

(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
2021年3月25日(25.03.2021)



(10) 国際公開番号

WO 2021/053983 A1

(51) 国際特許分類:

C01B 25/45 (2006.01) *H01M 10/052* (2010.01)
H01M 4/58 (2010.01) *H01M 10/0562* (2010.01)
H01M 4/62 (2006.01) *H01M 10/058* (2010.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/029716

(22) 国際出願日: 2020年8月3日(03.08.2020)

(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 2019-171907 2019年9月20日(20.09.2019) JP

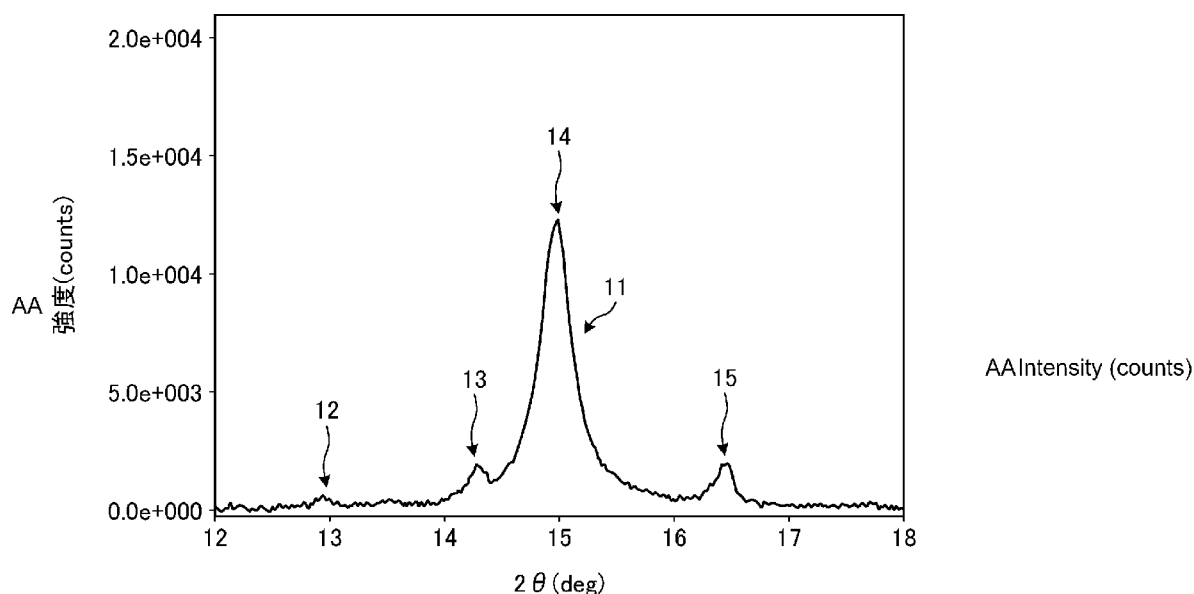
(71) 出願人: F D K株式会社(FDK CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1088212 東京都港区港南一丁目
6番4 1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 藤沢 友弘(FUJISAWA, Tomohiro);
〒1088212 東京都港区港南一丁目6番4 1号 F
D K株式会社内 Tokyo (JP). 藤井 信三(FUJII,
Sinzou); 〒1088212 東京都港区港南一丁目6
番4 1号 F D K株式会社内 Tokyo (JP). 小林
正一(KOBAYASHI, Masakazu); 〒1088212
東京都港区港南一丁目6番4 1号 F D K
株式会社内 Tokyo (JP). 樋口 聡(HIGUCHI,
Satoshi); 〒1088212 東京都港区港南一丁目6番
4 1号 F D K株式会社内 Tokyo (JP).

(54) Title: ALL-SOLID-STATE CELL, POSITIVE ELECTRODE, AND METHOD FOR MANUFACTURING ALL-SOLID-STATE CELL

(54) 発明の名称: 全固体電池、正極および全固体電池製造方法

〔図2〕



(57) Abstract: This all-solid-state cell 1 comprises a positive-electrode layer (6), a negative-electrode layer (7), and a solid electrolyte layer (5) sandwiched between the positive-electrode layer (6) and the negative-electrode layer (7). The positive-electrode layer (6) includes a positive-electrode active material formed from a compound LCPO represented by the chemical formula $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$, and a solid electrolyte formed from a compound LAGP represented by the chemical formula $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$. In the formula, the number x satisfies the following

(74) 代理人: 特許業務法人酒井国際特許事務所 (SAKAI INTERNATIONAL PATENT OFFICE); 〒1000013 東京都千代田区霞が関 3 丁目 8 番 1 号 虎の門三井ビルディング 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, IT, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, 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))

expression: $0 < x < 1$. The full width half maximum (FWHM) of a peak corresponding to the (012) plane of the compound LAGP from an X-ray diffraction pattern acquired by performing powder X-ray diffraction analysis of the positive-electrode layer (6) using $\text{CuK}\alpha$ radiation satisfies the following expression: $0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$.

(57) 要約: 全固体電池 1 は、正極層 (6) と、負極層 (7) と、正極層 (6) と負極層 (7) との間に挟持される固体電解質層 (5) とを備えている。正極層 (6) は、化学式 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ で表される化合物 L C P O から形成される正極活物質と、化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物 L A G P から形成される固体電解質とを含んでいる。ここで、数 x は、次式を満たしている。 $0 < x < 1$ $\text{CuK}\alpha$ を利用した粉末 X 線回折測定を正極層 (6) について実行することにより取得される X 線回折パターンのうちの化合物 L A G P の (0 1 2) 面に対応するピークの半値幅 FWHM は、次式を満たしている。 $0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$

明 細 書

発明の名称：全固体電池、正極および全固体電池製造方法

技術分野

[0001] 本開示の技術は、全固体電池、正極および全固体電池製造方法に関する。

背景技術

[0002] 固体の電解質を用いた全固体電池が知られている（特許文献1）。全固体電池は、リチウムイオン電池に利用される可燃性の有機電解液を備えていないことにより、有機電解液により発生する不具合と同様の他の不具合の発生を低減することができる。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：特開2007-5279号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] ピロリン酸型の正極材料 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ は、平均電位 $v_{\text{SLi}}/\text{Li} + 5\text{V}$ で 200mAh/g 程度の性能を有する材料であり、全固体電池のエネルギー密度向上に有効な材料である。正極材料 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ は、酸化物系固体電池へ用いる場合、焼成時に固体電解質と反応して充放電に寄与しない異相が生成するという問題がある。正極材料 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ が用いられる酸化物系固体電池は、このような異相が生成することにより、放電容量が低下することがある。

[0005] 開示の技術は、かかる点に鑑みてなされたものであって、放電容量を向上させる全固体電池、正極および全固体電池製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本開示の一態様による全固体電池は、正極層と、負極層と、正極層と負極層との間に挟持される固体電解質層とを備えている。前記正極層は、化学式

$\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ で表される化合物 LCP O から形成される正極活物質と、化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物 L A G P から形成される固体電解質とを含んでいる。数 x は、次式を満たしている。

$$0 < x < 1$$

$\text{Cu K } \alpha$ を利用した粉末X線回折測定を前記正極層について実行することにより取得されるX線回折パターンのうちの前記化合物 L A G P の(012)面に対応するピークの半値幅FWHMは、次式を満たしている。

$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

発明の効果

[0007] 開示の全固体電池、正極および全固体電池製造方法は、放電容量を向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]図1は、実施形態の全固体電池を示す概略断面図である。

[図2]図2は、実施形態の全固体電池の正極層について粉末X線回折を実行することにより得られたX線回折パターンを示すグラフである。

[図3]図3は、全固体電池の作製の概略を示すフローチャートである。

[図4]図4は、全固体電池の正極層の粉末X線回折測定により取得されたX線回折パターンのうちの固体電解質 L A G P の(012)面に対応するピークの半値幅と全固体電池の放電容量との関係を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0009] 以下に、本願が開示する実施形態にかかる全固体電池、正極および全固体電池製造方法について、図面を参照して説明する。なお、以下の記載により本開示の技術が限定されるものではない。また、以下の記載においては、同一の構成要素に同一の符号を付与し、重複する説明を省略する。

[0010] [全固体電池]

全固体電池1は、図1に示されているように、正極側集電体層2と負極側集電体層3と固体電解質層5と正極層6と負極層7とを備えている。図1は、実施形態の全固体電池1の概略構造を示す断面図である。正極側集電体層

2は、導体から形成され、膜状に形成されている。負極側集電体層3は、導体から形成され、膜状に形成されている。導体としては、金属が例示される。

[0011] 固体電解質層5は、固体電解質LAGPを含んでいる。固体電解質LAGPは、次化学式で表される化合物から形成されている。



固体電解質層5は、膜状に形成されている。固体電解質層5は、正極側集電体層2と負極側集電体層3との間に配置されている。

[0012] 正極層6は、正極活物質LCPと固体電解質LAGPと導電助剤とを含んでいる。正極活物質LCPは、次化学式で表される化合物から形成されている。



正極層6は、膜状に形成されている。正極層6は、正極側集電体層2と固体電解質層5との間に配置され、正極側集電体層2に接触し、固体電解質層5に接触している。

[0013] 負極層7は、負極活物質と固体電解質LAGPと導電助剤とを含んでいる。負極活物質としては、リン酸バナジウムリチウム $\text{Li}_3\text{V}_2(\text{PO}_4)_3$ 、チタン酸リチウム $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ 、酸化チタン TiO_2 、五酸化ニオブ Nb_2O_5 が例示される。負極層7は、膜状に形成されている。負極層7は、負極側集電体層3と固体電解質層5との間に配置され、負極側集電体層3に接触し、固体電解質層5に接触している。

[0014] 後述する粉末X線回折測定が全固体電池1の正極層6について実施されることにより、図2に示されているように、X線回折パターン11が取得される。図2は、実施形態の全固体電池1の正極層6について粉末X線回折を実行することにより得られたX線回折パターン11を示すグラフである。X線回折パターン11は、入射角 2θ (deg)を強度に対応付ける近似的な連続関数を示し、複数のピークが形成されている。たとえば、複数のピークは、ピーク12とピーク13とピーク14とピーク15とを含んでいる。ピー

ク 1 2 は、正極活物質 L C P O の (1 1 0) 面に対応している。ピーク 1 3 は、正極活物質 L C P O の次式により表現される面に対応している。

[数1]

$$(1\ 1\ \bar{1})$$

ピーク 1 4 は、入射角 2θ が $15.0^\circ \pm 0.2^\circ$ に等しいときに最大値を示し、固体電解質 L A G P の (0 1 2) 面に対応している。ピーク 1 5 は、正極活物質 L C P O の (0 0 2) 面に対応している。ピーク 1 4 は、正極活物質 L C P O に対応する複数のピークのいずれにも重なっていない。

[0015] ピーク 1 4 の半値幅 F W H M は、次式を満たしている。

$$0.178 \leq F W H M \leq 0.317$$

ピーク 1 4 の半値幅 F W H M は、X 線回折パターン 1 1 からバックグラウンドを除去したパターンに基づいてピーク 1 4 の最大強度の半分に相当する強度が算出され、ピーク 1 4 のうちのその強度に相当する部分に対応する広がり角度に基づいて算出される。全固体電池 1 は、ピーク 1 4 の半値幅 F W H M がこのような値を示すときに、放電容量が向上する。

[0016] [固体電池製造方法]

実施形態の固体電池製造方法は、正極活物質 L C P O の粉体の調製と、固体電解質 L A G P の粉体の調製と、全固体電池の作製と、正極層の粉末 X 線回折測定とを備えている。

[0017] [正極活物質 L C P O の粉体の調製]

正極活物質 L C P O の粉体の調製では、予め定められた量のリン酸二水素アンモニウム $NH_4H_2PO_4$ と硝酸リチウム $LiNO_3$ と硝酸コバルト $Co(NO_3)_2 \cdot 6H_2O$ とクエン酸と純水とが、準備され、混合される。混合により調製された混合物は、混合物中の水が蒸発するように加熱される。加熱された混合物は、 $600 \sim 700^\circ C$ で 2 時間～6 時間加熱されることにより、本焼成される。本焼成により調製された焼成品が粉碎されることにより、正極活物質 L C P O の粉体が調製される。このように手順によれば、化学式 $Li_2CoP_2O_7$ で表される化合物から形成される正極活物質 L C P O の粉体が

適切に調製されることができる。

[0018] [固体電解質 L A G P の粉体の調製]

固体電解質 L A G P の粉体は、固相法を用いて調製される。すなわち、予め定められた量の炭酸リチウム Li_2CO_3 の粉体と酸化アルミニウム Al_2O_3 の粉体と二酸化ゲルマニウム GeO_2 の粉体とリン酸二水素アンモニウム $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ の粉体とが、準備され、混合される。混合により調製された混合物は、 $300^\circ\text{C} \sim 400^\circ\text{C}$ で 3 時間～5 時間仮焼成される。仮焼成により調製された仮焼き粉体は、 $1200^\circ\text{C} \sim 1400^\circ\text{C}$ で 1 時間～2 時間熱処理されることにより、溶解される。熱処理により調製された溶解物が急冷されてガラス化されることにより、非晶質の固体電解質 L A G P の粉体が調製される。非晶質の固体電解質 L A G P の粉体が例えば $600^\circ\text{C} \sim 900^\circ\text{C}$ で焼成されることにより、結晶化された固体電解質 L A G P の粉体が調製される。全固体電池の作製に利用される固体電解質 L A G P の粉体は、非晶質の固体電解質 L A G P の粉体、または、結晶化された固体電解質 L A G P の粉体、または、非晶質の固体電解質 L A G P の粉体と結晶化された固体電解質 L A G P の粉体との混合物である。このように手順によれば、化学式 $\text{Li}_{1.5}\text{Al}_{0.5}\text{Ge}_{1.5}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物から形成される固体電解質 L A G P の粉体が適切に調製されることができる。

[0019] [全固体電池の作製]

図 3 は、全固体電池の作製の概略を示すフローチャートである。正極活物質 L C P O の粉体と固体電解質 L A G P の粉体とが、予め定められた質量比（たとえば、50 : 50）で混合されることにより、正極用セラミック粉体が調製される。正極用セラミック粉体に、バインダーと溶媒（無水アルコール）と導電助剤とが添加され、混合されることにより、スラリー状の正極層材料が調製される（ステップ s 1 a）。スラリー状の正極層材料は、ドクターブレード法により、PET フィルム上に塗工され、シート状に成形される。シート状に形成された複数枚の正極層グリーンシートは、積層され、プレス圧着されることにより、予め定められた厚さに調整される。積層・プレス

圧着された正極層グリーンシートが、予め定められたサイズに切断されことにより、正極層シートが作製される（ステップs 2 a）。

[0020] さらに、固体電解質LAGPの粉体が、バインダーと分散剤と可塑剤と非水系溶剤とともに混練されることにより、スラリー状の電解質層材料が調製される（ステップs 1 b）。スラリー状の電解質層材料は、ドクターブレード法により、PETフィルム上に塗工され、シート状に成形される。シート状に形成された複数枚の電解質層グリーンシートは、積層され、プレス圧着されることにより、予め定められた厚さに調整される。厚さが調製された電解質層グリーンシートが、予め定められたサイズに切断されことにより、固体電解質層シートが作製される（ステップs 2 b）。

[0021] さらに、負極活物質の粉体が準備される。負極活物質としては、リン酸バナジウムリチウム $\text{Li}_3\text{V}_2(\text{PO}_4)_3$ 、チタン酸リチウム $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ 、酸化チタン TiO_2 、五酸化ニオブ Nb_2O_5 が例示される。負極活物質の粉体と固体電解質LAGPの粉体とが、予め定められた質量比（たとえば、50 : 50）で混合されることにより、負極用セラミック粉体が調製される。負極用セラミック粉体に、バインダーと溶媒（無水アルコール）と導電助剤とが添加され、混合されることにより、スラリー状の負極層材料が調製される（ステップs 1 c）。スラリー状の負極層材料は、ドクターブレード法により、PETフィルム上に塗工され、シート状に成形される。シート状に形成された複数枚の負極層グリーンシートは、積層され、プレス圧着されることにより、予め定められた厚さに調整される。厚さが調製された負極層グリーンシートが、予め定められたサイズに切断されことにより、負極層シートが作製される（ステップs 2 c）。

[0022] 固体電解質層シートと正極層シートと負極層シートとは、固体電解質層シートが正極層シートと負極層シートとで挟持されるように、積層され、圧着される。圧着により作製された積層体は、脱脂されるように、予め定められた温度で熱処理される（ステップs 4）。固体電解質層シートと正極層シートと負極層シートとに含まれるバインダーは、この熱処理により、熱分解さ

れる。

[0023] 脱脂された積層体が、予め定められた焼成温度で焼成されることにより、焼結体である積層電極体が作製される（ステップs 6）。さらに、固体電解質層シートと正極層シートと負極層シートとに含まれる固体電解質LAGPは、この熱処理により、焼結する。積層電極体の両面がスパッタリングまたは蒸着され、金属箔に被覆されることにより、全固体電池1が作製される（ステップs 7）。このとき、積層電極体のうちの正極層シートの側の表面を被覆する金属箔は、正極側集電体層2に対応している。積層電極体のうちの負極層シートの側の表面を被覆する金属箔は、負極側集電体層3に対応している。固体電解質層シートから形成された部分は、固体電解質層5に対応している。正極層シートから形成された部分は、正極層6に対応している。負極層シートから形成された部分は、負極層7に対応している。

[0024] なお、積層体は、固体電解質層シートと正極層シートと負極層シートとが積層されることにより、作製されているが、シートの積層と異なる他の方法により作製されてもよい。たとえば、正極層印刷用ペーストと負極層印刷用ペーストとが調製される。正極層印刷用ペーストは、正極用セラミック粉体と導電助剤とバインダーと分散剤と可塑剤と非水系溶剤とが混合されることにより調製される。負極層印刷用ペーストは、負極用セラミック粉体と導電助剤とバインダーと分散剤と可塑剤と非水系溶剤とが混合されることにより調製される。正極層印刷用ペーストは、スクリーン印刷により、固体電解質層シート的一方の面に塗工される。負極層印刷用ペーストは、スクリーン印刷により、固体電解質層シートの他方の面に塗工される。固体電解質層シートに正極層印刷用ペーストと負極層印刷用ペーストとが塗工されることにより、積層体を作製される。このような積層体は、ステップs 4～s 7の処理が実行されることにより、既述の積層体と同様に、全固体電池1に作製される。

[0025] [正極層の粉末X線回折測定]

正極層の粉末X線回折測定では、全固体電池の作製で作製された全固体電

池 1 の正極層 6 について実施される。全固体電池 1 の正極層 6 について粉末 X 線回折測定が実施されることにより、X 線回折パターンが取得され、X 線回折パターンのうちの固体電解質 LAGP の (012) 面に対応するピークの半値幅 FWHM が次条件を満たすかどうか判定される。

$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

粉末 X 線回折測定された全固体電池は、半値幅 FWHM が条件を満たすときに、良品と判定され、半値幅 FWHM が条件を満たさないときに、不良品と判定される。

[0026] 実施形態の固体電池製造方法では、良品と判定された全固体電池が作製されたときに用いられた条件と同じ条件で、他の全固体電池を作製する。固体電池製造方法は、このように全固体電池が作製されることにより、半値幅 FWHM が条件を満たすように、全固体電池を適切に作製することができる。

[0027] 既述の固体電池製造方法に基づいて複数の全固体電池試料が作製されている。その複数の全固体電池試料は、実施例 1 の全固体電池と、実施例 2 の全固体電池と、比較例 1 の全固体電池と、比較例 2 の全固体電池とを含んでいる。

実施例 1

[0028] 実施例 1 の全固体電池に用いられる正極活物質 LCP O の粉体は、リン酸二水素アンモニウム $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ と硝酸リチウム LiNO_3 と硝酸コバルト $\text{Co}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ とクエン酸と純水が固相反応で合成された正極活物質 LCP O から形成されている。その合成された正極活物質 LCP O が $0.5 \mu\text{m}$ の粒径までボールミルで粉砕されることにより、実施例 1 の全固体電池の作製に用いられる正極活物質 LCP O の粉体が調製されている。

[0029] 実施例 1 の全固体電池の作製に用いられる固体電解質 LAGP の粉体は、固相法を用いて作製されている。すなわち、炭酸リチウム Li_2CO_3 と酸化アルミニウム Al_2O_3 と二酸化ゲルマニウム GeO_2 とリン酸二水素アンモニウム $\text{NH}_4\text{H}_2\text{PO}_4$ の粉体が磁性乳鉢で混合された後に、ボールミルでさらに混合されている。混合により調製された混合物は、アルミナルツボに入れら

れ、300℃で5時間加熱されることにより、仮焼成されている。仮焼成により調製された仮焼き粉体は、1300℃で2時間熱処理された後に、急冷されている。急冷によりガラス化された粉体が1.0 μmの粒径までボールミルで粉砕されることにより、実施例1の全固体電池の作製に用いられる固体電解質LAGPの粉体が調製されている。

[0030] 実施例1の全固体電池の作製では、正極層印刷用ペーストと負極層印刷用ペーストと固体電解質層シートとが用いられている。正極層印刷用ペーストは、正極活物質LCP Oと固体電解質LAGPと導電助剤とが、正極活物質LCP O：固体電解質LAGP：VGCF=3.88：5.82：0.3の重量比で混合された混合物により調製されている。導電助剤は、カーボンナノチューブ（たとえば、VGCF（登録商標））から形成されている。混合により調製された混合物に、バインダーと分散剤と可塑剤と非水系溶剤とが予め定められた比率で混練されることにより、正極層印刷用ペーストが作製されている。

[0031] 負極層印刷用ペーストは、負極活物質と固体電解質LAGPと導電助剤とが、負極活物質：固体電解質LAGP：VGCF=3.88：5.82：0.3の重量比で混合された混合物により調製されている。負極活物質としては、粒径が1.0 μmである五酸化ニオブNb₂O₅の粉体利用されている。導電助剤は、カーボンナノチューブ（たとえば、VGCF（登録商標））から形成されている。混合により調製された混合物に、バインダーと分散剤と可塑剤と非水系溶剤とが予め定められた比率で混練されることにより、負極層印刷用ペーストが作製されている。

[0032] 固体電解質層シートは、固体電解質LAGPの粉体とバインダーと分散剤と可塑剤と非水系溶剤とが予め定められた比率で混練されることにより調製されるスラリー状の電解質層材料から調製されている。固体電解質LAGPは、正極層印刷用ペーストの作製に用いられた固体電解質LAGPと同じものが利用されている。スラリー状の電解質層材料からドクターブレード法により調製された複数枚の電解質層グリーンシートが、積層されてプレス圧着

されることにより、厚さが200 μ mである固体電解質層シートが作製されている。

[0033] 正極層印刷用ペーストは、スクリーン印刷により、固体電解質層シートの一方の面に塗工される。負極層印刷用ペーストは、スクリーン印刷により、固体電解質層シートの他方の面に塗工される。固体電解質層シートに正極層印刷用ペーストと負極層印刷用ペーストとが塗工されることにより、積層体が作製されている。積層体は、脱脂されるように、Airフローを用いて50℃/時間で昇温され、500℃で5時間保持されるように熱処理され、自然冷却で降温されている。積層体は、脱脂された後に、焼成されるように、窒素フローを用いて50℃/時間で昇温され、587℃5時間保持されるように熱処理され、自然冷却で降温されている。積層体が焼成されることにより、積層電極体が作製されている。

[0034] 積層電極体の両面に金Auの薄膜がスパッタされることにより、実施例1の全固体電池が作製されている。このとき、積層電極体のうちの正極層印刷用ペーストの側の表面を被覆する薄膜は、正極側集電体層2に対応している。積層電極体のうちの負極層印刷用ペーストの側の表面を被覆する薄膜は、負極側集電体層3に対応している。固体電解質層シートから形成された部分は、固体電解質層5に対応している。正極層印刷用ペーストから形成された部分は、正極層6に対応している。負極層印刷用ペーストから形成された部分は、負極層7に対応している。

実施例 2

[0035] 実施例2の全固体電池は、脱脂された積層体が焼成される焼成温度が600℃である以外は、実施例1の全固体電池と同様に作製されている。

実施例3の全固体電池は、脱脂された積層体が焼成される焼成温度が612℃である以外は、実施例1の全固体電池と同様に作製されている。

実施例4の全固体電池は、脱脂された積層体が焼成される焼成温度が625℃である以外は、実施例1の全固体電池と同様に作製されている。

実施例5の全固体電池は、脱脂された積層体が焼成される焼成温度が63

7℃である以外は、実施例1の全固体電池と同様に作製されている。

[0036] 比較例1の全固体電池は、脱脂された積層体が焼成される焼成温度が575℃である以外は、実施例1の全固体電池と同様に作製されている。比較例2の全固体電池は、脱脂された積層体が焼成される焼成温度が650℃である以外は、実施例1の全固体電池と同様に作製されている。

[0037] 複数の全固体電池試料の各々の全固体電池試料は、XRD測定試験が実施され、充放電特性評価試験が実施されている。

[0038] [XRD測定試験]

XRD測定試験は、株式会社リガク製の粉体X線回折装置SmartLabを用いて実施され、株式会社リガク製の統合粉末X線解析ソフトウェアPDXLを用いて解析されている。XRD測定試験では、X線としてCuK α が用いられている。XRD測定試験は、さらに、スリット幅が5mmであり、管電圧が40kVであり、管電流が30mAであり、 $2\theta = 5^{\circ} \sim 20^{\circ}$ を 0.1 deg/min のスピードの条件で、実施されている。複数の全固体電池試料にXRD測定試験が実施され、XRD測定試験の結果が解析されることにより、複数の全固体電池試料に対応する複数のX線回折パターンが取得されている。

[0039] 複数のX線回折パターンの各X線回折パターンは、図2に示されているように、入射角 2θ を強度に対応付ける近似的な連続関数を示し、複数のピークが形成されている。XRD測定試験では、複数の全固体電池試料に対応する複数の半値幅FWHMがさらに算出されている。複数の半値幅FWHMのうちのある全固体電池試料に対応する半値幅FWHMは、複数のX線回折パターンのうちのその全固体電池試料に対応するX線回折パターンのうちの固体電解質LAGPの(012)面に対応しているピークの半値幅FWHMを示している。半値幅FWHMは、X線回折パターンからバックグラウンドを除去したパターンに基づいてそのピークの最大強度の半分に相当する強度が算出され、そのピークのうちのその強度に相当する部分に対応する広がり角度に基づいて算出されている。

[0040] 実施例1の全固体電池に対応する半値幅FWHMは、 0.317° を示している。

実施例2の全固体電池に対応する半値幅FWHMは、 0.310° を示している。

実施例3の全固体電池に対応する半値幅FWHMは、 0.274° を示している。

実施例4の全固体電池に対応する半値幅FWHMは、 0.241° を示している。

実施例5の全固体電池に対応する半値幅FWHMは、 0.178° を示している。

比較例1の全固体電池に対応する半値幅FWHMは、 0.352° を示している。

比較例2の全固体電池に対応する半値幅FWHMは、 0.127° を示している。

[0041] [充放電特性評価試験]

充放電特性評価試験では、複数の全固体電池試料は、室温にて、電池電圧が 3.6 V になるまで $1/20\text{ C}$ レートで定電流充電されている。複数の全固体電池試料は、さらに、室温にて電池電圧が 0.5 V になるまで $1/20\text{ C}$ レートで試料が定電流放電されている。全固体電池試料は、このように充放電されることにより、複数の全固体電池試料に対応する複数の放電容量が測定されている。複数の放電容量のうちのある全固体電池試料に対応する放電容量は、その全固体電池の放電容量を示している。

[0042] 実施例1の全固体電池に対応する放電容量は、 84.5 mAh/g を示している。

実施例2の全固体電池に対応する放電容量は、 78.0 mAh/g を示している。

実施例3の全固体電池に対応する放電容量は、 74.7 mAh/g を示している。

実施例4の全固体電池に対応する放電容量は、77.7 mAh/gを示している。

実施例5の全固体電池に対応する放電容量は、59.5 mAh/gを示している。

比較例1の全固体電池に対応する放電容量は、30.9 mAh/gを示している。

比較例2の全固体電池に対応する放電容量は、38.9 mAh/gを示している。

[0043] 表1は、全固体電池の正極層の粉末X線回折測定の結果のX線回折パターンのうちの固体電解質LAGPの(012)面に対応するピークの半値幅と全固体電池の放電容量との関係を示している。

[表1]

(表1)

	燃成温度[°C]	LAGP(012) FWHM	放電容量 [mAh/g]
比較例1	575	0.352	30.9
実施例1	587	0.317	84.5
実施例2	600	0.310	78
実施例3	612	0.274	74.7
実施例4	625	0.241	77.7
実施例5	637	0.178	59.5
比較例2	650	0.127	38.9

図4は、全固体電池の正極層の粉末X線回折測定により取得されたX線回折パターンのうちの固体電解質LAGPの(012)面に対応するピークの半値幅と全固体電池の放電容量との関係を示すグラフである。

[0044] 表1と図4のグラフとは、実施例1の全固体電池の放電容量と実施例2の全固体電池の放電容量とが、比較例1の全固体電池の放電容量より大きく、比較例2の全固体電池の放電容量より大きいこと示している。表1と図4のグラフとは、さらに、半値幅FWHMが次式を満たす全固体電池試料の放電

容量が、半値幅 FWHM が次式を満たさない全固体電池試料の放電容量より大きいことを示している。

$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

[0045] X線回折パターンのうちのあるピークの半値幅 FWHM は、そのピークに対応する結晶子の大きさに関連することが知られている。半値幅 FWHM が 0.178 より小さいことは、正極層 6 の中の固体電解質 LAGP の結晶性が向上していることを示し、正極層 6 のイオン伝導が高まった状態となることを示している。半値幅 FWHM が 0.178 より小さいことは、さらに、正極層 6 の中で正極活物質 LCP O と固体電解質 LAGP との反応性が高まることを示している。このため、正極層 6 の内部は、半値幅 FWHM が 0.178 より小さいときに、正極層 6 の抵抗成分となる他の結晶相の生成が発生した状態となり、正極層 6 を備える全固体電池 1 は、充放電特性が低下するものと考えられる。

[0046] 半値幅 FWHM が 0.317 より大きい場合は、固体電解質 LAGP のガラスの結晶化が十分でなく、イオン伝導性が低い状態となることを示している。このため、半値幅 FWHM が 0.317 より大きい正極層 6 を備える全固体電池 1 は、充放電特性の低下が起こっていると考えられる。

[0047] [実施形態の全固体電池の効果]

実施形態の全固体電池 1 は、正極層 6 と、負極層 7 と、正極層 6 と負極層 7 との間に挟持される固体電解質層 5 とを備えている。正極層 6 は、化学式 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ で表される化合物から形成される正極活物質 LCP O と、化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物から形成される固体電解質 LAGP とを含んでいる。ここで、数 x は、次式を満たしている。

$$0 < x < 1$$

$\text{CuK}\alpha$ を利用した粉末 X 線回折測定を正極層 6 について実行することにより取得される X 線回折パターン 11 のうちの固体電解質 LAGP の (012) 面に対応するピーク 14 の半値幅 FWHM は、次式を満たしている。

$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

このとき、全固体電池 1 は、正極層 6 の抵抗成分となる結晶相が正極活物質 L C P O と固体電解質 L A G P との反応により正極層 6 に生成されることを防止し、放電容量を向上させることができる。

[0048] また、実施形態の全固体電池 1 の正極層 6 は、正極層 6 の電気抵抗を低減する導電助剤をさらに含んでいてもよい。ところで、既述の全固体電池 1 の正極層 6 は、導電助剤を含んでいるが、導電助剤を含んでいなくてもよい。また、既述の全固体電池 1 の負極層 7 は、導電助剤を含んでいるが、導電助剤を含んでいなくてもよい。全固体電池 1 は、正極層 6 が導電助剤を含んでいない場合でも、負極層 7 が導電助剤を含んでいない場合でも、ピーク 14 の半値幅 F W H M が特定の範囲に含まれることにより、放電容量を向上させることができる。

[0049] また、実施形態の全固体電池 1 の固体電解質 L A G P は、化学式 $\text{Li}_{1.5}\text{Al}_{0.5}\text{Ge}_{1.5}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物から形成されていてもよい。ところで、既述の正極層 6 は、化学式 $\text{Li}_{1.5}\text{Al}_{0.5}\text{Ge}_{1.5}(\text{PO}_4)_3$ で表される固体電解質 L A G P が含まれているが、化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ ($0 < x < 1$) で表される固体電解質 L A G P が含まれていてもよい。全固体電池 1 は、化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ ($0 < x < 1$) から形成される固体電解質 L A G P が含まれている場合でも、ピーク 14 の半値幅 F W H M が特定の範囲に含まれることにより、放電容量を向上させることができる。

[0050] 実施形態の正極は、正極層 6 と負極層 7 との間に固体電解質層 5 が挟持される積層電極体を備えた全固体電池において正極層 6 に用いられるものである。正極は、化学式 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ で表される化合物から形成される正極活物質 L C P O と、化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物から形成される固体電解質 L A G P とを含んでいる。ここで、数 x は、次式を満たしている。

$$0 < x < 1$$

C u K α を利用した粉末 X 線回折測定を正極層 6 について実行することに

より取得されるX線回折パターンのうちの固体電解質LAGPの(012)面に対応するピークの半値幅FWHMは、次式を満たしている。

$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

このとき、正極は、全固体電池に設けられたときに、全固体電池の放電容量を向上させることができる。

[0051] 実施形態の全固体電池製造方法は、正極層6と負極層7との間に固体電解質層5が挟持される積層電極体を備えた全固体電池を製造する方法である。実施形態の全固体電池製造方法は、CuK α を利用した粉末X線回折測定を正極層6について実施することにより取得されるX線回折パターンのうちの固体電解質LAGPの(012)面に対応するピークの半値幅FWHMを算出することを備えている。実施形態の全固体電池製造方法は、半値幅FWHMが次式を満たすように作製された正極層6を用いて全固体電池を作製することをさらに備えている。

$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

このとき、全固体電池製造方法により作製される全固体電池は、放電容量を向上させることができる。

[0052] 以上、実施例を説明したが、前述した内容により実施例が限定されるものではない。また、前述した構成要素には、当業者が容易に想定できるもの、実質的に同一のもの、いわゆる均等の範囲のものが含まれる。さらに、前述した構成要素は適宜組み合わせることが可能である。さらに、実施例の要旨を逸脱しない範囲で構成要素の種々の省略、置換及び変更のうち少なくとも1つを行うことができる。

符号の説明

- [0053]
- 1 : 全固体電池
 - 2 : 正極側集電体層
 - 3 : 負極側集電体層
 - 5 : 固体電解質層
 - 6 : 正極層

7 : 負極層

1 1 : X線回折パターン

1 4 : ピーク

請求の範囲

- [請求項1] 正極層と、
負極層と、
正極層と負極層との間に挟持される固体電解質層とを備え、
前記正極層は、
化学式 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ で表される化合物 LiCoPO から形成される
正極活物質と、
化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物 LAGP
から形成される固体電解質とを含み、
数 x は、次式：
$$0 < x < 1$$

を満たし、
 $\text{CuK}\alpha$ を利用した粉末X線回折測定を前記正極層について実行す
ることにより取得されるX線回折パターンのうちの前記化合物 LAGP
の (012) 面に対応するピークの半値幅 FWHM は、次式：
$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

を満たす
全固体電池。
- [請求項2] 前記正極層は、前記正極層の電気抵抗を低減する導電助剤をさらに
含む
請求項1に記載の全固体電池。
- [請求項3] 化合物 LAGP は、化学式 $\text{Li}_{1.5}\text{Al}_{0.5}\text{Ge}_{1.5}(\text{PO}_4)_3$ で
表される
請求項1に記載の全固体電池。
- [請求項4] 正極層と負極層との間に固体電解質層が挟持される積層電極体を備
えた全固体電池において前記正極層に用いられる正極であり、
化学式 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ で表される化合物 LiCoPO から形成される
正極活物質と、

化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物 LAGP から形成される固体電解質とを含み、

数 x は、次式：

$$0 < x < 1$$

を満たし、

$\text{CuK}\alpha$ を利用した粉末 X 線回折測定を前記正極層について実行することにより取得される X 線回折パターンのうちの前記化合物 LAGP の (012) 面に対応するピークの半値幅 FWHM は、次式：

$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

を満たす

正極。

[請求項5]

正極層と、

負極層と、

正極層と負極層との間に挟持される固体電解質層とを備え、

前記正極層は、

化学式 $\text{Li}_2\text{CoP}_2\text{O}_7$ で表される化合物 LCP O から形成される正極活物質と、

化学式 $\text{Li}_{1+x}\text{Al}_x\text{Ge}_{2-x}(\text{PO}_4)_3$ で表される化合物 LAGP から形成される固体電解質とを含み、

数 x は、次式：

$$0 < x < 1$$

を満たす

全固体電池

を製造する全固体電池製造方法であり、

$\text{CuK}\alpha$ を利用した粉末 X 線回折測定を前記正極層について実行することにより取得される X 線回折パターンのうちの前記化合物 LAGP の (012) 面に対応するピークの半値幅 FWHM を算出すること

、

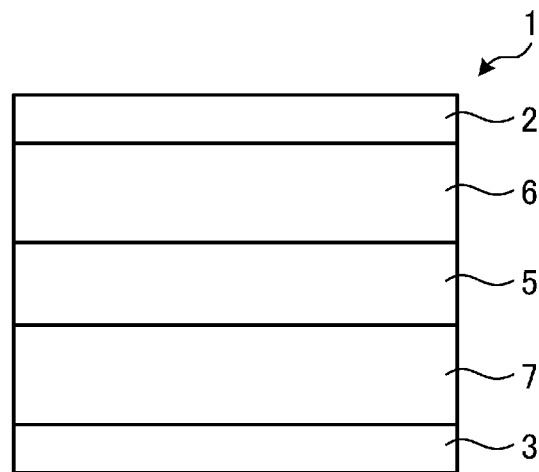
半値幅 FWHM が、次式：

$$0.178 \leq \text{FWHM} \leq 0.317$$

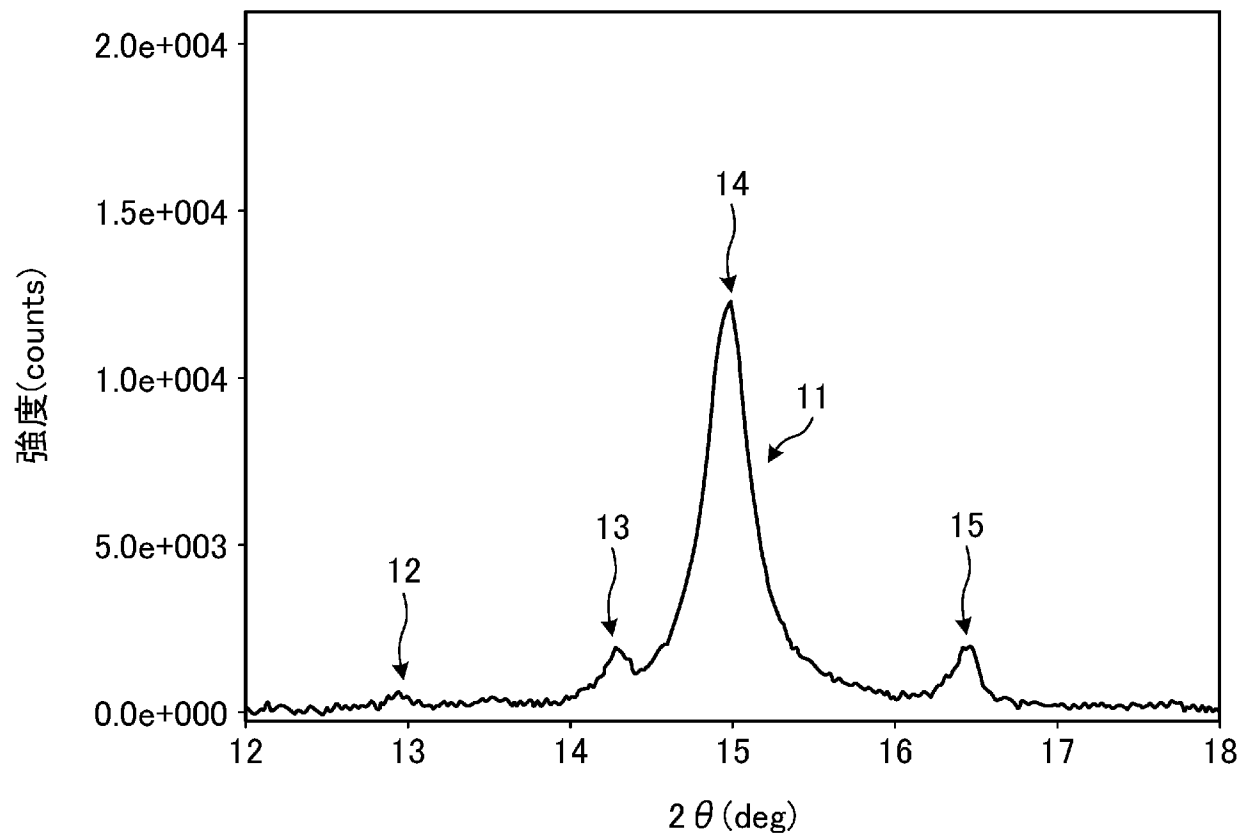
を満たすように作製された正極層を用いて全固体電池を作製すること

とを備える全固体電池製造方法。

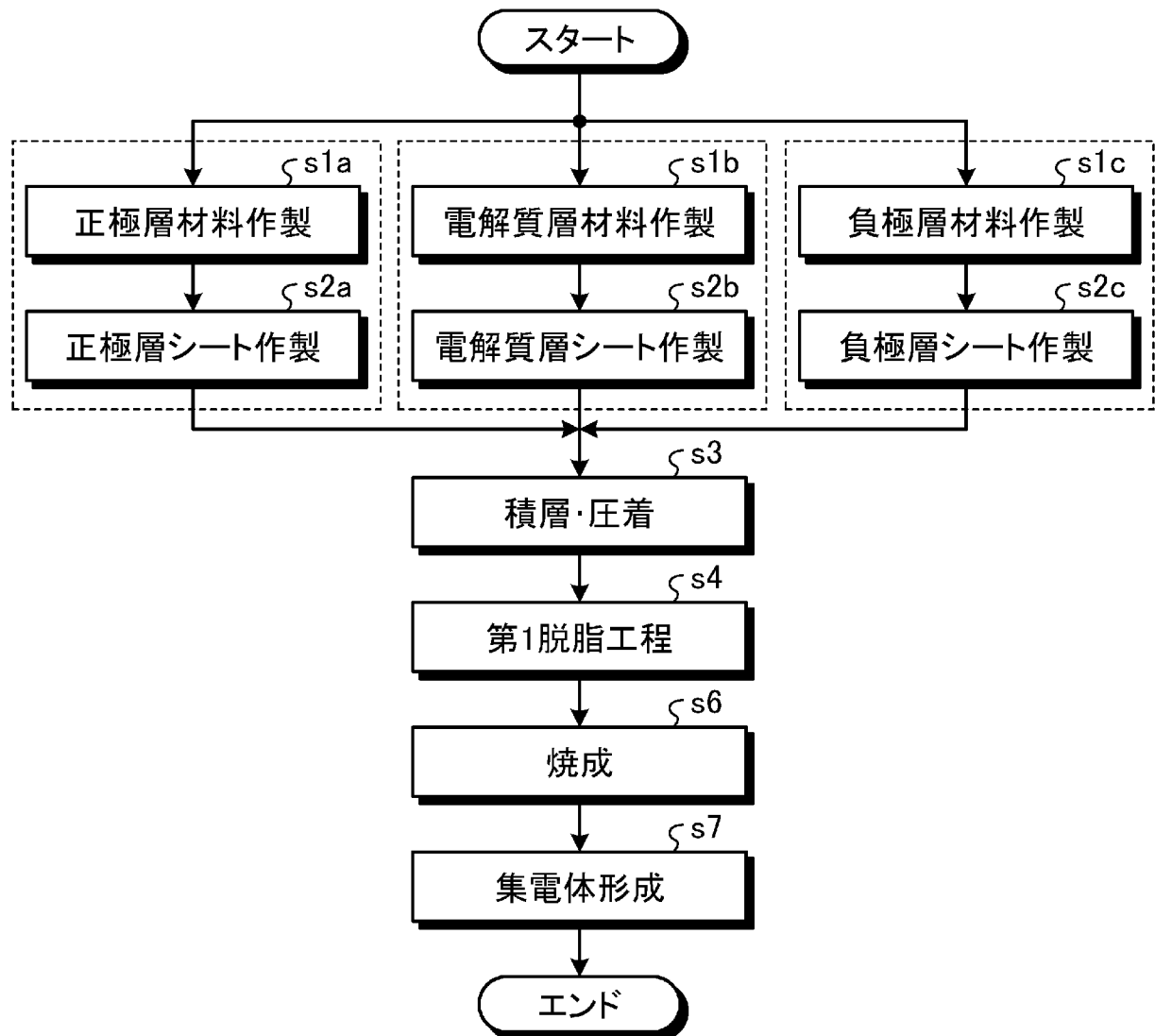
[図1]



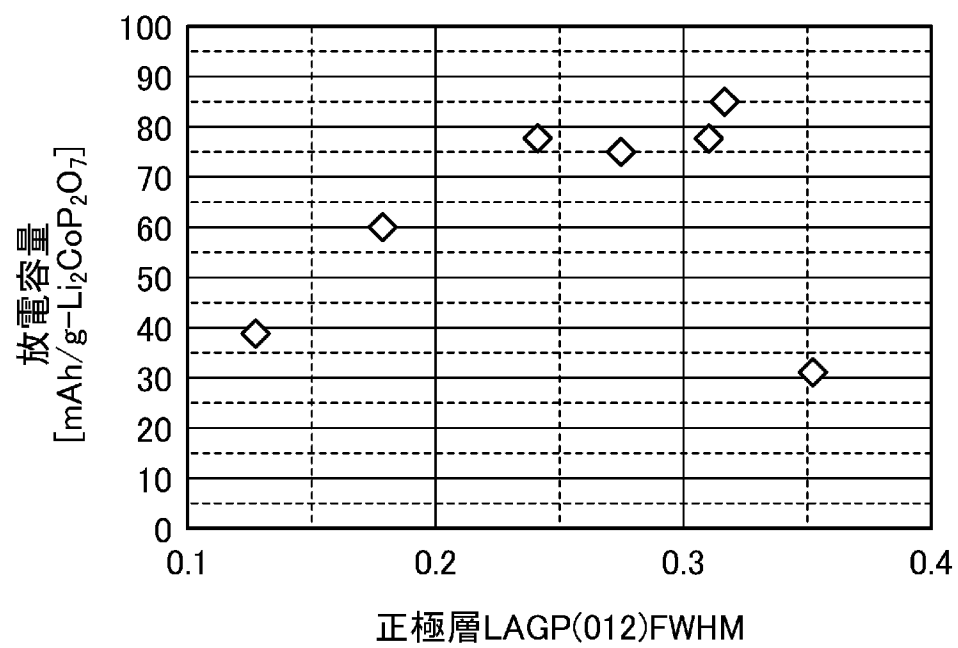
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/029716

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C01B25/45 (2006.01) i, H01M4/58 (2010.01) i, H01M4/62 (2006.01) i, H01M10/052 (2010.01) i, H01M10/0562 (2010.01) i, H01M10/058 (2010.01) i
FI: H01M10/052, H01M10/0562, H01M4/58, H01M4/62Z, H01M10/058, C01B25/45T, C01B25/45Z

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)

Int.Cl. C01B25/45, H01M4/58, H01M4/62, H01M10/052, H01M10/0562, H01M10/058

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	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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

CAPLUS (STN), JSTPLUS (JDreamIII), JST7580 (JDreamIII), JSTChina (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2019/163448 A1 (FDK CORPORATION) 29.08.2019 (2019-08-29), claims 1, 5-6, paragraphs [0028], [0032]	1-5
X	JP 2018-116776 A (FDK CORPORATION) 26.07.2018 (2018-07-26), claims 1, 4, paragraphs [0024], [0027], [0035]	1-5
P, X	JP 2020-113376 A (FDK CORPORATION) 27.07.2020 (2020-07-27), entire text	1-5
P, X	JP 2019-179669 A (FDK CORPORATION) 17.10.2019 (2019-10-17), entire text	1-5
E, A	JP 2020-119758 A (FUJITSU LIMITED) 06.08.2020 (2020-08-06), entire text	1-5

☐ 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
18.09.2020

Date of mailing of the international search report
06.10.2020

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/029716

WO 2019/163448 A1	29.08.2019	JP 2019-145486 A	claims 1, 5-6, paragraphs [0028], [0032]
JP 2018-116776 A	26.07.2018	(Family: none)	
JP 2020-113376 A	27.07.2020	(Family: none)	
JP 2019-179669 A	17.10.2019	(Family: none)	
JP 2020-119758 A	06.08.2020	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C01B 25/45(2006.01)i; H01M 4/58(2010.01)i; H01M 4/62(2006.01)i; H01M 10/052(2010.01)i; H01M 10/0562(2010.01)i; H01M 10/058(2010.01)i FI: H01M10/052; H01M10/0562; H01M4/58; H01M4/62 Z; H01M10/058; C01B25/45 T; C01B25/45 Z																				
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）） C01B25/45; H01M4/58; H01M4/62; H01M10/052; H01M10/0562; H01M10/058 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 border="0"> <tr> <td>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 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2020年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2020年</td> </tr> </table> 国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に利用した用語） CAplus (STN); JSTplus (JdreamIII); JST7580 (JdreamIII); JSTChina (JdreamIII)			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2020年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2020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 - 2020年																			
日本国実用新案登録公報	1996 - 2020年																			
日本国登録実用新案公報	1994 - 2020年																			
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X</td> <td>WO 2019/163448 A1 (F D K株式会社) 29.08.2019 (2019 - 08 - 29) 請求項1, 5-6, [0028], [0032]</td> <td>1-5</td> </tr> <tr> <td>X</td> <td>JP 2018-116776 A (F D K株式会社) 26.07.2018 (2018 - 07 - 26) 請求項1, 4, [0024], [0027], [0035]</td> <td>1-5</td> </tr> <tr> <td>P, X</td> <td>JP 2020-113376 A (F D K株式会社) 27.07.2020 (2020 - 07 - 27) 全文</td> <td>1-5</td> </tr> <tr> <td>P, X</td> <td>JP 2019-179669 A (F D K株式会社) 17.10.2019 (2019 - 10 - 17) 全文</td> <td>1-5</td> </tr> <tr> <td>E, A</td> <td>JP 2020-119758 A (富士通株式会社) 06.08.2020 (2020 - 08 - 06) 全文</td> <td>1-5</td> </tr> </tbody> </table>			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	WO 2019/163448 A1 (F D K株式会社) 29.08.2019 (2019 - 08 - 29) 請求項1, 5-6, [0028], [0032]	1-5	X	JP 2018-116776 A (F D K株式会社) 26.07.2018 (2018 - 07 - 26) 請求項1, 4, [0024], [0027], [0035]	1-5	P, X	JP 2020-113376 A (F D K株式会社) 27.07.2020 (2020 - 07 - 27) 全文	1-5	P, X	JP 2019-179669 A (F D K株式会社) 17.10.2019 (2019 - 10 - 17) 全文	1-5	E, A	JP 2020-119758 A (富士通株式会社) 06.08.2020 (2020 - 08 - 06) 全文	1-5
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	WO 2019/163448 A1 (F D K株式会社) 29.08.2019 (2019 - 08 - 29) 請求項1, 5-6, [0028], [0032]	1-5																		
X	JP 2018-116776 A (F D K株式会社) 26.07.2018 (2018 - 07 - 26) 請求項1, 4, [0024], [0027], [0035]	1-5																		
P, X	JP 2020-113376 A (F D K株式会社) 27.07.2020 (2020 - 07 - 27) 全文	1-5																		
P, X	JP 2019-179669 A (F D K株式会社) 17.10.2019 (2019 - 10 - 17) 全文	1-5																		
E, A	JP 2020-119758 A (富士通株式会社) 06.08.2020 (2020 - 08 - 06) 全文	1-5																		
☐ 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、一般的な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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献																				
国際調査を完了した日 18.09.2020		国際調査報告の発送日 06.10.2020																		
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 磯部 香 4X 3637 電話番号 03-3581-1101 内線 3477																		

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/029716

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO	2019/163448	A1	29.08.2019	JP 2019-145486 A 請求項1, 5-6, [0028], [0032]	
JP	2018-116776	A	26.07.2018	(ファミリーなし)	
JP	2020-113376	A	27.07.2020	(ファミリーなし)	
JP	2019-179669	A	17.10.2019	(ファミリーなし)	
JP	2020-119758	A	06.08.2020	(ファミリーなし)	