範囲としては、 $0.1\sim 0.4$ 程度、 $0.1\sim 0.3$ 程度が挙げられる。

【0050】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 $0.016\ \text{MPa}$ で 12 秒間加熱する前の金属端子2側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の粒子径偏差 σ としては、好ましくは 0.4 以下、より好ましくは約 0.3 以下である。また、当該島部の粒子径偏差 σ は、例えば 0.1 以上である。また、当該島部の粒子径偏差 σ の好ましい範囲としては、 $0.1\sim 0.4$ 程度、 $0.1\sim 0.3$ 程度が挙げられる。

40

【0051】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 $0.016\ \text{MPa}$ で 12 秒間加熱する前の基材11側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の粒子径偏差 σ としては、好ましくは 0.5 以下、より好ましくは約 0.4 以下である。また、当該島部の粒子径偏差 σ は、例えば 0.1 以

50

上である。また、当該島部の粒子径偏差 σ の好ましい範囲としては、0.1～0.5程度、0.1～0.4程度が挙げられる。

【0052】

なお、断面画像における島部の粒子径偏差 σ は、画像解析ソフトImageJにより算出される値である。

【0053】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の金属端子2側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の真円度としては、好ましくは0.75以上、より好ましくは約0.80以上である。また、当該島部の真円度は、例えば0.95以下である。また、当該島部の真円度の好ましい範囲としては、0.75～0.95程度、0.80～0.95程度が挙げられる。

10

【0054】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の基材11側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の真円度としては、好ましくは0.72以上、より好ましくは約0.75以上である。また、当該島部の真円度は、例えば0.95以下である。また、当該島部の真円度の好ましい範囲としては、0.72～0.95程度、0.75～0.95程度が挙げられる。

【0055】

20

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前の金属端子2側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の真円度としては、好ましくは0.55以上、より好ましくは約0.60以上である。また、当該島部の真円度は、例えば0.95以下である。また、当該島部の真円度の好ましい範囲としては、0.55～0.95程度、0.60～0.95程度が挙げられる。

【0056】

また、本開示の金属端子用接着性フィルム1において、金属端子用接着性フィルムを温度190 及び面圧0.016MPaで12秒間加熱する前の基材11側の表面部分の前記断面画像において、海島構造の島部の真円度としては、好ましくは0.55以上、より好ましくは約0.60以上である。また、当該島部の真円度は、例えば0.95以下である。また、当該島部の真円度の好ましい範囲としては、0.55～0.95程度、0.60～0.95程度が挙げられる。

30

【0057】

なお、断面画像における島部の真円度は、画像解析ソフトImageJにより算出される値である。

【0058】

本開示の金属端子用接着性フィルムの第1ポリオレフィン層の断面の海島構造における島部の合計面積の割合、島部の平均粒子径、島部の粒子径偏差 σ 、及び島部の真円度は、それぞれ、第1ポリオレフィン層を構成する樹脂の組成、骨格、分散性、分子量、融点、MFR、さらには、金属端子用接着性フィルム1の製造におけるTダイ、インフレーション等の条件（例えば、Tダイからの押出幅、延伸倍率、延伸速度、熱処理温度、さらに、押し出し時のライン速度、冷却速度、押し出し温度など）などによって調整することができる。

40

【0059】

本開示の金属端子用接着性フィルム1の総厚みとしては、前述した金属端子2への密着性を高めつつ、電解液による密着性の低下を好適に抑制する観点から、例えば約60 μ m以上、好ましくは約80 μ m以上、好ましくは約100 μ m以上、より好ましくは約120 μ m以上、さらに好ましくは約150 μ m以上である。また、本開示の金属端子用接着性フィルム1の総厚みは、好ましくは約200 μ m以下、より好ましくは180 μ m以下

50

である。本開示の金属端子用接着性フィルム 1 の総厚みの好ましい範囲としては、 $60 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度、 $60 \sim 180 \mu\text{m}$ 程度、 $80 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度、 $80 \sim 180 \mu\text{m}$ 程度、 $100 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度、 $100 \sim 180 \mu\text{m}$ 程度、 $120 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度、 $120 \sim 180 \mu\text{m}$ 程度、 $150 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度、 $150 \sim 180 \mu\text{m}$ 程度が挙げられる。より具体的な例としては、例えば、本開示の金属端子用接着性フィルム 1 を民生用蓄電デバイスに使用する場合には、総厚みは $60 \sim 100 \mu\text{m}$ 程度とすることが好ましく、車載用蓄電デバイスに使用する場合には、総厚みは $100 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度とすることが好ましい。

【0060】

以下、第 1 ポリオレフィン層 12 a、第 2 ポリオレフィン層 12 b、及び基材 11 について詳述する。

【0061】

[第 1 ポリオレフィン層 12 a 及び第 2 ポリオレフィン層 12 b]

本開示の金属端子用接着性フィルム 1 は、図 4 及び図 5 に示すように、基材 11 の一方面側に第 1 ポリオレフィン層 12 a を備え、他方面側に第 2 ポリオレフィン層 12 b を備えている。第 1 ポリオレフィン層 12 a が金属端子 2 側に配置される。また、第 2 ポリオレフィン層 12 b が蓄電デバイス用外装材 3 側に配置される。本開示の金属端子用接着性フィルム 1 においては、両面側の表面に、それぞれ第 1 ポリオレフィン層 12 a 及び第 2 ポリオレフィン層 12 b が位置している。

【0062】

金属端子 2 側に配置される第 1 ポリオレフィン層 12 a の前記断面画像が備える海島構造についての説明は、前記の通りである。

【0063】

本開示の金属端子用接着性フィルム 1 において、第 1 ポリオレフィン層 12 a 及び第 2 ポリオレフィン層 12 b は、それぞれ、ポリオレフィン系樹脂を含む層である。ポリオレフィン系樹脂としては、ポリオレフィン、酸変性ポリオレフィンなどが挙げられる。第 1 ポリオレフィン層 12 a は、ポリオレフィン系樹脂の中でも、酸変性ポリオレフィンを含むことが好ましく、酸変性ポリオレフィンにより形成された層であることがより好ましい。また、第 2 ポリオレフィン層 12 b は、ポリオレフィン系樹脂の中でも、ポリオレフィンまたは酸変性ポリオレフィンを含むことが好ましく、ポリオレフィンを含むことがより好ましく、ポリオレフィンにより形成された層であることがさらに好ましい。酸変性ポリオレフィンは、金属との親和性が高い。また、ポリオレフィンは、ポリオレフィンなどの熱融着性樹脂との親和性が高い。従って、本開示の金属端子用接着性フィルム 1 においては、酸変性ポリオレフィンにより形成された第 1 ポリオレフィン層 12 a を金属端子 2 側に配置することにより、金属端子用接着性フィルム 1 と金属端子 2 との界面において、より一層優れた密着性を発揮することができる。また、ポリオレフィンにより形成された第 2 ポリオレフィン層 12 b を蓄電デバイス用外装材 3 の熱融着性樹脂層 35 側に配置することにより、金属端子用接着性フィルム 1 と熱融着性樹脂層 35 との界面において、より一層優れた密着性を発揮することができる。

【0064】

本開示の金属端子用接着性フィルム 1 の好ましい積層構成の具体例としては、酸変性ポリプロピレンにより形成された第 1 ポリオレフィン層 / ポリプロピレンにより形成された基材 / ポリプロピレンにより形成された第 2 ポリオレフィン層がこの順に積層された 3 層構成；酸変性ポリプロピレンにより形成された第 1 ポリオレフィン層 / ポリプロピレンにより形成された基材 / 酸変性ポリプロピレンにより形成された第 2 ポリオレフィン層がこの順に積層された 3 層構成などが挙げられ、これらの中でも、酸変性ポリプロピレンにより形成された第 1 ポリオレフィン層 / ポリプロピレンにより形成された基材 / ポリプロピレンにより形成された第 2 ポリオレフィン層がこの順に積層された 3 層構成が特に好ましい。

【0065】

酸変性ポリオレフィンとしては、酸変性されたポリオレフィンであれば特に制限されないが、好ましくは不飽和カルボン酸またはその無水物でグラフト変性されたポリオレフィンが挙げられる。

【0066】

酸変性されるポリオレフィンとしては、具体的には、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレン等のポリエチレン；ホモポリプロピレン、ポリプロピレンのブロックコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのブロックコポリマー）、ポリプロピレンのランダムコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのランダムコポリマー）等の結晶性又は非晶性のポリプロピレン；エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマー等が挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、好ましくはポリエチレン及びポリプロピレンが挙げられ、特に好ましくはポリプロピレンである。

10

【0067】

また、酸変性されるポリオレフィンは、環状ポリオレフィンであってもよい。例えば、カルボン酸変性環状ポリオレフィンとは、環状ポリオレフィンを構成するモノマーの一部を、 α 、 β -不飽和カルボン酸又はその無水物に代えて共重合することにより、或いは環状ポリオレフィンに対して α 、 β -不飽和カルボン酸又はその無水物をブロック重合又はグラフト重合することにより得られるポリマーである。

【0068】

酸変性される環状ポリオレフィンは、オレフィンと環状モノマーとの共重合体であり、前記環状ポリオレフィンの構成モノマーであるオレフィンとしては、例えば、エチレン、プロピレン、4-メチル-1-ペンテン、ブタジエン、イソプレン等が挙げられる。また、前記環状ポリオレフィンの構成モノマーである環状モノマーとしては、例えば、ノルボルネン等の環状アルケン；具体的には、シクロペンタジエン、ジシクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、ノルボルナジエン等の環状ジエン等が挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、好ましくは環状アルケン、さらに好ましくはノルボルネンが挙げられる。構成モノマーとしては、スチレンも挙げられる。

20

【0069】

酸変性に使用されるカルボン酸またはその無水物としては、例えば、マレイン酸、アクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸等が挙げられる。第1ポリオレフィン層12aは、赤外分光法で分析すると、無水マレイン酸に由来するピークが検出されることが好ましい。例えば、赤外分光法にて無水マレイン酸変性ポリオレフィンを測定すると、波数 1760 cm^{-1} 付近と波数 1780 cm^{-1} 付近に無水マレイン酸由来のピークが検出される。第1ポリオレフィン層12a又は第2ポリオレフィン層12bが無水マレイン酸変性ポリオレフィンより構成された層である場合、赤外分光法にて測定すると、無水マレイン酸由来のピークが検出される。ただし、酸変性度が低いとピークが小さくなり検出されない場合がある。その場合は核磁気共鳴分光法にて分析可能である。

30

【0070】

第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bは、それぞれ、1種の樹脂成分単独で形成してもよく、また2種以上の樹脂成分を組み合わせたブレンドポリマーにより形成してもよい。さらに、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bは、それぞれ、1層のみで形成されていてもよく、同一又は異なる樹脂成分によって2層以上で形成されていてもよい。第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bの製膜性の観点からは、これらの層は、それぞれ、2種以上の樹脂成分を組み合わせたブレンドポリマーにより形成することが好ましい。ブレンドポリマーとする場合、第1ポリオレフィン層12aについては、酸変性ポリプロピレンを主成分（50質量%以上の成分）とし、50質量%以下を他の樹脂（好ましくはポリエチレン）とすることが好ましい。また、第2ポリオレフィン層12bについては、ポリプロピレンを主成分（50質量%以上の成分）とし、50質量%以下を他の樹脂（好ましくはポリエチレン）とすることが好ましい。一方、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12b

40

50

の耐電解液性の観点からは、第1ポリオレフィン層12aは、樹脂として酸変性ポリプロピレンを単独で含むことが好ましく、第2ポリオレフィン層12bは、樹脂としてポリプロピレンを単独で含むことが好ましい。

【0071】

さらに、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bは、それぞれ、必要に応じて充填剤を含んでもよい。第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bが充填剤を含むことにより、充填剤がスペーサーとして機能するために、金属端子2と蓄電デバイス用外装材3のバリア層33との間の短絡を効果的に抑制することが可能となる。充填剤の粒径としては、0.1～35μm程度、好ましくは5.0～30μm程度、さらに好ましくは10～25μm程度の範囲が挙げられる。また、充填剤の含有量としては、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bを形成する樹脂成分100質量部に対して、それぞれ、5～30質量部程度、より好ましくは10～20質量部程度が挙げられる。

10

【0072】

充填剤としては、無機系、有機系のいずれも用いることができる。無機系充填剤としては、例えば、炭素（カーボン、グラファイト）、シリカ、酸化アルミニウム、チタン酸バリウム、酸化鉄、シリコンカーバイド、酸化ジルコニウム、珪酸ジルコニウム、酸化マグネシウム、酸化チタン、アルミ酸カルシウム、水酸化カルシウム、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、炭酸カルシウム等が挙げられる。また、有機系充填剤としては、例えば、フッ素樹脂、フェノール樹脂、ユリア樹脂、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、ベンゾグアナミン・ホルムアルデヒド縮合物、メラミン・ホルムアルデヒド縮合物、ポリメタクリル酸メチル架橋物、ポリエチレン架橋物等が挙げられる。形状の安定性、剛性、内容物耐性の点から、酸化アルミニウム、シリカ、フッ素樹脂、アクリル樹脂、ベンゾグアナミン・ホルムアルデヒド縮合物が好ましく、特にこの中でも球状の酸化アルミニウム、シリカがより好ましい。第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bを形成する樹脂成分への充填剤の混合方法としては、予めバンバリーミキサー等で両者をメルトブレンドし、マスターバッチ化したものを所定の混合比にする方法、樹脂成分との直接混合方法などを採用することができる。

20

【0073】

また、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bは、それぞれ、必要に応じて顔料を含んでもよい。顔料としては、無機系の各種顔料を用いることができる。顔料の具体例としては、上記充填剤で例示した炭素（カーボン、グラファイト）が好ましく例示できる。炭素（カーボン、グラファイト）は、一般に蓄電デバイスの内部に使用されている材料であり、電解液に対する溶出の虞がない。また、着色効果が大きく接着性を阻害しない程度の添加量で十分な着色効果を得られると共に、熱で熔融することがなく、添加した樹脂の見かけの熔融粘度を高くすることができる。さらに、熱接着時（ヒートシール時）に加圧部が薄肉となることを防止して、蓄電デバイス用外装材と金属端子の間における優れた密封性を付与できる。

30

【0074】

第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bに顔料を添加する場合、その添加量としては、たとえば、粒径が約0.03μmのカーボンブラックを使用した場合、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bを形成する樹脂成分100質量部に対して、それぞれ、0.05～0.3質量部程度、好ましくは0.1～0.2質量部程度が挙げられる。第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bに顔料を添加することにより、金属端子用接着性フィルム1の有無をセンサーで検知可能なもの、または目視で検査可能なものとすることができる。第1ポリオレフィン層12aが顔料を含むことが特に好ましい。なお、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bに充填剤と顔料とを添加する場合、同一の第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bに充填剤と顔料を添加してもよいが、金属端子用接着性フィルム1の熱融着性を阻害しない観点からは、充填剤及び顔料は、第1ポリオレフィン

40

50

層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b に分けて添加することが好ましい。

【 0 0 7 5 】

第 1 ポリオレフィン層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b の厚さは、前述した金属端子 2 への密着性を高めつつ、電解液による密着性の低下を好適に抑制する観点から、それぞれ、好ましくは約 1 0 μm 以上、より好ましくは約 1 5 μm 以上、さらに好ましくは約 2 0 μm 以上、さらに好ましくは約 3 0 μm 以上であり、また、例えば約 8 0 μm 以下、好ましくは約 6 0 μm 以下、より好ましくは約 5 0 μm 以下である。第 1 ポリオレフィン層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b の厚さの好ましい範囲としては、それぞれ、1 0 ~ 8 0 μm 程度、1 0 ~ 6 0 μm 程度、1 0 ~ 5 0 μm 程度、1 5 ~ 8 0 μm 程度、1 5 ~ 6 0 μm 程度、1 5 ~ 5 0 μm 程度、2 0 ~ 8 0 μm 程度、2 0 ~ 6 0 μm 程度、2 0 ~ 5 0 μm 程度、3 0 ~ 8 0 μm 程度、3 0 ~ 6 0 μm 程度、3 0 ~ 5 0 μm 程度が挙げられる。より具体的な例としては、例えば、本開示の金属端子用接着性フィルム 1 を民生用蓄電デバイスに使用する場合には、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b の厚さは、それぞれ 1 0 ~ 3 0 μm 程度とすることが好ましく、車載用蓄電デバイスに使用する場合には、それぞれ 3 0 ~ 8 0 μm 程度とすることが好ましい。

10

【 0 0 7 6 】

第 1 ポリオレフィン層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b の合計厚みに対する、基材 1 1 の厚みの比としては、前述した金属端子 2 への密着性を高めつつ、電解液による密着性の低下を好適に抑制する観点から、好ましくは約 0 . 3 以上、より好ましくは約 0 . 4 以上であり、さらに好ましくは 0 . 5 以上であり、また、好ましくは約 1 . 0 以下、より好ましくは約 0 . 8 以下であり、好ましい範囲としては、0 . 3 ~ 1 . 0 程度、0 . 3 ~ 0 . 8 程度、0 . 4 ~ 1 . 0 程度、0 . 4 ~ 0 . 8 程度、0 . 5 ~ 1 . 0 程度、0 . 5 ~ 0 . 8 程度が挙げられる。

20

【 0 0 7 7 】

また、金属端子用接着性フィルム 1 の総厚みを 1 0 0 % とし、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b の合計厚みの割合としては、好ましくは 3 0 ~ 8 0 % 程度、より好ましくは 5 0 ~ 7 0 % 程度である。

【 0 0 7 8 】

[基材 1 1]

金属端子用接着性フィルム 1 において、基材 1 1 は、金属端子用接着性フィルム 1 の支持体として機能する層である。

30

【 0 0 7 9 】

基材 1 1 を形成する素材については、特に制限されるものではない。基材 1 1 を形成する素材としては、例えば、ポリオレフィン系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリエステル系樹脂、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、フッ素樹脂、珪素樹脂、フェノール樹脂、ポリエーテルイミド、ポリイミド、ポリカーボネート及びこれらの混合物や共重合物等が挙げられ、これらの中でも、特にポリオレフィン系樹脂が好ましい。すなわち、基材 1 1 を形成する素材は、ポリオレフィン、酸変性ポリオレフィンなどのポリオレフィン骨格を含む樹脂が好ましい。基材 1 1 を構成している樹脂がポリオレフィン骨格を含むことは、例えば、赤外分光法、ガスクロマトグラフィー質量分析法などにより分析可能である。

40

【 0 0 8 0 】

前記の通り、基材 1 1 は、ポリオレフィン系樹脂を含むことが好ましく、ポリオレフィンを含むことが好ましく、ポリオレフィンにより形成された層であることがさらに好ましい。ポリオレフィンとしては、具体的には、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレン等のポリエチレン；ホモポリプロピレン、ポリプロピレンのブロックコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのブロックコポリマー）、ポリプロピレンのランダムコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのランダムコポリマー）等の結晶性又は非晶性のポリプロピレン；エチレン - ブテン - プロピレンのターポリマー等が挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、好ましくはポリエチレン及びポリプロピレンが挙げられ、より好ましくはポリプロピレンが挙げられる。また

50

、耐電解液性に優れることから、基材 11 は、ホモポリプロピレンを含むことが好ましく、ホモポリプロピレンにより形成されていることが特に好ましい。

【0081】

ポリアミドとしては、具体的には、ナイロン 6、ナイロン 66、ナイロン 610、ナイロン 12、ナイロン 46、ナイロン 6 とナイロン 66 との共重合体等の脂肪族系ポリアミド；テレフタル酸及び／又はイソフタル酸に由来する構成単位を含むナイロン 6I、ナイロン 6T、ナイロン 6IT、ナイロン 6I6T（I はイソフタル酸、T はテレフタル酸を表す）等のヘキサメチレンジアミン - イソフタル酸 - テレフタル酸共重合ポリアミド、ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）等の芳香族を含むポリアミド；ポリアミノメチルシクロヘキシルアジパミド（PACM6）等の脂環系ポリアミド；さらにラクタム成分や、4,4'-ジフェニルメタン - ジイソシアネート等のイソシアネート成分を共重合させたポリアミド、共重合ポリアミドとポリエステルやポリアルキレンエーテルグリコールとの共重合体であるポリエステルアミド共重合体やポリエーテルエステルアミド共重合体；これらの共重合体等が挙げられる。これらのポリアミドは、1 種単独で使用してもよく、また 2 種以上を組み合わせ使用してもよい。

10

【0082】

ポリエステルとしては、具体的には、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリエチレンイソフタレート、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステル、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステル等が挙げられる。また、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステルとしては、具体的には、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体としてエチレンイソフタレートと重合する共重合体ポリエステル（以下、ポリエチレン（テレフタレート／イソフタレート）にならって略す）、ポリエチレン（テレフタレート／イソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／アジペート）、ポリエチレン（テレフタレート／ナトリウムスルホイソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／ナトリウムイソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／フェニル - ジカルボキシレート）、ポリエチレン（テレフタレート／デカンジカルボキシレート）等が挙げられる。また、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステルとしては、具体的には、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体としてブチレンイソフタレートと重合する共重合体ポリエステル（以下、ポリブチレン（テレフタレート／イソフタレート）にならって略す）、ポリブチレン（テレフタレート／アジペート）、ポリブチレン（テレフタレート／セバケート）、ポリブチレン（テレフタレート／デカンジカルボキシレート）、ポリブチレンナフタレート等が挙げられる。これらのポリエステルは、1 種単独で使用してもよく、また 2 種以上を組み合わせ使用してもよい。

20

30

【0083】

また、基材 11 は、上記の樹脂で形成された不織布により形成されていてもよい。基材 11 が不織布である場合、基材 11 は、前述のポリオレフィン系樹脂、ポリアミド樹脂等で構成されていることが好ましい。

【0084】

また、基材 11 に着色剤を配合することにより、基材 11 を、着色剤を含む層とすることもできる。また、透明度の低い樹脂を選択して、光透過度を調整することもできる。基材 11 がフィルムの場合は、着色フィルムを用いることや、透明度の低いフィルムを用いることもできる。また、基材 11 が不織布の場合は、着色剤を含む繊維やバインダーを用いた不織布や、透明度の低い不織布を用いることができる。

40

【0085】

基材 11 が樹脂フィルムにより構成されている場合、基材 11 の表面には、必要に応じて、コロナ放電処理、オゾン処理、プラズマ処理等の公知の易接着手段が施されていてもよい。

【0086】

50

基材 11 の厚さは、前述した金属端子 2 への密着性を高めつつ、電解液による密着性の低下を好適に抑制する観点から、例えば約 100 μm 以下、好ましくは約 60 μm 以下、より好ましくは約 55 μm 以下である。また、基材 11 の厚さは、好ましくは約 20 μm 以上、より好ましくは約 30 μm 以上、さらに好ましくは約 40 μm 以上である。基材 11 の厚さの好ましい範囲としては、20 ~ 100 μm 程度、20 ~ 60 μm 程度、20 ~ 55 μm 程度、30 ~ 100 μm 程度、30 ~ 60 μm 程度、30 ~ 55 μm 程度、40 ~ 100 μm 程度、40 ~ 60 μm 程度、40 ~ 55 μm 程度が挙げられる。より具体的な例としては、例えば、本開示の金属端子用接着性フィルム 1 を民生用蓄電デバイスに使用する場合には、基材 11 の厚さは、30 ~ 55 μm 程度とすることが好ましく、車載用蓄電デバイスに使用する場合には、それぞれ 40 ~ 100 μm 程度とすることが好ましい。

10

【0087】

[接着促進剤層 13]

接着促進剤層 13 は、基材 11 と第 1 ポリオレフィン層 12a 及び第 2 ポリオレフィン層 12b とを強固に接着することを目的として、必要に応じて設けられる層である（図 5 を参照）。接着促進剤層 13 は、基材 11 と第 1 ポリオレフィン層 12a 及び第 2 ポリオレフィン層 12b との間の一方側のみに設けられていてもよいし、両側に設けられていてもよい。

【0088】

接着促進剤層 13 は、イソシアネート系、ポリエチレンイミン系、ポリエステル系、ポリウレタン系、ポリブタジエン系等の公知の接着促進剤を用いて形成することができる。耐電解液性をより向上する観点からは、これらの中でも、イソシアネート系の接着促進剤により形成されていることが好ましい。イソシアネート系の接着促進剤としては、トリイソシアネートモノマー、ポリメリック MDI から選ばれたイソシアネート成分からなるものが、ラミネート強度に優れ、かつ、電解液浸漬後のラミネート強度の低下が少ない。特に、トリイソシアネートモノマーであるトリフェニルメタン - 4, 4', 4'' - トリイソシアネートやポリメリック MDI であるポリメチレンポリフェニルポリイソシアネート（NCO 含有率が約 30%、粘度が 200 ~ 700 mPa・s）からなる接着促進剤によって形成することが特に好ましい。また、トリイソシアネートモノマーであるトリス（p - イソシアネートフェニル）チオホスフェートや、ポリエチレンイミン系を主剤とし、ポリカルボジイミドを架橋剤とした 2 液硬化型の接着促進剤により形成することも好ましい。

20

30

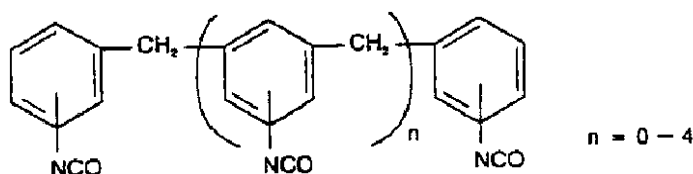
【0089】

接着促進剤層 13 は、バーコート法、ロールコート法、グラビアコート法等の公知の塗布法で塗布・乾燥することにより形成することができる。接着促進剤の塗布量としては、トリイソシアネートからなる接着促進剤の場合は、20 ~ 100 mg / m² 程度、好ましくは 40 ~ 60 mg / m² 程度であり、ポリメリック MDI からなる接着促進剤の場合は、40 ~ 150 mg / m² 程度、好ましくは 60 ~ 100 mg / m² 程度であり、ポリエチレンイミン系を主剤とし、ポリカルボジイミドを架橋剤とした 2 液硬化型の接着促進剤の場合は、5 ~ 50 mg / m² 程度、好ましくは 10 ~ 30 mg / m² 程度である。なお、トリイソシアネートモノマーは、1 分子中にイソシアネート基を 3 個持つモノマーであり、ポリメリック MDI は、MDI および MDI が重合した MDI オリゴマーの混合物であり、下記式で示されるものである。

40

【0090】

【化 1】



【0091】

50

本開示の金属端子用接着性フィルム 1 は、例えば、基材 1 1 の両表面上に、それぞれ、第 1 ポリオレフィン層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b を積層することにより製造することができる。基材 1 1 と第 1 ポリオレフィン層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b との積層は、押出ラミネート法、サーマルラミネート法などの公知の方法により積層することができる。また、基材 1 1 と第 1 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 a , 1 2 とを、接着促進剤層 1 3 を介して積層する場合には、例えば、接着促進剤層 1 3 を構成する接着促進剤を上記の方法で基材 1 1 の上に塗布・乾燥し、接着促進剤層 1 3 の上から第 1 ポリオレフィン層 1 2 a 及び第 2 ポリオレフィン層 1 2 b をそれぞれ積層すればよい。

【 0 0 9 2 】

金属端子用接着性フィルム 1 を金属端子 2 と蓄電デバイス用外装材 3 との間に介在させる方法としては、特に制限されず、例えば、図 1 ~ 3 に示すように、金属端子 2 が蓄電デバイス用外装材 3 によって挟持される部分において、金属端子 2 に金属端子用接着性フィルム 1 を巻き付けてもよい。また、図示を省略するが、金属端子 2 が蓄電デバイス用外装材 3 によって挟持される部分において、金属端子用接着性フィルム 1 が 2 つの金属端子 2 を横断するようにして、金属端子 2 の両面側に配置してもよい。

【 0 0 9 3 】

[金属端子 2]

本開示の金属端子用接着性フィルム 1 は、金属端子 2 と蓄電デバイス用外装材 3 との間に介在させて使用される。金属端子 2 (タブ) は、蓄電デバイス素子 4 の電極 (正極または負極) に電氣的に接続される導電部材であり、金属材料により構成されている。金属端子 2 を構成する金属材料としては、特に制限されず、例えば、アルミニウム、ニッケル、銅などが挙げられる。例えば、リチウムイオン蓄電デバイスの正極に接続される金属端子 2 は、通常、アルミニウムなどにより構成されている。また、リチウムイオン蓄電デバイスの負極に接続される金属端子 2 は、通常、銅、ニッケルなどにより構成されている。

【 0 0 9 4 】

金属端子 2 の表面は、耐電解液性を高める観点から、化成処理が施されていることが好ましい。例えば、金属端子 2 がアルミニウムにより形成されている場合、化成処理の具体例としては、リン酸塩、クロム酸塩、フッ化物、トリアジンチオール化合物などの耐食性皮膜を形成する公知の方法が挙げられる。耐食性皮膜を形成する方法の中でも、フェノール樹脂、フッ化クロム (I I I) 化合物、リン酸の 3 成分から構成されたものを用いるリン酸クロメート処理が好適である。

【 0 0 9 5 】

金属端子 2 の大きさは、使用される蓄電デバイスの大きさなどに応じて適宜設定すればよい。金属端子 2 の厚さとしては、好ましくは 5 0 ~ 1 0 0 0 μ m 程度、より好ましくは 7 0 ~ 8 0 0 μ m 程度が挙げられる。また、金属端子 2 の長さとしては、好ましくは 1 ~ 2 0 0 m m 程度、より好ましくは 3 ~ 1 5 0 m m 程度が挙げられる。また、金属端子 2 の幅としては、好ましくは 1 ~ 2 0 0 m m 程度、より好ましくは 3 ~ 1 5 0 m m 程度が挙げられる。

【 0 0 9 6 】

[蓄電デバイス用外装材 3]

蓄電デバイス用外装材 3 としては、少なくとも、基材層 3 1、バリア層 3 3、及び熱融着性樹脂層 3 5 をこの順に有する積層体からなる積層構造を有するものが挙げられる。図 6 に、蓄電デバイス用外装材 3 の断面構造の一例として、基材層 3 1、必要に応じて設けられる接着剤層 3 2、バリア層 3 3、必要に応じて設けられる接着層 3 4、及び熱融着性樹脂層 3 5 がこの順に積層されている態様について示す。蓄電デバイス用外装材 3 においては、基材層 3 1 が外層側になり、熱融着性樹脂層 3 5 が最内層になる。蓄電デバイスの組み立て時に、蓄電デバイス素子 4 の周縁に位置する熱融着性樹脂層 3 5 同士を接面させて熱融着することにより蓄電デバイス素子 4 が密封され、蓄電デバイス素子 4 が封止される。なお、図 1 から図 3 には、エンボス成形などによって成形されたエンボスタイプの蓄電デバイス用外装材 3 を用いた場合の蓄電デバイス 1 0 を図示しているが、蓄電デバイス

用外装材 3 は成形されていないパウチタイプであってもよい。なお、パウチタイプには、三方シール、四方シール、ピロータイプなどが存在するが、何れのタイプであってもよい。

【0097】

蓄電デバイス用外装材 3 を構成する積層体の厚みとしては、特に制限されないが、上限については、コスト削減、エネルギー密度向上等の観点からは、好ましくは約 190 μm 以下、約 180 μm 以下、約 160 μm 以下、約 155 μm 以下、約 140 μm 以下、約 130 μm 以下、約 120 μm 以下が挙げられ、下限については、蓄電デバイス素子 4 を保護するという蓄電デバイス用外装材 3 の機能を維持する観点からは、好ましくは約 35 μm 以上、約 45 μm 以上、約 60 μm 以上、約 80 μm 以上が挙げられ、好ましい範囲については、例えば、35 ~ 190 μm 程度、35 ~ 180 μm 程度、35 ~ 160 μm 程度、35 ~ 155 μm 程度、35 ~ 140 μm 程度、35 ~ 130 μm 程度、35 ~ 120 μm 程度、45 ~ 190 μm 程度、45 ~ 180 μm 程度、45 ~ 160 μm 程度、45 ~ 155 μm 程度、45 ~ 140 μm 程度、45 ~ 130 μm 程度、45 ~ 120 μm 程度、60 ~ 190 μm 程度、60 ~ 180 μm 程度、60 ~ 160 μm 程度、60 ~ 155 μm 程度、60 ~ 140 μm 程度、60 ~ 130 μm 程度、60 ~ 120 μm 程度、80 ~ 190 μm 程度、80 ~ 180 μm 程度、80 ~ 160 μm 程度、80 ~ 155 μm 程度、80 ~ 140 μm 程度、80 ~ 130 μm 程度、80 ~ 120 μm 程度が挙げられる。

10

【0098】

20

(基材層 31)

蓄電デバイス用外装材 3 において、基材層 31 は、蓄電デバイス用外装材の基材として機能する層であり、最外層側を形成する層である。

【0099】

基材層 31 を形成する素材については、絶縁性を備えるものであることを限度として特に制限されるものではない。基材層 31 を形成する素材としては、例えば、ポリエステル、ポリアミド、エポキシ、アクリル、フッ素樹脂、ポリウレタン、珪素樹脂、フェノール、ポリエーテルイミド、ポリイミド、及びこれらの混合物や共重合物等が挙げられる。ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレートなどのポリエステルは、耐電解液性に優れ、電解液の付着に対して白化等が発生し難いという利点があり、基材層 31 の形成素材として好適に使用される。また、ポリアミドフィルムは延伸性に優れており、成形時の基材層 31 の樹脂割れによる白化の発生を防ぐことができ、基材層 31 の形成素材として好適に使用される。

30

【0100】

基材層 31 は、1 軸又は 2 軸延伸された樹脂フィルムで形成されていてもよく、また未延伸の樹脂フィルムで形成してもよい。中でも、1 軸又は 2 軸延伸された樹脂フィルム、とりわけ 2 軸延伸された樹脂フィルムは、配向結晶化することにより耐熱性が向上しているので、基材層 31 として好適に使用される。

【0101】

これらの中でも、基材層 31 を形成する樹脂フィルムとして、好ましくはナイロン、ポリエステル、更に好ましくは 2 軸延伸ナイロン、2 軸延伸ポリエステルが挙げられる。

40

【0102】

基材層 31 は、耐ピンホール性及び蓄電デバイスの包装体とした時の絶縁性を向上させるために、異なる素材の樹脂フィルムを積層化することも可能である。具体的には、ポリエステルフィルムとナイロンフィルムとを積層させた多層構造や、2 軸延伸ポリエステルと 2 軸延伸ナイロンとを積層させた多層構造等が挙げられる。基材層 31 を多層構造にする場合、各樹脂フィルムは接着剤を介して接着してもよく、また接着剤を介さず直接積層させてもよい。接着剤を介さず接着させる場合には、例えば、共押出し法、サンドラミネート法、サーマルラミネート法等の熱溶融状態で接着させる方法が挙げられる。

【0103】

50

また、基材層 3 1 は、成形性を向上させるために低摩擦化させておいてもよい。基材層 3 1 を低摩擦化させる場合、その表面の摩擦係数については特に制限されないが、例えば 1 . 0 以下が挙げられる。基材層 3 1 を低摩擦化するには、例えば、マット処理、スリッパ剤の薄膜層の形成、これらの組み合わせ等が挙げられる。

【 0 1 0 4 】

基材層 3 1 の厚さについては、例えば、1 0 ~ 5 0 μ m 程度、好ましくは 1 5 ~ 3 0 μ m 程度が挙げられる。

【 0 1 0 5 】

(接着剤層 3 2)

蓄電デバイス用外装材 3 において、接着剤層 3 2 は、基材層 3 1 に密着性を付与させるために、必要に応じて、基材層 3 1 上に配置される層である。即ち、接着剤層 3 2 は、基材層 3 1 とバリア層 3 3 の間に設けられる。

【 0 1 0 6 】

接着剤層 3 2 は、基材層 3 1 とバリア層 3 3 とを接着可能である接着剤によって形成される。接着剤層 3 2 の形成に使用される接着剤は、2 液硬化型接着剤であってもよく、また 1 液硬化型接着剤であってもよい。また、接着剤層 3 2 の形成に使用される接着剤の接着機構についても、特に制限されず、化学反応型、溶剤揮発型、熱溶融型、熱圧型等のいずれであってもよい。

【 0 1 0 7 】

接着剤層 3 2 の形成に使用できる接着剤の樹脂成分としては、展延性、高湿度条件下における耐久性や黄変抑制作用、ヒートシール時の熱劣化抑制作用等が優れ、基材層 3 1 とバリア層 3 3 との間のラミネート強度の低下を抑えてデラミネーションの発生を効果的に抑制するという観点から、好ましくはポリウレタン系 2 液硬化型接着剤；ポリアミド、ポリエステル、又はこれらと変性ポリオレフィンとのブレンド樹脂が挙げられる。

【 0 1 0 8 】

また、接着剤層 3 2 は異なる接着剤成分で多層化してもよい。接着剤層 3 2 を異なる接着剤成分で多層化する場合、基材層 3 1 とバリア層 3 3 とのラミネート強度を向上させるという観点から、基材層 3 1 側に配される接着剤成分として基材層 3 1 との接着性に優れる樹脂を選択し、バリア層 3 3 側に配される接着剤成分としてバリア層 3 3 との接着性に優れる接着剤成分を選択することが好ましい。接着剤層 3 2 は異なる接着剤成分で多層化する場合、具体的には、バリア層 3 3 側に配置される接着剤成分としては、好ましくは、酸変性ポリオレフィン、金属変性ポリオレフィン、ポリエステルと酸変性ポリオレフィンとの混合樹脂、共重合ポリエステルを含む樹脂等が挙げられる。

【 0 1 0 9 】

接着剤層 3 2 の厚さについては、例えば、2 ~ 5 0 μ m 程度、好ましくは 3 ~ 2 5 μ m 程度が挙げられる。

【 0 1 1 0 】

(バリア層 3 3)

蓄電デバイス用外装材において、バリア層 3 3 は、蓄電デバイス用外装材の強度向上の他、蓄電デバイス内部に水蒸気、酸素、光などが侵入することを防止する機能を有する層である。バリア層 3 3 は、金属層、すなわち、金属で形成されている層であることが好ましい。バリア層 3 3 を構成する金属としては、具体的には、アルミニウム、ステンレス、チタンなどが挙げられ、好ましくはアルミニウムが挙げられる。バリア層 3 3 は、例えば、金属箔や金属蒸着膜、無機酸化物蒸着膜、炭素含有無機酸化物蒸着膜、これらの蒸着膜を設けたフィルムなどにより形成することができ、金属箔により形成することが好ましく、アルミニウム箔により形成することがさらに好ましい。蓄電デバイス用外装材の製造時に、バリア層 3 3 にしわやピンホールが発生することを防止する観点からは、バリア層は、例えば、焼きなまし処理済みのアルミニウム (J I S H 4 1 6 0 : 1 9 9 4 A 8 0 2 1 H - O、J I S H 4 1 6 0 : 1 9 9 4 A 8 0 7 9 H - O、J I S H 4 0 0 0 : 2 0 1 4 A 8 0 2 1 P - O、J I S H 4 0 0 0 : 2 0 1 4 A 8 0 7 9 P - O) など

10

20

30

40

50

軟質アルミニウム箔により形成することがより好ましい。

【0111】

バリア層33の厚さについては、蓄電デバイス用外装材を薄型化しつつ、成形によってもピンホールの発生し難いものとする観点から、好ましくは10～200μm程度、より好ましくは20～100μm程度が挙げられる。

【0112】

また、バリア層33は、接着の安定化、溶解や腐食の防止などのために、少なくとも一方の面、好ましくは両面が化成処理されていることが好ましい。ここで、化成処理とは、バリア層の表面に耐食性皮膜を形成する処理をいう。

【0113】

10

(接着層34)

蓄電デバイス用外装材3において、接着層34は、熱融着性樹脂層35を強固に接着させるために、バリア層33と熱融着性樹脂層35の間に、必要に応じて設けられる層である。

【0114】

接着層34は、バリア層33と熱融着性樹脂層35を接着可能である接着剤によって形成される。接着層の形成に使用される接着剤の組成については、特に制限されないが、例えば、酸変性ポリオレフィンを含む樹脂組成物が挙げられる。酸変性ポリオレフィンとしては、第1ポリオレフィン層12a及び第2ポリオレフィン層12bで例示したものと同一ものが例示できる。

20

【0115】

接着層34の厚さについては、例えば、1～40μm程度、好ましくは2～30μm程度が挙げられる。

【0116】

(熱融着性樹脂層35)

蓄電デバイス用外装材3において、熱融着性樹脂層35は、最内層に該当し、蓄電デバイスの組み立て時に熱融着性樹脂層同士が熱融着して蓄電デバイス素子を密封する層である。

【0117】

熱融着性樹脂層35に使用される樹脂成分については、熱融着可能であることを限度として特に制限されないが、例えば、ポリオレフィン、環状ポリオレフィンが挙げられる。

30

【0118】

前記ポリオレフィンとしては、具体的には、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレン等のポリエチレン；ホモポリプロピレン、ポリプロピレンのブロックコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのブロックコポリマー）、ポリプロピレンのランダムコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのランダムコポリマー）等の結晶性又は非晶性のポリプロピレン；エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマー等が挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、好ましくはポリエチレン及びポリプロピレンが挙げられる。

【0119】

40

前記環状ポリオレフィンは、オレフィンと環状モノマーとの共重合体であり、前記環状ポリオレフィンの構成モノマーであるオレフィンとしては、例えば、エチレン、プロピレン、4-メチル-1-ペンテン、ブタジエン、イソプレン、等が挙げられる。また、前記環状ポリオレフィンの構成モノマーである環状モノマーとしては、例えば、ノルボルネン等の環状アルケン；具体的には、シクロペンタジエン、ジシクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、ノルボルナジエン等の環状ジエン等が挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、好ましくは環状アルケン、さらに好ましくはノルボルネンが挙げられる。構成モノマーとしては、スチレンも挙げられる。

【0120】

これらの樹脂成分の中でも、好ましくは結晶性又は非晶性のポリオレフィン、環状ポリ

50

オレフィン、及びこれらのブレンドポリマー；さらに好ましくはポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンとノルボルネンの共重合体、及びこれらの中の２種以上のブレンドポリマーが挙げられる。

【０１２１】

熱融着性樹脂層３５は、１種の樹脂成分単独で形成してもよく、また２種以上の樹脂成分を組み合わせたブレンドポリマーにより形成してもよい。さらに、熱融着性樹脂層３５は、１層のみで形成されていてもよいが、同一又は異なる樹脂成分によって２層以上形成されていてもよい。第２ポリオレフィン層１２ｂと熱融着性樹脂層３５の樹脂が共通していると、これらの層間の密着性が向上することから、特に好ましい。

【０１２２】

また、熱融着性樹脂層３５の厚さとしては、特に制限されないが、２～２０００μｍ程度、好ましくは５～１０００μｍ程度、さらに好ましくは１０～５００μｍ程度が挙げられる。

【０１２３】

２．蓄電デバイス

本開示の蓄電デバイス１０は、少なくとも、正極、負極、及び電解質を備えた蓄電デバイス素子４と、当該蓄電デバイス素子４を封止する蓄電デバイス用外装材３と、正極及び負極のそれぞれに電氣的に接続され、蓄電デバイス用外装材３の外側に突出した金属端子２とを備えている。本開示の蓄電デバイス１０においては、金属端子２と蓄電デバイス用外装材３との間に、本開示の金属端子用接着性フィルム１が介在されてなることを特徴とする。すなわち、本開示の蓄電デバイス１０は、金属端子２と蓄電デバイス用外装材３との間に、本開示の金属端子用接着性フィルム１が介在する工程を備える方法により製造することができる。

【０１２４】

具体的には、少なくとも正極、負極、及び電解質を備えた蓄電デバイス素子４を、蓄電デバイス用外装材３で、正極及び負極の各々に接続された金属端子２を外側に突出させた状態で、本開示の金属端子用接着性フィルム１を金属端子２と熱融着性樹脂層３５との間に介在させ、蓄電デバイス素子４の周縁に蓄電デバイス用外装材のフランジ部（熱融着性樹脂層３５同士が接触する領域であり、蓄電デバイス用外装材の周縁部３ａ）が形成できるようにして被覆し、フランジ部の熱融着性樹脂層３５同士をヒートシールして密封させることによって、蓄電デバイス用外装材３を使用した蓄電デバイス１０が提供される。なお、蓄電デバイス用外装材３を用いて蓄電デバイス素子４を収容する場合、蓄電デバイス用外装材３の熱融着性樹脂層３５が内側（蓄電デバイス素子４と接する面）になるようにして用いられる。

【０１２５】

本開示の蓄電デバイス用外装材は、電池（コンデンサー、キャパシター等を含む）などの蓄電デバイスに好適に使用することができる。また、本開示の蓄電デバイス用外装材は、一次電池、二次電池のいずれに使用してもよいが、好ましくは二次電池である。本開示の蓄電デバイス用外装材が適用される二次電池の種類については、特に制限されず、例えば、リチウムイオン電池、リチウムイオンポリマー電池、全固体電池、鉛蓄電池、ニッケル・水素蓄電池、ニッケル・カドミウム蓄電池、ニッケル・鉄蓄電池、ニッケル・亜鉛蓄電池、酸化銀・亜鉛蓄電池、金属空気電池、多価カチオン電池、コンデンサー、キャパシター等が挙げられる。これらの二次電池の中でも、本開示の蓄電デバイス用外装材の好適な適用対象として、リチウムイオン電池及びリチウムイオンポリマー電池が挙げられる。

【実施例】

【０１２６】

以下に実施例及び比較例を示して本開示を詳細に説明する。但し、本開示は実施例に限定されるものではない。

【０１２７】

< 金属端子用接着性フィルムの製造 >

実施例 1

第 1 ポリオレフィン層を形成するポリオレフィンとして、無水マレイン酸変性ポリプロピレン (P P a)、第 2 ポリオレフィン層を形成するポリオレフィンとして、ポリプロピレン (P P)、基材として、未延伸ポリプロピレンフィルム (C P P、ホモポリプロピレン、厚み 50 μ m) を用意した。基材 (C P P) の一方面に、無水マレイン酸変性ポリプロピレン (P P a) を T ダイ押出機で押出して、第 1 ポリオレフィン層 (厚み 50 μ m) を形成し、基材 (C P P) の他方面に、ポリプロピレン (P P) を T ダイ押出機で押出して、第 2 ポリオレフィン層 (厚み 50 μ m) を形成し、第 1 ポリオレフィン層 (50 μ m、P P a 層) / 基材 (50 μ m、C P P 層) / 第 2 ポリオレフィン層 (50 μ m、P P 層) が順に積層された金属端子用接着性フィルムを得た。

10

【0128】

比較例 1

第 1 ポリオレフィン層を形成するポリオレフィンとして、無水マレイン酸変性ポリプロピレン (P P a)、第 2 ポリオレフィン層を形成するポリオレフィンとして、ポリプロピレン (P P)、基材として、カーボンブラックで黒色に着色されたポリプロピレンフィルム (P P、厚み 30 μ m) を用意した。基材 (P P) の一方面に、無水マレイン酸変性ポリプロピレン (P P a) を T ダイ押出機で押出して、第 1 ポリプロピレン層 (厚み 50 μ m) を形成し、基材 (P P) の他方面に、ポリプロピレン (P P) を T ダイ押出機で押出して、第 2 ポリプロピレン層 (厚み 50 μ m) を形成し、第 1 ポリオレフィン層 (50 μ m、P P a 層) / 基材 (30 μ m、P P 層) / 第 2 ポリオレフィン層 (20 μ m、P P 層) が順に積層された金属端子用接着性フィルムを得た。

20

【0129】

比較例 2

第 1 ポリオレフィン層を形成するポリオレフィンとして、無水マレイン酸変性ポリプロピレン (P P a)、第 2 ポリオレフィン層を形成するポリオレフィンとして、無水マレイン酸変性ポリプロピレン (P P a)、基材として、ポリプロピレン (P P) を用意した。各層の樹脂を用いて、多層空冷インフレーション成形を行い、第 1 ポリオレフィン層 (25 μ m、P P a 層) / 基材 (50 μ m、P P 層) / 第 2 ポリオレフィン層 (25 μ m、P P a 層) が順に積層された金属端子用接着性フィルムを得た。

30

【0130】

表 1 及び表 2 に記載の金属端子用接着性フィルムの第 1 ポリオレフィン層の断面の海島構造における島の個数、合計面積の割合、平均粒子径、粒子径偏差、及び真円度は、それぞれ、第 1 ポリオレフィン層を構成する樹脂の組成、骨格、分散性、分子量、融点、M F R、さらには、金属端子用接着性フィルム 1 の製造における T ダイ、インフレーション等の条件 (例えば、T ダイからの押出幅、延伸倍率、延伸速度、熱処理温度、さらに、押し出し時のライン速度、冷却速度、押し出し温度など) などによって調整することができる。なお、実施例 1 においては、後述の温度 190 に加熱されたホットプレートで 12 秒間加熱 (面圧は 0.016 MPa) した後、室温 (25) で自然冷却した。加熱後の冷却条件によっても、海島構造が変化し得る。

40

【0131】

< 海島構造における島部の観察 >

熱硬化性のエポキシ樹脂内に金属端子用接着性フィルムを包埋し硬化させた。市販品の回転式マイクローム (L E I C A 製 UC 6) と、ダイヤモンドナイフを用いて目的とする方向の断面 (T D に平行な方向かつ厚みの方向の断面) を作製し、その際、液体窒素を用いたクライオマイクロームにて、-70 にて断面作製を行った。包埋樹脂ごと四酸化ルテニウムにて一晩染色した。染色すると、ポリプロピレンが膨張するため、膨張部分をマイクロームでトリミングし、M D の方向に向かって 100 nm から 300 nm ずつ切り進め、合計で 1 μ m から 2 μ m ほど切断したところで、露出している断面を次のようにして観察した。染色した断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡 (日立ハイテクノロジーズ社製 S - 4800 TYPE 1, 測定条件: 3 kV 20 mA High WD 6

50

mm 検出器 (Upper)) で観測して画像 (倍率は 10000 倍) を取得した。断面画像は、第 1 ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分 (第 1 ポリオレフィン層の厚みを 100% とした場合に、基材側の表面とは反対側の表面から 30% の厚みの部分までの範囲内である。図 4 を参照。) と、第 1 ポリオレフィン層の基材側の表面部分 (第 1 ポリオレフィン層の厚みを 100% とした場合に、基材側の表面から 30% の厚みの部分までの範囲内) について、それぞれ取得した。次に、画像を二値化できる画像処理ソフト (三谷商事製画像解析ソフト WinROOF (Ver 7.4)) を用い、当該画像について、海島構造の島の部分と海の部分とを二値化して、島の部分の個数、島の部分の合計面積の割合 (島の部分の合計面積 / 画像の測定範囲の面積)、島の部分の平均粒子径、島の部分の粒子径偏差 σ 、及び島の部分の真円度をそれぞれ求めた。結果を表 1, 2 示す。表 1 は、後述の < 金属端子用接着性フィルムと金属端子との密着強度の測定 > と同様にして、190

に加熱されたホットプレートを用いて金属端子用接着性フィルムを 12 秒間加熱した後のサンプルについての測定結果であり、表 2 は、当該加熱を行っていないサンプルについての測定結果である。

【0132】

実施例 1 及び比較例 1, 2 における二値化した断面画像を、それぞれ図 8 ~ 図 13 に示す。図 8 が実施例 1 の第 1 ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分であり、図 9 が実施例 1 の第 1 ポリオレフィン層の基材側の表面部分であり、図 10 が比較例 1 の第 1 ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分であり、図 11 が比較例 1 の第 1 ポリオレフィン層の基材側の表面部分であり、図 12 が比較例 2 の第 1 ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分であり、図 13 が比較例 2 の第 1 ポリオレフィン層の基材側の表面部分である。また、図 8 ~ 図 13 のそれぞれにおいて、左側の画像が、金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 0.016 MPa で 12 秒間加熱する前のものであり、右側の画像が、金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 0.016 MPa で 12 秒間加熱した後 (後述の密着強度の測定と同様にして、温度 190 及び面圧 0.016 MPa に加熱されたホットプレートで 12 秒間加熱した後) のものである。なお、本測定では、島部分が海部分よりも染色されたため、島部分が海部分よりも明るく観察された。

[画像処理条件]

画像処理は、画像解析ソフト ImageJ を用いて行った。具体的には、SEM 画像をグレースケール画像 (JPEG) のデジタルファイルとして取得し、下記の二値化処理手順とパラメーターに沿って処理を行い、閾値以上の階調 (明るい) のピクセルを 1、閾値未満の階調 (暗い) のピクセルを 0 として出力し、各々を島部、海部と規定した。

< 二値化処理 >

1. スパイクノイズ除去 (Despeckle)
2. 島部の輪郭除去 (Remove Outliers radius = 4 threshold = 1 which = Bright)
3. 海部の輪郭除去 (Remove Outliers radius = 4 threshold = 1 which = Dark)
4. スパイクノイズ除去 (Despeckle)
5. X 軸 (サンプル短手) 方向にガウスぼかし (閾値 = 3 ピクセル)
6. コントラスト強調 (saturated = 0.2)
7. 島部の輪郭除去 (Remove Outliers radius = 4 threshold = 1 which = Bright)
8. 海部の輪郭除去 (Remove Outliers radius = 4 threshold = 1 which = Dark)
9. 大津の二値化

【0133】

前記の島部の平均粒子径は、画像解析ソフト ImageJ により二値化後の画像の島部の最大フェレ径から算出される値である。また、前記の島部の粒子径偏差 σ は、上記平均粒子径の標準偏差により算出される値である。また、前記の島部の真円度は、画像解析ソ

フトImage Jにより二値化後の画像の島部を同心の2つの幾何学的円で挟んだとき、同心円の間隔が最小となる場合の、2つの同心円の半径の差で算出される値である。

【0134】

<金属端子用接着性フィルムと金属端子との密着強度の測定>

金属端子として、縦50mm、横22.5mm、厚み0.2mmのアルミニウム（JIS H4160：1994 A8079H-O）を用意した。また、実施例及び比較例で得られた各金属端子用接着性フィルムを長さ45mm、幅15mmに裁断した。次に、金属端子用接着性フィルムを金属端子の上に置き、金属端子/接着性フィルムの積層体を得た。このとき、金属端子の縦方向及び横方向が、それぞれ、金属端子用接着性フィルムの長さ方向及び幅方向と一致し、かつ、金属端子と金属端子用接着性フィルムの中心が一致するように積層した。また、金属端子用接着性フィルムの第1ポリオレフィン層が金属端子側に配置されている。次に、テトラフルオロエチレン-エチレン共重合体フィルム（ETFEフィルム、厚さ100μm）を、当該積層体の金属端子用接着性フィルムの上に置いた（ETFEフィルムで金属端子用接着性フィルムの表面を覆った）状態で、190に加熱されたホットプレート上に載置する（金属端子がホットプレート側）と共に、スポンジ付きの500gの錘を載せて（面圧は0.016MPa）、12秒間静置して、接着性フィルムを金属端子に熱融着させた。熱融着後の積層体を25まで自然冷却した。次に、25の環境において、テンシロン万能材料試験機（エー・アンド・デイ社製のRTG-1210）で金属端子用接着性フィルムを金属端子から剥離させた。剥離時の最大強度を金属端子に対する密着強度（N/15mm）とした。剥離速度は50mm/分、剥離角度は180°、チャック間距離は30mmとし、3回測定した平均値とした。結果を表1に示す。なお、温度190及び面圧0.016MPaの加熱加圧環境で12秒間静置する処理は、前記の仮接着工程及び本接着工程で加わる熱と圧力を想定した処理である。

【0135】

<電解液浸漬後の密着強度>

前記の<金属端子用接着性フィルムと金属端子との密着強度の測定>と同様にして、接着性フィルムを金属端子に熱融着させた。熱融着後の積層体を25まで自然冷却した。次に、得られた積層体を、85の電解液（エチレンカーボネート：ジエチルカーボネート：ジメチルカーボネート＝1：1：1の容積比で混合した溶液に6フッ化リン酸リチウムが1mol/Lとなるよう混合して得られたもの）に1日間浸漬させた後、電解液及び塩が十分に洗い流されるまで水洗いを実施して取り出し、1時間以内に前記の<金属端子用接着性フィルムと金属端子との密着強度の測定>と同様にして、金属端子用接着性フィルムを金属端子から剥離させて、剥離時の最大強度を金属端子に対する密着強度（N/15mm）とした。結果を表1に示す。

【0136】

【表1】

	第1ポリオレフィン層の断面画像の位置	第1ポリオレフィン層を温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の島部					ヒートシール後の金属端子に対する密着強度		
		個数	合計面積の割合 (%)	平均粒子径 (μm)	粒子径偏差σ	真円度	電解液浸漬前 (N/15mm)	電解液浸漬後 (N/15mm)	電解液浸漬前後の密着強度の維持率 (%)
実施例1	金属端子側の表面部分	252	28.1	0.44	0.22	0.82	43	33	77
	基材側の表面部分	270	31.2	0.46	0.26	0.78			
比較例1	金属端子側の表面部分	259	40.0	0.53	0.44	0.77	30	19	63
	基材側の表面部分	220	36.9	0.53	0.35	0.74			
比較例2	金属端子側の表面部分	205	22.9	0.43	0.36	0.73	29	19	66
	基材側の表面部分	154	28.7	0.50	0.57	0.68			

【0137】

10

20

30

40

【表 2】

	第1ポリオレフィン層の 断面画像の位置	第1ポリオレフィン層を温度190℃及び面圧0.016MPaで 12秒間加熱する前の島部				
		個数	合計面積 の割合 (%)	平均 粒子径 (μm)	粒子径 偏差 σ	真円度
実施例 1	金属端子側の表面部分	660	25.2	0.34	0.21	0.67
	基材側の表面部分	567	29.3	0.44	0.32	0.61
比較例 1	金属端子側の表面部分	644	34.1	0.37	0.27	0.70
	基材側の表面部分	403	33.4	0.48	0.38	0.71
比較例 2	金属端子側の表面部分	273	19.6	0.35	0.26	0.79
	基材側の表面部分	96	15.6	0.52	0.49	0.71

10

【0138】

実施例1の金属端子用接着性フィルムは、第1ポリオレフィン層の金属端子側の表面部分の前記断面画像であって、金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaで12秒間加熱した後の断面画像において、海島構造の島部の合計面積の割合が、25.0～35.0%に設定されている。実施例1の金属端子用接着性フィルムは、ヒートシールによる接着性フィルムの金属端子への密着性に優れており、さらに、ヒートシールによって金属端子に密着した接着性フィルムに対して電解液が付着した場合にも、金属端子に対する密着性の低下が好適に抑制されている。

20

【0139】

以上のとおり、本開示は、下記に掲げる態様の発明を提供する。

項1. 蓄電デバイス素子の電極に電氣的に接続された金属端子と、前記蓄電デバイス素子を封止する蓄電デバイス用外装材との間に介在される、金属端子用接着性フィルムであって、

前記金属端子用接着性フィルムは、前記金属端子側に配置される第1ポリオレフィン層と、基材と、前記蓄電デバイス用外装材側に配置される第2ポリオレフィン層とをこの順に備える積層体から構成されており、

30

前記第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向かつ厚み方向の断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像に海島構造が観察され、

前記断面画像は、前記第1ポリオレフィン層の厚みを100%とした場合に、前記基材側の表面とは反対側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像であり、

前記金属端子用接着性フィルムを温度190℃及び面圧0.016MPaの加熱加圧環境で12秒間静置し、さらに、温度25℃の環境で1時間静置した後の前記断面画像において、前記海島構造の島部の合計面積の割合が、25.0%以上35.0%以下である、金属端子用接着性フィルム。

項2. 前記断面画像において、前記島部の平均粒子径が、0.3 μm 以上である、項1に記載の金属端子用接着性フィルム。

40

項3. 前記断面画像において、前記島部の粒子径偏差が、0.3以下である、項1又は2に記載の金属端子用接着性フィルム。

項4. 前記断面画像において、前記島部の真円度が、0.75以上である、項1～3のいずれか1項に記載の金属端子用接着性フィルム。

項5. 前記第1ポリオレフィン層の厚みが、60 μm 以下である、項1～4のいずれか1項に記載の金属端子用接着性フィルム。

項6. 前記基材の厚みが、60 μm 以下である、項1～5のいずれか1項に記載の金属端子用接着性フィルム。

項7. 前記第2ポリオレフィン層の厚みが、60 μm 以下である、項1～6のいずれか

50

1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

項 8 . 前記金属端子用接着性フィルムの厚みが、 $180\text{ }\mu\text{m}$ 以下である、項 1 ~ 7 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

項 9 . 前記第 1 ポリオレフィン層は、顔料を含む、項 1 ~ 8 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

項 10 . 前記基材は、ポリオレフィン骨格を含む、項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルム。

項 11 . 蓄電デバイス素子の電極に電氣的に接続された金属端子と、前記蓄電デバイス素子を封止する蓄電デバイス用外装材との間に介在される、金属端子用接着性フィルムの製造方法であって、

10

前記金属端子用接着性フィルムは、前記金属端子側に配置される第 1 ポリオレフィン層と、基材と、前記蓄電デバイス用外装材側に配置される第 2 ポリオレフィン層とをこの順に備える積層体から構成されており、

前記第 1 ポリオレフィン層、前記基材、及び前記第 2 ポリオレフィン層をこの順に備える積層体を得る工程を備えており、

前記第 1 ポリオレフィン層の T D に平行な方向かつ厚み方向の断面について、電界放出形走査型電子顕微鏡を用いて取得した断面画像に海島構造が観察され、

前記断面画像は、前記第 1 ポリオレフィン層の厚みを 100% とした場合に、前記基材側の表面とは反対側の表面から 30% の厚みの部分までの範囲内で取得した断面画像であり、

20

前記金属端子用接着性フィルムを温度 190 及び面圧 0.016 MPa の加熱加圧環境で 12 秒間静置し、さらに、温度 25 の環境で 1 時間静置した後の前記断面画像において、前記海島構造の島部の合計面積の割合が、 25.0% 以上 35.0% 以下である、金属端子用接着性フィルムの製造方法。

項 12 . 金属端子に、項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルムが取り付けられてなる、金属端子用接着性フィルム付き金属端子。

項 13 . 少なくとも、正極、負極、及び電解質を備えた前記蓄電デバイス素子と、当該蓄電デバイス素子を封止する前記蓄電デバイス用外装材と、前記正極及び前記負極のそれぞれに電氣的に接続され、前記蓄電デバイス用外装材の外側に突出した前記金属端子とを備える蓄電デバイスであって、

30

前記金属端子と前記蓄電デバイス用外装材との間に、項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルムが介在されてなる、蓄電デバイス。

項 14 . 少なくとも、正極、負極、及び電解質を備えた前記蓄電デバイス素子と、当該蓄電デバイス素子を封止する前記蓄電デバイス用外装材と、前記正極及び前記負極のそれぞれに電氣的に接続され、前記蓄電デバイス用外装材の外側に突出した前記金属端子とを備える蓄電デバイスの製造方法であって、

前記金属端子と前記蓄電デバイス用外装材との間に、項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の金属端子用接着性フィルムを介在させて、前記蓄電デバイス素子を前記蓄電デバイス用外装材で封止する工程を備える、蓄電デバイスの製造方法。

【符号の説明】

40

【0140】

1 金属端子用接着性フィルム

2 金属端子

3 蓄電デバイス用外装材

3 a 蓄電デバイス用外装材の周縁部

4 蓄電デバイス素子

10 蓄電デバイス

11 基材

12 a 第 1 ポリオレフィン層

12 b 第 2 ポリオレフィン層

50

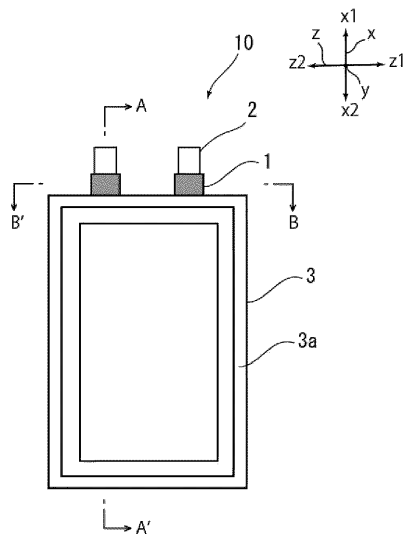
- 1 3 接着促進剤層
- 3 1 基材層
- 3 2 接着剤層
- 3 3 バリア層
- 3 4 接着層
- 3 5 熱融着性樹脂層

【要約】

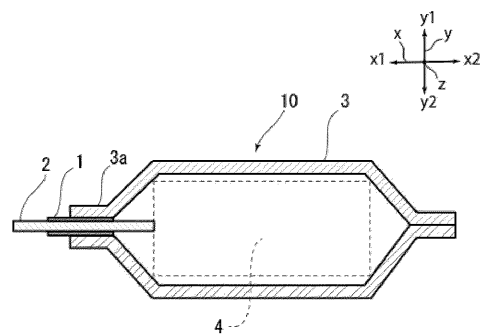
本発明は、金属端子用接着性フィルムに関し、金属端子への密着性に優れた金属端子用接着性フィルムを提供することを目的とし、蓄電デバイス素子の電極に接続された金属端子と蓄電デバイス用外装材との間に介在される金属端子用接着性フィルムにおいて、前記金属端子側に配置される第1ポリオレフィン層と基材と第2ポリオレフィン層とをこの順に備え、前記第1ポリオレフィン層のTDに平行な方向の断面画像に海島構造が観察され、前記断面画像は、前記第1ポリオレフィン層の前記金属端子側の表面から30%の厚みの部分までの範囲内で取得したものであり、前記金属端子用接着性フィルムを温度190及び面圧0.016MPaの加熱加圧環境で12秒間静置し、さらに、温度25の環境で1時間静置した後の前記断面画像において、前記海島構造の島部の合計面積の割合を25.0%～35.0%としたものである。

10

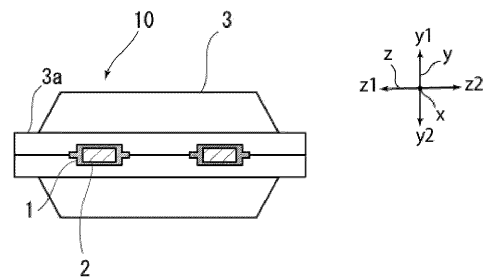
【図1】



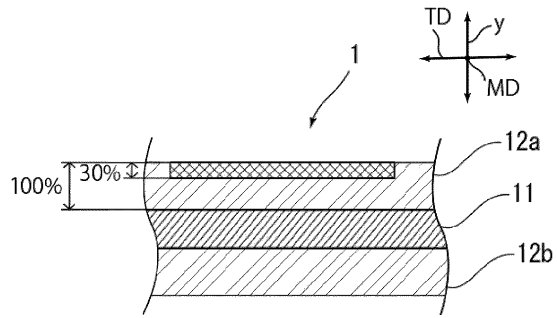
【図2】



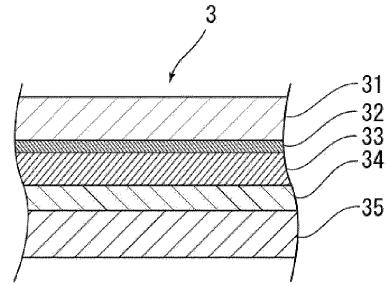
【図3】



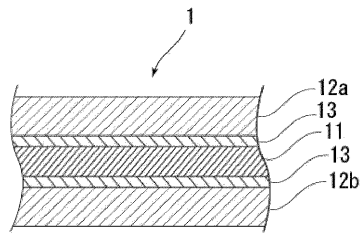
【図 4】



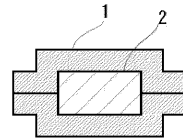
【図 6】



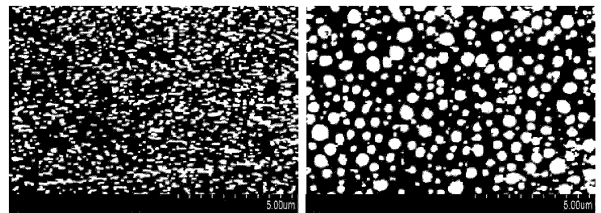
【図 5】



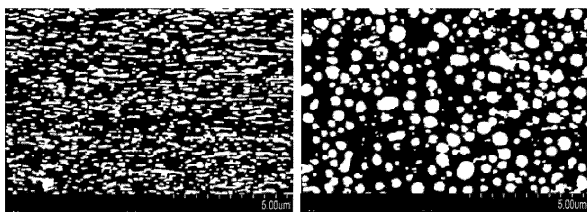
【図 7】



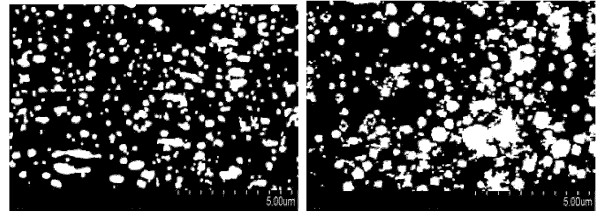
【図 8】



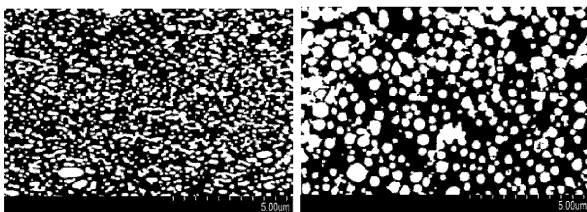
【図 9】



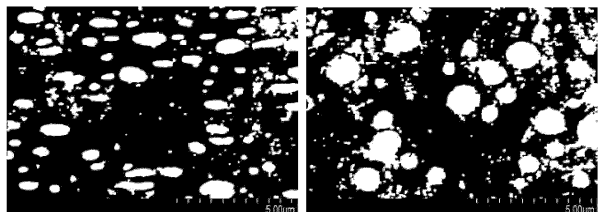
【図 12】



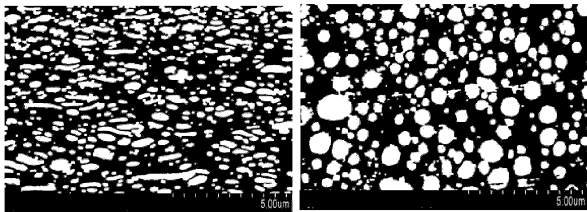
【図 10】



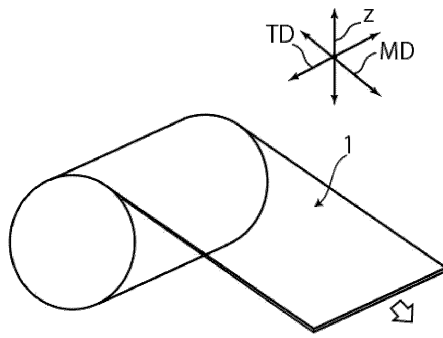
【図 13】



【図 11】



【図 14】



フロントページの続き

(56)参考文献 国際公開第2018/110702(WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01M50/10 - 50/198

H01M50/50 - 50/598

H01G11/00 - 11/86

(54)【発明の名称】金属端子用接着性フィルム、金属端子用接着性フィルムの製造方法、金属端子用接着性フィルム付き金属端子、当該金属端子用接着性フィルムを用いた蓄電デバイス、及び蓄電デバイスの製造方法