

(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  
2019年3月21日(21.03.2019)



(10) 国際公開番号  
**WO 2019/054216 A1**

(51) 国際特許分類:  
*H01M 2/18* (2006.01) *H01M 10/0585* (2010.01)  
*H01M 2/16* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2018/032491

(22) 国際出願日: 2018年8月31日(31.08.2018)

(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 2017-176783 2017年9月14日(14.09.2017) JP

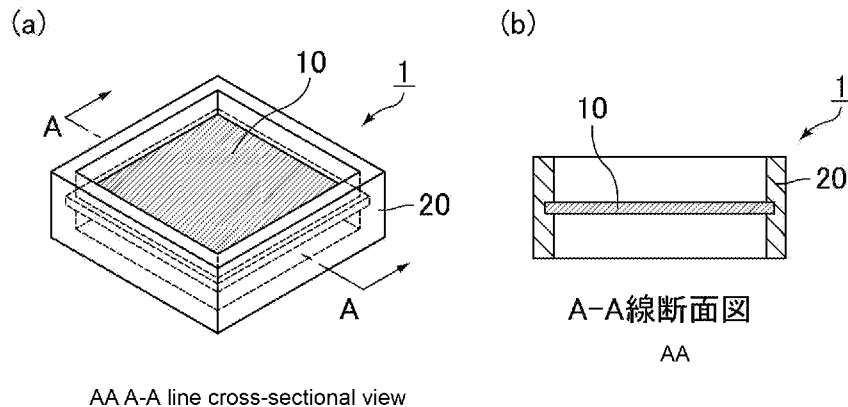
(71) 出願人: 日産自動車株式会社(NISSAN MOTOR CO., LTD.) [JP/JP]; 〒2210023 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 Kanagawa (JP).

(72) 発明者: 大倉 仁寿 (OKURA, Masatoshi); 〒6050995 京都府京都市東山区一橋野本町1-1番地の1 三洋化成工業株式会社内 Kyoto (JP). 小池 政法(KOIKE, Masanori); 〒6050995 京都府京都市東山区一橋野本町1-1番地の1 三洋化成工業株式会社内 Kyoto (JP). 蕪木 智裕 (KABURAGI, Tomohiro); 〒2430123 神奈川県厚木市森の里青山1-1 日産自動車株式会社知的財産部内 Kanagawa (JP). 依田 和之(YODA Kazuyuki); 〒2430123 神奈川県厚木市森の里青山1-1 日産自動車株式会社知的財産部内 Kanagawa (JP). 草地 雄樹(KUSACHI, Yuki); 〒2430123 神奈川県厚木市森の里青山1-1 日産自動車株式会社知的財産部内 Kanagawa (JP). 大澤 康彦(OHSAWA, Yasuhiko); 〒2430123 神

(54) Title: SEPARATOR FOR LITHIUM ION BATTERY

(54) 発明の名称: リチウムイオン電池用セパレータ

[図1]



(57) Abstract: The present invention provides a separator for a lithium ion battery, the separator being capable of exhibiting superior handleability while suppressing thermal deformation without altering the separator thickness. The present invention is a separator for a lithium ion battery, the separator being disposed between a flat-plate-like positive electrode current collector and a flat-plate-like negative electrode current collector. The separator for a lithium ion battery is characterized by comprising: a sheet-like separator body that comprises a polyolefin porous membrane; and a frame-like member that is arranged annularly along the outer periphery of the separator body, wherein the frame-like member comprises a heat-resistant annular support member and a sealing layer that is disposed on the surface of the heat-resistant annular support member and is capable of thermocompression bonding with the positive electrode current collector or the negative



WO 2019/054216 A1

奈川県厚木市森の里青山 1 - 1 日産自動車株式会社 知的財産部内 Kanagawa (JP). 峰岸 栄治 (MINEGISHI, Eiji); 〒2430123 神奈川県厚木市森の里青山 1 - 1 日産自動車株式会社 知的財産部内 Kanagawa (JP).

(74) 代理人: 八田 国際特許業務法人 (HATTA & ASSOCIATES); 〒1020084 東京都千代田区二番町 1 1 番地 9 ダイアパレス二番町 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, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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, ST, 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).

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

---

electrode current collector.

(57) 要約: 本発明は、セパレータの厚さを変えることなく、優れた取扱性と熱変形の抑制を両立させることができるリチウムイオン電池用セパレータを提供する。本発明は、平板状の正極集電体と平板状の負極集電体との間に配置されるリチウムイオン電池用セパレータであって、ポリオレフィン多孔質膜からなるシート状のセパレータ本体と、上記セパレータ本体の外周に沿って環状に配置される枠状部材とからなり、上記枠状部材は、耐熱性環状支持部材と、上記耐熱性環状支持部材の表面に配置される、正極集電体又は負極集電体と熱圧着が可能なシール層とからなることを特徴とするリチウムイオン電池用セパレータである。

## 明 細 書

発明の名称： リチウムイオン電池用セパレータ

### 技術分野

[0001] 本発明は、リチウムイオン電池用セパレータに関する。

### 背景技術

[0002] 近年、環境保護のため二酸化炭素排出量の低減が切に望まれている。自動車業界では、電気自動車（EV）やハイブリッド電気自動車（HEV）の導入による二酸化炭素排出量の低減に期待が集まっており、これらの実用化の鍵を握るモータ駆動用二次電池の開発が鋭意行われている。二次電池としては、高エネルギー密度、高出力密度が達成できるリチウムイオン電池（リチウムイオン二次電池ともいう）に注目が集まっている。

[0003] リチウムイオン電池を構成する材料のうち、正極と負極との短絡を防ぐ部材であるセパレータとしては、安全性の観点からポリオレフィンの多孔質膜を基材としたものが多く用いられている。ポリオレフィンの多孔質膜は、電池が短絡や過充電などによって急激に発熱した時に熔融して空孔を閉塞することで電池の内部抵抗を上昇させて電池の安全性を向上させる機能（シャットダウン機能）がある。

[0004] 一方で、セパレータ基材であるポリオレフィンの多孔質膜は、延伸によって多孔質構造を形成しているため、所定の温度（収縮温度）以上に加熱されると収縮・変形（以下、熱変形ともいう）を起こす特性を有している。そのため、電池の使用による発熱や電池製造時に加えられる熱によってセパレータ基材の温度が上記収縮温度を超えて熱変形を起こしてしまい、内部短絡が発生する恐れがあった。

[0005] 熱変形による内部短絡を防止できるセパレータとして、国際公開第2007/66768号（米国特許出願公開第2007/0264577号明細書に相当）に記載のセパレータが提案されている。詳しくは、融点80～130℃の樹脂A及び加熱により非水電解液を吸収して膨張する樹脂Bからなる

第1セパレータ層と、耐熱温度が150℃以上のフィラーを主体として含む第2セパレータ層とからなり、第1セパレータ層又は第2セパレータ層の少なくとも一方が板状粒子を含むセパレータが開示されている。

### 発明の概要

- [0006] リチウムイオン電池の電気容量の観点から、全体に占める電極活物質の比率は高い方が好ましい。また電極間のイオン抵抗を低下させる観点からセパレータはその厚さを薄くすることが望まれている。しかしながら、セパレータの厚さが薄くなるほど、その取扱性が低下し、積層時の位置合わせが困難になったり、シワが発生しやすくなるという問題があった。
- [0007] 一方、熱変形による内部短絡を防止することができる国際公開第2007/66768号（米国特許出願公開第2007/0264577号明細書に相当）に記載されたセパレータは、積層体であるためにセパレータの厚さが従来のものに比べて厚くなりやすい。そのため、セパレータの取扱性は向上するが、リチウムイオン電池全体に占めるセパレータの容積が増加する分だけ、リチウムイオン電池全体に占める電極活物質の比率が減少して容量を大きくすることが困難になるという問題があった。
- [0008] 本発明は、上記課題を鑑みてなされたものであり、セパレータの厚さを変えることなく、優れた取扱性と熱変形の抑制を両立させることができるリチウムイオン電池用セパレータを提供することを目的とする。
- [0009] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、本発明に到達した。すなわち、本発明は、平板状の正極集電体と平板状の負極集電体との間に配置されるリチウムイオン電池用セパレータである。さらに、本発明のセパレータは、ポリオレフィン多孔質膜からなるシート状のセパレータ本体と、上記セパレータ本体の外周に沿って環状に配置される枠状部材とからなる。さらに上記枠状部材は、耐熱性環状支持部材と、上記耐熱性環状支持部材の表面に配置される、正極集電体又は負極集電体と熱圧着が可能なシール層と、からなることを特徴とするリチウムイオン電池用セパレータに関する。

## 図面の簡単な説明

[0010] [図1]図1 (a) は本発明のリチウムイオン電池用セパレータの一例を模式的に示す斜視図であり、図1 (b) は、図1 (a) におけるA-A線断面図である。

[図2]図2 (a) 及び図2 (b) はそれぞれ、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを構成する枠状部材の構成の例を模式的に示す断面図である。

[図3]図3 (a) ~図3 (e) は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを構成するセパレータ本体と枠状部材を構成する各層との位置関係の例を示す断面図である。

[図4]図4 (a) ~図4 (f) は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを用いてリチウムイオン電池を製造する方法の一例を模式的に示す説明図である。

[図5]図5は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを備えたリチウムイオン電池の一例を模式的に示す説明図である。

[図6]図6は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを備えたリチウムイオン電池の別の一例を模式的に示す説明図である。

## 発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明を詳細に説明する。なお、本明細書において、リチウムイオン電池と記載する場合、リチウムイオン二次電池も含む概念とする。

[0012] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータは、平板状の正極集電体と平板状の負極集電体との間に配置されるリチウムイオン電池用セパレータである。さらに、本発明のセパレータは、ポリオレフィン多孔質膜からなるシート状のセパレータ本体と、上記セパレータ本体の外周に沿って環状に配置される枠状部材とからなる。さらに上記枠状部材は、耐熱性環状支持部材と、上記耐熱性環状支持部材の表面に配置される、正極集電体又は負極集電体と熱圧着が可能なシール層とからなる。かかる構成を有することにより、本発明のリチウムイオン電池用セパレータは、セパレータの厚さを変えことなく、優れた取扱性と熱変形の抑制を両立させることができる。

[0013] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータは、巻回型のリチウムイオン電池（以下、単に巻回型電池ともいう）に用いてもよく、積層型（非巻回式）のリチウムイオン電池（以下、単に積層型電池ともいう）に用いてもよい。積層型電池を製造する際に、特にセパレータの取り扱いに精密さが要求されることを考慮すると、積層型（非巻回式）リチウムイオン電池に用いることが望ましい。

[0014] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータの構成を、図1（a）及び図1（b）を用いて説明する。図1（a）は本発明のリチウムイオン電池用セパレータの一例を模式的に示す斜視図であり、図1（b）は、図1（a）におけるA-A線断面図である。図1（a）に示すように、リチウムイオン電池用セパレータ1は、平板状のセパレータ本体10と、セパレータ本体10の外周に沿って環状に配置される枠状部材20とからなる。また、図1（a）及び図1（b）に示すように、枠状部材20の外形寸法はセパレータ本体10の外形寸法よりも大きいため、セパレータ本体10の側面は枠状部材20により覆われている。

[0015] 続いて、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを構成する枠状部材の構成について、図2（a）及び図2（b）を用いて説明する。図2（a）及び図2（b）はそれぞれ、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを構成する枠状部材の構成の例を模式的に示す断面図である。リチウムイオン電池用セパレータを構成する枠状部材（20'、20）は、図2（a）及び図2（b）に示すように、耐熱性環状支持部材21と、その表面に配置される正極集電体又は負極集電体と熱圧着が可能なシール層22で構成されている。図2（b）に示すように、枠状部材20を構成するシール層22は、正極集電体と熱圧着が可能な第1シール層22aと、負極集電体と熱圧着が可能な第2シール層22bから構成されていてもよい。また、枠状部材20が、第1シール層22aと第2シール層22bの間に耐熱性環状支持部材21が配置された積層体であってもよい。なお、図2（a）及び図2（b）に示す枠状部材では、セパレータ本体の記載を省略しているが、セパレータ本体が配

置される位置は特に限定されない。

[0016] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータでは、セパレータ本体の外周に沿って環状に配置された枠状部材がセパレータ本体を支持しているため、セパレータ本体単独の場合と比較して取扱性に優れる。さらに、セパレータ本体が熱変形を起こすような条件に晒された場合であっても、耐熱性環状支持部材がその形状を保持することで、セパレータ本体の熱変形を抑制することができる。また、枠状部材が配置されているのはセパレータ本体の外周部のみであるため、正極活物質層及び負極活物質層の間に挟まれるセパレータ本体の厚さは薄いままで維持され、電極間のイオン抵抗を増加させるものではない。従って、本発明のリチウムイオン電池用セパレータでは、セパレータの厚さを変えることなく、優れた取扱性と熱変形の抑制とを両立させることができる。そして、耐熱性環状支持部材の表面に形成されたシール層が本発明のリチウムイオン電池用セパレータと集電体との接着を可能とする。そのため、リチウムイオン電池用セパレータと集電体とを接着する際に、別途接着剤を準備する必要がなく、製造工程を簡素化することができる。

[0017] 耐熱性環状支持部材の表面とは、耐熱性環状支持部材の集電体と対向する面を指すが、それ以外の面（例えば耐熱性環状支持部材の外側面や内側面）にもシール層が配置されていてもよい。すなわち、シール層は、耐熱性環状支持部材のうち集電体と対向する面だけに配置されていてもよく、それ以外の面にも配置されていてもよい。

[0018] 耐熱性環状支持部材は、溶融温度が150℃以上である耐熱性樹脂組成物を含んでいることが望ましく、溶融温度が200℃以上である耐熱性樹脂組成物を含んでいることがより望ましい。耐熱性環状支持部材が、溶融温度150℃以上である耐熱性樹脂組成物を含むことで、枠状部材が熱に対してより変形しにくくなる。耐熱性樹脂組成物の溶融温度（単に融点ともいう）は、JIS K7121-1987に準拠して示差走査熱量測定によって測定される。

[0019] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、耐熱性樹脂組成物を

構成する樹脂としては、熱硬化性樹脂（エポキシ樹脂及びポリイミド等）、エンジニアリング樹脂〔ポリアミド（ナイロン6 融融温度：約230℃、ナイロン66 融融温度：約270℃等）、ポリカーボネート（PCともいう 融融温度：約150℃）及びポリエーテルエーテルケトン（PEEKともいう 融融温度：約330℃）等〕及び高融点熱可塑性樹脂〔ポリエチレンテレフタレート（PETともいう 融融温度：約250℃）、ポリエチレンナフタレート（PENともいう 融融温度：約260℃）及び高融点ポリプロピレン（融融温度：約160～170℃）等〕等が挙げられる。なお、高融点熱可塑性樹脂とは、JIS K7121-1987に準拠して示差走査熱量測定によって測定される融融温度が150℃以上の熱可塑性樹脂を指す。

[0020] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、耐熱性樹脂組成物は、ポリアミド、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、高融点ポリプロピレン、ポリカーボネート及びポリエーテルエーテルケトンからなる群から選択される少なくとも1種の樹脂を含むことが望ましい。

[0021] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、耐熱性樹脂組成物は、フィラーを含んでもよい。耐熱性樹脂組成物がフィラーを含むことで、融融温度を向上させることができる。上記フィラーとしては、ガラス繊維等の無機フィラー及び炭素繊維等が挙げられる。フィラーを含む耐熱性樹脂組成物としては、ガラス繊維に硬化前のエポキシ樹脂を含浸させて硬化させたもの（ガラスエポキシともいう）及び炭素繊維強化樹脂などが挙げられる。

[0022] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータを構成する枠状部材が、第1シール層と第2シール層の間に耐熱性環状支持部材が配置された積層体であったとしても、該積層体は本発明のリチウムイオン電池用セパレータを構成するセパレータ本体の外周部に沿って配置されているに過ぎない。すなわち、本発明のリチウムイオン電池用セパレータの中央部は、国際公開第2007/66768号（米国特許出願公開第2007/0264577号明細書に

相当)に記載されたような積層構造を有しない。従って、電池の内部抵抗を低下させることができる。

[0023] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、枠状部材を構成するシール層は単層構造であってもよく、複層構造であってもよい。すなわち、シール層は、正極集電体と熱圧着が可能な第1シール層と、負極集電体と熱圧着が可能な第2シール層とからなってもよい。

[0024] シール層を構成する材料は、集電体と熱圧着が可能であればよく、例えばポリオレフィンを含むことが望ましい。シール層を構成するポリオレフィンとしては、例えば、市販のポリオレフィン系ホットメルト接着樹脂〔三井化学株式会社製アドマー（登録商標）及び東ソー株式会社製メルセン（登録商標）等〕及び低融点ポリエチレン等が挙げられる。またシール層が複層構造である場合、第1シール層と第2シール層を構成する材料は同じであってもよく、異なってもよい。なお、低融点ポリエチレンとは、JIS K 7121-1987に準拠して示差走査熱量測定によって測定される熔融温度が150℃未満のポリエチレンを指す。熱圧着時におけるセパレータ本体の温度上昇を抑制する観点から、シール層に用いる低融点ポリエチレンの熔融温度は100℃以下が好ましい。なお、本発明のリチウムイオン電池用セパレータに用いることのできる低融点ポリエチレンには、市販の低密度ポリエチレン樹脂及び高密度ポリエチレン樹脂等が含まれる。

[0025] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、枠状部材の厚さは、特に限定されないが、60~600 $\mu$ mであることが望ましい。

[0026] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、シール層の厚さは、特に限定されないが、合計で10~100 $\mu$ mであることが望ましい。シール層の厚さが10~100 $\mu$ mであると、集電体との接着性が良好となり好ましい。

[0027] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、耐熱性環状支持部材の厚さは、特に限定されないが、50~500 $\mu$ mであることが望ましい。耐熱性環状支持部材の厚さが50~500 $\mu$ mであると、熱変形しにくくな

り好ましい。耐熱性環状支持部材は2層以上で構成されていてもよく、耐熱性環状支持部材が2層以上で構成されている場合には、耐熱性環状支持部材同士の間、セパレータ本体が配置されていてもよい。

[0028] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、セパレータ本体と枠状部材とを接合する方法は特に限定されないが、接着剤により接合されていてもよいし、正極集電体又は負極集電体と熱圧着が可能なシール層の一部を用いて接合されていてもよい。接着剤としては、上述した市販のポリオレフィン系ホットメルト接着樹脂及び低融点ポリエチレン等が挙げられる。また、枠状部材の原料を溶融させた状態でセパレータ本体上に塗布した後冷却する等の方法により、セパレータ本体上で直接枠状部材を作製することによっても、セパレータ本体と枠状部材とを接合させることができる。

[0029] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、ポリオレフィン多孔質膜からなるシート状のセパレータ本体の厚さは、特に限定されないが、10～1000 $\mu$ mであることが望ましい。

[0030] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、セパレータ本体としては、多孔質ポリオレフィンからなる公知のリチウムイオン電池用セパレータ〔旭化成株式会社製ハイポア（登録商標）、旭化成株式会社製セルガード（登録商標）及び宇部興産株式会社製ユーポア（登録商標）等〕を用いることができる。

[0031] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータの平面視形状は、特に限定されないが、三角形、四角形、五角形等の多角形や、円形、楕円形等が挙げられる。本発明のリチウムイオン電池用セパレータを構成するセパレータ本体及び枠状部材の形状は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータと組み合わせる集電体（正極集電体及び負極集電体）の形状並びに本発明のリチウムイオン電池用セパレータを収容する電池外装体等の形状にあわせて調整すればよい。

[0032] 上面視におけるセパレータ本体の外形寸法は、セパレータ本体と枠状部材との接続の関係から、枠状部材の内形寸法よりも大きく、枠状部材の外形寸

法以下であることが望ましい。上記条件を満たすセパレータ本体の外形寸法は、例えば、枠状部材の内形寸法よりも大きく外形寸法よりも小さい寸法、枠状部材の外形寸法と同一の寸法が挙げられる。これらの中では、枠状部材の内形寸法よりも大きく外形寸法よりも小さい寸法がより望ましい。セパレータ本体の外形寸法が、枠状部材の内形寸法よりも大きく外形寸法よりも小さいと、セパレータ本体と枠状部材とが十分な面積で接合されるため、シール時の熱応力によってセパレータ本体から枠状部材が剥離することがない。一方、セパレータ本体の外形寸法が枠状部材の外形寸法よりも大きいと、枠状部材から外側に向かってセパレータ本体がはみ出すため、リチウムイオン電池を製造する際に不要な空間となってしまう、エネルギー密度の低下を招くことがある。また、セパレータ本体の外形寸法が枠状部材の外形寸法と同一であると、リチウムイオン電池用セパレータの側面にセパレータ本体が露出することとなるため、セパレータ本体からの電解液の漏れなどを防ぐために、別途対策が必要となることがある。

[0033] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおいて、セパレータ本体と枠状部材との位置関係は、特に限定されず、例えば、第1シール層の表面（耐熱性環状支持部材とは反対側）にセパレータ本体が配置されていてもよい。また、第1シール層と耐熱性環状支持部材との間にセパレータ本体が配置されていてもよく、耐熱性環状支持部材の中間（第1耐熱性環状支持部材と第2耐熱性環状支持部材との間）にセパレータ本体が配置されていてもよい。さらに、耐熱性環状支持部材と第2シール層との間にセパレータ本体が配置されていてもよく、第2シール層の表面（耐熱性環状支持部材とは反対側）に配置されていてもよい。第1シール層の表面（耐熱性環状支持部材とは反対側）にセパレータ本体が配置される場合及び第2シール層の表面（耐熱性環状支持部材とは反対側）にセパレータ本体が配置される場合、枠状部材の全部がセパレータ本体の片側だけに配置されることとなる。リチウムイオン電池用セパレータの取扱性を考慮すると、セパレータ本体が耐熱性環状支持部材と直接接触していることが望ましい。さらに、耐熱性環状支持部材の中

間（第1耐熱性環状支持部材と第2耐熱性環状支持部材との間）にセパレータ本体が配置されていることがより望ましい。

[0034] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータにおけるセパレータ本体と枠状部材を構成する各層（第1シール層、第2シール層及び耐熱性環状支持部材）との位置関係について、図3（a）～図3（e）を用いて例を挙げて説明する。なお、図3（a）～図3（e）では、セパレータ本体の外形寸法が、枠状部材の内形寸法よりも大きく外形寸法よりも小さい場合について説明している。図3（a）～図3（e）は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを構成するセパレータ本体と枠状部材を構成する各層との位置関係の例を示す断面図である。図3（a）では、セパレータ本体10は、第1シール層22aのみと接するように配置されている。図3（b）では、セパレータ本体10は、第1シール層22aと耐熱性環状支持部材21との間に配置されている。図3（c）では、セパレータ本体10は、耐熱性環状支持部材21を構成する第1耐熱性環状支持部材21aと第2耐熱性環状支持部材21bとの間に配置されている。図3（d）では、セパレータ本体10は、耐熱性環状支持部材21と第2シール層22bとの間に配置されている。図3（e）では、セパレータ本体10は、第2シール層22bのみと接するように配置されている。

[0035] [リチウムイオン電池用セパレータを製造する方法]

本発明のリチウムイオン電池用セパレータを製造する方法は特に限定されないが、例えば、板状のセパレータ本体と枠状部材を別々に作製して組み合わせる方法や、板状のセパレータ本体の表面に枠状部材を構成する各層を順次積層する方法などが挙げられる。

[0036] セパレータ本体の外周に枠状部材を配置する方法としては、（1）枠状部材を構成する各層に用いる材料を、それぞれフィルム状に成形して、さらに所定の形状に切断した後、必要に応じて接着剤等によりセパレータ本体の外周にそれぞれ接着する方法が挙げられる。また、（2）枠状部材の各層を構成するフィルムを所定の形状に切断した後、加熱溶融してセパレータ本体の

外周にそれぞれ接着する方法が挙げられる。さらに、(3) 枠状部材を構成する各層の積層体を多層フィルムとした後、セパレータ本体に接着する方法等が挙げられる。接着剤としては、上述した市販のポリオレフィン系ホットメルト接着樹脂及び低融点ポリエチレン等が挙げられる。各層を構成する材料をフィルム状に成形する方法は、特に限定されないが、例えば、インフレーション法、T-ダイ法、溶液流延法、カレンダー法などが挙げられる。これらの方法で得られたフィルムは、必要に応じて延伸などを行ってもよい。延伸は、一軸延伸であってもよく、二軸延伸であってもよい。また、市販のフィルムを所定の形状に切断して用いてもよい。

[0037] 枠状部材の各層を構成するフィルムを加熱溶融してセパレータ本体の外周に接着する場合、公知の熱圧着装置〔加熱ロール及びヒートシーラー（インパルスシーラー等）等〕を用いることができる。また、セパレータ本体の熱変形を抑える観点から、枠状部材を配置する部分のみを加熱して圧着することが好ましく、枠状部材となる部分だけをヒートシーラー（インパルスシーラー等）により加熱圧着することがより好ましい。

[0038] セパレータ本体上に直接枠状部材を構成する各層を順次積層する方法としては、例えば、セパレータ本体の一方の面に耐熱性環状支持部材となる原料溶液を塗布して乾燥することで耐熱性環状支持部材を形成する。さらに上記耐熱性環状支持部材の面上に第1シール層となる原料溶液を塗布して乾燥することで第1シール層を形成する。続いて、セパレータ本体を回転させて、第1シール層が形成されていない側の面に対して、第1シール層と同様の手順で、耐熱性環状支持部材及び第2シール層を積層する方法が挙げられる。耐熱性環状支持部材、第1シール層及び第2シール層の大きさ及び配置については、得たいリチウムイオン電池用セパレータにおける枠状部材とセパレータ本体との位置にあわせて適宜調整することができる。

[0039] [リチウムイオン電池の製造方法]

続いて、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを用いてリチウムイオン電池を製造する方法について説明する。本発明のリチウムイオン電池用セ

パレータを用いてリチウムイオン電池を製造する方法は、例えば、図4（a）～図4（f）に示す工程により行われる。図4（a）～図4（f）は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを用いてリチウムイオン電池を製造する方法の一例を模式的に示す説明図である。図4（a）に示すように、まずリチウムイオン電池用セパレータ1の一方の面に正極活物質層となる原料（正極組成物）30aを付与する。この工程により、図4（b）に示すように、セパレータ本体10及び枠状部材20によって囲まれた領域内に正極活物質層30が形成される。続いて、図4（c）に示すように、正極活物質層30と枠状部材20とを覆うように、正極集電体40を配置する。その後、図4（d）に示すように、リチウムイオン電池用セパレータ1、正極活物質層30及び正極集電体40を反転させて、正極活物質層30が形成されていない側のセパレータ本体10上に負極活物質層となる原料（負極組成物）31aを付与する。この工程により、図4（e）に示すように、セパレータ本体10と枠状部材20によって囲まれた領域内に負極活物質層31が形成される。続いて、図4（f）に示すように、負極活物質層31と枠状部材20とを覆うように、負極集電体41を配置する。図4（a）～図4（e）に示す工程を経ることにより、図4（f）に示すリチウムイオン電池100が得られる。図4（f）に示すリチウムイオン電池100は、電池外装体に収容されていないが、必要に応じて電池外装体に収容してもよい。また、電池外装体に収容する際には、複数個のリチウムイオン電池100を直列又は並列に積層してもよい。

[0040] 図4（f）に示すリチウムイオン電池100を電池外装体に収容した例を、図5を用いて説明する。図5は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを備えたリチウムイオン電池の一例を模式的に示す説明図である。図5に示すリチウムイオン電池100'では、図4（f）に示すリチウムイオン電池100が、電池外装体である正極外装体150及び負極外装体151により覆われている。正極外装体150及び負極外装体151は、対応する集電体（正極集電体40及び負極集電体41）とそれぞれ電氣的に接続されてい

る。一方で、互いの電池外装体と接触する部分には絶縁性の樹脂層（図示しない）が形成されており、正極外装体150と負極外装体151とは絶縁されている。

[0041] 図4（f）に示すリチウムイオン電池100を電池単位として、これを複数個並列に接続したリチウムイオン電池の例について、図6を用いて説明する。図6は、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを備えたリチウムイオン電池の別の一例を模式的に示す説明図である。図6に示すリチウムイオン電池200は、内面が絶縁性の電池外装体160内に、セパレータ本体110の外周部に枠状部材120が配置されたリチウムイオン電池用セパレータ2が4つ、正極集電体140又は負極集電体141を介して積層されている。セパレータ本体110と正極集電体140との間には、正極活物質層130が形成されている。また、セパレータ本体110と負極集電体141との間には、負極活物質層131が形成されている。リチウムイオン電池用セパレータ2、該セパレータ2に隣接する正極構造、及び該セパレータ2に隣接する負極構造により、リチウムイオン電池として機能する電池単位（図4（f）に示すリチウムイオン電池100と同様の構造）を構成している。前記セパレータ2に隣接する正極構造は、リチウムイオン電池用セパレータ2に隣接する正極集電体140及びリチウムイオン電池用セパレータ2と正極集電体140との間に形成されている正極活物質層130から構成されている。また前記セパレータ2に隣接する負極構造は、リチウムイオン電池用セパレータ2に隣接する負極集電体141及びリチウムイオン電池用セパレータ2と負極集電体141との間に形成されている負極活物質層131から構成されている。リチウムイオン電池200において、全ての正極集電体140は電池外装体160外に露出する外部端子144と接続され、全ての負極集電体141は電池外装体160外に露出する外部端子145と接続されている。従って、リチウムイオン電池200では、4つの電池単位が並列に接続されているといえる。

[0042] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータを用いてリチウムイオン電池を

製造する方法に用いる、正極組成物、負極組成物、正極集電体及び負極集電体について説明する。

[0043] 正極組成物は正極活物質を含んでなり、必要に応じて、導電助剤や電解液を含んでいてもよい。正極活物質としては、リチウムと遷移金属との複合酸化物、リチウム含有遷移金属リン酸塩、遷移金属酸化物、遷移金属硫化物及び導電性高分子等が挙げられ、2種以上を併用してもよい。リチウムと遷移金属との複合酸化物としては、遷移金属が1種である複合酸化物、遷移金属元素が2種である複合酸化物、及び金属元素が3種類以上である複合酸化物等が挙げられる。遷移金属が1種である複合酸化物としては、 $\text{LiCoO}_2$ 、 $\text{LiNiO}_2$ 、 $\text{LiAlMnO}_4$ 、 $\text{LiMnO}_2$ 及び $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ 等が挙げられる。遷移金属元素が2種である複合酸化物としては、例えば、 $\text{LiFeMnO}_4$ 、 $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$ 、 $\text{LiMn}_{1-y}\text{Co}_y\text{O}_2$ 、 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{Al}_{1/3}\text{O}_2$ 及び $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.15}\text{Al}_{0.05}\text{O}_2$ 等が挙げられる。金属元素が3種類以上である複合酸化物としては、例えば、 $\text{LiM}_a\text{M}'_b\text{M}''_c\text{O}_2$  (M、M' 及びM'' はそれぞれ異なる遷移金属元素であり、 $a+b+c=1$ を満たす。例えば、 $\text{LiNi}_{1/3}\text{Mn}_{1/3}\text{Co}_{1/3}\text{O}_2$ ) 等が挙げられる。また、リチウム含有遷移金属リン酸塩としては、例えば、 $\text{LiFePO}_4$ 、 $\text{LiCoPO}_4$ 、 $\text{LiMnPO}_4$ 及び $\text{LiNiPO}_4$ 等が挙げられる。遷移金属酸化物としては、例えば、 $\text{MnO}_2$ 及び $\text{V}_2\text{O}_5$ 等が挙げられる。遷移金属硫化物としては、例えば、 $\text{MoS}_2$ 及び $\text{TiS}_2$ 等が挙げられる。導電性高分子としては、例えば、ポリアニリン、ポリフッ化ビニリデン、ポリピロール、ポリチオフェン、ポリアセチレン及びポリ-p-フェニレン及びポリカルバゾール等が挙げられる。なお、リチウム含有遷移金属リン酸塩は、遷移金属サイトの一部を他の遷移金属で置換したものであってもよい。

[0044] リチウムイオン電池用正極活物質の体積平均粒子径は、電池の電気特性の観点から、 $0.01\sim 100\mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.1\sim 35\mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $2\sim 30\mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。

[0045] 負極組成物は負極活物質を含んでなり、必要に応じて、導電助剤や電解液

を含んでいてもよい。負極活物質としては、炭素系材料、珪素系材料、導電性高分子、金属、金属酸化物及び金属合金等及びこれらと炭素系材料との混合物等が挙げられる。炭素系材料としては、黒鉛、難黒鉛化性炭素、アモルファス炭素、樹脂焼成体（例えばフェノール樹脂及びフラン樹脂等を焼成し炭素化したもの等）、コークス類（例えばピッチコークス、ニードルコークス及び石油コークス等）及び炭素繊維等が挙げられる。珪素系材料としては、珪素、酸化珪素（ $\text{SiO}_x$ ）、珪素-炭素複合体（炭素粒子の表面を珪素及び／又は炭化珪素で被覆したもの、珪素粒子又は酸化珪素粒子の表面を炭素及び／又は炭化珪素で被覆したもの並びに炭化珪素等）及び珪素合金（珪素-アルミニウム合金、珪素-リチウム合金、珪素-ニッケル合金、珪素-鉄合金、珪素-チタン合金、珪素-マンガン合金、珪素-銅合金及び珪素-スズ合金等）等が挙げられる。導電性高分子としては、例えば、ポリアセチレン及びポリピロール等が挙げられる。金属としては、スズ、アルミニウム、ジルコニウム及びチタン等が挙げられる。金属酸化物としては、チタン酸化物及びリチウム・チタン酸化物等が挙げられる。金属合金としては、例えば、リチウム-スズ合金、リチウム-アルミニウム合金及びリチウム-アルミニウム-マンガン合金等が挙げられる。上記負極活物質のうち、内部にリチウム又はリチウムイオンを含まないものについては、予め負極活物質の一部又は全部にリチウム又はリチウムイオンを含ませるプレドープ処理を施してもよい。

[0046] これらの中でも、電池容量等の観点から、炭素系材料、珪素系材料及びこれらの混合物が好ましく、炭素系材料としては、黒鉛、難黒鉛化性炭素及びアモルファス炭素がさらに好ましく、珪素系材料としては、酸化珪素及び珪素-炭素複合体がさらに好ましい。

[0047] 負極活物質の体積平均粒子径は、電池の電気特性の観点から、 $0.01 \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.1 \sim 20 \mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $2 \sim 10 \mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。

[0048] 本明細書において、正極活物質及び負極活物質等の体積平均粒子径は、マ

マイクロトラック法（レーザー回折・散乱法）によって求めた粒度分布における積算値50%での粒径（ $D_{v50}$ ）を意味する。マイクロトラック法とは、レーザー光を粒子に照射することによって得られる散乱光を利用して粒度分布を求める方法である。なお、体積平均粒子径の測定には、日機装株式会社製のマイクロトラック等を用いることができる。

[0049] 導電助剤は、導電性を有する材料から選択される。具体的には、金属、カーボン、及びこれらの混合物等が挙げられるが、これらに限定されるわけではない。金属としては、ニッケル、アルミニウム、ステンレス（SUS）、銀、銅及びチタン等が挙げられる。カーボンとしては、グラファイト及びカーボンブラック（アセチレンブラック、ケッチェンブラック（登録商標）、ファーネスブラック、チャンネルブラック、サーマルランプブラック等）等が挙げられる。これらの導電助剤は1種単独で用いてもよいし、2種以上併用してもよい。また、これら金属の合金又は金属酸化物を用いてもよい。電気的安定性の観点から、好ましくはアルミニウム、ステンレス、カーボン、銀、銅、チタン及びこれらの混合物であり、より好ましくは銀、アルミニウム、ステンレス及びカーボンであり、さらに好ましくはカーボンである。またこれらの導電助剤としては、粒子系（粒子状）セラミック材料や粒子系（粒子状）樹脂材料の周りに導電性材料（上記した導電助剤の材料のうち金属のもの）をめっき等でコーティングしたものでもよい。

[0050] 導電助剤の平均粒子径は、特に限定されるものではないが、電池の電気特性の観点から、 $0.01 \sim 10 \mu\text{m}$ であることが好ましく、 $0.02 \sim 5 \mu\text{m}$ であることがより好ましく、 $0.03 \sim 1 \mu\text{m}$ であることがさらに好ましい。なお、本明細書中において、「粒子径」とは、導電助剤の輪郭線上の任意の2点間の距離のうち、最大の距離 $L$ を意味する。「平均粒子径」の値としては、走査型電子顕微鏡（SEM）や透過型電子顕微鏡（TEM）等の観察手段を用い、数～数十視野中に観察される粒子の粒子径の平均値として算出される値を採用するものとする。

[0051] 導電助剤の形状（形態）は、粒子形態に限られず、粒子形態以外の形態で

あってもよく、カーボンナノチューブ等、いわゆるフィラー系導電性樹脂組成物として実用化されている形態であってもよい。

[0052] 導電助剤は、その形状が繊維状である導電性繊維であってもよい。導電性繊維としては、PAN系炭素繊維、ピッチ系炭素繊維等の炭素繊維、合成繊維の中に導電性のよい金属や黒鉛を均一に分散させてなる導電性繊維、ステンレス鋼のような金属を繊維化した金属繊維、有機物繊維の表面を金属で被覆した導電性繊維、有機物繊維の表面を導電性物質を含む樹脂で被覆した導電性繊維等が挙げられる。これらの導電性繊維の中では炭素繊維が好ましい。また、グラフェンを練りこんだポリプロピレン樹脂も好ましい。導電助剤が導電性繊維である場合、その平均繊維径は0.1~20 $\mu\text{m}$ であることが好ましい。

[0053] 正極活物質及び負極活物質（以下、まとめて電極活物質ともいう）は、その表面の少なくとも一部が高分子化合物を含む被覆層により被覆された被覆活物質であってもよい。電極活物質の周囲が被覆層で被覆されていると、電極の体積変化が緩和され、電極の膨張を抑制することができる。さらに、被覆活物質の非水溶媒に対する濡れ性を向上させることができ、電極が有する被覆活物質層に電解液を吸収させる工程に掛かる時間の短縮が可能になる。なお、電極活物質として正極活物質を使用した場合の被覆活物質を被覆正極活物質といい、被覆活物質層を被覆正極活物質層ともいう。また電極活物質として負極活物質を使用した場合の被覆活物質を被覆負極活物質といい、被覆活物質層を被覆負極活物質層ともいう。

[0054] 被覆層を構成する高分子化合物としては、特開2017-054703号公報に非水系二次電池活物質被覆用樹脂として記載されたものを好適に用いることができる。

[0055] （電解液）

電解液としては、リチウムイオン電池の製造に用いられる、電解質及び非水溶媒を含有する公知の電解液を使用することができる。

[0056] 電解質としては、公知の電解液に用いられているもの等が使用できる。例

例えば、 $\text{LiPF}_6$ 、 $\text{LiBF}_4$ 、 $\text{LiSbF}_6$ 、 $\text{LiAsF}_6$ 及び $\text{LiClO}_4$ 等の無機酸のリチウム塩、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2$ 及び $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 等の有機酸のリチウム塩等が挙げられる。これらの内、電池出力及び充放電サイクル特性の観点から好ましいのは $\text{LiPF}_6$ である。

- [0057] 非水溶媒としては、公知の電解液に用いられているもの等が使用できる。例えば、ラクトン化合物、環状又は鎖状炭酸エステル、鎖状カルボン酸エステル、環状又は鎖状エーテル、リン酸エステル、ニトリル化合物、アミド化合物、スルホン、スルホラン等及びこれらの混合物を用いることができる。
- [0058] ラクトン化合物としては、5員環のラクトン化合物（ $\gamma$ -ブチロラクトン及び $\gamma$ -バレロラクトン等）及び6員環のラクトン化合物（ $\delta$ -バレロラクトン等）等を挙げるることができる。
- [0059] 環状炭酸エステルとしては、プロピレンカーボネート、エチレンカーボネート及びブチレンカーボネート等が挙げられる。鎖状炭酸エステルとしては、ジメチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、ジエチルカーボネート、メチル-n-プロピルカーボネート、エチル-n-プロピルカーボネート及びジ-n-プロピルカーボネート等が挙げられる。
- [0060] 鎖状カルボン酸エステルとしては、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル及びプロピオン酸メチル等が挙げられる。環状エーテルとしては、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピラン、1,3-ジオキソラン及び1,4-ジオキサン等が挙げられる。鎖状エーテルとしては、ジメトキシメタン及び1,2-ジメトキシエタン等が挙げられる。
- [0061] リン酸エステルとしては、リン酸トリメチル、リン酸トリエチル、リン酸エチルジメチル、リン酸ジエチルメチル、リン酸トリプロピル、リン酸トリブチル、リン酸トリ（トリフルオロメチル）、リン酸トリ（トリクロロメチル）、リン酸トリ（トリフルオロエチル）、リン酸トリ（トリパーフルオロエチル）、2-エトキシ-1,3,2-ジオキサホスホラン-2-オン、2-トリフルオロエトキシ-1,3,2-ジオキサホスホラン-2-オン及び

2-メトキシエトキシ-1, 3, 2-ジオキサホスホラン-2-オン等が挙げられる。ニトリル化合物としては、アセトニトリル等が挙げられる。アミド化合物としては、N, N-ジメチルホルムアミド (DMF) 等が挙げられる。スルホンとしては、ジメチルスルホン及びジエチルスルホン等が挙げられる。非水溶媒は1種を単独で用いてもよいし、2種以上を併用してもよい。

[0062] 非水溶媒の内、電池出力及び充放電サイクル特性の観点から好ましいのは、ラクトン化合物、環状炭酸エステル、鎖状炭酸エステル及びリン酸エステルである。更に好ましいのはラクトン化合物、環状炭酸エステル及び鎖状炭酸エステルであり、特に好ましいのは環状炭酸エステルと鎖状炭酸エステルの混合液である。最も好ましいのはエチレンカーボネート (EC) とジメチルカーボネート (DMC) の混合液、又は、エチレンカーボネート (EC) とジエチルカーボネート (DEC) の混合液である。

[0063] 正極集電体及び負極集電体としては、銅、アルミニウム、チタン、ステンレス鋼及びニッケル等の金属箔、導電性高分子からなる樹脂集電体 (特開2012-150905号公報等に記載されている)、導電性炭素シート及び導電性ガラスシート等が挙げられる。

[0064] 上述した被覆活物質を製造する方法について説明する。被覆活物質は、例えば、高分子化合物及び電極活物質並びに必要により用いる導電剤を混合することによって製造してもよい。被覆層に導電剤を用いる場合には高分子化合物と導電剤とを混合して被覆材を準備したのち、該被覆材と電極活物質とを混合することにより製造してもよく、高分子化合物、導電剤及び電極活物質を混合することによって製造してもよい。なお、電極活物質と高分子化合物と導電剤とを混合する場合、混合順序には特に制限はないが、電極活物質と高分子化合物とを混合した後、更に導電剤を加えて更に混合することが好ましい。上記方法により、高分子化合物と必要により用いる導電剤を含む被覆層によって電極活物質の表面の少なくとも一部が被覆される。

[0065] 被覆材の任意成分である導電剤としては、電極組成物を構成する導電助剤

と同様のものを好適に用いることができる。

## 実施例

[0066] 次に本発明を実施例によって具体的に説明するが、本発明の主旨を逸脱しない限り本発明の技術的範囲は実施例に限定されるものではない。なお、特記しない限り部は重量部、%は質量%を意味する。

[0067] [製造例1：セパレータ本体の製造]

平板状のセルガード2500（ポリプロピレン（PP）製、厚さ25 $\mu$ m）を14mm $\times$ 14mmの正方形に切り出して、セパレータ本体とした。

[0068] （実施例1）

[枠状部材の作製]

耐熱性環状支持部材となるポリエチレンナフタレートフィルムの両面にシール層となる接着性ポリオレフィン系樹脂フィルムを重ねた。加熱ロールにより耐熱性環状支持部材とシール層とを接着して積層体を準備した。その後、積層体を15mm $\times$ 15mmの正方形に切断し、さらに、中央の11mm $\times$ 11mmの領域を打ち抜いた。このことにより、PENからなる耐熱性環状支持部材（PEN層）とシール層とが積層され、正方形の4辺における幅が2mmとなった環状の積層体（枠状部材）を得た。なお、ポリエチレンナフタレートフィルムには、帝人株式会社製PENフィルム、テオネックス（登録商標）Q51、厚さ250 $\mu$ mのものを用いた。接着性ポリオレフィン系樹脂フィルムには、三井化学株式会社製、アドマー（登録商標）VE300、厚さ50 $\mu$ mのものを用いた。

[0069] [セパレータ本体と枠状部材との接合]

枠状部材の外形寸法に基づく重心とセパレータ本体の外形寸法に基づく重心が重なるように、かつ、各枠状部材の一方のシール層（第2シール層とする）がセパレータ本体と接触するように、セパレータ本体の一方の面に枠状部材を重ねた。枠状部材をインパルスシーラーで加熱することによりセパレータ本体に熔融接着して、セパレータ本体の外周に沿って片側の面に枠状部材が環状に配置された実施例1に係るリチウムイオン電池用セパレータを得

た。なお、第1シール層は第2シール層と反対面にあるシール層であり、第1シール層は正極集電体と接触する側のシール層、第2シール層は負極集電体と接触する側のシール層とした。なお、枠状部材の外周から内側に幅0.5mmの部分に第2シール層が配置されており、枠状部材から外側の幅1.5mmの部分では第2シール層によってセパレータ本体が接着、積層されている。実施例1に係るリチウムイオン電池用セパレータは、セパレータ本体の外周部に枠状部材が形成されているため、取扱時に折れ曲がりやシワが発生することがなく、平面を維持したままであり、取扱性に優れていた（取扱性評価：○）。

[0070] （実施例2～4）

[枠状部材の作製]において、耐熱性環状支持部材を、ポリエチレンナフタレートフィルム、ポリエーテルエーテルケトンフィルム及びガラスエポキシ積層板にそれぞれ変更した。これらを変更したほかは、実施例1と同様の手順により、実施例2～4に係るリチウムイオン電池用セパレータを得た。取扱性に関しては、実施例1に係るリチウムイオン電池用セパレータと同様であった（取扱性評価：○）。なお、ポリエチレンナフタレートフィルムには、帝人株式会社製PENフィルム、テオネックス（登録商標）Q51、厚さ125 $\mu$ mのものを用いた。ポリエーテルエーテルケトンフィルムには、信越ポリマー株式会社製PEEKフィルム、Sepia（Shin-Etsu Sepia Film（登録商標））、厚さ50 $\mu$ mのものを用いた。ガラスエポキシ積層板には、住友ベークライト株式会社製スミライト（登録商標）EL、厚さ100 $\mu$ mのものを用いた。

[0071] （実施例5）

実施例2で得られた枠状部材2つとセパレータ本体とを用いた。枠状部材の外形寸法に基づく重心とセパレータ本体の外形寸法に基づく重心とが重なるように、かつ、枠状部材の一方のシール層がセパレータ本体と接触するように、セパレータ本体の両側の面にそれぞれに枠状部材を重ねた。枠状部材をインパルスシーラーにより加熱してセパレータ本体に溶融接着して、セパ

レータ本体の外周に沿って両側の面に枠状部材が配置されたセパレータを得た。なお、セパレータ本体の両面に配置された枠状部材が有するシール層のうち、正極集電体と接触する側を第1シール層とし、負極集電体と接触する側を第2シール層とする。枠状部材の外周から内側0.5mmの部分においては、2つの枠状部材がセパレータ本体を介して対向している。実施例5に係るリチウムイオン電池用セパレータは、セパレータ本体の外周部に枠状部材が形成されているため、取扱時に折れ曲がりやシワが発生することがなく、取扱性に優れていた（取扱性評価：○）。

[0072] （比較例1）

製造例1で得られたセパレータ本体をそのまま比較例1に係るリチウムイオン電池用セパレータとした。比較例1に係るリチウムイオン電池用セパレータは、持ち上げると容易に折れ曲がり、その取扱性は、実施例1～5に係るリチウムイオン電池用セパレータより劣るものであった（取扱性評価：×）。

[0073] [セパレータの耐熱変形性の測定]

実施例1～5に係るリチウムイオン電池用セパレータを、厚さ50 $\mu$ mの銅箔と厚さ50 $\mu$ mのアルミニウム箔との間に挟んだ。200 $^{\circ}$ Cにセットしたインパルスシーラーを用いて、銅箔及びアルミニウム箔の上から枠状部材が存在している領域を1辺ずつ2秒間加熱し、金属箔と枠状部材とを加熱圧着して活物質層を含んでいない疑似単電池を作製した。また、比較例1に係るリチウムイオン電池用セパレータの両側の面に、外形寸法が15mm $\times$ 15mmの正方形で中央の11mm $\times$ 11mmの領域が打ち抜かれた枠状（幅2mm）の接着性ポリオレフィン系樹脂フィルムを積層した。詳しくは、リチウムイオン電池用セパレータの外形寸法に基づく重心と接着性ポリオレフィン系樹脂フィルムの外形寸法に基づく重心とが重なるように積層した。更にその上下面を、厚さ50 $\mu$ mの銅箔と厚さ50 $\mu$ mのアルミニウム箔とで挟んだ。200 $^{\circ}$ Cにセットしたインパルスシーラーを用いて、銅箔及びアルミニウム箔の上から枠状の接着性ポリオレフィン系樹脂フィルムが存在して

いる領域を1辺ずつ2秒間加熱し、金属箔と枠状の接着性ポリオレフィン系樹脂フィルムとを加熱圧着した。こうして活物質層を含んでいない疑似単電池を作製した。作製した各疑似単電池の外観を観察して耐熱変形性を評価した。結果を表1に示す。なお、表1の結果において、○は加熱圧着による外形の変化（ひずみ）がなかったことを意味し、×は加熱圧着による外形の変化（ひずみ）があり、セパレータ本体にシワ又は収縮が発生したことを意味する。なお、接着性ポリオレフィン系樹脂フィルムには、三井化学株式会社製、アドマー（登録商標）VE300、厚さ50μmのものを用いた。

[0074] [表1]

	枠状部材			枠状部材の配置	評価	
	耐熱性環状支持部材				取扱性	耐熱変形性
	耐熱性樹脂組成物	熔融温度 [°C]	厚み [μm]			
実施例1	PENフィルム	260	250	片側	○	○
実施例2	PENフィルム	260	125	片側	○	○
実施例3	PEEKフィルム	330	50	片側	○	○
実施例4	ガラスエポキシ積層板	-	100	片側	○	○
実施例5	PENフィルム	260	250	両側	○	○
比較例1	-	-	-	-	×	×

[0075] 表1の結果より、本発明のリチウムイオン電池用セパレータを用いたリチウムイオン電池は取扱性及び耐熱変形性に優れるといえる。

**産業上の利用可能性**

[0076] 本発明のリチウムイオン電池用セパレータは、特に、携帯電話、パーソナルコンピューター、ハイブリッド自動車及び電気自動車用に用いられる双極型二次電池用及びリチウムイオン二次電池用等のセパレータとして有用である。

[0077] 本出願は、2017年9月14日に出願された日本国特許出願第2017-176783号に基づいており、その開示内容は、参照により全体として引用されている。

**符号の説明**

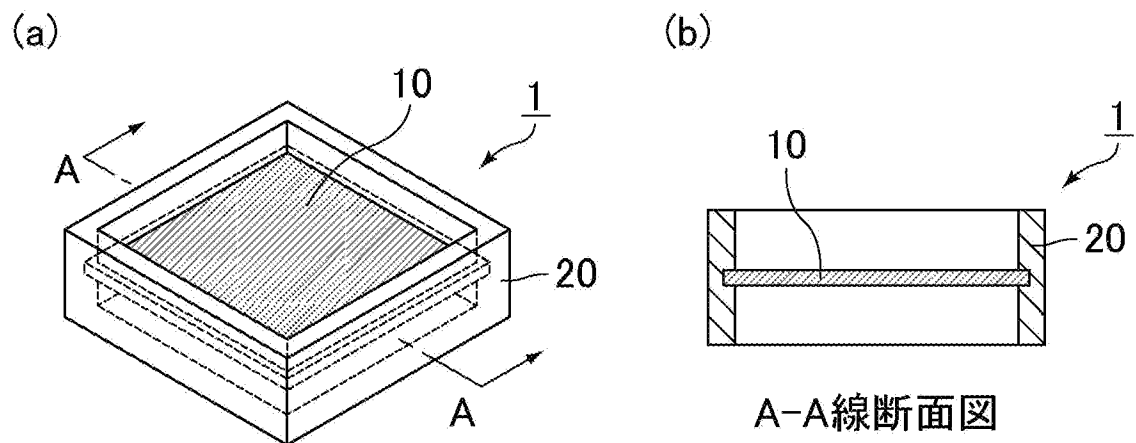
[0078] 1、2 リチウムイオン電池用セパレータ、

- 10、110 セパレータ本体、
- 20、20'、120 枠状部材、
- 21、21a、21b 耐熱性環状支持部材、
- 22 シール層、
- 22a 第1シール層、
- 22b 第2シール層、
- 30a 正極組成物、
- 30、130 正極活物質層、
- 31a 負極組成物、
- 31、131 負極活物質層、
- 40、140 正極集電体、
- 41、141 負極集電体、
- 100、100'、200 リチウムイオン電池、
- 144、145 外部端子、
- 150 正極外装体（電池外装体）、
- 151 負極外装体（電池外装体）、
- 160 電池外装体。

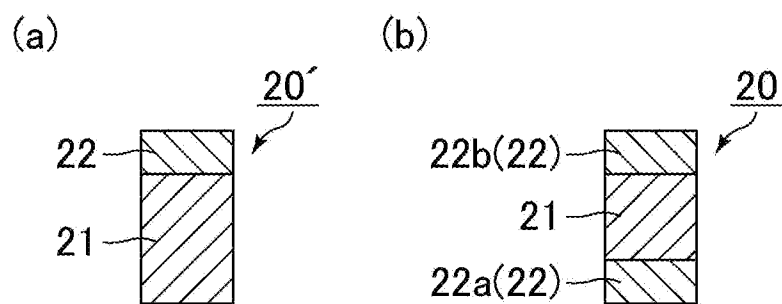
## 請求の範囲

- [請求項1] 平板状の正極集電体と平板状の負極集電体との間に配置されるリチウムイオン電池用セパレータであって、
- ポリオレフィン多孔質膜からなるシート状のセパレータ本体と、前記セパレータ本体の外周に沿って環状に配置される枠状部材とからなり、
- 前記枠状部材は、耐熱性環状支持部材と、前記耐熱性環状支持部材の表面に配置される、正極集電体又は負極集電体と熱圧着が可能なシール層とからなることを特徴とするリチウムイオン電池用セパレータ。
- [請求項2] 前記耐熱性環状支持部材が、前記セパレータ本体と接触し、JIS K 7121-1987に準拠して示差走査熱量測定によって測定される溶融温度が150℃以上である耐熱性樹脂組成物からなる請求項1に記載のリチウムイオン電池用セパレータ。
- [請求項3] 前記耐熱性樹脂組成物が、ポリアミド、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、高融点ポリプロピレン、ポリカーボネート及びポリエーテルエーテルケトンからなる群から選択される少なくとも1種の樹脂を含む請求項2に記載のリチウムイオン電池用セパレータ。
- [請求項4] 前記シール層は、正極集電体と熱圧着が可能な第1シール層と、負極集電体と熱圧着が可能な第2シール層とからなり、
- 前記枠状部材は、前記第1シール層と前記第2シール層との間に前記耐熱性環状支持部材が配置された積層体である請求項1～3のいずれかに記載のリチウムイオン電池用セパレータ。

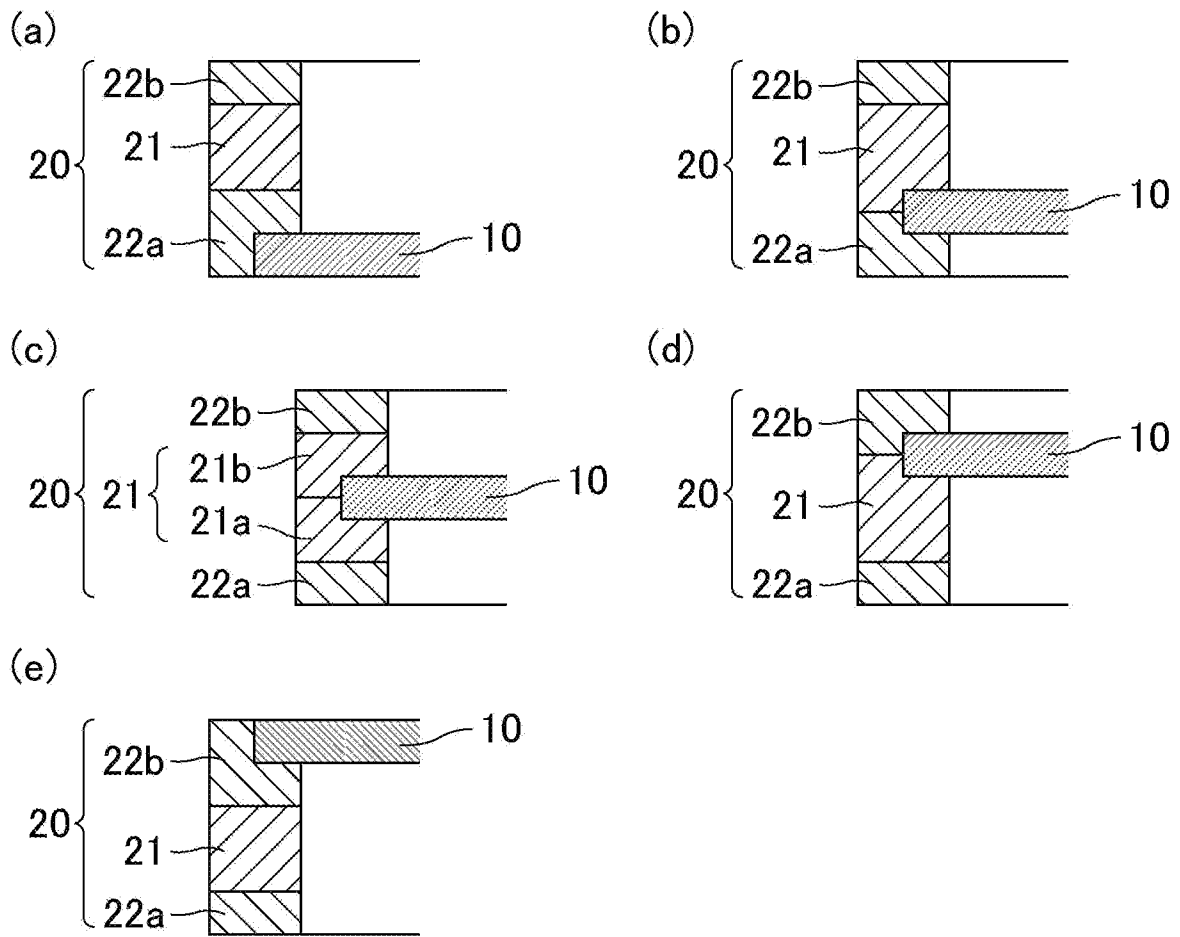
[図1]



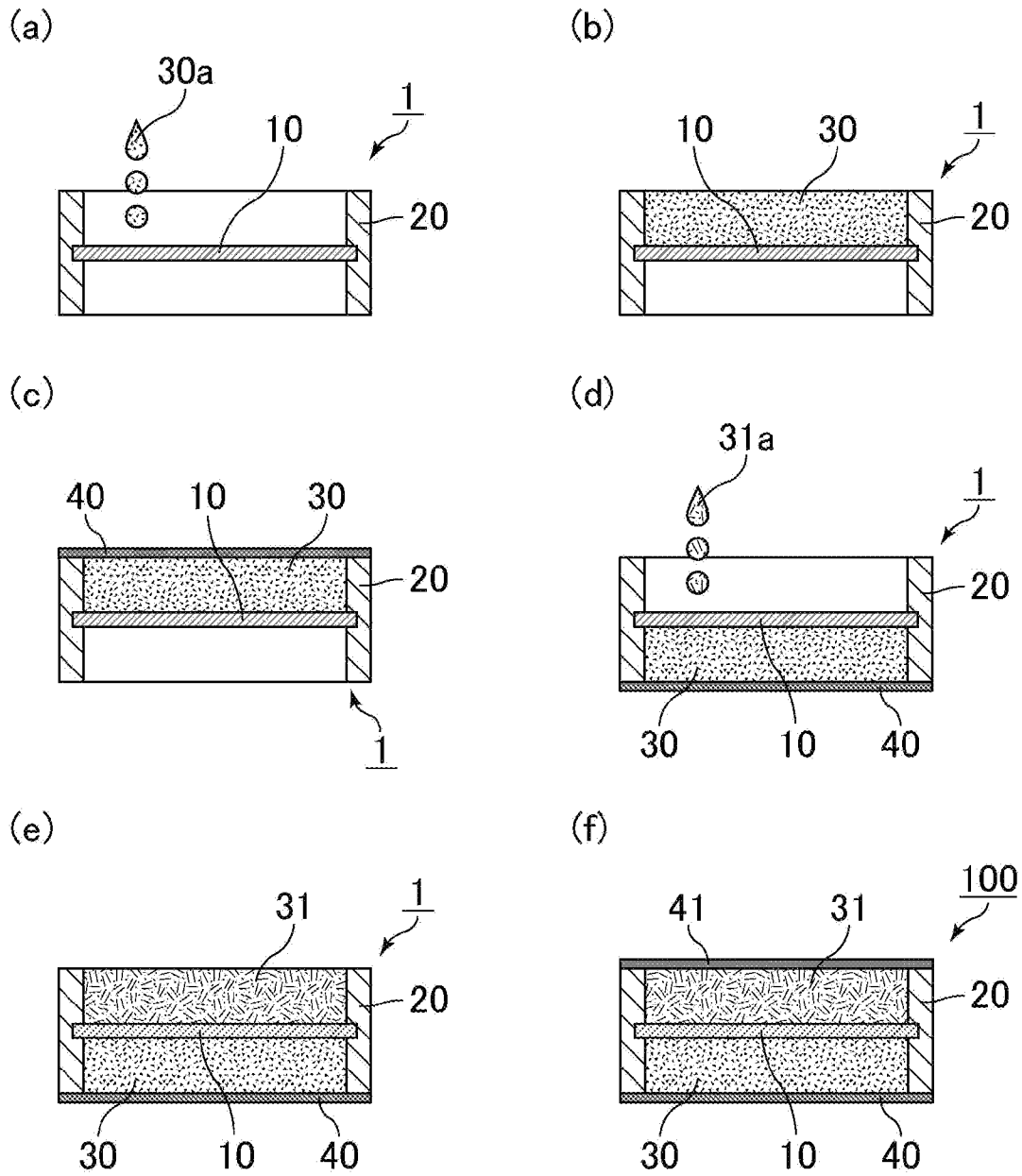
[図2]



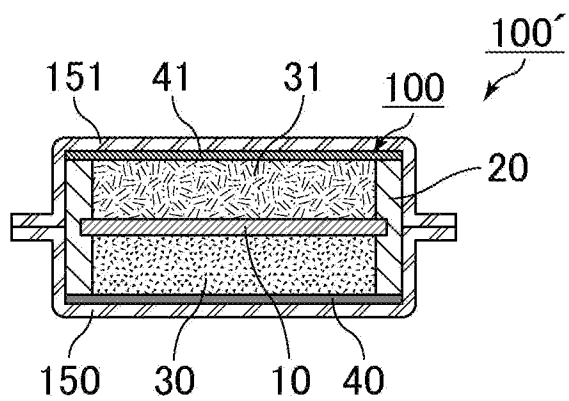
[図3]



[図4]



[図5]





**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No. PCT/JP2018/032491
--

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> Int.Cl. H01M2/18 (2006.01) i, H01M2/16 (2006.01) i, H01M10/0585 (2010.01) n  According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) Int.Cl. H01M2/18, H01M2/16, H01M10/0585  Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2018 Registered utility model specifications of Japan 1996-2018 Published registered utility model applications of Japan 1994-2018		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2013-171792 A (TOYOTA INDUSTRIES CORPORATION) 02 September 2013, claims 1-5, paragraphs [0017]-[0041], [0043], [0052], fig. 1-6 (Family: none)	1-4
A	JP 2006-269288 A (NGK SPARK PLUG CO., LTD.) 05 October 2006, paragraphs [0013]-[0024], [0029]-[0031], fig. 1-6, 9 (Family: none)	1-4
A	JP 61-058161 A (MEIDENSHA CORPORATION) 25 March 1986, column "prior art", fig. 7-10 (Family: none)	1-4
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 "I" 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 15 November 2018 (15.11.2018)		Date of mailing of the international search report 27 November 2018 (27.11.2018)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer  Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. H01M2/18(2006.01)i, H01M2/16(2006.01)i, H01M10/0585(2010.01)n											
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. H01M2/18, H01M2/16, H01M10/0585											
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 <table style="width:100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="width:30%;">日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2018年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2018年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2018年</td> </tr> </table>				日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2018年	日本国実用新案登録公報	1996-2018年	日本国登録実用新案公報	1994-2018年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2018年										
日本国実用新案登録公報	1996-2018年										
日本国登録実用新案公報	1994-2018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									
A	JP 2013-171792 A (株式会社豊田自動織機) 2013.09.02, 請求項 1-5, 段落[0017]-[0041], [0043], [0052], 図 1-6 (ファミリーなし)	1-4									
A	JP 2006-269288 A (日本特殊陶業株式会社) 2006.10.05, 段落[0013]-[0024], [0029]-[0031], 図 1-6, 9 (ファミリーなし)	1-4									
A	JP 61-058161 A (株式会社明電舎) 1986.03.25, 従来技術欄, 第 7-10 図 (ファミリーなし)	1-4									
<input type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。		<input type="checkbox"/> 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 15.11.2018		国際調査報告の発送日 27.11.2018									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 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) 宮田 透 電話番号 03-3581-1101 内線 3477	4 X   4863								