(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2025年5月30日(30.05.2025)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2025/110243 A1

(51) 国際特許分類:
H01M 50/131 (2021.01) *H01M 50/121* (2021.01)
H01G 11/78 (2013.01) *H01M 50/129* (2021.01)
H01G 11/84 (2013.01) *H01M 50/134* (2021.01)
H01M 50/105 (2021.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/041513

(22) 国際出願日： 2024年11月22日(22.11.2024)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2023-199199 2023年11月24日(24.11.2023) JP
特願 2023-199200 2023年11月24日(24.11.2023) JP
特願 2023-199201 2023年11月24日(24.11.2023) JP

(71) 出願人: 大日本印刷株式会社 (**DAI NIPPON PRINTING CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目１番１号 (JP).

(72) 発明者: 赤澤 徳俊 (**AKAZAWA, Noritoshi**); 〒1628001 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 (JP). 浅野 日花莉 (**ASANO, Hikari**); 〒1628001 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 (JP). 村澤 憲 (**MURASAWA, Ken**); 〒1628001 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 (JP).

(74) 代理人: 田中 順也, 外 (**TANAKA, Junya** et al.); 〒5300005 大阪府大阪市北区中之島６－２－４０ 中之島インテス２１階 (JP).

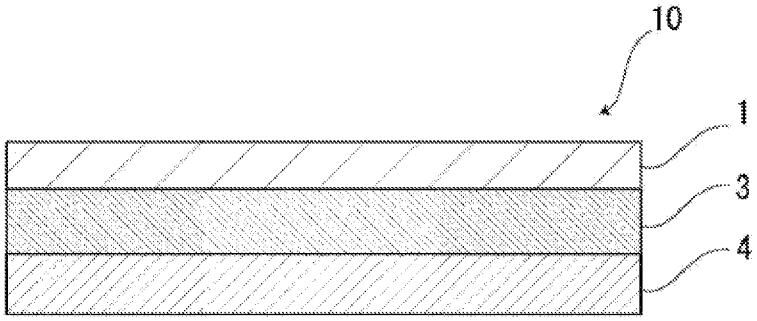
(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU,

(54) Title: EXTERIOR MATERIAL FOR POWER STORAGE DEVICE, METHOD FOR MANUFACTURING SAME, AND POWER STORAGE DEVICE

(54) 発明の名称： 蓄電デバイス用外装材、その製造方法、及び蓄電デバイス

［図1］



(57) Abstract: An exterior material for a power storage device, composed of a laminate comprising at least a substrate layer, a barrier layer, and a hot-melt resin layer in this order, wherein the hot-melt resin layer has a logarithmic decrement ΔE at 150°C of 0.075 or less in a rigid-body pendulum measurement.

(57) 要約：少なくとも、基材層、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、蓄電デバイス用外装材。

WO 2025/110243 A1

TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

明　細　書

発明の名称 ：

蓄電デバイス用外装材、その製造方法、及び蓄電デバイス

技術分野

[0001]　本開示は、蓄電デバイス用外装材、その製造方法、及び蓄電デバイスに関する。

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、電極や電解質などの蓄電デバイス素子を封止するために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外装材が多用されていた。

[0003]　一方、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、携帯電話などの高性能化に伴い、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。

[0004]　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／バリア層／熱融着性樹脂層が順次積層されたフィルム状の積層体が提案されている（例えば、特許文献１を参照）。

[0005]　このような蓄電デバイス用外装材においては、一般的に、冷間成形により凹部が形成され、当該凹部によって形成された空間に電極や電解液などの蓄電デバイス素子を配し、熱融着性樹脂層を熱融着させることにより、蓄電デバイス用外装材の内部に蓄電デバイス素子が収容された蓄電デバイスが得られる。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開２００８－２８７９７１号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 蓄電デバイスには、例えば１５０℃という非常に高温な環境での耐熱性が要求されることがある。例えば、自動車のエンジンルーム内で使用される蓄電デバイスには、１５０℃環境で使用可能な耐熱性が要求される。また、例えば、全固体電池は使用時に高温になるものがあり、蓄電デバイスが全固体電池である場合にも、高温環境における耐熱性が要求される。高温環境における耐熱性が要求される蓄電デバイスに使用される蓄電デバイス用外装材についても、同様の耐熱性が求められる。具体的には、このような蓄電デバイス用外装材には、１５０℃という非常に高温な環境における高いシール強度が求められる。

[0008] このような状況下、本開示の第１の態様は、耐熱性に優れた蓄電デバイス用外装材を提供することを主な目的とする。

[0009] また、従来、蓄電デバイス用外装材には、高い水蒸気バリア性が要求されている。蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂を熱融着して蓄電デバイス素子を収容する、蓄電デバイス用外装材の熱融着部では、その端面からの水蒸気の侵入を防ぐため、熱融着性樹脂層を形成する熱融着性樹脂にも高い水蒸気バリア性が求められる。また、電解質に液体を用いない硫化物系全固体電池では空気中の水分により硫化水素が発生する。このため、硫化物系全固体電池の蓄電デバイス用外装材には、より高い水蒸気バリア性が求められる。このように、蓄電デバイス用外装材には、高い水蒸気バリア性が要求される。

[0010] 本開示の第２の態様は、水蒸気バリア性に優れた蓄電デバイス用外装材を提供することを主な目的とする。

[0011] また、蓄電デバイスには、例えば１５０℃という非常に高温な環境での耐熱性が要求されることがある。例えば、自動車のエンジンルーム内で使用される蓄電デバイスには、１５０℃環境で使用可能な耐熱性が要求される。ま

た、例えば、全固体電池は使用時に高温になるものがあり、蓄電デバイスが全固体電池である場合にも、高温環境における耐熱性が要求される。高温環境における耐熱性が要求される蓄電デバイスに使用される蓄電デバイス用外装材についても、同様の耐熱性が求められる。具体的には、このような蓄電デバイス用外装材には、１５０℃という非常に高温な環境における高いシール強度が求められる。

[0012] また、蓄電デバイス用外装材には、高温環境における優れた絶縁性も求められる。

[0013] このような状況下、本開示の第３の態様は、耐熱性及び高温環境における絶縁性に優れた蓄電デバイス用外装材を提供することを主な目的とする。

課題を解決するための手段

[0014] （第１の態様）

本開示の発明者らは、上記のような第１の態様の課題を解決すべく鋭意検討を行った。その結果、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成された蓄電デバイス用外装材において、熱融着性樹脂層として、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが所定値以下のものを用いることにより、１５０℃という非常に高温な環境における高いシール強度を備える蓄電デバイス用外装材が得られることを見出した。

[0015] 本開示の第１の態様は、これらの知見に基づいて、更に検討を重ねることにより完成したものである。即ち、本開示の第１の態様は、下記に掲げる態様の発明を提供する。

少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、蓄電デバイス用外装材。

[0016] （第２の態様）

また、本開示の発明者らは、上記のような第２の態様の課題を解決すべく

鋭意検討を行った。その結果、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成された蓄電デバイス用外装材において、熱融着性樹脂層の断面画像に観察される海島構造の島部のサイズ及び結晶構造を制御することにより、蓄電デバイス用外装材の水蒸気バリア性が高められることを見出した。

[0017] 本開示の第２の態様は、これらの知見に基づいて、更に検討を重ねることにより完成したものである。即ち、本開示の第２の態様は、下記に掲げる態様の発明を提供する。

少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層の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、

前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まず、

前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される、蓄電デバイス用外装材。

[0018] （第３の態様）

さらに、本開示の発明者らは、上記のような第３の態様の課題を解決すべく鋭意検討を行った。その結果、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成された蓄電デバイス用外装材において、熱融着性樹脂層について示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線が所定の条件を満たすことにより、耐熱性及び高温環境における絶縁性に優れた蓄電デバイス用外装材が得られることを見出した。

[0019] 本開示の第３の態様は、これらの知見に基づいて、更に検討を重ねることにより完成したものである。即ち、本開示の第３の態様は、下記に掲げる態様の発明を提供する。

少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する、蓄電デバイス用外装材。

発明の効果

[0020] 本開示の第１の態様によれば、耐熱性に優れた蓄電デバイス用外装材を提供することができる。また、本開示の第１の態様によれば、当該蓄電デバイス用外装材の製造方法、及び当該蓄電デバイス用外装材を利用した蓄電デバイスを提供することもできる。

[0021] また、本開示の第２の態様によれば、水蒸気バリア性に優れた蓄電デバイス用外装材を提供することができる。また、本開示の第２の態様によれば、当該蓄電デバイス用外装材の製造方法、及び当該蓄電デバイス用外装材を利用した蓄電デバイスを提供することもできる。

[0022] 本開示の第３の態様によれば、耐熱性及び高温環境における絶縁性に優れた蓄電デバイス用外装材を提供することができる。また、本開示の第３の態様によれば、当該蓄電デバイス用外装材の製造方法、及び当該蓄電デバイス用外装材を利用した蓄電デバイスを提供することもできる。

図面の簡単な説明

[0023] [図1]本開示の蓄電デバイス用外装材の断面構造の一例を示す模式図である。

[図2]本開示の蓄電デバイス用外装材の断面構造の一例を示す模式図である。

[図3]本開示の蓄電デバイス用外装材の断面構造の一例を示す模式図である。

[図4]本開示の蓄電デバイス用外装材の断面構造の一例を示す模式図である。

[図5]本開示の蓄電デバイス用外装材により形成された包装体中に蓄電デバイス素子を収容する方法を説明するための模式図である。

[図6]剛体振り子測定の方法を説明するための模式図である。

[図7]シール強度の測定方法を説明するための模式図である。

[図8]シール強度の測定方法を説明するための模式図である。

[図9]島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層（矢印で挟まれた部分）を有する島部の画像（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）である。

[図10]耐電解液性の評価方法を説明するための模式図である。

[図11]蓄電デバイス用外装材から形成された包装体の水蒸気バリア性の評価方法を説明するための模式図である。

[図12]実施例１Ｃで得られた蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層について、示差走査熱量測定法によって取得したＤＳＣ曲線である。

[図13]比較例１Ｃで得られた蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層について、示差走査熱量測定法によって取得したＤＳＣ曲線である。

[図14]比較例２Ｃで得られた蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層について、示差走査熱量測定法によって取得したＤＳＣ曲線である。

[図15]図９を拡大した画像である。

発明を実施するための形態

[0024] 本開示の第１の態様の蓄電デバイス用外装材は、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下であることを特徴とする。本開示の第１の態様の蓄電デバイス用外装材によれば、当該構成を備えていることにより、優れた耐熱性を発揮することができる。

[0025] 本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材は、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、熱融着性樹脂層の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、当該断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まず、当該断面画像に

ついて、倍率５００００倍で島部を観察した場合に、島部には、ラメラ晶が観察されることを特徴とする。本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材によれば、当該構成を備えていることにより、優れた水蒸気バリア性を発揮することができる。

[0026] 本開示の第３の態様の蓄電デバイス用外装材は、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、前記熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在することを特徴とする。本開示の第３の態様の蓄電デバイス用外装材によれば、当該構成を備えていることにより、優れた耐熱性及び高温環境における絶縁性を発揮することができる。

[0027] 以下、本開示の蓄電デバイス用外装材について詳述する。本明細書の説明において、本開示の各態様（すなわち、第１の態様、第２の態様、及び第３の態様）に共通する内容については、本開示に関する内容として説明し、それぞれの態様に関する内容については、いずれの態様に関する内容であるかを示して説明を行う。

[0028] 本開示において、「～」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。本開示に段階的に記載されている数値範囲において、ある数値範囲で記載された上限値又は下限値は、他の段階的な記載の数値範囲の上限値又は下限値に置き換えてもよい。また、別個に記載された、上限値と上限値、上限値と下限値、又は下限値と下限値を組み合わせて、それぞれ、数値範囲としてもよい。また、本開示に記載されている数値範囲において、ある数値範囲で記載された上限値又は下限値は、実施例に示されている値に置き換えてもよい。

[0029] なお、蓄電デバイス用外装材において、後述のバリア層３については、通常、その製造過程におけるＭＤ（Ｍａｃｈｉｎｅ　Ｄｉｒｅｃｔｉｏｎ）と

ＴＤ（Ｔｒａｎｓｖｅｒｓｅ　Ｄｉｒｅｃｔｉｏｎ）を判別することができる。例えば、バリア層３がアルミニウム合金箔やステンレス鋼箔等の金属箔により構成されている場合、金属箔の圧延方向（ＲＤ：Ｒｏｌｌｉｎｇ　Ｄｉｒｅｃｔｉｏｎ）には、金属箔の表面に、いわゆる圧延痕と呼ばれる線状の筋が形成されている。圧延痕は、圧延方向に沿って伸びているため、金属箔の表面を観察することによって、金属箔の圧延方向を把握することができる。また、積層体の製造過程においては、通常、積層体のＭＤと、金属箔のＲＤとが一致するため、積層体の金属箔の表面を観察し、金属箔の圧延方向（ＲＤ）を特定することにより、積層体のＭＤを特定することができる。また、積層体のＴＤは、積層体のＭＤとは垂直方向であるため、積層体のＴＤについても特定することができる。また、同様に、熱融着性樹脂層のＭＤと、金属箔のＲＤとが一致するため、積層体の金属箔の表面を観察し、金属箔の圧延方向（ＲＤ）を特定することにより、熱融着性樹脂層のＭＤを特定することができる。また、熱融着性樹脂層のＴＤは、熱融着性樹脂層のＭＤとは垂直方向であるため、熱融着性樹脂層のＴＤについても特定することができる。

[0030]　また、アルミニウム合金箔やステンレス鋼箔等の金属箔の圧延痕により蓄電デバイス用外装材のＭＤが特定できない場合は、次の方法により特定することができる。蓄電デバイス用外装材のＭＤの確認方法として、蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂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、熱融着性樹脂層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、熱融着性樹脂層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、熱融着性樹脂層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。

[0031] １．蓄電デバイス用外装材の積層構造及び物性

本開示の蓄電デバイス用外装材１０は、例えば図１に示すように、バリア層３、及び熱融着性樹脂層４をこの順に備える積層体から構成されている。蓄電デバイス用外装材１０において、バリア層３側（基材層１を有する場合には基材層１側）が最外層側になり、熱融着性樹脂層４は最内層になる。蓄電デバイス用外装材１０と蓄電デバイス素子を用いて蓄電デバイスを組み立てる際に、蓄電デバイス用外装材１０の熱融着性樹脂層４同士を対向させた状態で、周縁部を熱融着させることによって形成された空間に、蓄電デバイス素子が収容される。本開示の蓄電デバイス用外装材１０を構成する積層体において、バリア層３を基準とし、バリア層３よりも熱融着性樹脂層４側が内側である。

[0032] 蓄電デバイス用外装材１０は、例えば図２から図４に示すように、基材層１とバリア層３との間に、これらの層間の接着性を高めることなどを目的として、必要に応じて接着剤層２を有していてもよい。また、例えば図３及び図４に示すように、バリア層３と熱融着性樹脂層４との間に、これらの層間の接着性を高めることなどを目的として、必要に応じて接着層５を有していてもよい。また、図４に示すように、バリア層３側（基材層１を有する場合には基材層１の外側（熱融着性樹脂層４側とは反対側））には、必要に応じて表面被覆層６などが設けられていてもよい。

[0033] 蓄電デバイス用外装材１０を構成する積層体の厚みとしては、特に制限されないが、コスト削減、エネルギー密度向上等の観点からは、例えば約３００μｍ以下、好ましくは約２５０μｍ以下、約２１０μｍ以下、約１９０μｍ以下、約１８０μｍ以下、約１５５μｍ以下、約１２０μｍ以下が挙げられる。また、蓄電デバイス用外装材１０を構成する積層体の厚みとしては、蓄電デバイス素子を保護するという蓄電デバイス用外装材の機能を維持する

観点からは、好ましくは約３５μｍ以上、約４５μｍ以上、約６０μｍ以上、約１５５μｍ以上、約１９０μｍ以上が挙げられる。また、蓄電デバイス用外装材１０を構成する積層体の好ましい範囲については、例えば、３５～３００μｍ程度、３５～２５０μｍ程度、３５～２１０μｍ程度、３５～１９０μｍ程度、３５～１８０μｍ程度、３５～１５５μｍ程度、３５～１２０μｍ程度、４５～３００μｍ程度、４５～２５０μｍ程度、４５～２１０μｍ程度、４５～１９０μｍ程度、４５～１８０μｍ程度、４５～１５５μｍ程度、４５～１２０μｍ程度、６０～３００μｍ程度、６０～２５０μｍ程度、６０～２１０μｍ程度、６０～１９０μｍ程度、６０～１８０μｍ程度、６０～１５５μｍ程度、６０～１２０μｍ程度、１５５～３００μｍ程度、１５５～２５０μｍ程度、１５５～２１０μｍ程度、１５５～１９０μｍ程度、１５５～１８０μｍ程度、１９０～３００μｍ程度、１９０～２５０μｍ程度、１９０～２１０μｍ程度が挙げられ、特に蓄電デバイスを軽量薄膜化する場合には６０～１５５μｍ程度が好ましく、成形性を向上させる場合には１５５～１９０μｍ程度が好ましい。

[0034] 蓄電デバイス用外装材１０において、蓄電デバイス用外装材１０を構成する積層体の厚み（総厚み）に対する、必要に応じて設けられる基材層１、必要に応じて設けられる接着剤層２、バリア層３、必要に応じて設けられる接着層５、熱融着性樹脂層４、及び必要に応じて設けられる表面被覆層６の合計厚みの割合は、好ましくは９０％以上であり、より好ましくは９５％以上であり、さらに好ましくは９８％以上である。具体例としては、本開示の蓄電デバイス用外装材１０が、基材層１、接着剤層２、バリア層３、接着層５、及び熱融着性樹脂層４を含む場合、蓄電デバイス用外装材１０を構成する積層体の厚み（総厚み）に対する、これら各層の合計厚みの割合は、好ましくは９０％以上であり、より好ましくは９５％以上であり、さらに好ましくは９８％以上である。また、本開示の蓄電デバイス用外装材１０が、基材層１、接着剤層２、バリア層３、及び熱融着性樹脂層４を含む積層体である場合にも、蓄電デバイス用外装材１０を構成する積層体の厚み（総厚み）に対

する、これら各層の合計厚みの割合は、例えば８０％以上、好ましくは９０％以上、より好ましくは９５％以上、さらに好ましくは９８％以上とすることができる。

[0035] 本開示の蓄電デバイス用外装材は、後述する＜２５℃又は１５０℃でのシール強度の測定＞に記載された方法によって測定される、１５０℃環境におけるシール強度が、好ましくは約１５．０Ｎ／１５ｍｍ以上、より好ましくは約２０．０Ｎ／１５ｍｍ以上、さらに好ましくは約２５．０Ｎ／１５ｍｍ以上である。上限については、例えば約１５０．０Ｎ／１５ｍｍ以下、約１００．０Ｎ／１５ｍｍ以下などであり、好ましい範囲としては、１５．０～１５０．０Ｎ／１５ｍ程度、１５．０～１００．０Ｎ／１５ｍ程度、２０．０～１５０．０Ｎ／１５ｍ程度、２０．０～１００．０Ｎ／１５ｍ程度、２５．０～１５０．０Ｎ／１５ｍ程度、２５．０～１００．０Ｎ／１５ｍ程度が挙げられる。

[0036] また、本開示の蓄電デバイス用外装材は、後述する＜２５℃又は１５０℃でのシール強度の測定＞に記載された方法によって測定される、２５℃環境におけるシール強度が、好ましくは約１００．０Ｎ／１５ｍｍ以上、より好ましくは約１２０．０Ｎ／１５ｍｍ以上、さらに好ましくは約１４０．０Ｎ／１５ｍｍ以上である。上限については、特になく、シール強度は強ければ強いほどよいが、例えば約３００．０Ｎ／１５ｍｍ以下、約２５０．０Ｎ／１５ｍｍ以下などであり、好ましい範囲としては、１００．０～３００．０Ｎ／１５ｍ程度、１００．０～２５０．０Ｎ／１５ｍ程度、１２０．０～３００．０Ｎ／１５ｍ程度、１２０．０～２５０．０Ｎ／１５ｍ程度、１４０．０～３００．０Ｎ／１５ｍ程度、１４０．０～２５０．０Ｎ／１５ｍ程度が挙げられる。

[0037] ＜２５℃又は１５０℃でのシール強度の測定＞

ＪＩＳ　Ｋ７１２７：１９９９の規定に準拠して、それぞれ、２５℃環境、１５０℃環境の各測定温度における蓄電デバイス用外装材のシール強度を次のようにして測定する。試験片として、ＴＤ方向の幅が１５ｍｍの短冊状

に裁断した蓄電デバイス用外装材を準備する。具体的には、図７に示すように、まず、各蓄電デバイス用外装材を７５ｍｍ（ＴＤ方向）×１５０ｍｍ（ＭＤ方向）に裁断する（図７ａ）。次に、熱融着性樹脂層同士が対向するようにして、蓄電デバイス用外装材を折り目Ｐ（ＭＤ方向の中間）の位置でＭＤ方向に２つ折りにする（図７ｂ）。折り目Ｐから１０ｍｍ程度ＭＤ方向に内側において、シール幅７ｍｍ、温度１９０℃、面圧１．０ＭＰａ、３秒間の条件で熱融着性樹脂層同士をヒートシールする（図７ｃ）。図７ｃにおいて、斜線部Ｓがヒートシールされている部分である。次に、ＴＤ方向の幅が１５ｍｍとなるようにして、ＭＤ方向に裁断（図７ｄの二点鎖線の位置で裁断）して試験片を得る（図７ｅ）。次に、試験片１３を各測定温度で５分間放置し、各測定温度環境において、引張り試験機で熱融着部の熱融着性樹脂層を３００ｍｍ／分の速度で剥離させる（図８）。剥離時の最大強度をシール強度（Ｎ／１５ｍｍ）とする。チャック間距離は、５０ｍｍである。なお、シール強度の測定においては、図８に示されるヒートシール界面Ａで試験片１３が剥離（破壊）される場合と、ヒートシール界面Ａとは異なる部分（例えば、図８のＢの位置）で試験片１３が破断する場合とがある。図８のＢの位置で破断した場合はその際に測定された値をシール強度とする。

[0038] また、本開示の蓄電デバイス用外装材は、後述する＜成形性評価＞に記載された方法によって評価される成形性において、白化が無いことが好ましい。

[0039] ＜成形性評価＞

各蓄電デバイス用外装材を長さ（ＭＤ）５５ｍｍ×幅（ＴＤ）５５ｍｍに裁断して試験サンプルとする。この試験サンプルを２５℃の環境下にて３０．０ｍｍ（ＭＤ）×３０．０ｍｍ（ＴＤ）の口径を有する矩形状の成形金型（雌型）を用いて、成形を実施する。成形深さが１２．０ｍｍとなるように、押さえ圧（面圧）０．１８ＭＰａ、ストローク速度は２０ｍｍ／ｓで冷間成形（引き込み１段成形）を行う。雄型側に熱融着性樹脂層側が位置するよう、雌型上に上記試験サンプルを載置して成形を行う。成形後の試験サンプ

ルの熱融着性樹脂層を目視で観察して、白化の有無を確認する。白化が発生する部分は、主として成形部の角の辺りである。

[0040] また、本開示の第１の態様の蓄電デバイス用外装材は、後述する＜耐電解液性評価＞に記載された方法によって測定される、含浸シール強度（サンプルに電解液が含浸した状態のシール強度）が、好ましくは約２０．０Ｎ／１５ｍｍ以上、より好ましくは約８０．０Ｎ／１５ｍｍ以上、さらに好ましくは約１３０．０Ｎ／１５ｍｍ以上である。上限については、特になく、シール強度は強ければ強いほどよいが、例えば約３００．０Ｎ／１５ｍｍ以下、約２５０．０Ｎ／１５ｍｍ以下などであり、好ましい範囲としては、２０．０～３００．０Ｎ／１５ｍｍ程度、２０．０～２５０．０Ｎ／１５ｍｍ程度、８０．０～３００．０Ｎ／１５ｍｍ程度、８０．０～２５０．０Ｎ／１５ｍｍ程度、１３０．０～３００．０Ｎ／１５ｍｍ程度、１３０．０～２５０．０Ｎ／１５ｍｍ程度が挙げられる。

[0041] ＜耐電解液性評価＞

図１０の模式図に示すように、ＴＤ９０ｍｍ×ＭＤ２００ｍｍにカットした蓄電デバイス用外装材をサンプルとした。サンプルを、ＭＤ１００ｍｍ箇所で折り曲げ、２つ折りされた状態でＴＤ方向における両端を幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させて、蓄電デバイス用外装材から形成された開口部を備える袋状の包装体とする。次に、袋状の包装体を露点－４０℃のドライルーム内にて１日保管し、開口する残り１つの端辺（開口部）から電解液（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）を入れ、開口部を幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させて、電解液を包装体内に密封する。開口物を熱融着させた端辺が上になるようにして、包装体を８５℃環境下にて１４日間保管する。保管後、開口物を熱融着させた端辺を切除して開口し、電解液を取り除き、３時間以内に、電解液が触れていた箇所

の熱融着性樹脂層同士を、ＭＤ方向に対して垂直になるように、幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させる。ＴＤ方向に対して垂直になるように幅１５ｍｍにカットし、ＭＤ方向に引っ張る際のシール強度測定サンプルを作製する。熱融着から１時間以内に、前述した２５℃環境におけるシール強度と同様の装置及び条件で、８５℃環境で１４日後の含浸シール強度（サンプルに電解液が含浸した状態のシール強度）を測定する。

[0042] また、本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材は、後述する＜蓄電デバイス用外装材から形成された包装体の水蒸気バリア性の評価＞に記載された方法によって測定される、温度６５℃相対湿度９０％での水蒸気透過係数が、好ましくは約５．０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以下、より好ましくは約４．８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以下、さらに好ましくは約４．６ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以下である。下限については、例えば約０．０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上、約１．２ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上などが挙げられる。好ましい範囲としては、０．０～５．０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．０～４．８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．０～４．６ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、１．２～５．０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、１．２～４．８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、１．２～４．６ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度が挙げられる。

[0043] ＜蓄電デバイス用外装材から形成された包装体の水蒸気バリア性の評価＞

図１１の模式図に示すように、ＴＤ７５ｍｍ×ＭＤ１５０ｍｍにカットした蓄電デバイス用外装材をサンプルとする。サンプルを、ＭＤ７５ｍｍ箇所で折り曲げ、２つ折りされた状態でＴＤ方向における両端を幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させて、蓄電デバイス用外装材から形成された開口部を備える袋状の包装体とする。尚、ＴＤ方向における両端のシール部を左右のシール部とする。この時、左右のシール箇所を膜厚計で膜厚を測定し、左右それぞれの膜厚から基材層、バリア層、接着剤層の厚みを引いた値（バリア層よりも熱融着性樹脂層側の層の厚みのみ）をシール部の膜厚とする。次に両端の左右のシール

箇所を３ｍｍにカットする。尚、カット後のシール部３．０ｍｍが水蒸気の透過距離となる。次に、袋状の包装体を露点－４０℃のドライルーム内にて１日保管し、開口する残り１つの端辺（開口部）から溶液（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）を２．０ｇ入れ、開口部を幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させて、溶液を包装体内に密封する。尚、溶液を注入したシール部を上部とする。上部のシール箇所を膜厚計で膜厚を測定し、基材層、バリア層、接着剤層の厚みを引いた値（バリア層よりも熱融着性樹脂層側の層の厚みのみ）をシールの膜厚とする。開口部をシールして出来た上部のシール箇所を３．０ｍｍにカットする。尚、カット後のシール部３．０ｍｍが水蒸気の透過距離となる。溶液を封入した包装体のそれぞれのシール部（左右および溶液を封入した上部）のシール部の長さを金尺で測定する。なお、図１１の最下部の図に示されるように、得られた包装体の２箇所の角部（２回シールされた部分）は、シール部全体に占める割合が僅かであるため、水蒸気バリア性の評価に対する影響はほとんどないといえる。水蒸気透過断面積m^2を下記式の通り設定する。

水蒸気透過断面積＝両端の断面積（右側のシール膜厚×右側の長さ＋左側のシール膜厚×左側の長さ）＋上側の断面積（上側のシール膜厚×上側のシール長さ）

[0044] 封入時の溶液の水分含有率（ｐｐｍ）をカールフィッシャー法の電量滴定法を用い測定する。次に、温度６５℃相対湿度９０％の恒温恒湿槽で４週間放置し、４週間放置後の溶液２．０ｇに対する水分含有率を測定する。４週間放置後の水分含有率の測定も、封入時（放置前）と同様に、カールフィッシャー法の電量滴定法を用い、水分含有率（ｐｐｍ）を測定する。

温度６５℃相対湿度９０％で４週間放置した後の測定した水分含有率（ｐｐｍ）、封入時（温度６５℃相対湿度９０％恒温恒湿槽への投入前）の水分含有率（ｐｐｍ）、封入した溶液量（ｇ）、水蒸気透過断面積（m^2）、温度

６５℃相対湿度９０％の投入時間（ｄａｙ）を利用し、下記式にて水蒸気透過係数（ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ）を算出する。このとき、小数点以下第２位を四捨五入して小数点以下第１位の値を算出する。

水蒸気透過係数＝（水蒸気の透過距離×（温度６５℃相対湿度９０％で４週間放置した後の測定した水分含有率－封入時の水分含有率）×封入した溶液量）／（水蒸気透過断面積×温度６５℃相対湿度９０％の投入時間）

[0045] また、本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材は、前述の＜蓄電デバイス用外装材から形成された包装体の水蒸気バリア性の評価＞に記載された方法によって測定される、温度４０℃相対湿度９０％での水蒸気透過係数が、好ましくは約０．６８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以下、より好ましくは約０．６６ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以下、さらに好ましくは約０．６４ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以下である。下限については、例えば約０．００ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上、約０．１０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上、約０．２０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上などである。好ましい範囲としては、０．００～０．６８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．００～０．６６ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．００～０．６４ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．１０～０．６８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．１０～０．６６ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．１０～０．６４ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．２０～０．６８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．２０～０．６６ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度、０．２０～０．６４ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ程度などが挙げられる。

[0046] 温度４０℃相対湿度９０％での水蒸気バリア性の評価については、前述した温度６５℃相対湿度９０％での水蒸気バリア性の評価において、温度６５℃相対湿度９０％の恒温恒湿槽を温度４０℃相対湿度９０％の恒温恒湿槽に変更すること以外は、同様にして水蒸気透過係数（ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ）算出を行う。このとき、小数点以下第３位を四捨五入して小数点以下第２位の値を算出する。

[0047] また、本開示の第３の態様の蓄電デバイス用外装材は、後述する＜１５０℃環境における絶縁性評価（体積抵抗率）＞に記載された方法によって測定

される、１５０℃環境における体積抵抗率が、好ましくは約１．０×１０^{14}Ω・ｃｍ以上、より好ましくは約１．５×１０^{14}Ω・ｃｍ以上、さらに好ましくは約２．０×１０^{14}Ω・ｃｍ以上であり、また、上限については、例えば約１．０×１０^{18}Ω・ｃｍ以下であり、好ましい範囲としては、１．０×１０^{14}Ω・ｃｍ～１．０×１０^{18}Ω・ｃｍ程度、１．５×１０^{14}Ω・ｃｍ～１．０×１０^{18}Ω・ｃｍ程度、２．０～×１０^{14}～１．０×１０^{18}Ω・ｃｍ程度が挙げられる。

[0048] ＜１５０℃環境における絶縁性評価（体積抵抗率）＞

蓄電デバイス用外装材を１０ｃｍ×１０ｃｍにカットし、膜厚を測定する。デジタル超高抵抗／微少電流計を用い、ＩＥＣ　６２６３１－３－１の規定に準拠し、蓄電デバイス用外装材の体積抵抗率を測定する。サンプルを１５０℃に設定したレジスティビティ・チェンバへ投入し、温度が１５０℃で安定した３分後、５００Ｖ印加し、１分後の電流値および膜厚から体積抵抗率を算出する。

[0049] <u>２．蓄電デバイス用外装材を形成する各層</u>

［基材層１］

本開示において、基材層１は、蓄電デバイス用外装材の基材としての機能を発揮させることなどを目的として、必要に応じて設けられる層である。基材層１は、蓄電デバイス用外装材の外層側に位置する。

[0050] 基材層１を形成する素材については、基材としての機能、すなわち少なくとも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ない。基材層１は、例えば樹脂を用いて形成することができ、樹脂には後述の添加剤が含まれていてもよい。

[0051] 基材層１が樹脂により形成されている場合、基材層１は、例えば、樹脂フィルムにより形成することができる。基材層１を樹脂フィルムにより形成する場合、基材層１をバリア層３などと積層して本開示の蓄電デバイス用外装材１０を製造する際に、予め形成された樹脂フィルムを基材層１として用いてもよい。また、基材層１を形成する樹脂を、押出成形や塗布などによって

バリア層３などの表面上でフィルム化して、樹脂フィルムにより形成された基材層１としてもよい。樹脂フィルムは、未延伸フィルムであってもよいし、延伸フィルムであってもよい。延伸フィルムとしては、一軸延伸フィルム、二軸延伸フィルムが挙げられ、二軸延伸フィルムが好ましい。二軸延伸フィルムを形成する延伸方法としては、例えば、逐次二軸延伸法、インフレーション法、同時二軸延伸法等が挙げられる。樹脂を塗布する方法としては、ロールコーティング法、グラビアコーティング法、押出コーティング法などが挙げられる。

[0052] 基材層１を形成する樹脂としては、例えば、ポリエステル、ポリアミド、ポリオレフィン、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、フッ素樹脂、ポリウレタン、珪素樹脂、フェノール樹脂などの樹脂や、これらの樹脂の変性物が挙げられる。また、基材層１を形成する樹脂は、これらの樹脂の共重合物であってもよいし、共重合物の変性物であってもよい。さらに、これらの樹脂の混合物であってもよい。

[0053] 基材層１は、これらの樹脂を主成分として含んでいることが好ましく、ポリエステル又はポリアミドを主成分として含んでいることがより好ましい。ここで、主成分とは、基材層１に含まれる樹脂成分のうち、含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上の樹脂成分であることを意味する。例えば、基材層１がポリエステル又はポリアミドを主成分として含むとは、基材層１に含まれる樹脂成分のうち、ポリエステル又はポリアミドの含有率が、それぞれ、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上であることを意味する。

[0054] 基材層１を形成する樹脂としては、これらの中でも、好ましくはポリエス

テル、ポリアミドが挙げられる。

[0055] 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、共重合ポリエステル等が挙げられる。また、共重合ポリエステルとしては、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等が挙げられる。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／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。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て使用してもよい。

[0056] また、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Ｌ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、ポリアミドＭＸＤ６（ポリメタキシリレンアジパミド）等の芳香族を含むポリアミド；ポリアミドＰＡＣＭ６（ポリビス（４－アミノシクロヘキシル）メタンアジパミド）等の脂環式ポリアミド；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のポリアミドが挙げられる。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て使用してもよい。

[0057] 基材層１は、ポリエステルフィルム、ポリアミドフィルム、及びポリオレフィンフィルムのうち少なくとも１つを含むことが好ましく、延伸ポリエステルフィルム、及び延伸ポリアミドフィルム、及び延伸ポリオレフィンフィルムのうち少なくとも１つを含むことが好ましく、延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム、延伸ポリブチレンテレフタレートフィルム、延伸ナイロンフィルム、延伸ポリプロピレンフィルムのうち少なくとも１つを含むことがさらに好ましく、二軸延伸ポリエチレンテレフタレートフィルム、二軸延伸ポリブチレンテレフタレートフィルム、二軸延伸ナイロンフィルム、二軸延伸ポリプロピレンフィルムのうち少なくとも１つを含むことがさらに好ましい。

[0058] 基材層１は、単層であってもよいし、２層以上により構成されていてもよい。基材層１が２層以上により構成されている場合、基材層１は、樹脂フィルムを接着剤などで積層させた積層体であってもよいし、樹脂を共押出しして２層以上とした樹脂フィルムの積層体であってもよい。また、樹脂を共押出しして２層以上とした樹脂フィルムの積層体を、未延伸のまま基材層１としてもよいし、一軸延伸または二軸延伸して基材層１としてもよい。

[0059] 基材層１において、２層以上の樹脂フィルムの積層体の具体例としては、ポリエステルフィルムとナイロンフィルムとの積層体、２層以上のナイロンフィルムの積層体、２層以上のポリエステルフィルムの積層体などが挙げられ、好ましくは、延伸ナイロンフィルムと延伸ポリエステルフィルムとの積層体、２層以上の延伸ナイロンフィルムの積層体、２層以上の延伸ポリエステルフィルムの積層体が好ましい。例えば、基材層１が２層の樹脂フィルムの積層体である場合、ポリエステル樹脂フィルムとポリエステル樹脂フィルムの積層体、ポリアミド樹脂フィルムとポリアミド樹脂フィルムの積層体、またはポリエステル樹脂フィルムとポリアミド樹脂フィルムの積層体が好ましく、ポリエチレンテレフタレートフィルムとポリエチレンテレフタレート

フィルムの積層体、ナイロンフィルムとナイロンフィルムの積層体、またはポリエチレンテレフタレートフィルムとナイロンフィルムの積層体がより好ましい。また、ポリエステル樹脂は、例えば電解液が表面に付着した際に変色し難いことなどから、基材層１が２層以上の樹脂フィルムの積層体である場合、ポリエステル樹脂フィルムが基材層１の最外層に位置することが好ましい。ポリエステル樹脂フィルムとポリアミド樹脂フィルムの積層体において、ポリエステル樹脂フィルムの厚みの好ましい範囲としては、２～３３μｍ程度、２～２８μｍ程度、２～２３μｍ程度、２～１８μｍ程度、２～１１μｍ程度、２～８μｍ程度、１０～３３μｍ程度、１０～２８μｍ程度、１０～２３μｍ程度、１０～１８μｍ程度、１０～１１μｍ程度、１８～３３μｍ程度、１８～２８μｍ程度、１８～２３μｍ程度、また、ポリアミド樹脂フィルムの厚みの好ましい範囲としては、２～３３μｍ程度、２～２８μｍ程度、２～２３μｍ程度、２～１８μｍ程度、２～１１μｍ程度、２～８μｍ程度、１０～３３μｍ程度、１０～２８μｍ程度、１０～２３μｍ程度、１０～１８μｍ程度、１０～１１μｍ程度、１８～３３μｍ程度、１８～２８μｍ程度、１８～２３μｍ程度が挙げられる。

[0060] 基材層１が、２層以上の樹脂フィルムの積層体である場合、２層以上の樹脂フィルムは、接着剤を介して積層させてもよい。好ましい接着剤については、後述の接着剤層２で例示する接着剤と同様のものが挙げられる。なお、２層以上の樹脂フィルムを積層させる方法としては、特に制限されず、公知方法が採用でき、例えばドライラミネート法、サンドイッチラミネート法、押出ラミネート法、サーマルラミネート法などが挙げられ、好ましくはドライラミネート法が挙げられる。ドライラミネート法により積層させる場合には、接着剤としてポリウレタン接着剤を用いることが好ましい。このとき、接着剤の厚みとしては、例えば２～５μｍ程度が挙げられる。また、樹脂フィルムにアンカーコート層を形成し積層させても良い。アンカーコート層は、後述の接着剤層２で例示する接着剤と同様のものが挙げられる。このとき、アンカーコート層の厚みとしては、例えば０．０１～１．０μｍ程度が挙

げられる。

[0061] また、基材層１の表面及び内部の少なくとも一方には、滑剤、難燃剤、アンチブロッキング剤、酸化防止剤、光安定剤、粘着付与剤、帯電防止剤、着色剤等の添加剤が存在していてもよい。添加剤は、１種類のみを用いてもよいし、２種類以上を混合して用いてもよい。

[0062] 本開示において、蓄電デバイス用外装材の成形性を高める観点からは、基材層１の表面及び内部の少なくとも一方には、滑剤が存在していることが好ましい。滑剤としては、特に制限されないが、好ましくはアミド系滑剤が挙げられる。アミド系滑剤の具体例としては、例えば、飽和脂肪酸アミド、不飽和脂肪酸アミド、置換アミド、メチロールアミド、飽和脂肪酸ビスアミド、不飽和脂肪酸ビスアミド、脂肪酸エステルアミド、芳香族ビスアミドなどが挙げられる。飽和脂肪酸アミドの具体例としては、ラウリン酸アミド、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、ベヘン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミドなどが挙げられる。不飽和脂肪酸アミドの具体例としては、オレイン酸アミド、エルカ酸アミドなどが挙げられる。置換アミドの具体例としては、Ｎ－オレイルパルミチン酸アミド、Ｎ－ステアリルステアリン酸アミド、Ｎ－ステアリルオレイン酸アミド、Ｎ－オレイルステアリン酸アミド、Ｎ－ステアリルエルカ酸アミドなどが挙げられる。また、メチロールアミドの具体例としては、メチロールステアリン酸アミドなどが挙げられる。飽和脂肪酸ビスアミドの具体例としては、メチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスカプリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、エチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンビスステアリン酸アミド、ヘキサメチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンヒドロキシステアリン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルアジピン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルセバシン酸アミドなどが挙げられる。不飽和脂肪酸ビスアミドの具体例としては、エチレンビスオレイン酸アミド、エチレンビスエルカ酸アミド、ヘキサメチレンビスオレイン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジオレイルアジピン酸アミ

ド、Ｎ，Ｎ’－ジオレイルセバシン酸アミドなどが挙げられる。脂肪酸エステルアミドの具体例としては、ステアロアミドエチルステアレートなどが挙げられる。また、芳香族ビスアミドの具体例としては、ｍ－キシリレンビスステアリン酸アミド、ｍ－キシリレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルイソフタル酸アミドなどが挙げられる。滑剤は、１種類単独で使用してもよいし、２種類以上を組み合わせて使用してもよく、２種類以上を組み合わせることが好ましい。

[0063] 基材層１の表面に滑剤が存在する場合、その存在量としては、特に制限されないが、例えば約３ｍｇ／m^2以上、好ましくは約４ｍｇ／m^2以上、約５ｍｇ／m^2以上が挙げられる。また、基材層１の表面に存在する滑剤量としては、例えば約１５ｍｇ／m^2以下、好ましくは約１４ｍｇ／m^2以下、約１０ｍｇ／m^2以下が挙げられる。また、基材層１の表面に存在する滑剤量の好ましい範囲としては、３～１５ｍｇ／m^2程度、３～１４ｍｇ／m^2程度、３～１０ｍｇ／m^2程度、４～１５ｍｇ／m^2程度、４～１４ｍｇ／m^2程度、４～１０ｍｇ／m^2程度、５～１５ｍｇ／m^2程度、５～１４ｍｇ／m^2程度、５～１０ｍｇ／m^2程度が挙げられる。

[0064] 基材層１の表面に存在する滑剤は、基材層１を構成する樹脂に含まれる滑剤を滲出させたものであってもよいし、基材層１の表面に滑剤を塗布したものであってもよい。

[0065] 基材層１の厚みについては、基材としての機能を発揮すれば特に制限されないが、例えば約３μｍ以上、好ましくは約１０μｍ以上が挙げられる。また、基材層１の厚みとしては、例えば約１００μｍ以下、約９０μｍ以下、約７０μｍ以下、約５０μｍ以下、好ましくは約３５μｍ以下、１１μｍ以下、８μｍ以下が挙げられる。また、基材層１の厚みの好ましい範囲としては、３～１００μｍ程度、３～９０μｍ程度、３～７０μｍ程度、３～５０μｍ程度、３～３５μｍ程度、３～１１μｍ程度、３～８μｍ程度、１０～１００μｍ程度、１０～９０μｍ程度、１０～７０μｍ程度、１０～５０μｍ程度、１０～３５μｍ程度、１０～１１μｍ程度が挙げられ、特に蓄電デ

バイスを軽量薄膜化する場合には３～３５μｍ程度、３～１１μｍ程度、３～８μｍ程度が好ましく、成形性を向上させる場合には３５～５０μｍ程度が好ましい。基材層１が、２層以上の樹脂フィルムの積層体である場合、各層を構成している樹脂フィルムの厚みとしては、特に制限されないが、それぞれ、例えば約２μｍ以上、好ましくは約１０μｍ以上、約１８μｍ以上が挙げられる。また、各層を構成している樹脂フィルムの厚みとしては、例えば約３３μｍ以下、好ましくは約２８μｍ以下、約２３μｍ以下、約１８μｍ以下、１１μｍ以下、８μｍ以下が挙げられる。また、各層を構成している樹脂フィルムの厚みの好ましい範囲としては、２～３３μｍ程度、２～２８μｍ程度、２～２３μｍ程度、２～１８μｍ程度、２～１１μｍ程度、２～８μｍ程度、１０～３３μｍ程度、１０～２８μｍ程度、１０～２３μｍ程度、１０～１８μｍ程度、１０～１１μｍ程度、１８～３３μｍ程度、１８～２８μｍ程度、１８～２３μｍ程度が挙げられる。

[0066] 基材層１が着色剤を含んでいることにより、蓄電デバイス用外装材を着色することができる。着色剤としては、顔料、染料などの公知のものが使用できる。また、着色剤は、１種類のみを用いてもよいし、２種類以上を混合して用いてもよい。

[0067] 顔料の種類は、基材層１の基材としての機能を損なわない範囲であれば、特に限定されない。有機顔料としては、例えば、アゾ系、フタロシアニン系、キナクリドン系、アンスラキノン系、ジオキサジン系、インジゴチオインジゴ系、ペリノン－ペリレン系、イソインドレニン系、ベンズイミダゾロン系等の顔料が挙げられ、無機顔料としては、カーボンブラック系、酸化チタン系、カドミウム系、鉛系、酸化クロム系、鉄系等の顔料が挙げられ、その他に、マイカ（雲母）の微粉末、魚鱗箔等が挙げられる。

[0068] 着色剤の中でも、例えば蓄電デバイス用外装材の外観を黒色とするためには、カーボンブラックが好ましい。また、蓄電デバイスから発生する熱を放熱する観点からは、マイカを用いることが好ましい。

[0069] 顔料の平均粒子径としては、特に制限されず、例えば、０．０３～５μｍ

程度、好ましくは０．０５～２μｍ程度が挙げられる。なお、顔料の平均粒子径は、レーザ回折／散乱式粒子径分布測定装置で測定されたメジアン径とする。

[0070] 基材層１における着色剤の含有量としては、蓄電デバイス用外装材が着色されれば特に制限されず、例えば５～６０質量％程度、好ましくは１０～４０質量％程度が挙げられる。

[0071] ［接着剤層２］

本開示の蓄電デバイス用外装材において、接着剤層２は、基材層１とバリア層３との接着性を高めることを目的として、必要に応じて、これらの間に設けられる層である。

[0072] 接着剤層２は、基材層１とバリア層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２の形成に使用される接着剤は限定されないが、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。また、２液硬化型接着剤（２液性接着剤）であってもよく、１液硬化型接着剤（１液性接着剤）であってもよく、硬化反応を伴わない樹脂でもよい。また、接着剤層２は単層であってもよいし、多層であってもよい。

[0073] 接着剤に含まれる接着成分としては、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、共重合ポリエステル等のポリエステル；ポリエーテル；ポリウレタン；エポキシ樹脂；フェノール樹脂；ナイロン６、ナイロン６６、ナイロン１２、共重合ポリアミド等のポリアミド；ポリオレフィン、環状ポリオレフィン、酸変性ポリオレフィン、酸変性環状ポリオレフィンなどのポリオレフィン系樹脂；ポリ酢酸ビニル；セルロース；（メタ）アクリル樹脂；ポリイミド；ポリカーボネート；尿素樹脂、メラミン樹脂等のアミノ樹脂；クロロプレンゴム、ニトリルゴム、スチレン－ブタジエンゴム等のゴム；シリコーン樹脂等が挙げられる。これらの接着成分は１種単独で使用してもよく、また２種以上を組み合わせて使用してもよい。これらの接着成分の中でも、好ましくはポリウレタン接着剤が

挙げられる。また、これらの接着成分となる樹脂は適切な硬化剤を併用して接着強度を高めることができる。前記硬化剤は、接着成分の持つ官能基に応じて、ポリイソシアネート、多官能エポキシ樹脂、オキサゾリン基含有ポリマー、ポリアミン樹脂、酸無水物などから適切なものを選択する。

[0074] ポリウレタン接着剤としては、例えば、ポリオール化合物を含有する第１剤と、イソシアネート化合物を含有する第２剤とを含むポリウレタン接着剤が挙げられる。好ましくはポリエステルポリオール、ポリエーテルポリオール、およびアクリルポリオール等のポリオールを第１剤として、芳香族系又は脂肪族系のポリイソシアネートを第２剤とした二液硬化型のポリウレタン接着剤が挙げられる。また、ポリウレタン接着剤としては、例えば、予めポリオール化合物とイソシアネート化合物とを反応させたポリウレタン化合物と、イソシアネート化合物とを含むポリウレタン接着剤が挙げられる。また、ポリウレタン接着剤としては、例えば、予めポリオール化合物とイソシアネート化合物とを反応させたポリウレタン化合物と、ポリオール化合物とを含むポリウレタン接着剤が挙げられる。また、ポリウレタン接着剤としては、例えば、予めポリオール化合物とイソシアネート化合物とを反応させたポリウレタン化合物を、空気中などの水分と反応させることによって硬化させたポリウレタン接着剤が挙げられる。ポリオール化合物としては、繰り返し単位の末端の水酸基に加えて、側鎖にも水酸基を有するポリエステルポリオールを用いることが好ましい。第２剤としては、脂肪族、脂環式、芳香族、芳香脂肪族のイソシアネート系化合物が挙げられる。イソシアネート系化合物としては、例えばヘキサメチレンジイソシアネート（ＨＤＩ）、キシリレンジイソシアネート（ＸＤＩ）、イソホロンジイソシアネート（ＩＰＤＩ）、水素化ＸＤＩ（Ｈ６ＸＤＩ）、水素化ＭＤＩ（Ｈ１２ＭＤＩ）、トリレンジイソシアネート（ＴＤＩ）、ジフェニルメタンジイソシアネート（ＭＤＩ）、ナフタレンジイソシアネート（ＮＤＩ）等が挙げられる。また、これらのジイソシアネートの１種類又は２種類以上からの多官能イソシアネート変性体等が挙げられる。また、ポリイソシアネート化合物として多量体（例え

ば三量体）を使用することもできる。このような多量体には、アダクト体、ビウレット体、ヌレート体等が挙げられる。接着剤層２がポリウレタン接着剤により形成されていることで蓄電デバイス用外装材に優れた電解液耐性が付与され、側面に電解液が付着しても基材層１が剥がれることが抑制される。

[0075] また、接着剤層２は、接着性を阻害しない限り他成分の添加が許容され、着色剤や熱可塑性エラストマー、粘着付与剤、フィラーなどを含有してもよい。接着剤層２が着色剤を含んでいることにより、蓄電デバイス用外装材を着色することができる。着色剤としては、顔料、染料などの公知のものが使用できる。また、着色剤は、１種類のみを用いてもよいし、２種類以上を混合して用いてもよい。

[0076] 顔料の種類は、接着剤層２の接着性を損なわない範囲であれば、特に限定されない。有機顔料としては、例えば、アゾ系、フタロシアニン系、キナクリドン系、アンスラキノン系、ジオキサジン系、インジゴチオインジゴ系、ペリノン－ペリレン系、イソインドレニン系、ベンズイミダゾロン系等の顔料が挙げられ、無機顔料としては、カーボンブラック系、酸化チタン系、カドミウム系、鉛系、酸化クロム系、鉄系等の顔料が挙げられ、その他に、マイカ（雲母）の微粉末、魚鱗箔等が挙げられる。

[0077] 着色剤の中でも、例えば蓄電デバイス用外装材の外観を黒色とするためには、カーボンブラックが好ましい。また、蓄電デバイスから発生する熱を放熱する観点より、マイカを用いることが好ましい。

[0078] 顔料の平均粒子径としては、特に制限されず、例えば、０．０３～５μｍ程度、好ましくは０．０５～２μｍ程度が挙げられる。なお、顔料の平均粒子径は、レーザ回折／散乱式粒子径分布測定装置で測定されたメジアン径とする。

[0079] 接着剤層２における着色剤の含有量としては、蓄電デバイス用外装材が着色されれば特に制限されず、例えば５～６０質量％程度、好ましくは１０～４０質量％が挙げられる。

[0080] 接着剤層２の厚みは、基材層１とバリア層３とを接着できれば、特に制限されないが、例えば、約１μｍ以上、約２μｍ以上である。また、接着剤層２の厚みは、例えば、約１０μｍ以下、約５μｍ以下である。また、接着剤層２の厚みの好ましい範囲については、１～１０μｍ程度、１～５μｍ程度、２～１０μｍ程度、２～５μｍ程度が挙げられる。

[0081] ［着色層］

着色層は、基材層１とバリア層３との間に必要に応じて設けられる層である（図示を省略する）。接着剤層２を有する場合には、基材層１と接着剤層２との間、接着剤層２とバリア層３との間に着色層を設けてもよい。また、基材層１の外側に着色層を設けてもよい。着色層を設けることにより、蓄電デバイス用外装材を着色することができる。

[0082] 着色層は、例えば、着色剤を含むインキを基材層１の表面、またはバリア層３の表面に塗布することにより形成することができる。着色剤としては、顔料、染料などの公知のものが使用できる。また、着色剤は、１種類のみを用いてもよいし、２種類以上を混合して用いてもよい。

[0083] 着色層に含まれる着色剤の具体例としては、［接着剤層２］の欄で例示したものと同じものが例示される。

[0084] ［バリア層３］

蓄電デバイス用外装材において、バリア層３は、少なくとも水分の浸入を抑止する層である。

[0085] バリア層３としては、例えば、バリア性を有する金属箔、蒸着膜、樹脂層などが挙げられる。蒸着膜としては金属蒸着膜、無機酸化物蒸着膜、炭素含有無機酸化物蒸着膜などが挙げられ、樹脂層としてはポリ塩化ビニリデン、クロロトリフルオロエチレン（ＣＴＦＥ）を主成分としたポリマー類やテトラフルオロエチレン（ＴＦＥ）を主成分としたポリマー類やフルオロアルキル基を有するポリマー、およびフルオロアルキル単位を主成分としたポリマー類などのフッ素含有樹脂、エチレンビニルアルコール共重合体などが挙げられる。また、バリア層３としては、これらの蒸着膜及び樹脂層の少なくと

も１層を設けた樹脂フィルムなども挙げられる。バリア層３は、複数層設けてもよい。バリア層３は、金属材料により構成された層を含むことが好ましい。バリア層３を構成する金属材料としては、具体的には、アルミニウム合金、ステンレス鋼、チタン鋼、鋼板などが挙げられ、金属箔として用いる場合は、アルミニウム合金箔、及びステンレス鋼箔の少なくとも一方を含むことが好ましい。

[0086] バリア層３において、前述した金属材料により構成された層は、金属材料のリサイクル材を含んでいてもよい。金属材料のリサイクル材としては、例えば、アルミニウム合金、ステンレス鋼、チタン鋼、又は鋼板のリサイクル材が挙げられる。これらのリサイクル材は、それぞれ、公知の方法で入手できる。アルミニウム合金のリサイクル材は、例えば、国際公開第２０２２/０９２２３１号に記載の製造方法によって入手できる。バリア層３は、リサイクル材のみによって構成されてもよいし、リサイクル材とバージン材との混合材料によって構成されてもよい。なお、金属材料のリサイクル材とは、いわゆる市中で使用された各種製品や、製造工程から出る廃棄物などを回収・単離・精製などを行って再利用可能な状態にした金属材料をいう。また、金属材料のバージン材とは、金属の天然資源（原材料）から精錬された新品の金属材料であって、リサイクル材でないものをいう。

[0087] アルミニウム合金箔は、蓄電デバイス用外装材の成形性を向上させる観点から、例えば、焼きなまし処理済みのアルミニウム合金などにより構成された軟質アルミニウム合金箔であることがより好ましく、より成形性を向上させる観点から、鉄を含むアルミニウム合金箔であることが好ましい。鉄を含むアルミニウム合金箔（１００質量％）において、鉄の含有量は、０．１～９．０質量％であることが好ましく、０．５～２．０質量％であることがより好ましい。鉄の含有量が０．１質量％以上であることにより、より優れた成形性を有する蓄電デバイス用外装材を得ることができる。鉄の含有量が９．０質量％以下であることにより、より柔軟性に優れた蓄電デバイス用外装材を得ることができる。軟質アルミニウム合金箔としては、例えば、ＪＩＳ

Ｈ４１６０：１９９４　Ａ８０２１Ｈ－Ｏ、ＪＩＳ　Ｈ４１６０：１９９４　Ａ８０７９Ｈ－Ｏ、ＪＩＳ　Ｈ４０００：２０１４　Ａ８０２１Ｐ－Ｏ、又はＪＩＳ　Ｈ４０００：２０１４　Ａ８０７９Ｐ－Ｏで規定される組成を備えるアルミニウム合金箔が挙げられる。また必要に応じて、ケイ素、マグネシウム、銅、マンガンなどが添加されていてもよい。また軟質化は焼鈍処理などで行うことができる。

[0088]　また、ステンレス鋼箔としては、オーステナイト系、フェライト系、オーステナイト・フェライト系、マルテンサイト系、析出硬化系のステンレス鋼箔などが挙げられる。さらに成形性に優れた蓄電デバイス用外装材を提供する観点から、ステンレス鋼箔は、オーステナイト系のステンレス鋼により構成されていることが好ましい。

[0089]　ステンレス鋼箔を構成するオーステナイト系のステンレス鋼の具体例としては、ＳＵＳ３０４、ＳＵＳ３０１、ＳＵＳ３１６Ｌなどが挙げられ、これら中でも、ＳＵＳ３０４が特に好ましい。

[0090]　バリア層３の厚みは、金属箔の場合、少なくとも水分の浸入を抑止するバリア層としての機能を発揮すればよく、例えば９～２００μｍ程度が挙げられる。バリア層３の厚みは、好ましくは約８５μｍ以下、より好ましくは約６０μｍ以下、さらに好ましくは約４０μｍ以下、特に好ましくは約３５μｍ以下である。また、バリア層３の厚みは、好ましくは約１０μｍ以上、さらに好ましくは約２０μｍ以上、より好ましくは約２５μｍ以上である。また、バリア層３の厚みの好ましい範囲としては、１０～８５μｍ程度、１０～６０μｍ程度、１０～４０μｍ程度、１０～３５μｍ程度、２０～８５μｍ程度、２０～６０μｍ程度、２０～４０μｍ程度、２０～３５μｍ程度、２５～８５μｍ程度、２５～６０μｍ程度、２５～４０μｍ程度、２５～３５μｍ程度が挙げられる。バリア層３がアルミニウム合金箔により構成されている場合、上述した範囲が特に好ましい。また、蓄電デバイス用外装材１０に高成形性及び高剛性を付与する観点からは、バリア層３の厚みは、好ましくは約３５μｍ以上、より好ましくは約４５μｍ以上、さらに好ましくは

約５０μｍ以上、さらに好ましくは約５５μｍ以上であり、また、好ましくは約２００μｍ以下、より好ましくは約８５μｍ以下、さらに好ましくは約７５μｍ以下、さらに好ましくは約７０μｍ以下であり、好ましい範囲としては、３５～２００μｍ程度、３５～８５μｍ程度、３５～７５μｍ程度、３５～７０μｍ程度、４５～２００μｍ程度、４５～８５μｍ程度、４５～７５μｍ程度、４５～７０μｍ程度、５０～２００μｍ程度、５０～８５μｍ程度、５０～７５μｍ程度、５０～７０μｍ程度、５５～２００μｍ程度、５５～８５μｍ程度、５５～７５μｍ程度、５５～７０μｍ程度である。蓄電デバイス用外装材１０が高成形性を備えることにより、深絞り成形が容易となり、蓄電デバイスの高容量化に寄与し得る。また、蓄電デバイスが高容量化されると、蓄電デバイスの重量が増加するが、蓄電デバイス用外装材１０の剛性が高められることにより、蓄電デバイスの高い密封性に寄与できる。また、特に、バリア層３がステンレス鋼箔により構成されている場合、ステンレス鋼箔の厚みは、好ましくは約６０μｍ以下、より好ましくは約５０μｍ以下、さらに好ましくは約４０μｍ以下、さらに好ましくは約３０μｍ以下、特に好ましくは約２５μｍ以下である。また、ステンレス鋼箔の厚みは、好ましくは約１０μｍ以上、より好ましくは約１５μｍ以上である。また、ステンレス鋼箔の厚みの好ましい範囲としては、１０～６０μｍ程度、１０～５０μｍ程度、１０～４０μｍ程度、１０～３０μｍ程度、１０～２５μｍ程度、１５～６０μｍ程度、１５～５０μｍ程度、１５～４０μｍ程度、１５～３０μｍ程度、１５～２５μｍ程度が挙げられる。

[0091] また、バリア層３が金属箔の場合は、溶解や腐食の防止などのために、少なくとも基材層と反対側の面に耐腐食性皮膜を備えていることが好ましい。バリア層３は、耐腐食性皮膜を両面に備えていてもよい。ここで、耐腐食性皮膜とは、例えば、ベーマイト処理などの熱水変成処理、化成処理、陽極酸化処理、ニッケルやクロムなどのメッキ処理、コーティング剤を塗工する腐食防止処理をバリア層の表面に行い、バリア層に耐腐食性（例えば耐酸性、耐アルカリ性など）を備えさせる薄膜をいう。耐腐食性皮膜は、具体的には

、バリア層の耐酸性を向上させる皮膜（耐酸性皮膜）、バリア層の耐アルカリ性を向上させる皮膜（耐アルカリ性皮膜）などを意味している。耐腐食性皮膜を形成する処理としては、１種類を行ってもよいし、２種類以上を組み合わせて行ってもよい。また、１層だけではなく多層化することもできる。さらに、これらの処理のうち、熱水変成処理及び陽極酸化処理は、処理剤によって金属箔表面を溶解させ、耐腐食性に優れる金属化合物を形成させる処理である。なお、これらの処理は、化成処理の定義に包含される場合もある。また、バリア層３が耐腐食性皮膜を備えている場合、耐腐食性皮膜を含めてバリア層３とする。

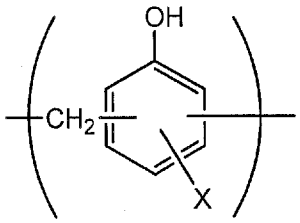
[0092] 耐腐食性皮膜は、蓄電デバイス用外装材の成形時において、バリア層（例えば、アルミニウム合金箔）と基材層との間のデラミネーション防止、電解質と水分とによる反応で生成するフッ化水素により、バリア層表面の溶解、腐食、特にバリア層がアルミニウム合金箔である場合にバリア層表面に存在する酸化アルミニウムが溶解、腐食することを防止し、かつ、バリア層表面の接着性（濡れ性）を向上させ、ヒートシール時の基材層とバリア層とのデラミネーション防止、成形時の基材層とバリア層とのデラミネーション防止の効果を示す。

[0093] 化成処理によって形成される耐腐食性皮膜としては、種々のものが知られており、主には、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、及び希土類酸化物のうち少なくとも１種を含む耐腐食性皮膜などが挙げられる。リン酸塩、クロム酸塩を用いた化成処理としては、例えば、クロム酸クロメート処理、リン酸クロメート処理、リン酸－クロム酸塩処理、クロム酸塩処理などが挙げられ、これらの処理に用いるクロム化合物としては、例えば、硝酸クロム、フッ化クロム、硫酸クロム、酢酸クロム、蓚酸クロム、重リン酸クロム、クロム酸アセチルアセテート、塩化クロム、硫酸カリウムクロムなどが挙げられる。また、これらの処理に用いるリン化合物としては、リン酸ナトリウム、リン酸カリウム、リン酸アンモニウム、ポリリン酸などが挙げられる。また、クロメート処理としてはエッチングクロメート

処理、電解クロメート処理、塗布型クロメート処理などが挙げられ、塗布型クロメート処理が好ましい。この塗布型クロメート処理は、バリア層（例えばアルミニウム合金箔）の少なくとも内層側の面を、まず、アルカリ浸漬法、電解洗浄法、酸洗浄法、電解酸洗浄法、酸活性化法等の周知の処理方法で脱脂処理を行い、その後、脱脂処理面にリン酸Ｃｒ（クロム）塩、リン酸Ｔｉ（チタン）塩、リン酸Ｚｒ（ジルコニウム）塩、リン酸Ｚｎ（亜鉛）塩などのリン酸金属塩及びこれらの金属塩の混合体を主成分とする処理液、または、リン酸非金属塩及びこれらの非金属塩の混合体を主成分とする処理液、あるいは、これらと合成樹脂などとの混合物からなる処理液をロールコート法、グラビア印刷法、浸漬法等の周知の塗工法で塗工し、乾燥する処理である。処理液は例えば、水、アルコール系溶剤、炭化水素系溶剤、ケトン系溶剤、エステル系溶剤、エーテル系溶剤など各種溶媒を用いることができ、水が好ましい。また、このとき用いる樹脂成分としては、フェノール系樹脂やアクリル系樹脂などの高分子などが挙げられ、下記一般式（１）～（４）で表される繰り返し単位を有するアミノ化フェノール重合体を用いたクロメート処理などが挙げられる。なお、当該アミノ化フェノール重合体において、下記一般式（１）～（４）で表される繰り返し単位は、１種類単独で含まれていてもよいし、２種類以上の任意の組み合わせであってもよい。アクリル系樹脂は、ポリアクリル酸、アクリル酸メタクリル酸エステル共重合体、アクリル酸マレイン酸共重合体、アクリル酸スチレン共重合体、またはこれらのナトリウム塩、アンモニウム塩、アミン塩等の誘導体であることが好ましい。特にポリアクリル酸のアンモニウム塩、ナトリウム塩、又はアミン塩等のポリアクリル酸の誘導体が好ましい。本開示において、ポリアクリル酸とは、アクリル酸の重合体を意味している。また、アクリル系樹脂は、アクリル酸とジカルボン酸又はジカルボン酸無水物との共重合体であることも好ましく、アクリル酸とジカルボン酸又はジカルボン酸無水物との共重合体のアンモニウム塩、ナトリウム塩、又はアミン塩であることも好ましい。アクリル系樹脂は、１種類のみを用いてもよいし、２種類以上を混合して用いても

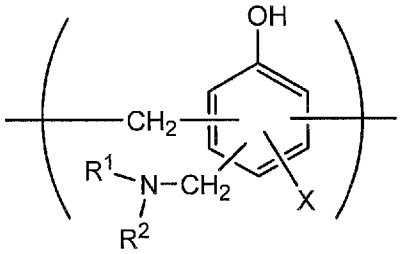
よい。

[0094] [化1]



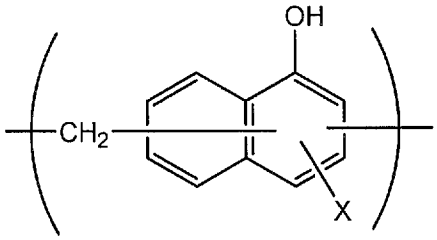
(1)

[0095] [化2]



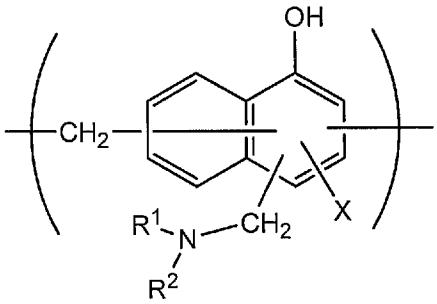
(2)

[0096] [化3]



(3)

[0097] [化4]



(4)

[0098] 一般式（１）～（４）中、Ｘは、水素原子、ヒドロキシ基、アルキル基、ヒドロキシアルキル基、アリル基またはベンジル基を示す。また、R^1及びR^2は、それぞれ同一または異なって、ヒドロキシ基、アルキル基、またはヒドロキシアルキル基を示す。一般式（１）～（４）において、Ｘ、R^1及びR^2で示されるアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、ｎ－プロピル

基、イソプロピル基、ｎ－ブチル基、イソブチル基、ｔｅｒｔ－ブチル基などの炭素数１～４の直鎖または分枝鎖状アルキル基が挙げられる。また、Ｘ、R^1及びR^2で示されるヒドロキシアルキル基としては、例えば、ヒドロキシメチル基、１－ヒドロキシエチル基、２－ヒドロキシエチル基、１－ヒドロキシプロピル基、２－ヒドロキシプロピル基、３－ヒドロキシプロピル基、１－ヒドロキシブチル基、２－ヒドロキシブチル基、３－ヒドロキシブチル基、４－ヒドロキシブチル基などのヒドロキシ基が１個置換された炭素数１～４の直鎖または分枝鎖状アルキル基が挙げられる。一般式（１）～（４）において、Ｘ、R^1及びR^2で示されるアルキル基及びヒドロキシアルキル基は、それぞれ同一であってもよいし、異なっていてもよい。一般式（１）～（４）において、Ｘは、水素原子、ヒドロキシ基またはヒドロキシアルキル基であることが好ましい。一般式（１）～（４）で表される繰り返し単位を有するアミノ化フェノール重合体の数平均分子量は、例えば、５００～１００万程度であることが好ましく、１０００～２万程度であることがより好ましい。アミノ化フェノール重合体は、例えば、フェノール化合物又はナフトール化合物とホルムアルデヒドとを重縮合して上記一般式（１）又は一般式（３）で表される繰返し単位からなる重合体を製造し、次いでホルムアルデヒド及びアミン（R^1R^2NH）を用いて官能基（$-CH_2NR^1R^2$）を上記で得られた重合体に導入することにより、製造される。アミノ化フェノール重合体は、１種単独で又は２種以上混合して使用される。

[0099] 耐腐食性皮膜の他の例としては、希土類元素酸化物ゾル、アニオン性ポリマー、カチオン性ポリマーからなる群から選ばれる少なくとも１種を含有するコーティング剤を塗工するコーティングタイプの腐食防止処理によって形成される薄膜が挙げられる。コーティング剤には、さらにリン酸またはリン酸塩、ポリマーを架橋させる架橋剤を含んでもよい。希土類元素酸化物ゾルには、液体分散媒中に希土類元素酸化物の微粒子（例えば、平均粒径１００ｎｍ以下の粒子）が分散されている。希土類元素酸化物としては、酸化セリウム、酸化イットリウム、酸化ネオジウム、酸化ランタン等が挙げられ、密

着性をより向上させる観点から酸化セリウムが好ましい。耐腐食性皮膜に含まれる希土類元素酸化物は１種を単独で又は２種以上を組み合わせて用いることができる。希土類元素酸化物ゾルの液体分散媒としては、例えば、水、アルコール系溶剤、炭化水素系溶剤、ケトン系溶剤、エステル系溶剤、エーテル系溶剤など各種溶媒を用いることができ、水が好ましい。カチオン性ポリマーとしては、例えば、ポリエチレンイミン、ポリエチレンイミンとカルボン酸を有するポリマーからなるイオン高分子錯体、アクリル主骨格に１級アミンをグラフト重合させた１級アミングラフトアクリル樹脂、ポリアリルアミンまたはその誘導体、アミノ化フェノールなどが好ましい。また、アニオン性ポリマーとしては、ポリ（メタ）アクリル酸またはその塩、あるいは（メタ）アクリル酸またはその塩を主成分とする共重合体であることが好ましい。また、架橋剤が、イソシアネート基、グリシジル基、カルボキシル基、オキサゾリン基のいずれかの官能基を有する化合物とシランカップリング剤よりなる群から選ばれる少なくとも１種であることが好ましい。また、前記リン酸またはリン酸塩が、縮合リン酸または縮合リン酸塩であることが好ましい。

[0100] 耐腐食性皮膜の一例としては、リン酸中に、酸化アルミニウム、酸化チタン、酸化セリウム、酸化スズなどの金属酸化物や硫酸バリウムの微粒子を分散させたものをバリア層の表面に塗布し、１５０℃以上で焼付け処理を行うことにより形成したものが挙げられる。

[0101] 耐腐食性皮膜は、必要に応じて、さらにカチオン性ポリマー及びアニオン性ポリマーの少なくとも一方を積層した積層構造としてもよい。カチオン性ポリマー、アニオン性ポリマーとしては、上述したものが挙げられる。

[0102] なお、耐腐食性皮膜の組成の分析は、例えば、飛行時間型２次イオン質量分析法を用いて行うことができる。

[0103] 化成処理においてバリア層３の表面に形成させる耐腐食性皮膜の量については、特に制限されないが、例えば、塗布型クロメート処理を行う場合であれば、バリア層３の表面１m^2当たり、クロム酸化合物がクロム換算で例えば

０．５～５０ｍｇ程度、好ましくは１．０～４０ｍｇ程度、リン化合物がリン換算で例えば０．５～５０ｍｇ程度、好ましくは１．０～４０ｍｇ程度、及びアミノ化フェノール重合体が例えば１．０～２００ｍｇ程度、好ましくは５．０～１５０ｍｇ程度の割合で含有されていることが望ましい。

[0104] 耐腐食性皮膜の厚みとしては、特に制限されないが、皮膜の凝集力や、バリア層や熱融着性樹脂層との密着力の観点から、好ましくは１ｎｍ～２０μｍ程度、より好ましくは１ｎｍ～１００ｎｍ程度、さらに好ましくは１ｎｍ～５０ｎｍ程度が挙げられる。なお、耐腐食性皮膜の厚みは、透過電子顕微鏡による観察、または、透過電子顕微鏡による観察と、エネルギー分散型Ｘ線分光法もしくは電子線エネルギー損失分光法との組み合わせによって測定することができる。飛行時間型２次イオン質量分析法を用いた耐腐食性皮膜の組成の分析により、例えば、ＣｅとＰとＯからなる２次イオン（例えば、$Ce_2PO_4^+$、$CePO_4^-$などの少なくとも１種）や、例えば、ＣｒとＰとＯからなる２次イオン（例えば、$CrPO_2^+$、$CrPO_4^-$などの少なくとも１種）に由来するピークが検出される。

[0105] 化成処理は、耐腐食性皮膜の形成に使用される化合物を含む溶液を、バーコート法、ロールコート法、グラビアコート法、浸漬法などによって、バリア層の表面に塗布した後に、バリア層の温度が７０～２００℃程度になるように加熱することにより行われる。また、バリア層に化成処理を施す前に、予めバリア層を、アルカリ浸漬法、電解洗浄法、酸洗浄法、電解酸洗浄法などによる脱脂処理に供してもよい。このように脱脂処理を行うことにより、バリア層の表面の化成処理をより効率的に行うことが可能となる。また、脱脂処理にフッ素含有化合物を無機酸で溶解させた酸脱脂剤を用いることで、金属箔の脱脂効果だけでなく不動態である金属のフッ化物を形成させることが可能であり、このような場合には脱脂処理だけを行ってもよい。

[0106] ［熱融着性樹脂層４］

本開示の蓄電デバイス用外装材において、熱融着性樹脂層４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機能を発揮する層（シーラント層）である。

[0107] （第１の態様の熱融着性樹脂層４）

本開示の第１の態様において、蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層４は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である。本開示の第１の態様の蓄電デバイス用外装材は、熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥが０．０７５以下という非常に低い値に設定されていることにより、１５０℃環境という非常に高温な環境において、高いシール強度を発揮することができる。

[0108] 本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥは、好ましくは約０．０７３以下、より好ましくは０．０７１以下である。当該対数減衰率ΔＥが低くなりすぎると、硬くなり、曲がらなく、成形性が悪化することから、好ましくは約０．０２０以上、より好ましくは約０．０２５以上、さらに好ましくは約０．０３０以上、０.０６５以上、０．０６９以上であり、好ましい範囲としては、０．０２０～０．０７５程度、０．０２０～０．０７３程度、０．０２０～０．０７１程度、０．０２５～０．０７５程度、０．０２５～０．０７３程度、０．０２５～０．０７１程度、０．０３０～０．０７５程度、０．０３０～０．０７３程度、０．０３０～０．０７１程度、０．０６５～０．０７５程度、０．０６５～０．０７３程度、０．０６５～０．０７１程度、０．０６９～０．０７５程度、０．０６９～０．０７３程度、０．０６９～０．０７１程度などが挙げられる。熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥは、以下の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法により測定される値である。

[0109] ＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞

剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定方法を説明するための模式図を図６に示す。剛体振り子型物性試験器を用い、振り子３０のフレームにはＦＲＢ－１００、エッジ部の円柱状シリンダエッジ３０ａにはＲＢＰ－０２０、冷熱ブロック３１にはＣＨＢ－１００を使用し、初期の振幅を約０．３

ｄｅｇｒｅｅとした。振り子吸着時間を１．０ｓ、測定間隔を１０ｓとした。ＭＤ４５ｍｍ、ＴＤ１５ｍｍにカットし、試験サンプルとする。さらに、振動変位検出器３２を使用している。

[0110] なお、本測定で採用する円柱状シリンダエッジＲＢＰ－０２０は、径が２ｍｍと小さく、測定時に熱融着性樹脂層の表面から内部に沈み込み易く、熱融着性樹脂層の厚み方向全体としての特性を評価することに適している。このため、本測定は、前述の高温環境（１５０℃環境）におけるシール強度との相関を評価する観点から適したものである。例えば、他のシリンダエッジとして、円筒形シリンダエッジＲＢＰ－０６０もあるが、当該シリンダエッジは、形状が円柱状ではなく円筒形であり、かつ、径が６ｍｍと大きいため、内部に沈みにくく表面付近の評価となる。

[0111] 冷熱ブロック３１上に試験サンプルの測定面（熱融着性樹脂層）を上方に向けて載置し、測定面上に振り子付き円柱状シリンダエッジ３０ａの軸線方向が試験サンプルのＭＤの方向に直交するように設置する。また、測定中の試験サンプルの浮きや反りを防ぐために、試験サンプルの測定結果に影響のない箇所にテープを貼りつけて冷熱ブロック３１上に固定する。円柱状シリンダエッジ３０ａを、熱融着性樹脂層の表面に接触させる。次に、冷熱ブロック３１を用いて昇温速度３℃／分にて０℃から１８０℃の温度範囲で熱融着性樹脂層の対数減衰率ΔＥの測定をＮ＝１で行う。試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。本開示の第１の態様においては、前述の１５０℃での耐熱シール強度が２５Ｎ／１５ｍｍ以上となる指標として、本測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥは、０．０７５以下を採用する。

なお、対数減衰率ΔＥは、以下の式によって算出される。

ΔＥ＝［ｌｎ（Ａ１／Ａ２）＋ｌｎ（Ａ２／Ａ３）＋．．．＋ｌｎ（Ａｎ／Ａｎ＋１）］／ｎ

Ａ：振幅

ｎ：波数

[0112] 第１の態様の熱融着性樹脂層４について、１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下となるように調整する方法としては、熱融着性樹脂層４の組成、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン、エラストマーなどを調整する方法が挙げられる。特に、熱融着性樹脂層４を形成する樹脂組成物の組成を、後述する具体的な組成（ランダムポリプロピレンの含有率が好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２５質量％程度などであり、ホモポリプロピレンの含有率が好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などであり、エラストマーの含有率が好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）を満たすように調整することで、熱融着性樹脂層４の１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下になりやすくなる。

[0113] 本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、熱融着性

樹脂層４の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、好ましくは約０．０２０超、より好ましくは約０．０２５以上、さらに好ましくは約０．０３０以上であり、また、好ましくは約０．０７５以下、より好ましくは約０．０７３以下、さらに好ましくは約０．０７１以下であり、好ましい範囲としては、０．０２０超０．０７５以下程度、０．０２０超０．０７３以下程度、０．０２０超０．０７１以下程度、０．０２５～０．０７５程度、０．０２５～０．０７３程度、０．０２５～０．０７１程度、０．０３０～０．０７５程度、０．０３０～０．０７３程度、０．０３０～０．０７１程度などが挙げられる。熱融着性樹脂層４の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、前記の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法において、「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」代わりに「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が８０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」こと以外は、熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥと同様にして測定される値である。

[0114] また、本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、熱融着性樹脂層４の表面について、ＦＴ－ＩＲのＡＴＲ測定モードを用いて測定される吸収スペクトルにおいて、非晶成分に由来する９７３ｃｍ$^{-1}$付近のピーク強度Ｐ１に対する、結晶成分に由来する９９８ｃｍ$^{-1}$付近のピーク強度Ｐ２の強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１が、好ましくは約０．７５０以上、より好ましくは約０．７５５以上、さらに好ましくは約０．７６０以上である。また、強度比Ｘが高く、結晶性が高くなりすぎると、伸びにくくなり、成形性が悪化するので、強度比Ｘは、好ましくは約０．８３０以下、より好ましくは約０．８２５以下、さらに好ましくは約０．８２０以下であり、好ましい範囲としては、０．７５０～０．８３０程度、０．７５０～０．８２５程度、０．７５０～０．８２０程度、０．７５５～０．８３０程度、０．７５５～０．８２５程度、０．７５５～０．８２０程度、０．７６０～０．８３０程度、０．７６０～０．８２５程度、０．７６０～０．８２０程度などが挙げられ

る。熱融着性樹脂層４の当該強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１は、以下の＜ＦＴ－ＩＲによる結晶性評価＞に記載された方法により測定される値である。

[0115] ＜ＦＴ－ＩＲによる結晶性評価＞

蓄電デバイス用外装材を３０ｍｍ×３０ｍｍの正方形に裁断してサンプルを作製する。得られたサンプルの熱接着性樹脂層の表面をＦＴ／ＩＲ６１００のＡＴＲ測定モードを用いて、温度２５℃、相対湿度５０％の環境下で赤外吸収スペクトル測定を実施する。得られた吸収スペクトルから、非晶成分に由来する９７３ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ１と、結晶成分に由来する９９８ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ２を測定し、吸収ピーク強度Ｐ１に対する吸収ピーク強度Ｐ２の強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１を算出する。ここで赤外吸収スペクトルは吸光度での値を用いる。

手法：マクロＡＴＲ法

波数分解能：４ｃｍ$^{-1}$

積算回数：３２回

検出器：ＴＧＳ検出器

ＡＴＲプリズム：ダイヤモンド

ベースライン：波数９２７ｃｍ$^{-1}$から１０６７ｃｍ$^{-1}$の範囲における強度の平均値

吸収ピーク強度Ｐ１：波数９７３ｃｍ$^{-1}$付近におけるピーク強度からベースラインの値を引いた値

吸収ピーク強度Ｐ２：波数９９８ｃｍ$^{-1}$付近におけるピーク強度からベースラインの値を引いた値

[0116] 例えばＸ線回折法（ＸＲＤ）は、検出深さが数十μｍであり、熱融着性樹脂層だけでなく、接着層も含んだ状態で結晶性を評価する。これに対し、ＦＴ－ＩＲのＡＴＲ法の検出深さは数μｍであり、熱融着性樹脂層のみの結晶性が反映される。このため、ＦＴ－ＩＲのＡＴＲ法では、電解液の影響を受ける熱融着性樹脂層の結晶性を反映させることが可能である。

[0117] 第１の態様の熱融着性樹脂層４について、前記強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１が０

．７６０以上となるように調整する方法としては、熱融着性樹脂層４の組成、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン、エラストマーなどを調整する方法が挙げられる。特に、熱融着性樹脂層４を形成する樹脂組成物の組成を、後述する具体的な組成（ランダムポリプロピレンの含有率が１０～３０質量％程度（好ましくは１５～２５質量％程度など）であり、ホモポリプロピレンの含有率が３０～７０質量％程度（好ましくは４０～６０質量％程度など）であり、エラストマーの含有率が１０～５０質量％程度（好ましくは２０～４０質量％程度など））を満たすように調整することで、熱融着性樹脂層４の前記強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１が０．７６０以上になりやすくなる。

[0118] また、本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、熱融着性樹脂層４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、かつ、断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内（より好ましくは８個以内、さらに好ましくは６個以内）であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まないことが好ましい。当該断面画像の観察は、後述する＜熱融着性樹脂層の断面観察＞に記載された方法により測定される。最大径は、走査型電子顕微鏡で観察した楕円状の島部について、楕円の長軸方向の径を意味する。

[0119] また、本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、前記断面画像について、倍率５００００倍で島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察されることが好ましい。本開示の第１の態様において、島部のラメラ晶とは、高分子鎖が折り畳まれてできた板状結晶であり、厚さは例えば１０～２０ｎｍ程度、長さは例えば５０～２００ｎｍ程度のサイズで、島部の中に線状に観察される（図９及び図１５を参照）。島部に観察されるラメラ晶の厚さ（図１５参照）は、好ましくは５ｎｍ以上、より好ましくは１０ｎｍ以上であり、また、好ましくは５０ｎｍ以下、より好ましくは２０ｎｍ以下であり、好ましい範囲としては、５～５０ｎｍ程度、５～２

０ｎｍ程度、１０～５０ｎｍ程度、１０～２０ｎｍ程度である。また、島部に観察されるラメラ晶の長さ（図１５参照）は、好ましくは１０ｎｍ以上、より好ましくは２０ｎｍ以上、より好ましくは５０ｎｍ以上であり、また、好ましくは４００ｎｍ以下、より好ましくは２００ｎｍ以下、さらに好ましくは１００ｎｍ以下であり、好ましい範囲としては、１０～４００ｎｍ程度、１０～２００ｎｍ程度、１０～１００ｎｍ程度、２０～４００ｎｍ程度、２０～２００ｎｍ程度、２０～１００ｎｍ程度、５０～４００ｎｍ程度、５０～２００ｎｍ程度、５０～１００ｎｍ程度である。

[0120] また、本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、断面画像について、倍率５００００倍で島部を観察した場合に、島部は、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を有しないことが好ましい。本開示の第１の態様において、島部と海部との境界部分の層とは、結晶性を有しないエラストマーによって形成されている部分である。図９に、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を有する島部の画像（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）を示す。図９の矢印で挟まれた部分が、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層であり、結晶性を有しないエラストマーにより形成されている。

[0121] ＜熱融着性樹脂層の断面観察＞

熱硬化性のエポキシ樹脂内に蓄電デバイス用外装材を包埋し硬化させる。市販品の回転式ミクロトームを用いて、断面を作製し、蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層を、包埋樹脂ごと四酸化ルテニウムにて３時間染色する。ミクロトームで断面を１μｍ切り進めた後、ダイヤモンドナイフを用いて厚み７０ｎｍ～１００ｎｍの染色された切片を採取する。染色された切片について、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。測定条件は、加速電圧：３０ｋＶ、エミッション電流：１０μＡ、検出器：透過検出器、傾斜：なし（０°）とする。海島構造は観察倍率２００００倍、ラメラ構造は観察倍率５００００倍とする。具体的には、熱融着性樹脂層の海島構造を観察する断面画像は、熱融着性樹脂層の中心部分について、１３．５

μｍ×１９．１μｍの範囲から、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲をランダムに選択して、４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲に含まれる島部の数を確認する。さらに、倍率２００００倍で観察された島部について、倍率を５００００倍に拡大して、島部のラメラ晶の有無についての観察、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を島部が有するか否かについての観察を行う。

[0122] 第１の態様の熱融着性樹脂層４について、前記の好ましい海島構造となるように調整する方法としては、熱融着性樹脂層４の組成、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン、エラストマーなどを調整する方法が挙げられる。特に、熱融着性樹脂層４を形成する樹脂組成物の組成を、後述する具体的な組成（ランダムポリプロピレンの含有率が好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２０質量％程度などであり、ホモポリプロピレンの含有率が好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などであり、エラストマーの含有率が好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程

度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）を満たすように調整することで、熱融着性樹脂層４が前記の好ましい海島構造になりやすくなる。

[0123] 第１の態様の熱融着性樹脂層４を構成している樹脂については、熱融着可能であり、かつ、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下であることを限度として特に制限されないが、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。

[0124] 第１の態様の熱融着性樹脂層４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。また、熱融着性樹脂層４を構成している樹脂を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１７６０ｃｍ$^{-1}$付近と波数１７８０ｃｍ$^{-1}$付近に無水マレイン酸由来のピークが検出される。熱融着性樹脂層４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。

[0125] 第１の態様の熱融着性樹脂層４は、ポリオレフィン骨格を含む樹脂を主成分として含んでいることが好ましく、ポリオレフィンを主成分として含んでいることがより好ましく、ポリプロピレンを主成分として含んでいることがさらに好ましい。ここで、主成分とは、熱融着性樹脂層４に含まれる樹脂成分のうち、含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上の樹脂成分であることを意味する。例えば、熱融着性樹脂層４がポリプロピレンを主成分とし

て含むとは、熱融着性樹脂層４に含まれる樹脂成分のうち、ポリプロピレンの含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上であることを意味する。

[0126] 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；エチレン－αオレフィン共重合体；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）等のポリプロピレン；プロピレン－αオレフィン共重合体；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。これらの中でも、ポリプロピレンが好ましい。ポリプロピレンは単独重合体あるいは共重合体どちらでも良い。共重合体である場合のポリオレフィン樹脂は、ブロック共重合体であってもよく、ランダム共重合体であってもよい。これらポリオレフィン系樹脂は、１種を単独で使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0127] また、ポリオレフィンは、環状ポリオレフィンであってもよい。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、スチレン、ブタジエン、イソプレン等が挙げられる。また、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；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。

[0128] また、ポリオレフィンは、酸変性ポリオレフィンであってもよい。酸変性ポリオレフィンとは、ポリオレフィンを酸成分でブロック重合又はグラフト

重合することにより変性したポリマーである。酸変性されるポリオレフィンとしては、前記のポリオレフィンや、前記のポリオレフィンにアクリル酸若しくはメタクリル酸等の極性分子を共重合させた共重合体、又は、架橋ポリオレフィン等の重合体等も使用できる。また、酸変性に使用される酸成分としては、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、無水イタコン酸等のカルボン酸またはその無水物が挙げられる。

[0129] 酸変性ポリオレフィンは、酸変性環状ポリオレフィンであってもよい。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、酸成分に代えて共重合することにより、または環状ポリオレフィンに対して酸成分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。酸変性される環状ポリオレフィンについては、前記と同様である。また、酸変性に使用される酸成分としては、前記のポリオレフィンの変性に使用される酸成分と同様である。

[0130] 好ましい酸変性ポリオレフィンとしては、カルボン酸またはその無水物で変性されたポリオレフィン、カルボン酸またはその無水物で変性されたポリプロピレン、無水マレイン酸変性ポリオレフィン、無水マレイン酸変性ポリプロピレンが挙げられる。

[0131] 本開示の第１の態様の蓄電デバイス用外装材においては、熱融着性樹脂層４の剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥを０．０７５以下とし、耐熱性を高める観点から、熱融着性樹脂層４は、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーを含む樹脂組成物により形成されていることが好ましい。当該樹脂組成物には、ブロックポリプロピレンが含まれていてもよいが、本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点からは、ブロックポリプロピレンが含まれていないことが好ましい。

[0132] 第１の態様の熱融着性樹脂層４は、１種の樹脂単独で形成してもよく、また２種以上の樹脂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４は、１層のみで形成されていてもよいが、同一又

は異なる樹脂によって２層以上で形成されていてもよい。

[0133] 本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、ランダムポリプロピレンの含有率は、好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２５質量％程度などが挙げられる。

[0134] また、本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、ホモポリプロピレンの含有率は、好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などが挙げられる。

[0135] 本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、エラストマーの含有率は、好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度などが挙げられる。

[0136] 本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物に含まれるエラストマーは、好ましくは２元系共重合体、３元系共重合体が挙げられる。また、エラストマーは、好ましくはプロピレン系エラストマーである。プロピレ系エラストマーは、例えば、２元系共重合体、３元系共重合体などが挙げられる。２元系共重合体としては、例えば、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー、プロピレン－ブテン共重合体エラストマー、３元系共重合体としては、例えば、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー、エチレン－プロピレン－ジエン共重合体エラストマーなどが挙げられる。エラストマーの中でも、２元系共重合体として、プロピレン－エチレン共重合体エラストマーが好ましい。

[0137] 本開示の第１の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物の具体的な組成としては、例えば、ランダムポリプロピレンの含有率が約５質量％以上（より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２０質量％程度など）であり、ホモポリプロピレンの含有率が約３０質量％以上（より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度など）であり、エラストマーの含有率が約１０質量％以上（より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下

であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）である。当該樹脂組成物は、樹脂（後述する滑剤等の添加剤は含まない）として、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーのみを含む樹脂組成物により形成されていることも好ましい。

[0138]（第２の態様の熱融着性樹脂層４）

本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層４は、熱融着性樹脂層４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、かつ、断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内（より好ましくは８個以内、さらに好ましくは６個以内）であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まない。当該断面画像の観察は、後述する＜熱融着性樹脂層の断面観察＞に記載された方法により測定される。最大径は、走査型電子顕微鏡で観察した楕円状の島部について、楕円の長軸方向の径を意味する。

[0139] また、本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材においては、熱融着性樹脂層の前記断面画像について、倍率５００００倍で島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される。本開示の第２の態様において、島部のラメラ晶とは、高分子鎖が折り畳まれてできた板状結晶であり、厚さ１０～２０ｎｍ、長さ５０～２００ｎｍのサイズで、島部の中に線状に観察される（図１５を参照）。島部に観察されるラメラ晶の厚さは、好ましくは５ｎｍ以上、より好ましくは１０ｎｍ以上であり、また、好ましくは５０ｎｍ以下、より好ましくは２０ｎｍ以下であり、好ましい範囲としては、５～５０ｎｍ程度、５～２０ｎｍ程度、１０～５０ｎｍ程度、１０～２０ｎｍ程度である。また、島部に観察されるラメラ晶の長さは、好ましくは１０ｎｍ以

上、より好ましくは２０ｎｍ以上、より好ましくは５０ｎｍ以上であり、また、好ましくは４００ｎｍ以下、より好ましくは２００ｎｍ以下、さらに好ましくは１００ｎｍ以下であり、好ましい範囲としては、１０～４００ｎｍ程度、１０～２００ｎｍ程度、１０～１００ｎｍ程度、２０～４００ｎｍ程度、２０～２００ｎｍ程度、２０～１００ｎｍ程度、５０～４００ｎｍ程度、５０～２００ｎｍ程度、５０～１００ｎｍ程度である。

[0140] また、本開示の第２の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、断面画像について、倍率５００００倍で島部を観察した場合に、島部は、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を有しないことが好ましい。本開示の第２の態様において、島部と海部との境界部分の層とは、結晶性を有しないエラストマーによって形成されている部分である。図９に、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を有する島部の画像（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）を示す。図９の矢印で挟まれた部分が、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層であり、結晶性を有しないエラストマーにより形成されている。

[0141] 第２の態様の熱融着性樹脂層４について、当該海島構造となるように調整する方法としては、熱融着性樹脂層４の組成、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン、エラストマーなどを調整する方法が挙げられる。特に、熱融着性樹脂層４を形成する樹脂組成物の組成を、後述する具体的な組成（ランダムポリプロピレンの含有率が好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２０質量％程度などであり、ホモポリプロピレンの含有率が好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質

量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などであり、エラストマーの含有率が好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）を満たすように調整することで、熱融着性樹脂層４が前記の好ましい海島構造になりやすくなる。

[0142] ＜熱融着性樹脂層の断面観察＞

熱硬化性のエポキシ樹脂内に蓄電デバイス用外装材を包埋し硬化させる。市販品の回転式ミクロトームを用いて、断面を作製し、蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層を、包埋樹脂ごと四酸化ルテニウムにて３時間染色する。ミクロトームで断面を１μｍ切り進めた後、ダイヤモンドナイフを用いて厚み７０ｎｍ～１００ｎｍの染色された切片を採取する。染色された切片について、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。測定条件は、加速電圧：３０ｋＶ、エミッション電流：１０μＡ、検出器：透過検出器、傾斜：なし（０°）とする。海島構造は観察倍率２００００倍、ラメラ構造は観察倍率５００００倍とする。具体的には、熱融着性樹脂層の海島構造を観察する断面画像は、熱融着性樹脂層の中心部分について、１３．５μｍ×１９．１μｍの範囲から、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲をランダムに選択して、４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲に含まれる島部の数を確認する。さらに、倍率２００００倍で観察された島部について、倍率を５００００倍に拡大して、島部のラメラ晶の有無について

の観察、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を島部が有するか否かについての観察を行う。

[0143] また、第２の態様の蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層４は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが、好ましくは０．０７５以下、より好ましくは約０．０７３以下、さらに好ましくは約０．０７１以下である。当該対数減衰率ΔＥが低くなりすぎると、硬くなり、曲がらなく、成形性が悪化することから、好ましくは約０．０２０以上、より好ましくは約０．０２５以上、さらに好ましくは約０．０３０以上であり、好ましい範囲としては、０．０２０～０．０７５程度、０．０２０～０．０７３程度、０．０２０～０．０７１程度、０．０２５～０．０７５程度、０．０２５～０．０７３程度、０．０２５～０．０７１程度、０．０３０～０．０７５程度、０．０３０～０．０７３程度、０．０３０～０．０７１程度などが挙げられる。本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材は、熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥが０．０７５以下という非常に低い値に設定されていることにより、１５０℃環境という非常に高温な環境において、高いシール強度を発揮することができる。熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥは、以下の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法により測定される値である。

[0144] ＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞

剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定方法を説明するための模式図を図６に示す。剛体振り子型物性試験器を用い、振り子３０のフレームにはＦＲＢ－１００、エッジ部の円柱状シリンダエッジ３０ａにはＲＢＰ－０２０、冷熱ブロック３１にはＣＨＢ－１００を使用し、初期の振幅を約０．３ｄｅｇｒｅｅとした。振り子吸着時間を１．０ｓ、測定間隔を１０ｓとした。ＭＤ４５ｍｍ、ＴＤ１５ｍｍにカットし、試験サンプルとする。さらに、振動変位検出器３２を使用している。

[0145] なお、本測定で採用する円柱状シリンダエッジＲＢＰ－０２０は、径が２ｍｍと小さく、測定時に熱融着性樹脂層の表面から内部に沈み込み易く、熱

融着性樹脂層の厚み方向全体としての特性を評価することに適している。このため、本測定は、後述する高温環境（１５０℃環境）におけるシール強度との相関を評価する観点から適したものである。例えば、他のシリンダエッジとして、円筒形シリンダエッジＲＢＰ－０６０もあるが、当該シリンダエッジは、形状が円柱状ではなく円筒形であり、かつ、径が６ｍｍと大きいため、内部に沈みにくく表面付近の評価となる。

[0146] 冷熱ブロック３１上に試験サンプルの測定面（熱融着性樹脂層）を上方に向けて載置し、測定面上に振り子付き円柱状シリンダエッジ３０ａの軸線方向が試験サンプルのＭＤの方向に直交するように設置する。また、測定中の試験サンプルの浮きや反りを防ぐために、試験サンプルの測定結果に影響のない箇所にテープを貼りつけて冷熱ブロック３１上に固定する。円柱状シリンダエッジ３０ａを、熱融着性樹脂層の表面に接触させる。次に、冷熱ブロック３１を用いて昇温速度３℃／分にて０℃から１８０℃の温度範囲で熱融着性樹脂層の対数減衰率ΔＥの測定をＮ＝１で行う。試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。本開示の第２の態様においては、前述の１５０℃での耐熱シール強度が２５Ｎ／１５ｍｍ以上となる指標として、本測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥは、０．０７５以下を採用する。

なお、対数減衰率ΔＥは、以下の式によって算出される。

ΔＥ＝［ｌｎ（Ａ１／Ａ２）＋ｌｎ（Ａ２／Ａ３）＋．．．＋ｌｎ（Ａｎ／Ａｎ＋１）］／ｎ

Ａ：振幅

ｎ：波数

[0147] 第２の態様の熱融着性樹脂層４について、１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下となるように調整する方法としては、熱融着性樹脂層４の組成、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン、エラストマーなどを調整する方法が挙げられる。特に、熱融着性樹脂層４を形成する樹脂組成物の組成を、後述する具体的な組成（ランダムポリプロピレンの含有率が好まし

くは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２０質量％程度などであり、ホモポリプロピレンの含有率が好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などであり、エラストマーの含有率が好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）を満たすように調整することで、熱融着性樹脂層４の１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下になりやすくなる。

[0148] 本開示の第２の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、熱融着性樹脂層４の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、好ましくは約０．０２０超、より好ましくは約０．０２５以上、さらに好ましくは０．０３０以上であり、また、好ましくは約０．０６５以下、より好ましくは約０．０６０以下、さらに好ましくは約０．０５５以下であり、好ましい範囲としては、０．０２０超０．０６５以下、０．０２０超０．０６０以下、０．０２０超０

．０５５以下、０．０２５～０．０６５程度、０．０２５～０．０６０程度、０．０２５～０．０５５程度、０．０３０～０．０６５程度、０．０３０～０．０６０程度、０．０３０～０．０５５程度などが挙げられる。熱融着性樹脂層４の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、前記の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法において、「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」代わりに「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が８０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」こと以外は、熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥと同様にして測定される値である。

[0149] 第２の態様の熱融着性樹脂層４を構成している樹脂については、熱融着可能であり、かつ、前記の海島構造を有することを限度として特に制限されないが、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。熱融着性樹脂層４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。また、熱融着性樹脂層４を構成している樹脂を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１７６０ｃｍ$^{-1}$付近と波数１７８０ｃｍ$^{-1}$付近に無水マレイン酸由来のピークが検出される。熱融着性樹脂層４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。

[0150] 第２の態様の熱融着性樹脂層４は、ポリオレフィン骨格を含む樹脂を主成分として含んでいることが好ましく、ポリオレフィンを主成分として含んでいることがより好ましく、ポリプロピレンを主成分として含んでいることがさらに好ましい。ここで、主成分とは、熱融着性樹脂層４に含まれる樹脂成

分のうち、含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上の樹脂成分であることを意味する。例えば、熱融着性樹脂層４がポリプロピレンを主成分として含むとは、熱融着性樹脂層４に含まれる樹脂成分のうち、ポリプロピレンの含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上であることを意味する。

[0151] 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；エチレン－αオレフィン共重合体；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）等のポリプロピレン；プロピレン－αオレフィン共重合体；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。これらの中でも、ポリプロピレンが好ましい。ポリプロピレンは単独重合体あるいは共重合体どちらでも良い。共重合体である場合のポリオレフィン樹脂は、ブロック共重合体であってもよく、ランダム共重合体であってもよい。これらポリオレフィン系樹脂は、１種を単独で使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0152] また、ポリオレフィンは、環状ポリオレフィンであってもよい。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、スチレン、ブタジエン、イソプレン等が挙げられる。また、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；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。

[0153] また、ポリオレフィンは、酸変性ポリオレフィンであってもよい。酸変性ポリオレフィンとは、ポリオレフィンを酸成分でブロック重合又はグラフト重合することにより変性したポリマーである。酸変性されるポリオレフィンとしては、前記のポリオレフィンや、前記のポリオレフィンにアクリル酸若しくはメタクリル酸等の極性分子を共重合させた共重合体、又は、架橋ポリオレフィン等の重合体等も使用できる。また、酸変性に使用される酸成分としては、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、無水イタコン酸等のカルボン酸またはその無水物が挙げられる。

[0154] 酸変性ポリオレフィンは、酸変性環状ポリオレフィンであってもよい。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、酸成分に代えて共重合することにより、または環状ポリオレフィンに対して酸成分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。酸変性される環状ポリオレフィンについては、前記と同様である。また、酸変性に使用される酸成分としては、前記のポリオレフィンの変性に使用される酸成分と同様である。

[0155] 好ましい酸変性ポリオレフィンとしては、カルボン酸またはその無水物で変性されたポリオレフィン、カルボン酸またはその無水物で変性されたポリプロピレン、無水マレイン酸変性ポリオレフィン、無水マレイン酸変性ポリプロピレンが挙げられる。

[0156] 本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材においては、熱融着性樹脂層４は、前記の海島構造を形成する観点から、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーを含む樹脂組成物により形成されていることが好ましい。当該樹脂組成物には、ブロックポリプロピレンが含まれていてもよいが、本開示の第２の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から

は、ブロックポリプロピレンが含まれていないことが好ましい。

[0157] 第２の態様の熱融着性樹脂層４は、１種の樹脂単独で形成してもよく、また２種以上の樹脂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４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によって２層以上で形成されていてもよい。

[0158] 本開示の第２の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、ランダムポリプロピレンの含有率は、好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２５質量％程度などが挙げられる。

[0159] また、本開示の第２の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、ホモポリプロピレンの含有率は、好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などが挙げられる。

[0160] 本開示の第２の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、エラストマーの含有率は、好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０

～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度などが挙げられる。

[0161] 本開示の第２の態様において、エラストマーとは、ゴムのように弾性をもつ柔らかい高分子を意味する。本開示の第２の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、エラストマーは、好ましくは２元系共重合体、３元系共重合体が挙げられる。また、エラストマーは、好ましくはプロピレン系エラストマーである。プロピレ系エラストマーは、例えば、２元系共重合体、３元系共重合体などが挙げられる。２元系共重合体としては、例えば、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー、プロピレン－ブテン共重合体エラストマー、３元系共重合体としては、例えば、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー、エチレン－プロピレン－ジエン共重合体エラストマーなどが挙げられる。エラストマーの中でも、２元系共重合体として、プロピレン－エチレン共重合体エラストマーが好ましい。

[0162] 本開示の第２の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物の具体的な組成としては、例えば、ランダムポリプロピレンの含有率が約５質量％以上（より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２５質量％程度など）であり、ホモポリプロピレンの含有率が約３０質量％以上（より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量

％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度など）であり、エラストマーの含有率が約１０質量％以上（より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）である。当該樹脂組成物は、樹脂（後述する滑剤等の添加剤は含まない）として、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーのみを含む樹脂組成物により形成されていることも好ましい。

[0163] （第３の態様の熱融着性樹脂層４）

本開示の第３の態様において、蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層４は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する。本開示の第３の態様の蓄電デバイス用外装材は、熱融着性樹脂層４のＤＳＣ曲線が当該特徴を備えることにより、優れた耐熱性と高温環境における絶縁性を発揮することができる。当該ＤＳＣ曲線は、後述の方法により取得される。

[0164] 本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、熱融着性樹脂層４の当該融解ピーク温度は、好ましくは約１６０．０℃以上、より好ましくは約１６２．０℃以上、さらに好ましくは約１６４．０℃以上であり、また、上限については、例えば約１８０．０℃以下であり、好ましい範囲としては、１６０．０～１８０．０℃程度、１６２．０～１８０．０℃程度、１６４．０～１８０．０℃程度が挙げられる。

[0165] また、本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当

該ＤＳＣ曲線における肩ピークが存在する温度（肩ピーク温度）は、好ましくは約１５２．０℃以上、さらに好ましくは約１５４．０℃以上であり、また、上限については、例えば約１６５．０℃以下であり、好ましい範囲としては、１５０．０℃超１６５．０℃以下程度、１５２．０～１６５．０℃程度、１５４．０～１６５．０℃程度が挙げられる。

[0166] 第３の態様の熱融着性樹脂層４について、ＤＳＣ曲線が前記の特徴（融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する）を備えるように調整する方法としては、熱融着性樹脂層４の組成、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン、エラストマーなどを調整する方法が挙げられる。特に、熱融着性樹脂層４を形成する樹脂組成物の組成を、後述する具体的な組成（ランダムポリプロピレンの含有率が好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２０質量％程度などであり、ホモポリプロピレンの含有率が好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などであり、エラストマーの含有率が好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約

４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）を満たすように調整することで、熱融着性樹脂層４のＤＳＣ曲線が前記の特徴を満たしやすくなる。

[0167] ＜示差走査熱量測定法による熱融着性樹脂層の評価（ＤＳＣ曲線の取得）＞

蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層について、ＪＩＳ　Ｋ７１２１：２０１２（プラスチックの転移温度測定方法）の規定に準拠し、示差走査熱量測定法（ＤＳＣ法）により、熱融着性樹脂層を形成する樹脂のＤＳＣ曲線を取得する。熱融着性樹脂層５－１０ｍｇをアルミパンへ入れ、カバーをした後、示差走査熱量計（島津製ＤＳＣ－６０）を用いて、ＤＳＣ曲線を取得する。測定は、－１０℃から２００℃までの温度領域を昇温速度１０℃／ｍｉｎ、降温速度－１０℃／ｍｉｎで実施し、２００℃に到達した時点から１０ｍｉｎ間、２００℃で保持し、さらに降温後－１０℃で１０ｍｉｎ間保持することで、熱履歴を除き、樹脂そのものの性能を調べるため、一度昇温・降温した後の２回目の昇温からＤＳＣ曲線を取得する。得られたＤＳＣ曲線から、熱融着性樹脂層の融解ピーク温度、及び１００．０℃以上の温度領域における肩ピークを確認する。測定は窒素雰囲気化で行い、窒素ガス流量を５０ｍＬ／ｍｉｎとした。融解ピーク温度及び肩ピーク温度は、小数点以下第２位を四捨五入した値である。肩ピークとは、ＤＳＣ曲線の融解ピークの補外融解開始温度から融解ピーク温度の温度範囲に存在する、融解ピーク温度よりも低温側の曲線の勾配が変化する部分であり、ショルダーピークとも言う。肩ピーク温度の求め方は、ＪＩＳ　Ｋ７１２１（プラスチックの転移温度測定方法）を参考に、下記（ｉ）、（ii）のように行うことが好ましい。

（ｉ）肩ピーク温度は、肩ピークの頂点の温度とする。

（ii）肩ピーク温度がなだらかで頂点を決定しにくい場合は、肩ピーク低温側の曲線に勾配が最大になる点で引いた接線と、肩ピーク高温側の曲線に勾

配が最小になる点で引いた接線の交点の温度とする。

[0168] また、本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥは、好ましくは０．０７５以下、より好ましくは約０．０７３以下、さらに好ましくは約０．０７１以下である。当該対数減衰率ΔＥが低くなりすぎると、硬くなり、曲がらなく、成形性が悪化することから、好ましくは約０．０２０以上、より好ましくは約０．０２５以上、さらに好ましくは約０．０３０以上であり、好ましい範囲としては、０．０２０～０．０７５程度、０．０２０～０．０７３程度、０．０２０～０．０７１程度、０．０２５～０．０７５程度、０．０２５～０．０７３程度、０．０２５～０．０７１程度、０．０３０～０．０７５程度、０．０３０～０．０７３程度、０．０３０～０．０７１程度などが挙げられる。本開示の第３の態様の蓄電デバイス用外装材は、熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥが０．０７５以下という非常に低い値に設定されていることにより、１５０℃環境という非常に高温な環境において、高いシール強度を発揮することができる。熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥは、以下の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法により測定される値である。

[0169] ＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞

剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定方法を説明するための模式図を図６に示す。剛体振り子型物性試験器を用い、振り子３０のフレームにはＦＲＢ－１００、エッジ部の円柱状シリンダエッジ３０ａにはＲＢＰ－０２０、冷熱ブロック３１にはＣＨＢ－１００を使用し、初期の振幅を約０．３ｄｅｇｒｅｅとした。振り子吸着時間を１．０ｓ、測定間隔を１０ｓとした。ＭＤ４５ｍｍ、ＴＤ１５ｍｍにカットし、試験サンプルとする。さらに、振動変位検出器３２を使用している。

[0170] なお、本測定で採用する円柱状シリンダエッジＲＢＰ－０２０は、径が２ｍｍと小さく、測定時に熱融着性樹脂層の表面から内部に沈み込み易く、熱融着性樹脂層の厚み方向全体としての特性を評価することに適している。こ

のため、本測定は、後述する高温環境（１５０℃環境）におけるシール強度との相関を評価する観点から適したものである。例えば、他のシリンダエッジとして、円筒形シリンダエッジＲＢＰ－０６０もあるが、当該シリンダエッジは、形状が円柱状ではなく円筒形であり、かつ、径が６ｍｍと大きいため、内部に沈みにくく表面付近の評価となる。

[0171] 冷熱ブロック３１上に試験サンプルの測定面（熱融着性樹脂層）を上方に向けて載置し、測定面上に振り子付き円柱状シリンダエッジ３０ａの軸線方向が試験サンプルのＭＤの方向に直交するように設置する。また、測定中の試験サンプルの浮きや反りを防ぐために、試験サンプルの測定結果に影響のない箇所にテープを貼りつけて冷熱ブロック３１上に固定する。円柱状シリンダエッジ３０ａを、熱融着性樹脂層の表面に接触させる。次に、冷熱ブロック３１を用いて昇温速度３℃／分にて０℃から１８０℃の温度範囲で熱融着性樹脂層の対数減衰率ΔＥの測定をＮ＝１で行う。試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。本開示の第３の態様においては、前述の１５０℃での耐熱シール強度が２５Ｎ／１５ｍｍ以上となる指標として、本測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥは、０．０７５以下を採用する。

なお、対数減衰率ΔＥは、以下の式によって算出される。このとき、小数点以下第４位を四捨五入して小数点以下第３位の値を算出する。

ΔＥ＝［ｌｎ（Ａ１／Ａ２）＋ｌｎ（Ａ２／Ａ３）＋．．．＋ｌｎ（Ａｎ／Ａｎ＋１）］／ｎ

Ａ：振幅

ｎ：波数

[0172] 第３の態様の熱融着性樹脂層４について、１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下となるように調整する方法としては、熱融着性樹脂層４の組成（ランダムポリプロピレンの含有率が好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さら

に好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２０質量％程度などであり、ホモポリプロピレンの含有率が好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などであり、エラストマーの含有率が好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）を満たすように調整することで、熱融着性樹脂層４の１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下になりやすくなる。

[0173] 本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、熱融着性樹脂層４の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、好ましくは約０．０２０超、より好ましくは約０．０２５以上、さらに好ましくは０．０３０以上であり、また、好ましくは約０．０６５以下、より好ましくは約０．０６０以下、さらに好ましくは約０．０５５以下であり、好ましい範囲としては、０．０２０超０．０６５以下、０．０２０超０．０６０以下、０．０２０超０．０５５以下、０．０２５～０．０６５程度、０．０２５～０．０６０程度、０．０２５～０．０５５程度、０．０３０～０．０６５程度、０．０３０～０．０６０程度、０．０３０～０．０５５程度などが挙げられる。熱融着

性樹脂層４の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、前記の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法において、「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」代わりに「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が８０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」こと以外は、熱融着性樹脂層４の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥと同様にして測定される値である。

[0174] 第３の態様の熱融着性樹脂層４を構成している樹脂については、熱融着可能であり、かつ、ＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在することを限度として特に制限されないが、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。熱融着性樹脂層４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。また、熱融着性樹脂層４を構成している樹脂を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１７６０ｃｍ$^{-1}$付近と波数１７８０ｃｍ$^{-1}$付近に無水マレイン酸由来のピークが検出される。熱融着性樹脂層４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。

[0175] 第３の態様の熱融着性樹脂層４は、ポリオレフィン骨格を含む樹脂を主成分として含んでいることが好ましく、ポリオレフィンを主成分として含んでいることがより好ましく、ポリプロピレンを主成分として含んでいることがさらに好ましい。ここで、主成分とは、熱融着性樹脂層４に含まれる樹脂成分のうち、含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、

より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上の樹脂成分であることを意味する。例えば、熱融着性樹脂層４がポリプロピレンを主成分として含むとは、熱融着性樹脂層４に含まれる樹脂成分のうち、ポリプロピレンの含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上であることを意味する。

[0176] 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；エチレン－αオレフィン共重合体；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）等のポリプロピレン；プロピレン－αオレフィン共重合体；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。これらの中でも、ポリプロピレンが好ましい。ポリプロピレンは単独重合体あるいは共重合体どちらでも良い。共重合体である場合のポリオレフィン樹脂は、ブロック共重合体であってもよく、ランダム共重合体であってもよい。これらポリオレフィン系樹脂は、１種を単独で使用してもよく、２種以上を併用してもよい。

[0177] また、ポリオレフィンは、環状ポリオレフィンであってもよい。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、スチレン、ブタジエン、イソプレン等が挙げられる。また、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；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。

[0178] また、ポリオレフィンは、酸変性ポリオレフィンであってもよい。酸変性ポリオレフィンとは、ポリオレフィンを酸成分でブロック重合又はグラフト重合することにより変性したポリマーである。酸変性されるポリオレフィンとしては、前記のポリオレフィンや、前記のポリオレフィンにアクリル酸若しくはメタクリル酸等の極性分子を共重合させた共重合体、又は、架橋ポリオレフィン等の重合体等も使用できる。また、酸変性に使用される酸成分としては、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、無水イタコン酸等のカルボン酸またはその無水物が挙げられる。

[0179] 酸変性ポリオレフィンは、酸変性環状ポリオレフィンであってもよい。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、酸成分に代えて共重合することにより、または環状ポリオレフィンに対して酸成分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。酸変性される環状ポリオレフィンについては、前記と同様である。また、酸変性に使用される酸成分としては、前記のポリオレフィンの変性に使用される酸成分と同様である。

[0180] 好ましい酸変性ポリオレフィンとしては、カルボン酸またはその無水物で変性されたポリオレフィン、カルボン酸またはその無水物で変性されたポリプロピレン、無水マレイン酸変性ポリオレフィン、無水マレイン酸変性ポリプロピレンが挙げられる。

[0181] 本開示の第３の態様の蓄電デバイス用外装材においては、熱融着性樹脂層４のＤＳＣ曲線が前記の条件（すなわち、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する）を満たす観点から、熱融着性樹脂層４は、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーを含む樹脂組成物により形成されていることが好ましい。当該樹

脂組成物には、ブロックポリプロピレンが含まれていてもよいが、本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点からは、ブロックポリプロピレンが含まれていないことが好ましい。

[0182] 熱融着性樹脂層４は、１種の樹脂単独で形成してもよく、また２種以上の樹脂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４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によって２層以上で形成されていてもよい。

[0183] 本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、ランダムポリプロピレンの含有率は、好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２０質量％程度などが挙げられる。

[0184] また、本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、ホモポリプロピレンの含有率は、好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度などが挙げられる。

[0185] 本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物において、エラストマーの含有率は、好ましくは約１０質量％以上、より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であ

り、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度などが挙げられる。

[0186] 本開示の第３の態様において、エラストマーとは、ゴムのように弾性をもつ柔らかい高分子を意味する。本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、エラストマーは、好ましくは２元系共重合体、３元系共重合体が挙げられる。また、エラストマーは、好ましくはプロピレン系エラストマーである。プロピレ系エラストマーは、例えば、２元系共重合体、３元系共重合体などが挙げられる。２元系共重合体としては、例えば、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー、プロピレン－ブテン共重合体エラストマー、３元系共重合体としては、例えば、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー、エチレン－プロピレン－ジエン共重合体エラストマーなどが挙げられる。エラストマーの中でも、２元系共重合体として、プロピレン－エチレン共重合体エラストマーが好ましい。

[0187] 本開示の第３の態様の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物の具体的な組成としては、例えば、ランダムポリプロピレンの含有率が約５質量％以上（より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約３５質量％以下、より好ましくは約３０質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～３５質量％程度、５～３０質量％程度、５～２０質量％程度、１０～３５質量％程度、１０～３０質量％程度、１０～２０質量％程度、１５～３５質量％程度、１５～３０質量％程度、１５～２０質量％程度など）であり、ホモポリプロピレンの含有率が約３０質量％以上（より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約７０質量％以下、より好ましくは約６５質量％以下、さらに

好ましくは約６０質量％以下であり、好ましい範囲としては、３０～７０質量％程度、３０～６５質量％程度、３０～６０質量％程度、３５～７０質量％程度、３５～６５質量％程度、３５～６０質量％程度、４０～７０質量％程度、４０～６５質量％程度、４０～６０質量％程度など）であり、エラストマーの含有率が約１０質量％以上（より好ましくは約１５質量％以上、さらに好ましくは約２０質量％以上であり、また、好ましくは約５０質量％以下、より好ましくは約４５質量％以下、さらに好ましくは約４０質量％以下であり、好ましい範囲としては、１０～５０質量％程度、１０～４５質量％程度、１０～４０質量％程度、１５～５０質量％程度、１５～４５質量％程度、１５～４０質量％程度、２０～５０質量％程度、２０～４５質量％程度、２０～４０質量％程度など）である。当該樹脂組成物は、樹脂（後述する滑剤等の添加剤は含まない）として、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーのみを含む樹脂組成物により形成されていることも好ましい。

[0188] 本開示において、熱融着性樹脂層４をバリア層３や接着層５などと積層して本開示の蓄電デバイス用外装材１０を製造する際に、予め形成された樹脂フィルムを熱融着性樹脂層４として用いてもよい。また、熱融着性樹脂層４を形成する熱融着性樹脂を、押出成形や塗布などによってバリア層３や接着層５などの表面上でフィルム化して、樹脂フィルムにより形成された熱融着性樹脂層４としてもよい。

[0189] また、本開示において、熱融着性樹脂層４は、必要に応じて滑剤などを含んでいてもよい。熱融着性樹脂層４が滑剤を含む場合、蓄電デバイス用外装材の成形性を高め得る。滑剤としては、特に制限されず、公知の滑剤を用いることができる。

[0190] 滑剤としては、特に制限されないが、好ましくはアミド系滑剤が挙げられる。滑剤の具体例としては、基材層１で例示したものが挙げられる。滑剤は、１種類単独で使用してもよいし、２種類以上を組み合わせて使用してもよく、２種類以上を組み合わせることが好ましい。

[0191] 本開示において、蓄電デバイス用外装材の成形性を高める観点からは、熱融着性樹脂層４の表面及び内部の少なくとも一方には、滑剤が存在していることが好ましい。滑剤としては、特に制限されないが、好ましくはアミド系滑剤が挙げられる。アミド系滑剤の具体例としては、例えば、飽和脂肪酸アミド、不飽和脂肪酸アミド、置換アミド、メチロールアミド、飽和脂肪酸ビスアミド、不飽和脂肪酸ビスアミド、脂肪酸エステルアミド、芳香族ビスアミドなどが挙げられる。飽和脂肪酸アミドの具体例としては、ラウリン酸アミド、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、ベヘン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミドなどが挙げられる。不飽和脂肪酸アミドの具体例としては、オレイン酸アミド、エルカ酸アミドなどが挙げられる。置換アミドの具体例としては、Ｎ－オレイルパルミチン酸アミド、Ｎ－ステアリルステアリン酸アミド、Ｎ－ステアリルオレイン酸アミド、Ｎ－オレイルステアリン酸アミド、Ｎ－ステアリルエルカ酸アミドなどが挙げられる。また、メチロールアミドの具体例としては、メチロールステアリン酸アミドなどが挙げられる。飽和脂肪酸ビスアミドの具体例としては、メチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスカプリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、エチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンビスステアリン酸アミド、ヘキサメチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンヒドロキシステアリン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルアジピン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルセバシン酸アミドなどが挙げられる。不飽和脂肪酸ビスアミドの具体例としては、エチレンビスオレイン酸アミド、エチレンビスエルカ酸アミド、ヘキサメチレンビスオレイン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジオレイルアジピン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジオレイルセバシン酸アミドなどが挙げられる。脂肪酸エステルアミドの具体例としては、ステアロアミドエチルステアレートなどが挙げられる。また、芳香族ビスアミドの具体例としては、ｍ－キシリレンビスステアリン酸アミド、ｍ－キシリレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルイソフタル酸アミドなどが挙げられる。滑

剤は、１種類単独で使用してもよいし、２種類以上を組み合わせて使用してもよく、２種類以上を組み合わせることが好ましい。

[0192] 本開示において、熱融着性樹脂層４の表面に滑剤が存在する場合、その存在量としては、特に制限されないが、蓄電デバイス用外装材の成形性を高める観点からは、好ましくは約１ｍｇ／m^2以上、より好ましくは約３ｍｇ／m^2以上、さらに好ましくは約５ｍｇ／m^2以上、さらに好ましくは約１０ｍｇ／m^2以上、さらに好ましくは約１５ｍｇ／m^2以上であり、また、好ましくは約５０ｍｇ／m^2以下、さらに好ましくは約４０ｍｇ／m^2以下であり、好ましい範囲としては、１～５０ｍｇ／m^2程度、１～４０ｍｇ／m^2程度、３～５０ｍｇ／m^2程度、３～４０ｍｇ／m^2程度、５～５０ｍｇ／m^2程度、５～４０ｍｇ／m^2程度、１０～５０ｍｇ／m^2程度、１０～４０ｍｇ／m^2程度、１５～５０ｍｇ／m^2程度、１５～４０ｍｇ／m^2程度が挙げられる。

[0193] 本開示において、熱融着性樹脂層４の内部に滑剤が存在する場合、その存在量としては、特に制限されないが、蓄電デバイス用外装材の成形性を高める観点からは、好ましくは約１００ｐｐｍ以上、より好ましくは約３００ｐｐｍ以上、さらに好ましくは約５００ｐｐｍ以上であり、また、好ましくは約３０００ｐｐｍ以下、より好ましくは約２０００ｐｐｍ以下であり、好ましい範囲としては、１００～３０００ｐｐｍ程度、１００～２０００ｐｐｍ程度、３００～３０００ｐｐｍ程度、３００～２０００ｐｐｍ程度、５００～３０００ｐｐｍ程度、５００～２０００ｐｐｍ程度が挙げられる。熱融着性樹脂層４の内部に滑剤が２種類以上存在する場合、上記の滑剤量は合計滑剤量である。また、熱融着性樹脂層４の内部に滑剤が２種類以上存在する場合、１種類目の滑剤の存在量は、特に制限されないが、蓄電デバイス用外装材の成形性を高める観点からは、好ましくは約１００ｐｐｍ以上、より好ましくは約３００ｐｐｍ以上、さらに好ましくは約５００ｐｐｍ以上であり、また、好ましくは約３０００ｐｐｍ以下、より好ましくは約２０００ｐｐｍ以下であり、好ましい範囲としては、１００～３０００ｐｐｍ程度、１００～２０００ｐｐｍ程度、３００～３０００ｐｐｍ程度、３００～２０００ｐ

ｐｍ程度、５００～３０００ｐｐｍ程度、５００～２０００ｐｐｍ程度が挙げられる。２種類目の滑剤の存在量は、特に制限されないが、蓄電デバイス用外装材の成形性を高める観点からは、好ましくは約５０ｐｐｍ以上、より好ましくは約１００ｐｐｍ以上、さらに好ましくは約２００ｐｐｍ以上であり、また、好ましくは約１５００ｐｐｍ以下、より好ましくは約１０００ｐｐｍ以下であり、好ましい範囲としては、５０～１５００ｐｐｍ程度、５０～１０００ｐｐｍ程度、１００～１５００ｐｐｍ程度、１００～１０００ｐｐｍ程度、２００～１５００ｐｐｍ程度、２００～１０００ｐｐｍ程度が挙げられる。

[0194] 本開示において、熱融着性樹脂層４の表面に存在する滑剤は、熱融着性樹脂層４を構成する樹脂に含まれる滑剤を滲出させたものであってもよいし、熱融着性樹脂層４の表面に滑剤を塗布したものであってもよい。

[0195] また、本開示において、熱融着性樹脂層４の厚みとしては、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機能を発揮すれば特に制限されないが、例えば約１００μｍ以下、好ましくは約８５μｍ以下、より好ましくは１５～８５μｍ程度が挙げられる。なお、例えば、後述の接着層５の厚みが１０μｍ以上である場合には、熱融着性樹脂層４の厚みとしては、好ましくは約８５μｍ以下、より好ましくは１５～４５μｍ程度が挙げられ、例えば後述の接着層５の厚みが１０μｍ未満である場合や接着層５が設けられていない場合には、熱融着性樹脂層４の厚みとしては、好ましくは約２０μｍ以上、より好ましくは３５～８５μｍ程度が挙げられる。

[0196] ［接着層５］

本開示の蓄電デバイス用外装材において、接着層５は、バリア層３（又は耐腐食性皮膜）と熱融着性樹脂層４を強固に接着させるために、これらの間に必要に応じて設けられる層である。

[0197] 接着層５は、バリア層３と熱融着性樹脂層４とを接着可能である樹脂によって形成される。接着層５の形成に使用される樹脂としては、例えば接着剤層２で例示した接着剤と同様のものが使用できる。

[0198] また、接着層５と熱融着性樹脂層４とを強固に接着する観点から、接着層５の形成に使用される樹脂としてはポリオレフィン骨格を含んでいることが好ましく、前述の熱融着性樹脂層４で例示したポリオレフィン、酸変性ポリオレフィン、環状ポリオレフィン、酸変性環状ポリオレフィンが挙げられる。一方、バリア層３と接着層５とを強固に接着する観点から、接着層５は酸変性ポリオレフィンを含むことが好ましい。酸変性成分としては、マレイン酸、イタコン酸、コハク酸、アジピン酸などのジカルボン酸やこれらの無水物、アクリル酸、メタクリル酸などが挙げられるが、変性のし易さや汎用性などの点から無水マレイン酸が最も好ましい。また、蓄電デバイス用外装材の耐熱性の観点からは、オレフィン成分はポリプロピレン系樹脂であることが好ましく、接着層５は無水マレイン酸変性ポリプロピレンを含むことが最も好ましい。

[0199] 接着層５の形成に使用される樹脂としてはポリオレフィン骨格を含んでいる場合、接着層５は、ポリオレフィン骨格を含む樹脂を主成分として含んでいることが好ましく、酸変性ポリオレフィンを主成分として含んでいることがより好ましく、酸変性ポリプロピレンを主成分として含んでいることがさらに好ましい。ここで、主成分とは、接着層５に含まれる樹脂成分のうち、含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上の樹脂成分であることを意味する。例えば、接着層５が酸変性ポリプロピレンを主成分として含むとは、接着層５に含まれる樹脂成分のうち、酸変性ポリプロピレンの含有率が、例えば５０質量％以上、好ましくは６０質量％以上、より好ましくは７０質量％以上、さらに好ましくは８０質量％以上、さらに好ましくは９０質量％以上、さらに好ましくは９５質量％以上、さらに好ましくは９８質量％以上、さらに好ましくは９９質量％以上であることを意味する。

[0200] 接着層５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り、分析方法は特に問わない。また、接着層５を構成している樹脂が酸変性ポリオレフィンを含むことは、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１７６０ｃｍ$^{-1}$付近と波数１７８０ｃｍ$^{-1}$付近に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。

[0201] さらに、蓄電デバイス用外装材の耐熱性や耐内容物性などの耐久性や、厚みを薄くしつつ成形性を担保する観点からは、接着層５は酸変性ポリオレフィンと硬化剤を含む樹脂組成物の硬化物であることがより好ましい。酸変性ポリオレフィンとしては、好ましくは、前記のものが例示できる。

[0202] また、接着層５は、酸変性ポリオレフィンと、イソシアネート基を有する化合物、オキサゾリン基を有する化合物、及びエポキシ基を有する化合物からなる群より選択される少なくとも１種とを含む樹脂組成物の硬化物であることが好ましく、酸変性ポリオレフィンと、イソシアネート基を有する化合物及びエポキシ基を有する化合物からなる群より選択される少なくとも１種とを含む樹脂組成物の硬化物であることが特に好ましい。また、接着層５は、ポリウレタン、ポリエステル、及びエポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも１種を含むことが好ましく、ポリウレタン及びエポキシ樹脂を含むことがより好ましい。ポリエステルとしては、例えばエポキシ基と無水マレイン酸基の反応により生成するエステル樹脂、オキサゾリン基と無水マレイン酸基の反応で生成するアミドエステル樹脂が好ましい。なお、接着層５に、イソシアネート基を有する化合物、オキサゾリン基を有する化合物、エポキシ樹脂などの硬化剤の未反応物が残存している場合、未反応物の存在は、例えば、赤外分光法、ラマン分光法、飛行時間型二次イオン質量分析法（ＴＯＦ－ＳＩＭＳ）などから選択される方法で確認することが可能である。

[0203] また、バリア層３と接着層５との密着性をより高める観点から、接着層５

は、酸素原子、複素環、Ｃ＝Ｎ結合、及びＣ－Ｏ－Ｃ結合からなる群より選択される少なくとも１種を有する硬化剤を含む樹脂組成物の硬化物であることが好ましい。複素環を有する硬化剤としては、例えば、オキサゾリン基を有する硬化剤、エポキシ基を有する硬化剤などが挙げられる。また、Ｃ＝Ｎ結合を有する硬化剤としては、オキサゾリン基を有する硬化剤、イソシアネート基を有する硬化剤などが挙げられる。また、Ｃ－Ｏ－Ｃ結合を有する硬化剤としては、オキサゾリン基を有する硬化剤、エポキシ基を有する硬化剤などが挙げられる。接着層５がこれらの硬化剤を含む樹脂組成物の硬化物であることは、例えば、ガスクロマトグラフ質量分析（ＧＣＭＳ）、赤外分光法（ＩＲ）、飛行時間型二次イオン質量分析法（ＴＯＦ－ＳＩＭＳ）、Ｘ線光電子分光法（ＸＰＳ）などの方法で確認することができる。

[0204] イソシアネート基を有する化合物としては、特に制限されないが、バリア層３と接着層５との密着性を効果的に高める観点からは、好ましくは多官能イソシアネート化合物が挙げられる。多官能イソシアネート化合物は、２つ以上のイソシアネート基を有する化合物であれば、特に限定されない。多官能イソシアネート系硬化剤の具体例としては、ペンタンジイソシアネート（ＰＤＩ）、イソホロンジイソシアネート（ＩＰＤＩ）、ヘキサメチレンジイソシアネート（ＨＤＩ）、トリレンジイソシアネート（ＴＤＩ）、ジフェニルメタンジイソシアネート（ＭＤＩ）、これらをポリマー化やヌレート化したもの、これらの混合物や他ポリマーとの共重合物などが挙げられる。また、アダクト体、ビウレット体、イソシアヌレート体などが挙げられる。

[0205] 接着層５における、イソシアネート基を有する化合物の含有量としては、接着層５を構成する樹脂組成物中、０．１～５０質量％の範囲にあることが好ましく、０．５～４０質量％の範囲にあることがより好ましい。これにより、バリア層３と接着層５との密着性を効果的に高めることができる。

[0206] オキサゾリン基を有する化合物は、オキサゾリン骨格を備える化合物であれば、特に限定されない。オキサゾリン基を有する化合物の具体例としては、ポリスチレン主鎖を有するもの、アクリル主鎖を有するものなどが挙げら

れる。また、市販品としては、例えば、日本触媒社製のエポクロスシリーズなどが挙げられる。

[0207] 接着層５における、オキサゾリン基を有する化合物の割合としては、接着層５を構成する樹脂組成物中、０．１～５０質量％の範囲にあることが好ましく、０．５～４０質量％の範囲にあることがより好ましい。これにより、バリア層３と接着層５との密着性を効果的に高めることができる。

[0208] エポキシ基を有する化合物としては、例えば、エポキシ樹脂が挙げられる。エポキシ樹脂としては、分子内に存在するエポキシ基によって架橋構造を形成することが可能な樹脂であれば、特に制限されず、公知のエポキシ樹脂を用いることができる。エポキシ樹脂の重量平均分子量としては、好ましくは５０～２０００程度、より好ましくは１００～１０００程度、さらに好ましくは２００～８００程度が挙げられる。なお、本開示において、エポキシ樹脂の重量平均分子量は、標準サンプルとしてポリスチレンを用いた条件で測定された、ゲル浸透クロマトグラフィ（ＧＰＣ）により測定された値である。

[0209] エポキシ樹脂の具体例としては、トリメチロールプロパンのグリシジルエーテル誘導体、ビスフェノールＡジグリシジルエーテル、変性ビスフェノールＡジグリシジルエーテル、ビスフェノールＦ型グリシジルエーテル、ノボラックグリシジルエーテル、グリセリンポリグリシジルエーテル、ポリグリセリンポリグリシジルエーテルなどが挙げられる。エポキシ樹脂は、１種類単独で使用してもよいし、２種類以上を組み合わせて使用してもよい。

[0210] 接着層５における、エポキシ樹脂の割合としては、接着層５を構成する樹脂組成物中、０．１～５０質量％の範囲にあることが好ましく、０．５～４０質量％の範囲にあることがより好ましい。これにより、バリア層３と接着層５との密着性を効果的に高めることができる。

[0211] ポリウレタンとしては、特に制限されず、公知のポリウレタンを使用することができる。接着層５は、例えば、２液硬化型ポリウレタンの硬化物であってもよい。

[0212] 接着層５における、ポリウレタンの割合としては、接着層５を構成する樹脂組成物中、０．１～５０質量％の範囲にあることが好ましく、０．５～４０質量％の範囲にあることがより好ましい。これにより、電解液などのバリア層の腐食を誘発する成分が存在する雰囲気における、バリア層３と接着層５との密着性を効果的に高めることができる。

[0213] なお、接着層５が、イソシアネート基を有する化合物、オキサゾリン基を有する化合物、及びエポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも１種と、前記酸変性ポリオレフィンとを含む樹脂組成物の硬化物である場合、酸変性ポリオレフィンが主剤として機能し、イソシアネート基を有する化合物、オキサゾリン基を有する化合物、及びエポキシ基を有する化合物は、それぞれ、硬化剤として機能する。

[0214] 接着層５には、カルボジイミド基を有する改質剤が含まれていてもよい。

[0215] 本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、接着層５は、酸変性ポリプロピレンとエラストマーを含み、さらにブロックポリプロピレン及びホモポリプロピレンの少なくとも一方を含む、樹脂組成物により形成されていることが好ましい。当該樹脂組成物は、ランダムポリプロピレン、ポリエチレンなどをさらに含んでいても良い。なお、接着層５は、バリア層３との密着性、耐熱性を高める観点から、ホモポリプロピレンが酸変性されたもの（すなわち、酸変性ホモポリプロピレン）であることが好ましい。

[0216] 本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、接着層５を形成する当該樹脂組成物において、酸変性ポリプロピレンの含有率は、好ましくは約５質量％以上、より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約９０質量％以下、より好ましくは約８０質量％以下、さらに好ましくは約７０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～９０質量％程度、５～８０質量％程度、５～７０質量％程度、１０～９０質量％程度、１０～８０質量％程度、１０～７０質量％程度、１５～９０質量％程度、１５～８０質量％程度、１５～７０質量％程度などが挙げられる。

[0217] 本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、接着層５を形成する当該樹脂組成物において、エラストマーの含有率は、好ましくは約２５質量％以上、より好ましくは約３０質量％以上、さらに好ましくは約３５質量％以上であり、また、好ましくは約６０質量％以下、より好ましくは約５５質量％以下、さらに好ましくは約５０質量％以下であり、好ましい範囲としては、２５～６０質量％程度、２５～５５質量％程度、２５～５０質量％程度、３０～６０質量％程度、３０～５５質量％程度、３０～５０質量％程度、３５～６０質量％程度、３５～５５質量％程度、３５～５０質量％などが挙げられる。

[0218] 本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、接着層５を形成する当該樹脂組成物に含まれるエラストマーとしては、好ましくは２元系共重合体、３元系共重合体が挙げられる。また、エラストマーは、好ましくはプロピレン系エラストマーである。プロピレ系エラストマーとしては、例えば、２元系共重合体、３元系共重合体などが挙げられる。２元系共重合体としては、例えば、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー、プロピレン－ブテン共重合体エラストマー、３元系共重合体としては、例えば、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー、エチレン－プロピレン－ジエン共重合体エラストマーなどが挙げられる。エラストマーの中でも、２元系共重合体として、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー、３元系共重合体としては、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマーが好ましい。

[0219] 本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、接着層５を形成する当該樹脂組成物において、ブロックポリプロピレンの含有率は、好ましくは約３０質量％以上、より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約９５質量％以下、より好ましくは約９０質量％以下、さらに好ましくは約８５質量％以下である。好ましい範囲としては、３０～９５質量％程度、３０～９０質量％程度、３０～８５質量％程度、３５～９５質量％程度、３５～９０質量％程度、３５～８５質量

％程度、４０～９５質量％程度、４０～９０質量％程度、４０～８５質量％程度などが挙げられる。

[0220] また、本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、接着層５を形成する当該樹脂組成物において、ホモポリプロピレンの含有率は、好ましくは約２０質量％以上、より好ましくは約２５質量％以上、さらに好ましくは約３０質量％以上であり、また、好ましくは約８０質量％以下、より好ましくは約７５質量％以下、さらに好ましくは約７０質量％以下であり、好ましい範囲としては、２０～８０質量％程度、２０～７５質量％程度、２０～７０質量％程度、２５～８０質量％程度、２５～７５質量％程度、２５～７０質量％程度、３０～８０質量％程度、３０～７５質量％程度、３０～７０質量％程度などが挙げられる。

[0221] 本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、接着層５を形成する当該樹脂組成物において、ランダムポリプロピレンの含有率は、好ましくは約０質量％以上、より好ましくは約１質量％以上、さらに好ましくは約２質量％以上であり、また、好ましくは約３０質量％以下、より好ましくは約２５質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下である。好ましい範囲としては、０～３０質量％程度、０～２５質量％程度、０～２０質量％程度、１～３０質量％程度、１～２５質量％程度、１～２０質量％程度、２～３０質量％程度、２～２５質量％程度、２～２０質量％程度などが挙げられる。

[0222] 本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、接着層５を形成する当該樹脂組成物において、ポリエチレンの含有率は、例えば約０質量％以上、好ましくは約１質量％以上、より好ましくは約２質量％以上、さらに好ましくは約３質量％以上であり、また、好ましくは約３０質量％以下、より好ましくは約２５質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、０～３０質量％程度、０～２５質量％程度、０～２０質量％程度、１～３０質量％程度、１～２５質量％程度、１～２０質量％程度、２～３０質量％程度、２～２５質量％程度、２～２０質量％程度、３～３０質量％程度、３～２５質量％程度、３～２０質量％程度などが挙げられる

。

[0223] 本開示の効果をより一層好適に発揮する観点から、当該樹脂組成物の具体的な組成としては、例えば、酸変性ポリプロピレンの含有率が約５質量％以上（より好ましくは約１０質量％以上、さらに好ましくは約１５質量％以上であり、また、好ましくは約９０質量％以下、より好ましくは約８０質量％以下、さらに好ましくは約７０質量％以下であり、好ましい範囲としては、５～９０質量％程度、５～８０質量％程度、５～７０質量％程度、１０～９０質量％程度、１０～８０質量％程度、１０～７０質量％程度、１５～９０質量％程度、１５～８０質量％程度、１５～７０質量％程度など）であり、エラストマーの含有率が約２５質量％以上（より好ましくは約３０質量％以上、さらに好ましくは約３５質量％以上であり、また、好ましくは約６０質量％以下、より好ましくは約５５質量％以下、さらに好ましくは約５０質量％以下であり、好ましい範囲としては、２５～６０質量％程度、２５～５５質量％程度、２５～５０質量％程度、３０～６０質量％程度、３０～５５質量％程度、３０～５０質量％程度、３５～６０質量％程度、３５～５５質量％程度３５～５０質量％程度など）であり、ブロックポリプロピレンの含有率が約３０質量％以上（より好ましくは約３５質量％以上、さらに好ましくは約４０質量％以上であり、また、好ましくは約９５質量％以下、より好ましくは約９０質量％以下、さらに好ましくは約８５質量％以下である。好ましい範囲としては、３０～９５質量％程度、３０～９０質量％程度、３０～８５質量％程度、３５～９５質量％程度、３５～９０質量％程度、３５～８５質量％程度、４０～９５質量％程度、４０～９０質量％程度、４０～８５質量％程度）などであり、ホモポリプロピレンの含有率が約２０質量％以上（より好ましくは約２５質量％以上、さらに好ましくは約３０質量％以上であり、また、好ましくは約８０質量％以下、より好ましくは約７５質量％以下、さらに好ましくは約７０質量％以下であり、好ましい範囲としては、２０～８０質量％程度、２０～７５質量％程度、２０～７０質量％程度、２５～８０質量％程度、２５～７５質量％程度、２５～７０質量％程度、３０～

８０質量％程度、３０～７５質量％程度、３０～７０質量％程度など）であり、ランダムポリプロピレンの含有率が約０質量％以上（より好ましくは約１質量％以上、さらに好ましくは約２質量％以上であり、また、好ましくは約３０質量％以下、より好ましくは約２５質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下である。好ましい範囲としては、０～３０質量％程度、０～２５質量％程度、０～２０質量％程度、１～３０質量％程度、１～２５質量％程度、１～２０質量％程度、２～３０質量％程度、２～２５質量％程度、２～２０質量％程度）などであり、ポリエチレンの含有率が例えば約０質量％以上（好ましくは約１質量％以上、より好ましくは約２質量％以上、さらに好ましくは約３質量％以上であり、また、好ましくは約３０質量％以下、より好ましくは約２５質量％以下、さらに好ましくは約２０質量％以下であり、好ましい範囲としては、０～３０質量％程度、０～２５質量％程度、０～２０質量％程度、１～３０質量％程度、１～２５質量％程度、１～２０質量％程度、２～３０質量％程度、２～２５質量％程度、２～２０質量％程度、３～３０質量％程度、３～２５質量％程度、３～２０質量％程度）などである。当該樹脂組成物は、樹脂（後述する滑剤等の添加剤は含まない）として、酸変性ポリプロピレンとエラストマーを含み、さらにブロックポリプロピレン及びホモポリプロピレンの少なくとも一方のみを含む樹脂組成物により形成されていることも好ましい。

[0224] 接着層５をバリア層３や熱融着性樹脂層４などと積層して本開示の蓄電デバイス用外装材１０を製造する際に、予め形成された樹脂フィルムを接着層５として用いてもよい。また、接着層５を形成する熱融着性樹脂を、押出成形や塗布などによってバリア層３や熱融着性樹脂層４などの表面上でフィルム化して、樹脂フィルムにより形成された接着層５としてもよい。

[0225] 接着層５の厚さは、好ましくは、約５０μｍ以下、約４０μｍ以下、約３０μｍ以下、約２０μｍ以下、約５μｍ以下である。また、接着層５の厚さは、好ましくは、約０．１μｍ以上、約０．５μｍ以上である。また、接着層５の厚さの範囲としては、好ましくは、０．１～５０μｍ程度、０．１～

４０μｍ程度、０．１～３０μｍ程度、０．１～２０μｍ程度、０．１～５μｍ程度、０．５～５０μｍ程度、０．５～４０μｍ程度、０．５～３０μｍ程度、０．５～２０μｍ程度、０．５～５μｍ程度が挙げられる。より具体的には、接着剤層２で例示した接着剤や、酸変性ポリオレフィンと硬化剤との硬化物である場合は、好ましくは１～１０μｍ程度、より好ましくは１～５μｍ程度が挙げられる。また、熱融着性樹脂層４で例示した樹脂を用いる場合であれば、好ましくは２～５０μｍ程度、より好ましくは１０～４０μｍ程度が挙げられる。なお、接着層５が接着剤層２で例示した接着剤や、酸変性ポリオレフィンと硬化剤を含む樹脂組成物の硬化物である場合、例えば、当該樹脂組成物を塗布し、加熱等により硬化させることにより、接着層５を形成することができる。また、熱融着性樹脂層４で例示した樹脂を用いる場合、例えば、熱融着性樹脂層４と接着層５との押出成形により形成することができる。

[0226] ［表面被覆層６］

本開示の蓄電デバイス用外装材は、意匠性、耐電解液性、耐傷性、成形性などの向上の少なくとも１つを目的として、必要に応じて、基材層１の上（基材層１のバリア層３とは反対側）に、表面被覆層６を備えていてもよい。表面被覆層６は、蓄電デバイス用外装材を用いて蓄電デバイスを組み立てた時に、蓄電デバイス用外装材の最外層側に位置する層である。

[0227] 表面被覆層６は、例えば、ポリ塩化ビニリデン、ポリエステル、ポリアミド、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、フッ素樹脂、ポリウレタン、珪素樹脂、フェノール樹脂などの樹脂や、これらの樹脂の変性物が挙げられる。また、これらの樹脂の共重合物であってもよいし、共重合物の変性物であってもよい。さらに、これらの樹脂の混合物であってもよい。樹脂は、好ましくは硬化性樹脂である。すなわち、表面被覆層６は、硬化性樹脂を含む樹脂組成物の硬化物から構成されていることが好ましい。

[0228] 表面被覆層６を形成する樹脂が硬化型の樹脂である場合、当該樹脂は、１液硬化型及び２液硬化型のいずれであってもよいが、好ましくは２液硬化型

である。２液硬化型樹脂としては、例えば、２液硬化型ポリウレタン、２液硬化型ポリエステル、２液硬化型エポキシ樹脂などが挙げられる。これらの中でも２液硬化型ポリウレタンが好ましい。

[0229] ２液硬化型ポリウレタンとしては、例えば、ポリオール化合物を含有する第１剤と、イソシアネート化合物を含有する第２剤とを含むポリウレタンが挙げられる。好ましくはポリエステルポリオール、ポリエーテルポリオール、およびアクリルポリオール等のポリオールを第１剤として、芳香族系又は脂肪族系のポリイソシアネートを第２剤とした二液硬化型のポリウレタンが挙げられる。また、ポリウレタンとしては、例えば、予めポリオール化合物とイソシアネート化合物とを反応させたポリウレタン化合物と、イソシアネート化合物とを含むポリウレタンが挙げられる。ポリウレタンとしては、例えば、予めポリオール化合物とイソシアネート化合物とを反応させたポリウレタン化合物と、ポリオール化合物とを含むポリウレタンが挙げられる。ポリウレタンとしては、例えば、予めポリオール化合物とイソシアネート化合物とを反応させたポリウレタン化合物を、空気中などの水分と反応させることによって硬化させたポリウレタンが挙げられる。ポリオール化合物としては、繰り返し単位の末端の水酸基に加えて、側鎖にも水酸基を有するポリエステルポリオールを用いることが好ましい。第２剤としては、脂肪族、脂環式、芳香族、芳香脂肪族のイソシアネート系化合物が挙げられる。イソシアネート系化合物としては、例えばヘキサメチレンジイソシアネート（ＨＤＩ）、キシリレンジイソシアネート（ＸＤＩ）、イソホロンジイソシアネート（ＩＰＤＩ）、水素化ＸＤＩ（Ｈ６ＸＤＩ）、水素化ＭＤＩ（Ｈ１２ＭＤＩ）、トリレンジイソシアネート（ＴＤＩ）、ジフェニルメタンジイソシアネート（ＭＤＩ）、ナフタレンジイソシアネート（ＮＤＩ）等が挙げられる。また、これらのジイソシアネートの１種類又は２種類以上からの多官能イソシアネート変性体等が挙げられる。また、ポリイソシアネート化合物として多量体（例えば三量体）を使用することもできる。このような多量体には、アダクト体、ビウレット体、ヌレート体等が挙げられる。なお、脂肪族イソ

シアネート系化合物とは脂肪族基を有し芳香環を有さないイソシアネートを指し、脂環式イソシアネート系化合物とは脂環式炭化水素基を有するイソシアネートを指し、芳香族イソシアネート系化合物とは芳香環を有するイソシアネートを指す。表面被覆層６がポリウレタンにより形成されていることで蓄電デバイス用外装材に優れた電解液耐性が付与される。

[0230] 表面被覆層６は、表面被覆層６の表面及び内部の少なくとも一方には、該表面被覆層６やその表面に備えさせるべき機能性等に応じて、必要に応じて、滑剤、難燃剤、アンチブロッキング剤、酸化防止剤、光安定化剤、粘着付与剤、帯電防止剤、顔料等の添加剤を含んでいてもよい。添加剤としては、例えば、平均粒子径が０．５ｎｍ～５μｍ程度の微粒子が挙げられる。添加剤の平均粒子径は、レーザ回折／散乱式粒子径分布測定装置で測定されたメジアン径とする。

[0231] 添加剤は、無機物及び有機物のいずれであってもよい。また、添加剤の形状についても、特に制限されず、例えば、球状、繊維状、板状、不定形、鱗片状などが挙げられる。

[0232] 添加剤の具体例としては、タルク、シリカ、グラファイト、カオリン、モンモリロナイト、マイカ、ハイドロタルサイト、シリカゲル、ゼオライト、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム、酸化ネオジウム、酸化アンチモン、酸化チタン、酸化セリウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、ケイ酸カルシウム、炭酸リチウム、安息香酸カルシウム、シュウ酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウム、アルミナ、カーボンブラック、カーボンナノチューブ、高融点ナイロン、アクリレート樹脂、架橋アクリル、架橋スチレン、架橋ポリエチレン、ベンゾグアナミン、金、アルミニウム、銅、ニッケルなどが挙げられる。添加剤は、１種単独で使用してもよく、また２種以上を組み合わせて使用してもよい。これらの添加剤の中でも、分散安定性やコストなどの観点から、好ましくはシリカ、硫酸バリウム、酸化チタンが挙げられる。また、蓄電デバイスからの放熱の観点から、好ましくはマイカが挙げられる。ま

た、添加剤には、表面に絶縁処理、高分散性処理などの各種表面処理を施してもよい。

[0233] 表面被覆層６を形成する方法としては、特に制限されず、例えば、表面被覆層６を形成する樹脂を塗布する方法が挙げられる。表面被覆層６に添加剤を配合する場合には、添加剤を混合した樹脂を塗布すればよい。

[0234] 本開示において、蓄電デバイス用外装材の成形性を高める観点からは、表面被覆層６の表面及び内部の少なくとも一方には、滑剤が存在していることが好ましい。滑剤としては、特に制限されないが、好ましくはアミド系滑剤が挙げられる。アミド系滑剤の具体例としては、例えば、飽和脂肪酸アミド、不飽和脂肪酸アミド、置換アミド、メチロールアミド、飽和脂肪酸ビスアミド、不飽和脂肪酸ビスアミド、脂肪酸エステルアミド、芳香族ビスアミドなどが挙げられる。飽和脂肪酸アミドの具体例としては、ラウリン酸アミド、パルミチン酸アミド、ステアリン酸アミド、ベヘン酸アミド、ヒドロキシステアリン酸アミドなどが挙げられる。不飽和脂肪酸アミドの具体例としては、オレイン酸アミド、エルカ酸アミドなどが挙げられる。置換アミドの具体例としては、Ｎ－オレイルパルミチン酸アミド、Ｎ－ステアリルステアリン酸アミド、Ｎ－ステアリルオレイン酸アミド、Ｎ－オレイルステアリン酸アミド、Ｎ－ステアリルエルカ酸アミドなどが挙げられる。また、メチロールアミドの具体例としては、メチロールステアリン酸アミドなどが挙げられる。飽和脂肪酸ビスアミドの具体例としては、メチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスカプリン酸アミド、エチレンビスラウリン酸アミド、エチレンビスステアリン酸アミド、エチレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、エチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンビスステアリン酸アミド、ヘキサメチレンビスベヘン酸アミド、ヘキサメチレンヒドロキシステアリン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルアジピン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルセバシン酸アミドなどが挙げられる。不飽和脂肪酸ビスアミドの具体例としては、エチレンビスオレイン酸アミド、エチレンビスエルカ酸アミド、ヘキサメチレンビスオレイン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジオレイルアジピン酸

アミド、Ｎ，Ｎ’－ジオレイルセバシン酸アミドなどが挙げられる。脂肪酸エステルアミドの具体例としては、ステアロアミドエチルステアレートなどが挙げられる。また、芳香族ビスアミドの具体例としては、ｍ－キシリレンビスステアリン酸アミド、ｍ－キシリレンビスヒドロキシステアリン酸アミド、Ｎ，Ｎ’－ジステアリルイソフタル酸アミドなどが挙げられる。滑剤は、１種類単独で使用してもよいし、２種類以上を組み合わせて使用してもよく、２種類以上を組み合わせることが好ましい。

[0235] 表面被覆層６の表面に滑剤が存在する場合、その存在量としては、特に制限されないが、例えば約３ｍｇ／m^2以上、好ましくは約４ｍｇ／m^2以上、約５ｍｇ／m^2以上が挙げられる。また、表面被覆層６の表面に存在する滑剤量としては、例えば約１５ｍｇ／m^2以下、好ましくは約１４ｍｇ／m^2以下、約１０ｍｇ／m^2以下が挙げられる。また、表面被覆層６の表面に存在する滑剤量の好ましい範囲としては、３～１５ｍｇ／m^2程度、３～１４ｍｇ／m^2程度、３～１０ｍｇ／m^2程度、４～１５ｍｇ／m^2程度、４～１４ｍｇ／m^2程度、４～１０ｍｇ／m^2程度、５～１５ｍｇ／m^2程度、５～１４ｍｇ／m^2程度、５～１０ｍｇ／m^2程度が挙げられる。

[0236] 表面被覆層６の表面に存在する滑剤は、表面被覆層６を構成する樹脂に含まれる滑剤を滲出させたものであってもよいし、表面被覆層６の表面に滑剤を塗布したものであってもよい。

[0237] 表面被覆層６が着色剤を含んでいることにより、蓄電デバイス用外装材を着色することができる。着色剤としては、顔料、染料などの公知のものが使用できる。また、着色剤は、１種類のみを用いてもよいし、２種類以上を混合して用いてもよい。

[0238] 顔料の種類は、特に限定されず、有機顔料としては、例えば、アゾ系、フタロシアニン系、キナクリドン系、アンスラキノン系、ジオキサジン系、インジゴチオインジゴ系、ペリノン－ペリレン系、イソインドレニン系、ベンズイミダゾロン系等の顔料が挙げられ、無機顔料としては、カーボンブラック系、酸化チタン系、カドミウム系、鉛系、酸化クロム系、鉄系等の顔料が

挙げられ、その他に、マイカ（雲母）の微粉末、魚鱗箔等が挙げられる。

[0239] 着色剤の中でも、例えば蓄電デバイス用外装材の外観を黒色とするためには、カーボンブラックが好ましい。また、蓄電デバイスから発生する熱を放熱する観点からは、マイカを用いることが好ましい。

[0240] 顔料の平均粒子径としては、特に制限されず、例えば、０．０３～５μｍ程度、好ましくは０．０５～２μｍ程度が挙げられる。なお、顔料の平均粒子径は、レーザ回折／散乱式粒子径分布測定装置で測定されたメジアン径とする。

[0241] 表面被覆層６における着色剤の含有量としては、蓄電デバイス用外装材が着色されれば特に制限されず、例えば５～６０質量％程度、好ましくは１０～４０質量％程度が挙げられる。

[0242] 表面被覆層６の厚みとしては、表面被覆層６としての上記の機能を発揮すれば特に制限されず、例えば０．５～１０μｍ程度、好ましくは１～５μｍ程度が挙げられる。

[0243] ３．蓄電デバイス用外装材の製造方法

蓄電デバイス用外装材の製造方法については、本開示の蓄電デバイス用外装材が備える各層を積層させた積層体が得られる限り、特に制限されず、本開示の第１の態様については、少なくとも、バリア層３、及び熱融着性樹脂層４がこの順となるように積層する工程を備える方法が挙げられる。前記の通り、本開示の第１の態様の蓄電デバイス用外装材において、熱融着性樹脂層４は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である。本開示の第２の態様については、少なくとも、バリア層３、及び熱融着性樹脂層４がこの順となるように積層する工程を備える方法が挙げられる。前記の通り、本開示の第２の態様の蓄電デバイス用外装材において、熱融着性樹脂層４は、前記熱融着性樹脂層の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、前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３

００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まず、前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される。また、本開示の第３の態様については、少なくとも、バリア層３、及び熱融着性樹脂層４がこの順となるように積層する工程を備える方法が挙げられる。前記の通り、本開示の第３の態様の蓄電デバイス用外装材において、熱融着性樹脂層４は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する。

[0244] 本開示の蓄電デバイス用外装材の製造方法の一例としては、以下の通りである。まず、基材層１、接着剤層２、バリア層３が順に積層された積層体（以下、「積層体Ａ」と表記することもある）を形成する。積層体Ａの形成は、具体的には、基材層１上又は必要に応じて表面が化成処理されたバリア層３に接着剤層２の形成に使用される接着剤を、グラビアコート法、ロールコート法などの塗布方法で塗布、乾燥した後に、当該バリア層３又は基材層１を積層させて接着剤層２を硬化させるドライラミネート法によって行うことができる。

[0245] 次いで、積層体Ａのバリア層３上に、熱融着性樹脂層４を積層させる。バリア層３上に熱融着性樹脂層４を直接積層させる場合には、積層体Ａのバリア層３上に、熱融着性樹脂層４をサーマルラミネート法、押出ラミネート法などの方法により積層すればよい。また、バリア層３と熱融着性樹脂層４の間に接着層５を設ける場合には、接着層５と熱融着性樹脂層４は、例えば、（１）押出ラミネート法、（２）サーマルラミネート法、（３）サンドイッチラミネート法、（４）ドライラミネート法などにより積層することができる。（１）押出ラミネート法としては、例えば、積層体Ａのバリア層３上に、接着層５及び熱融着性樹脂層４を押出しすることにより積層する方法（共押出ラミネート法、タンデムラミネート法）などが挙げられる。また、（２）サーマルラミネート法としては、例えば、別途、接着層５と熱融着性樹脂

層４が積層した積層体を形成し、これを積層体Ａのバリア層３上に積層する方法や、積層体Ａのバリア層３上に接着層５が積層した積層体を形成し、これを熱融着性樹脂層４と積層する方法などが挙げられる。また、（３）サンドイッチラミネート法としては、例えば、積層体Ａのバリア層３と、予めシート状に製膜した熱融着性樹脂層４との間に、溶融させた接着層５を流し込みながら、接着層５を介して積層体Ａと熱融着性樹脂層４を貼り合せる方法などが挙げられる。また、（４）ドライラミネート法としては、例えば、積層体Ａのバリア層３上に、接着層５を形成させるための接着剤を溶液コーティングし、乾燥させる方法や、さらには焼き付ける方法などにより積層させ、この接着層５上に予めシート状に製膜した熱融着性樹脂層４を積層する方法などが挙げられる。

[0246] 表面被覆層６を設ける場合には、基材層１のバリア層３とは反対側の表面に、表面被覆層６を積層する。表面被覆層６は、例えば表面被覆層６を形成する上記の樹脂を基材層１の表面に塗布することにより形成することができる。なお、基材層１の表面にバリア層３を積層する工程と、基材層１の表面に表面被覆層６を積層する工程の順番は、特に制限されない。例えば、基材層１の表面に表面被覆層６を形成した後、基材層１の表面被覆層６とは反対側の表面にバリア層３を形成してもよい。

[0247] 上記のようにして、必要に応じて設けられる表面被覆層６／基材層１／必要に応じて設けられる接着剤層２／バリア層３／必要に応じて設けられる接着層５／熱融着性樹脂層４をこの順に備える積層体が形成されるが、必要に応じて設けられる接着剤層２及び接着層５の接着性を強固にするために、さらに、加熱処理に供してもよい。

[0248] 蓄電デバイス用外装材において、積層体を構成する各層には、必要に応じて、コロナ処理、ブラスト処理、酸化処理、オゾン処理などの表面活性化処理を施すことにより加工適性を向上させてもよい。例えば、基材層１のバリア層３とは反対側の表面にコロナ処理を施すことにより、基材層１表面へのインクの印刷適性を向上させることができる。

[0249] ４．蓄電デバイス用外装材の用途

本開示の蓄電デバイス用外装材は、正極、負極、電解質等の蓄電デバイス素子を密封して収容するための包装体に使用される。すなわち、本開示の蓄電デバイス用外装材によって形成された包装体中に、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を収容して、蓄電デバイスとすることができる。換言すれば、本開示の蓄電デバイス用外装材によって蓄電デバイス素子を包むことによって、蓄電デバイスとすることができる。

[0250] 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を、本開示の蓄電デバイス用外装材で、前記正極及び負極の各々に接続された金属端子を外側に突出させた状態で、蓄電デバイス素子の周縁にフランジ部（熱融着性樹脂層同士が接触する領域）が形成できるようにして被覆し、前記フランジ部の熱融着性樹脂層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を使用した蓄電デバイスが提供される。なお、本開示の蓄電デバイス用外装材により形成された包装体中に蓄電デバイス素子を収容する場合、本開示の蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂部分が内側（蓄電デバイス素子と接する面）になるようにして、包装体を形成する。２つの蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層同士を対向させて重ね合わせ、重ねられた蓄電デバイス用外装材の周縁部を熱融着して包装体を形成してもよく、また、図５に示す例のように、１つの蓄電デバイス用外装材を折り返して重ね合わせ、周縁部を熱融着して包装体を形成してもよい。折り返して重ね合わせる場合は、図５に示す例のように、折り返した辺以外の辺を熱融着して三方シールにより包装体を形成してもよいし、フランジ部が形成できるように折り返して四方シールしてもよい。なお、蓄電デバイス用外装材の最内層および最外層が熱融着性樹脂層である場合、最内層の熱融着性樹脂層と、最外層の熱融着性樹脂層とを熱融着することによって、包装体を形成してもよい。

[0251] 蓄電デバイス素子は、蓄電デバイス用外装材に加えて、蓋体によって封止されてもよい。すなわち、蓄電デバイス用外装材および蓋体は、蓄電デバイ

ス素子を密封する外装体（蓄電デバイス用の外装体）を構成する。例えば、筒状に構成された蓄電デバイス用外装材の内部に蓄電デバイス素子を収容し、開口部を蓋体によって閉じてもよい。別の例では、開口部が形成されるように筒状に構成された蓄電デバイス用外装材の内部に蓋体と接続された状態の蓄電デバイス素子を収容し、開口部を蓋体によって閉じてもよい。蓋体と、蓄電デバイス用外装材とは、任意の手段で接合されることが好ましい。蓄電デバイスの体積エネルギー密度を向上させるべく蓄電デバイス素子と蓄電デバイス用外装材との間のデッドスペースを削減する観点から、蓄電デバイス用外装材は、蓄電デバイス素子および蓋体に巻き付けられることが好ましい。

[0252] 蓋体は、例えば、樹脂成形品、金属成形品、蓄電デバイス用外装材、およびこれらの組み合わせなどで形成できる。本開示において、蓋体が樹脂成形品と表現される場合、蓋体は、ＪＩＳ　Ｋ６９００－１９９４［プラスチック－用語］ＪＩＳ（日本工業規格）の［包装用語］規格によって規定されるフィルムのみによって構成される態様は含まれない。蓋体が金属成形品である場合、蓋体が金属端子としての機能を兼ねるため、金属端子を省略することもできる。蓋体は、樹脂材料および導電性材料を含んで構成されてもよい。

[0253] また、蓄電デバイス用外装材には、蓄電デバイス素子を収容するための凹部が、深絞り成形または張出成形によって形成されてもよい。図５に示す例のように、一方の蓄電デバイス用外装材には凹部を設けて他方の蓄電デバイス用外装材には凹部を設けなくてもよいし、他方の蓄電デバイス用外装材にも凹部を設けてもよい。

[0254] 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に使用される。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、半固体電池、擬固体電池、ポリマー電池、全樹脂電池、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

[0255] 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。

[0256] ＜第１の態様の蓄電デバイス用外装材の製造＞

実施例１Ａ

基材層として、２軸延伸ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルム（厚さ１２μｍ）と延伸ナイロン（ＯＮｙ）フィルム（厚さ１５μｍ）とが、接着剤層（２液硬化型ウレタン接着剤で形成し、硬化後の厚さは３μｍ）で接着された積層体を準備した。また、バリア層として、アルミニウム箔（ＪＩＳ　Ｈ４１６０：１９９４　Ａ８０２１Ｈ－Ｏ（厚さ４０μｍ））を用意した。アルミニウム箔の両面には、化成処理が施してある。アルミニウム箔の化成処理は、フェノール樹脂、フッ化クロム化合物、及びリン酸からなる処理液をクロムの塗布量が１０ｍｇ／m^2（乾燥質量）となるように、ロールコート法によりアルミニウム箔の両面に塗布し、焼付けすることにより行った。

[0257] 次に、２液硬化型ウレタン接着剤を用い、ドライラミネート法により、基材層とバリア層とを接着剤層（厚さ３μｍ）で接着し、基材層／接着剤層／バリア層が順に積層された積層体を作製した。

[0258] 次に、上記で得られた各積層体のバリア層の上に、接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物（無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（

３元系共重合体）とからなる樹脂組成物）と、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物（ランダムポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー（２元系共重合体）とからなる樹脂組成物）とを共押出しすることにより、バリア層の上に接着層／熱融着性樹脂層とを積層させた。次に、得られた積層体をエージングし、加熱することにより、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0259] 実施例２Ａ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー（２元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ａと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0260] 実施例３Ａ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと、及び、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ａと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0261] 実施例４Ａ

熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、ランダムポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこ

と以外は、実施例１Ａと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0262] 実施例１Ａ－４Ａにおいて、それぞれ、バリア層の厚みを４０μｍから６０μｍ、さらには８０μｍへと厚くすると、２５℃環境でのシール強度及び１５０℃環境でのシール強度は高くなり、耐電解液性に優れ、成形時の白化は生じなかった。この結果から、バリア層の厚みは４０μｍに限ったことではなく、例えば８０μｍまで厚くしても良いことが分かる。

[0263] 比較例１Ａ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンを用いたこと、及び、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂として、ランダムポリプロピレンと、ポリエチレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ａと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0264] 比較例２Ａ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンを用いたこと、及び、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、ランダムポリプロピレンと、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ａと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0265] ＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞

剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定方法を説明するための模式図を図６に示す。剛体振り子型物性試験器（型番：ＲＰＴ－３０００Ｗ　株式会社エー・アンド・デイ社製）を用い、振り子３０のフレームにはＦＲＢ－

１００、エッジ部の円柱状シリンダエッジ３０ａにはＲＢＰ－０２０、冷熱ブロック３１にはＣＨＢ－１００を使用し、初期の振幅を約０．３ｄｅｇｒｅｅとした。振り子吸着時間を１．０ｓ、測定間隔を１０ｓとした。蓄電デバイス用外装材をＭＤ４５ｍｍ、ＴＤ１５ｍｍにカットし、試験サンプルとした。さらに、振動変位検出器３２を使用した。

[0266] なお、本測定で採用した円柱状シリンダエッジＲＢＰ－０２０は、径が２ｍｍと小さく、測定時に熱融着性樹脂層の表面から内部に沈み込み易く、熱融着性樹脂層全体としての特性を評価することに適している。このため、本測定は、後述する高温環境（１５０℃環境）におけるシール強度との相関を評価する観点から適したものである。

[0267] 冷熱ブロック３１上に試験サンプルの測定面（熱融着性樹脂層）を上方に向けて載置し、測定面上に振り子付き円柱状シリンダエッジ３０ａの軸線方向が試験サンプルのＭＤの方向に直交するように設置した。また、測定中の試験サンプルの浮きや反りを防ぐために、試験サンプルの測定結果に影響のない箇所にテープを貼りつけて冷熱ブロック３１上に固定した。円柱状シリンダエッジ３０ａを、熱融着性樹脂層の表面に接触させた。次に、冷熱ブロック３１を用いて昇温速度３℃／分にて０℃から１８０℃の温度範囲で熱融着性樹脂層の対数減衰率ΔＥの測定をＮ＝１で行った。試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用した。結果を表１Ａに示す。後述する１５０℃での耐熱シール強度が２５Ｎ／１５ｍｍ以上となる指標として、本測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥは、０．０７５以下を採用した。

なお、対数減衰率ΔＥは、以下の式によって算出される。このとき、小数点以下第４位を四捨五入して小数点以下第３位の値を算出した。

ΔＥ＝［ｌｎ（Ａ１／Ａ２）＋ｌｎ（Ａ２／Ａ３）＋．．．＋ｌｎ（Ａｎ／Ａｎ＋１）］／ｎ

Ａ：振幅

ｎ：波数

[0268] なお、実施例１Ａ～４Ａにおいて、熱融着性樹脂層の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、いずれも０．０２超であった。熱融着性樹脂層の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、前記の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法において、「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」代わりに「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が８０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」こと以外は、熱融着性樹脂層の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥと同様にして測定された値である。

[0269] ＜ＦＴ－ＩＲによる結晶性評価＞

蓄電デバイス用外装材を３０ｍｍ×３０ｍｍの正方形に裁断してサンプルを作製した。得られたサンプルの熱接着性樹脂層の表面を日本分光株式会社社製ＦＴ／ＩＲ６１００のＡＴＲ測定モードを用いて、温度２５℃、相対湿度５０％の環境下で赤外吸収スペクトル測定を実施した。得られた吸収スペクトルから、非晶成分に由来する９７３ｃｍ$^{-1}$付近のピーク強度Ｐ１と、結晶成分に由来する９９８ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ１と、結晶成分に由来する９９８ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ２を測定し、吸収ピーク強度Ｐ１に対する吸収ピーク強度Ｐ２の強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１を算出した。ここで赤外吸収スペクトルは吸光度での値を用いた。このとき、小数点以下第４位を四捨五入して小数点以下第３位の値を算出した。結果を表１Ａに示す。

手法：マクロＡＴＲ法

波数分解能：４ｃｍ$^{-1}$

積算回数：３２回

検出器：ＴＧＳ検出器

ＡＴＲプリズム：ダイヤモンド

ベースライン：波数９２７ｃｍ$^{-1}$から１０６７ｃｍ$^{-1}$の範囲における強度の平均値

吸収ピーク強度Ｐ１：波数９７３ｃｍ$^{-1}$付近におけるピーク強度からベースラ

インの値を引いた値

吸収ピーク強度Ｐ２：波数９９８ｃｍ$^{-1}$付近におけるピーク強度からベースラインの値を引いた値

[0270] 例えばＸ線回折法（ＸＲＤ）は、検出深さが数十μｍであり、熱融着性樹脂層だけでなく、接着層も含んだ状態で結晶性を評価する。これに対し、ＦＴ－ＩＲのＡＴＲ法の検出深さは数μｍであり、熱融着性樹脂層のみの結晶性が反映される。このため、ＦＴ－ＩＲのＡＴＲ法では、電解液の影響を受ける熱融着性樹脂層の結晶性を反映させることが可能である。

[0271] ＜熱融着性樹脂層の断面観察＞

熱硬化性のエポキシ樹脂内に蓄電デバイス用外装材を包埋し硬化させた。市販品の回転式ミクロトーム（ＬＥＩＣＡ製　ＥＭ　ＵＣ６）を用いて、断面を作製し、蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層を、包埋樹脂ごと四酸化ルテニウムにて３時間染色した。ミクロトームで断面を１μｍ切り進めた後、ダイヤモンドナイフを用いて厚み７０ｎｍ～１００ｎｍの染色された切片を採取した。染色された切片について、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）を用いて断面画像を取得した。測定条件は、加速電圧：３０ｋＶ、エミッション電流：１０μＡ、検出器：透過検出器、傾斜：なし（０°）とした。海島構造は観察倍率２００００倍、ラメラ構造は観察倍率５００００倍とした。熱融着性樹脂層の海島構造を観察する断面画像は、熱融着性樹脂層の中心部分について、１３．５μｍ×１９．１μｍの範囲から、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲をランダムに選択して、４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲に含まれる島部の数を確認した。さらに、倍率２００００倍で観察された島部について、倍率を５００００倍に拡大して、島部のラメラ晶の有無についての観察、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を島部が有するか否かについての観察を行った。結果を表１Ａに示す。

[0272] ＜２５℃又は１５０℃でのシール強度の測定＞

ＪＩＳ　Ｋ７１２７：１９９９の規定に準拠して、それぞれ、２５℃環境

、１５０℃環境の各測定温度における蓄電デバイス用外装材のシール強度を次のようにして測定した。試験片として、ＴＤ方向の幅が１５ｍｍの短冊状に裁断した蓄電デバイス用外装材を準備した。具体的には、図７に示すように、まず、各蓄電デバイス用外装材を７５ｍｍ（ＴＤ方向）×１５０ｍｍ（ＭＤ方向）に裁断した（図７ａ）。次に、熱融着性樹脂層同士が対向するようにして、蓄電デバイス用外装材を折り目Ｐ（ＭＤ方向の中間）の位置でＭＤ方向に２つ折りにした（図７ｂ）。折り目Ｐから１０ｍｍ程度ＭＤ方向に内側において、シール幅７ｍｍ、温度１９０℃、面圧１．０ＭＰａ、３秒間の条件で熱融着性樹脂層同士をヒートシールした（図７ｃ）。図７ｃにおいて、斜線部Ｓがヒートシールされている部分である。次に、ＴＤ方向の幅が１５ｍｍとなるようにして、ＭＤ方向に裁断（図７ｄの二点鎖線の位置で裁断）して試験片を得た（図７ｅ）。次に、試験片１３を各測定温度で５分間放置し、各測定温度環境において、引張り試験機（島津製作所製、ＡＧ－Ｉ（商品名））で熱融着部の熱融着性樹脂層を３００ｍｍ／分の速度で剥離させた（図８）。剥離時の最大強度をシール強度（Ｎ／１５ｍｍ）とした。チャック間距離は、５０ｍｍである。結果を表１Ａに示す。なお、シール強度の測定においては、図８に示されるヒートシール界面Ａで試験片１３が剥離（破壊）される場合と、ヒートシール界面Ａとは異なる部分（例えば、図８のＢの位置）で試験片１３が破断する場合とがある。試験片１３が破断した場合には、破断強度をシール強度として表１Ａに記載した。２５℃でのシール強度と１５０℃でのシール強度の評価基準を、それぞれ、下記に示す。

[0273] （２５℃でのシール強度の評価基準）

Ａ：シール強度が１４０．０Ｎ／１５ｍｍ以上

Ｂ：シール強度が１４０．０Ｎ／１５ｍｍ未満

[0274] （１５０℃でのシール強度（耐熱性）の評価基準）

Ａ：シール強度が２５．０Ｎ／１５ｍｍ以上

Ｂ：シール強度が１０．０Ｎ／１５ｍｍ以上２５．０Ｎ／１５ｍｍ未満

Ｃ：シール強度が１０．０Ｎ／１５ｍｍ未満

[0275] ＜耐電解液性評価＞

図１０の模式図に示すように、ＴＤ９０ｍｍ×ＭＤ２００ｍｍにカットした蓄電デバイス用外装材をサンプルとした。サンプルを、ＭＤ１００ｍｍ箇所で折り曲げ、２つ折りされた状態でＴＤ方向における両端を幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させて、蓄電デバイス用外装材から形成された開口部を備える袋状の包装体を袋状とした。次に、袋状の包装体を露点－４０℃のドライルーム内にて１日保管し、開口する残り１つの端辺（開口部）から電解液（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）を入れ、開口部を幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させて、電解液を包装体内に密封した。開口物を熱融着させた端辺が上になるようにして、包装体を８５℃環境下にて１４日間保管した。保管後、開口物を熱融着させた端辺を切除して開口し、電解液を取り除き、３時間以内に、電解液が触れていた箇所の熱融着性樹脂層同士を、ＭＤ方向に対して垂直になるように、幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させた。ＴＤ方向に対して垂直になるように幅１５ｍｍにカットし、ＭＤ方向に引っ張る際のシール強度測定用サンプルを作製した。熱融着から１時間以内に、前述した２５℃環境におけるシール強度と同様の装置及び条件で、８５℃環境で１４日後の含浸シール強度（サンプルに電解液が含浸した状態のシール強度）を測定した。シール強度測定用サンプルの膨潤の様子、剥離モードの観察結果と共に、含浸シール強度の測定結果を表１Ａに示す。耐電解液性の評価基準は以下の通りである。

[0276] （耐電解液性の評価基準）

Ａ：含浸シール強度が１３０．０Ｎ／１５ｍｍ以上３００．０Ｎ／１５ｍｍ未満

Ｂ：含浸シール強度が２０．０Ｎ／１５ｍｍ以上１３０．０Ｎ／１５ｍｍ未

満

Ｃ：含浸シール強度が２０．０Ｎ／１５ｍｍ未満

[0277] ＜成形性評価＞

各蓄電デバイス用外装材を長さ（ＭＤ）５５ｍｍ×幅（ＴＤ）５５ｍｍに裁断して試験サンプルとした。この試験サンプルを２５℃の環境下にて３０．０ｍｍ（ＭＤ）×３０．０ｍｍ（ＴＤ）の口径を有する矩形状の成形金型（雌型）を用いて、成形を実施した。成形深さが１２．０ｍｍとなるように、押さえ圧（面圧）０．１８ＭＰａ、ストローク速度は２０ｍｍ／ｓで冷間成形（引き込み１段成形）を行った。雄型側に熱融着性樹脂層側が位置するよう、雌型上に上記試験サンプルを載置して成形をおこなった。成形後の試験サンプルの熱融着性樹脂層を目視で観察して、白化の有無を確認した。白化が発生する部分は、主として成形部の角の辺りであった。成形性の評価基準は以下の通りである。結果を表１Ａに示す。

[0278] （成形性の評価基準）

Ａ：白化無し

Ｂ：成形部の角の辺りが白化（白化部分は隣り合う角の長さの半分以内）

Ｃ：全体的に白化した状態

[0279]

［表1A］

		実施例1A	実施例2A	実施例3A	実施例4A	比較例1A	比較例2A
熱融着性樹脂層の組成		rPP＋hPP＋プロピレン－エチレン系エラストマー	rPP＋hPP＋プロピレン－エチレン系エラストマー	bPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	rPP＋hPP＋プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	rPP+PE+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	rPP+bPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー
接着層の組成		PPa+hPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	PPa+hPP+プロピレン-エチレン系エラストマー	PPa+bPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	PPa+hPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	PPa	PPa
熱融着性樹脂層の剛体振り子による対数減衰率ΔＥ	150℃環境	0.071	0.062	0.068	0.071	0.097	0.076
熱融着性樹脂層のFT-IRによる結晶性評価	強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１	0.769	0.768	0.754	0.758	0.741	0.749
熱融着性樹脂層の断面観察	島部のラメラ晶の有無	有り	有り	有り	無し	有り	有り
	島部と海部との境界部分に、厚みが１０ｎｍ以上の層を島部が有するか否か	無し	無し	有り	無し	有り	かなり有り
	最大径１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数	10以内	10以内	11以上	11以上	11以上	11以上
	最大径３００ｎｍ以上の島部の数	0	0	11以上	1-10個	11以上	11以上
シール強度	25℃環境	評価Ａ	評価Ａ	評価Ａ	評価Ｂ	評価Ｂ	評価Ｂ
	(N/15mm)	151.2	146.6	140.5	139.6	138.2	137.1
	150℃環境（耐熱性）	評価Ａ	評価Ａ	評価Ａ	評価Ａ	評価Ｃ	評価Ｂ
	(N/15mm)	37.2	30.5	28.4	35.1	1.3	10.4
耐電解液性	含浸シール強度	評価Ａ	評価Ａ	評価Ｂ	評価Ｂ	評価Ｂ	評価Ｃ
	(N/15mm)	133.8	140.8	45.6	23.2	36.1	2.4
	膨潤の様子	ほとんど無し	ほとんど無し	少し有り	有り	少し有り	有り
	剥離モード	AL破断	AL破断	接着層とALとの界面剥離、及び熱融着性樹脂層の凝集破壊	熱融着性樹脂層間の界面剥離、及び接着層とALとの界面剥離	接着層とALとの界面剥離、及び熱融着性樹脂層の凝集破壊	熱融着性樹脂層間の界面剥離
成形性評価	絞り深さ12mm、	評価Ａ	評価Ａ	評価Ｃ	評価Ａ	評価Ａ	評価Ｂ
	成形スピード20mm/s	白化無し	白化無し	かなり白化	白化無し	白化無し	少し白化

[0280] 表１Ａ中のΔＥ、強度比Ｘ、シール強度の値は、それぞれ、表１Ａに記載の数値から一桁小さい測定値を四捨五入して算出した値である。

[0281] 表１Ａにおいて、ｒＰＰはランダムポリプロピレン、ｈＰＰはホモポリプロピレン、ｂＰＰはブロックポリプロピレン、ＰＥはポリエチレン、ＡＬはアルミニウム合金箔を意味する。

[0282] 実施例１Ａ－４Ａの蓄電デバイス用外装材は、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である。表１Ａに示されるように、実施例１Ａ－４Ａの蓄電デバイス用外装材は、耐熱性に優れていることが分かる。

[0283] ＜第２の態様の蓄電デバイス用外装材の製造＞

実施例１Ｂ

基材層として、２軸延伸ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルム（厚さ１２μｍ）と延伸ナイロン（ＯＮｙ）フィルム（厚さ１５μｍ）とが、接着剤層（２液硬化型ウレタン接着剤で形成し、硬化後の厚さは３μｍ）で接着された積層体を準備した。また、バリア層として、アルミニウム箔（ＪＩＳ　Ｈ４１６０：１９９４　Ａ８０２１Ｈ－Ｏ（厚さ４０μｍ））を用意した。アルミニウム箔の両面には、化成処理が施してある。アルミニウム箔の化成処理は、フェノール樹脂、フッ化クロム化合物、及びリン酸からなる処理液をクロムの塗布量が１０ｍｇ／m^2（乾燥質量）となるように、ロールコート法によりアルミニウム箔の両面に塗布し、焼付けすることにより行った。

[0284] 次に、２液硬化型ウレタン接着剤を用い、ドライラミネート法により、基材層とバリア層とを接着剤層（厚さ３μｍ）で接着し、基材層／接着剤層／バリア層が順に積層された積層体を作製した。

[0285] 次に、上記で得られた各積層体のバリア層の上に、接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物（無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（

３元系共重合体）とからなる樹脂組成物）と、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物（ランダムポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー（２元系共重合体）とからなる樹脂組成物）とを共押出しすることにより、バリア層の上に接着層／熱融着性樹脂層とを積層させた。次に、得られた積層体をエージングし、加熱することにより、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0286] 実施例２Ｂ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー（２元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ｂと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0287] 実施例１Ｂ－２Ｂにおいて、それぞれ、バリア層の厚みを４０μｍから６０μｍ、さらには８０μｍへと厚くすると、２５℃環境でのシール強度及び１５０℃環境でのシール強度は高くなり、水蒸気バリア性に優れ、成形時の白化は生じなかった。この結果から、バリア層の厚みは４０μｍに限ったことではなく、例えば８０μｍまで厚くしても良いことが分かる。

[0288] 比較例１Ｂ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンを用いたこと、及び、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、ランダムポリプロピレンと、ポリエチレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ｂと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0289] 比較例２Ｂ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと、及び、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ｂと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0290] 比較例３Ｂ

熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、ランダムポリプロピレンと、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、比較例１Ｂと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0291] 比較例４Ｂ

熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、ランダムポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ｂと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0292] ＜熱融着性樹脂層の断面観察＞

熱硬化性のエポキシ樹脂内に蓄電デバイス用外装材を包埋し硬化させた。市販品の回転式ミクロトーム（ＬＥＩＣＡ製　ＥＭ　ＵＣ６）を用いて、断面を作製し、蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層を、包埋樹脂ごと四酸化ルテニウムにて３時間染色した。ミクロトームで断面を１μｍ切り進めた

後、ダイヤモンドナイフを用いて厚み７０ｎｍ～１００ｎｍの染色された切片を採取した。染色された切片について、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）を用いて断面画像を取得した。測定条件は、加速電圧：３０ｋＶ、エミッション電流：１０μＡ、検出器：透過検出器、傾斜：なし（０°）とした。海島構造は観察倍率２００００倍、ラメラ構造は観察倍率５００００倍とした。熱融着性樹脂層の海島構造を観察する断面画像は、熱融着性樹脂層の中心部分について、１３．５μｍ×１９．１μｍの範囲から、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲をランダムに選択して、４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲に含まれる島部の数を確認した。さらに、倍率２００００倍で観察された島部について、倍率を５００００倍に拡大して、島部のラメラ晶の有無についての観察、島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を島部が有するか否かについての観察を行った。結果を表１Ｂに示す。

[0293] ＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞

剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定方法を説明するための模式図を図６に示す。剛体振り子型物性試験器（型番：ＲＰＴ－３０００Ｗ　株式会社エー・アンド・デイ社製）を用い、振り子３０のフレームにはＦＲＢ－１００、エッジ部の円柱状シリンダエッジ３０ａにはＲＢＰ－０２０、冷熱ブロック３１にはＣＨＢ－１００を使用し、初期の振幅を約０．３ｄｅｇｒｅｅとした。振り子吸着時間を１．０ｓ、測定間隔を１０ｓとした。ＭＤ４５ｍｍ、ＴＤ１５ｍｍにカットし、試験サンプルとした。さらに、振動変位検出器３２を使用した。

[0294] なお、本測定で採用した円柱状シリンダエッジＲＢＰ－０２０は、径が２ｍｍと小さく、測定時に熱融着性樹脂層の表面から内部に沈み込み易く、熱融着性樹脂層全体としての特性を評価することに適している。このため、本測定は、後述する高温環境（１５０℃環境）におけるシール強度との相関を評価する観点から適したものである。

[0295] 冷熱ブロック３１上に試験サンプルの測定面（熱融着性樹脂層）を上方に

向けて載置し、測定面上に振り子付き円柱状シリンダエッジ３０ａの軸線方向が試験サンプルのＭＤの方向に直交するように設置した。また、測定中の試験サンプルの浮きや反りを防ぐために、試験サンプルの測定結果に影響のない箇所にテープを貼りつけて冷熱ブロック３１上に固定した。円柱状シリンダエッジ３０ａを、熱融着性樹脂層の表面に接触させた。次に、冷熱ブロック３１を用いて昇温速度３℃／分にて０℃から１８０℃の温度範囲で熱融着性樹脂層の対数減衰率ΔＥの測定をＮ＝１で行った。試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用した。結果を表１Ｂに示す。後述する１５０℃での耐熱シール強度が２５Ｎ／１５ｍｍ以上となる指標として、本測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥは、０．０７５以下を採用した。

なお、対数減衰率ΔＥは、以下の式によって算出される。このとき、小数点以下第４位を四捨五入して小数点以下第３位の値を算出した。

ΔＥ＝［ｌｎ（Ａ１／Ａ２）＋ｌｎ（Ａ２／Ａ３）＋．．．＋ｌｎ（Ａｎ／Ａｎ＋１）］／ｎ

Ａ：振幅

ｎ：波数

[0296] なお、実施例１Ｂ～２Ｂにおいて、熱融着性樹脂層の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、いずれも０．０２超であった。熱融着性樹脂層の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、前記の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法において、「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」代わりに「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が８０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」こと以外は、熱融着性樹脂層の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥと同様にして測定された値である。

[0297] ＜蓄電デバイス用外装材から形成された包装体の水蒸気バリア性の評価＞

以下の手順にて、蓄電デバイス用外装材から形成された包装体の水蒸気バ

リア性の評価した。

（手順）

図１１の模式図に示すように、ＴＤ７５ｍｍ×ＭＤ１５０ｍｍにカットした蓄電デバイス用外装材をサンプルとする。サンプルを、ＭＤ７５ｍｍ箇所で折り曲げ、２つ折りされた状態でＴＤ方向における両端を幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させて、蓄電デバイス用外装材から形成された開口部を備える袋状の包装体とする。尚、ＴＤ方向における両端のシール部を左右のシール部とする。この時、左右のシール箇所を膜厚計で膜厚を測定し、左右それぞれの膜厚から基材層、バリア層、接着剤層の厚みを引いた値（バリア層よりも熱融着性樹脂層側の層の厚みのみ）をシール部の膜厚とする。次に両端の左右のシール箇所を３．０ｍｍにカットする。尚、カット後のシール部３．０ｍｍが水蒸気の透過距離となる。次に、袋状の包装体を露点－４０℃のドライルーム内にて１日保管し、開口する残り１つの端辺（開口部）から溶液（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）を２．０ｇ入れ、開口部を幅７ｍｍ、面圧１．０ＭＰａ、シール温度１９０℃、シール時間３．０秒間の条件で熱融着させて、溶液を包装体内に密封する。尚、溶液を注入したシール部を上部とする。上部のシール箇所を膜厚計で膜厚を測定し、基材層、バリア層、接着剤層の厚みを引いた値（バリア層よりも熱融着性樹脂層側の層の厚みのみ）をシールの膜厚とする。開口部をシールして出来た上部のシール箇所を３．０ｍｍにカットする。尚、カット後のシール部３．０ｍｍが水蒸気の透過距離となる。溶液を封入した包装体のそれぞれのシール部（左右および溶液を封入した上部）のシール部の長さを金尺で測定する。

水蒸気透過断面積m^2を下記式の通り設定する。

水蒸気透過断面積＝両端の断面積（右側のシール膜厚×右側の長さ＋左側のシール膜厚×左側の長さ）＋上側の断面積（上側のシール膜厚×上側のシール長さ）

封入時の溶液の水分含有率（ｐｐｍ）をカールフィッシャー法の電量滴定法を用い測定する。温度６５℃相対湿度９０％の恒温恒湿槽で４週間放置し、試験後の溶液２．０ｇに対する水分含有率を測定する。４週間放置後の水分含有率の測定も、封入時（放置前）と同様に、カールフィッシャー法の電量滴定法を用い水分含有率ｐｐｍを測定する。

温度６５℃相対湿度９０％で４週間放置後の測定した水分含有率（ｐｐｍ）、封入時（温度６５℃相対湿度９０％恒温恒湿槽への投入前）の水分含有率（ｐｐｍ）、封入した溶液量（ｇ）、水蒸気透過断面積（m^2）、温度６５℃相対湿度９０％の投入時間（ｄａｙ）を利用し、下記式にて水蒸気透過係数（ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ）を算出する。このとき、小数点以下第２位を四捨五入して小数点以下第１位の値を算出する。

水蒸気透過係数＝（水蒸気の透過距離×（温度６５℃相対湿度９０％で４週間放置した後の測定した水分含有率－封入時の水分含有率）×封入した溶液量）／（水蒸気透過断面積×温度６５℃相対湿度９０％の投入時間）

[0298] 温度４０℃相対湿度９０％での水蒸気バリア性の評価については、前述した温度６５℃相対湿度９０％での水蒸気バリア性の評価において、温度６５℃相対湿度９０％の恒温恒湿槽を温度４０℃相対湿度９０％の恒温恒湿槽に変更したこと以外は、同様にして水蒸気透過係数（ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ）算出を行った。このとき、小数点以下第３位を四捨五入して小数点以下第２位の値を算出する。

算出及び評価の結果を表１Ｂに示す。

[0299] （温度６５℃相対湿度９０％での水蒸気バリア性の評価基準）

Ａ：４．５ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ未満

Ｂ：４．５ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上５．０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ未満

Ｃ：５．０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上

[0300] （温度４０℃相対湿度９０％での水蒸気バリア性の評価基準）

Ａ：０．６０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ未満

Ｂ：０．６０ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上０．６８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ未満

Ｃ：０．６８ｇ・ｍｍ／m^2・ｄａｙ以上

[0301] ＜２５℃又は１５０℃でのシール強度の測定＞

ＪＩＳ　Ｋ７１２７：１９９９の規定に準拠して、それぞれ、２５℃環境、１５０℃環境の各測定温度における蓄電デバイス用外装材のシール強度を次のようにして測定した。試験片として、ＴＤ方向の幅が１５ｍｍの短冊状に裁断した蓄電デバイス用外装材を準備した。具体的には、図７に示すように、まず、各蓄電デバイス用外装材を７５ｍｍ（ＴＤ方向）×１５０ｍｍ（ＭＤ方向）に裁断した（図７ａ）。次に、熱融着性樹脂層同士が対向するようにして、蓄電デバイス用外装材を折り目Ｐ（ＭＤ方向の中間）の位置でＭＤ方向に２つ折りにした（図７ｂ）。折り目Ｐから１０ｍｍ程度ＭＤ方向に内側において、シール幅７ｍｍ、温度１９０℃、面圧１．０ＭＰａ、３秒間の条件で熱融着性樹脂層同士をヒートシールした（図７ｃ）。図７ｃにおいて、斜線部Ｓがヒートシールされている部分である。次に、ＴＤ方向の幅が１５ｍｍとなるようにして、ＭＤ方向に裁断（図７ｄの二点鎖線の位置で裁断）して試験片を得た（図７ｅ）。次に、試験片１３を各測定温度で５分間放置し、各測定温度環境において、引張り試験機（島津製作所製、ＡＧ－Ｉ（商品名））で熱融着部の熱融着性樹脂層を３００ｍｍ／分の速度で剥離させた（図８）。剥離時の最大強度をシール強度（Ｎ／１５ｍｍ）とした。チャック間距離は、５０ｍｍである。結果を表１Ｂに示す。なお、シール強度の測定においては、図８に示されるヒートシール界面Ａで試験片１３が剥離（破壊）される場合と、ヒートシール界面Ａとは異なる部分（例えば、図８のＢの位置）で試験片１３が破断する場合とがある。試験片１３が破断した場合には、破断強度をシール強度として表１Ｂに記載した。２５℃でのシール強度と１５０℃でのシール強度の評価基準を、それぞれ、下記に示す。

[0302] （２５℃でのシール強度の評価基準）

Ａ：シール強度が１４０．０Ｎ／１５ｍｍ以上

Ｂ：シール強度が１４０．０Ｎ／１５ｍｍ未満

[0303] （１５０℃でのシール強度（耐熱性）の評価基準）

Ａ：シール強度が２５．０Ｎ／１５ｍｍ以上

Ｂ：シール強度が１０．０Ｎ／１５ｍｍ以上２５Ｎ／１５ｍｍ未満

Ｃ：シール強度が１０．０Ｎ／１５ｍｍ未満

[0304] ＜成形性評価＞

各蓄電デバイス用外装材を長さ（ＭＤ）５５ｍｍ×幅（ＴＤ）５５ｍｍに裁断して試験サンプルとした。この試験サンプルを２５℃の環境下にて３０．０ｍｍ（ＭＤ）×３０．０ｍｍ（ＴＤ）の口径を有する矩形状の成形金型（雌型）を用いて、成形を実施した。成形深さが１２．０ｍｍとなるように、押さえ圧（面圧）０．１８ＭＰａ、ストローク速度は２０ｍｍ／ｓで冷間成形（引き込み１段成形）を行った。雄型側に熱融着性樹脂層側が位置するよう、雌型上に上記試験サンプルを載置して成形をおこなった。成形後の試験サンプルの熱融着性樹脂層を目視で観察して、白化の有無を確認した。白化が発生する部分は、主として成形部の角であった。成形性の評価基準は以下の通りである。結果を表１Ｂに示す。

[0305] （成形性の評価基準）

Ａ：白化無し

Ｂ：成形部の角の辺りが白化（白化部分は隣り合う角の長さの半分以内）

Ｃ：全体的に白化した状態

[0306]

[表1B]

		実施例1B	実施例2B	比較例1B	比較例2B	比較例3B	比較例4B
熱融着性樹脂層の組成		rPP＋hPP＋プロピレンーエチレン系エラストマー	rPP＋hPP＋プロピレンーエチレン系エラストマー	rPP+PE+プロピレンーエチレンーブテン系エラストマー	bPP+プロピレンーエチレンーブテン系エラストマー	rPP+bPP+プロピレンーエチレンーブテン系エラストマー	rPP＋hPP＋プロピレンーエチレンーブテン系エラストマー
接着層の組成		PPa＋hPP＋プロピレンーエチレンーブテン系エラストマー	PPa＋hPP＋プロピレン-エチレン系エラストマー	PPa	PPa+bPP+プロピレンーエチレンーブテン系エラストマー	PPa	PPa＋hPP＋プロピレンーエチレンーブテン系エラストマー
熱融着性樹脂層の断面観察	島部のラメラ晶の有無	有り	有り	有り	有り	有り	無し
	島部と海部との境界部分に、厚みが１０ｎｍ以上の層を島部が有するか否か	無し	無し	有り	有り	かなり有り	無し
	最大径１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数	10以内	10以内	11以上	11以上	11以上	11以上
	最大径３００ｎｍ以上の島部の数	0	0	11以上	11以上	11以上	1-10個
熱融着性樹脂層の剛体振り子による対数減衰率ΔＥ	150℃環境	0.071	0.062	0.097	0.068	0.076	0.071
蓄電デバイス用外装材から形成された包装体の水蒸気バリア性	65℃90%水蒸気透過係数(g･㎜/m2･day)	評価Ｂ	評価Ａ	評価Ｃ	評価Ｃ	評価Ｃ	評価Ｃ
		4.8	4.3	5.5	5.1	5.1	5.2
	40℃90%(水蒸気透過係数(g･㎜/m2･day)	評価Ｂ	評価Ａ	評価Ｃ	評価Ｃ	評価Ｃ	評価Ｃ
		0.67	0.58	0.75	0.70	0.68	0.76
シール強度	25℃環境 (N/15mm)	評価Ａ	評価Ａ	評価Ｂ	評価Ａ	評価Ｂ	評価Ｂ
		151.2	146.6	138.2	140.5	137.1	139.6
	150℃環境（耐熱性） (N/15mm)	評価Ａ	評価Ａ	評価Ｃ	評価Ａ	評価Ｂ	評価Ａ
		37.2	30.5	1.3	28.4	10.4	35.1
成形性評価	絞り深さ12mm、成形スピード20mm/s	評価Ａ	評価Ａ	評価Ａ	評価Ｃ	評価Ｂ	評価Ａ
		白化無し	白化無し	白化無し	かなり白化	少し白化	白化無し

[0307] 表１Ｂ中のΔＥ、シール強度の値は、それぞれ、表１Ｂに記載の数値から

一桁小さい測定値を四捨五入して算出した値である。

[0308] 表１Ｂにおいて、ｒＰＰはランダムポリプロピレン、ｈＰＰはホモポリプロピレン、ｂＰＰはブロックポリプロピレン、ＰＥはポリエチレンを意味する。

[0309] 実施例１Ｂ－２Ｂの蓄電デバイス用外装材は、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、熱融着性樹脂層の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、前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まず、前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される。表１Ｂに示されるように、実施例１Ｂ－２Ｂの蓄電デバイス用外装材は、水蒸気バリア性に優れていることが分かる。

[0310] ＜第３の態様の蓄電デバイス用外装材の製造＞

<u>実施例１Ｃ</u>

基材層として、２軸延伸ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）フィルム（厚さ１２μｍ）と延伸ナイロン（ＯＮｙ）フィルム（厚さ１５μｍ）とが、接着剤層（２液硬化型ウレタン接着剤で形成し、硬化後の厚さは３μｍ）で接着された積層体を準備した。また、バリア層として、アルミニウム箔（ＪＩＳ　Ｈ４１６０：１９９４　Ａ８０２１Ｈ－Ｏ（厚さ４０μｍ））を用意した。アルミニウム箔の両面には、化成処理が施してある。アルミニウム箔の化成処理は、フェノール樹脂、フッ化クロム化合物、及びリン酸からなる処理液をクロムの塗布量が１０ｍｇ／m^2（乾燥質量）となるように、ロールコート法によりアルミニウム箔の両面に塗布し、焼付けすることにより行った。

[0311] 次に、２液硬化型ウレタン接着剤を用い、ドライラミネート法により、基材層とバリア層とを接着剤層（厚さ３μｍ）で接着し、基材層／接着剤層／

バリア層が順に積層された積層体を作製した。

[0312] 次に、接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物（無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物）と、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物（ランダムポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー（２元系共重合体）とからなる樹脂組成物）との積層体を共押出しにより作製した。基材層／接着剤層／バリア層の積層体のバリア層の上に、接着層と熱融着性樹脂層との積層体の接着層側を乗せた状態で、真空ラミネーターを用い、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0313] 実施例２Ｃ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ホモポリプロピレンと、プロピレン－エチレン共重合体エラストマー（２元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ｃと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0314] 実施例３Ｃ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンと、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと、及び、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂組成物として、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ｃと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0315] 実施例１Ｃ－３Ｃにおいて、それぞれ、バリア層の厚みを４０μｍから６０μｍ、さらには８０μｍへと厚くすると、２５℃環境でのシール強度及び１５０℃環境でのシール強度は高くなり、絶縁性に優れ、成形時の白化は生じなかった。この結果から、バリア層の厚みは４０μｍに限ったことではなく、例えば８０μｍまで厚くしても良いことが分かる。

[0316] 比較例１Ｃ

接着層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂として、無水マレイン酸変性ホモポリプロピレンを用いたこと、及び、熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂として、ランダムポリプロピレンと、ポリエチレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、実施例１Ｃと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0317] 比較例２Ｃ

熱融着性樹脂層（厚さ４０μｍ）を形成する樹脂として、ランダムポリプロピレンと、ブロックポリプロピレンと、プロピレン－エチレン－ブテン共重合体エラストマー（３元系共重合体）とからなる樹脂組成物を用いたこと以外は、比較例１Ｃと同様にして、基材層／接着剤層／バリア層／接着層／熱融着性樹脂層がこの順に積層された積層体からなる蓄電デバイス用外装材を得た。

[0318] ＜示差走査熱量測定法による熱融着性樹脂層の評価（ＤＳＣ曲線の取得）＞

蓄電デバイス用外装材の熱融着性樹脂層について、ＪＩＳ　Ｋ７１２１：２０１２（プラスチックの転移温度測定方法）の規定に準拠し、示差走査熱量測定法（ＤＳＣ法）により、熱融着性樹脂層を形成する樹脂のＤＳＣ曲線を取得した。熱融着性樹脂層５－１０ｍｇをアルミパンへ入れ、カバーをした後、示差走査熱量計（島津製ＤＳＣ－６０）を用いて、ＤＳＣ曲線を取得した。測定は、－１０℃から２００℃までの温度領域を昇温速度１０℃／ｍｉｎ、降温速度－１０℃／ｍｉｎで実施し、２００℃に到達した時点から

１０ｍｉｎ間、２００℃で保持し、さらに降温後－１０℃で１０ｍｉｎ間保持することで、熱履歴を除き、樹脂そのものの性能を調べるため、一度昇温・降温した後の２回目の昇温からＤＳＣ曲線を取得した。得られたＤＳＣ曲線から、熱融着性樹脂層の融解ピーク温度、及び１００．０℃以上の温度領域における肩ピークを確認した。測定は窒素雰囲気化で行い、窒素ガス流量を５０ｍＬ／ｍｉｎとした。結果を表１Ｃに示す。融解ピーク温度及び肩ピーク温度は、小数点以下第２位を四捨五入した値である。肩ピークとは、ＤＳＣ曲線の融解ピークの補外融解開始温度から融解ピーク温度の温度範囲に存在する、融解ピーク温度よりも低温側の曲線の勾配が変化する部分であり、ショルダーピークとも言う。肩ピーク温度の求め方は、ＪＩＳ Ｋ７１２１（プラスチックの転移温度測定方法）を参考に、下記（ｉ）、（ii）のように行うことが好ましい。

（ｉ）肩ピーク温度は、肩ピークの頂点の温度とする。

（ii）肩ピーク温度がなだらかで頂点を決定しにくい場合は、肩ピーク低温側の曲線に勾配が最大になる点で引いた接線と、肩ピーク高温側の曲線に勾配が最小になる点で引いた接線の交点の温度とする。例えば、実施例１Ｃは、融点ピークが１６０．０℃を超えて、肩ピークも１５０．０℃を超えている。一方、比較例１は、融点ピークが１６０．０℃以下、肩ピークも１５０．０℃以下であり、比較例２は、融点ピークが１６０．０℃以上、肩ピークも１５０．０℃以下である。比較例２のように肩ピーク温度が２つ以上ある場合は、最大の温度の肩ピーク温度を評価の対象とした。

[0319] （融解ピーク温度についての評価基準）

Ａ：融解ピーク温度が１６０．０℃以上

Ｃ：融解ピーク温度が１６０．０℃未満

[0320] （肩ピーク温度についての評価基準）

Ａ：肩ピーク温度が１５０．０℃超

Ｃ：肩ピーク温度が１００．０℃以上１５０．０℃以下

[0321] ＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞

剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定方法を説明するための模式図を図６に示す。剛体振り子型物性試験器（型番：ＲＰＴ－３０００Ｗ　株式会社エー・アンド・デイ社製）を用い、振り子３０のフレームにはＦＲＢ－１００、エッジ部の円柱状シリンダエッジ３０ａにはＲＢＰ－０２０、冷熱ブロック３１にはＣＨＢ－１００を使用し、初期の振幅を約０．３ｄｅｇｒｅｅとした。振り子吸着時間を１．０ｓ、測定間隔を１０ｓとした。ＭＤ４５ｍｍ、ＴＤ１５ｍｍにカットし、試験サンプルとした。さらに、振動変位検出器３２を使用している。

[0322] なお、本測定で採用した円柱状シリンダエッジＲＢＰ－０２０は、径が２ｍｍと小さく、測定時に熱融着性樹脂層の表面から内部に沈み込み易く、熱融着性樹脂層全体としての特性を評価することに適している。このため、本測定は、後述する高温環境（１５０℃環境）におけるシール強度との相関を評価する観点から適したものである。

[0323] 冷熱ブロック３１上に試験サンプルの測定面（熱融着性樹脂層）を上方に向けて載置し、測定面上に振り子付き円柱状シリンダエッジ３０ａの軸線方向が試験サンプルのＭＤの方向に直交するように設置した。また、測定中の試験サンプルの浮きや反りを防ぐために、試験サンプルの測定結果に影響のない箇所にテープを貼りつけて冷熱ブロック３１上に固定した。円柱状シリンダエッジ３０ａを、熱融着性樹脂層の表面に接触させた。次に、冷熱ブロック３１を用いて昇温速度３℃／分にて０℃から１８０℃の温度範囲で熱融着性樹脂層の対数減衰率ΔＥの測定をＮ＝１で行った。試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用した。結果を表１Ｃに示す。後述する１５０℃での耐熱シール強度が２５Ｎ／１５ｍｍ以上となる指標として、本測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥは、０．０７５以下を採用した。

なお、対数減衰率ΔＥは、以下の式によって算出される。このとき、小数点以下第４位を四捨五入して小数点以下第３位の値を算出した。

ΔＥ＝［ｌｎ（Ａ１／Ａ２）＋ｌｎ（Ａ２／Ａ３）＋．．．＋ｌｎ（Ａｎ／

Ａｎ＋１）］／ｎ

Ａ：振幅

ｎ：波数

[0324] なお、実施例１Ｃ～３Ｃにおいて、熱融着性樹脂層の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、いずれも０．０２超であった。熱融着性樹脂層の８０℃環境における対数減衰率ΔＥは、前記の＜剛体振り子測定による対数減衰率ΔＥの測定＞に記載された方法において、「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が１５０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」代わりに「試験サンプル（蓄電デバイス用外装材）の熱融着性樹脂層の表面温度が８０℃となった状態での対数減衰率ΔＥを採用する。」こと以外は、熱融着性樹脂層の１５０℃環境における対数減衰率ΔＥと同様にして測定された値である。

[0325] ＜２５℃又は１５０℃でのシール強度の測定＞

ＪＩＳ　Ｋ７１２７：１９９９の規定に準拠して、それぞれ、２５℃環境、１５０℃環境の各測定温度における蓄電デバイス用外装材のシール強度を次のようにして測定した。試験片として、ＴＤ方向の幅が１５ｍｍの短冊状に裁断した蓄電デバイス用外装材を準備した。具体的には、図７に示すように、まず、各蓄電デバイス用外装材を７５ｍｍ（ＴＤ方向）×１５０ｍｍ（ＭＤ方向）に裁断した（図７ａ）。次に、熱融着性樹脂層同士が対向するようにして、蓄電デバイス用外装材を折り目Ｐ（ＭＤ方向の中間）の位置でＭＤ方向に２つ折りにした（図７ｂ）。折り目Ｐから１０ｍｍ程度ＭＤ方向に内側において、シール幅７ｍｍ、温度１９０℃、面圧１．０ＭＰａ、３秒間の条件で熱融着性樹脂層同士をヒートシールした（図７ｃ）。図７ｃにおいて、斜線部Ｓがヒートシールされている部分である。次に、ＴＤ方向の幅が１５ｍｍとなるようにして、ＭＤ方向に裁断（図７ｄの二点鎖線の位置で裁断）して試験片を得た（図７ｅ）。次に、試験片１３を各測定温度で５分間放置し、各測定温度環境において、引張り試験機（島津製作所製、ＡＧ－Ｉ（商品名））で熱融着部の熱融着性樹脂層を３００ｍｍ／分の速度で剥離さ

せた（図８）。剥離時の最大強度をシール強度（Ｎ／１５ｍｍ）とした。チャック間距離は、５０ｍｍである。結果を表１Ｃに示す。なお、シール強度の測定においては、図８に示されるヒートシール界面Ａで試験片１３が剥離（破壊）される場合と、ヒートシール界面Ａとは異なる部分（例えば、図８のＢの位置）で試験片１３が破断する場合とがある。試験片１３が破断した場合には、破断強度をシール強度として表１Ｃに記載した。２５℃でのシール強度と１５０℃でのシール強度の評価基準を、それぞれ、下記に示す。

[0326] （２５℃でのシール強度の評価基準）

Ａ：シール強度が１４０．０Ｎ／１５ｍｍ以上

Ｂ：シール強度が１４０．０Ｎ／１５ｍｍ未満

[0327] （１５０℃でのシール強度（耐熱性）の評価基準）

Ａ：シール強度が２５．０Ｎ／１５ｍｍ以上

Ｂ：シール強度が１０．０Ｎ／１５ｍｍ以上２５Ｎ／１５ｍｍ未満

Ｃ：シール強度が１０．０Ｎ／１５ｍｍ未満

[0328] ＜１５０℃環境における絶縁性評価（体積抵抗率）＞

蓄電デバイス用外装材を１０ｃｍ×１０ｃｍにカットし、膜厚を測定した。株式会社エーディーシー製デジタル超高抵抗／微少電流計５４５０を用い、ＩＥＣ　６２６３１－３－１～３－２の規定に準拠し、蓄電デバイス用外装材の体積抵抗率を測定した。サンプルを１５０℃に設定した株式会社エーディーシー製レジスティビティ・チェンバ１２７０８へ投入し、温度が１５０℃で安定した３分後、５００Ｖ印加し、１分後の電流値および膜厚から体積抵抗率を算出した。結果を表１Ｃに示す。

[0329] （絶縁性評価の評価基準）

Ａ：１５０℃環境における体積抵抗率が１．０×１０^{14}Ω・ｃｍ以上である。

Ｂ：１５０℃環境における体積抵抗率が５．０×１０^{13}Ω・ｃｍ以上１×１０^{14}Ω・ｃｍ未満である。

Ｃ：１５０℃環境における体積抵抗率が５．０×１０^{13}Ω・ｃｍ未満である。

[0330] ＜成形性評価＞

各蓄電デバイス用外装材を長さ（ＭＤ）５５ｍｍ×幅（ＴＤ）５５ｍｍに裁断して試験サンプルとした。この試験サンプルを２５℃の環境下にて３０．０ｍｍ（ＭＤ）×３０．０ｍｍ（ＴＤ）の口径を有する矩形状の成形金型（雌型）を用いて、成形を実施した。成形深さが１２．０ｍｍとなるように、押さえ圧（面圧）０．１８ＭＰａ、ストローク速度は２０ｍｍ／ｓで冷間成形（引き込み１段成形）を行った。雄型側に熱融着性樹脂層側が位置するよう、雌型上に上記試験サンプルを載置して成形をおこなった。成形後の試験サンプルの熱融着性樹脂層を目視で観察して、白化の有無を確認した。白化が発生する部分は、主として成形部の角の辺りであった。成形性の評価基準は以下の通りである。結果を表１Ｃに示す。

[0331] （成形性の評価基準）

Ａ：白化無し

Ｂ：成形部の角の辺りが白化（白化部分は隣り合う角の長さの半分以内）

Ｃ：全体的に白化した状態

[0332]

[表1C]

		実施例1C	実施例2C	実施例3C	比較例1C	比較例2C
熱融着性樹脂層の組成		rPP＋hPP＋プロピレン－エチレン系エラストマー	rPP＋hPP＋プロピレン－エチレン系エラストマー	bPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	rPP+PE+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	rPP+bPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー
接着層の組成		PPa+hPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	PPa+hPP+プロピレン-エチレン系エラストマー	PPa+bPP+プロピレン－エチレン－ブテン系エラストマー	PPa	PPa
熱融着性樹脂層の融解ピーク温度（℃）	2nd昇温	評価A	評価A	評価A	評価C	評価A
		166.0	166.0	163.6	137.7	161.8
熱融着性樹脂層の肩ピーク温度（℃）	2nd昇温	評価A	評価A	評価A	評価C	評価C
		157.2	157.2	158.5	124.1	149.6
熱融着性樹脂層の剛体振り子による対数減衰率ΔE	150℃環境	0.062	0.059	0.058	0.087	0.077
シール強度	25℃環境	評価A	評価A	評価A	評価B	評価B
	(N/15mm)	158.7	155.0	151.6	133.4	135.8
	150℃環境（耐熱性）	評価A	評価A	評価A	評価C	評価B
	(N/15mm)	39.1	30.7	34.4	1.2	14.7
絶縁性評価	150℃環境での	評価A	評価A	評価A	評価C	評価B
	体積抵抗率(Ω･cm)	1.9E+14	2.0E+14	2.4E+14	2.8E+13	9.1E+13
成形性評価	絞り深さ12mm、	評価A	評価A	評価C	評価A	評価B
	成形スピード20mm/s	白化無し	白化無し	かなり白化	白化無し	少し白化

[0333] 表１Ｃ中の融解ピーク温度、肩ピーク温度、ΔＥ、シール強度、体積抵抗率の値は、それぞれ、表１Ｃに記載の数値から一桁小さい測定値を四捨五入して算出した値である。

[0334] 表１Ｃにおいて、ｒＰＰはランダムポリプロピレン、ｈＰＰはホモポリプロピレン、ｂＰＰはブロックポリプロピレン、ＰＥはポリエチレを意味する。また、表１Ｃの絶縁性評価の項目において、例えば実施例１Ｃの「１．９Ｅ＋１４」と指数表示（Ｅ表記）は「１．９×１０^{14}」を意味し、実施例２Ｃ，３Ｃ及び比較例１Ｃ，２Ｃについても同様の指数表示で示している。

[0335] 実施例１Ｃ－３Ｃの蓄電デバイス用外装材は、少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する。表１Ｃに示されるように、実施例１Ｃ－３Ｃの蓄電デバイス用外装材は、耐熱性及び高温環境における絶縁性に優れていることが分かる。

[0336] 以上の通り、本開示の第１の態様は、以下に示す態様の発明を提供する。

項１Ａ． 少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、蓄電デバイス用外装材。

項２Ａ． 前記熱融着性樹脂層の表面について、ＦＴ－ＩＲのＡＴＲ測定モードを用いて測定される吸収スペクトルにおいて、非晶成分に由来する９７３ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ１に対する、結晶成分に由来する９９８ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ２の強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１が、０．７６０以上である、項１Ａに記載の蓄電デバイス用外装材。

項３Ａ． 前記熱融着性樹脂層は、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーを含む樹脂組成物により形成されている、項１Ａ又は２Ａに記載の蓄電デバイス用外装材。

項４Ａ．　前記エラストマーは、プロピレン－エチレン共重合体エラストマーである、項３Ａに記載の蓄電デバイス用外装材。

項５Ａ．　前記熱融着性樹脂層の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、

前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まない、項１Ａ～４Ａのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項６Ａ．　前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される、項５Ａに記載の蓄電デバイス用外装材。

項７Ａ．　前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部は、前記島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を有しない、項５Ａ又は６Ａに記載の蓄電デバイス用外装材。

項８Ａ．　前記バリア層と前記熱融着性樹脂層との間に接着層をさらに備える、項１Ａ～７Ａのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項９Ａ．　前記接着層は、酸変性ポリプロピレンとエラストマーを含み、さらにブロックポリプロピレン及びホモポリプロピレンの少なくとも一方を含む、樹脂組成物により形成されている、項８Ａに記載の蓄電デバイス用外装材。

項１０Ａ．　前記エラストマーは、２元系共重合体エラストマーまたは３元系共重合体エラストマーである、項９Ａに記載の蓄電デバイス用外装材。

項１１Ａ．　前記基材層と前記バリア層との間に接着剤層をさらに備える、項１Ａ～１０Ａのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項１２Ａ．　前記バリア層の熱融着性樹脂層側とは反対側に、基材層をさらに備える、項１Ａ～１１Ａのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項１３Ａ．　少なくとも、基材層と、バリア層と、熱融着性樹脂層とこの順

に積層された積層体を得る工程を備えており、

前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、蓄電デバイス用外装材の製造方法。

項１４Ａ．　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が、項１Ａ～１２Ａのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材により形成された包装体中に収容されている、蓄電デバイス。

[0337]　また、以上の通り、本開示の第２の態様は、以下に示す態様の発明を提供する。

項１Ｂ．　少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層の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、

前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まず、

前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される、蓄電デバイス用外装材。

項２Ｂ．　前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部は、前記島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を有しない、項１Ｂに記載の蓄電デバイス用外装材。

項３Ｂ．　前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、項１Ｂ又は２Ｂに記載の蓄電デバイス用外装材。

項４Ｂ．　前記熱融着性樹脂層は、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーを含む樹脂組成物により形成されている、項１Ｂ～３Ｂのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項５Ｂ．　前記エラストマーは、プロピレン－エチレン共重合体エラストマ

ーである、項４Ｂに記載の蓄電デバイス用外装材。

項６Ｂ．　前記バリア層と前記熱融着性樹脂層との間に接着層をさらに備える、項１Ｂ～５Ｂのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項７Ｂ．　前記接着層は、酸変性ポリプロピレンとエラストマーを含み、さらにブロックポリプロピレン及びホモポリプロピレンの少なくとも一方を含む、樹脂組成物により形成されている項６Ｂに記載の蓄電デバイス用外装材。

項８Ｂ．　前記エラストマーは、２元系共重合体エラストマーまたは３元系共重合体エラストマーである、項７Ｂに記載の蓄電デバイス用外装材。

項９Ｂ．　前記基材層と前記バリア層との間に接着剤層をさらに備える、項１Ｂ～８Ｂのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項１０Ｂ．　前記バリア層の熱融着性樹脂層側とは反対側に、基材層をさらに備える、項１Ｂ～９Ｂのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項１１Ｂ．　少なくとも、基材層と、バリア層と、熱融着性樹脂層とこの順に積層された積層体を得る工程を備えており、

前記熱融着性樹脂層の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、

前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まず、

前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される、蓄電デバイス用外装材の製造方法。

項１２Ｂ．　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が、項１Ｂ～１０Ｂのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材により形成された包装体中に収容されている、蓄電デバイス。

[0338]　また、以上の通り、本開示の第３の態様は、以下に示す態様の発明を提供する。

項１Ｃ．　少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する、蓄電デバイス用外装材。

項２Ｃ．　前記熱融着性樹脂層は、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーを含む樹脂組成物により形成されている、項１Ｃに記載の蓄電デバイス用外装材。

項３Ｃ．　前記エラストマーは、プロピレン－エチレン共重合体エラストマーである、項２Ｃに記載の蓄電デバイス用外装材。

項４Ｃ．　前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、項１Ｃ～３Ｃのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項５Ｃ．　前記バリア層と前記熱融着性樹脂層との間に接着層をさらに備える、項１Ｃ～４Ｃのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項６Ｃ．　前記接着層は、酸変性ポリプロピレンとエラストマーを含み、さらにブロックポリプロピレン及びホモポリプロピレンの少なくとも一方を含む、樹脂組成物により形成されている項５Ｃに記載の蓄電デバイス用外装材。

項７Ｃ．　前記エラストマーは、２元系共重合体エラストマーまたは３元系共重合体エラストマーである、項６Ｃに記載の蓄電デバイス用外装材。

項８Ｃ．　前記基材層と前記バリア層との間に接着剤層をさらに備える、項１Ｃ～７Ｃのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項９Ｃ．　前記バリア層の熱融着性樹脂層側とは反対側に、基材層をさらに備える、項１Ｃ～８Ｃのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

項１０Ｃ．　少なくとも、基材層と、バリア層と、熱融着性樹脂層とこの順に積層された積層体を得る工程を備えており、

前記熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する、蓄電デバイス用外装材の製造方法。

項１１Ｃ．　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が、項１Ｃ～９Ｃのいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材により形成された包装体中に収容されている、蓄電デバイス。

符号の説明

[0339] １　基材層

２　接着剤層

３　バリア層

４　熱融着性樹脂層

５　接着層

６　表面被覆層

１０　蓄電デバイス用外装材

１３　試験片

請求の範囲

[請求項1] 少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、蓄電デバイス用外装材。

[請求項2] 前記熱融着性樹脂層の表面について、ＦＴ－ＩＲのＡＴＲ測定モードを用いて測定される吸収スペクトルにおいて、非晶成分に由来する９７３ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ１に対する、結晶成分に由来する９９８ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ２の強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１が、０．７６０以上である、請求項１に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項3] 少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層の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、

前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まず、

前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される、蓄電デバイス用外装材。

[請求項4] 前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部は、前記島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を有しない、請求項３に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項5] 少なくとも、バリア層、及び熱融着性樹脂層をこの順に備える積層体から構成されており、

前記熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳ

Ｃ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する、蓄電デバイス用外装材。

[請求項6] 前記熱融着性樹脂層の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、

前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まない、請求項１又は５に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項7] 前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される、請求項６に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項8] 前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部は、前記島部と海部との境界部分に厚みが１０ｎｍ以上の層を有しない、請求項６に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項9] 前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、請求項１～５のいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項10] 前記熱融着性樹脂層は、ランダムポリプロピレン、ホモポリプロピレン及びエラストマーを含む樹脂組成物により形成されている、請求項１～５のいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項11] 前記エラストマーは、プロピレン－エチレン共重合体エラストマーである、請求項１０に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項12] 前記バリア層と前記熱融着性樹脂層との間に接着層をさらに備える、請求項１～５のいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項13] 前記接着層は、酸変性ポリプロピレンとエラストマーを含み、さら

にブロックポリプロピレン及びホモポリプロピレンの少なくとも一方を含む、樹脂組成物により形成されている、請求項１２に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項14] 前記エラストマーは、２元系共重合体エラストマーまたは３元系共重合体エラストマーである、請求項１３に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項15] 前記バリア層の前記熱融着性樹脂層側とは反対側に、さらに基材層を備える、１～５のいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項16] 前記基材層と前記バリア層との間に接着剤層をさらに備える、請求項１５に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項17] 少なくとも、バリア層と、熱融着性樹脂層とこの順に積層された積層体を得る工程を備えており、

前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０７５以下である、蓄電デバイス用外装材の製造方法。

[請求項18] 少なくとも、バリア層と、熱融着性樹脂層とこの順に積層された積層体を得る工程を備えており、

前記熱融着性樹脂層の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、

前記断面画像について、倍率２００００倍で４．５０μｍ×６．３７μｍの範囲を観察した場合に、最大径が１００ｎｍ以上３００ｎｍ未満の島部の数が１０個以内であって、かつ、最大径が３００ｎｍ以上の島部を含まず、

前記断面画像について、倍率５００００倍で前記島部を観察した場合に、前記島部には、ラメラ晶が観察される、蓄電デバイス用外装材の製造方法。

[請求項19] 少なくとも、バリア層と、熱融着性樹脂層とこの順に積層された積

層体を得る工程を備えており、

前記熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超の温度に肩ピークが存在する、蓄電デバイス用外装材の製造方法。

[請求項20] 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が、請求項１～５のいずれか１項に記載の蓄電デバイス用外装材により形成された包装体中に収容されている、蓄電デバイス。

[請求項21] 前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０２０以上である、請求項１に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項22] 前記熱融着性樹脂層の表面について、ＦＴ－ＩＲのＡＴＲ測定モードを用いて測定される吸収スペクトルにおいて、非晶成分に由来する９７３ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ１に対する、結晶成分に由来する９９８ｃｍ$^{-1}$付近の吸収ピーク強度Ｐ２の強度比Ｘ＝Ｐ２／Ｐ１が、０．８３０以下である、請求項１又は２に記載の蓄電デバイス用外装材。

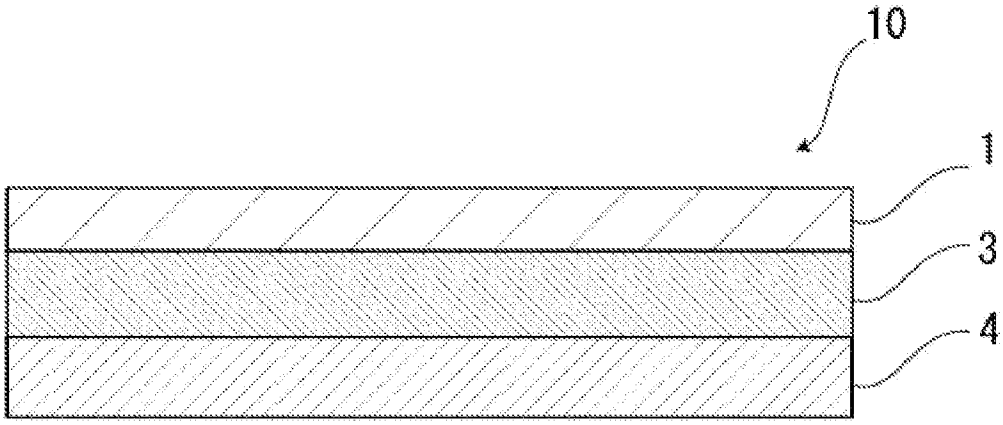
[請求項23] 前記熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６０．０℃以上１８０℃以下であり、１００．０℃以上１５０．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５０．０℃超から融解ピークまでの温度に肩ピークが存在する、請求項５に記載の蓄電デバイス用外装材。

[請求項24] 前記熱融着性樹脂層は、剛体振り子測定における１５０℃での対数減衰率ΔＥが０．０６０以上０．０７３以下である、請求項１記載の蓄電デバイス用外装材。

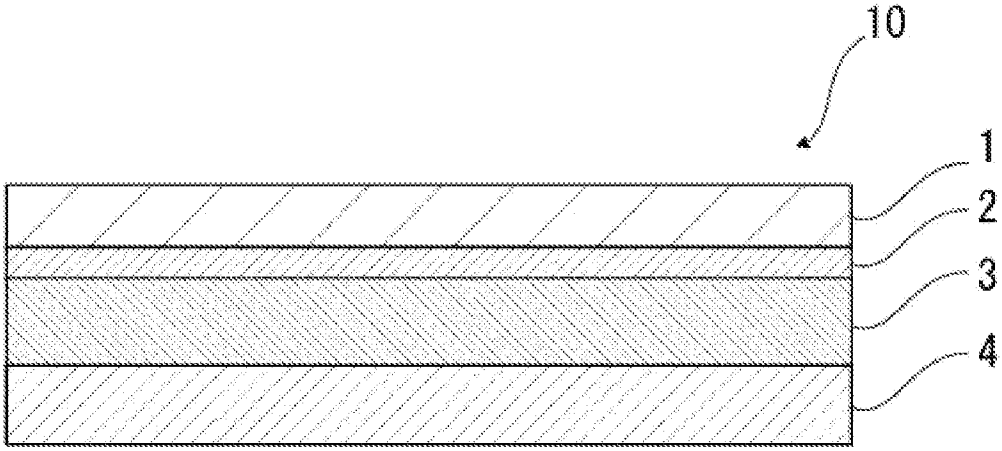
[請求項25] 前記熱融着性樹脂層は、示差走査熱量測定法により取得されるＤＳＣ曲線において、融解ピーク温度が１６２．０℃以上であり、１２０

．０℃以上１５５．０℃以下の温度範囲には肩ピークが存在せず、１５５．０℃超の温度に肩ピークが存在する、請求項５に記載の蓄電デバイス用外装材。

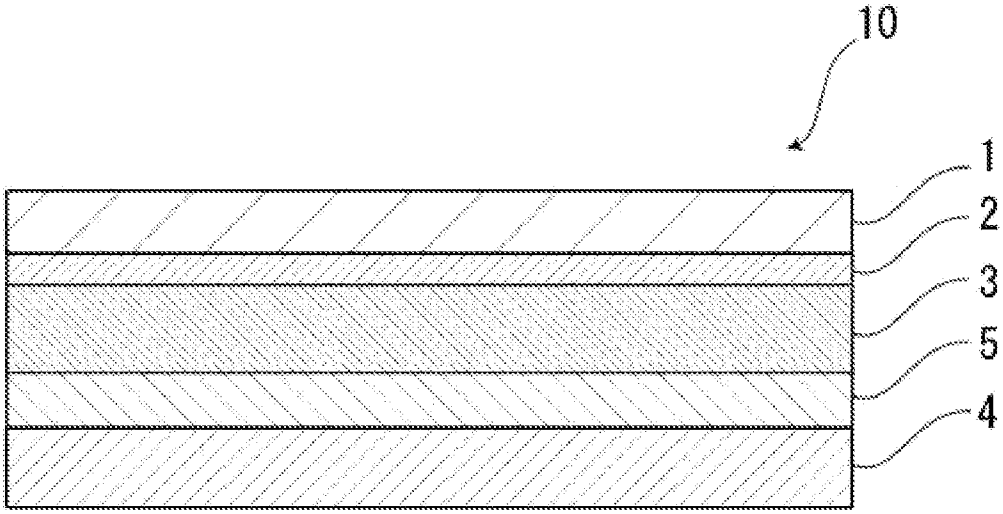
[図1]



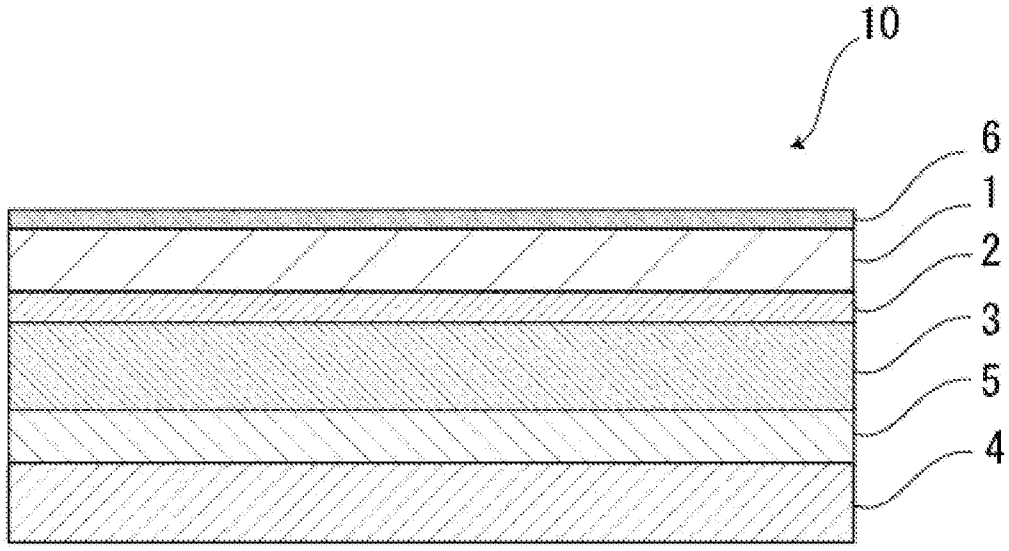
[図2]



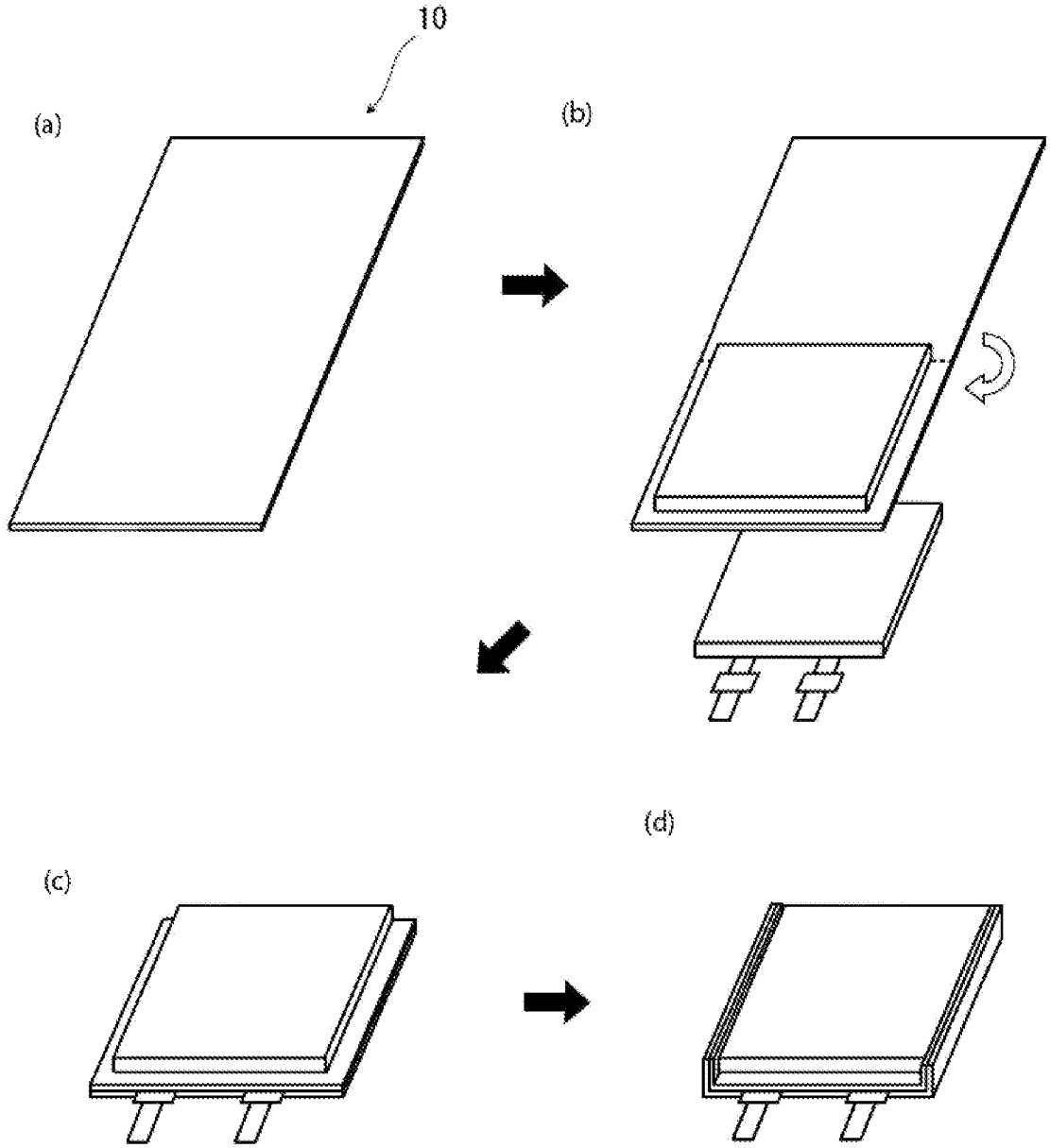
[図3]



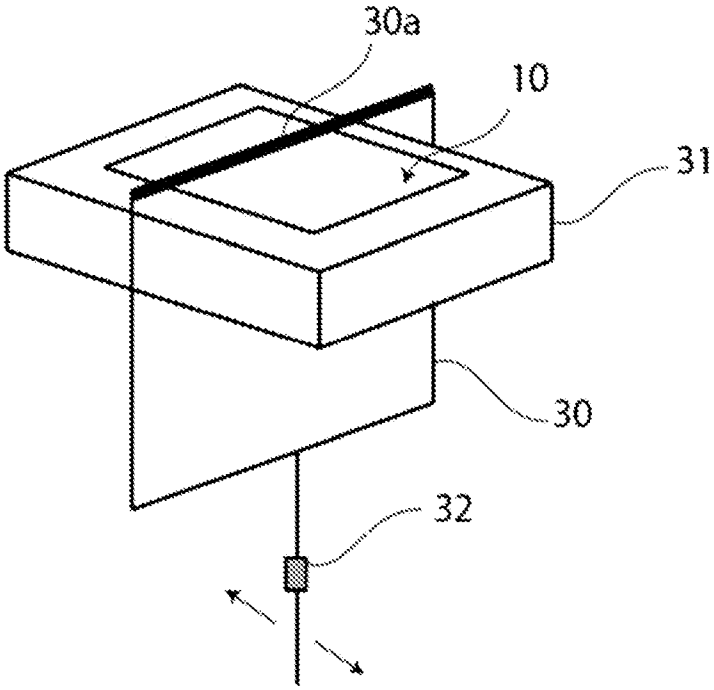
[図4]



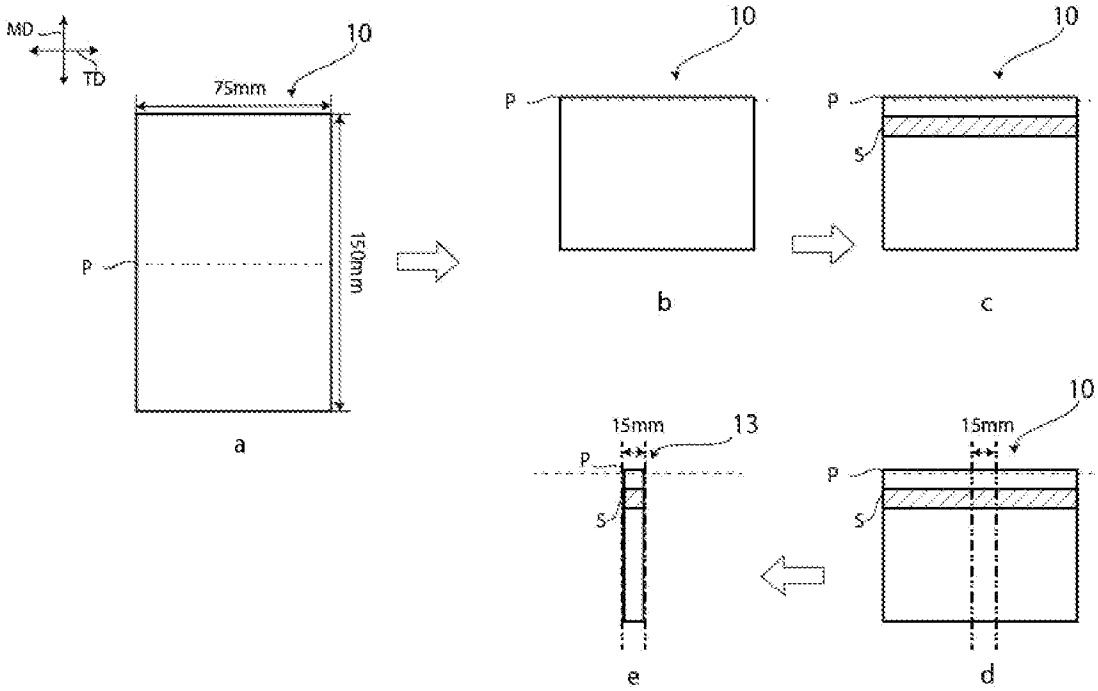
[図5]



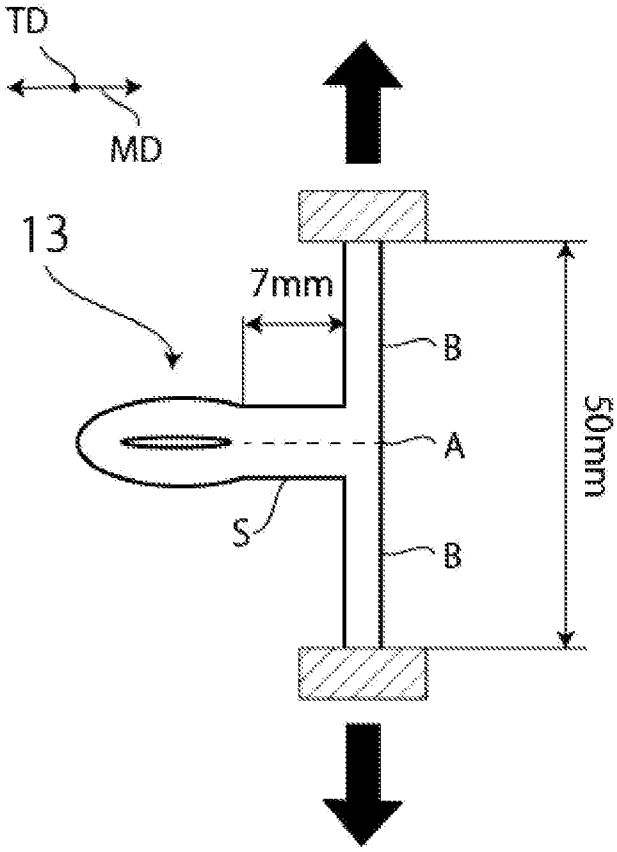
[図6]



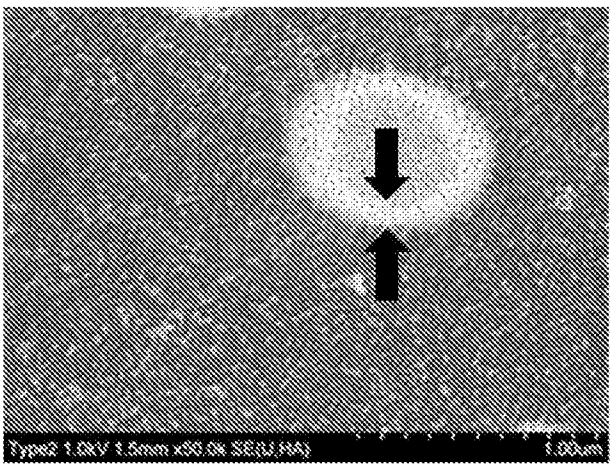
[図7]



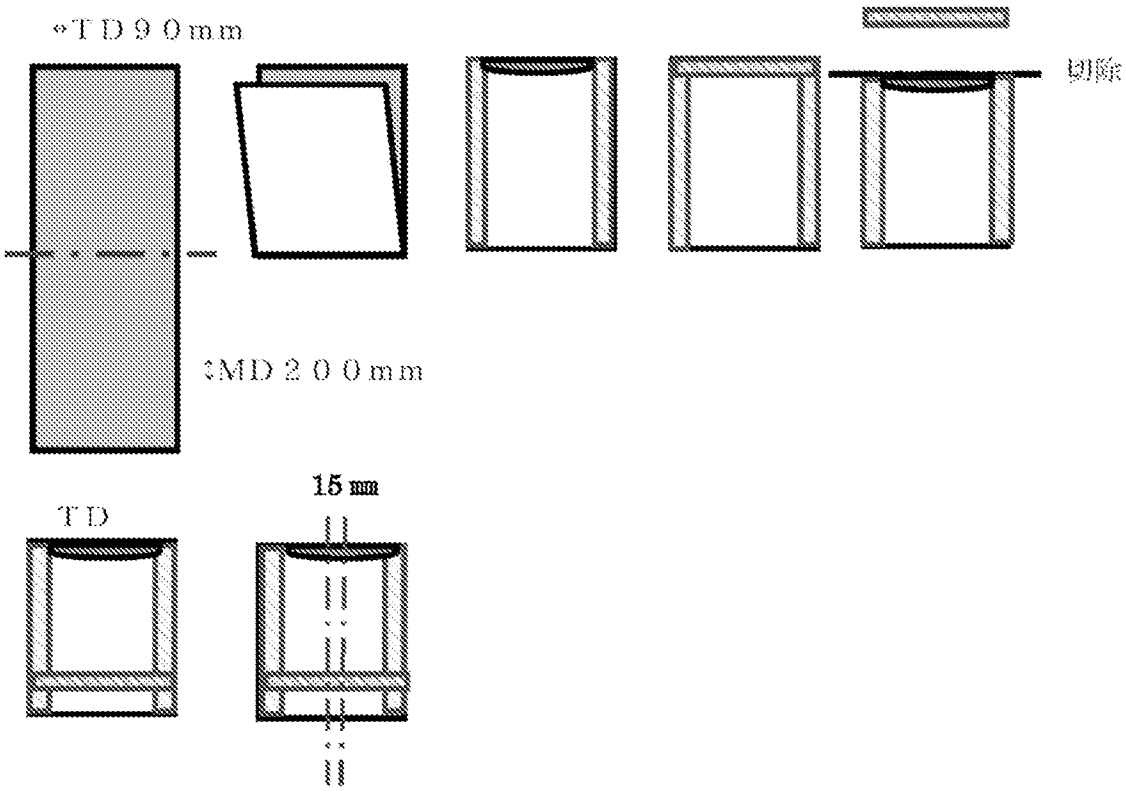
[図8]



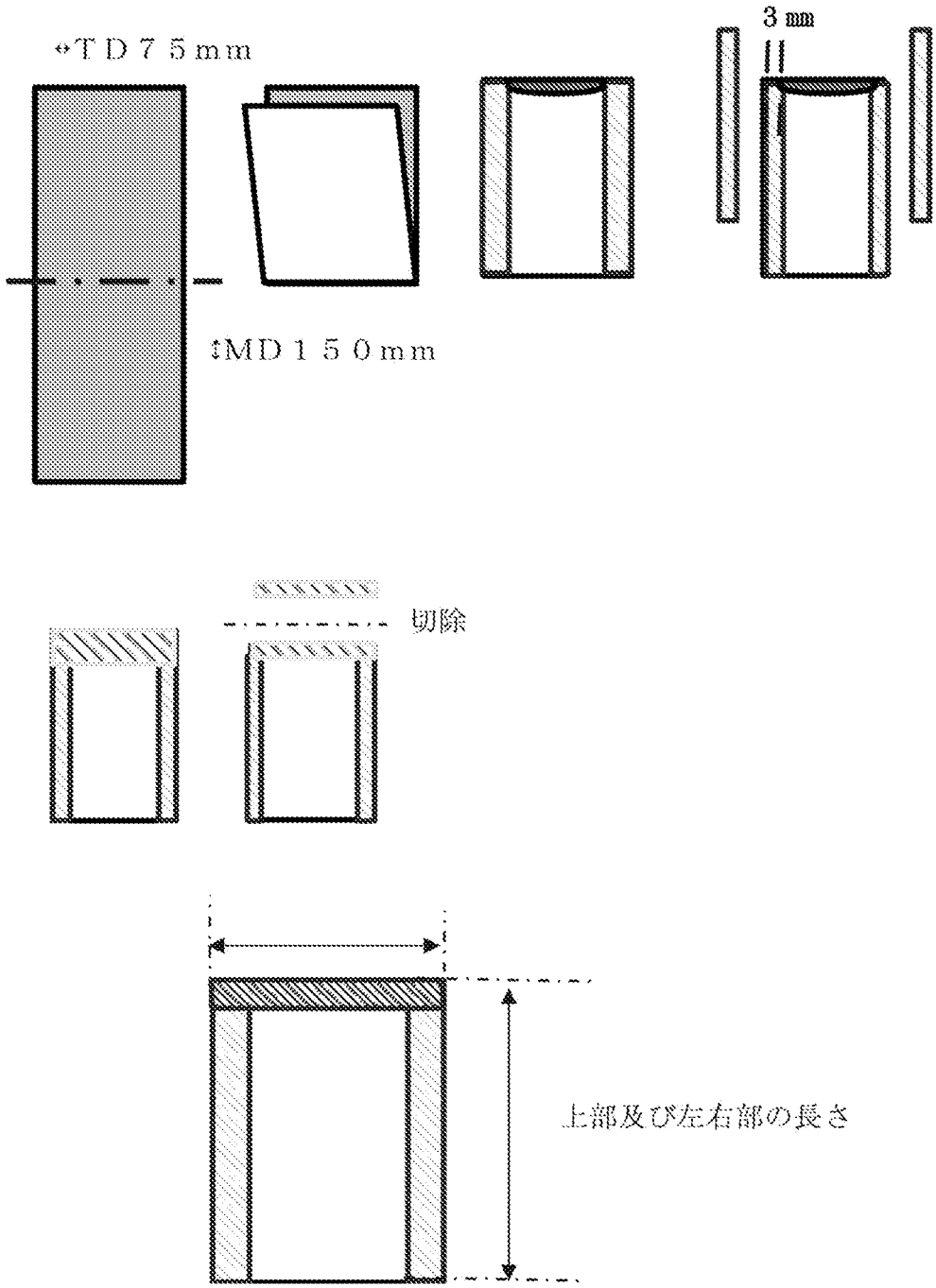
[図9]



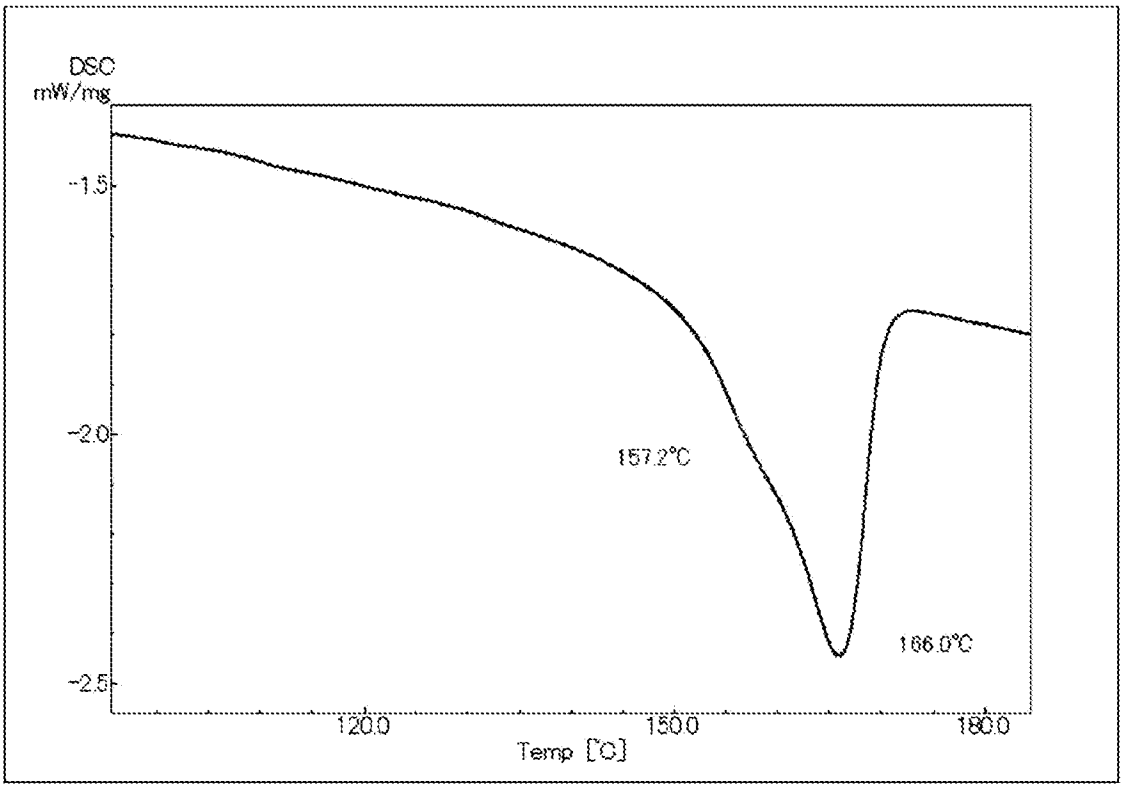
[図10]



[図11]

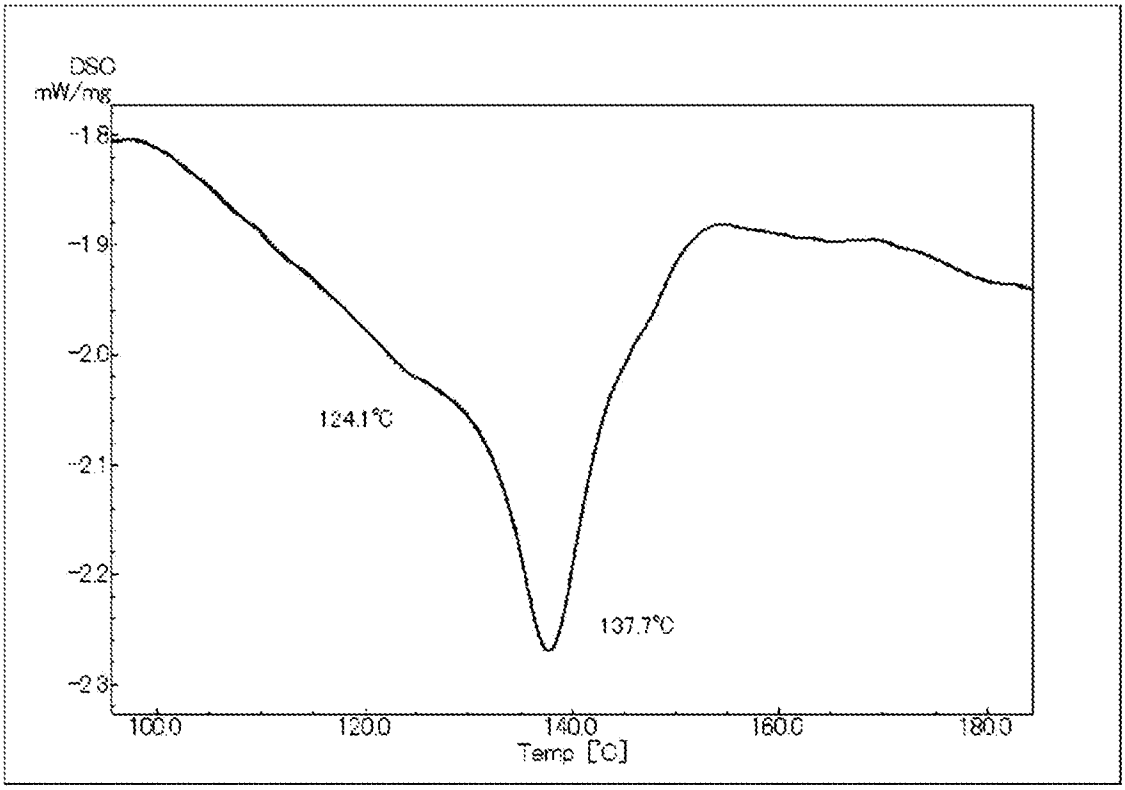


[図12]


DSC
mW/mg
-1.5
-2.0
-2.5
157.2℃
166.0℃
120.0
150.0
180.0
Temp [℃]

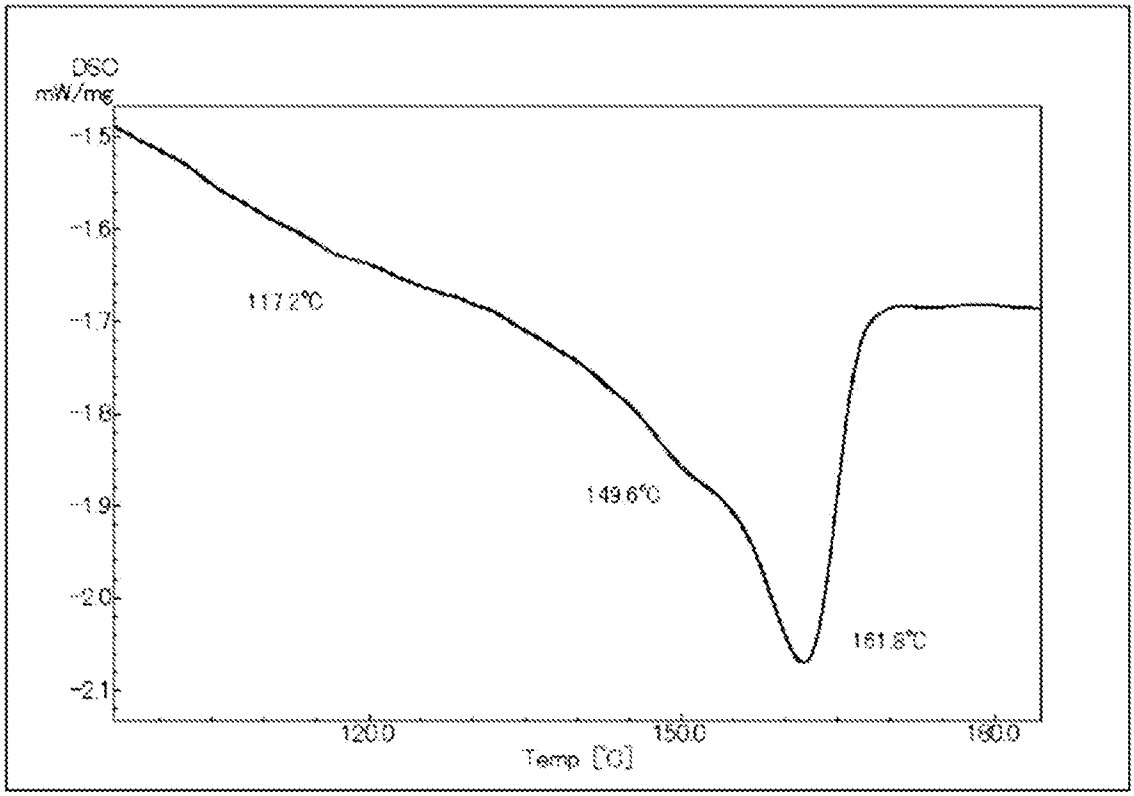
[図13]

（比較例１）

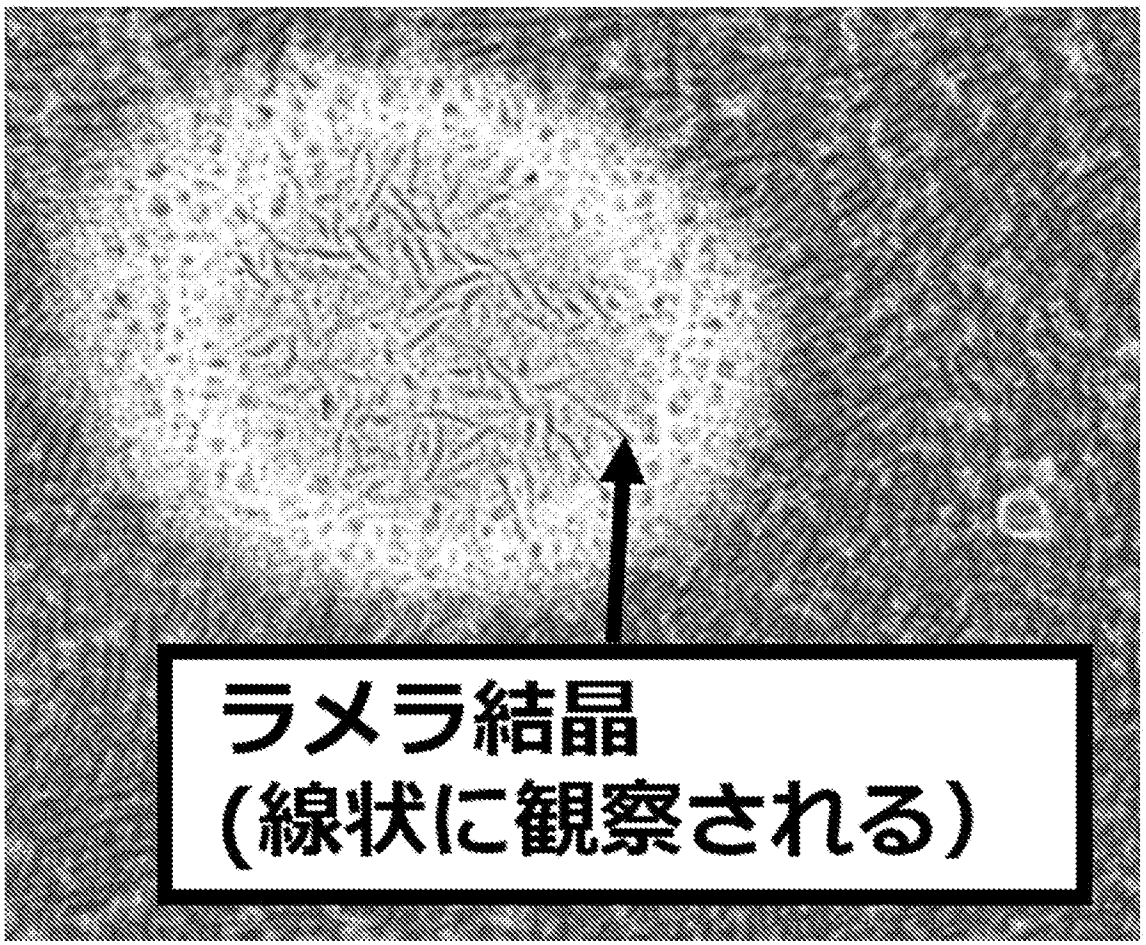

DSC
mW/mg
-1.8
-1.9
-2.0
-2.1
-2.2
-2.3
124.1℃
137.7℃
100.0
120.0
140.0
160.0
180.0
Temp [℃]

[図14]

（比較例２）


DSC
mW/mg
-1.5
-1.6
-1.7
-1.8
-1.9
-2.0
-2.1
117.2℃
149.6℃
161.8℃
120.0
150.0
180.0
Temp [℃]

[図15]


ラメラ結晶
(線状に観察される)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/041513

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M 50/131(2021.01)i; ***H01G 11/78***(2013.01)i; ***H01G 11/84***(2013.01)i; ***H01M 50/105***(2021.01)i; ***H01M 50/121***(2021.01)i; ***H01M 50/129***(2021.01)i; ***H01M 50/134***(2021.01)i
FI: H01M50/131; H01M50/129; H01G11/78; H01G11/84; H01M50/105; H01M50/134; H01M50/121

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)

H01M50/131; H01G11/78; H01G11/84; H01M50/105; H01M50/121; H01M50/129; H01M50/134

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2025
Registered utility model specifications of Japan 1996-2025
Published registered utility model applications of Japan 1994-2025

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2022-151583 A (FUTAMURA CHEMICAL CO., LTD.) 07 October 2022 (2022-10-07) paragraphs [0001], [0009], [0027]-[0028], [0043]-[0046], [0051]-[0053], [0057], [0063], [0065], [0116]-[0122], tables 7-8, fig. 1-3	1-10, 12, 15-25
Y		11, 13-14
Y	JP 2019-085480 A (JAPAN POLYPROPYLENE CORP.) 06 June 2019 (2019-06-06) paragraphs [0001], [0009], [0073]-[0077]	11
Y	JP 2019-178255 A (MITSUI CHEMICALS INC.) 17 October 2019 (2019-10-17) paragraphs [0001], [0023], [0027]-[0029], [0048], [0075]-[0076], table 1, fig. 1	13-14
A	JP 2010-036350 A (TOPPAN PRINTING CO., LTD.) 18 February 2010 (2010-02-18) paragraphs [0023]-[0026], table 1, fig. 2	1-25
A	JP 2017-188227 A (DAI NIPPON PRINTING CO., LTD.) 12 October 2017 (2017-10-12) paragraphs [0001], [0059]-[0069], table 1	1-25

☑ 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
"D" document cited by the applicant in the international application
"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 another 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	Date of mailing of the international search report
04 February 2025	**18 February 2025**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/041513

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2019/156113 A1 (DAI NIPPON PRINTING CO., LTD.) 15 August 2019 (2019-08-15) paragraphs [0001], [0068]-[0070], table 1, fig. 8	1-25

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/041513

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2022-151583 A	07 October 2022	CN 115122737 A KR 10-2022-0134442 A TW 202249338 A	
JP 2019-085480 A	06 June 2019	(Family: none)	
JP 2019-178255 A	17 October 2019	(Family: none)	
JP 2010-036350 A	18 February 2010	(Family: none)	
JP 2017-188227 A	12 October 2017	JP 2021-108282 A	
WO 2019/156113 A1	15 August 2019	US 2020/0403194 A1 paragraphs [0001], [0116]-[0121], table 1, fig. 8 CN 111699566 A KR 10-2020-0118068 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/041513

A.　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

H01M 50/131(2021.01)i; H01G 11/78(2013.01)i; H01G 11/84(2013.01)i; H01M 50/105(2021.01)i; H01M 50/121(2021.01)i; H01M 50/129(2021.01)i; H01M 50/134(2021.01)i
FI: H01M50/131; H01M50/129; H01G11/78; H01G11/84; H01M50/105; H01M50/134; H01M50/121

B.　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

H01M50/131; H01G11/78; H01G11/84; H01M50/105; H01M50/121; H01M50/129; H01M50/134

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２５年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２５年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２５年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	JP 2022-151583 A (フタムラ化学株式会社) 07.10.2022 (2022-10-07) [0001],[0009],[0027]-[0028],[0043]-[0046],[0051]-[0053],[0057],[0063],[0065],[0116]-[0122],[表7]-[表8],[図1]-[図3]	1-10,12,15-25
Y		11,13-14
Y	JP 2019-085480 A (日本ポリプロ株式会社) 06.06.2019 (2019-06-06) [0001],[0009],[0073]-[0077]	11
Y	JP 2019-178255 A (三井化学株式会社) 17.10.2019 (2019-10-17) [0001],[0023],[0027]-[0029],[0048],[0075]-[0076],[表1],[図1]	13-14
A	JP 2010-036350 A (凸版印刷株式会社) 18.02.2010 (2010-02-18) [0023]-[0026],[表1],[図2]	1-25
A	JP 2017-188227 A (大日本印刷株式会社) 12.10.2017 (2017-10-12) [0001],[0059]-[0069],[表1]	1-25

☑ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

*　引用文献のカテゴリー
"A"　特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
"D"　国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
"E"　国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
"L"　優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
"O"　口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
"P"　国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

"T"　国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
"X"　特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
"Y"　特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
"&"　同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
04.02.2025	18.02.2025

名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）

吉川　潤 4X 9651

電話番号 03-3581-1101 内線 3877

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/041513

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	WO 2019/156113 A1 (大日本印刷株式会社) 15.08.2019 (2019-08-15) [0001],[0068]-[0070],[表1],[図8]	1-25

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/041513

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2022-151583 A	07.10.2022	CN 115122737 A KR 10-2022-0134442 A TW 202249338 A	
JP 2019-085480 A	06.06.2019	（ファミリーなし）	
JP 2019-178255 A	17.10.2019	（ファミリーなし）	
JP 2010-036350 A	18.02.2010	（ファミリーなし）	
JP 2017-188227 A	12.10.2017	JP 2021-108282 A	
WO 2019/156113 A1	15.08.2019	US 2020/0403194 A1 [0001],[0116]-[0121], TABLE1, FIG.8 CN 111699566 A KR 10-2020-0118068 A	