

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2007 年 1 月 25 日 (25.01.2007)

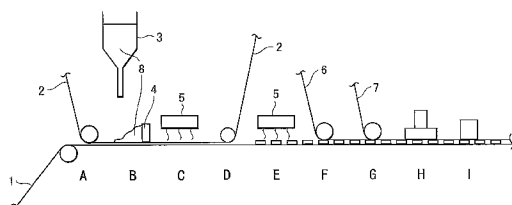
PCT

(10) 国際公開番号
WO 2007/010658 A1

- (51) 国際特許分類:
G02F 1/15 (2006.01) H01G 9/038 (2006.01)
G09F 9/00 (2006.01) H01M 10/40 (2006.01)
G09F 9/30 (2006.01) H01M 14/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2006/308930
- (22) 国際出願日: 2006 年 4 月 21 日 (21.04.2006)
- (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2005-212980 2005 年 7 月 22 日 (22.07.2005) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社 (SONY CHEMICAL & INFORMATION DEVICE CORPORATION) [JP/JP]; 〒1410032 東京都品川区大崎一丁目 1 1 番 2 号 ゲートシティ大崎イーストタワー 8 階 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 初田 弘毅 (HAT-SUDA, Kouki) [JP/JP]; 〒1410032 東京都品川区大崎 1 丁目 1 1 番 2 号 ゲートシティ大崎イーストタワー 8 階 ソニーケミカル&インフォメーションデバイス株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 角田 芳末, 外 (TSUNODA, Yoshisue et al.); 〒1600023 東京都新宿区西新宿 1 丁目 8 番 1 号 新宿ビル Tokyo (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: ELECTROCHEMICAL CELL AND METHOD FOR MANUFACTURING SAME

(54) 発明の名称: 電気化学セルおよびその製造方法



(57) Abstract: Disclosed is a method for manufacturing an electrochemical cell comprising the following steps. Step A wherein a counter electrode film (1) and a mold film (2) are compression bonded; Step B wherein a sol-like gel precursor (8) is introduced into a hole of the mold film (2) arranged on the counter electrode film (1); Step C wherein the sol-like gel precursor (8) is cooled to a semi-cured gel; Step D wherein the mold film (2) is separated from the counter electrode film (1); Step E wherein the semi-cured gel is cooled, thereby forming a gel electrolyte membrane; Step F wherein a sealing film (6) is arranged on the counter electrode film (1) so that a hole of the sealing film (6) corresponds to the gel electrolyte membrane; Step G wherein a working electrode film (7) is compression-bonded to the sealing film (6); Step H wherein the films arranged in layers are thermally compression-bonded together; and Step I wherein a single electrochemical cell is obtained by cutting. In this connection, the working electrode film (7) and the counter electrode film (1) have flexibility.

[続葉有]

WO 2007/010658 A1



(57) 要約:

本発明の電気化学セルの製造方法は次の工程を有している。

工程Aでは、対極フィルム1と鋳型フィルム2を圧着する。工程Bでは、対極フィルム1上に設けられた鋳型フィルム2の孔に、ゾル状ゲル前駆体8を入れる。工程Cでは、ゾル状ゲル前駆体8を冷却して半硬化ゲルにする。工程Dでは、鋳型フィルム2を対極フィルム1から剥がす。工程Eでは、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する。工程Fでは、封止フィルム6の孔がゲル電解質膜に対応するようにして、封止フィルム6を対極フィルム1上に設置する。工程Gでは、作用極フィルム7を封止フィルム6に圧着する。工程Hでは、積層したフィルムを熱圧着する。工程Iでは、切断することにより単一の電気化学セルを作製する。

ここで、作用極フィルム7と対極フィルム1は、柔軟性を有している。

明細書

電気化学セルおよびその製造方法

技術分野

- 5 本発明は、電気化学セルに関する。また、本発明は、電気化学セルの製造方法に関する。

背景技術

- 10 近年、電子ペーパー、電気二重層キャパシタ、色素増感太陽電池、リチウムイオン電池、または調光ガラスなどの電気化学セルが注目されている。電気化学セルにおいては、ポリフッ化ビニリデンーヘキサフルオロプロピレン共重合体（PVdF-HFP）ゲル電解質膜を電極フィルムの上に挟むことによりセルを作製する方法がある。

- 15 図19は、従来の電気化学セルの例として、色素増感太陽電池の構成を示したものである。作用極フィルム7としては、例えばガラス上に酸化チタン電極を形成したものが用いられる。対極フィルム1としては、例えばガラス上に白金電極を形成したものが用いられる。作用極フィルム7と対極フィルム1の間には、例えばPVdF-HFPゲルからなるゲル電解質膜10を挟みこんで
20 いる。このゲル電解質膜10の周囲には封止材23が配置されている。

- PVdF-HFPゲルは固形分50%においてもイオン伝導度が大きく損なわれないという優れた性質を持っている。PVdF-HFPゲルを用いて実験室レベルでは、リジッド電極を用いた
25 電気化学セルが報告されている（例えば、特許文献1、非特許文献1参照。）。

〔特許文献1〕特開2003-16833号公報

〔非特許文献 1〕小山昇 監修「ポリマーバッテリーの最新技術」
シーエムシー

発明の開示

5 しかしながら、上述した従来の電気化学セルは、ゲルと作用極フィルム上に形成された電極との密着性、ならびに、ゲルと対極フィルム上に形成された電極との密着性を確保することができないという問題点がある。ほとんどのゲルにはタックがなく、ゲルと電極との密着性が確保できないからである。

10 また、上述した従来の電気化学セルは、ゲルと作用極フィルム上に設けられた電極との間に、ならびに、ゲルと対極フィルム上に設けられた電極との間に、気泡が発生するのを防止することが困難であるという問題点がある。

15 これら 2 つの問題点は、例えば、電子ペーパーのようなディスプレイ用途を想定した場合、非常に深刻であり、ぜひとも解決すべき課題である。

20 一方、上述した従来の電気化学セルは、硬い作用極フィルムと硬い対極フィルムを用いている。したがって、ロールツーロール (Roll to Roll) 方式による生産に不向きであり、大量生産ができないという問題点がある。

 これを解決するためには、柔軟性のある作用極フィルムと、柔軟性のある対極フィルムを用いてロールツーロール方式で生産する方法が考えられる。

25 しかしながら、ロールツーロール方式で生産するには、つぎのような問題点がある。ゲルを決められた形状に作製し、ロール上の決められた位置におくことができない。ゲルは機械的強度がないために、セル作製においてゲルは打ち抜き・加工することができない。ゲルを切断すると崩れてしまい、加工することができな

いからである。

本発明は、このような課題に鑑みてなされたものであり、新規な電気化学セルを提供することを目的とする。

5 また、本発明は、新規な電気化学セルの製造方法を提供することを目的とする。

上記課題を解決し、本発明の目的を達成するため、本発明の電気化学セルは、作用極フィルムと、作用極フィルムに対向する対極フィルムと、作用極フィルムと対極フィルムの間に挟まれるゲル電解質膜と、ゲル電解質膜の周囲を封止する封止部を有する電気化学セルにおいて、作用極フィルムと対極フィルムが、柔軟性を有することを特徴とする。

10

本発明の電気化学セルの製造方法は、対極フィルム上に設けられた鑄型フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、鑄型フィルムを対極フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程と、封止フィルムの孔がゲル電解質膜に対応するようにして、この封止フィルムを対極フィルム上に設置する工程を有することを特徴とする。

15

本発明の電気化学セルの製造方法は、対極フィルム上に設けられた鑄型フィルムの孔に、ゲル溶液を入れる工程と、ゲル溶液を加熱して半硬化ゲルにする工程と、鑄型フィルムを対極フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを加熱して、ゲル電解質膜を形成する工程と、封止フィルムの孔がゲル電解質膜に対応するようにして、この封止フィルムを対極フィルム上に設置する工程を有することを特徴とする。

20

25

本発明の電気化学セルの製造方法は、カバーフィルムと鑄型封止フィルムからなるカバー付き鑄型封止フィルムを、対極フィルム上に設ける工程と、カバー付き鑄型封止フィルムの孔に、ゾル

状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、カバーフィルムを鋳型封止フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程を有することを特徴とする。

- 5 本発明の電気化学セルの製造方法は、カバーフィルムと粘着剤層からなるカバー付き粘着剤層フィルムを、対極フィルム上に設ける工程と、カバー付き粘着剤層フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、カバーフィルムを粘着剤層から剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程を有することを特徴とする。

本発明は、以下に記載されるような効果を奏する。

- 15 本発明は、作用極フィルムと、作用極フィルムに対向する対極フィルムと、作用極フィルムと対極フィルムの間に挟まれるゲル電解質膜と、ゲル電解質膜の周囲を封止する封止部を有する電気化学セルにおいて、作用極フィルムと対極フィルムが、柔軟性を有するので、新規な電気化学セルを提供することができる。

- 20 本発明は、対極フィルム上に設けられた鋳型フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、鋳型フィルムを対極フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程と、封止フィルムの孔がゲル電解質膜に対応するようにして、この封止フィルムを対極フィルム上に設置する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供することができる。

- 25 本発明は、対極フィルム上に設けられた鋳型フィルムの孔に、ゲル溶液を入れる工程と、ゲル溶液を加熱して半硬化ゲルにする工程と、鋳型フィルムを対極フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを加熱して、ゲル電解質膜を形成する工程と、封止フィルム

の孔がゲル電解質膜に対応するようにして、この封止フィルムを対極フィルム上に設置する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供することができる。

5 本発明は、カバーフィルムと鋳型封止フィルムからなるカバー付き鋳型封止フィルムを、対極フィルム上に設ける工程と、カバー付き鋳型封止フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、カバーフィルムを鋳型封止フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供することができる。

10 本発明は、カバーフィルムと粘着剤層からなるカバー付き粘着剤層フィルムを、対極フィルム上に設ける工程と、カバー付き粘着剤層フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、カバーフィルムを粘着剤層から剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供することができる。

図面の簡単な説明

20 図 1 は、電気化学セルの製造工程の一例を示す図である。

図 2 は、鋳型フィルムと封止フィルムの構成を示す平面図である。

図 3 は、図 1 における工程の詳細を示す図である（その 1）。

図 4 は、図 1 における工程の詳細を示す図である（その 2）。

25 図 5 は、電気化学セルの製造工程の他の例を示す図である。

図 6 は、図 5 における工程の詳細を示す図である。

図 7 は、電気化学セルにスペースを設けた例を示す図である。

図 8 は、カバー付き鋳型封止フィルムの製造工程を示す図であ

る。

図 9 は、カバー付き鋳型封止フィルムの構成を示す図である。

図 10 は、電気化学セルの製造工程の他の例を示す図である。

図 11 は、図 10 における工程の詳細を示す図である(その 1)。

5 図 12 は、図 10 における工程の詳細を示す図である(その 2)。

図 13 は、電気化学セルの製造工程の他の例を示す図である。

図 14 は、カバー付き粘着剤層フィルムの構成を示す図である。

図 15 は、図 13 における工程の詳細を示す図である(その 1)。

図 16 は、図 13 における工程の詳細を示す図である(その 2)。

10 図 17 は、鋳型封止フィルムを用いた電気化学セルを示す断面図である。

図 18 は、粘着剤層を用いた電気化学セルを示す断面図である。

図 19 は、従来の電気化学セルの構成を示す斜視図である。

15 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明を実施するための最良の形態について説明する。

まず、電気化学セルおよびその製造方法にかかる第 1 の発明を実施するための最良の形態について説明する。

20 電気化学セルの製造方法について説明する。図 1 は、電気化学セルの製造工程の一例として、電子ペーパーのセルの製造工程を示すものである。図 3 および図 4 は、図 1 における工程の詳細を示すものである。

工程 A について説明する。工程 A では、図 1 A および図 3 A に示すように、対極フィルム 1 の上に鋳型フィルム 2 を圧着して設ける。

25 対極フィルム 1 について説明する。

対極フィルム 1 としては、電極付き透明フィルム（ゼオノア、日本ゼオン社製）を用いた。この対極フィルム 1 は、表示極とし

て機能するものである。

対極フィルム 1 の厚さは、100 μ m である。対極フィルム 1 の厚さはこの厚さに限定されない。このほか、厚さとしては、50 ~ 5000 μ m の範囲内にあることが好ましい。厚さが 50 μ m 以上であると、機械的強度を持たせることができるという利点がある。厚さが 5000 μ m 以下であると、折り曲げが必要なアプリケーションに対応する折り曲げやすさを確保できるという利点がある。

10 対極フィルム 1 のベースフィルムの材質はノルボルネン樹脂である。対極フィルム 1 のベースフィルムの材質は、これに限定されるものではないことはもちろんである。

対極フィルム 1 の電極は、銀メッキの電極からなっている。電極は、この銀メッキの電極に限定されない。このほか、銀化合物、白金、金などを材質とする電極を用いることができる。

15 鋳型フィルム 2 について説明する。図 2 A は、鋳型フィルム 2 の構成を示す平面図である。

鋳型フィルム 2 としては、ポリエチレンーポリプロピレンーポリエチレンの 3 層からなる 3 層フィルム (NHFM、愛知プラスチック社製) を用いた。

20 鋳型フィルム 2 の厚さは、工程 I までの過程を経て、ゲル電解質膜 10 の厚さが設定電解質膜厚になるように、決定する。設定電解質膜厚は、工程 I の説明において定義する。

25 鋳型フィルム 2 の材質は、上述のポリエチレンーポリプロピレンーポリエチレンの 3 層からなる 3 層フィルムに限定されるものではなく、ゾル状ゲル前駆体に侵食されないプラスチックフィルムを用いることができる。たとえば、アイオノマー樹脂、変性プロピレンなどを用いることができる。ここで、アイオノマー樹脂は、エチレンーメタクリル酸共重合体の分子間を金属イオンで架

橋した樹脂である。

- 孔 2 a の大きさは、図 2 A において、縦の長さが 4 0 m m、横の長さが 2 5 m m である。孔 2 a の大きさはこの値に限定されない。孔 2 a の縦・横の長さは、5 ~ 5 0 0 m m の範囲内にあることが好ましい。縦・横の長さが 5 m m 以上であると、孔 2 a の中にゾル状ゲル前駆体 8（後述する）が流入しやすくなるという利点がある。縦・横の長さが 5 0 0 m m 以下であると、ゾル状ゲル前駆体 8 の厚さを均等に保つことができるという利点がある。

- 図 2 A において、孔 2 a の長手方向は上下方向になっている。
- 10 孔 2 a の長手方向はこの方向に限定されない。このほか、横方向、斜め方向などが採用できる。その理由は、ゾル状ゲル前駆体 8 の粘度などの物性に応じて、塗布する方向を調整することにより、最適な方向を選ぶことができるからである。

- 対極フィルム 1 と鋳型フィルム 2 の熱圧着について説明する。
- 15 熱圧着の圧力は $1\,000\text{ N/cm}^2$ であった。熱圧着の圧力はこの値に限定されない。対極フィルム 1 と鋳型フィルム 2 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の圧力は $500 \sim 15\,000\text{ N/cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

- 熱圧着の温度は 80°C であった。熱圧着の温度はこの値に限定されない。対極フィルム 1 と鋳型フィルム 2 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の温度は $50 \sim 100^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。
- 20

- 熱圧着の剥離強度は 5 N/2 cm であった。熱圧着の剥離強度はこの値に限定されない。対極フィルム 1 と鋳型フィルム 2 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の剥離強度は $0.2 \sim 10\text{ N/2 cm}$ の範囲にあることが好ましい。
- 25

熱圧着の圧力、温度、および剥離強度が上述の範囲内にあると、熱圧着部を剥がす力が作用しないときは後の工程で剥離するのを

防止でき、かつ熱圧着部を剥がす力が作用するときは容易に剥離できるという利点がある。

なお、剥離強度の測定には、引張試験機（テンシロン、オリエンテック社製）を用いて行った。

- 5 工程 B について説明する。工程 B では、図 1 B および図 3 B に示すように、供給装置 3 内で、ゲル化剤と電解液を所定の温度で加熱混合してゾル状ゲル前駆体を作る。このゾル状ゲル前駆体を塗布装置 4 に供給する。塗布装置 4 は、対極フィルム 1 の上に設けられた鋳型フィルム 2 の孔に、ゾル状ゲル前駆体を塗布する。

- 10 ゾル状ゲル前駆体 8 について説明する。

ゲル電解質膜に求められる条件はつぎのとおりである。すなわち、イオン伝導度が $1 \times 10^{-5} \text{ S/cm}$ 以上であること、高温で液状となり、常温でゲル化する可逆ゲルであること、電解液を保持し、ゲル電解質膜に多少の外圧がかかっても電解液を流出させ

- 15 ないことである。

ゾル状ゲル前駆体は、以下の成分を 150°C で混合することにより製造した。

ポリフッ化ビニリデンーヘキサフルオロプロピレン共重合体
20 部

- 20 (PVdF-HFP) (Kynar 2801、アトフィナジャパン社製)

電解液 (γ-BL) 120 部

酸化チタン 20 部

- 25 ここで、電解液 (γ-BL) の組成は以下のとおりである。

ヨウ化銀 250 mmol / L

ヨウ化ナトリウム 350 mmol / L

トリエタノールアミン 10 g / L

クマリン 5 g / L

2-メルカプトベンズイミダゾール 5 g / L

5 ゲル化剤 P V d F - H F P の組成は、5 ~ 50 質量% の範囲内にあることが好ましい。組成が 5 質量% 以上であると、ゲル化を容易にすることができるという利点がある。組成が 50 質量% 以下であると、イオン伝導度を高く維持できるという利点がある。

10 ゲル化剤は、上述の P V d F - H F P に限定されない。このほか、ポリフッ化ビニリデン (P V d F)、ポリフッ化ビニリデン-テトラフルオロエチレン共重合体、ポリフッ化ビニリデン-トリフルオロエチレン共重合体、ポリフッ化ビニリデン-アクリロニトリル共重合体、ポリアクリロニトリルなどを用いることができる。

15 ゾル状ゲル前駆体の製造において、ゲル化剤と電解液のほかに配合するものは、酸化チタンに限定されない。このほか、酸化アルミニウム、酸化亜鉛などを配合することができる。

20 ゾル状ゲル前駆体の製造において、加熱温度は、130 ~ 200 °C の範囲内にあることが好ましい。加熱温度が 130 °C 以上であると、ゾル状ゲル前駆体が溶融するという利点がある。加熱温度が 200 °C 以下であると、電解液溶媒の蒸発を防止できるという利点がある。

塗布装置 4 について説明する。

塗布装置 4 としては、ナイフコータを用いた。塗布装置 4 はこれに限定されない。このほか、グラビアコータ、スプレーコータなどを用いることができる。

25 鋳型フィルム 2 の孔 2 a の中に塗布されたゾル状ゲル前駆体 8 の膜厚は、工程 I までの過程を経て、ゲル電解質膜 10 の厚さが設定電解質膜厚になるように、決定する。

塗りこぼし部 8 a (図 3 B) について説明する。

5 鋳型フィルム 2 の孔 2 a の中にゾル状ゲル前駆体 8 を塗布すると、鋳型フィルム 2 の孔 2 a の周囲にゾル状ゲル前駆体の薄い膜（塗りこぼし部 8 a）ができる。この塗りこぼし部 8 a が存在すると、仮に鋳型フィルム 2 と他のフィルムを熱圧着させようとした場合、熱圧着の阻害要因となる。

工程 C について説明する。工程 C では、図 1 C および図 3 C に示すように、ゾル状ゲル前駆体 8 を冷却することにより半ゲル化して半硬化ゲル 9 にする。

ゾル状ゲル前駆体 8 の冷却について説明する。

10 ゾル状ゲル前駆体 8 を半ゲル化して半硬化ゲルとする理由は、つぎのとおりである。

15 工程 C のつぎの工程 D では、鋳型フィルム 2 を対極フィルム 1 から剥がす。このとき、ゾル状ゲル前駆体 8 を完全にゲル化した後に鋳型フィルム 2 を剥がすと、塗りこぼし部 9 a と鋳型フィルム 2 が強力に接着してしまうので、鋳型フィルム 2 とともにゲルが剥がれるという問題がある。

一方、ゾル状ゲル前駆体 8 をまったく硬化させないで、鋳型フィルム 2 を剥がすと、ゾル状ゲル前駆体 8 の粘度が低いので、ゾル状ゲル前駆体 8 が流動して形が崩れるという問題がある。

20 ゾル状前駆体 8 は塗布後、冷却により時間とともにゲル化が進行する。ゲル化に伴い粘度が増加する。そして、適度な粘度まで半ゲル化させて半硬化ゲルとすることにより、上述の問題を解決することができる。

25 P V d F - H F P およびその他のゲル化剤についての、半硬化ゲルの温度は、半硬化ゲルの粘度が好ましい範囲内（後述する）になるように決定する。

P V d F - H F P およびその他のゲル化剤についての、半硬化ゲルの粘度は、20 ～ 20000 m P a s の範囲内にあることが

好ましい。粘度が 20 mPa s 以上であると、半硬化ゲルの形が崩れないという利点がある。粘度が 20000 mPa s 以下であると、ゾル状ゲル前駆体 8 が完全にゲル化していないので、塗りこぼし部 9 a と鑄型フィルム 2 が強力に接着するのを防止でき、
5 鑄型フィルム 2 とともにゲルが剥がれるという問題がなくなると
いう利点がある。

工程 D について説明する。工程 D では、図 1 D および図 3 D に示すように、鑄型フィルム 2 を対極フィルム 1 から剥がす。

鑄型フィルム 2 を剥がすと同時に、塗りこぼし部 9 a が鑄型フ
10 イルム 2 に付着してくる。半硬化ゲル 9 は、完全にゲル化していないので、塗りこぼし部 9 a は簡単に切断され半硬化ゲル 9 から分離される。この結果、半硬化ゲル 9 は、鑄型フィルム 2 の孔 2 a からはみ出した部分を除去することができる。

工程 E について説明する。工程 E では、図 1 E および図 3 E に
15 示すように、半硬化ゲルを冷却してゲル化することにより、ゲル電解質膜を形成する。半硬化ゲルを冷却するとゲル化剤の高分子化合物が絡み合いながら析出することによりゲル化する。なお、工程 E を省略することができる場合がある。たとえば、工程 E を省略した場合に、工程 E の前の工程 D と、工程 E の後の工程 F（後
20 述する）との工程間の距離が十分長い場合には、半硬化ゲルを自然に冷却させることができる。

工程 F について説明する。工程 F では、図 1 F および図 3 F に示すように、封止フィルム 6 の孔がゲル電解質膜 10 に対応するようにして、この封止フィルム 6 を対極フィルム 1 上に設置する。
25 その結果、ゲル電解質膜 10 の周囲を封止する封止部が形成される。

封止フィルム 6 としては、図 2 B に示すような、ポリエチレンーポリプロピレンーポリエチレンの 3 層からなる 3 層フィルム

(N H F M、愛知プラスチック社製)を用いた。

封止フィルム 6 の厚さは、工程 I までの過程を経て、封止フィルム 6 の厚さが設定封止フィルム厚になるように、決定する。設定封止フィルム厚は、工程 I の説明において定義する。

- 5 封止フィルム 6 の材質は、上述のポリエチレンーポリプロピレンーポリエチレンの 3 層からなる 3 層フィルムに限定されるものではない。このほか、アイオノマー樹脂、変性プロピレンなどを用いることができる。

- 10 封止フィルム 6 は、耐電解液性があることが求められる。そこで、封止フィルム 6 の耐電解液性を評価した。

評価サンプルとしては、上述のポリエチレンーポリプロピレンーポリエチレンの 3 層からなる 3 層フィルムと、アイオノマー樹脂（ハイミラン、三井デュポンポリケミカル社製）を用いた。

- 15 評価方法はつぎのように行った。封止フィルム 6 を上述の電解液（γ-B L）に浸漬して、重量変化を測定した。重量が初期に比べて減少しているようであれば溶解することがわかる。重量が増加しているようであれば膨潤していることがわかる。

- 20 封止フィルムの重量の増加分は 5 質量%以下であることが好ましい。重量の増加分が 5 質量%以下であると、膨潤度が小さいので、セルギャップを小さくすることができるという利点がある。

また、封止フィルムの重量の減少分は 5 質量%以下であることが好ましい。重量の減少分が 5 質量%以下であると、十分な封止能力が得られるという利点がある。

- 25 重量変化は次のようであった。3 層フィルムは 0.5 質量%減少した。アイオノマー樹脂は 3 質量%減少した。この結果、これらのフィルムは耐電解液性に優れていることがわかった。

封止フィルム 6 の孔 6 a は、鋳型フィルム 2 の孔 2 a に比較して、縦の長さで横の長さをそれぞれ若干大きくした。これにより、

孔 6 a とゲル電解質膜 10 の位置あわせを容易にすることができる。

工程 F では、封止フィルム 6 の孔 6 a にゲル電解質膜 10 を一致させるために、位置決めが重要である。

5 この位置決めの方法としては、予め電極フィルムにガイドホールを空けておき、ピンにより位置決めする方法を採用している。位置決めの方法は、この方法に限定されない。このほか、カメラによりモニタしながら機械的に位置決めする方法などを採用することができる。

10 対極フィルム 1 と封止フィルム 6 の熱圧着について説明する。

熱圧着の圧力は 1000 N/cm^2 であった。熱圧着の圧力はこの値に限定されない。対極フィルム 1 と封止フィルム 6 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の圧力は $500 \sim 15000 \text{ N/cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

15 熱圧着の温度は 80°C であった。熱圧着の温度はこの値に限定されない。対極フィルム 1 と封止フィルム 6 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の温度は $50 \sim 100^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。

20 熱圧着後の剥離強度は 5 N/2 cm であった。熱圧着の剥離強度はこの値に限定されない。対極フィルム 1 と封止フィルム 6 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の剥離強度は $0.2 \sim 10 \text{ N/2 cm}$ の範囲にあることが好ましい。

25 熱圧着の圧力、温度、および剥離強度が上述の範囲内にあると、熱圧着部が、後の工程で剥離するのを防止できるという利点がある。

工程 G について説明する。工程 G では、図 1 G および図 4 A に示すように、封止フィルム 6 の上に作用極フィルム 7 を圧着して設ける。

作用極フィルム 7 について説明する。

作用極フィルム 7 は、対極フィルム 1 に対向して位置している。
作用極フィルム 7 としては、ITO フィルム（OTEC、王子ト
ービー社製）を用いた。この作用極フィルム 7 は、表示極として
5 機能するものである。

作用極フィルム 7 の厚さは、 $100\text{ }\mu\text{m}$ である。作用極フィル
ム 7 の厚さはこの厚さに限定されない。このほか、厚さとしては、
 $50\sim5000\text{ }\mu\text{m}$ の範囲内にあることが好ましい。厚さが 50
 μm 以上であると、機械的強度を持たせることができるという利
10 点がある。厚さが $5000\text{ }\mu\text{m}$ 以下であると、折り曲げが必要な
アプリケーションに対応する折り曲げやすさを確保できるという
利点がある。

作用極フィルム 7 のベースフィルムの材質はポリエチレンテレ
フタレート（PET）である。作用極フィルム 7 のベースフィル
15 ムの材質は、これに限定されるものではない。このほか、ポリブ
チレンフタレート、ポリイミド、ポリカーボネートなどを用いる
ことができる。

作用極フィルム 7 の電極は、ITO の電極からなっている。電
極は、この ITO の電極に限定されない。このほか、透明電極膜
20 IZO、ATO などを用いることができる。

作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 の熱圧着について説明する。

熱圧着の圧力は 1000 N/cm^2 であった。熱圧着の圧力は
この値に限定されない。作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 に
種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の圧力は 500
25 $\sim15000\text{ N/cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

熱圧着の温度は $80\text{ }^{\circ}\text{C}$ であった。熱圧着の温度はこの値に限定
されない。作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 に種々の厚さおよ
び材質を適用した場合に、熱圧着の温度は $50\sim100\text{ }^{\circ}\text{C}$ の範囲

にあることが好ましい。

- 作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 の剥離強度は $5 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ であつた。対極フィルム 1 と封止フィルム 6 の剥離強度は $5 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ であつた。熱圧着の剥離強度はこの値に限定されない。作用極フィルム 7、封止フィルム 6、および対極フィルム 1 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の剥離強度は $0.2 \sim 10 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ の範囲にあることが好ましい。

- 熱圧着の圧力、温度、および剥離強度が上述の範囲内にあると、熱圧着部が、後の工程で剥離するのを防止できるという利点がある。

作用極フィルム 7 とゲル電解質膜 10 の間においては、熱圧着により気泡発生を防止できる。ゲル電解質膜が十分硬く、ラミネートによりエアーを押し出しながら張り合わせることににより気泡発生を防止することができる。

- 工程 H について説明する。工程 H では、図 1 H および図 4 B に示すように、作用極フィルム 7 と封止フィルム 6、および対極フィルム 1 と封止フィルム 6 の熱圧着をする。熱圧着は、図 4 B の左図に示すように、所定の領域を、所定の圧力・温度で、所定の時間行う。

- その結果、図 4 B の右図に示すように、作用極フィルム 7 と封止フィルム 6、および対極フィルム 1 と封止フィルム 6 が強力に熱圧着される。なお、工程 F および工程 G の熱圧着は、熱圧着部が後の工程で剥離するのを防止することを目的とする弱い熱圧着であるのに対して、工程 H の熱圧着は、作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 の密封性、ならびに、対極フィルム 1 と封止フィルム 6 の密封性を確実にすることを目的とする強力な熱圧着である。

熱圧着においては、熱圧着装置（ヒートシールボンダー、大橋エンジニアリング社製）を用いた。

封止フィルム 6 において、熱圧着を行う領域は、ゲル電解質膜 10 に近い端部からの距離が 5 ～ 50 mm の範囲内にあることが好ましい。端部からの距離が 5 mm 以上であると、十分な封止ができるという利点がある。端部からの距離が 50 mm 以下であると、後に行うハーフカット、抜き落としに支障が生じないという利点がある。

熱圧着の圧力は 5000 N/cm^2 であった。熱圧着の圧力はこの値に限定されない。作用極フィルム 7、封止フィルム 6、および対極フィルム 1 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の圧力は $1000 \sim 15000 \text{ N/cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

熱圧着の温度は 140°C であった。熱圧着の温度はこの値に限定されない。作用極フィルム 7、封止フィルム 6、および対極フィルム 1 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の温度は $120 \sim 180^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。

熱圧着の時間は 40 秒であった。熱圧着の時間はこの値に限定されない。作用極フィルム 7、封止フィルム 6、および対極フィルム 1 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の時間は 0.1 ～ 100 秒の範囲にあることが好ましい。

作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 の剥離強度は 13 N/2 cm であった。対極フィルム 1 と封止フィルム 6 の剥離強度は 13 N/2 cm であった。熱圧着の剥離強度はこの値に限定されない。作用極フィルム 7、封止フィルム 6、および対極フィルム 1 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の剥離強度は 13 N/2 cm 以上の範囲にあることが好ましい。

熱圧着の圧力、温度、時間、および剥離強度が上述の範囲内にあると、封止フィルム 6 の形が崩れることなく十分に接着できるという利点がある。

熱圧着の方法は、上述の方法に限定されない。このほか、熱ラミネート法、超音波溶着法などを採用することができる。

熱圧着により、作用極フィルム 7 の電極とゲル電解質膜 10 の密着性、ならびに、対極フィルム 1 の電極とゲル電解質膜 10 の密着性が確保できる。電極フィルムが柔軟性を有するので、外から圧力をかけることにより、電極フィルムの電極をゲル電解質膜に押し当てることのできる。

熱圧着により、作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 の密封性、ならびに、対極フィルム 1 と封止フィルム 6 の密封性が確保できる。熱圧着により、封止フィルム 6 が溶融するので、電極の凹凸部に流入しやすくなるからである。

図 4 B の右の図に示すように、熱圧着により、作用極フィルム 7 と対極フィルム 1 の間に挟まれるゲル電解質膜 10 と封止フィルム 6 は、それぞれの厚さが若干薄くなる。熱圧着の前後で厚さが薄くなる割合は、5 ～ 20 % の範囲にある。このように薄くなることにより、作用極フィルム 7 の電極とゲル電解質膜 10 の密着性、対極フィルム 1 の電極とゲル電解質膜 10 の密着性、作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 の密封性、ならびに、対極フィルム 1 と封止フィルム 6 の密封性をより確実にすることができる。

工程 I について説明する。工程 I では、図 1 I および図 4 C に示すように、作用極フィルム 7、封止フィルム 6、および対極フィルム 1 を切断することにより、単一の電気化学セルを作製する。

図 4 C の左側のように、作用極フィルム 7 と封止フィルム 6 に対して、対極フィルム 1 を長くして切断することにより、対極フィルム 1 の電極を露出させる。また、図 4 C の右側のように、対極フィルム 1 と封止フィルム 6 に対して、作用極フィルム 7 を長くして切断することにより、作用極フィルム 7 の電極を露出させる。

このように、電極を露出させる理由は、後の工程において、異方性導電膜（ACF）により、対極フィルム1の電極とフレキシブル基板、ならびに、作用極フィルム7の電極とフレキシブル基板を圧着して電氣的に接続させるためである。

- 5 設定電解質膜厚、および設定封止フィルム厚を定義する。設定電解質膜厚とは、工程I終了後におけるゲル電解質膜10の厚さをいう。設定封止フィルム厚とは、工程I終了後における封止フィルム6の厚さをいう。

- 10 設定電解質膜厚は、 $100\mu\text{m}$ である。設定電解質膜厚は、この値に限定されない。設定電解質膜厚は $30\sim 500\mu\text{m}$ の範囲にあることが好ましい。設定電解質膜厚が $30\mu\text{m}$ 以上であると、電子ペーパーのような表示素子としての機能を果たすという利点がある。設定電解質膜厚が $500\mu\text{m}$ 以下であると、電解質膜の電気化学的特性である内部抵抗が大きくなるのを防止できるという利点がある。

15 設定封止フィルム厚は、設定電解質膜厚と同じにした。その理由は、溶剤が含有されていないゲル電解質膜の厚み変化は小さいからである。

- 20 工程A～Iとは別の工程で、フレキシブル基板にICチップを実装する、ドライバIC用COF(chip on flexible substrate)の接続を行う。

- 25 工程Iの後の工程で、異方性導電膜(ACF Anisotropic Conductor Film)の接続を行う。異方性導電膜には導電性粒子が入っているので、ボンダーで加熱プレスすることにより、フレキシブル基板の回路とフィルムの電極を電氣的に接続することができる。

以上、工程A～Iおよびその後の工程について説明した。これらの工程では、ロールツーロール方式で、電気化学セルを作製している。本発明の電気化学セルの作製は、このロールツーロール

方式に限定されない。このほか、いわゆるバッチ方式により単一の電気化学セルを作製することもできる。

5 工程 A ～ I の方法により、ロールツーロール方式で電気化学セルの製造ができるようになった。ロールツーロール方式でゲルの電気化学セルを製造することにより、安価に、速く大量に製造することができる。この方法であれば、鋳型を使うので、ゲルの液分を大きく減らす必要はなく、ゲルとして製造できる。また、使用するゲルは、物理ゲルのために過酸化物などの開始剤を必要とせず、安全に製造できる。

- 10 工程 A ～ I およびその後の工程により作製された電子ペーパーについて、評価を行った。評価項目は、(1) 作用極フィルムとゲル電解質膜、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の密着性、(2) 作用極フィルムとゲル電解質膜の界面、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の界面における気泡の発生、(3) 電子ペーパーのデバイスとしての性能である。

電子ペーパーの評価方法について説明する。

- 20 作用極フィルムとゲル電解質膜、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の密着性の評価は、つぎのように行った。デバイスを 60℃ で 7 日間放置した後に、剥がれにより白くなっていないかを目視により検査し剥離を判断した。

作用極フィルムとゲル電解質膜の界面、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の界面における気泡の発生の評価はつぎのように行った。ドットマトリックスセルにおいて、全面表示させて、黒が全面に表示するかを光学顕微鏡で検査した。

- 25 電子ペーパーのデバイスとしての性能、具体的にはゲル電解質膜のイオン伝導度 (S/cm) の評価はつぎのように行った。イオン伝導度 (S/cm) は交流インピーダンス法により測定した (Solatron1260)。イオン伝導度はつぎの式より算出される。

$$\sigma = 1 / (S \times R)$$

ここで、 l : セルの長さ、 S : 電極面積

評価結果について説明する。

作用極フィルムとゲル電解質膜、ならびに対極フィルムとゲル

- 5 電解質膜の密着性については、目視により検査した結果白い部分は認められなかった。

作用極フィルムとゲル電解質膜の界面、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の界面における気泡の発生については、光学顕微鏡で検査した結果全面に黒いドットが確認できた。

- 10 P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜のイオン伝導度 σ (S / cm) は、 $\sigma = 8.3 \times 10^{-5}$ (S / cm) であった。

本発明の電気化学セルの適用は、電子ペーパーに限定されない。このほか、電気二重層キャパシタ、色素増感太陽電池、リチウムイオン電池、または調光ガラス（以下、「電気二重層キャパシタな

- 15 ど適用例」という。）に適用することができる。

電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法について説明する。電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法は、原則として、上述の電子ペーパーのセルの製造方法と同様である。以下においては、電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法のうち、上述の

- 20 電子ペーパーのセルの製造方法と異なる点について説明する。

電気二重層キャパシタなど適用例の対極フィルム 1 の電極について、それぞれ説明する。電気二重層キャパシタの対極フィルム 1 の電極は、炭素電極などを用いることができる。色素増感太陽電池の対極フィルム 1 の電極は、白金電極、炭素電極などを用いることができる。リチウムイオン電池の対極フィルム 1 の電極は、炭素電極などを用いることができる。調光ガラスの対極フィルム 1 の電極は、炭素電極、金属酸化物電極などを用いることができる。

25

電気二重層キャパシタなど適用例のゾル状ゲル前駆体の電解液について、それぞれ説明する。電気二重層キャパシタのゾル状ゲル前駆体の電解液は、プロピレンカーボネートなどの非水溶媒に、4級アンモニウム塩、4級スルホニウム塩などを電解質としたものを
5 のを用いることができる。色素増感太陽電池のゾル状ゲル前駆体の電解液は、非水溶媒にヨウ素とヨウ化塩を主な電解質としたものなどを用いることができる。リチウムイオン電池のゾル状ゲル前駆体の電解液は、プロピレンカーボネートなどの非水溶媒に、リチウム塩（ LiPF_6 ）などを電解質としたものを
10 のを用いることができる。調光ガラスのゾル状ゲル前駆体の電解液は、プロピレンカーボネートなどの非水溶媒に、ビオローゲンなどのエレクトロクロミック材料を電解質としたものなどを用いることができる。

電気二重層キャパシタなど適用例の作用極フィルム7の電極について、それぞれ説明する。電気二重層キャパシタの作用極フィルム7の電極は、炭素電極などを用いることができる。色素増感
15 太陽電池の作用極フィルム7の電極は、酸化チタン膜に色素が担持した電極などを用いることができる。リチウムイオン電池の作用極フィルム7の電極は、 LiCoO_3 、 LiNiO_2 、 LiMn_2O_4 などを用いることができる。調光ガラスの作用極フィルム7
20 の電極は、透明導電膜（ITO）などを用いることができる。

PVdF-HFP系ゲルのゲル電解質膜を用いた電気化学セルは、従来の電気化学セルに比較して、ゲル電解質膜の密着性がよく、気泡の発生を防止できる。また、ゲル電解質は、高いイオン伝導度を有し、従来の電気化学セルと同等もしくはそれ以上の性能
25 能が得られる。電気化学セルが柔軟性を有するので、全く新しいカードのようなアプリケーションに利用することができる。また、ゲル電解質膜は化学的安定性を有している。

本発明の電気化学セルの適用は、電子ペーパー、電気二重層キ

ャパシタ、色素増感太陽電池、リチウムイオン電池、または調光ガラスに限定されない。このほか、本発明の電気化学セルは、その他の電池、電気化学センサなどに適用できる。

以上のことから、本発明を実施するための最良の形態によれば、
5 作用極フィルムと、作用極フィルムに対向する対極フィルムと、作用極フィルムと対極フィルムの間に挟まれるゲル電解質膜と、ゲル電解質膜の周囲を封止する封止部を有する電気化学セルにおいて、作用極フィルムと対極フィルムが、柔軟性を有するので、新規な電気化学セルを提供することができる。

10 本発明を実施するための最良の形態によれば、対極フィルム上に設けられた鋳型フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、鋳型フィルムを対極フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程と、封止フィルムの孔がゲル
15 電解質膜に対応するようにして、この封止フィルムを対極フィルム上に設置する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供することができる。

なお、本発明は上述の発明を実施するための最良の形態に限らず本発明の要旨を逸脱することなくその他種々の構成を採り得る

20 ことはもちろんである。

つぎに、電気化学セルおよびその製造方法にかかる第2の発明を実施するための最良の形態について説明する。図5は、電気化学セルの製造工程の他の例として、電子ペーパーのセルの製造工程を示すものである。図6は、図5における工程の詳細を示すものである。
25

工程Aは、第1の発明を実施するための最良の形態と同様である。

工程Bについて説明する。工程Bでは、図5Bおよび図6Bに

示すように、供給装置 3 内で、ゲル化剤、電解液、および溶媒を所定の温度で加熱混合してゲル溶液を作る。このゲル溶液を塗布装置 4 に供給する。塗布装置 4 は、対極フィルム 1 の上に設けられた鋳型フィルム 2 の孔に、ゲル溶液を塗布する。

5 ゲル溶液について説明する。

ゲル溶液は、以下のゲル電解質膜成分と溶媒を 70℃で混合することにより製造する。

ゲル電解質膜成分

ポリフッ化ビニリデンーヘキサフルオロプロピレン共重合体

10 20 部

(PVdF-HFP)(Kynar 2801、アトフィナジャパン社製)

電解液 (γ-BL)

120 部

酸化チタン

20 部

15 ここで、電解液は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

溶媒

ジメチルカーボネート (DMC)

60 部

20 ゲル電解質膜成分中のゲル化剤 PVdF-HFP 組成の好ましい範囲は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

ゲル電解質膜成分に対する溶媒の比率は、5～1000 質量%の範囲内にあることが好ましい。溶媒の比率が 5 質量%以上であると、溶媒の含有により粘度コントロールできる範囲が広がるという利点がある。溶媒の比率が 1000 質量%以下であると、ジ

25 メチルカーボネートと電解液溶媒 (γ-ブチロラクトン) が共沸しないで温度コントロールしやすいという利点がある。

ゲル化剤、電解質、その他の成分については、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

溶媒はジメチルカーボネートに限定されない。このほか、ジエチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、アセトンなどを用いることができる。溶媒は、電解液以外の有機溶媒であり、比較的沸点が低く後に加熱により蒸発させて最終製品には混入しないものが好ましい。

ゲル溶液の製造において、加熱温度は、 $50 \sim 150^{\circ}\text{C}$ の範囲内にあることが好ましい。加熱温度が 50°C 以上であると、粘度コントロールが容易になるという利点がある。加熱温度が 150°C 以下であると、電解液溶媒の蒸発を抑制できるという利点がある。

塗布装置 4 は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

鋳型フィルム 2 の孔の中に塗布されたゲル溶液の膜厚は、第 1 の発明を実施するための最良の形態の工程 B における、ゾル状ゲル前駆体 8 の膜厚の場合と同様である。

工程 C について説明する。工程 C では、図 5 C および図 6 C に示すように、ゲル溶液を加熱することにより溶媒を蒸発させ半ゲル化して半硬化ゲル 9 にする。

ゲル溶液の加熱について説明する。加熱方法は、熱風を吹き付ける方法、赤外線をあてる方法などを用いることができる。

P V d F - H F P およびその他のゲル化剤についての、半硬化ゲルの温度は、半硬化ゲルの粘度が好ましい範囲内（後述する）になるように決定する。

P V d F - H F P およびその他のゲル化剤についての、半硬化ゲルの粘度は、 $20 \sim 20000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ の範囲内にあることが好ましい。粘度が $20 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以上であると、半硬化ゲルの形が崩れないという利点がある。粘度が $20000 \text{ mPa}\cdot\text{s}$ 以下であると、半硬化ゲルが完全にゲル化していないので、塗りこぼし部

9 a と鋳型フィルム 2 が強力に接着するのを防止でき、鋳型フィルム 2 とともにゲルが剥がれるという問題がなくなるという利点がある。

5 工程 D は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

工程 E について説明する。工程 E では、図 5 E および図 6 E に示すように、半硬化ゲルを加熱して、ゲル電解質膜 10 を形成する。加熱方法は、工程 C と同様である。

10 工程 F ～ I 、およびその後の工程は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

工程 A ～ I およびその後の工程について説明した。これらの工程では、ロールツーロール方式で、電気化学セルを作製している。本発明の電気化学セルの作製は、このロールツーロール方式に限定されない。このほか、いわゆるバッチ方式により単一の電気化学セルを作製することもできる。

工程 A ～ I の方法により、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様な効果が得られる。また、ゲル溶液を用いることにより、ゾル状ゲル前駆体に比較して粘度調整の自由度が大きく、鋳型フィルム 2 の孔に流入させやすいという効果が得られる。

20 工程 A ～ I およびその後の工程により作製された電子ペーパーについて、評価を行った。評価項目および評価方法は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

評価結果について説明する。

25 作用極フィルムとゲル電解質膜、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の密着性については、目視により検査した結果白い部分は認められなかった。

作用極フィルムとゲル電解質膜の界面、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の界面における気泡の発生については、光学顕微

鏡で検査した結果全面に黒いドットが確認できた。

P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜のイオン伝導度 σ (S / cm) は、 $\sigma = 7.0 \times 10^{-5}$ (S / cm) であった。

つぎに、電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法について
5 説明する。電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法は、原則として、上述の電子ペーパーのセルの製造方法と同様である。なお、電気二重層キャパシタなど適用例の対極フィルム 1 の電極、作用極フィルム 7 の電極、およびゲル溶液の電解液は、第 1 の発明を実施するための最良の形態で説明した、電気二重層キャパシ
10 タなど適用例の対極フィルム 1 の電極、作用極フィルム 7 の電極、およびゾル状ゲル前駆体の電解液と同様である。

P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜を用いた電気化学セルは、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様の効果が得られる。

15 以上のことから、本発明を実施するための最良の形態によれば、作用極フィルムと、作用極フィルムに対向する対極フィルムと、作用極フィルムと対極フィルムの間に挟まれるゲル電解質膜と、ゲル電解質膜の周囲を封止する封止部を有する電気化学セルにおいて、作用極フィルムと対極フィルムが、柔軟性を有するので、
20 新規な電気化学セルを提供することができる。

本発明を実施するための最良の形態によれば、対極フィルム上に設けられた鋳型フィルムの孔に、ゲル溶液を入れる工程と、ゲル溶液を加熱して半硬化ゲルにする工程と、鋳型フィルムを対極フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを加熱して、ゲル電解質
25 膜を形成する工程と、封止フィルムの孔がゲル電解質膜に対応するようにして、この封止フィルムを対極フィルム上に設置する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供することができる。

なお、本発明は上述の発明を実施するための最良の形態に限らず本発明の要旨を逸脱することなくその他種々の構成を採り得ることはもちろんである。

つぎに、電気化学セルおよびその製造方法にかかる第3の発明
5 を実施するための最良の形態について説明する。

電気化学セルの製造方法について説明する。

工程A～Eは、第1の発明を実施するための最良の形態と同様である。

10 工程Fについて説明する。工程Fでは、封止フィルム6の孔6aがゲル電解質膜10に対応するようにして、この封止フィルム6を対極フィルム1上に設置する。その結果、ゲル電解質膜10の周囲を封止する封止部が形成される。

封止フィルム6は、孔6aの大きさを除いて、第1の発明を実施するための最良の形態と同様である。

15 封止フィルム6の孔6aは、鋳型フィルム2の孔2aに比較して、縦の長さや横の長さをそれぞれ所定の幅だけ大きくした。所定の幅は、0.5～5mmの範囲内にあることが好ましい。所定の幅が0.5mm以上であると、電解液と封止フィルムの接触を防止できるという利点がある。所定の幅が5mm以下であると、
20 ゲルが電極フィルムに十分はさまれて密着性が保たれるという利点がある。

工程G～I、およびその後の工程は、第1の発明を実施するための最良の形態と同様である。

25 工程Iでは、図7に示すような電気化学セルが得られる。この図7は、電気化学セルにスペースを設けた例を示すものである。封止フィルム6とゲル電解質膜10の間に隙間があり、封止フィルム6は、ゲル電解質膜10と非接触の状態にある。

工程A～Iおよびその後の工程について説明した。これらの工

程では、ロールツーロール方式で、電気化学セルを作製している。
本発明の電気化学セルの作製は、このロールツーロール方式に限定されない。このほか、いわゆるバッチ方式により単一の電気化学セルを作製することもできる。

- 5 工程 A ～ I の方法により、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様な効果が得られる。

工程 A ～ I およびその後の工程により作製された電子ペーパーについて、評価を行った。評価項目および評価方法は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

- 10 評価結果について説明する。

作用極フィルムとゲル電解質膜、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の密着性については、目視により検査した結果白い部分は認められなかった。

- 15 作用極フィルムとゲル電解質膜の界面、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の界面における気泡の発生については、光学顕微鏡で検査した結果全面に黒いドットが確認できた。

P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜のイオン伝導度 σ (S / cm) は、 $\sigma = 8.0 \times 10^{-5}$ (S / cm) であった。

- 20 電子ペーパーの封止フィルム 6 とゲル電解質膜 10 の間に隙間を設けたことにより得られる効果について評価を行った。

- 隙間の有無の評価は、つぎのように行った。電気化学セルを 45℃、80% RH、一週間の条件でエージングする。このエージングの前後における重量変化を計測することにより評価した。評価の対象は、第 3 の発明を実施するための最良の形態において作製したサンプル（隙間があるサンプル）である。評価の比較対象
25 としては、第 1 の発明を実施するための最良の形態において作製したサンプル（隙間がないサンプル）を用いた。

隙間の有無の評価結果について説明する。各サンプルのエージ

ング前後の重量は以下の通りであった。

	エージング前	エージング後
隙間があるサンプル	30.511 g	30.455 g
隙間がないサンプル	30.602 g	30.134 g

5

隙間があるサンプルは、隙間がないサンプルに比較して、重量変化が小さかった。隙間があるサンプルでは、電解液が封止フィルムを侵食しないので十分な密封性を確保できたが、隙間がないサンプルでは、電解液が封止フィルムを侵食するので密封性を十分に確保できなかったものと考えられる。

10

つぎに、電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法について説明する。

電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法は、原則として、上述の電子ペーパーのセルの製造方法と同様である。なお、電気二重層キャパシタなど適用例の対極フィルム1の電極、作用極フィルム7の電極、およびゾル状ゲル前駆体の電解液は、第1の発明を実施するための最良の形態で説明した、電気二重層キャパシタなど適用例の対極フィルム1の電極、作用極フィルム7の電極、およびゾル状ゲル前駆体の電解液と同様である。

15

20 以上のことから、発明を実施するための最良の形態によれば、作用極フィルムと、作用極フィルムに対向する対極フィルムと、作用極フィルムと対極フィルムの間に挟まれるゲル電解質膜と、ゲル電解質膜の周囲を封止する封止部を有する電気化学セルにおいて、作用極フィルムと対極フィルムが、柔軟性を有するので、

25 新規な電気化学セルを提供することができる。

本発明を実施するための最良の形態によれば、対極フィルム上に設けられた鋳型フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、鋳

型フィルムを対極フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程と、封止フィルムの孔がゲル電解質膜に対応するようにして、この封止フィルムを対極フィルム上に設置する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供することができる。

なお、本発明は上述の発明を実施するための最良の形態に限らず本発明の要旨を逸脱することなくその他種々の構成を採り得ることはもちろんである。

つぎに、電気化学セルおよびその製造方法にかかる第4の発明を実施するための最良の形態について説明する。

電気化学セルの製造方法について説明する。図8は、カバー付き鋳型封止フィルムの製造工程を示す図である。図10は、電気化学セルの製造工程の他の例を示す図である。図11および図12は、図10における工程の詳細を示す図である。

カバー付き鋳型封止フィルムの製造工程について説明する。この工程では、図8に示すように、カバーフィルム15、鋳型封止フィルム17、およびカバーフィルム16をローラ18、18により圧着する。つぎに、打ち抜き機19により孔を開ける。つぎに、カバーフィルム16を剥がすことにより、カバー付き鋳型封止フィルムを作製する。図9に示すように、カバー付き鋳型封止フィルム24は、カバーフィルム15と鋳型封止フィルム17からなる。

カバーフィルム15について説明する。

カバーフィルム15としては、表面処理されたポリエチレンテレフタレート（PET）（帝人社製）を用いた。表面処理した理由は、鋳型封止フィルム17とカバーフィルム15の剥離強度を小さくすることにより剥離しやすくするためである。

カバーフィルム15の厚さは、10 μ mである。カバーフィル

ム 1 5 の厚さはこの厚さに限定されない。カバーフィルム 1 5 の厚さは、 $5 \sim 20 \mu\text{m}$ の範囲内にあることが好ましい。厚さが $5 \mu\text{m}$ 以上であると、機械的強度が確保できるという利点がある。厚さが $20 \mu\text{m}$ 以下であると、鋳型封止フィルム 1 7 とゲル電解質膜 1 0 (後述する) の高さが揃えやすくなるという利点がある。

カバーフィルム 1 5 の材質は、上述の表面処理されたポリエチレンテレフタレート (PET) に限定されるものではない。このほか、表面処理されたポリブチレンテレフタレート (PBT)、ポリイミド、ポリカーボネートなどを用いることができる。

10 鋳型封止フィルム 1 7 について説明する。

鋳型封止フィルム 1 7 としては、ポリエチレンーポリプロピレンーポリエチレンの 3 層からなる 3 層フィルム (NHFM、愛知プラスチック社製) を用いた。

15 鋳型封止フィルム 1 7 の厚さは、工程 H までの過程を経て、ゲル電解質膜 1 0 の厚さが設定電解質膜厚になるように、決定する。設定電解質膜厚は、工程 H の説明において定義する。

鋳型封止フィルム 1 7 の材質は、上述のポリエチレンーポリプロピレンーポリエチレンの 3 層からなる 3 層フィルムに限定されるものではなく、ゾル状ゲル前駆体に侵食されないプラスチックフィルムを使用することができる。たとえば、アイオノマー樹脂、変性プロピレンなどを用いることができる。

カバーフィルム 1 6 について説明する。

25 カバーフィルム 1 6 の厚さは、 $50 \mu\text{m}$ である。カバーフィルム 1 6 の厚さはこの厚さに限定されない。カバーフィルム 1 6 の厚さは、 $5 \sim 1000 \mu\text{m}$ の範囲内にあることが好ましい。厚さが $5 \mu\text{m}$ 以上であると、機械的強度が確保できるという利点がある。厚さが $1000 \mu\text{m}$ 以下であると、打ち抜きや巻取りが容易であるという利点がある。

カバーフィルム 16 の材質はポリエチレンテレフタレート (PET) である。カバーフィルム 16 の材質は、これに限定されるものではない。このほか、ポリブチレンテレフタレート (PBT)、ポリイミド、ポリカーボネートなどを用いることができる。

5 熱圧着の圧力は 1000 N/cm^2 であった。熱圧着の圧力はこの値に限定されない。カバーフィルム 15、鋳型封止フィルム 17、およびカバーフィルム 16 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の圧力は $500 \sim 15000 \text{ N/cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

10 熱圧着の温度は 80°C であった。熱圧着の温度はこの値に限定されない。カバーフィルム 15、鋳型封止フィルム 17、およびカバーフィルム 16 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の温度は $50 \sim 100^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。

カバーフィルム 15 と鋳型封止フィルム 17 の剥離強度は 2 N/2 cm
15 $/2 \text{ cm}$ であった。カバーフィルム 16 と鋳型封止フィルム 17 の剥離強度は 5 N/2 cm であった。熱圧着の剥離強度はこの値に限定されない。カバーフィルム 15 と鋳型封止フィルム 17 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の剥離強度は $0.05 \sim 3 \text{ N/2 cm}$ の範囲にあることが好ましい。カバーフィル
20 ム 16 と鋳型封止フィルム 17 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、熱圧着の剥離強度は $0.2 \sim 10 \text{ N/2 cm}$ の範囲にあることが好ましい。

熱圧着の圧力、温度、および剥離強度が上述の範囲内にあると、熱圧着部を剥がす力が作用しないときは後の工程で剥離するのを
25 防止でき、かつ熱圧着部を剥がす力が作用するときは容易に剥離できるという利点がある。

カバー付き鋳型封止フィルム 24 の孔 24a は、第 1 の発明を実施するための最良の形態における鋳型フィルム 2 の孔 2a と同

様である。

工程 A について説明する。工程 A では、図 1 0 A および図 1 1 A に示すように、対極フィルム 1 の上にカバー付き鋳型封止フィルム 2 4 を圧着して設ける。

- 5 対極フィルム 1 は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

対極フィルム 1 とカバー付き鋳型封止フィルム 2 4 の熱圧着について説明する。

- 10 熱圧着の圧力は 1000 N/cm^2 であった。熱圧着の圧力はこの値に限定されない。対極フィルム 1 とカバー付き鋳型封止フィルム 2 4 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の圧力は $500 \sim 15000\text{ N/cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

- 15 熱圧着の温度は 80°C であった。熱圧着の温度はこの値に限定されない。対極フィルム 1 とカバー付き鋳型封止フィルム 2 4 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の温度は $50 \sim 100^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。

- 20 対極フィルム 1 とカバー付き鋳型封止フィルム 2 4 の剥離強度は 5 N/2 cm であった。熱圧着の剥離強度はこの値に限定されない。対極フィルム 1 とカバー付き鋳型封止フィルム 2 4 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、熱圧着の剥離強度は $0.2 \sim 10\text{ N/2 cm}$ の範囲にあることが好ましい。

- 25 熱圧着の圧力、温度、および剥離強度が上述の範囲内にあると、熱圧着部が、後の工程で剥離するのを防止できるという利点がある。

工程 B について説明する。工程 B では、図 1 0 B および図 1 1 B に示すように、供給装置 3 内で、ゲル化剤と電解液を所定の温度で加熱混合してゾル状ゲル前駆体を作る。このゾル状ゲル前駆

体を塗布装置 4 に供給する。塗布装置 4 は、対極フィルム 1 の上に設けられたカバー付き鋳型封止フィルム 2 4 の孔に、ゾル状ゲル前駆体を塗布する。

5 ゾル状ゲル前駆体は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

カバー付き鋳型封止フィルム 2 4 の孔 2 4 a の中に塗布されたゾル状ゲル前駆体 8 の膜厚は、工程 H までの過程を経て、ゲル電解質膜 1 0 の厚さが設定電解質膜厚になるように、決定する。

10 工程 C は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

工程 D について説明する。工程 D では、図 1 0 D および図 1 1 D に示すように、カバーフィルム 1 5 を鋳型封止フィルム 1 7 から剥がす。

15 図 1 7 は、鋳型封止フィルムを用いた電気化学セルを示す断面図である。引張試験機による剥離強度試験結果を比較する。カバーフィルム 1 5 と鋳型封止フィルム 1 7 の剥離強度は $2 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ であり、対極フィルム 1 と鋳型封止フィルム 1 7 の剥離強度は $5 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ であった。前者の剥離強度よりも後者の剥離強度のほうが大きい。よってカバーフィルム 1 5 を剥離させても鋳型封止フィルム 1 7 が対極フィルム 1 より剥離しない。

20 工程 E は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

25 工程 F ～ H、およびその後の工程は、第 1 の発明を実施するための最良の形態における工程 G ～ I、およびその後の工程と同様である。

工程 A ～ H およびその後の工程について説明した。これらの工程では、ロールツーロール方式で、電気化学セルを作製している。本発明の電気化学セルの作製は、このロールツーロール方式に限

定されない。このほか、いわゆるバッチ方式により単一の電気化学セルを作製することもできる。

5 工程 A ～ H の方法により、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様な効果が得られる。また、カバー付き鋳型封止フィルムを用いることにより、ゲル電解質膜と鋳型封止フィルムの位置決めを不要にすることができる。

工程 A ～ H およびその後の工程により作製された電子ペーパーについて、評価を行った。評価項目および評価方法は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

10 評価結果について説明する。

作用極フィルムとゲル電解質膜、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の密着性については、目視により検査した結果白い部分は認められなかった。

15 作用極フィルムとゲル電解質膜の界面、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の界面における気泡の発生については、光学顕微鏡で検査した結果全面に黒いドットが確認できた。

P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜のイオン伝導度 σ (S / cm) は、 8.2×10^{-5} (S / cm) であった。

20 つぎに、電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法について説明する。

電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法は、原則として、上述の電子ペーパーのセルの製造方法と同様である。なお、電気二重層キャパシタなど適用例の対極フィルム 1 の電極、作用極フィルム 7 の電極、およびゾル状ゲル前駆体の電解液は、第 1 の発明を実施するための最良の形態で説明した、電気二重層キャパシタなど適用例の対極フィルム 1 の電極、作用極フィルム 7 の電極、およびゾル状ゲル前駆体の電解液と同様である。

P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜を用いた電気化学セル

は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様の効果が得られる。

5 以上のことから、発明を実施するための最良の形態によれば、作用極フィルムと、作用極フィルムに対向する対極フィルムと、作用極フィルムと対極フィルムの間に挟まれるゲル電解質膜と、ゲル電解質膜の周囲を封止する封止部を有する電気化学セルにおいて、作用極フィルムと対極フィルムが、柔軟性を有するので、新規な電気化学セルを提供することができる。

10 本発明を実施するための最良の形態によれば、カバーフィルムと鋳型封止フィルムからなるカバー付き鋳型封止フィルムを、対極フィルム上に設ける工程と、カバー付き鋳型封止フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、カバーフィルムを鋳型封止フィルムから剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供
15 することができる。

なお、本発明は上述の発明を実施するための最良の形態に限らず本発明の要旨を逸脱することなくその他種々の構成を採り得ることはもちろんである。

20 つぎに、電気化学セルおよびその製造方法にかかる第 5 の発明を実施するための最良の形態について説明する。

電気化学セルの製造方法について説明する。図 1 3 は、電気化学セルの製造工程の他の例を示す図である。図 1 5 および図 1 6 は、図 1 3 における工程の詳細を示す図である。

25 工程 A について説明する。工程 A では、図 1 3 A および図 1 5 A に示すように、対極フィルム 1 の上にカバー付き粘着剤層フィルム 2 0 を圧着して設ける。

カバー付き粘着剤層フィルム 2 0 について説明する。図 1 4 は、

カバー付き粘着剤層フィルム 20 の構成を示すものである。カバー付き粘着剤層フィルム 20 は、カバーフィルム 21 と粘着剤層 22 からなっている。

カバーフィルム 21 について説明する。

- 5 カバーフィルム 21 としては、表面処理されたポリエチレンテレフタレート（PET）（50GS、リンテック社製）を用いた。表面処理した理由は、粘着剤層 22 とカバーフィルム 21 の剥離強度を小さくすることにより剥離しやすくするためである。

- 10 カバーフィルム 21 の厚さは、 $10\mu\text{m}$ である。カバーフィルム 21 の厚さはこの厚さに限定されない。カバーフィルム 21 の厚さは、 $5\sim 20\mu\text{m}$ の範囲内にあることが好ましい。厚さが $5\mu\text{m}$ 以上であると、機械的強度が確保できるという利点がある。厚さが $20\mu\text{m}$ 以下であると、粘着剤層 22 とゲル電解質膜 10（後述する）の高さが揃えやすくなるという利点がある。

- 15 カバーフィルム 21 の材質は、上述の表面処理されたポリエチレンテレフタレート（PET）に限定されるものではない。このほか、表面処理されたポリブチレンテレフタレート（PBT）、ポリイミド、ポリカーボネートなどを用いることができる。

- 20 粘着剤層 22 としては、粘着剤（G9000、ソニーケミカル社製）を用いた。この粘着剤は、無溶媒アクリル系両面粘着剤である。

粘着剤層 22 の厚さは、工程 H までの過程を経て、ゲル電解質膜 10 の厚さが設定電解質膜厚になるように、決定する。設定電解質膜厚は、工程 H において定義する。

- 25 粘着剤層 22 の材質は、上述の粘着剤（G9000）に限定されるものではない。このほか、製品としての安定性を維持するために耐電解液性を有するものを用いることができる。

粘着剤層 22 は、耐電解液性を有することが求められる。そこ

で、粘着剤層 22 の耐電解液性を評価した。

評価サンプルとしては、上述の粘着剤 (G 9 0 0 0) からなる粘着剤層を用いた。

5 評価方法は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。粘着剤層の耐電解液性の好ましい範囲は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

質量変化はつぎのようであった。粘着剤 (G 9 0 0 0) からなる粘着剤層は 4 質量% 増加した。この結果、粘着剤 (G 9 0 0 0) からなる粘着剤層は耐電解液性に優れていることがわかった。

10 カバーフィルム 21 と粘着剤層 22 の剥離強度は $5 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ であった。圧着の剥離強度はこの値に限定されない。カバーフィルム 21 と粘着剤層 22 に種々の厚さおよび材質を適用した場合、剥離強度は $0.2 \sim 10 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ の範囲にあることが好ましい。

15 圧着の剥離強度が上述の範囲内にあると、圧着部を剥がす力が作用しないときは後の工程で剥離するのを防止でき、かつ圧着部を剥がす力が作用するときは容易に剥離できるという利点がある。

対極フィルム 1 は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

20 対極フィルム 1 とカバー付き粘着剤層フィルム 20 の圧着について説明する。

圧着の圧力は $5000 \text{ N} / \text{cm}^2$ であった。圧着の圧力はこの値に限定されない。対極フィルム 1 とカバー付き粘着剤層フィルム 20 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、圧着の圧力は $1000 \sim 15000 \text{ N} / \text{cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

25 圧着の温度は常温であった。圧着の温度はこの値に限定されない。対極フィルム 1 とカバー付き粘着剤層フィルム 20 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、圧着の温度は $5 \sim 80^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。

対極フィルム 1 とカバー付き粘着剤層フィルム 20 の剥離強度は $1.5 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ であった。圧着の剥離強度はこの値に限定されない。対極フィルム 1 とカバー付き粘着剤層フィルム 20 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、圧着の剥離強度は $1.5 \text{ N} / 5$ 2 cm 以上の範囲にあることが好ましい。

圧着の圧力、温度、および剥離強度が上述の範囲内にあると、十分に接着できるという利点がある。

工程 B について説明する。工程 B では、図 13B および図 15B に示すように、供給装置 3 内で、ゲル化剤と電解液を所定の温度で加熱混合してゾル状ゲル前駆体を作る。このゾル状ゲル前駆体を塗布装置 4 に供給する。塗布装置 4 は、対極フィルム 1 の上に設けられたカバー付き粘着剤層フィルム 20 の孔に、ゾル状ゲル前駆体を塗布する。

ゾル状ゲル前駆体は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

カバー付き粘着剤層フィルム 20 の孔 20a の中に塗布されたゾル状ゲル前駆体 8 の膜厚は、工程 H までの過程を経て、ゲル電解質膜 10 の厚さが設定電解質膜厚になるように、決定する。

工程 C は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

工程 D について説明する。工程 D では、図 13D および図 15D に示すように、カバーフィルム 21 を粘着剤層 22 から剥がす。

図 18 は、粘着剤層を用いた電気化学セルを示す断面図である。引張試験機による剥離強度試験結果を比較する。カバーフィルム 21 と粘着剤層 22 の剥離強度は $5 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ であり、対極フィルム 1 と粘着剤層 22（常温で圧着）の剥離強度は $1.5 \text{ N} / 2 \text{ cm}$ であった。前者の剥離強度よりも後者の剥離強度のほうが大きい。よってカバーフィルム 21 を剥離させても粘着剤層 22 が対

極フィルム 1 より剥離しない。

工程 E は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

5 工程 F について説明する。工程 F では、図 1 3 F および図 1 6 A に示すように、粘着剤層 2 2 の上に作用極フィルム 7 を圧着して設ける。

作用極フィルム 7 は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

作用極フィルム 7 と粘着剤層 2 2 の圧着について説明する。

10 圧着の圧力は 5000 N/cm^2 であった。圧着の圧力はこの値に限定されない。作用極フィルム 7 と粘着剤層 2 2 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、圧着の圧力は $1000 \sim 15000 \text{ N/cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

15 圧着の温度は常温であった。圧着の温度はこの値に限定されない。作用極フィルム 7 と粘着剤層 2 2 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、圧着の温度は $5 \sim 80^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。

20 作用極フィルム 7 と粘着剤層 2 2 の剥離強度は 15 N/2 cm であった。圧着の剥離強度はこの値に限定されない。作用極フィルム 7 と粘着剤層 2 2 に種々の厚さおよび材質を適用した場合に、圧着の剥離強度は 15 N/2 cm 以上の範囲にあることが好ましい。

圧着の圧力、温度、および剥離強度が上述の範囲内にあると、十分に接着できるという利点がある。

25 工程 G について説明する。工程 G では、図 1 3 G および図 1 6 B に示すように、作用極フィルム 7 と対極フィルム 1 を挟んで加圧・加熱する。加圧・加熱は、所定の圧力・温度で、所定の時間行う。

加圧・加熱の方法は、第1の発明を実施するための最良の形態における工程Hと同様である。

圧力は 5000 N/cm^2 であった。圧力はこの値に限定されない。圧力は $1000\sim 15000\text{ N/cm}^2$ の範囲にあることが好ましい。

温度は 120°C であった。温度はこの値に限定されない。温度は $100\sim 150^\circ\text{C}$ の範囲にあることが好ましい。

加圧・加熱の時間は60秒であった。時間はこの値に限定されない。加圧・加熱の時間は $30\sim 60$ 秒の範囲にあることが好ましい。

作用極フィルム7と粘着剤層22の剥離強度は 15 N/2 cm であった。対極フィルム1と粘着剤層22の剥離強度は 15 N/2 cm であった。圧着の剥離強度はこの値に限定されない。作用極フィルム7、粘着剤層22、および対極フィルム1に種々の厚さおよび材質を適用した場合、圧着の剥離強度は 15 N/2 cm 以上の範囲にあることが好ましい。

圧着の圧力、温度、時間、および剥離強度が上述の範囲内にあると、粘着剤層22の形が崩れることなく十分に接着できるという利点がある。

加圧・加熱により、作用極フィルム7の電極とゲル電解質膜10の密着性、ならびに、対極フィルム1の電極とゲル電解質膜10の密着性が確保できる。

工程Hは、第1の発明を実施するための最良の形態における工程Iと同様である。

粘着剤層22は、封止部としての機能を有する。なお、この粘着剤層22の外側に、別に封止部を設けることもできる。

工程Hの後の工程は、第1の発明を実施するための最良の形態における工程Iの後の工程と同様である。

工程 A ～ H およびその後の工程について説明した。これらの工程では、ロールツーロール方式で、電気化学セルを作製している。本発明の電気化学セルの作製は、このロールツーロール方式に限定されない。このほか、いわゆるバッチ方式により単一の電気化学セルを作製することもできる。

工程 A ～ H の方法により、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様な効果が得られる。また、カバー付き粘着剤層フィルムを用いることにより、ゲル電解質膜と粘着剤層の位置決めを不要にすることができる。

10 工程 A ～ H およびその後の工程により作製された電子ペーパーについて、評価を行った。評価項目および評価方法は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

評価結果について説明する。

15 作用極フィルムとゲル電解質膜、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の密着性については、目視により検査した結果白い部分は認められなかった。

作用極フィルムとゲル電解質膜の界面、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の界面における気泡の発生については、光学顕微鏡で検査した結果全面に黒いドットが確認できた。

20 P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜のイオン伝導度 σ (S / cm) は、 8.1×10^{-5} (S / cm) であった。

つぎに、電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法について説明する。

25 電気二重層キャパシタなど適用例の製造方法は、原則として、上述の電子ペーパーのセルの製造方法と同様である。なお、電気二重層キャパシタなど適用例の対極フィルム 1 の電極、作用極フィルム 7 の電極、およびゾル状ゲル前駆体の電解液は、第 1 の発明を実施するための最良の形態で説明した、電気二重層キャパシ

タなど適用例の対極フィルム 1 の電極、作用極フィルム 7 の電極、およびゾル状ゲル前駆体の電解液と同様である。

P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜を用いた電気化学セルは、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様の効果が得られる。

以上のことから、発明を実施するための最良の形態によれば、作用極フィルムと、作用極フィルムに対向する対極フィルムと、作用極フィルムと対極フィルムの間に挟まれるゲル電解質膜と、ゲル電解質膜の周囲を封止する封止部を有する電気化学セルにおいて、作用極フィルムと対極フィルムが、柔軟性を有するので、新規な電気化学セルを提供することができる。

本発明を実施するための最良の形態によれば、カバーフィルムと粘着剤層からなるカバー付き粘着剤層フィルムを、対極フィルム上に設ける工程と、カバー付き粘着剤層フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、ゾル状ゲル前駆体を冷却して半硬化ゲルにする工程と、カバーフィルムを粘着剤層から剥がす工程と、半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程を有するので、新規な電気化学セルの製造方法を提供することができる。

なお、本発明は上述の発明を実施するための最良の形態に限らず本発明の要旨を逸脱することなくその他種々の構成を採り得ることはもちろんである。

つぎに、電気化学セルおよびその製造方法にかかる比較例について説明する。

[比較例 1]

P V d F - H F P ゲルからなるゲル電解質膜と、リジッド電極板を用いた電子ペーパーを作製した。リジッド電極板に口の字型の封止フィルムを貼り付け、その中に加熱溶融させたゾル状ゲル前駆体をディスペンサにより滴下させ、さらにもう 1 つリジッド

電極板で密閉した。

作製された電子ペーパーについて、評価を行った。評価項目および評価方法は、第1の発明を実施するための最良の形態と同様である。

5 評価結果について説明する。

作用極フィルムとゲル電解質膜、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の密着性については、目視により検査した結果、全面のうち一部に白い部分が認められた。

10 作用極フィルムとゲル電解質膜の界面、ならびに対極フィルムとゲル電解質膜の界面における気泡の発生については、光学顕微鏡で検査した結果、全面のうち黒いドットが50%のみ確認できた。

P V d F - H F P 系ゲルのゲル電解質膜のイオン伝導度 σ (S / cm) は、 1.0×10^{-6} (S / cm) であった。

15 [比較例2]

P V d F - H F P 系ゲルからなるゲル電解質膜の作製を、次の方法により試みた。P V d F - H F P 系ゲループレインフィルムの打ち抜き・加工を試みた。この方法は、一般的な粘着シートの製造法である。しかし、ゲルにおいては液分を多く含んでおり、
20 機械的強度がないので、後で打ち抜き・加工できない。よって電子ペーパーを作製することができなかった。

[比較例3]

アクリル系ゲルからなるゲル電解質膜の作製を、次の方法により試みた。アクリル系ゲループレインフィルムの打ち抜き・加工
25 を試みた。しかし、ゲルにおいては液分を多く含んでおり、機械的強度がないので、後で打ち抜き・加工できない。よって電子ペーパーを作製することができなかった。なお、アクリル系ゲルとは、電解液と単官能・多官能アクリルモノマーを混合し、モノマ

ーを重合させてゲル化させたのである。

〔比較例 4〕

5 アクリル系ゲルからなるゲル電解質膜を、鋳型フィルムを用いて作製した。アクリルモノマーは酸素存在下においてはゲル化しない。ゲル化させるためにカバーフィルム（P E T）を取り付け、紫外線で硬化させると塗りこぼし部までも完全に硬化してしまい、鋳型フィルムに接着してしまう。鋳型フィルムを剥がす時に、ゲルまでも剥がれてしまう。また、その後の作用極フィルムの貼り合せにおいて、電極とのコンタクトを確立するためにタックが必要となるが、重合は酸素が遮断された状態のみでおこり、途中で剥がせばさらに重合を進行させることができない。

〔比較例 5〕

15 アクリルモノマーを封止部の厚みまで滴下し、液状のモノマーの状態で作作用極フィルムを貼り合せセル化する。その後、外部の酸素を遮断した状態で光もしくは熱によりゲル化する。この場合、アクリルモノマーと電解液の混合液の滴下量の微妙な制御が必要になる。また滴下するために粘度を低くする必要があるので実施が困難である。

〔比較例 6〕

20 アクリルゲルからなるゲル電解質膜と、リジッド電極を用いた電子ペーパーを作製した。あらかじめ適当なギャップをもつ空セルを作製する。つぎに電解液、酸化チタン、アクリルモノマー、および開始剤を十分攪拌したものを真空注入により空セルに充填する。つぎに注入口をふさぐ。つぎに、加熱して開始剤を反応させてアクリルのゲル化を行った。

25 作製された電子ペーパーについて、イオン伝導度の評価を行った。評価方法は、第 1 の発明を実施するための最良の形態と同様である。

アクリルゲルのゲル電解質膜のイオン伝導度 σ (S / c m) は、
 9×10^{-6} (S / c m) であった。

[比較例 7]

5 ゲランガム（和光純薬工業社製）からなるゲル電解質膜を作製した。これを用いて電子ペーパーを作製した。しかしながら、ゲランガムでは満足な電気化学的性能が得られなかった。ゲル電解質膜のイオン伝導度 σ は 2×10^{-6} (S / c m) であった。なお、ゲランガムとは、物理ゲルの一種である。

請求の範囲

1. 作用極フィルムと、
上記作用極フィルムに対向する対極フィルムと、
上記作用極フィルムと上記対極フィルムの間に挟まれるゲル電
5 解質膜と、
上記ゲル電解質膜の周囲を封止する封止部を有する電気化学セルにおいて、
上記作用極フィルムと上記対極フィルムは、柔軟性を有することを特徴とする電気化学セル。
- 10 2. 封止部とゲル電解質膜の間に、隙間があることを特徴とする請求の範囲第1項記載の電気化学セル。
3. 封止部は粘着剤からなることを特徴とする請求の範囲第1項記載の電気化学セル。
4. 電気化学セルは、電子ペーパー、電気二重層キャパシタ、色
15 素増感太陽電池、リチウムイオン電池、または調光ガラスであることを特徴とする請求の範囲第1項記載の電気化学セル。
5. 対極フィルム上に設けられた鋳型フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を入れる工程と、
上記ゾル状ゲル前駆体を冷却して所定の粘度の半硬化ゲルにする
20 工程と、
上記鋳型フィルムを上記対極フィルムから剥がす工程と、
上記半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程と、
封止フィルムの孔が上記ゲル電解質膜に対応するようにして、
この封止フィルムを上記対極フィルム上に設置する工程を有する
25 ことを特徴とする電気化学セルの製造方法。
6. 封止フィルムは、ゲル電解質膜と非接触の状態にあることを特徴とする請求の範囲第5項記載の電気化学セルの製造方法。
7. 対極フィルム上に設けられた鋳型フィルムの孔に、ゲル溶液

を入れる工程と、

上記ゲル溶液を加熱して所定の粘度の半硬化ゲルにする工程と、

上記鋳型フィルムを上記対極フィルムから剥がす工程と、

上記半硬化ゲルを加熱して、ゲル電解質膜を形成する工程と、

- 5 封止フィルムの孔が上記ゲル電解質膜に対応するようにして、
この封止フィルムを上記対極フィルム上に設置する工程を有する
ことを特徴とする電気化学セルの製造方法。

8. 封止フィルムは、ゲル電解質膜と非接触の状態にあることを
特徴とする請求の範囲第7項記載の電気化学セルの製造方法。

- 10 9. カバーフィルムと鋳型封止フィルムからなるカバー付き鋳型
封止フィルムを、対極フィルム上に設ける工程と、

上記カバー付き鋳型封止フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を
入れる工程と、

- 15 上記ゾル状ゲル前駆体を冷却して所定の粘度の半硬化ゲルにす
る工程と、

上記カバーフィルムを上記鋳型封止フィルムから剥がす工程と、

上記半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程を有
する

ことを特徴とする電気化学セルの製造方法。

- 20 10. カバーフィルムと粘着剤層からなるカバー付き粘着剤層フ
ィルムを、対極フィルム上に設ける工程と、

上記カバー付き粘着剤層フィルムの孔に、ゾル状ゲル前駆体を
入れる工程と、

- 25 上記ゾル状ゲル前駆体を冷却して所定の粘度の半硬化ゲルにす
る工程と、

上記カバーフィルムを上記粘着剤層から剥がす工程と、

上記半硬化ゲルを冷却して、ゲル電解質膜を形成する工程を有
する

ことを特徴とする電気化学セルの製造方法。

FIG. 1

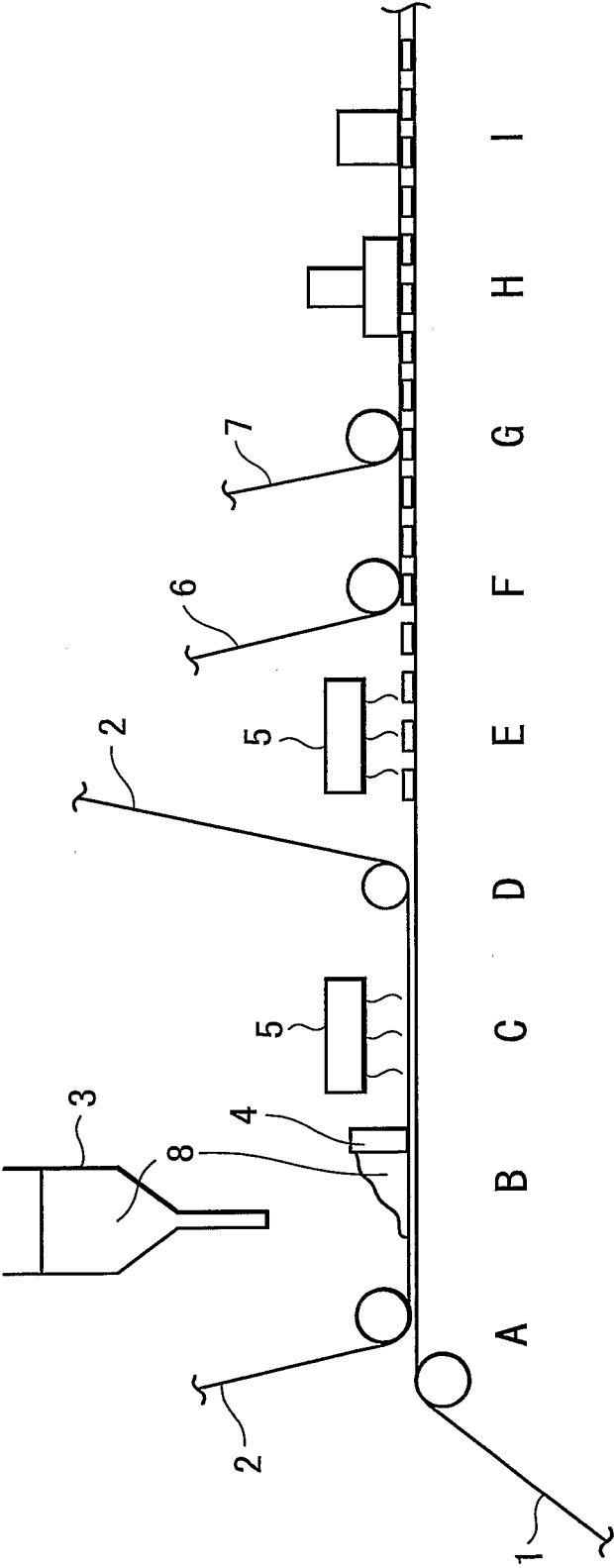


FIG. 2A

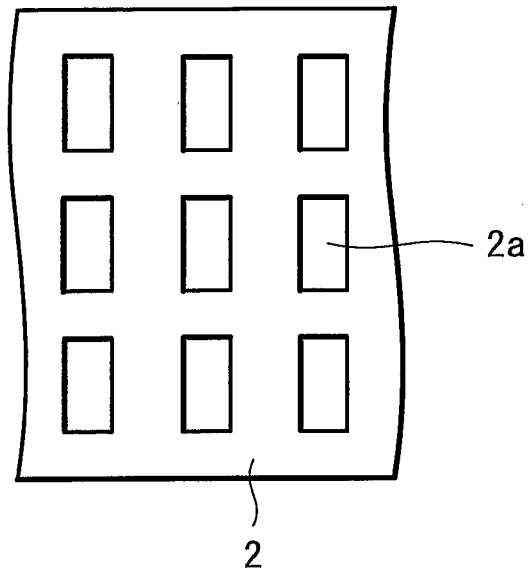


FIG. 2B

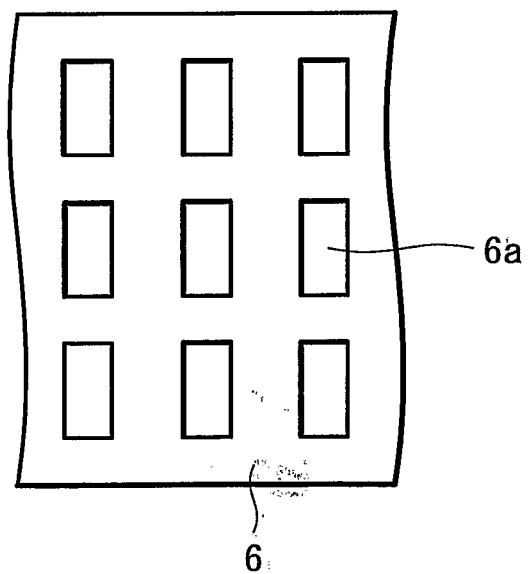


FIG. 3A

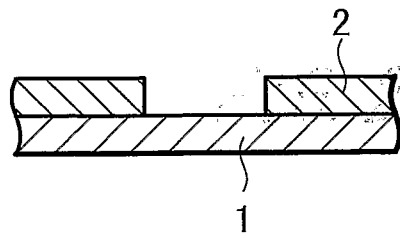


FIG. 3B

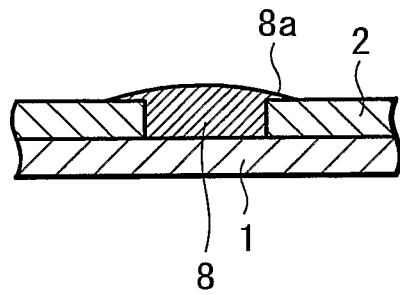


FIG. 3C

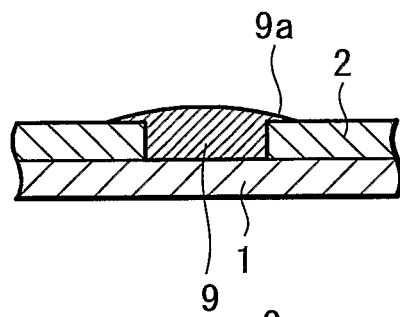


FIG. 3D

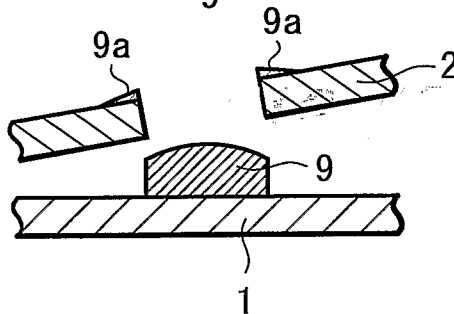


FIG. 3E

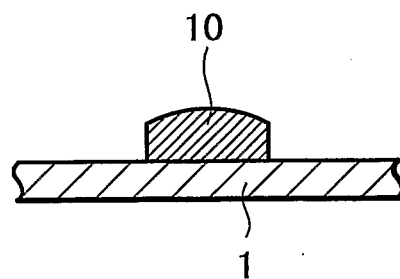


FIG. 3F

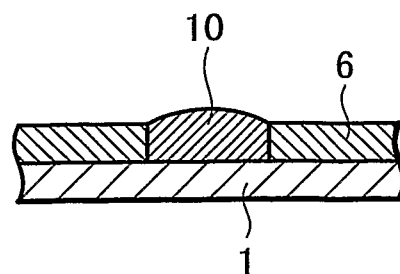


FIG. 4A

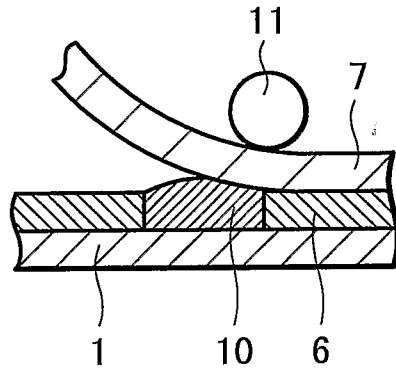


FIG. 4B

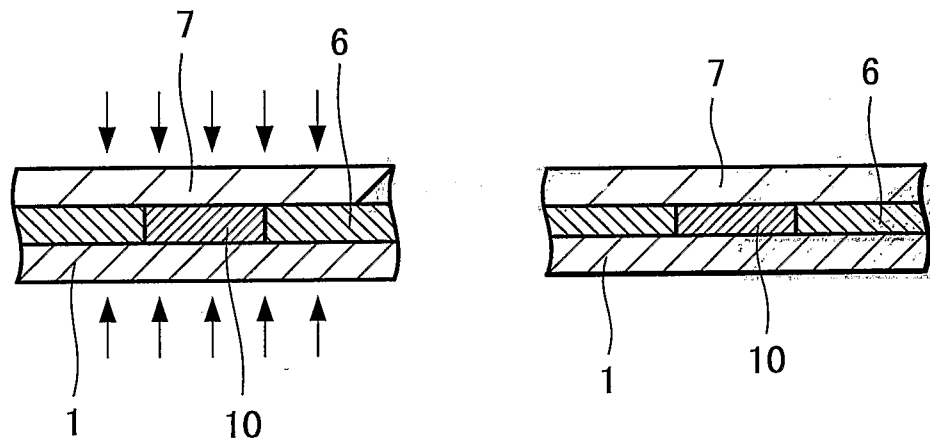


FIG. 4C

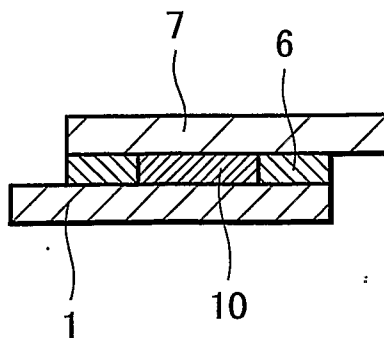


FIG. 5

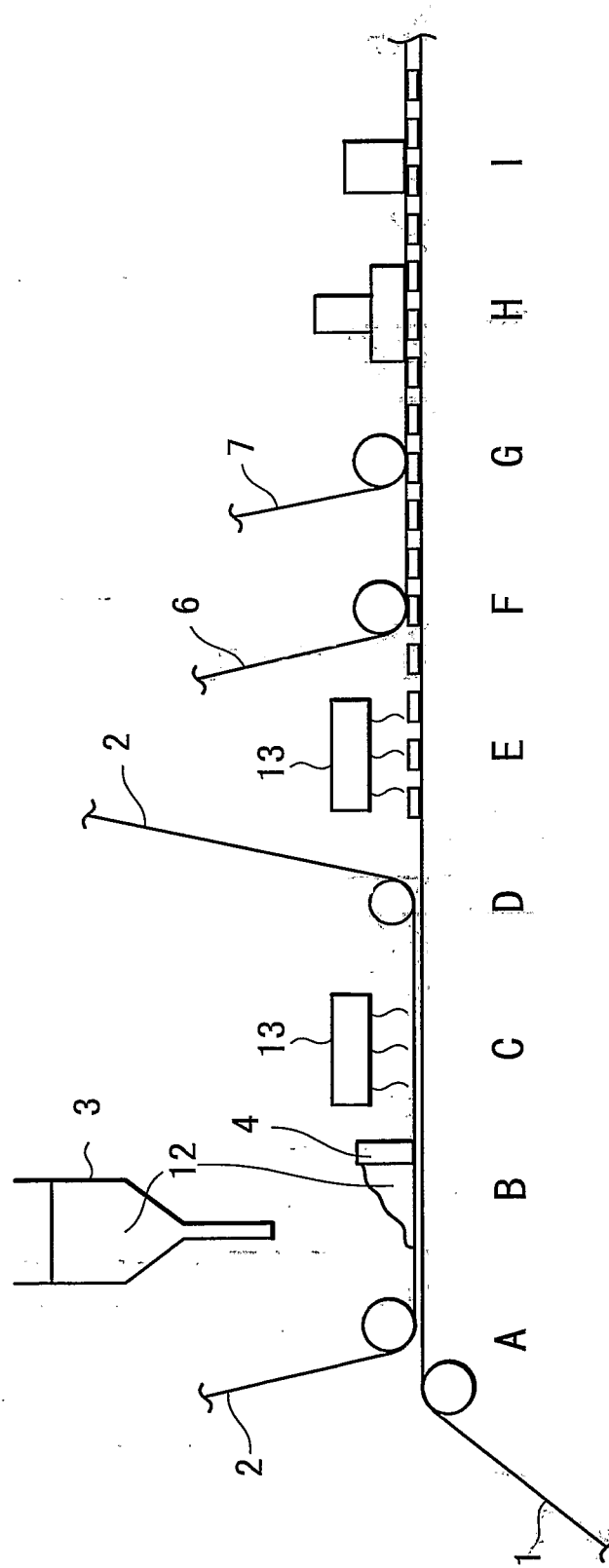


FIG. 6A

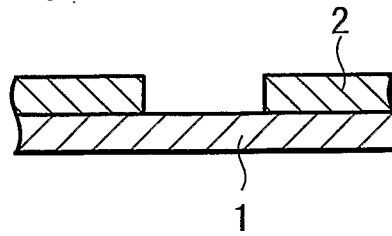


FIG. 6B

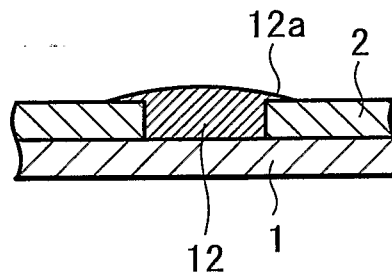


FIG. 6C

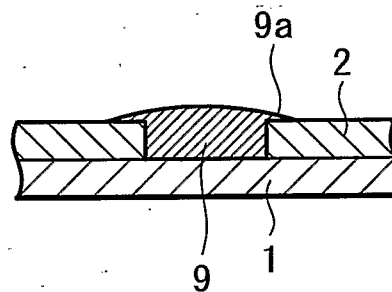


FIG. 6D

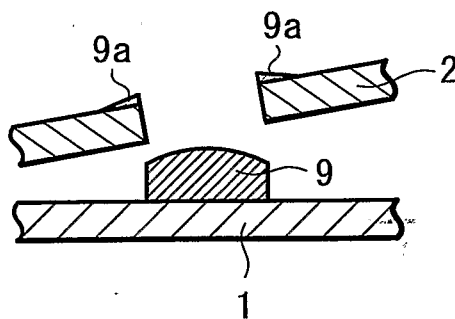


FIG. 6E

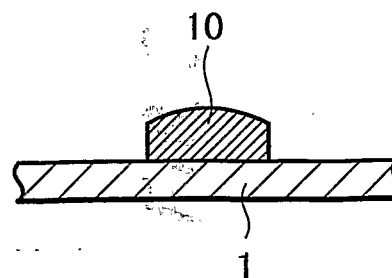


FIG. 7

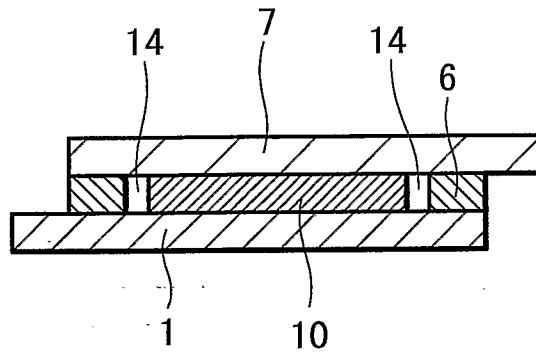


FIG. 8

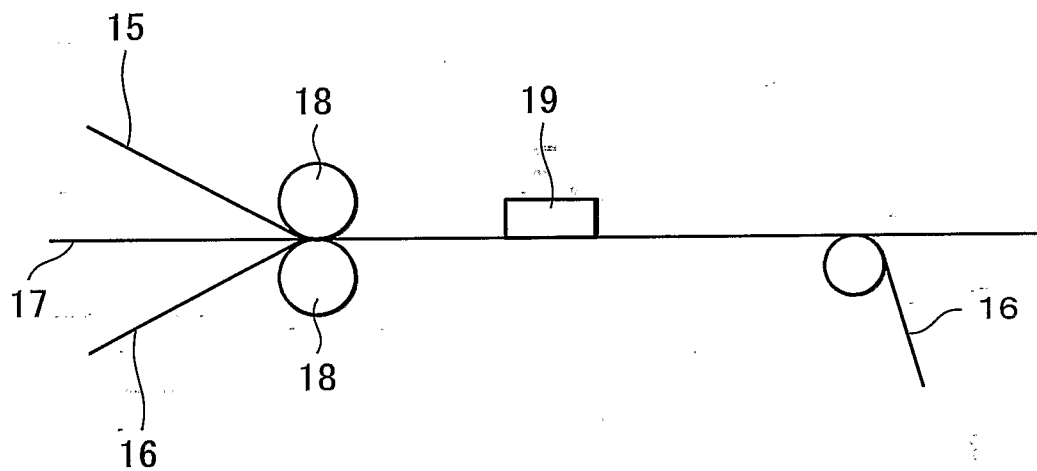


FIG. 9A

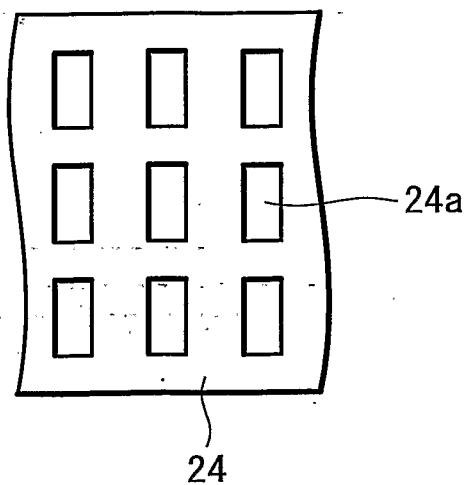


FIG. 9B

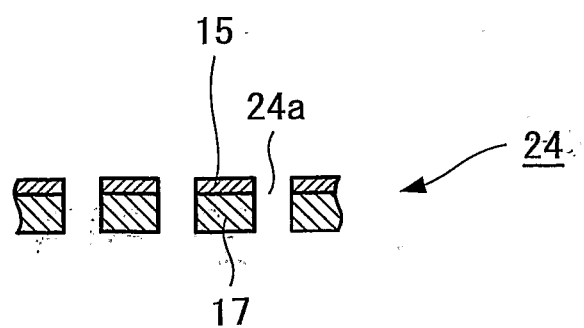


FIG. 10

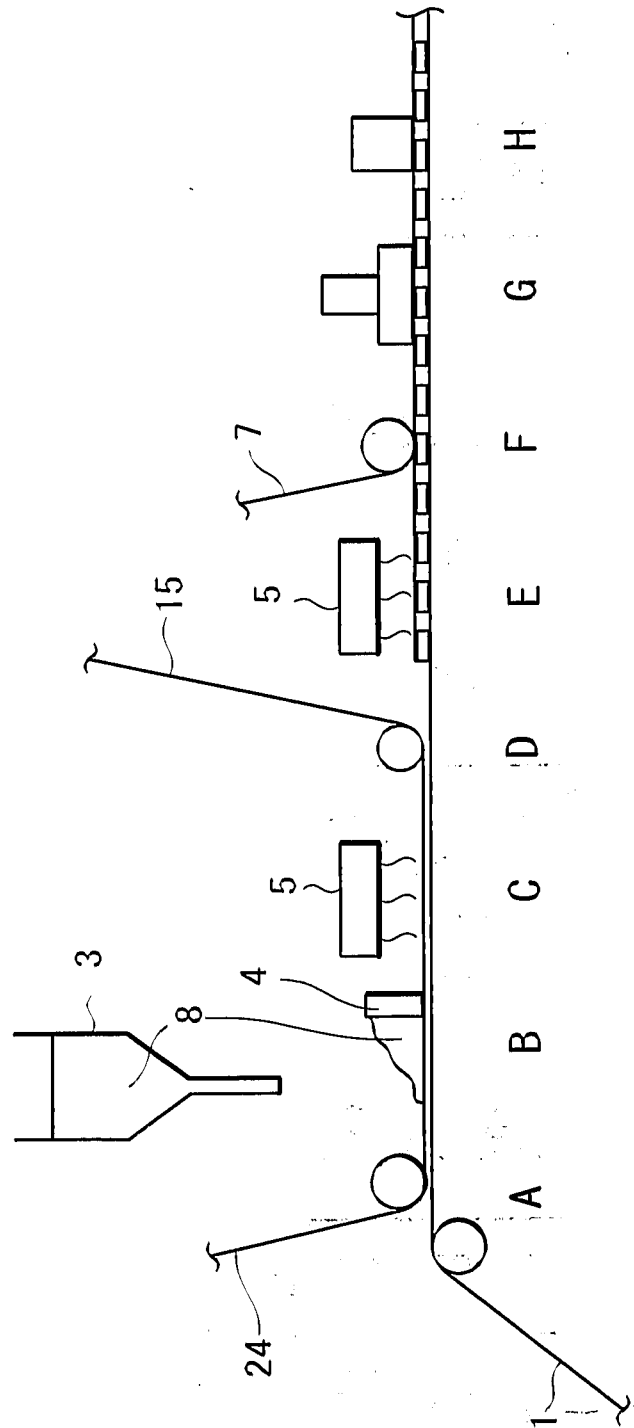


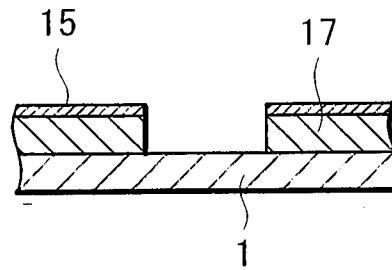
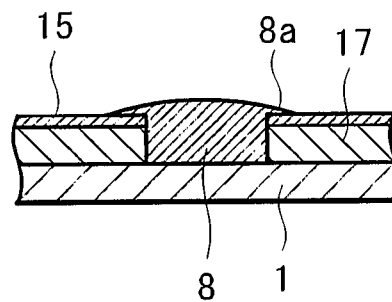
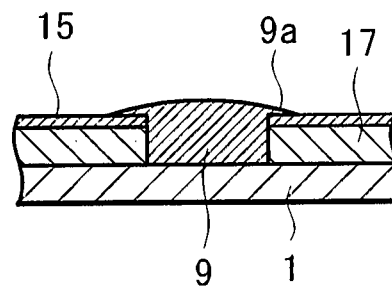
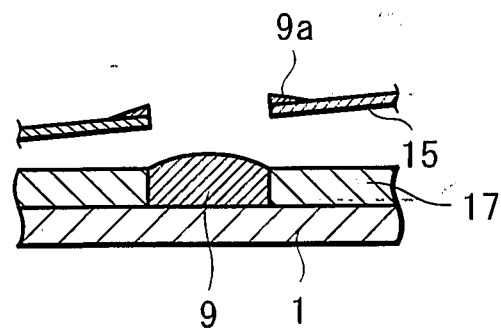
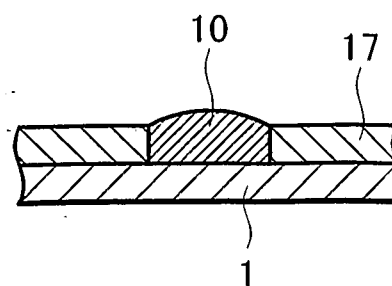
FIG. 11A*FIG. 11B**FIG. 11C**FIG. 11D**FIG. 11E*

FIG. 12A

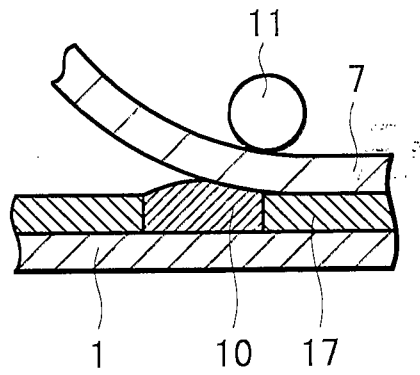


FIG. 12B

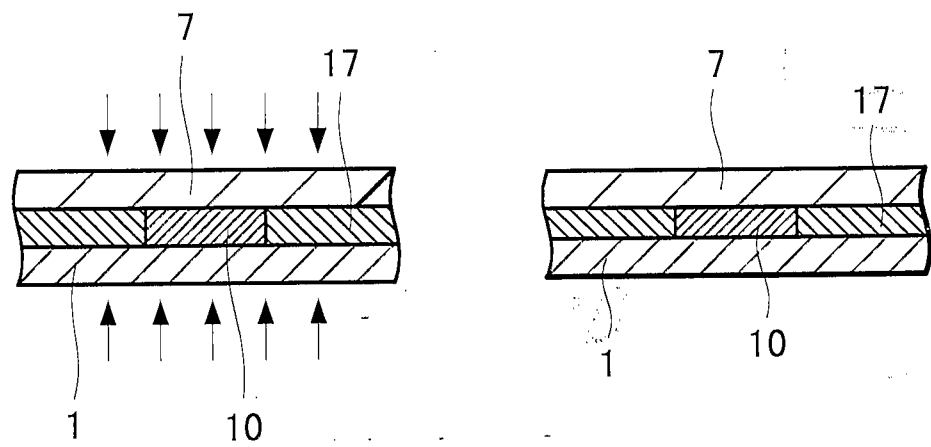


FIG. 12C

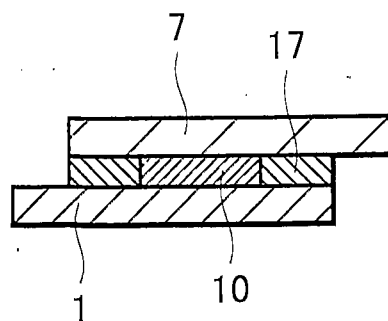


FIG. 13

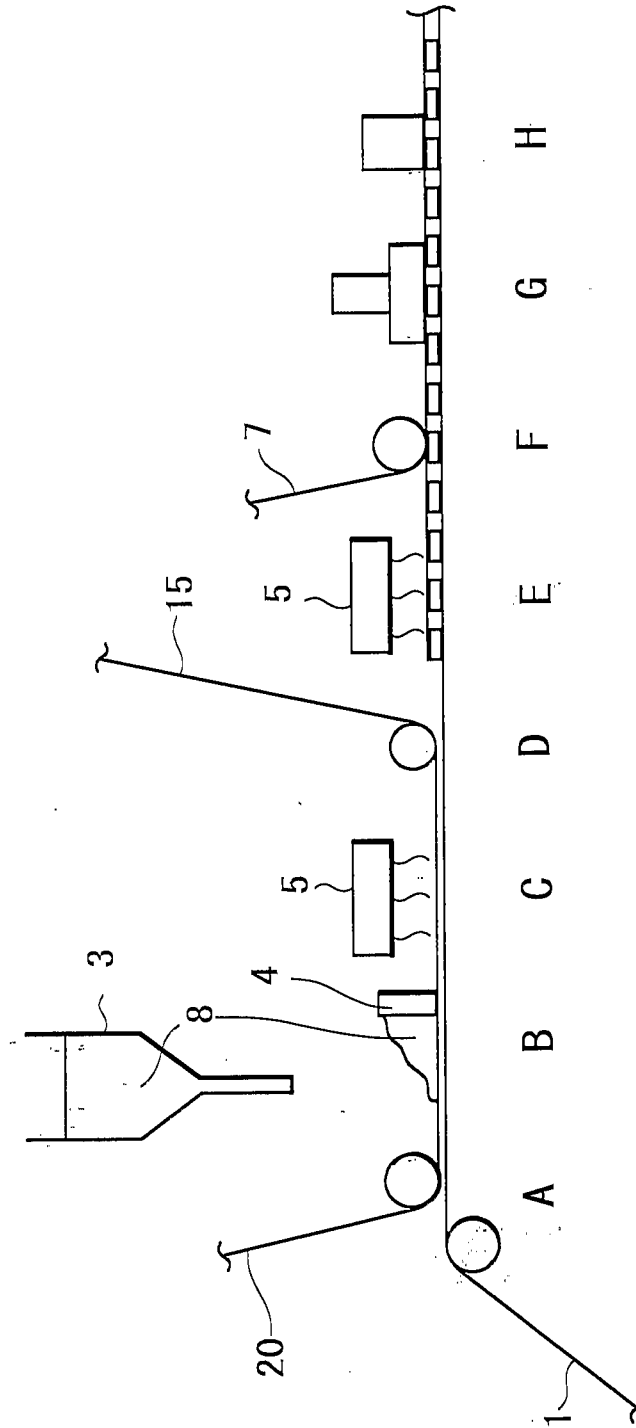


FIG. 14A

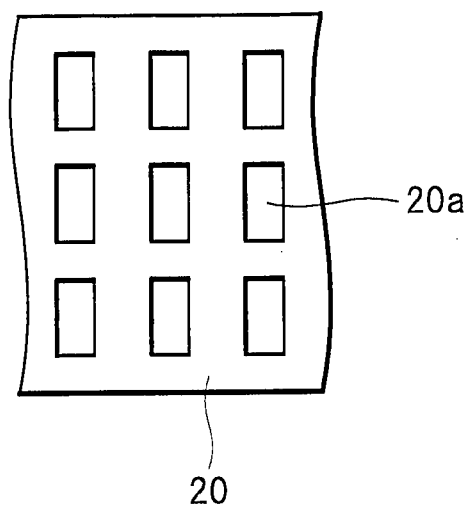


FIG. 14B

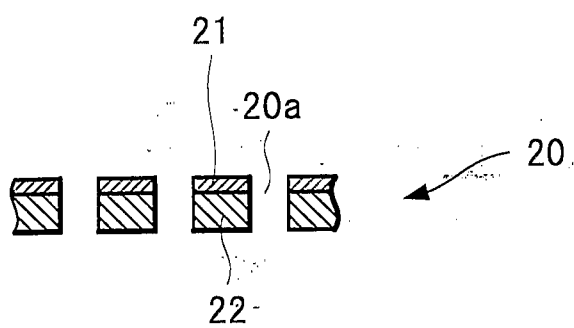


FIG. 15A

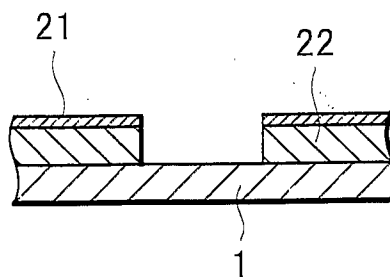


FIG. 15B

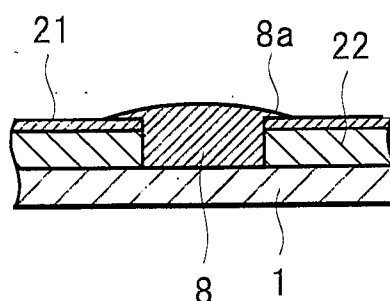


FIG. 15C

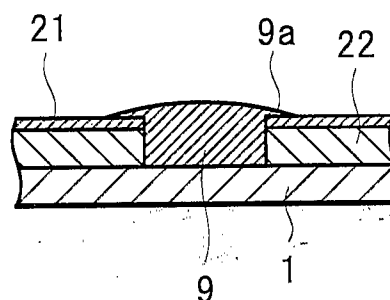


FIG. 15D

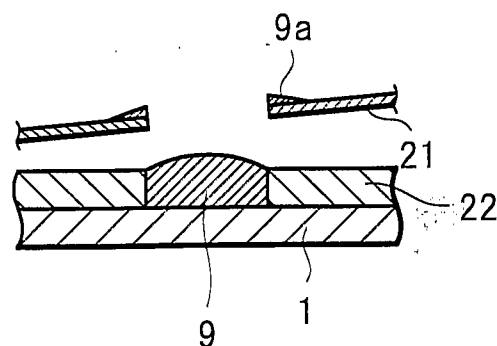


FIG. 15E

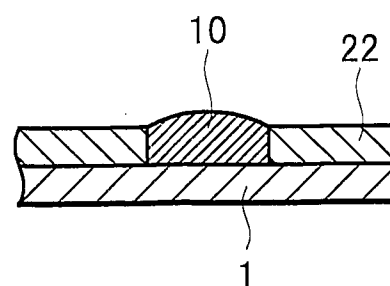


FIG. 16A

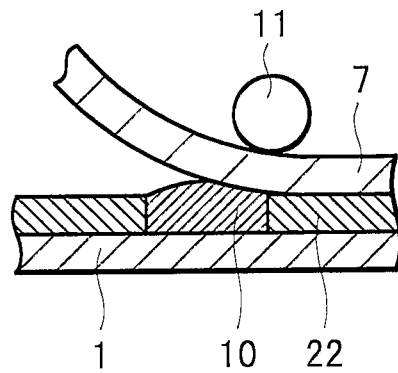


FIG. 16B

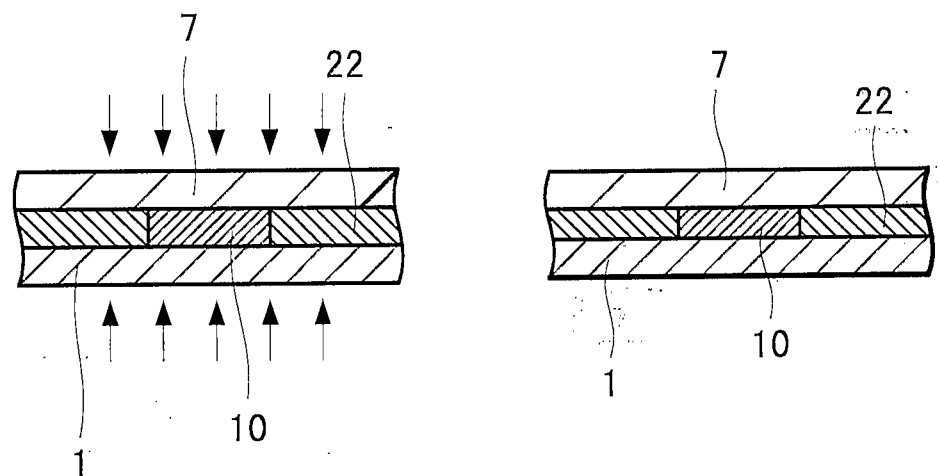


FIG. 16C

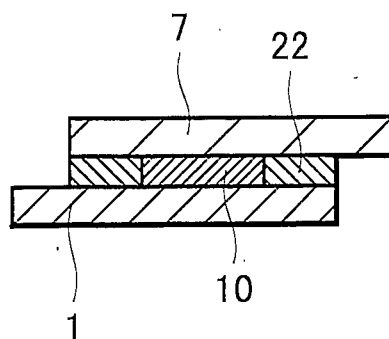


FIG. 17

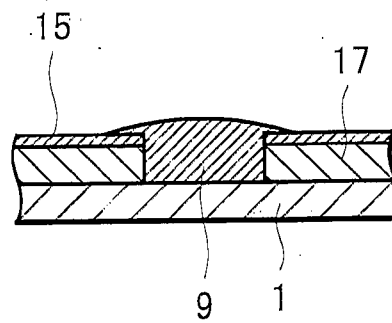


FIG. 18

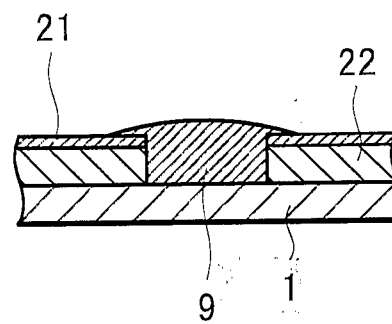
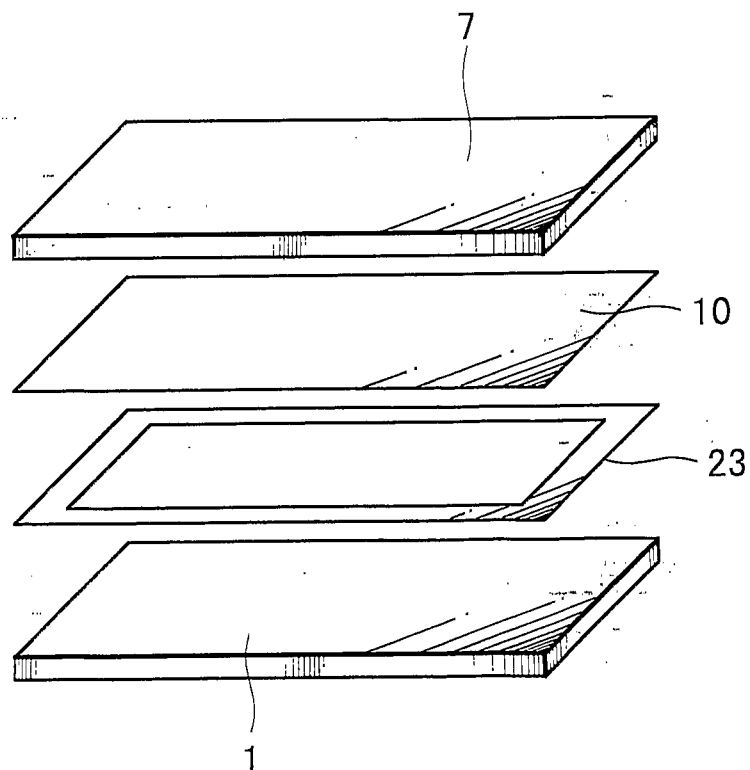


FIG. 19



引用符号の説明

- 1 …… 対極フィルム
- 2 …… 鋳型フィルム
- 2 a …… 孔
- 3 …… 供給装置
- 4 …… 塗布装置
- 5 …… 冷却装置
- 6 …… 封止フィルム
- 6 a …… 孔
- 7 …… 作用極フィルム
- 8 …… ゼル状ゲル前駆体
- 8 a …… 塗りこぼし部
- 9 …… 半硬化ゲル
- 9 a …… 塗りこぼし部
- 10 …… ゲル電解質膜
- 11 …… ローラ
- 12 …… ゲル溶液
- 12 a …… 塗りこぼし部
- 13 …… 加熱装置
- 14 …… スペース
- 15 …… カバーフィルム
- 16 …… カバーフィルム
- 17 …… 鋳型封止フィルム
- 18 …… ローラ
- 19 …… 打ち抜き機
- 20 …… カバー付き粘着剤層フィルム
- 20 a …… 孔
- 21 …… カバーフィルム

2 2 粘着剤層

2 3 封止材

2 4 カバー付き鋳型封止フィルム

2 4 a 孔

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/308930

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

G02F1/15 (2006.01), **G09F9/00** (2006.01), **G09F9/30** (2006.01), **H01G9/038** (2006.01), **H01M10/40** (2006.01), **H01M14/00** (2006.01)

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)

G02F1/15 (2006.01), **G09F9/00** (2006.01), **G09F9/30** (2006.01), **H01G9/038** (2006.01), **H01M10/40** (2006.01), **H01M14/00** (2006.01)

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	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

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 9-309173 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 02 December, 1997 (02.12.97), Par. Nos. [0082], [0111], [0118] to [0161]; Figs. 1, 9 & US 2001-14420 A1 & EP 956603 A & WO 97/35351 A1	1-4 5-10
A	JP 2000-2899 A (Bayer AG.), 07 January, 2000 (07.01.00), Par. No. [0075] & US 6323988 B1 & EP 961159 A2 & DE 19824127 A	1-10



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
30 June, 2006 (30.06.06)

Date of mailing of the international search report
11 July, 2006 (11.07.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2006/308930

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 62-273514 A (Nippon Kogaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 27 November, 1987 (27.11.87), Page 4, lower left column, line 20 to upper right column, line 3 (Family: none)	1-10

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. G02F1/15(2006. 01), G09F9/00(2006. 01), G09F9/30(2006. 01), H01G9/038(2006. 01), H01M10/40(2006. 01), H01M14/00(2006. 01)			
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（I P C）） Int.Cl. G02F1/15(2006. 01), G09F9/00(2006. 01), G09F9/30(2006. 01), H01G9/038(2006. 01), H01M10/40(2006. 01), H01M14/00(2006. 01)			
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 日本国公開実用新案公報 日本国実用新案登録公報 日本国登録実用新案公報 1 9 2 2－1 9 9 6年 1 9 7 1－2 0 0 6年 1 9 9 6－2 0 0 6年 1 9 9 4－2 0 0 6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 請求の範囲の番号
X A	J P 9－3 0 9 1 7 3 A（昭和電工株式会社） 1 9 9 7. 1 2. 0 2, 第8 2, 1 1 1, 1 1 8－1 6 1 段落、 図1, 9 & U S 2 0 0 1－1 4 4 2 0 A 1 & E P 9 5 6 6 0 3 A & W O 9 7 / 3 5 3 5 1 A 1		1－4 5－1 0
A	J P 2 0 0 0－2 8 9 9 A（バイエル・アクチエンゲゼルシャフト）2 0 0 0. 0 1. 0 7, 第7 5 段落 & U S 6 3 2 3 9 8 8 B 1 & E P 9 6 1 1 5 9 A 2 & D E 1 9 8 2 4 1 2 7 A		1－1 0
☒ 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 3 0 . 0 6 . 2 0 0 6		国際調査報告の発送日 1 1 . 0 7 . 2 0 0 6	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（I S A / J P） 郵便番号1 0 0－8 9 1 5 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） 右田 昌士 電話番号 0 3－3 5 8 1－1 1 0 1 内線 3 2 5 5	2 L 9 5 1 3

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリ*	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 請求の範囲の番号
A	J P 6 2 - 2 7 3 5 1 4 A (日本光学工業株式会社) 1 9 8 7 . 1 1 . 2 7 , 第 4 頁左下第 2 0 行 ~ 同頁右上第 3 行 (ファミリーなし)	1 - 1 0