(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
2014 年 4 月 10 日(10.04.2014)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2014/054617 A1

(51) 国際特許分類:
H01M 4/13 (2010.01) *H01M 4/58* (2010.01)
H01M 4/139 (2010.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2013/076663

(22) 国際出願日: 2013 年 10 月 1 日(01.10.2013)

(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 2012-223346 2012 年 10 月 5 日(05.10.2012) JP

(71) 出願人: シャープ株式会社(SHARP KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒5458522 大阪府大阪市阿倍野区長池町２２番２２号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 西島 主明(NISHIJIMA, Motoaki). 西村 直人(NISHIMURA, Naoto). 松山 貴洋(MATSUYAMA, Takahiro). 内海 久幸(UTSUMI, Hisayuki). 浅子 功(ASAKO, Isao). 西中 俊平(NISHINAKA, Shumpei). 有馬 智史(ARIMA, Satoshi).

(74) 代理人: 鮫島 睦, 外(SAMEJIMA, Mutsumi et al.); 〒5300017 大阪府大阪市北区角田町８番１号梅田阪急ビルオフィスタワー青山特許事務所 Osaka (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, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, 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, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

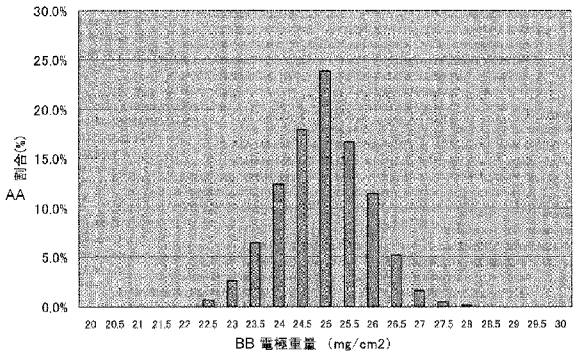
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) **Title**: NON-AQUEOUS ELECTROLYTE SECONDARY BATTERY AND METHOD FOR PRODUCING SAME

(54) 発明の名称 : 非水電解液二次電池およびその製造方法

[図1]



AA Ratio (%)
BB Weight of electrode (mg/cm2)

(57) **Abstract**: A non-aqueous electrolyte secondary battery according to the present invention is equipped with an electrode produced by applying a paste, which is prepared by dispersing an active material, a conductive material and a binder in a solvent, onto one surface or both surfaces of a current collector, and has at least one higher-density region in which the application amount of the active material falls within the range from +5 to +10% of the average application amount of the active material per unit area of the one surface or the both surfaces of the current collector and also has at least one lower-density region in which the application amount of the active material falls within the range from -5 to -10% of the above-mentioned average application amount of the active material. Provided are: a non-aqueous electrolyte secondary battery, in which the increase in internal resistance can be prevented even when the thickness of a coating film is increased, and which has an excellent rate property; and a method for producing the non-aqueous electrolyte secondary battery.

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2014/054617 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

本発明の非水電解質二次電池は、活物質と、導電材と、バインダーを溶媒に分散したペーストを集電体の片面または両面に塗布して形成してなる電極を有し、集電体の片面または両面の単位面積当たりの活物質平均塗布量の＋５～＋１０%の活物質塗布量を有する１つまたは複数の高密度領域と、該活物質平均塗布量の－５～－１０%の活物質塗布量を有する１つまたは複数の低密度領域とを有する。塗膜の厚さを厚くしても電池の内部抵抗の増加を抑制することが可能で、優れたレート特性を有する非水電解液二次電池およびその製造方法を提供する。

明　細　書

発明の名称 ： 非水電解液二次電池およびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、優れたレート特性を有する非水電解液二次電池およびその製造方法に関する。

背景技術

[0002] 非水電解質二次電池として、リチウム二次電池が実用化されており、広く普及している。更に近年、リチウム二次電池は、ポータブル電子機器用の小型のものだけでなく、車載用、あるいは太陽光発電システム用や夜間電力貯蔵用等の電力貯蔵用の大容量のデバイスとしても注目されている。そのため、安全性やコスト、寿命等の要求がより高くなっている。

[0003] 二次電池の電極（正極および負極）は、活物質とバインダーを含むペーストを長尺状の金属箔等の集電体の片面または両面に塗布することにより塗膜を形成し、該塗膜を乾燥し、次いで乾燥した該塗膜をプレスして巻き取った後、必要に応じて所定幅あるいは所定長さに切断することにより製造されている（例えば、特許文献１）。製造された電極はセパレータを介して積層され、短冊状または巻回状の積層体とされた後、電池容器の中に挿入されている。また、ペーストには、必要に応じて導電材が添加されている。

[0004] この従来の製造方法を電力貯蔵用の大容量の二次電池に適用しようとすると大容量を確保するためには、積層数あるいは巻回数を増加させる必要があり、その結果、集電体やセパレータを大量に使用することになり、製造コストが増加するという問題がある。

[0005] これに対し、塗膜の厚さを厚くして活物質量を増やせば、より少ない積層数あるいは巻回数で積層体を製造することができ、集電体やセパレータの数量を削減できるので、製造コストの低減を図ることができる。しかしながら、塗膜の厚さを厚くするにつれて、電解液が電極に染み込みにくくなり、電極の抵抗が増加する。また、移動距離が長くなることによりリチウムの拡散

抵抗が増加する。そのため、電池の内部抵抗が増加して、レート特性の低下を招くという問題がある。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開平１１－３２９４１７号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] 本発明の目的は上記の問題を解決し、塗膜の厚さを厚くしても電池の内部抵抗の増加を抑制することが可能で、優れたレート特性を有する非水電解液二次電池およびその製造方法を提供することを目的とした。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは上記の課題を解決すべく鋭意努力した結果、電極塗膜作製時の活物質塗布量の面方向の分布を制御することにより、電池の内部抵抗の増加を抑制することが可能であることを見出して本発明を完成させたものである。

すなわち、本発明の非水電解液二次電池は、活物質と、導電材と、バインダーを溶媒に分散したペーストを集電体の片面または両面に塗布して形成してなる電極を有する非水電解質二次電池であって、上記集電体の片面または両面の単位面積当たりの活物質平均塗布量の＋５～＋２０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の高密度領域と、該活物質平均塗布量の－５～－２０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の低密度領域とを有することを特徴とする。

[0009] また、本発明の非水電解質二次電池の製造方法は、活物質と、導電材と、バインダーを溶媒に分散したペーストを集電体の片面または両面に塗布して電極を形成する非水電解質二次電池の製造方法であって、上記集電体の片面または両面の単位面積当たりの活物質平均塗布量の＋５～＋２０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の高密度領域と、該活物質平均塗布量の－５

～－２０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の低密度領域とを形成することを特徴とする。

発明の効果

[0010] 本発明によれば、塗膜の厚さを厚くしても電池の内部抵抗の増加を抑制することが可能で、優れたレート特性を有する非水電解液二次電池およびその製造方法を提供することが可能となる。

図面の簡単な説明

[0011] [図1]実施例１の電極重量の分布を示す図である。

[図2]実施例２の電極重量の分布を示す図である。

[図3]実施例３の電極重量の分布を示す図である。

[図4]実施例４の電極重量の分布を示す図である。

[図5]実施例５の電極重量の分布を示す図である。

[図6]比較例１の電極重量の分布を示す図である。

[図7]比較例２の電極重量の分布を示す図である。

[図8]比較例３の電極重量の分布を示す図である。

発明を実施するための形態

[0012] 以下、本発明の実施の形態について説明する。

本発明の本発明の非水電解液二次電池は、活物質と、導電材と、バインダーを溶媒に分散したペーストを集電体の片面または両面に塗布して形成してなる電極を有する非水電解質二次電池であって、上記集電体の片面または両面の単位面積当たりの活物質平均塗布量の＋５～＋２０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の高密度領域と、該活物質平均塗布量の－５～－２０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の低密度領域とを有することを特徴とするものである。

[0013] 本発明に用いる電極の塗膜の厚さは、従来のポータブル電子機器用の小型のリチウム二次電池の場合の塗膜の厚さよりも大きければ特に限定されるものではない。正極の場合、活物質塗布量を用いて表すと、好ましくは集電体の単位面積当たりに対する片面塗布量が１０ｍｇ／ｃｍ^{2}以上、より好ましく

は１５ｍｇ／ｃｍ^{2}以上、更に好ましくは１５～３０ｍｇ／ｃｍ^{2}である。片面塗布量が１０ｍｇ／ｃｍ^{2}より小さい電極では、電池に使用する電極枚数が増大し、セパレータや集電体の枚数が増え、電池の製造コストが上昇するため好ましくない。また、負極の場合、活物質塗布量を用いて表すと、好ましくは集電体に対する片面塗布量が５ｍｇ／ｃｍ^{2}以上、より好ましくは１０ｍｇ／ｃｍ^{2}以上、更に好ましくは１０～２０ｍｇ／ｃｍ^{2}である。負極の場合も、片面塗布量が５ｍｇ／ｃｍ^{2}より小さい電極では、電池に使用する電極枚数が増大し、セパレータや集電体の枚数が増え、電池の製造コストが上昇するため好ましくない。なお、両面塗布の場合、塗布量は片面塗布量の２倍の値を用いる。正極の場合、両面塗布量は、集電体の単位面積当たり２０ｍｇ／ｃｍ^{2}以上、より好ましくは３０ｍｇ／ｃｍ^{2}以上、更に好ましくは３０～６０ｍｇ／ｃｍ^{2}である。また、負極の場合、両面塗布量は１０ｍｇ／ｃｍ^{2}以上、より好ましくは２０ｍｇ／ｃｍ^{2}以上、更に好ましくは２０～４０ｍｇ／ｃｍ^{2}である。

[0014] 本発明においては、高密度領域が活物質平均塗布量の＋５～＋２０％、好ましくは＋５～＋１０％の活物質塗布量を有し、低密度領域が活物質平均塗布量の－５～－２０％、好ましくは－５～－１０％の活物質塗布量を有する。高密度領域の活物質塗布量が活物質平均塗布量の＋２０％より多く、低密度領域の活物質塗布量が活物質平均塗布量の－２０％より少ないと、正極と負極の容量バランスの設計値からの乖離が大きくなり、正極が部分的に過充電されたり、負極上に金属リチウムが析出する等の問題が生じる。また、高密度領域の活物質塗布量が活物質平均塗布量の＋５％より少なく、低密度領域の活物質塗布量が活物質平均塗布量の－５％より多いと、電解液が染み込みにくくなるので好ましくない。

[0015] また、本発明においては、高密度領域と低密度領域の総和が、集電体の片面面積の少なくとも９０％、好ましくは少なくとも９５％であり、かつ活物質平均塗布量の＋５％から＋１０％の領域と－５％から－１０％までの和が１０％以上かつ３５％以下であることが好ましい。活物質平均塗布量の＋５

％から＋１０％の領域と－５％から－１０％までの和が１０％以下の場合、電解液が染み込みにくくなるので好ましくない。活物質平均塗布量の＋５％から＋１０％の領域と－５％から－１０％までの和が３５％を越える場合、あるいは、高密度領域と低密度領域の総和が９０％より小さい場合、正極と負極の容量バランスがずれて、極が部分的に過充電されたり、負極上に金属リチウムが析出するため、好ましくない。なお、高密度領域と低密度領域以外の領域は活物質平均塗布量を有する領域（以下、平均密度領域ともいう）である。両面塗布の場合も、集電体の両面面積の少なくとも９０％、好ましくは少なくとも９５％であり、かつ活物質平均塗布量の＋５％から＋１０％の領域と－５％から－１０％までの和が１０％以上かつ３５％以下であることが好ましい。

[0016] 本発明において、高密度領域と低密度領域を測定する方法としては、集電体の片面の単位面積当たりの活物質塗布量を測定できる方法であれば特に限定されない。例えば、１ｃｍ^{2}の面積を有するセクションが得られるように塗膜をカットし、各セクションの重量を測定し、ペーストの仕込み比率から活物質量を算出して各セクション毎の活物質量（ｍｇ／ｃｍ^2）とする。活物質平均塗布量は、全セクションの活物質塗布量の総和を集電体の片面の面積で割って算出する。なお、両面塗布の場合の活物質平均塗布量は、片面で求めた活物質平均塗布量の２倍の値を用いる。

[0017] また、本発明においては、高密度領域と低密度領域の配置は特に限定されない。高密度領域と低密度領域が面方向で隣接していてもよく、また、平均密度領域を介して面方向で離間していてもよい。また、１つの高密度領域の中に複数の低密度領域が分散した配置でもよく、あるいは逆に１つの低密度領域の中に複数の高密度領域が分散した配置でもよい。好ましくは、複数の高密度領域と複数の低密度領域が存在し、各高密度領域と各低密度領域とが面方向に交互に隣接する配置である。各高密度領域と各低密度領域とが面方向に交互に隣接する配置の場合、高密度領域間のピッチと低密度領域間のピッチは同じであっても異なっていてもよい。

[0018] また、本発明において、高密度領域と低密度領域の形状は、高密度領域と低密度領域の総和が、集電体の片面または両面の面積の少なくとも９０％、好ましくは少なくとも９５％であり、かつ活物質平均塗布量の＋５％から＋１０％の領域と－５％から－１０％までの和が１０％以上かつ３５％以下となるような形状であれば特に限定されない。平面視で円、矩形、三角形、多角形、短冊状あるいは不定形でもよい。

[0019] 本発明に用いる電極は、種々の方法を用いて製造することができる。例えば、塗布装置のコーティングロールの回転速度を周期的に変化させることにより、塗布量を周期的に変化させることができる。すなわち、高速回転時には塗布量が減少し低密度領域が形成され、低速回転時には塗布量が増加して高密度領域が形成される。また、コーティングロールの回転速度の周期を選択することにより、高密度領域間のピッチと低密度領域間のピッチを所望の値に設定することができる。また、コーティングロールそのものに凹凸を設けることで高密度領域と低密度領域を作製することもできる。あるいは、ペースト塗布後、波型等を有するブレードを用いて、塗布されたペーストの一部を剥ぎ取っても良い。また、濃度や粘度の異なる二種類のペーストを完全に均一とならないように混合して塗布しても良い。

[0020] （正極）

本発明に用いる正極活物質は、リチウム二次電池に代表される非水電解質二次電池に使用されているものであれば特に限定することなく用いることができる。そのような正極活物質としてはリチウム含有複合金属酸化物を挙げることができ、具体例としては、$LiCoO_2$、$LiNiO_2$、$LiFeO_2$、$LiMnO_2$、$LiMn_2O_4$、Li_2MnO_3、$LiCoPO_4$、$LiNiPO_4$、$LiMnPO_4$、$LiFePO_4$を挙げることができる。好ましくは、$LiFePO_4$（リン酸鉄リチウム）である。安全性が高く、低コストであるからである。なお、リン酸鉄リチウムには、鉄サイトとリンサイトを異種元素で置換した化合物も含まれる。鉄サイトの置換元素としては、Ｚｒ、Ｓｎ、ＹおよびＡｌからなる群から選択される少なくとも１種の金属元素を挙げるこ

とができ、またリンサイトの置換元素としてはＳｉを挙げることができる。

[0021] 導電材としては、アセチレンブラック、カーボンブラック、天然黒鉛、人造黒鉛等を１種または２種以上混合して用いることができる。

[0022] また、塗膜中に含まれる正極活物質と導電材の割合は、正極活物質１００重量部に対して、導電材が２～２０重量部、好ましくは４～１０重量部である。導電材が２重量部よりも少ないと、正極活物質と集電体の間の接触抵抗が大きくなり好ましくない。また、導電材を２０重量部よりも多くしても添加量に見合う接触抵抗低減の効果が得られず、またコストが増加するので好ましくない。

[0023] また、バインダーには、ポリテトラフルオロエチレン、ポリビニリデンフルオライド、ポリビニルクロライド、エチレンプロピレンジエンポリマー、スチレンーブタジエンゴム、アクリロニトリルーブタジエンゴム、フッ素ゴム、ポリ酢酸ビニル、ポリメチルメタクリレート、ポリエチレン、ニトロセルロース、スチレンーブタジエンゴム等、あるいは水系バインダーエマルジョンとして、フッ素変性スチレンーブタジエンゴム、オレフィン系共重合体、酸変性オレフィン系共重合体などを挙げることができる。水系バインダーエマルジョンを用いる場合、必要に応じてカルボキシメチルセルロース、ポリビニルアルコール、ポリビニルピロリドン等の増粘材を使用することもできる。

[0024] （正極の製造方法）

正極は、少なくとも、正極活物質と導電材とバインダーと増粘材とを溶媒を用いて混練分散してペーストを得、該ペーストを集電体の片面あるいは両面に塗布し、乾燥することによって作製する。溶媒には、有機溶剤としては、Ｎーメチルー２ーピロリドン、トルエン、シクロヘキサン、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、メチルエチルケトン、酢酸メチル、アクリル酸メチル、ジエチルトリアミン、Ｎ，Ｎージメチルアミノプロピルアミン、エチレンオキシド、テトラヒドロフラン等を用いることができる。バインダーに水溶性のものを使用する場合は溶媒として水を用いることもできる

。

[0025] 集電体としては、連続孔を持つ発泡（多孔質）金属、ハニカム状に形成された金属、焼結金属、エキスパンドメタル、不織布、板、孔開きの板、金属箔等を用いることができる。

[0026] （負極）

負極は公知の方法により作製できる。例えば、負極活物質とバインダーと導電材とを混合し、得られた混合粉末をシート状に成形し、得られた成形体を集電体、例えばステンレスまたは銅製のメッシュ状集電体に圧着して作製できる。また、正極の場合と同様に水ペーストを用いて作製することができ、その場合、少なくとも、負極活物質と導電材とバインダーとを水を用いて混練分散してペーストを得、該ペーストを集電体に塗布することによって作製できる。必要に応じて、導電材を添加してもよい。

[0027] 負極活物質としては公知の材料を用いることができる。高エネルギー密度電池を構成するためには、リチウムの挿入／脱離する電位が金属リチウムの析出／溶解電位に近いものが好ましい。その典型例は、粒子状（鱗片状、塊状、繊維状、ウィスカー状、球状、粉砕粒子状等）の天然もしくは人造黒鉛のような炭素材料である。

[0028] 人造黒鉛としては、メソカーボンマイクロビーズ、メソフェーズピッチ粉末、等方性ピッチ粉末等を黒鉛化して得られる黒鉛を挙げることができる。また、非晶質炭素を表面に付着させた黒鉛粒子も使用できる。これらの中で、天然黒鉛は、安価でかつリチウムの酸化還元電位に近く、高エネルギー密度電池が構成できるため好ましい。

[0029] また、リチウム遷移金属酸化物、リチウム遷移金属窒化物、遷移金属酸化物、酸化シリコン等も負極活物質として使用可能である。これらの中では、$Li_4Ti_5O_{12}$は電位の平坦性が高く、かつ充放電による体積変化が小さいため好ましい。

[0030] （負極の製造方法）

負極は、少なくとも、負極活物質と導電材とバインダーと増粘材とを溶媒

を用いて混練分散してペーストを得、該ペーストを集電体の片面あるいは両面に塗布し、乾燥することによって作製する。溶媒には、有機溶剤としては、Ｎ－メチル－２－ピロリドン、トルエン、シクロヘキサン、ジメチルホルムアミド、ジメチルアセトアミド、メチルエチルケトン、酢酸メチル、アクリル酸メチル、ジエチルトリアミン、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノプロピルアミン、エチレンオキシド、テトラヒドロフラン等を用いることができる。バインダーに水溶性のものを使用する場合は溶媒として水を用いることもできる。溶媒に水を使用する場合には、結着材にスチレン-ブタジエンゴムの水性エマルジョンや、カルボキシメチルセルロースなどの増粘材を使用することもできる。

[0031] （非水電解質）

非水電解質としては、例えば、有機電解液、ゲル状電解質、高分子固体電解質、無機固体電解質、溶融塩等を用いることができる。

[0032] 有機電解液を構成する有機溶媒としては、プロピレンカーボネート（ＰＣ）、エチレンカーボネート（ＥＣ）、ブチレンカーボネート等の環状カーボネート類、ジメチルカーボネート（ＤＭＣ）、ジエチルカーボネート（ＤＥＣ）、エチルメチルカーボネート、ジプロピルカーボネート等の鎖状カーボネート類、γ－ブチロラクトン（ＧＢＬ）、γ－バレロラクトン等のラクトン類、テトラヒドロフラン、２－メチルテトラヒドロフラン等のフラン類、ジエチルエーテル、１，２－ジメトキシエタン、１，２－ジエトキシエタン、エトキシメトキシエタン、ジオキサン等のエーテル類、ジメチルスルホキシド、スルホラン、メチルスルホラン、アセトニトリル、ギ酸メチル、酢酸メチル等を挙げることができ、これらの１種以上を混合して用いることができる。

[0033] また、ＰＣ、ＥＣ及びブチレンカーボネート等の環状カーボネート類は高沸点溶媒であるため、ＧＢＬと混合する溶媒として好適である。

[0034] 有機電解液を構成する電解質塩としては、ホウフッ化リチウム（$LiBF_4$）、六フッ化リン酸リチウム（$LiPF_6$）、トリフルオロメタンスルホン酸

リチウム（ＬｉＣＦ$_3$ＳＯ$_3$）、トリフルオロ酢酸リチウム（ＬｉＣＦ$_3$ＣＯＯ）、リチウムビス（トリフルオロメタンスルホン）イミド（ＬｉＮ（ＣＦ$_3$ＳＯ$_2$）$_2$）等のリチウム塩を挙げることができ、これらの１種以上を混合して用いることができる。電解液の塩濃度は、０．５～３ｍｏｌ／Ｌが好適である。

[0035]（セパレータ）

セパレータとしては、多孔質材料や不織布等の公知の材料を用いることができる。セパレータの材質としては、電解液中の有機溶媒に対して溶解したり膨潤したりしないものが好ましい。具体的には、ポリエステル系ポリマー、ポリオレフィン系ポリマー（例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン）、エーテル系ポリマー、ガラス繊維等を挙げることができる。

[0036]（他の部材）

電池容器のような他の部材についても公知の各種材料を使用でき、特に制限はない。

[0037]（二次電池の製造方法）

二次電池は、例えば、正極と負極と、それらの間に挟まれたセパレータとからなる積層体を備えている。積層体は、例えば短冊状の平面形状を有していてもよい。また、円筒型や扁平型の電池を作製する場合は、積層体を巻き取って巻回体としてもよい。

[0038] 積層体は、その１つ又は複数が電池容器の内部に挿入される。通常、正極及び負極は電池の外部導電端子に接続される。その後に、正極、負極及びセパレータを外気より遮断するために電池容器を密閉する。

[0039] 密封の方法は、円筒電池の場合、電池容器の開口部に樹脂製のパッキンを有する蓋をはめ込み、電池容器と蓋とをかしめる方法が一般的である。また、角型電池の場合、金属性の封口板と呼ばれる蓋を開口部に取りつけ、溶接を行う方法を使用できる。これらの方法以外に、結着剤で密封する方法、ガスケットを介してボルトで固定する方法も使用できる。更に、金属箔に熱可塑性樹脂を貼り付けたラミネート膜で密封する方法も使用できる。

なお、密封時に電解質注入用の開口部を設けてもよい。有機電解液を用いる場合、その開口部から有機電解液を注入し、その後でその開口部を封止する。封止の前に通電し発生したガスを取り除いてもよい。

実施例

[0040] 以下、実施例を用いて本発明をさらに詳細に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

[0041] 実施例１．

（正極の作製）

塗布用ペーストは以下の条件で作製した。平均粒径１０μｍの正極活物質（ＬｉＦｅＰＯ$_4$）１ｋｇ、導電材として電気化学工業社製アセチレンブラック１００ｇを計量し、容器の中で攪拌混合した。この混合粉体中に、株式会社クレハ製ＰＶｄＦ　７５ｇをＮＭＰ１．２ｋｇに溶解させた溶液を添加し、２軸の遊星式攪拌機にて２時間混合してペーストを得た。

[0042] このペーストを、圧延アルミニウム箔（厚さ：２０μｍ）上に塗布装置としてコーティングロールを用いて両面に塗布し、空気中１００℃で３０分間乾燥し、プレス加工して正極板（塗工面サイズ：３０ｃｍ（縦）×１５ｃｍ（横））を得た。コーティングロール（直径２０ｃｍ）の回転速度を、１／１０００の減速ギアで接続されたモータの回転数８００ｒｐｍと１２００ｒｐｍを０．５Ｈｚの周期で変動させることで、活物質塗布量の面方向の分布を変化させた。塗布後、塗膜の厚さが１４０μｍとなるように２軸ロールプレスにより塗膜をプレスした。

[0043] （負極の作製）

負極活物質粉末１０００ｇと、導電材粉末１００ｇと、バインダー５０ｇと、増粘材水溶液５０ｇと、イオン交換水１０００ｇとを２軸遊星プラネタリミキサー（プライミクス製）を用いて室温下で攪拌混練して水性ペーストを得た。

[0044] この水性ペーストを、圧延銅箔（厚さ：１０μｍ）上にダイコーターを用いて両面に塗布し、空気中１００℃で３０分間乾燥し、プレス加工して負極

板（塗工面サイズ：３０．４ｃｍ（縦）×１５．４ｃｍ（横））を得た。

[0045]（電池の作製）

作製した正極及び負極を１３０℃で２４ｈｒ減圧乾燥し、Ａｒ雰囲気下のグローブボックス中に入れた。以下の電池組み立ては全てそのグローブボックス内、室温下で行った。

負極の上に、ポリエチレン（ＰＥ）微多孔膜（３０．４ｃｍ（縦）×１５・４ｃｍ（横）×２５μｍ（厚）、空隙率：５５％）を載置し、その上に正極を重ね、またＰＥ微多孔膜を重ねる作業を繰り返して、負極６枚と正極５枚とそれぞれの極間にＰＥ微多孔膜を１０枚挟んだ積層体を作製した。負極６枚にＮｉリードを超音波溶接し、正極５枚からＡｌリードを超音波溶接し、Ａｌラミネート袋へ挿入し、３辺を熱融着した。エチレンカーボネート（ＥＣ）とジエチルカーボネート（ＤＥＣ）を、体積比１：２で混合した溶媒に１ｍｏｌ／ｌになるようにＬｉＰＦ$_6$を溶解させた電解液をセルへ注液し、それぞれのリードを取り出しつつ、Ａｌラミネート袋の最後の１辺を熱融着して電池を得た。

[0046]（電池の容量測定）

電池の容量は、０．１Ｃ定電流で３．６Ｖまで充電を行い、０．１Ｃ定電流で２Ｖまで放電を行って求めた（以下、０．１Ｃ容量という）。レート特性は、[（１．０Ｃ容量／０．１Ｃ容量）×１００（％）]で定義した。１．０Ｃ容量は、０．１Ｃ定電流で３．６Ｖまで充電を行い、１．０Ｃ定電流で２Ｖまで放電を行って求めた。０．１Ｃ容量は上記の方法で求めた。

[0047]（結果）

正極を各セクションの面積が１ｃｍ^{2}となるようにカットし、各セクションの重量を測定して、活物質塗布量の面方向の分布を求めた。図１は、電極重量の分布を示す図である。活物質平均塗布量は２５ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。活物質平均塗布量よりも４％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の７．４％、活物質平均塗布量よりも４％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の９．８％であった。活物質平均塗布量

よりも１０％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の０．２％、活物質平均塗布量よりも１０％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の０％であった。また、電池のレート特性は９５．２％であった。

[0048] 実施例２．

コーティングロールの回転数を周期的に変化させることに代えて、塗料の吐出される隙間を規制するためのブレードを、端面を±５０μｍ／１０ｍｍピッチの波状に加工した塗布装置を用いた以外は、実施例１と同様にして、正極を作製した。負極と電池の作製は実施例１と同様である。

[0049] （結果）

正極を各セクションの面積が１ｃｍ^{2}となるようにカットし、各セクションの重量を測定して、活物質塗布量の面方向の分布を求めた。図２は、電極重量の分布を示す図である。活物質平均塗布量は２５ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。活物質平均塗布量よりも４％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の１７．５％、活物質平均塗布量よりも４％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の１５．１％であった。活物質平均塗布量よりも１０％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の１．０％、活物質平均塗布量よりも１０％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の１．０％であった。また、電池のレート特性は９５．２％であった。

[0050] 実施例３．

粘度の異なる２種類の水性ペーストを以下の手順で作製した。

第一のペーストは実施例１と全く同じ手順で作製した。第二のペーストは以下の条件で作製した。平均粒径１０μｍの正極活物質（ＬｉＦｅＰＯ$_4$）１ｋｇ、導電材として電気化学工業社製アセチレンブラック　１００ｇを計量し、容器の中で攪拌混合した。この混合粉体中に、株式会社クレハ製ＰＶｄＦ７５ｇをＮＭＰ１．０ｋｇに溶解させた混合溶液を、２軸の遊星式攪拌機にて２時間混合を行った。これらの二つのペーストを２軸の混連装置にて５

分間混合を行った。５分間の混合では、２種類のペーストが均一に混合しておらず、粘度の異なる２種類のペーストが混在している。

[0051] この作製したペーストを用い、コーティングロールの回転数を１０００ｒｐｍに固定した以外は実施例１と同様にして、正極を作製した。負極と電池の作製は実施例１と同様である。

[0052] （結果）

正極を各セクションの面積が１ｃｍ^{2}となるようにカットし、各セクションの重量を測定して、活物質塗布量の面方向の分布を求めた。図３は、電極重量の分布を示す図である。活物質平均塗布量は２５ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。活物質平均塗布量よりも４％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の５．６％、活物質平均塗布量よりも４％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の７．４％であった。活物質平均塗布量よりも１０％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の０％、活物質平均塗布量よりも１０％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の０％であった。また、電池のレート特性は９５．２％であった。

[0053] 実施例４．

コーティングロールの回転数を周期的に変化させることに代えて、塗料の吐出される隙間を規制するためのブレードを、箔の進行方向に対して右側を左側より１０μｍだけ間隔を広くした以外は、実施例１と同様にして、正極を作製した。負極と電池の作製は実施例１と同様である。

[0054] （結果）

正極を各セクションの面積が１ｃｍ^{2}となるようにカットし、各セクションの重量を測定して、活物質塗布量の面方向の分布を求めた。図４は、電極重量の分布を示す図である。活物質平均塗布量は２５ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。活物質平均塗布量よりも４％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の９％、活物質平均塗布量よりも４％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の４．７４％であった。活物質平均塗布量よ

りも１０％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の０．２％、活物質平均塗布量よりも１０％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の０．７％であった。また、電池のレート特性は９５．２％であった。

[0055] 実施例５．

（負極の作製）

負極活物質粉末１０００ｇと、導電材粉末１００ｇと、バインダー５０ｇと、増粘材水溶液５０ｇと、イオン交換水１０００ｇとを２軸遊星プラネタリミキサー（プライミクス製）を用いて室温下で攪拌混練して水性ペーストを得た。

この水性ペーストを、電解銅箔（厚さ：１２μｍ）上に塗布装置としてコーティングロールを用いて両面に塗布し、空気中１００℃で３０分間乾燥し、プレス加工して負極板（塗工面サイズ：３０ｃｍ（縦）×１５ｃｍ（横））を得た。コーティングロール（直径２０ｃｍ）の回転速度を、１／１０００の減速ギアで接続されたモータの回転数８００ｒｐｍと１２００ｒｐｍを０．５Ｈｚの周期で変動させることで、活物質塗布量の面方向の分布を変化させた。塗布後、塗膜の厚さが１４０μｍとなるように２軸ロールプレスにより塗膜をプレスした。

[0056] （結果）

負極を各セクションの面積が１ｃｍ^{2}となるようにカットし、各セクションの重量を測定して、活物質塗布量の面方向の分布を求めた。図５は、電極重量の分布を示す図である。活物質平均塗布量は１５ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。活物質平均塗布量よりも４％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の１８．９％、活物質平均塗布量よりも４％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の１１．１％であった。活物質平均塗布量よりも１０％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の０．５％、活物質平均塗布量よりも１０％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の０％であった。また、電池のレート特性は９

５．０％であった。

[0057] 比較例１．

粘度の異なる２種類の水性ペーストを２軸の混連装置で２４時間混練した以外は、実施例３と同様の方法で正極を作製した。負極と電池の作製は実施例１と同様である。

[0058] （結果）

正極を各セクションの面積が１ｃｍ^{2}となるようにカットし、各セクションの重量を測定して、活物質塗布量の面方向の分布を求めた。図６は、電極重量の分布を示す図である。活物質平均塗布量は２５ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。活物質平均塗布量よりも４％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の１．７％、活物質平均塗布量よりも４％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の１．７％であった。活物質平均塗布量よりも１０％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の０％、活物質平均塗布量よりも１０％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の０％であった。また、電池のレート特性は８８．３％であった。

[0059] 比較例２．

コーティングロールの回転速度を、モータの回転数５００ｒｐｍと１５００ｒｐｍを０．５Ｈｚの周期で変動させた以外は、実施例１と同様の方法で正極を作製した。負極と電池の作製は実施例１と同様である。

[0060] （結果）

正極を各セクションの面積が１ｃｍ^{2}となるようにカットし、各セクションの重量を測定して、活物質塗布量の面方向の分布を求めた。図７は、電極重量の分布を示す図である。活物質平均塗布量は２５ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。活物質平均塗布量よりも４％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の１５．４％、活物質平均塗布量よりも４％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の１５．１％であった。活物質平均塗布量よりも１０％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積

の７．３％、活物質平均塗布量よりも１０％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の４．６４％であった。また、電池のレート特性は８８．３％であった。また、数サイクル後に電池に短絡が生じた。

[0061] 比較例３．

コーティングロールの回転速度を、一定とした以外は、実施例１と同様の方法で正極を作製した。負極と電池の作製は実施例１と同様である。

[0062] （結果）

正極を各セクションの面積が１ｃｍ^{2}となるようにカットし、各セクションの重量を測定して、活物質塗布量の面方向の分布を求めた。図８は、電極重量の分布を示す図である。活物質平均塗布量は２５ｍｇ／ｃｍ^{2}であった。活物質平均塗布量よりも４％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の０．２％、活物質平均塗布量よりも４％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の０．２％であった。活物質平均塗布量よりも１０％多い活物質塗布量を有する高密度領域が集電体の両面面積の０％、活物質平均塗布量よりも１０％少ない活物質塗布量を有する低密度領域が集電体の両面面積の０％であった。また、電池のレート特性は８６．３％であった。また、数サイクル後に電池に短絡が生じた。

請求の範囲

[請求項1] 活物質と、導電材と、バインダーを溶媒に分散したペーストを集電体の片面または両面に塗布して形成してなる電極を有する非水電解質二次電池であって、

上記集電体の片面または両面の単位面積当たりの活物質平均塗布量の＋５～＋１０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の高密度領域と、該活物質平均塗布量の－５～－１０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の低密度領域とを有する非水電解質二次電池。

[請求項2] 上記高密度領域と上記低密度領域の総和が、上記集電体の片面または両面の面積の少なくとも１０％でありかつ単位面積当たりの活物質平均塗布量の+１０％以上の領域と－１０％以下の領域の総和が２％以下である請求項１記載の非水電解質二次電池。

[請求項3] 上記電極が正極であり、上記集電体の両面に対する上記活物質平均塗布量が３０～６０ｍｇ／ｃｍ^{2}である請求項１記載の非水電解質二次電池。

[請求項4] 上記正極がリン酸鉄リチウムである請求項３記載の非水電解質二次電池。

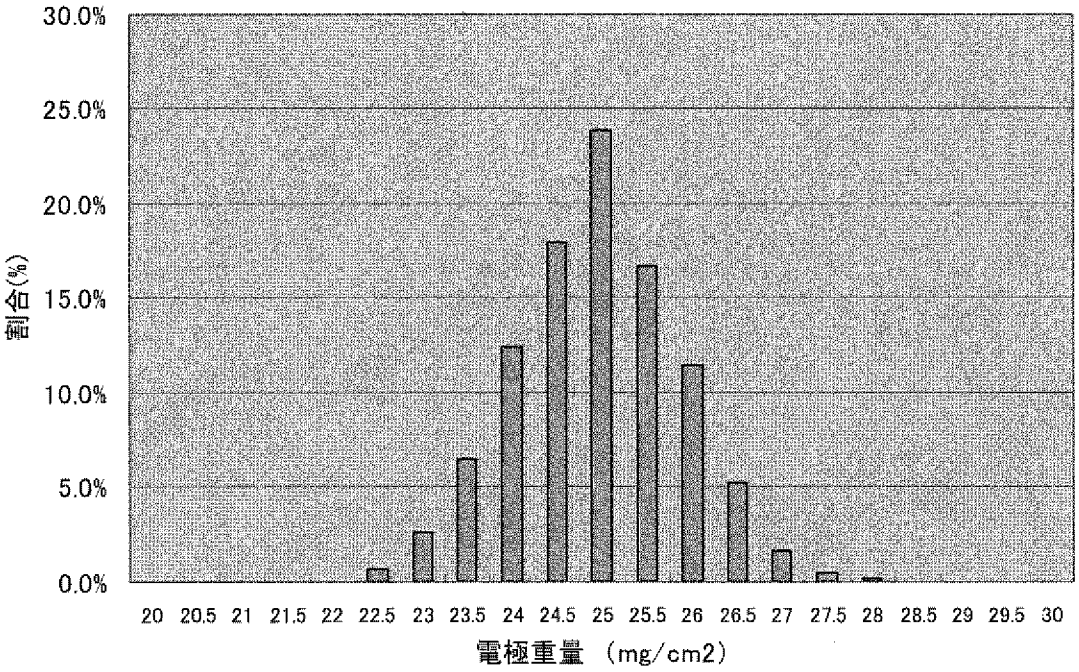
[請求項5] 上記電極が負極であり、上記集電体の両面に対する上記活物質平均塗布量が２０～４０ｍｇ／ｃｍ^{2}である請求項１記載の非水電解質二次電池。

[請求項6] 活物質と、導電材と、バインダーを溶媒に分散したペーストを集電体の片面または両面に塗布して電極を形成する非水電解質二次電池の製造方法であって、

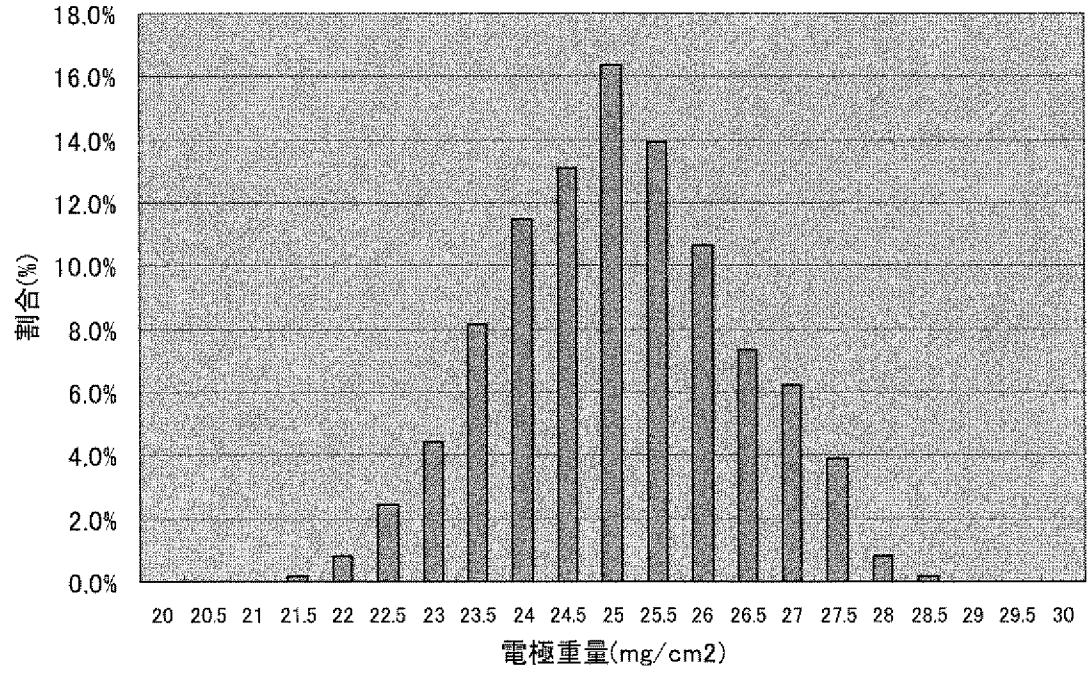
上記集電体の片面または両面の単位面積当たりの活物質平均塗布量の＋５～＋２０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の高密度領域と、該活物質平均塗布量の－５～－２０％の活物質塗布量を有する１つまたは複数の低密度領域とを形成する、非水電解質二次電池の製造方法。

［請求項7］ 上記ペーストをコーティングロールを用いて上記集電体に塗布するに際し、該コーティングロールの回転数を周期的に変化させて、上記高密度領域と上記低密度領域を形成する請求項６記載の製造方法。

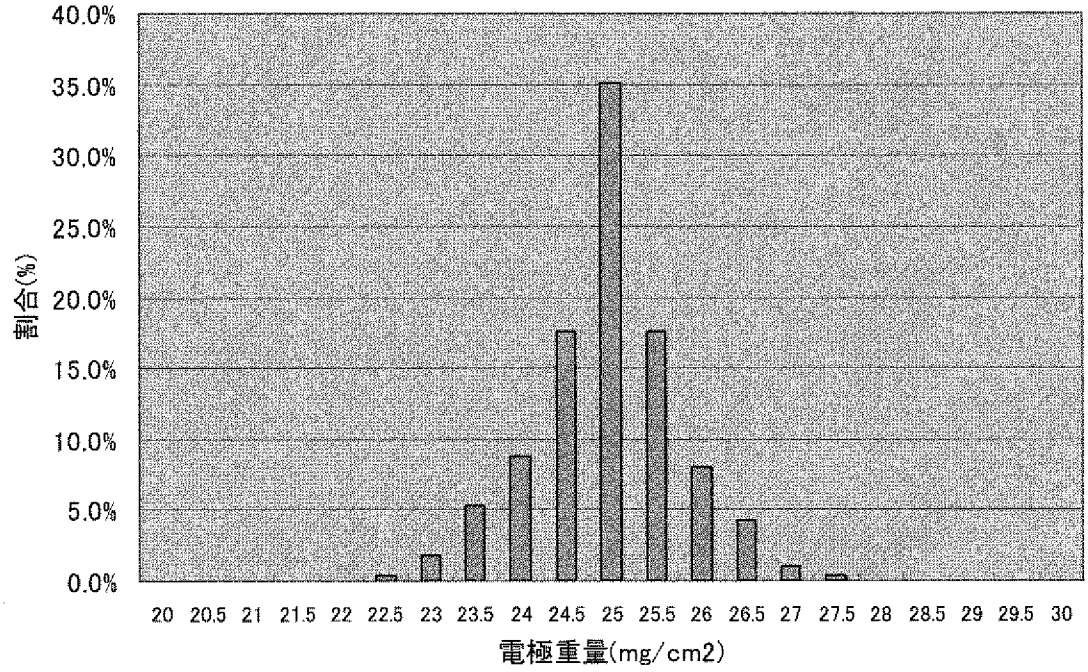
[図1]


30.0%
25.0%
20.0%
15.0%
10.0%
5.0%
0.0%
割合(%)
20 20.5 21 21.5 22 22.5 23 23.5 24 24.5 25 25.5 26 26.5 27 27.5 28 28.5 29 29.5 30
電極重量 (mg/cm2)

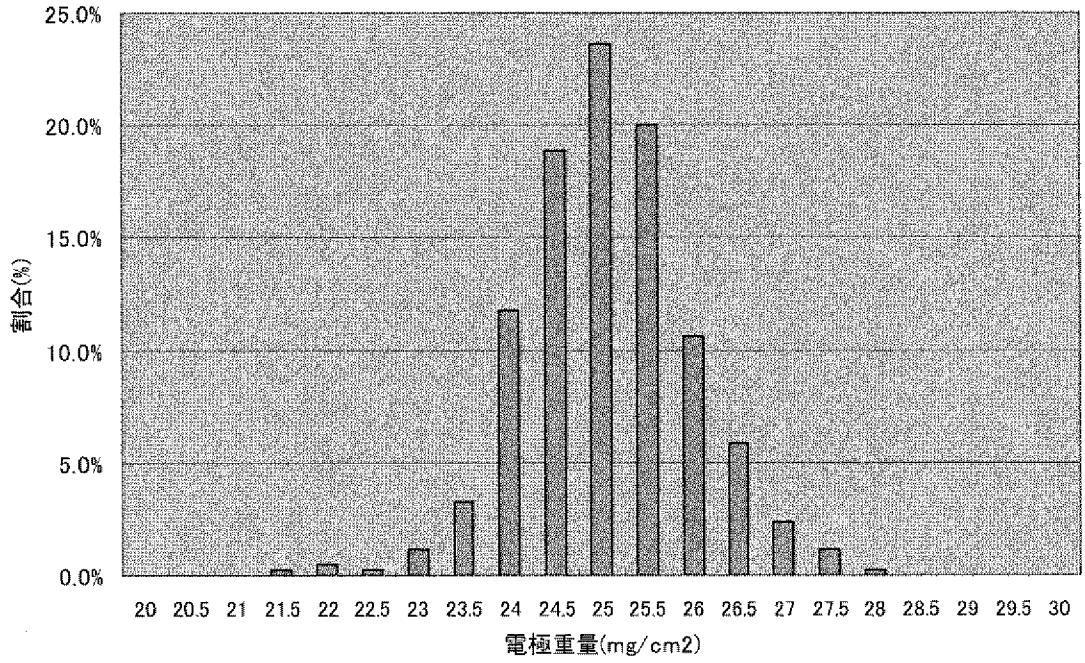
[図2]


18.0%
16.0%
14.0%
12.0%
10.0%
8.0%
6.0%
4.0%
2.0%
0.0%
割合(%)
20 20.5 21 21.5 22 22.5 23 23.5 24 24.5 25 25.5 26 26.5 27 27.5 28 28.5 29 29.5 30
電極重量(mg/cm2)

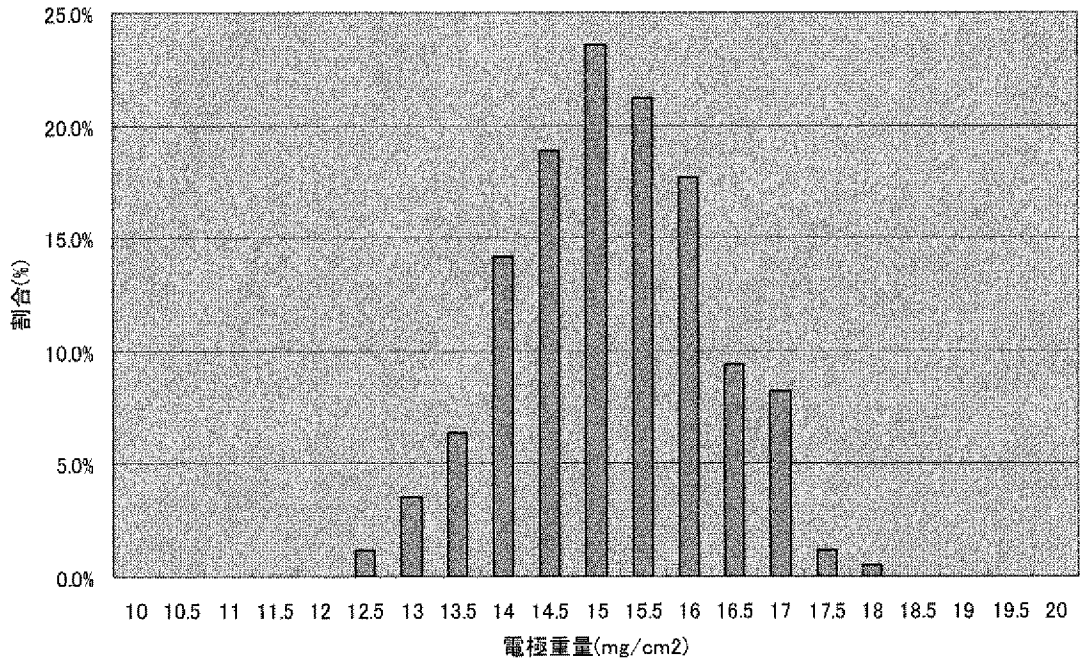
[図3]


40.0%
35.0%
30.0%
25.0%
20.0%
15.0%
10.0%
5.0%
0.0%
割合(%)
20 20.5 21 21.5 22 22.5 23 23.5 24 24.5 25 25.5 26 26.5 27 27.5 28 28.5 29 29.5 30
電極重量(mg/cm2)

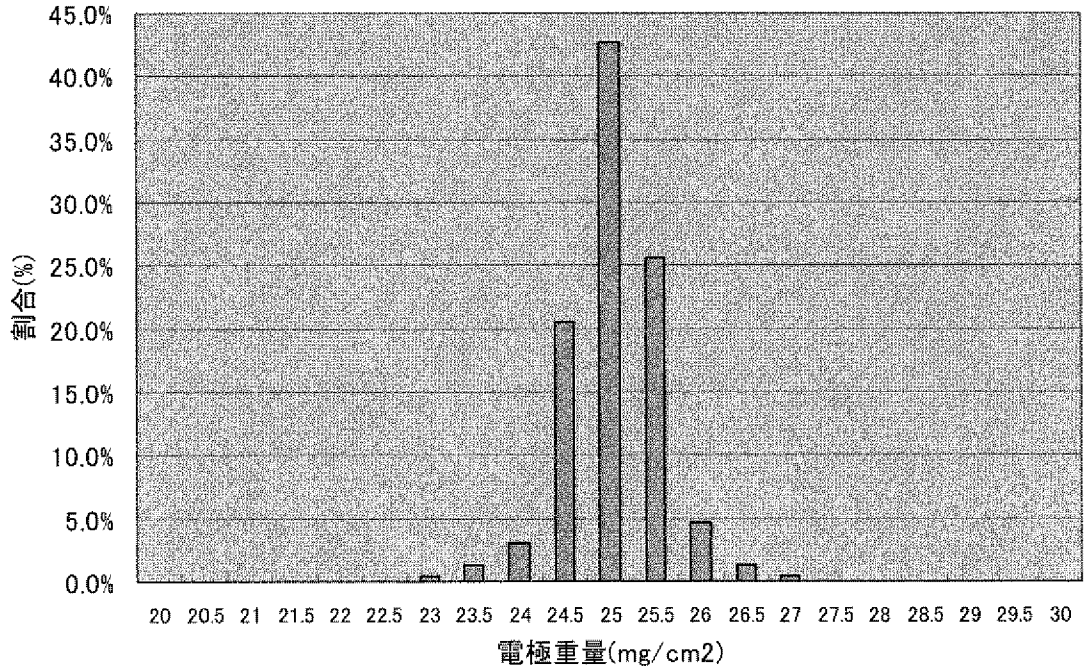
[図4]


25.0%
20.0%
15.0%
10.0%
5.0%
0.0%
割合(%)
20 20.5 21 21.5 22 22.5 23 23.5 24 24.5 25 25.5 26 26.5 27 27.5 28 28.5 29 29.5 30
電極重量(mg/cm2)

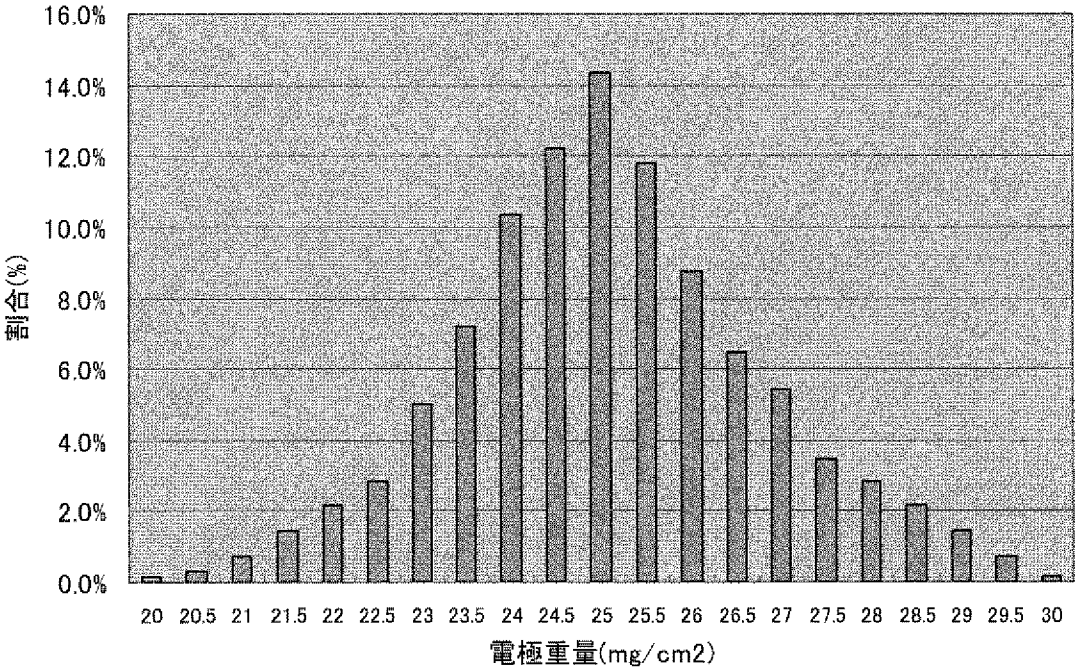
[図5]


25.0%
20.0%
15.0%
10.0%
5.0%
0.0%
割合(%)
10 10.5 11 11.5 12 12.5 13 13.5 14 14.5 15 15.5 16 16.5 17 17.5 18 18.5 19 19.5 20
電極重量(mg/cm2)

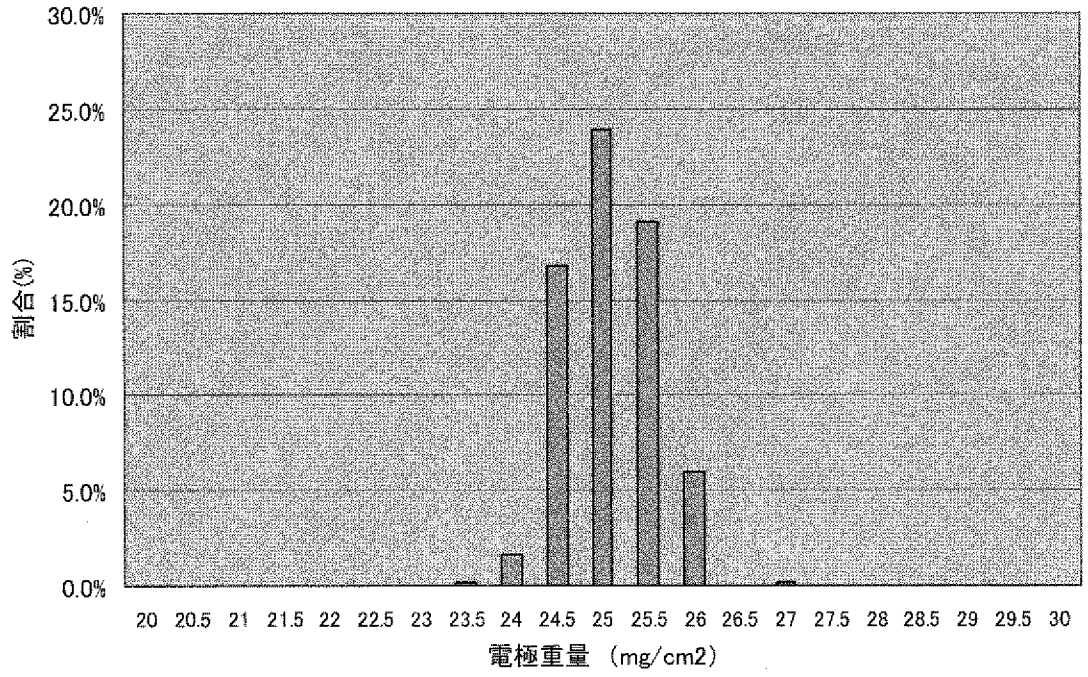
[図6]


45.0%
40.0%
35.0%
30.0%
25.0%
20.0%
15.0%
10.0%
5.0%
0.0%
割合(%)
20 20.5 21 21.5 22 22.5 23 23.5 24 24.5 25 25.5 26 26.5 27 27.5 28 28.5 29 29.5 30
電極重量(mg/cm2)

[図7]


16.0%
14.0%
12.0%
10.0%
8.0%
6.0%
4.0%
2.0%
0.0%
割合(%)
20 20.5 21 21.5 22 22.5 23 23.5 24 24.5 25 25.5 26 26.5 27 27.5 28 28.5 29 29.5 30
電極重量(mg/cm2)

[図8]


30.0%
25.0%
20.0%
15.0%
10.0%
5.0%
0.0%
割合(%)
20 20.5 21 21.5 22 22.5 23 23.5 24 24.5 25 25.5 26 26.5 27 27.5 28 28.5 29 29.5 30
電極重量 (mg/cm2)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2013/076663

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
H01M4/13(2010.01)i, *H01M4/139*(2010.01)i, *H01M4/58*(2010.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
H01M4/13, H01M4/139, H01M4/58

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2013 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2013

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 A	JP 10-12220 A (Toshiba Battery Co., Ltd.), 16 January 1998 (16.01.1998), claims; paragraphs [0013] to [0048]; fig. 2, 3 & US 2001/0012588 A1 & US 6314638 B1 & EP 814525 A2	1,6 2-5,7
X A	JP 9-180704 A (Toray Industries, Inc.), 11 July 1997 (11.07.1997), claims; paragraphs [0015] to [0052]; fig. 1, 2 (Family: none)	1,6 2-5,7
X A	JP 2007-42385 A (Nissan Motor Co., Ltd.), 15 February 2007 (15.02.2007), claims; paragraphs [0004] to [0040], [0052] to [0108]; fig. 4, 8 (Family: none)	1,2,6 3-5,7

☒ 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	Date of mailing of the international search report
18 November, 2013 (18.11.13)	26 November, 2013 (26.11.13)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2013/076663

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2007-328977 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 20 December 2007 (20.12.2007), entire text (Family: none)	1-7
A	JP 2007-324074 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 13 December 2007 (13.12.2007), entire text (Family: none)	1-7
A	JP 2002-298922 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 11 October 2002 (11.10.2002), entire text (Family: none)	1-7

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１３／０７６６６３

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01M4/13(2010.01)i, H01M4/139(2010.01)i, H01M4/58(2010.01)i

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））

Int.Cl.　H01M4/13, H01M4/139, H01M4/58

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	１９７１－２０１３年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１３年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１３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 A	JP 10-12220 A（東芝電池株式会社）1998.01.16, 特許請求の範囲、段落 0013-0048、図２、図３ & US 2001/0012588 A1 & US 6314638 B1 & EP 814525 A2	1,6 2-5,7
X A	JP 9-180704 A（東レ株式会社）1997.07.11, 特許請求の範囲、段落 0015-0052、図１、図２（ファミリーなし）	1,6 2-5,7
X A	JP 2007-42385 A（日産自動車株式会社）2007.02.15, 特許請求の範囲、段落 0004-0040,0052-0108、図４、図８（ファミリーなし）	1,2,6 3-5,7

☑　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

「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矛盾するものではなく、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
１８．１１．２０１３	２６．１１．２０１３

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｘ　４４９１
小森　利永子
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４７７

C（続き）．　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	JP 2007-328977 A（松下電器産業株式会社）2007.12.20，全文（ファミリーなし）	1-7
A	JP 2007-324074 A（松下電器産業株式会社）2007.12.13，全文（ファミリーなし）	1-7
A	JP 2002-298922 A（三洋電機株式会社）2002.10.11，全文（ファミリーなし）	1-7