

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2016-506044

(P2016-506044A)

(43) 公表日 平成28年2月25日(2016.2.25)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 4/02 (2006.01)	HO 1 M 4/02 Z	5HO 1 7
HO 1 M 4/62 (2006.01)	HO 1 M 4/62 Z	5HO 2 4
HO 1 M 4/13 (2010.01)	HO 1 M 4/13	5HO 2 9
HO 1 M 4/80 (2006.01)	HO 1 M 4/80 Z	5HO 5 0
HO 1 M 4/66 (2006.01)	HO 1 M 4/66 A	
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 28 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2015-548361 (P2015-548361)	(71) 出願人	510015257
(86) (22) 出願日	平成25年12月10日 (2013.12.10)		ビーエイエスエフ・ソシエタス・エウロパ エア
(85) 翻訳文提出日	平成27年7月15日 (2015.7.15)		B A S F S E
(86) 国際出願番号	PCT/EP2013/076066		ドイツ連邦共和国67056ルートヴィヒ スハーフェン
(87) 国際公開番号	W02014/095483	(71) 出願人	500287732
(87) 国際公開日	平成26年6月26日 (2014.6.26)		シオン・パワー・コーポレーション
(31) 優先権主張番号	61/739, 350		アメリカ合衆国85756、アリゾナ州、 ツーソン、イースト・エルピラ・ロード 2900
(32) 優先日	平成24年12月19日 (2012.12.19)	(74) 代理人	100100158
(33) 優先権主張国	米国 (US)		弁理士 鮫島 睦
		(74) 代理人	100068526
			弁理士 田村 恭生
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 電極構造体およびその製造方法

(57) 【要約】

電極構造体およびその製造方法が、あまねく記載されている。ある態様においては、電極構造体は、多数の粒子を包含することができ、該粒子は、凸包に関連した刻み目からなる。粒子は、お互い近接してまたは接触して移動しつつ、粒子間の細孔を定義し得る。加えて、凸包に関連した刻み目からなる粒子が、お互い関連して移動するとき、刻み目が存在することにより、完全な接触が、粒子間で生じないということ(すなわち、粒子間になんらかのスペースが残るということ)、および、空隙容量が集合のバルク内部に維持されるということが確保され得る。従って、凸包に関連した刻み目を有する粒子からなる電極は、電極空隙容量(そして、それ故、性能)を実質的に維持しつつ、電極への力の印加に耐えるように構成することができる。凸包に関連した刻み目を有する粒子は、凸包を実質的に満たす境界を包含する球または他の粒子に比較して、相対的に小さい容積を占め、粒状材料に占められる電極内部の容積のパーセンテージを減少しつつ、所望量の空隙容量を導入することを可能とする。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

多孔質支持層構造体を定義する粒子の集合、および
該多孔質支持層構造体の細孔内部に実質的に含有される電極活性物質
を含む、電気化学セルに使用するための電極であって、
粒子の該集合における各粒子は、幾何学的粒子容積を有し、
粒子の該集合は、各個々の幾何学的粒子容積の合計で定義される総幾何学的粒子容積を
有し、
粒子の該集合における各粒子は、凸包容積を定義する凸包を有し、
該総幾何学的粒子容積の少なくとも約 50 % が、少なくとも 1 つの刻み目を有する粒子
の各々に関して、幾何学的粒子容積が、該粒子の凸包容積の約 75 % 未満となるような、
該少なくとも 1 つの刻み目を有する粒子から成る、ことを特徴とする該電極。

10

【請求項 2】

少なくとも 20 ニュートン / cm^2 、少なくとも 45 ニュートン / cm^2 、少なくとも
70 ニュートン / cm^2 、または少なくとも 95 ニュートン / cm^2 の圧力と定義する圧
縮力を、該電極に印加したとき、多孔質支持層構造体の空隙容量が、該力以外は本質的に
同一条件下で該力をかける前の多孔質支持層構造体の空隙容積に基づいて、約 25 % を超
えて、約 10 % を超えて、約 5 % を超えて、または約 1 % を超えて変化しないことを特徴
とする、請求項 1 記載の電極。

20

【請求項 3】

前記総幾何学的粒子容積の少なくとも約 75 %、少なくとも約 90 %、少なくとも約 9
5 %、または少なくとも約 99 % が、各粒子に関して、前記幾何学的粒子容積が、凸包容
積約 75 % 未満となるような形状をしている粒子から成る請求項 1 または請求項 2 に記載
の電極。

【請求項 4】

電極活性物質が、イオウを含有する、請求項 1 ~ 請求項 3 いずれかに記載の電極。

【請求項 5】

前記イオウが、元素イオウ、高分子イオウ、無機スルフィド、無機ポリスルフィド、有
機スルフィド、有機ポリスルフィド、および/またはイオウ有機化合物を包含する、請求
項 4 記載の電極。

30

【請求項 6】

前記粒子の少なくとも一部が導電性材料を含有する、請求項 1 ~ 請求項 5 いずれかに記
載の電極。

【請求項 7】

導電性材料が、カーボンおよび/または金属を含む、請求項 6 記載の電極。

【請求項 8】

複数の細孔の各々が細孔容積を有し、複数の細孔が個々の細孔容積の各々の合計により
定義される総細孔容積を有し、

該総細孔容積の少なくとも 50 %、少なくとも 70 %、少なくとも 80 %、少なくとも
90 %、少なくとも 95 % または少なくとも 99 % が、約 0.1 μm と約 10 μm の間ま
たは約 1 μm と 3 μm の間の断面直径を有する細孔により定義される、請求項 1 ~ 請求項
7 いずれかに記載の電極。

40

【請求項 9】

上記集合内の粒子の少なくとも一部が、バインダーを介して他の粒子に付着しているか
、および/または上記集合内の粒子の少なくとも一部が、他の粒子に融合している、請求
項 1 ~ 請求項 8 いずれかに記載の電極。

【請求項 10】

前記粒子の少なくとも一部が、実質的に球状キャップの形状である、請求項 1 ~ 請求項
9 いずれかに記載の電極。

【請求項 11】

50

前記粒子の少なくとも一部が、少なくとも3つの化学結合点を含む、請求項1～請求項9いずれかに記載の電極。

【請求項12】

多孔質支持層構造体が、少なくとも約50%の総空隙率パーセントを有する、請求項1～請求項11いずれかに記載の電極。

【請求項13】

請求項1～請求項12いずれかに記載の電極を含有する電気化学セル。

【請求項14】

前記電気化学セルが、リチウムを含有する第2の電極を含有する、請求項13に記載の電気化学セル。

10

【請求項15】

前記第2の電極がリチウム金属および/またはリチウム合金を含有する、請求項14に記載の電気化学セル。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

電極構造体およびその製造方法を全体的に記載している。ある態様においては、電極構造体は、粒子の凸包(convex hulls)に関して刻み目(indentations)を含有している多数の粒子を含み得る。

【背景技術】

20

【0002】

電気化学セルは、異なる電気化学電位でイオン源およびイオン吸込み点(sink)を分離することによりエネルギーを蓄える。代表的な電気化学セルは、電気化学反応に関与しパワーを作り出すカソードおよびアノードを有している。イオンは、アノードとカソードと連通して、電解質を媒介して移送される。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

多くの電気化学セルにおいては、電解質が電極内部の電極活性物質に確実にアクセスすることができるように、1つまたは両電極内部に十分なレベルの空隙容量を維持することが重要である。

30

【課題を解決するための手段】

【0004】

[要約]

電極構造体およびその製造方法を全体的に記載している。ある態様においては、電極構造体は、粒子の凸包に関して刻み目を含有している多数の粒子を含み得る。本発明の内容は、場合によっては、相互関係製品、特定の問題に対する代替案、および/または1以上のシステムおよび/または品物の多くの異なる用途を含む。

【0005】

一側面において、電気化学セルに使用するための電極が記載されている。ある態様において、前記電極は、多孔質支持層構造体を定義する粒子の集合(assembly)を含むものであって、粒子の該集合における各粒子は、幾何学的粒子容積を有し、粒子の該集合は、各個々の幾何学的粒子容積の合計で定義される総幾何学的粒子容積を有し、粒子の該集合における各粒子は、凸包容積を定義する凸包を有し、該総幾何学的粒子容積の少なくとも約50%が、少なくとも1つの刻み目を有する粒子の各々に関して、幾何学的粒子容積が、該粒子の凸包容積約75%未満となるような、該少なくとも1つの刻み目を有する粒子から成る。ある態様においては、電極活性物質が、前記多孔質支持層構造体の細孔内部に実質的に含有される。

40

【0006】

本明細書に記載されている電極を含有する電気化学セルもまた提供される。

50

【 0 0 0 7 】

本明細書に記述されている電極および電気化学セルを製造する発明方法もまた提供される。

【 0 0 0 8 】

本発明の他の利点及び新規特徴は、添付図面と共に考慮されると、発明の種々の非限定的態様の下記詳細な記述から明らかになるであろう。本願明細書および参考として組み入れられている文書が矛盾するおよび/または一致しない開示を含む場合、本願明細書が統制するものとする。

【 0 0 0 9 】

本発明の非制限的態様は、添付図面を参照して実施例を介して記述されており、添付図面は模式化されており、尺度通りに描かれていない。図中、同一またはほぼ同一の各構成要素は、通常、1つの数字で表されている。明瞭さを目的として、すべての構成要素をすべての図面において標識付けしておらず、また、図表が、いわゆる当業者が発明を理解するのに必要でない場合、発明の各態様のあらゆる構成要素が示されているものでもない。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 1 0 】

【図 1 A】ある態様による、例えば、多孔質支持層構造体を形成するのに使用することができる、粒子および粒子の凸包の模式的斜視図説明図。

【図 1 B】ある態様による、例えば、多孔質支持層構造体を形成するのに使用することができる、粒子および粒子の凸包の模式的斜視図説明図。

【図 2 A】ある態様による、例えば、多孔質支持層構造体を形成するのに使用することができる、粒子および粒子の凸包の模式的斜視図説明図。

【図 2 B】ある態様による、例えば、多孔質支持層構造体を形成するのに使用することができる、粒子および粒子の凸包の模式的斜視図説明図。

【図 2 C】電極内部で使用するこのできる粒子の代表的断面模式的説明図。

【図 2 D】電極内部で使用するこのできる粒子の代表的断面模式的説明図。

【図 3】ある態様による、多孔質支持層構造体を形成する粒子の集合の模式的断面説明図。

【図 4 A】代表的粒子の模式的断面説明図。

【図 4 B】代表的粒子の模式的断面説明図。

【図 5】ある態様による、多孔質支持層構造体内部での使用に適した粒子を製造する方法を概説する模式的説明図。

【図 6】ある態様による、電気化学セルの代表的断面模式的説明図。

【発明を実施するための形態】

【 0 0 1 1 】

電極構造物およびその製造方法を全体的に記述している。ある態様において、電極構造物は多数の粒子を含むことができ、該粒子は、凸包に関連して(relative to)刻み目を含有する。粒子は、お互い接近してまたは接触して動くので、粒子の刻み目は、粒子間の細孔を定義することができる。加えて、凸包に関連した刻み目を含有する粒子は、お互いに関連して動くとき、刻み目の存在により、完全接触が粒子間に生じないことを確実にすることができ(すなわち、粒子間にある空間が残っている。)、空隙容量が集合のバルク内部に維持される。それ故、凸包に関連した刻み目を有する粒子を含有する電極は、電極空隙容量(そして、それ故、性能)を実質的に維持しつつ、電極への力の印加に耐えるように構成することができる。凸包に関連した刻み目を有する粒子は、また、球体または実質的にすべての凸包を満たす境界線を含む粒子と比べると、相対的に小さい容積を占め、粒状材料で占められた電極内部の容積のパーセンテージを減らしつつ、所望量の空隙容量を導入することを可能とする。

【 0 0 1 2 】

物品(例えば、粒子)の「凸包」は、物品内または上の任意の第1の点から、物品内または上の任意の第2の点へ延びるすべての線分の全体が理論的容積、すなわち、「凸包容

10

20

30

40

50

積」に収まる、最小理論容積の境界を示す表面を記述するものとして本明細書では使用されている。物品の凸包容積は、フレキシブルなシート材中に物品をぴんと張って包むことにより定義される容積とよく似ていると考えることができる。幾何学的粒子容積が、凸包容積より小さい容積を占めるときには、凸包に関連する刻み目は形成される。このような場合、刻み目は、幾何学的粒子容積に占められない凸包に占められる容積に対応する。ある粒子が、その凸包に関連する刻み目を有している程度は、以下により詳細に記載しているように、幾何学的粒子容積をその粒子の凸包容積で割ることにより定量化できる。

【 0 0 1 3 】

図 1 A - 1 B は、3 次元 6 頂点スター（例えば、ジャックスの形）の凸包を図示する代表的概略図である。6 頂点スターが、図 1 A に図示されている。6 頂点スターの凸包、それは 8 面ダブルピラミッドに対応するが、図 1 B に図示されている。図 2 A - 2 B は、空洞化された半球の凸包を図示する代表的概略図である。空洞化された半球が、図 2 A に図示されており、凸包（固体半球体）が、図 2 B に図示されている。当業者であれば、本開示が与えられれば、任意の形状の凸法のサイズおよび形状を決定することができるであろう。

10

【 0 0 1 4 】

本明細書に使用されている、物品（例えば、粒子、電極等）の「外部幾何学的表面」は、物品の最も外側の境界に通常一致する表面を表しており、物品の最大断面寸法の 10 % より小さい最大外部表面断面寸法を有する細孔または他の刻み目に一致しているものではない。多くの態様において、物品の外部幾何学的表面は、肉眼で見えるツール（例えば、定規）により測定され得るものであり、内部表面領域（例えば、多孔質支持層構造体等の多孔質材料の細孔内部領域）を含まない。図 1 A - 1 B における粒子 100 の外部幾何学的表面は、図 1 A に示されている。もし、図 1 A における粒子 100 が多孔質であり、該粒子の細孔の全てが、（図 1 A に寸法 111 として示されている）粒子 100 の最大断面寸法の 10 % より小さい断面寸法を有するとしたならば、該粒子 100 の外部幾何学的表面は、やはり、図 1 A に示されている表面に対応する。

20

【 0 0 1 5 】

粒子の「幾何学的粒子容積」は、粒子の外部幾何学的表面で境界を示されている容積を言うものとして使用されている。多数の粒子の「総幾何学的粒子容積」は、該粒子の個々の幾何学的粒子容積の合計を言う。

30

【 0 0 1 6 】

電極の「幾何学的電極容積」は、電極の外部幾何学的表面で境界を示されている容積を言うものとして使用されている。多孔質支持層構造体の「幾何学的多孔質支持層構造体容積」は、多孔質支持層構造体の外部幾何学的表面で境界を示されている容積を言うものとして使用されている。

【 0 0 1 7 】

物品（例えば、粒子、電極等）の「最大断面寸法」は、測定される該物品の 2 つの対向した境界間の最も大きな距離を言う。当業者であれば、例えば、物品の、手操作による測定により、走査型電子顕微鏡写真（SEM）を分析することにより、または、当業者に公知の他の適した方法により、物品（例えば、電極、粒子等）の「最大断面寸法」を測定することができるであろう。

40

【 0 0 1 8 】

粒子における細孔または他の刻み目の「最大外部表面断面寸法」は、細孔の 2 点間の最大寸法か、または該粒子の幾何学的表面に沿って測定される他の特徴である。例えば、1 ミリメートル球状粒子の中心を通過して伸びている 10 ミクロメートル直径の円柱状細孔（結果として 1 ミリメートル長さの細孔になるが）の場合、該細孔の最大表面断面寸法は、10 ミクロメートルになる。

【 0 0 1 9 】

ある態様は、多数の細孔を有する、多孔質支持層構造体の形成に関する。本明細書に使用されている、「細孔」は、ASTM 標準試験 D 4284 - 07 を使用して測定されるよ

50

うな細孔を言い、そして一般に、少なくともその一部が、細孔が形成されている媒体で囲まれている管 (conduit)、空隙 (void)、または通路 (passway) を言う。一般的に、材料に完全に囲まれている材料内部の空隙 (それ故、材料の外側からアクセスできない、例えばクロードセル) は、本発明の文脈内における細孔とみなされない。物品が、粒子の凝集からなる場合、細孔は、粒子間細孔 (すなわち、粒子と一緒にバックされたとき、粒子間で定義される細孔、例えば、すき間) および粒子内細孔 (すなわち、個々の粒子の外部幾何学的表面内にある細孔) の両者を含むと理解されるべきである。細孔は、どのような断面形状のものでも適しており、不規則な形状および規則的形狀 (例えば、実質的に円形、実質的に楕円形、実質的に多角形等) を含む。

【0020】

10

本明細書に使用されている。多孔質支持層構造体内部における「空隙容積」は、電極活性物質、多孔質支持層構造体粒子、バインダー、または構造体支持層を提供する他の材料に占領されていない多孔質支持層構造体内部における部分を言う。多孔質支持層構造体内部の空隙容量は、支持層構造体を形成している粒子中における細孔、並びに粒子間のすき間の容積を一般的に含む。当業者であれば、例えば、ASTM 標準試験 D 4284 - 07、あらゆる目的のためにその全体を参考として本明細書に含めるが、その試験に従い水銀圧入ポロシメトリー (mercury intrusion porosimetry) を行うことにより、多孔質支持層構造体内部の空隙容量を決定することができるであろう。

【0021】

本明細書に使用されている、物品 (例えば、多孔質支持層構造体、電極等) の「総空隙率パーセント」は、空隙容量に占められている物品の幾何学的容積のパーセントを言う。例えば、多孔質支持層の総空隙率パーセントは、多孔質支持層構造体の空隙容量を幾何学的多孔質支持層構造体容積で割ることにより決定されるであろう。

20

【0022】

ある態様においては、電極を形成するのに使用される粒子は、いくつもの化学的結合点 (valence points) および/またはアームを有することができる。本明細書に使用されている、「化学結合点」は、その位置から遠ざかりそして粒子の外部幾何学的表面に沿っているいかなる方向の動きであれ、粒子の質量中心により近くなる動きの結果となる粒子の外部幾何学的表面上のどの位置でもよい。例えば、ある粒子の中心体から延びるアームの先端は、化学結合点の一例である。「結合価 (valency)」という用語は、ある構造において化学的結合点の数を言うものとして本明細書において一般的に使用されている。例えば、3 の結合価を有する粒子は、3 つの化学的結合点を有していることになる。

30

【0023】

ある態様においては、本明細書に記載されている粒子は、いくつもの超化学的結合点 (supervalence points) を有することができる。用語「超化学的結合点」は、凸包の境界を定義するあらゆる化学的結合点を記述するのに使用されている。超化学的結合点の例を以下に説明する。一般的に、すべての超化学的結合点は、化学結合点であるが、すべての化学結合点は、超化学的結合点というわけではない。用語「超結合価」は、ある構造における超化学的結合点の数を言うものとして本明細書において一般的に使用されている。例えば、超結合価 3 を有する粒子は、3 つの超化学的結合点を有するものとなる。

40

【0024】

発明の名称が「電気化学セルにおける力の印加」と題され、2009年8月4日に出願された、Scordilis-KelleyらのUS特許公開第2010/0035128号公報は、性能を向上することができる、改良された電極化学、モルフォロジー、および/または他の特性のための、電気化学セルにおける力の印加を記述している。例えば、電極表面上の金属のストリッピングやデポジション (例えば、リチウムアノードの表面上でのリチウムイオンのストリッピングやデポジション) を含むチャージ/ディスチャージサイクルを経る電気化学セルもある。いくつかのケースにおいては、ストリッピングやデポジションは、電極表面上の金属と、電解質等の他のセル成分との寄生性反応を伴うこともある。電極の一以上の表面は、多くは、電解液に溶解したイオンが再デポジションすることにより、電気化

50

学セルが繰り返しチャージ/ディスチャージサイクルを経るにつれ、不均一になる。電極の一以上の表面が荒れると、セル性能がますます低下する結果となり得る。電極活性物質の不均一な再デポジションの悪影響に対処する一つの方法が、影響を受けた電極に異方性の力(force)を印加することである。しかしながら、一電極に異方性の力を印加すると、他方の電極の細孔サイズおよび/または空隙容量を減少させることになり得る。多くの電気化学セルにおいて、電極の細孔サイズおよび/または空隙容量を減少させることは、例えば、電極内部の電極活性物質へ電解質を移送する程度を制限することによって、セル性能を劣化させることになり得る。

【0025】

したがって、電極（例えば、力を印加してアノードのモルフォロジを改良する場合におけるようなカソード）内部における凸包に関連する刻み目を有する粒子を含有することは、電極の（空隙率や空隙容量を含む）構造的完全性を犠牲にすることなく電気化学セルに力を印加することを可能とするということが認識されている。本明細書記載されている電極に使用するための粒子状材料は、ある態様においては、それが、電極材料の溶解および再めっきにもかかわらず電極空隙率および空隙容量を犠牲にすることなく配置されている電気化学セルのチャージおよびディスチャージの繰り返しに耐えることができる。それ故、ある態様においては、多孔質支持層構造体を定義する粒子の集合を含有する電気化学セルが提供され、粒子の該集合における各粒子は、幾何学的粒子容積を有し、粒子の該集合は、個々の幾何学的粒子容積の各々の合計により定義される総幾何学的粒子容積を有し、粒子の該集合における各々の粒子は、凸包容積を定義する凸法を有し、そして総幾何学的粒子容積の少なくとも約50%が、各々のそのような粒子について、幾何学的粒子容積が粒子の凸包容積の約75%未満となるような少なくとも1つの刻み目を有する粒子で出来上がっている。いくつかのこのような態様においては、電極活性物質は、多孔質支持層構造体の細孔内部に実質的に含有されている。

【0026】

ある態様においては、凸包に関連する（複数の）刻み目（その刻み目は、以下でより詳細に記述するように、幾何学的粒子容積を粒子の凸包容積で割ることにより定量化することができる）は、1以上の外部表面部分（すなわち、外部表面領域の別個の部分）により形成することができる。例えば、ある態様においては、少なくとも刻み目の一部分は、粒子の1以上の凹形の外部表面部分により形成され得る。刻み目はまた、粒子の中心体から外側へ伸びる凸形および/または凹形表面分により形成され得る。

【0027】

図1Aは、1態様による多孔質支持層構造体および電極を形成するのに適した粒子100の例示的な透視図模式的説明図である。図1Aにおいては、粒子100は、部分110を含んでおり、それらは、（図1Bに描かれている）粒子の凸包に関連して刻み目をつけられている。当業者であれば、粒子または粒子の拡大画像を検査すること（例えば、マイクロスケールまたはより小さい粒子の走査型電子顕微鏡写真（SEM））により、所定の粒子が、粒子の凸包に関連して刻み目をつけられている1以上の部分を含んでいるか否かを決定できるであろう。

【0028】

図1Aに示されている1セットの態様に戻ると、粒子100は、また、各6つのアーム114の先端に6つの化学的結合点112を含んでいる。従って、図1Aにおける粒子100は、「6-結合価」粒子であり、結合価6を有している。図1Aの粒子100における化学的結合点112の各々は、また、たまたま超結合価点である。従って、図1Aにおける粒子100は、「6-超結合価」粒子であり、超結合価6を有している。本明細書記載されている電極における使用に適している粒子は、適している結合価および/または超結合価であればいかにでも有することができる（例えば、3以上、4以上、5以上、6以上、または10以上の結合価および/または超結合価（そして、ある場合において、100以下の結合価および/または超結合価））。本明細書記載されている電極における使用に適している粒子は、適しているアームの数であればいかにでも有することができる（例

例えば、3以上、4以上、5以上、6以上、または10以上（そして、ある場合において、100以下）。図1Aの粒子100は、同じ数の結合価および超結合価を含んでいる。他の場合においては、本明細書に記載されている多孔質支持層構造体を作るのに使用される粒子は、超結合価点より結合価点をより多く有している。例えば、図3において、粒子100Cは、4つの超結合価点320および化学的結合点322を含む7つの総化学的結合点を含む。

【0029】

図1Aに説明されている粒子の凸包は、8面多面体に対応している。ある態様においては、電極内部における粒子の凸包は、 n 個（ n は、3と20の間、または3と10の間）の面からなる多面体を包含することができる。

10

【0030】

ある態様においては、本明細書に記載されている電極内部の粒子は、粒子の凸包に関連して刻み目をつけられている単一の表面部分を有し得る。例えば、粒子は、半月形状であってもよい。図2Aは、単一の刻み目をつけられた表面部分110を有する粒子100の例示的な透視図模式的説明図である。図2Cは、図2Aに示された粒子の断面の模式的説明図である。図2Dは、本明細書に記載されている電極に使用され得る別のタイプの粒子の断面の模式的説明図である。図2Dにおいて、粒子のエッジは、図2Cにおけるようなフラットな表面ではなく、相接して（断面説明図におけるポイントとして示されているように）ラインを定義している。

【0031】

ある態様においては、多孔質支持層構造体および/または電極内部の粒子の少なくとも一部分は、実質的に、球状キャップの形状をしている。「球状キャップ」は、球を横切る平面の（例えば、上または下）一面上に横たわる球の領域に対応する。例えば、図2Aにおける粒子100は、球の50%を定義する球状キャップに対応し、それは、平面が球の質量中心を通過したときに結果として生じる。他の態様においては、実質的に、球の10%を超えて、20%を超えて、または30%を超えて、（そして、あるケースにおいては、球の60%未満）を定義する球状キャップの形状になり得る。

20

【0032】

当業者であれば、本開示が与えられれば、本明細書に記載されている電極における使用に適した凹型外部表面部分からなる粒子の他のタイプを選択できるであろう。

30

【0033】

図1A - 2Dに説明されている粒子等の多数の粒子が、一緒になり集合を形成すると、凸包に関連する刻み目は、「負のスペース」を形成することができ、それは該集合に空隙容量を導入することができる。例えば、図3は、多孔質支持層構造体310を形成する凸包に関連する刻み目を含む粒子100の集合300の模式的説明図である。多孔質支持層構造体310は、粒子100間に形成される細孔314を含んでいる。ある態様においては、多孔質支持層構造体310は、電極の部分を構成する。電極活性物質は、本明細書におけるどこか他の所で記述されているように、ある態様においては、多孔質支持層構造体310の細孔314内部に少なくとも部分的に含有され得る。図3に説明されているような集合は、例えば、液体（例えば、水、メタノール、エタノール、イソプロパノール、プロパノール、ブタノール、テトラヒドロフラン、ジメトキシエタン、アセトン、トルエン、キシレン、アセトニトリル、シクロヘキサン等）中に粒子を懸濁させ、該懸濁液をキャストし、懸濁液材料の層を形成することにより形成することができる。懸濁液をキャスト後、固体の多孔質支持層構造体を残して、液体成分を除去することができる。所望により、多孔質支持層構造体を構成している粒子に、（液体懸濁液成分の除去および/または後に）圧縮力をかけ、該多孔質支持層構造体が硬化した後、粒子間に良好な接触を確保するようにしてもよい。所望により、電極活性物質を、使用される懸濁液に含ませ、多孔質支持層構造体を形成することができ、その場合、多孔質支持層構造体を構成する粒子および電極活性物質が同時に析出することになる。他の態様においては、電極活性物質は、多孔質支持層構造体が形成された後に、それに添加することができる。

40

50

【 0 0 3 4 】

ある態様においては、多孔質支持層構造体内部の粒子の化学的結合点は、粒子の凸包に関連して刻み目をつけられている他の粒子の外部表面部分（または化学的結合点と刻み目をつけられた外部表面部分との間のバインダー）と接触することができ、集合の全緻密化を抑制あるいは防止し、それにより、最終構造体内部の空隙率および空隙容量を与える。例えば、図 3 において、粒子 1 0 0 A の化学的結合点 3 1 6 A は、粒子 1 0 0 B の刻み目をつけられた外部表面分 1 1 0 A と直接接触しており、それにより粒子 1 0 0 A と 1 0 0 B との間の細孔 3 1 4 A を定義している。

【 0 0 3 5 】

ある態様においては、お互い近傍（または接触している）化学的結合点および刻み目をつけられた表面部分のポジショニングは、少なくともある程度の、粒子の凸包のオーバーラップの原因となり得る。例えば、図 3 においては、粒子 1 0 0 A と 1 0 0 B の凸包はオーバーラップしている。ある態様においては、多孔質支持層構造体内部における粒子の凸包のオーバーラップは、それが多孔質支持層構造体内にさらに空隙容量を導入することができるので、望ましいものとなる。ある態様においては、多孔質支持層構造体および/または電極内部の全粒子の全凸包容積の合計の少なくとも約 5 %、少なくとも約 1 0 %、または少なくとも約 2 0 % が、他の粒子の凸包容積とオーバーラップする。

【 0 0 3 6 】

凸包容積のオーバーラップは、結果として、電極または多孔質支持層構造体内部の全凸包容積の合計が、幾何学的電極容積および/または幾何学的多孔質支持層構造体容積を超える電極または多孔質支持層構造体に導く。ある態様においては、電極および/または多孔質支持層構造体内部の粒子の全凸包容積の合計が、電極または多孔質支持層の幾何学的電極容積および/または幾何学的多孔質支持層構造体容積を少なくとも約 5 %、少なくとも約 1 0 %、少なくとも約 2 5 %、または少なくとも約 5 0 % 超える。当業者であれば、物品内部の各々の粒子の凸包容積を決定し、個々の容積を合計することにより、物品内部の全凸包容積の合計を決定することができるであろう。

【 0 0 3 7 】

ある態様においては、粒子 1 0 0 は、多孔質であってもよく、その場合、多孔質支持層構造体 3 1 0 内部にさらなる空隙容量を導入することができる。

【 0 0 3 8 】

凸包に関連する相対的に大きな刻み目を有する粒子（例えば、幾何学的粒子容積が、その凸包容積の相対的に大きな量を占める粒子、例えば球、ではなくて）の使用は、ある態様においては有利になり得る。例えば、（幾何学的粒子容積が、その凸包の相対的に大きな量を占める球または他の粒子等の粒子に比較して）相対的に大きな刻み目を有する粒子は、相対的に小さな幾何学的粒子容積を占めつつ、所定の空隙容量を定義することが一般的にできる。これにより、多孔質支持層構造体中の粒子により定義される質量および/または幾何学的粒子容積の量を減少させることができ、そのことは、多孔質支持層構造体を採用している電気化学セルにおけるエネルギー密度および/またはパワー密度の増加につながり得る。

【 0 0 3 9 】

図 4 A - 4 B は、この原理を説明する模式的断面説明図である。図 4 A において、刻み目をつけられた表面部分を有する粒子 1 0 0 は集合して細孔 4 1 4 A を定義している。図 4 B においては、実質的に球形の粒子 4 0 0 が集合して細孔 4 1 4 B を形成している。細孔 4 1 4 A および 4 1 4 B のサイズは実質的に同じであるが、図 4 A における粒子 1 0 0 により定義される幾何学的粒子容積は、図 4 B における球形粒子 4 0 0 により定義される幾何学的粒子容積より実質的に小さい。

【 0 0 4 0 】

ある態様においては、多孔質支持層構造体内部の粒子の相対的に高いパーセントが、各々の粒子について幾何学的粒子容積が粒子の凸包容積の相対的に小さな量を占めるように、形成される。例えば、ある態様においては、多孔質支持層構造体内部の総幾何学的粒子

10

20

30

40

50

の、少なくとも約 50 %、少なくとも約 75 %、少なくとも約 90 %、少なくとも約 95 %、少なくとも約 99 %、または実質的にすべてが、それぞれの粒子について、幾何学的粒子容積が、粒子の凸包容積の、約 75 %未満、約 60 %未満、約 50 %未満、約 40 %未満、約 30 %未満、約 20 %未満、約 10 %未満、約 5 %未満、または約 1 %未満（そして、ある態様においては、0.05 %と小さい）となるように形成された粒子で構成されている。すなわち、ある態様においては、その凸包容積の約 75 %未満（約 60 %未満、約 50 %未満等）である幾何学的粒子容積を有する粒子が、多孔質支持層構造体内部の総幾何学的粒子容積の、少なくとも約 50 %、少なくとも約 75 %、少なくとも約 90 %、少なくとも約 95 %、少なくとも約 99 %、または実質的にすべてを占め得る。

【0041】

当業者であれば、粒子または粒子の拡大イメージを調べること（例えば、マイクロスケールまたはより小さい粒子の走査型電子顕微鏡（SEM）イメージにより、所定の粒子の幾何学的粒子容積が、その粒子の凸包容積の所定のパーセントより小さいかどうかを決定することができるであろう。

【0042】

手短に言えば、このような手順は、粒子の 1 以上のイメージを検査すること、粒子のイメージについて粒子の凸包を描くこと、（1 以上の SEM イメージを検査するとき、寸法決定を助けるために SEM イメージ上のスケールバーを使用して）凸包の寸法を決定すること、および当業者に公知の幾何学的計算式（特定の計算式を粒子の形状に依存して採用して）を使用して凸包の容積を計算することにより、粒子の凸包容積を決定することを含むであろう。次に、幾何学的粒子容積は、（1 以上の SEM イメージを検査するとき、寸法決定を助けるために SEM イメージ上のスケールバーを使用して）粒子の寸法を決定し、そして、当業者に公知の幾何学的計算式（再度、特定の計算式を粒子の形状に依存して採用して）を使用して、幾何学的粒子容積を計算することにより決定されるであろう。一度、凸包容積および幾何学的粒子容積が、所定の粒子に関して決定されると、特定の粒子の幾何学的粒子容積に占められるその特定の粒子の凸包容積のパーセントは、幾何学的粒子容積を凸包容積で割り、100 %を掛けることにより決定される。

【0043】

一例として、図 1A - 1B に説明されている態様においては、粒子 100 は図 1A に説明されている幾何学的粒子容積および図 1B に説明されている凸包容積を有する。図 1A - 1B においては、粒子 100 は、（図 1A に示されている）幾何学的粒子容積が、（図 1B に示されている）凸包容積の 50 %未満となるように形作られている。別の例として、図 2A - 2B に説明されている態様においては、粒子 100 は図 2A に説明されている幾何学的粒子容積および図 2B に説明されている凸包容積を有する。図 2A - 2B においては、粒子 100 は、（図 2A に示されている）幾何学的粒子容積が、（図 2B に示されている）凸包容積の 5 %未満となるように形作られている。

【0044】

ある態様においては、圧縮力を多孔質支持層構造体（および/または多孔質支持層構造体を含む電極および/または多孔質支持層構造体が含まれる電極からなる電気化学セル）に印加すると、多孔質支持層構造体の空隙容量を、維持できるか、またはごくわずかの限定された程度に変化させることができる。ある態様においては、多孔質支持層構造体内部の粒子が、お互い関連してシフトしたとしても、多孔質支持層構造体内部の空隙容量を維持することができるか、ごくわずかの限定された程度に変化（例えば、増加または減少）させることができる。例えば、図 3 に戻って参照すると、粒子 100A が、粒子 100B に相関して、反時計回りに回転したとすると、化学的結合点 316A は、細孔 314A が少なくともある程度まで多孔質支持層構造体内部に存続するように、刻み目をつけられた表面部分 110A と接触することができる。ある態様においては、化学的結合点と刻み目をつけられた表面部分との間の相互作用により、多孔質支持層構造体の空隙容量が維持されるか、ほんの限られた程度だけ変化することを確保することができる。

【0045】

他の態様においては、多孔質支持層構造体は、少なくとも約 20 ニュートン/cm^2 、少なくとも約 45 ニュートン/cm^2 、少なくとも約 70 ニュートン/cm^2 、または少なくとも約 95 ニュートン/cm^2 の圧力を定義する圧縮力を多孔質支持層構造体に印加（例えば、多孔質支持層構造体を含む電極および/または電気化学セルに印加）したとき、多孔質支持層構造体の空隙容量が、該力が、印加される前の、しかしその他の点では同一条件 (otherwise identical conditions) 下の空隙容量に基づいて、約 25% を超えて、約 10% を超えて、約 5% を超えて、または約 1% を超えて変化しないように構成することができる。他の態様においては、多孔質支持層構造体は、少なくとも約 20 ニュートン/cm^2 から約 200 ニュートン/cm^2 、少なくとも約 45 ニュートン/cm^2 から約 200 ニュートン/cm^2 、少なくとも約 70 ニュートン/cm^2 から約 200 ニュートン/cm^2 、または少なくとも約 95 ニュートン/cm^2 から約 200 ニュートン/cm^2 の圧力を定義する圧縮力を多孔質支持層構造体に印加したとき、多孔質支持層構造体の空隙容量が、該力が、印加される前の、しかしその他の点では同一条件下の空隙容量に基づいて、約 25% を超えて、約 10% を超えて、約 5% を超えて、または約 1% を超えて変化しないように構成することができる。本文脈において、「その他の点では同一条件」とは、力の印加および/または大きさ以外は同一である条件を意味している。例えば、その他の点では同一の条件とは、同一である多孔質支持層構造体（または電極および/または多孔質支持層構造体を含む電気化学セル）を意味していてもよいが、それは、測定可能な力が多孔質支持層構造体（または電極および/または多孔質支持層構造体を含む電気化学セル）に印加されていると解釈されないという場合においてである。ある場合においては、圧縮力は、以下により詳しく記述しているように、電極の活性表面に直角の成分を有する異方性の力等、異方性の力を含んでいてもよい。

【0046】

色々の材料が、本明細書に記載されている多孔質支持層構造体用の粒子を形成するのに使用できる。ある態様においては、多孔質支持層構造体を形成するのに使用される粒子は、導電性材料を含有しており、それを使用することにより、電子が、多孔質支持層構造体を使用して形成されている電極から移送される程度を高めることができる。本明細書に記載されている多孔質支持層構造体内部の粒子の全部または一部を形成するのに使用できる代表的な導電性材料としては、それらに限定されるものではないが、カーボン、金属（例えば、ニッケル、銅、マグネシウム、アルミニウム、チタン、スカンジウム、鉄、合金、および/またはこれらの組合せ）、導電性ポリマー（ポリ（3,4-エチレンジオキシチオフェン）（PEDOT）、ポリ（メチレンジオキシチオフェン）（PMDO）、他のチオフェン、ポリアニリン（PANI）、ポリピロール（PPy））などを包含する。ある態様においては、（例えば、多孔質支持層構造体の成分の全部または一部を形成する）多孔質支持層構造体内部の金属または金属合金は、約 9 g/cm^3 未満、または約 4.5 g/cm^3 未満の密度を有し得る。例えば、多孔質支持層構造体の全部または一部は、チタンで形成でき、それは約 4.5 g/cm^3 のかさ密度を有する。

【0047】

ある態様においては、導電性多孔質支持層構造体は、 20 で、約 10^{-3} オーム・m 未満、約 10^{-4} オーム・m 未満、または約 10^{-5} オーム・m 未満のかさ電気抵抗を有する材料を含有している。例えば、ある態様においては、多孔質支持層構造体の全部または一部は、 20 で約 2.5×10^{-6} オーム・m と約 5×10^{-6} オーム・m の間のかさ電気抵抗を有するグラファイトおよび/または 20 で約 7×10^{-8} オーム・m のかさ電気抵抗を有するニッケルで構成することができる。ある態様においては、多孔質支持層構造体の少なくとも約 $50 \text{ wt}\%$ 、少なくとも約 $75 \text{ wt}\%$ 、少なくとも約 $90 \text{ wt}\%$ 、少なくとも約 $95 \text{ wt}\%$ 、または少なくとも約 $99 \text{ wt}\%$ が、 20 で約 10^{-3} オーム・m 未満または約 10^{-6} オーム・m 未満のかさ電気抵抗を有する材料からなっている。

【0048】

ある態様においては、多孔質支持層構造体を形成するのに使用される粒子は、非導電性

ポリマー、セラミック、ガラス、ファブリック(fabric)、またはあらゆる他の好適な非導電性材料等の電気非導電性材料を含有することができる。非導電性材料は、ある態様においては、導電性材料と混合するか、または導電性材料で少なくとも部分的にコートし、所望レベルの導電性を付与してもよい。多孔質支持層構造体用の粒子形成に使用するための好適な非導電性ポリマーは、限定するものではないが、ポリビニルアルコール(PVA)、フェノール樹脂(ノボラック/レゾルシノール)、リチウムポリスチレン(LiPSS)、エポキシ、UHMWPE、PTFE、PVDF、PTFE/ビニルコポリマー、上記のコポリマー/ブロックコポリマー等を包含する。ある態様においては、2種類のポリマーを、ユニークな機能性(例えば、接着性に対してはPVA、そして剛性に対してはLiPSS、または剛性に対してはレゾルシノール、そして柔軟性/韌性に対してはエラストマー)に向けて使用することができる。

10

【0049】

多孔質支持層構造体の粒子に使用するための好適なセラミックは、限定するものではないが、アルミニウム、ケイ素、亜鉛、スズ、バナジウム、ジルコニウム、マグネシウム、インジウム、及びそれらの合金の酸化物、窒化物、および/またはオキシ窒化物を包含する。あるケースにおいては、粒子は、上記をドーブし導電性等の所望の特性を付与したあらゆる酸化物、窒化物、および/またはオキシ窒化物を包含する；このようなドーブされた材料の特定の例は、インジウムでドーブされたスズ酸化物およびアルミニウムでドーブされた亜鉛酸化物を包含する。多孔質支持層構造体の粒子を形成するのに使用される材料は、ある態様においては、ガラス(例えば、石英、非晶質シリカ、カルコゲニド、および/または他の導電性ガラス)を含有することができる。多孔質支持層構造体は、ある態様においては、エアロゲルおよび/または上記の材料のいずれかのキセロゲルを包含することができる。ある態様においては、多孔質支持層構造体は、ガラス質セラミックを包含することができる。

20

【0050】

本明細書に記述されている多孔質支持層構造体の粒子は、種々の方法を使用して形成することができる。ある態様においては、多孔質支持層構造体に使用するための粒子は、第1材料を第2材料とを組み合わせ、該組合せから第1材料の少なくとも一部を除去し、そして第2材料の残っている部分をバラバラにすることにより形成することができる。ある態様においては、該組合せから第1材料を少なくとも部分的に除去している間、第2材料の構造は、実質的に維持され得る。

30

【0051】

図5は、多孔質支持層構造体を作製できる一つの方法を略述する模式的説明図である。図5においては、多数の型取りエレメント510が、テンプレート中に集合している。材料520は、それから支持層構造体粒子が作製される材料(例えば、金属、セラミック、ガラス、ポリマー等、溶融していてもよい)または支持層構造体材料に対する前駆物質(例えば、変換されて、多孔質支持層構造体の材料を、例えば、反応(例えば、重合、沈殿等)を経由して形成されてもよい)を含有しているのであるが、型取りエレメント510と混合され得る。型取りエレメントは、ある態様においては、それらが、相互に連結したネットワークを形成し、材料520を該ネットワークのすき間中に移送できるようにアレンジすることができる。型取りエレメント510が、多孔質構造体材料520内部にアレンジされた後、それらを多孔質構造体材料から除去し細孔を残すことができる。ある態様においては、型取りエレメント510は、凸状外部表面を含み、従って、型取りエレメントが除去されたとき、残っている材料520は、型取りエレメントの凸状外部表面に対応する凹状外部表面部分を包含することができる。

40

【0052】

ある態様においては、支持層構造体材料520は、液体として添加し、型取りエレメントを除去する前、および/または型取りエレメントを除去する間に硬化されることができる。本明細書に使用されているように、「硬化される(hardened)」という用語は、材料の粘度を実質的に増加するプロセスを表しているものであり、(一態様においては、多孔質

50

支持層構造体材料は、それを固体に変換することにより硬化されるが)必ずしも、材料を固体化させることに限定されるものではない。ある材料は、例えば、液相をゲル化することにより硬化される。場合によっては、ある材料は、重合すること(例えば、IR-またはUV-誘起重合)により硬化される。場合により、硬化されつつある材料は、(その凝固点未満に、またはそのガラス転移温度未満に、材料の温度を下げ)相変化を経ることも可能である。ある材料は、例えば、溶媒相の蒸発により、溶液から溶媒を除去し、それにより固体相材料を残すことにより硬化されてもよい。

【0053】

態様によっては、支持層構造体材料の前駆物質を、型取りエレメントの間に添加し、反応させて最終の粒子材料を形成することも可能である。一特定の態様においては、有機材料を型取りエレメント間に添加し、それは、続いて酸化させ、および/または熱分解し、型取りエレメント間に固体の炭質材料(例えば、カーボンブラック)を形成することも可能である。

10

【0054】

型取りエレメントは、好適な相であればどのようなものでもよい。ケースによっては、型取りエレメントは、固体粒子で有り得る。例えば、型取りエレメントは、シリカ粒子を含有していてもよく、それは、例えば、フッ化水素酸を使用して、多孔質構造体から溶解させることができる。別の例として、型取りエレメントは、炭酸水素アンモニウムを含有していてもよく、それは、水に溶かすことにより除去することができる。態様によっては、型取りエレメントは、流動体(例えば、液体および/またはガス)バブルを含有することができ

20

【0055】

型取りエレメントは、好適な形状(規則正しい、または不規則な)であればどのような形状でもとり得る。上記したように、ある態様においては、型取りエレメントは、1以上の凸状の外部表面部分を含むことができ、それは、型取りエレメント間に製造される粒子に対応する凹状の表面部分を製造するのに使用することができる。型取りエレメントの例は、それに限定されるものではないが、球体、円柱体、楕円体、不規則な形状体、および/または、これらおよび/または他の形状体の混合物を包含する。

【0056】

型取りエレメントは、各々好適なサイズであれば、どのようなサイズで形成されていてもよい。態様によっては、型取りエレメントのサイズおよび/または形状は、粒子の凸包に関連した、所望のサイズおよび/または刻み目をつけられた表面特徴を有する粒子を製造するように選択できる。このように、集合した多孔質支持層構造体および/または電極細孔サイズおよび空隙容量は、型取りエレメント(そして、それ故、凹状外部表面からなる粒子)のサイズ、形状、配置をコントロールすることによりコントロールすることができる。

30

【0057】

一態様において、多孔質支持層構造体粒子は、(例えば、シリカを含有する)モノリスの無機多孔質マトリックス材料を製造し;該マトリックス材料の細孔にカーボンまたはカーボン前駆物質を浸透させ;所望により該カーボンまたはカーボン前駆物質材料を熱分解し;そして、該マトリックス材料を溶解して型取りされたカーボン系材料を残すことにより製造することができる。例えば、シリカを使用したとき、シリカは、フッ化水素酸を使用して溶解することができる。型取りされたカーボン系材料は、続いて、分解し、その凸包に関連する刻み目からなる粒子を形成することができる。

40

【0058】

3Dプリンティングが、本明細書に記載されている多孔質支持層構造体粒子を製造するのに使用できる別の方法である。3Dプリンティングは、当業者に公知であり、3次元物体が、層のトップ面に別の層をくっつけて最終目的物を形成する連続層を形作ることにより創製されるプロセスを言うものである。3Dプリンティングは、金属、ポリマー、セラミックおよび他の物を含む、種々の材料を使用できる。

50

【 0 0 5 9 】

態様によっては、多孔質支持層構造体を形成するのに使用する粒子は、指定された範囲内で最大断面形状(maximum cross-sectional dimensions)を有することができる。例えば、ケースによっては、多孔質支持層構造体内部の粒子の総容積の少なくとも約 50 %、少なくとも約 75 %、少なくとも約 90 %、少なくとも約 95 %、少なくとも約 99 %、または実質的にすべてが、約 0.1 ミクロメートルと約 10 ミクロメートルの間、約 1 ミクロメートルと約 10 ミクロメートルの間、または約 1 ミクロメートルと約 3 ミクロメートルの間の最大断面寸法を有する粒子から成ることができる。態様によっては、多孔質支持層構造体を形成するのに使用する粒子は、約 0.1 ミクロメートルと約 10 ミクロメートルの間、約 1 ミクロメートルと約 10 ミクロメートルの間、または約 1 ミクロメートルと約 3 ミクロメートルの間の平均最大断面寸法を有することができる。

10

【 0 0 6 0 】

ある態様においては、本明細書に記載されている多孔質支持層構造体は、相対的に高い空隙率パーセントを有している。例えば、態様によっては、多孔質支持層構造体は、少なくとも約 50 %、少なくとも約 75 %、少なくとも約 90 %の総空隙率パーセントを有している。

【 0 0 6 1 】

凸法に関連した凸包を含有する粒子が一旦製造されると、それらを集合させて多孔質支持層構造体を形成してもよい。ある態様においては、多孔質支持層構造体内部の粒子の少なくとも一部は、バインダーを介して他の粒子に付着している。態様によっては、多孔質支持層構造体内部の粒子の少なくとも一部は、他の粒子に融合している。結合されているか、焼結されている粒子を含有する態様においては、該粒子は、表面特性(例えば、幾何学的粒子容積に占められる凸包のパーセント)、最大断面寸法等を決定するとき、別個に考慮されるべきである。このような測定は、各々の集合粒子間に仮想の境界線を定め、このような境界線を定めたことから生じる仮想の個別化された粒子の特性を測定することにより行うことができる。表面特性、最大断面寸法等の分布は、SEM 分析を使用して当業者により決定することができる。多孔質支持層構造体の細孔は、以下により詳述されているように、少なくとも部分的に、電極活性物質で満たされて、機能性電極を形成している。当業者であれば、さらなる成分(例えば、集電板(current collectors)等)を、機(functioning)電気化学セルの一部として電極とともに組み入れることを理解するであろう。

20

30

【 0 0 6 2 】

所定の多孔質支持層構造体内部および/または集合電極内部の細孔の断面直径の分布は、電気化学セルの性能高めるように選択することができる。本明細書に使用されているように、細孔の「直径」は、ASTM 標準試験 D 4284 - 07 を使用して測定されるような断面直径を言い、その全体を本明細書の一部として引用する。多数の細孔の「平均断面直径」は、複数の細孔の各々の断面直径の数平均を言う。当業者であれば、多孔質構造体(例えば、小規模の多孔質支持層構造体、大規模の多孔質支持層構造体、および多孔質支持層構造体の組合せから集合した電極)内部の断面直径の分布および細孔の平均断面直径は、ASTM 標準試験 D 4284 - 07 に記載されているように、水銀侵入ポロシメトリー(porosimetry)を使用して計算することができるであろう。例えば、ASTM 標準試験 D 4284 - 07 に記載されている方法を使用し、細孔直径の関数として、累積侵入細孔容積としてプロットされた細孔サイズの分布を作ることができる。細孔直径の所定範囲内にある細孔から成るサンプル内の総細孔容積のパーセントを計算するために、(1) × 軸上の所定の範囲にわたる曲線下の領域を計算する、(2) ステップ(1)で計算された領域を曲線下の総領域で割り、(3) そして、100 % をかけるであろう。所望により、物品が、ASTM 標準試験 D 4284 - 07 を使用して正確に測定できる細孔サイズの範囲外にある細孔を含んでいる場合、ポロシメトリー測定は、例えば、P. H. Emmett, および E. Teller, J. Am. Chem. Soc., 1938, 60, 309、その全体を本明細書の一部として引用するが、に記載されているような、多分子層の吸着式(BET)表面分析を使用することで補ってもよい。

40

50

【 0 0 6 3 】

ある態様によっては、多孔質支持層構造体および/または集合電極は、電気化学セル反応副生成物で比較的簡単に詰まり、および/または小さすぎて電解質（例えば、液体電解質）が、例えば、毛管力のために、電極の細孔中へ通過できない、サブナノメートルスケールおよびシングルナノメートルスケールの細孔より大きな断面直径を有する細孔を含有するように構成することができる。さらに、ケースにより、多孔質支持層構造体内部および/または集合電極内部の細孔は、電極を機械的に不安定にする相当大きいミリメートルスケール細孔より小さな断面直径を有していてもよい。

【 0 0 6 4 】

態様によっては、多孔質支持層構造体の総細孔容積を記述する。このような態様において、多孔質支持層構造体は、多数の細孔を含有していると言え、該多数の細孔の各々の細孔は、細孔容積を有しており、そして、該多数の細孔は、個々の細孔容積の各々の合計により定義される総細孔容積を有している。ある態様においては、集合電極内部の総細孔容積の、少なくとも約 50 %、少なくとも約 75 %、少なくとも約 90 %、少なくとも約 99 %、または実質的にすべてが、約 0.1 ミクロメートルと約 10 ミクロメートルの間、または約 1 ミクロメートルと約 3 ミクロメートルの間の断面直径を有する細孔により定義されている。態様によっては、集合電極内部の細孔の平均断面直径は、約 0.1 ミクロメートルと約 10 ミクロメートルの間、または約 1 ミクロメートルと約 3 ミクロメートルの間にある。

【 0 0 6 5 】

一般に、集合電極の空隙率（例えば、細孔の分布、細孔サイズの分布、空隙容量等）は、電極の細孔内部に電極活性物質が存在しない状態において決定される。これは、例えば、電極の細孔から電極活性物質を除去し、続いて水銀圧入ポロシメトリーを行うことにより、および/または電極活性物質を電極に添加する前にポロシメトリーを行うことにより達成される。

【 0 0 6 6 】

態様によっては、集合電極は、相対的に均一な断面直径を有する細孔を含有していてもよい。いかなる理論にも縛られるものではないが、このような均一性は、多孔質電極の大部分を通じて相対的に一貫した構造的安定性を維持することにおいて有効である。加えて、相対的に狭い範囲内に細孔サイズを制御できることは、構造的安定性を保ちながら、十分に小さな細孔を維持しつつ、流体浸透（例えば、電解質浸透）を可能とするに十分大きな非常に多数の細孔を含ませることを可能とする。態様によっては、集合電極内部の細孔の断面直径の分布は、複数の細孔の平均断面直径の約 50 % 未満、約 25 % 未満、約 10 % 未満、約 5 % 未満、約 2 % 未満、約 1 % 未満の標準偏差を有することができる。標準偏差（小文字のシグマ）は、該技術における通常の意味として示され、

【 数 1 】

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (D_i - D_{avg})^2}{n-1}}$$

（式中、 D_i は、細孔 i の断面直径、 D_{avg} は複数の細孔の断面直径の平均、および n は、細孔の数である。）。

として計算することができる。上記で概略した細孔の標準偏差と平均断面直径との間の比較百分率（percentage comparison）は、標準偏差を該平均で割り、100 % を掛けることにより得ることができる。

【 0 0 6 7 】

ある態様においては、電極活性物質は、本明細書に記載されている多孔質支持層構造体の細孔内部に実質的に含有されることができる。電極活性物質を添加し、多孔質支持層構造体を使用している電極を形成することができる。第 2 の材料の細孔内部に「実質的に含

有される」と言われている第1の材料は、該第2の材料の細孔の外部境界で定義される仮想容積内部に少なくともあるというものである。例えば、ある細孔に実質的に含有される材料は、該細孔内部に完全に含有されることができるか、またはその容積の一部 (fraction) を該細孔内部に含有されるだけでもよいが、該材料の実質的な部分が、全体的に、該細孔内部に含有されているものである。ある態様においては、第1の材料の、少なくとも約30wt%、少なくとも約50wt%、少なくとも約70wt%、少なくとも約80wt%、少なくとも約85wt%、少なくとも約90wt%、少なくとも約95wt%、または実質的にすべてが、第2の材料の細孔の外部境界で定義される仮想容積内部にあるとき、第1の材料(例えば、電極活性物質)は、第2の材料(例えば、多孔質支持層構造体)の細孔内部に少なくとも一部含有される。

10

【0068】

色々な電極活性物質が、本明細書に記載されている電極に関連して使用することができる。ある態様においては(例えば、電極がカソードとして使用される場合には)、細孔内部の電極活性物質はイオウを含有することができる。例えば、細孔内部の電極活性物質は電気活性イオウ-含有材料を含有することができる。本明細書で使用されている、「電気活性イオウ-含有材料」は、何らかの形態で元素イオウを含有している電極活性材料を言うものであり、電気化学活性は、イオウ原子または部分の酸化または還元を包含するものである。一例として、電気活性イオウ-含有材料は、元素イオウ(例えば、S₈)を含有していてもよい。場合によっては、電気活性イオウ-含有材料は、元素イオウおよびイオウ-含有ポリマーの混合物を含有する。それ故、好適な電気活性イオウ-含有材料としては、それらに限定されるものではないが、元素イオウ、有機または無機であってもよい(例えば、アルカリ金属の)硫化物または多硫化物、およびイオウ原子および炭素原子を含有する有機材料を包含するものであり、ポリマーであってもなくてもよい。好適な有機材料としては、それらに限定されるものではないが、ヘテロ原子、導電性ポリマーセグメント、複合物、および導電性ポリマーをさらに含有するものを包含するものである。態様により、電極(例えば、カソード)内部の電気活性イオウ-含有材料は、少なくとも約40wt%イオウを含有する。ケースにより、電気活性イオウ-含有材料は、少なくとも約50wt%、少なくとも約75wt%、または少なくとも約90wt%イオウを含有する。

20

【0069】

イオウ-含有ポリマーの例は、Skothheimら、米国特許第5,601,947および5,690,702、Skothheimら、米国特許第5,529,860および6,117,590、Gorkovenkoら、2001年3月13日発行の米国特許第6,201,100、およびPCT公報WO99/33130:に記載されているものを包含する。ポリスルフィド結合を含む、他の適切な電気活性なイオウ含有物質は、Skothheimらの米国特許第5,441,831;Perichaudら米国特許第4,664,991、およびNaouiら米国特許番号5,723,230、第5,783,330、第5,792,575および第5,882,819に記載されている。電気活性イオウ-含有材料の更なる例としては、例えば、Armandら米国特許第4,739,018;De Jongheら、両米国特許第4,833,048および4,917,974;Viscoら、両5,162,175および5,516,598;Oyamaら、米国特許第5,324,599に記載されている二硫化物基を含有するものを包含する。

30

40

【0070】

活性カソード種として、イオウが、支配的に記載されているが、本明細書において電極活性物質の成分としてイオウが記載されているところであればどこでも、いかなる好適なカソード活性種をも使用してもよいということが理解されるべきである。例えば、ある態様においては、カソード活性種は、ニッケル金属水素化物バッテリーに普通に使用されているもの等の水素吸蔵合金を含有している。当業者であれば、本開示を考慮に入れると、本明細書に記載されているアイデアを、他のカソード活性物質を採用している電極を含む電気化学セルまで拡張することができるであろう。

【0071】

50

イオウがカソード活性物質として使用されているある態様においては、アノードは、アノード活性物質としてリチウムを含有することができる。リチウムを含有する好適な電極活性物質は、それらに限定されるものではないが、リチウムフォイルおよび導電性物質上に析出されたリチウム等のリチウム金属、およびリチウム合金（例えば、リチウム - アルミニウム合金やリチウム - スズ合金）を包含する。ある態様によっては、アノード活性層の電気活性リチウム - 含有材料は、50 wt %を超えるリチウムを含有している。ケースによっては、アノード活性層の電気活性リチウム - 含有材料は、75 wt %を超えるリチウムを含有している。さらなる態様においては、アノード活性層の電気活性リチウム - 含有材料は、90 wt %を超えるリチウムを含有している。

【0072】

10

ある実施態様においては、凸包に関連する刻み目を有する粒子を含有する多孔質支持層構造体は、アノード中に含めることができる。使用することのできるアノード活性物質の例としては、それらに限定されるものではないが、アルカリ金属（例えば、リチウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、フランシウム）、アルカリ土類金属（例えば、ベリリウム、マグネシウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、ラジウム）等を包含する。

【0073】

本明細書に記載されている電極および多孔質支持層構造体の構成(configurations)は、例えば、電気自動車、負荷平準化機器（例えば、ソーラーや風力ベースのエネルギーブラットフォーム用）、携帯用電子機器等の色々なデバイス用の電気化学セルに使用することができる。用語「電気化学セル」は、一次および二次電気化学セルを包含する。従って、本明細書に記載されている発明の電気化学セル配列および材料は、（一次バッテリーおよび二次バッテリーを含む）一次セル中、および/または二次セル中で使用することができる。何回も充電および放電をできる。ある態様によっては、本明細書に記載されている材料、システム、方法は、リチウム系電気化学セル、およびそれらのバッテリーと共同で使用することができる。例えば、ある態様においては、本明細書に記載されている多孔質支持層構造体を含有する電極は、リチウム金属および/またはリチウム合金等リチウムを含有する別の電極を含有する電気化学セル中で使用することができる。

20

【0074】

本発明は、広範囲の色々な電気化学デバイスに使用できるが、このようなデバイスの一例を、単に説明目的で、図6に提供する。図6は、カソード612およびアノード616を含有する電気化学セル610の模式的説明図を含んでいる。加えて、該電気化学セルは電解質614を含有している。電解質は、カソードとアノード間の電気化学的伝導成分を1種以上含むことができる。図6におけるアノード、カソードおよび電解質は、平面構成を有するように示されているが、他の態様として、非平面構成（例えば、円筒形、ヘビ状等）を含む。図6に説明されている態様においては、電気化学セル610は、ハウジング617構造も含んでいる。

30

【0075】

もちろん、成分のオリエンテーションは、色々変えることができ、層のオリエンテーションを変え得る他の態様があるということが理解されるべきである。さらに、非平面配列、示されているそれらとは異なる材料の割合での配列、および他の別な配列が、本発明に関して有用である。もちろん、代表的な電気化学セルは、また、集電板、外部回路等を含む。当業者であれば、図に示され、本明細書に記載されているような一般的模式的配列で利用できる多くの配列を十分分っている。

40

【0076】

本明細書に記載されている多孔質支持層構造体を含有する電極（例えば、凸包に関連した刻み目を含有する粒子の集合を含んでいる）は、アノードおよび/またはカソードとして使用することができる。ある態様においては、電気化学セル610のカソード612は、凸包に関連した刻みを有する多くの粒子を含有する多孔質支持層構造体を含有することができる。このような態様によっては、アノード616は、活性種として、リチウム（例

50

えば、リチウム金属および/またはリチウム合金)を含有する。

【0077】

ある態様においては、本明細書に記載されている多孔質支持層構造体および電極は、異方性の力が電気化学セルに印加される該セルにおける使用のために構成することができる。従って、ある態様においては、本明細書に記載されている多孔質支持層構造体および電極は、(ある態様において、空隙容量を含む)構造的完全性を維持しつつ、印加された異方性の力(例えば、他方の電極のモルフォロジを高めるために印加される力)に耐えるように構成することができる。例えば、ある態様においては、多孔質支持層構造体および電極は、電気化学セルの充電および/または放電の間の少なくともある時間期間の間、電気化学セル内部の電極(例えば、リチウム金属および/またはリチウム合金を含有するアノード)の活性表面に垂直な成分を有する異方性の力を印加するように組み立てられ配列された電気化学セルの部品になり得る。一態様によっては、印加された力は、電極(例えば、リチウム金属等のアノードおよび/または合金アノード)のモルフォロジを高めるように選択することができ、カソードは、粒子の凸包に関連する刻み目を有する外部表面部分を有するいくつかの粒子を含有することができる。

10

【0078】

「異方性の力」は、当該分野におけるその普通の意味が与えられており、全方向には一様でない力を意味している。全方向に一様な力は、例えば、ある物体の内部ガス圧等、流体または物質内部の液体または物質の内部圧力である。全方向に一様でない力の例としては、重力によって、テーブル上の物体により印加されるテーブル上の力のように、特別の方向に向いている力を含む。異方性の力の別の例としては、物体の周囲周りに配置されたバンドにより印加された力を含む。例えば、ゴムバンドまたはターンバックル(turnbuckle)は、その周囲にそれが巻きつけられた物体の周囲周りに力を印加することができる。しかしながら、バンドは、該バンドと接触することなく、物体の外部表面のどの部分にも直接の力を印加できるものではない。加えて、バンドを第1の軸に沿って第2の軸より大きく伸ばされたとき、バンドは、第2の軸に平行に印加された力より、第1の軸に平行な方向においてより大きな力を印加することができる。

20

【0079】

このようなあるケースにおいては、異方性の力は、電気化学セル内部の電極の活性表面に垂直な成分を含有する。本明細書において使用されているような、「活性表面」という用語は、電解質と物理的に接触しており、そこで電気化学反応が起こり得る電極の表面を記述するのに使用されている。例えば、図6に戻って参照すると、カソード612は、カソード活性表面618を含むことができ、および/またはアノード616はアノード活性表面620を含むことができる。当該分野の当業者であれば、電極の活性表面は、電極の外部の幾何学的な表面を言っているということを理解できるであろう。

30

【0080】

表面に「垂直な成分」を有する力は、当該技術分野の当業者に理解されるであろうようなその普通の意味が与えられており、例えば、表面に実質的に垂直な方向において、少なくとも一部にそれ自体で影響を及ぼす力を含む。例えば、物体がテーブル上に静止している水平テーブルの場合、該物体は、テーブルの表面に本質的に完全に垂直な力を作用させる。該物体が、また、水平なテーブルの表面の横方向に強制されると、それは、水平表面には完全には垂直ではないものの、テーブル表面に垂直な成分を含む力をテーブル上に及ぼす。当業者であれば、特に、本明細書の記載内で適用されているように、これらの用語の他の例を理解することができる。

40

【0081】

電極の活性表面に対して垂直な成分を有する印加力が、図6に示されている。図6においては、異方性の力が、矢印650の方向に印加されてもよい。矢印651は、アノード616の活性表面620に対して垂直である(そして、この場合、カソード612の活性表面618に対して垂直でもある)力650の成分を示している。曲面(例えば、凹面または凸面)のケースにおいては、電極の活性表面に垂直な異方性の力は、異方性の力が印

50

加されている点で曲面に接した平面に垂直な成分に対応し得る。異方性の力は、ケースによっては、1以上の予め決められた位置に印加されるか、所望によりアノードの活性表面にわたって分散され得る。態様によっては、異方性の力は、アノードの活性表面にわたって均一に印加される。

【0082】

本明細書に記載されているいずれかの電極特性（例えば、空隙率、細孔サイズ分布等）および/または性能メトリクスは、異方性の力を（例えば、セルの充電および/または放電の間）電気化学セルに印加しながら、単独、またはお互いの組み合わせにおいて達成されてもよい。ある態様においては、（例えば、セルの充電および/または放電の間の少なくともある時間の間）多孔質支持層構造体、電極、および/または電極を含有する電気化学セルに印加される異方性の力は、電極（例えば、電気化学セル内部のリチウム金属および/またはリチウム合金アノードおよび/またはいくつもの多孔質支持層構造体を含有する多孔質電極）の活性表面に対して垂直な成分を含み得る。ある態様においては、望ましい電極特性が存在している間、電極の活性表面に垂直である異方性の力の成分は、少なくとも約20、少なくとも約25、少なくとも約35、少なくとも約40、少なくとも約50、少なくとも約75、少なくとも約90、少なくとも約100、少なくとも約125、少なくとも約150ニュートン/cm²の圧力を定義する。ある態様においては、望ましい電極特性が存在している間、活性表面に垂直な異方性の力の成分は、例えば、約200未満、約190未満、約175未満、約150未満、約125未満、約115未満、または約110未満のN/cm²の圧力を定義する。力と圧力は、それぞれ、ニュートンおよびニュートン/単位面積の単位で本明細書に一般的に記述されているが、力と圧力は、また、それぞれキログラム重およびキログラム重/単位面積の単位で表現できる。当業者は、キログラム重ベースの単位をよく知っており、1キログラム重は、約9.8ニュートンに等しいということを理解している。

【0083】

ある態様においては、異方性の力（例えば、約20ニュートン/cm²と約200ニュートン/cm²の間、または上記で略述したいずれかの範囲の圧力を定義し、電極の活性表面に垂直な成分を有する）を、（例えば、電極を含有する電気化学セルへ異方性の力を印加することにより）電極に印加している間、本明細書に記載されている空隙容量および/または細孔分布を達成することができる。これは、上記で記載されているような、印加された力の下に、その空隙率を維持することができる電極内部に多孔質支持層構造体を製作することにより達成できる。印加された力の下、変形に抵抗する多孔質支持層構造体は、該多孔質支持層構造体を含有する電極が圧力下その透過性を維持することを可能とし、そして、該電極が本明細書に記載されている高められた速度能力(rate capabilities)を維持することを可能としている。態様によっては、多孔質支持層構造体（例えば、大きな規模の多孔質支持層構造体）の降伏応力および/または多孔質支持層構造体から製造される結果としての電極の降伏応力は、少なくとも約200ニュートン/cm²、少なくとも約350ニュートン/cm²、または少なくとも約500ニュートン/cm²となり得る。

【0084】

本明細書に記載されている異方性の力は、当該分野で公知のいかなる方法を使用し印加されてもよい。態様によっては、力は圧縮パネを使用して印加してもよい。力は、それらに限定されるものではないが、ベルヴィルワッシャー（Bellville washer）、機械ネジ、空気圧装置、および/または重み、その他を含む（収納構造体の内部または外部の）他の要素を使用して印加してもよい。ケースによっては、セルは、それが収納構造体に挿入される前に予め圧縮されていてよく、該収納構造体に挿入されるや、それらが拡大し、セル上に最終的な力を作り出してもよい。このような力を印加する好適な方法は、例えば、Scordilis-Kelleyらの「電気化学セル内の力の印加（Application of Force in Electrochemical Cells）」との発明の名称を有し、2009年8月4日出願された合衆国特許出願第12/535,328号に詳細に記載され

ており、その全体を参考に本明細書に含むものである。

【0085】

本発明のいくつかの態様が本明細書において記述し説明されている一方で、当業者は、機能を実行する、および/または結果および/または本明細書に記載されている1以上の利点を得る多くの他の意味および/または構造を難なく思い描くであろう。そして、各々のそのような変形および/または改善は、本発明の範囲内にあるとみなされる。より一般的には、当業者は、本明細書に記載されている、パラメーター、寸法、材料、および構成は、模範的なものであること意味していること、そして、実際のパラメーター、寸法、材料、および/または構成は、特定の利用、または本発明の教示が使用される応用に依存しているということを正しく認識するであろう。当業者は、ルーチン実験だけで、本明細書に記載されている本発明の特定の態様と同等の多くのものを、認識あるいは確認することができるであろう。それゆえ、前述の態様は、例示の目的のみで提供されているということ、添付のクレームおよびそれと同等のものの範囲内で、特別に記載され、クレームされているようなこととは別のやり方で発明が実施されてもよいということが理解されるべきである。本発明は、本明細書に記載されている、各々個々の特性、システム、物品、材料、キット、および/または方法に向けられている。加えて、このような特性、システム、物品、材料、キット、および/または方法の2以上のいかなる組合せも、このような特性、システム、物品、材料、キット、および/または方法が、相互に矛盾していなければ、本発明の範囲に含まれる。

【0086】

本明細書および特許請求の範囲に使用されている、不確定な冠詞「a」、「an」は、明確に異なるものとして指摘されていなければ、「少なくとも1つ」を意味しているということを理解すべきである。本明細書および特許請求の範囲に使用されている句「および/または」は、等位接続されている要素、すなわち、いくつかのケースにおいて接続的に、他のケースにおいて離接的に存在する要素の「いずれかまたは両者」を意味しているということを理解すべきである。他の要素は所望により、「および/または」節で特別に区別されている要素以外で存在してもよく、明確に異なるものとして指摘されていなければ、特別に区別されるそれらの要素に関連しているか、または関連していないかである。それ故、非限定的例として、「Aおよび/またはB」の指示対象は、「含有する(comprising)」等のオープンエンド(open-ended)な言語との関連で使用されているとき、1つの態様においては、Bの無いA(所望によりB以外の要素を含んで)；別の態様においては、Aの無いB(所望によりA以外の要素を含んで)；さらに他の態様においては、AとBの両者(所望により他の要素を含んで)等のことを言っている。

【0087】

明細書および特許請求の範囲に使用されている、「または(or)」は、上記で定義されたような、「および/または」と同じ意味を有していると理解されるべきである。例えば、リスト中で品目を分けているとき、「または」または「および/または」は、両立的であるとして、すなわち、少なくとも1つを含んでいることとして、または、数多くの要素または要素のリスト、および所望によりリストに挙げられていない更なる品目から1つを超えて含んでいるものとして解釈される。「~の1つのみ(only one of)」または「正確に~の1つ(exactly one of)」または特許請求の範囲使用されているとき、「~のみからなる(consisting of)」等の異なるものとして明らかに指摘されている用語のみが、多くの要素または要素のリストの中の正確に一つだけを含んでいることを言っているものである。一般に、本明細書に使用されている、用語「または(or)」は、「どちらか一方の(either)」、「~の1つ(one of)」、「~の1つのみ(only one of)」または「正確に~の1つ(exactly one of)」等の排他性の用語が先行するとき、排他的な選択肢(すなわち、「一方またはその他方、両方ではない」としてだけで解釈されるべきである。「本質的に~のみからなる(consisting essentially of)」は、特許請求の範囲で使用されているとき、特許法の分野で使用されている通常の意味を有している。

【0088】

明細書および特許請求の範囲に使用されている、「少なくとも1つ(at least one)」という句は、1以上の要素のリストに関して、要素のリストにおけるどれか1つまたはより多くの要素から選択される少なくとも1つの要素を意味していると理解されるべきであり、必ずしも、要素のリスト内に特定されてリストに列挙されている各々の要素およびすべての要素の少なくとも1つを含んでいるわけではなく、要素のリストにおける要素のいかなる組合せをも排除しているものではない。この定義は、明確に定義されている要素に関連していようがいまいが、「少なくとも1つ」という句が言及している要素のリスト内に明確に特定されている要素以外の要素が所望により存在してもよいということも受け入れるものである。それ故、非限定的例としては、「AおよびBの少なくとも1つ」（または、同様な意味合いで、「AまたはBの少なくとも1つ」、または、同様な意味合いで、「Aおよび/またはBの少なくとも1つ」）は、1つの態様において、Bは存在せず（所望により、B以外の要素を含んでいてもよい）、所望により1つを超えて含んでもよい、少なくとも1つのA；他の態様においては、Aは存在せず（所望により、A以外の要素を含んでいてもよい）、所望により1つを超えて含んでもよい、少なくとも1つのB；さらに別の態様において、所望により1つを超えて含んでもよい、少なくとも1つのA、および所望により1つを超えて含んでもよい、少なくとも1つのB（そして、所望により他の要素を含んでいてもよい）；等に言及し得る。

10

【0089】

明細書並びに特許請求の範囲においては、「～からなる (comprising)」、「～を包含する (including)」、「～を持っている (carrying)」、「～を有している (having)」、「～を含有している (containing)」、「～を含んでいる (involving)」、「[～を保持している (holding) 等のすべての移行句は、オープンエンドである、すなわち、限定せずに包含していることを意味していると理解されるべきものである。「～のみからなる (consisting of)」および「本質的に～のみからなる (consisting essentially of)」という移行句だけは、合衆国特許庁特許審査手順マニュアル (MPEP)、第2111.03セクションにのべられているように、それぞれ、クローズまたは半クローズの移行句となるものである。

20

【図 1 A】

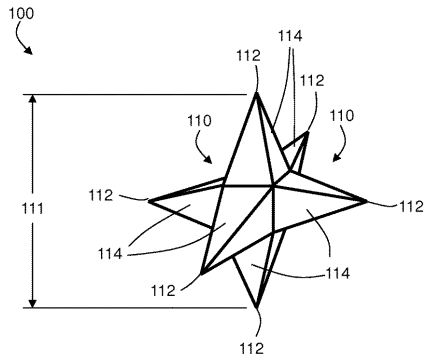


FIG. 1A

【図 1 B】

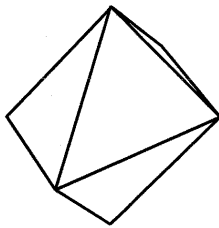


FIG. 1B

【図 2 C】

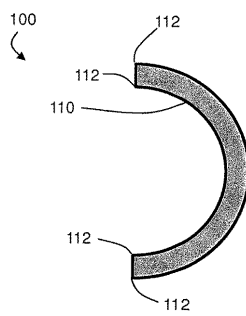


FIG. 2C

【図 2 D】

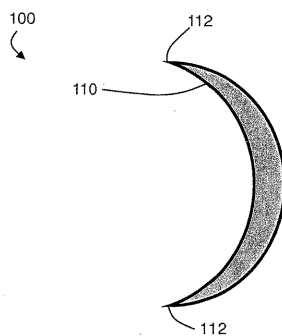


FIG. 2D

【図 2 A】

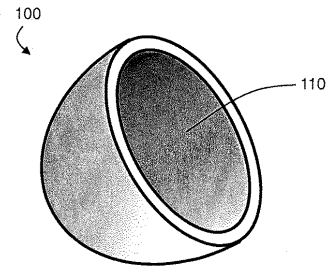


FIG. 2A

【図 2 B】

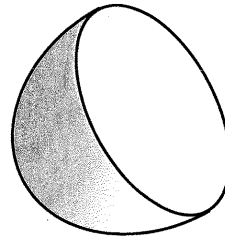


FIG. 2B

【図 3】

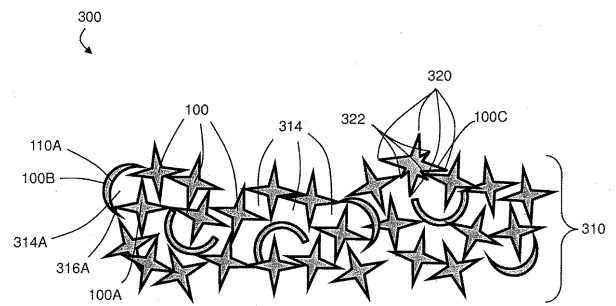


FIG. 3

【図 4 A】

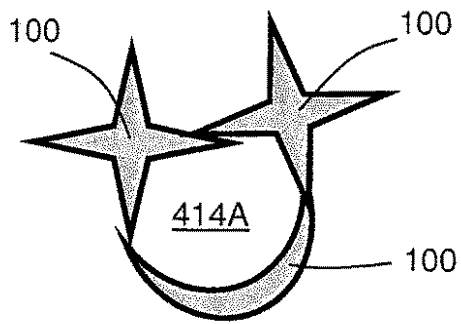


FIG. 4A

【図 4 B】

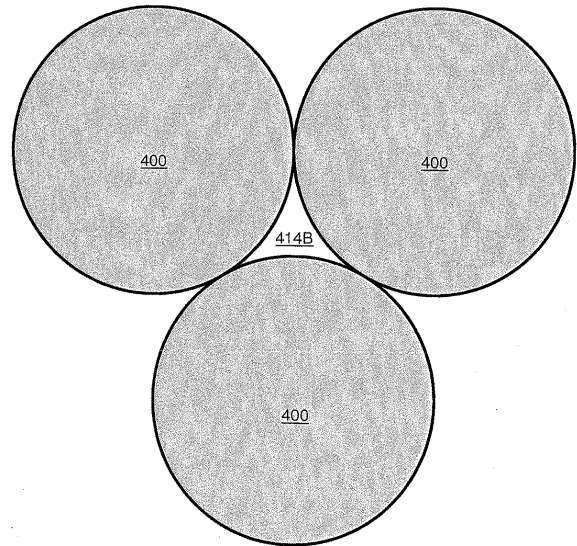


FIG. 4B

【図 5】

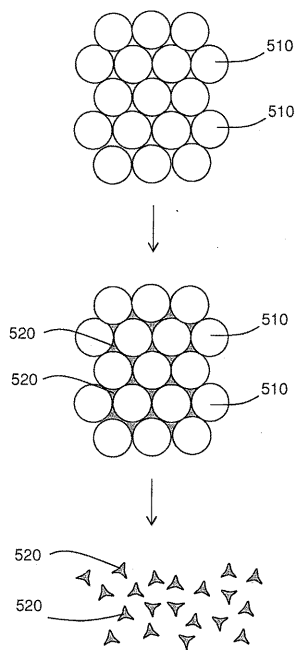


FIG. 5

【図 6】

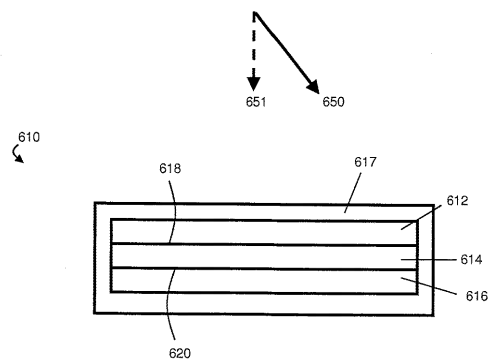


FIG. 6

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No
PCT/EP2013/076066

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER INV. H01M4/62 H01M4/66 H01M4/70 H01M4/78 H01M4/58 H01M10/052 ADD. 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) H01M Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) EPO-Internal, WPI Data		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2011/117359 A1 (DE SANTOS AVILA JUAN M [US] ET AL) 19 May 2011 (2011-05-19) abstract; figures 1-6d paragraph [0004] - paragraph [0035] -----	1-15
A	GB 2 483 372 A (NEXEON LTD [GB]) 7 March 2012 (2012-03-07) abstract; figures 2c-3b page 16, line 28 - page 27, line 17 ----- -/--	1-15
☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☒ See patent family annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of 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 26 March 2014		Date of mailing of the international search report 04/04/2014
Name and mailing address of the ISA/ European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer Pipoli, Tiziana

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/EP2013/076066

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	CLINE BARCHASZ ET AL: "Novel positive electrode architecture for rechargeable lithium/sulfur batteries", JOURNAL OF POWER SOURCES, ELSEVIER SA, CH, vol. 211, 18 March 2012 (2012-03-18), pages 19-26, XP028508405, ISSN: 0378-7753, DOI: 10.1016/J.JPOWSOUR.2012.03.062 [retrieved on 2012-04-10] abstract page 20, left-hand column, line 17 - page 26, left-hand column, line 18 -----	1-15
A	US 2010/035128 A1 (SCORDILIS-KELLEY CHARICLEA [US] ET AL) 11 February 2010 (2010-02-11) cited in the application the whole document -----	1-15
A	EP 1 427 039 A2 (SAMSUNG SDI CO LTD [KR]) 9 June 2004 (2004-06-09) abstract claims 1-20 -----	1-15
A	US 2009/291368 A1 (NEWMAN ARON [US] ET AL) 26 November 2009 (2009-11-26) abstract; figures 1-3 -----	1-15

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2013/076066

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2011117359	A1	19-05-2011	AU 2009238308 A1 02-06-2011
			CA 2686072 A1 16-05-2011
			US 2011117359 A1 19-05-2011

GB 2483372	A	07-03-2012	CA 2810123 A1 08-03-2012
			CN 103313937 A 18-09-2013
			EP 2611732 A1 10-07-2013
			GB 2483372 A 07-03-2012
			JP 2013538777 A 17-10-2013
			KR 20130067298 A 21-06-2013
			SG 187988 A1 30-04-2013
			TW 201228080 A 01-07-2012
			US 2013216907 A1 22-08-2013
			WO 2012028857 A1 08-03-2012

US 2010035128	A1	11-02-2010	CN 102144324 A 03-08-2011
			EP 2324526 A1 25-05-2011
			EP 2365566 A1 14-09-2011
			EP 2669975 A1 04-12-2013
			JP 2011530784 A 22-12-2011
			KR 20110052594 A 18-05-2011
			US 2010035128 A1 11-02-2010
			WO 2010016881 A1 11-02-2010

EP 1427039	A2	09-06-2004	CN 1485941 A 31-03-2004
			EP 1427039 A2 09-06-2004
			JP 2004119367 A 15-04-2004
			KR 20040026207 A 30-03-2004
			US 2004058246 A1 25-03-2004

US 2009291368	A1	26-11-2009	NONE

フロントページの続き

(51)Int.Cl.	F I			テーマコード (参考)		
H 0 1 M 4/38 (2006.01)	H 0 1 M	4/38		Z		
H 0 1 M 4/60 (2006.01)	H 0 1 M	4/60				
H 0 1 M 4/58 (2010.01)	H 0 1 M	4/58				
H 0 1 M 10/052 (2010.01)	H 0 1 M	10/052				
H 0 1 M 6/14 (2006.01)	H 0 1 M	6/14		Z		

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

(74)代理人 100103115

弁理士 北原 康廣

(72)発明者 リュディガー・シュミット

ドイツ 6 7 0 6 3 ルートヴィヒスハーフェン、ラインフェルトシュトラッセ 6 1 番

(72)発明者 ハイノ・ゾンマー

ドイツ 7 6 3 4 4 エッゲンシュタイン - レオポルトシャーフェン、デン・ハーガー・シュトラッセ 3 番

(72)発明者 ヤン・トムフォルデ

ドイツ 6 7 1 1 7 リンブルガーホーフ、ケノーファー・シュトラッセ 6 番

(72)発明者 アレクサンダー・パンチェンコ

ドイツ 6 7 0 7 1 ルートヴィヒスハーフェン、アルベルト - ハウアイゼン - リング 1 7 番

(72)発明者 ホルガー・シュナイダー

アメリカ合衆国 0 8 3 3 0 ニュージャージー州イズリン、ターンパイク、ミドルセックス / エセックス 2 5 番

(72)発明者 クラウス・ライトナー

ドイツ 6 7 0 5 9 ルートヴィヒスハーフェン、ダンツィガー・ブラッツ 3 番

(72)発明者 チャリクリー・スコルディリス - ケリー

アメリカ合衆国 8 5 7 4 8 アリゾナ州ツーソン、イースト・ワイルドファイア・ドライブ 1 0 5 4 1 番

(72)発明者 トレイシー・ケリー

アメリカ合衆国 8 5 7 4 8 アリゾナ州ツーソン、イースト・ワイルドファイア・ドライブ 1 0 5 4 1 番

(72)発明者 サバナ・バーンサイド

アメリカ合衆国 8 5 7 1 9 アリゾナ州ツーソン、イースト・フィフス・ストリート 7 3 9 番、ユニット 2

F ターム(参考) 5H017 AA03 CC25 DD08 EE01 EE06 EE07 EE09 HH00 HH02 HH03
HH04 HH05 HH07
5H024 AA07 AA11 AA12 CC07 DD15 DD17 EE01 EE03 HH00 HH13
HH15 HH17
5H029 AJ02 AJ06 AK05 AK15 AK16 AL11 AL12 AL13 BJ02 BJ12
DJ08 DJ13 DJ16 EJ01 EJ04 EJ06 EJ08 EJ12 HJ00 HJ06
HJ07 HJ09 HJ12 HJ15
5H050 AA02 AA12 BA01 BA08 BA16 BA17 CA11 CA20 CA26 CB11

CB12	DA10	DA12	EA02	EA08	EA13	EA14	EA23	FA13	FA17
HA00	HA06	HA07	HA09	HA12	HA15				