

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】令和2年5月7日(2020.5.7)

【公表番号】特表2019-513869(P2019-513869A)

【公表日】令和1年5月30日(2019.5.30)

【年通号数】公開・登録公報2019-020

【出願番号】特願2018-553389(P2018-553389)

【国際特許分類】

C 08 F 212/08	(2006.01)
H 01 M 4/62	(2006.01)
H 01 M 4/139	(2010.01)
H 01 M 4/13	(2010.01)
H 01 M 10/052	(2010.01)
H 01 M 10/0566	(2010.01)
C 08 F 220/44	(2006.01)

【F I】

C 08 F 212/08	
H 01 M 4/62	Z
H 01 M 4/139	
H 01 M 4/13	
H 01 M 10/052	
H 01 M 10/0566	
C 08 F 220/44	

【手続補正書】

【提出日】令和2年3月25日(2020.3.25)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

- ・約0.01から約0.20の間、好ましくは約0.05から約0.10の間で変動するモル比aを有するモノマーA、
- ・約0.15から約0.4の間、好ましくは約0.15から約0.30の間で変動するモル比bを有するモノマーB、および
- ・約0.50から約0.70の間、好ましくは約0.60から約0.70の間で変動するモル比cを有するモノマーC

を含むコポリマーであって、

前記モノマーAが、低モル質量のポリエチレンオキシド(POE)のペンダント型鎖を含む親水性モノマーであり、

前記モノマーBが、約-30またはそれ未満のガラス転移温度(Tg)を有する疎水性モノマーであり、

前記モノマーCが、前記モノマーBより疎水性であり、約80またはそれよりも高いガラス転移温度(Tg)を有し、

前記モノマーが、

- ・親水性セグメント、
- ・疎水性セグメント、および

- ・前記親水性セグメントと前記疎水性セグメントの間に位置する中間セグメントに組織化され、

前記中間セグメントが、前記親水性セグメントの親水性と前記疎水性セグメントの親水性の中ほどの親水性を有し、

前記親水性セグメントが、前記モノマーAおよび前記モノマーBの一部分を含み、前記中間セグメントおよび前記疎水性セグメントが、前記モノマーBの残りおよび前記モノマーCを含み、前記中間セグメントが、前記疎水性セグメントに比べて前記モノマーBが富化されており、前記疎水性セグメントが、前記中間セグメントに比べて前記モノマーCが富化されている、コポリマー。

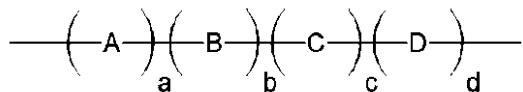
【請求項2】

前記コポリマーが、約0から約0.10の間で変動するモル比dで、水中において化学的架橋可能なモノマーであるモノマーDをさらに含む、請求項1に記載のコポリマー。

【請求項3】

前記コポリマーが、次式

【化 1 1】



を有し、式中、

A、B、C および D はそれぞれ、前記モノマー A、B、C および D を表し、

a、b、c および d はそれぞれ、前記モル比 a、b、c および d を表す、

請求項 1 または 2 に記載のコポリマー。

【請求項4】

P O E の前記ペンダント型鎖の前記モル質量が、約 300 から約 2000 g / mol の間、好ましくは約 300 から約 1000 g / mol の間、より好ましくは約 300 から約 500 g / mol の間で変動する、請求項 1 から 3 のいずれか一項に記載のコポリマー。

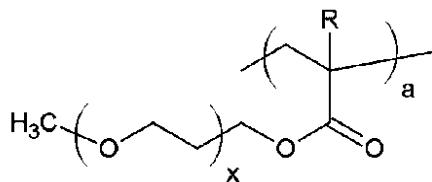
【請求項5】

前記モノマー A が、ポリエチレングリコールメチルアクリレートまたはポリエチレングリコールメチルメタクリレートである、請求項 1 から 4 のいずれか一項に記載のコポリマー。

【請求項6】

前記モノマ - A が、式

【化 1 2】



を有し、式中、

Rは、水素原子またはメチル基であり、xは、前記POE鎖の前記モル質量が請求項4に定義した通りである数のPOE反復単位を表す、請求項5に記載のコポリマー。

【請求項 7】

前記モノマーBの前記ガラス転移温度(T_g)が、約-30から約-60の間で変動する、請求項1から6のいずれか一項に記載のコポリマー。

【請求項 8】

前記モノマ - B が、

- ### ・ n - ブチルアクリレート、

・約-30またはそれ未満のTgを有する別のアクリレートまたはメタクリレート、特にアルキルアクリレートまたはメタクリレートであって、前記アルキルが、置換されていない、または好ましくは鎖末端部において、1個もしくは数個のヒドロキシおよび/もしくはアルコキシ基で置換されており、前記アルコキシが、置換されていない、または好ましくは前記末端部において、1個もしくは数個のヒドロキシおよび/もしくはアルコキシ基、好ましくはアルコキシ基で置換されているアクリレートまたはメタクリレート、

・ブチルビニルエーテル、あるいは

・それらの混合物

である、請求項1から7のいずれか一項に記載のコポリマー。

【請求項9】

前記モノマーCが、スチレンまたはその誘導体、アクリロニトリル、vinazene(商標)(イミダゾールの誘導体、さらに詳細には2-ビニル-4,5-ジシアノイミダゾール)、メチルメタクリレート、tert-ブチルメタクリレート、アクリロイルモルホリン、フェニルメタクリレート、ビニルフェロセン、フェロセンメチルメタクリレートまたはそれらの混合物である、請求項1から8のいずれか一項に記載のコポリマー。

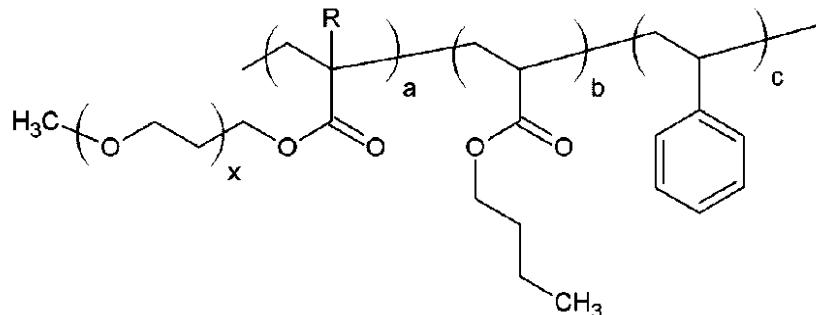
【請求項10】

モノマーDとしてアクリルアミドジケトンを含む、請求項1から9のいずれか一項に記載のコポリマー。

【請求項11】

前記モノマーAが、ポリエチレングリコールメチルアクリレートまたはポリエチレングリコールメチルメタクリレートであり、前記モノマーBがn-ブチルアクリレートであり、前記モノマーCがスチレンであり、好ましくは前記コポリマーが、次式

【化13】

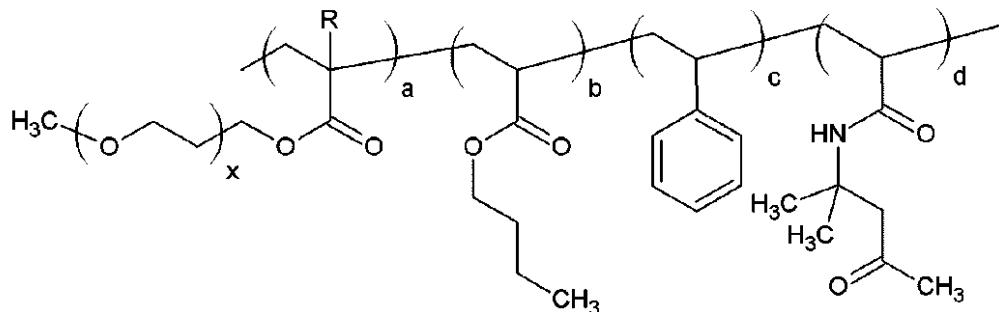


を有し、式中、Rおよびxは、請求項6に定義した通りであり、a、bおよびcは、請求項1に定義した通りである、請求項1から10のいずれか一項に記載のコポリマー。

【請求項12】

前記コポリマーが、モノマーDとしてアクリルアミドジケトンをさらに含み、好ましくは、前記コポリマーは、次式

【化14】



を有し、式中、R および x は、請求項 6 に定義した通りであり、a、b および c は、請求項 1 に定義した通りであり、d は、請求項 2 に定義した通りである、請求項 1 から 11 のいずれか一項に記載のコポリマー。

【請求項 13】

前記コポリマーのガラス転移温度 (Tg) が、約 0 から約 20 の間、好ましくは約 5 から約 10 の間である、請求項 1 から 12 のいずれか一項に記載のコポリマー。

【請求項 14】

請求項 1 から 13 のいずれか一項に記載のコポリマーを含むリチウムイオン電池電極用のバインダー。

【請求項 15】

水に懸濁している請求項 1 から 13 のいずれか一項に記載のコポリマーを含むバインダー懸濁液。

【請求項 16】

前記懸濁液の全重量に対して重量百分率で約 10 % および約 20 %、好ましくは約 10 % から約 13 % の間の前記コポリマーを含む、請求項 15 に記載のバインダー懸濁液。

【請求項 17】

界面活性剤をさらに含む、請求項 15 または 16 に記載のバインダー懸濁液。

【請求項 18】

前記懸濁液の全重量に対して重量百分率で約 3 % から約 7 % の間の前記界面活性剤を含む、請求項 17 に記載のバインダー懸濁液。

【請求項 19】

前記コポリマーが架橋されている、請求項 15 から 18 のいずれか一項に記載のバインダー懸濁液。

【請求項 20】

請求項 15 から 18 のいずれか一項に記載のバインダー懸濁液を含み、リチウムイオン電池電極用の活物質をさらに含む、電極用の懸濁液。

【請求項 21】

リチウムイオン電池用の電極であって、請求項 1 から 13 のいずれか一項に記載のコポリマーと少なくとも 1 種の活物質の混合物によって形成された膜を、その表面の少なくとも一部分、好ましくは全部にわたって有する電極集電体を含む電極。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0019】

発明の詳細な説明

本発明の実施形態において、例えば以下の項目が提供される。

(項目 1)

・約 0.01 から約 0.20 の間、好ましくは約 0.05 から約 0.10 の間で変動するモル比 a を有するモノマー A、

・約 0.15 から約 0.4 の間、好ましくは約 0.15 から約 0.30 の間で変動するモル比 b を有するモノマー B、および

・約 0.50 から約 0.70 の間、好ましくは約 0.60 から約 0.70 の間で変動するモル比 c を有するモノマー C

を含むコポリマーであって、

前記モノマー A が、低モル質量のポリエチレンオキシド (POE) のペンダント型鎖を含む親水性モノマーであり、

前記モノマーBが、約-30またはそれ未満のガラス転移温度(T_g)を有する疎水性モノマーであり、

前記モノマーCが、前記モノマーBより疎水性であり、約80またはそれよりも高いガラス転移温度(T_g)を有し、

前記モノマーが、

- ・親水性セグメント、
 - ・疎水性セグメント、および
 - ・前記親水性セグメントと前記疎水性セグメントの間に位置する中間セグメント

前記中間セグメントが、前記親水性セグメントの親水性と前記疎水性セグメントの親水性の
中間に位置する親水性セグメント

のなかこの親水性を有し、前記親水性セグメントが、前記モノマーAおよび前記モノマーBの一部分を含み、前記中間セグメントおよび前記疎水性セグメントが、前記モノマーBの残りおよび前記モノマーCを含み、前記中間セグメントが、前記疎水性セグメントに比べて前記モノマーBが富化されており、前記疎水性セグメントが、前記中間セグメントに比べて前記モノマーCが富化されている、コポリマー。

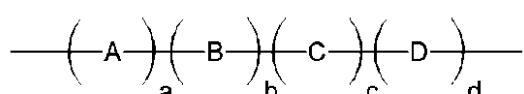
(項目2)

前記コポリマーが、約 0 から約 0.10 の間で変動するモル比 d で、水中において化学的架橋可能な干ノマーである干ノマー D をさらに含む。項目 1 に記載のコポリマー。

（項目3）

前記コポリマーが、次式

【化 1 1】



を有し、式中、

A、B、C および D はそれぞれ、前記モノマー A、B、C および D を表し、

a, b, c および d はそれぞれ、前記モル比 a, b, c および d を表す。

項目1 または2に記載のコポリマー

(項目4)

P O E の前記ペンダント型鎖の前記モル質量が、約 300 から約 2000 g / mol の間、好ましくは約 300 から約 1000 g / mol の間、より好ましくは約 300 から約 500 g / mol の間で変動する。項目 1 から 3 のいずれか一項に記載のコポリマー、

(項目5)

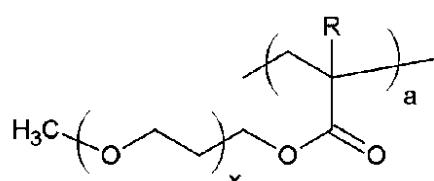
前記モノマーAが、ポリエチレングリコールメチルアクリレートまたはポリエチレングリコールメチルメタクリレートである。項目1から4のいずれか一項に記載のコポリマーは

1000

一、項目 6)

前記モノマ - A が、式

前 言



を有し、式中、

Rは、水素原子またはメチル基であり、×は、前記P、O、E鎖の前記モル質量が項目4に定められたものと等しい場合。

義した通りである数の P O E 反復単位を表す、項目 5 に記載のコポリマー。

(項目 7)

前記モノマー B の前記ガラス転移温度 (Tg) が、約 -30 から約 -60 の間で変動する、項目 1 から 6 のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目 8)

前記モノマー B の前記ガラス転移温度 (Tg) が、約 -40 またはそれ未満である、項目 1 から 6 のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目 9)

前記モノマー B の前記ガラス転移温度 (Tg) が、約 -40 から約 -60 の間で変動する、項目 1 から 6 のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目 10)

前記モノマー B が、

・ n - プチルアクリレート、

・ 約 -30 またはそれ未満の Tg を有する別のアクリレートまたはメタクリレート、特にアルキルアクリレートまたはメタクリレートであって、前記アルキルが、置換されていない、または好ましくは鎖末端部において、1 個もしくは数個のヒドロキシおよび / もしくはアルコキシ基で置換されており、前記アルコキシが、置換されていない、または好ましくは前記末端部において、1 個もしくは数個のヒドロキシおよび / もしくはアルコキシ基、好ましくはアルコキシ基で置換されているアクリレートまたはメタクリレート、

・ プチルビニルエーテル、あるいは

・ それらの混合物

である、項目 1 から 9 のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目 11)

前記モノマー B が、n - プチルアクリレート、iso - デシルアクリレート、n - デシルメタクリレート、n - ドデシルメタクリレート、2 - エチルヘキシルアクリレート、2 - (2 - エトキシエトキシ)エチルアクリレート、2 - ヒドロキシエチルアクリレート、2 - メトキシエチルアクリレート、n - プロピルアクリレート、グリコールメチルエーテルアクリレートエチレン、ブチルビニルエーテル、またはそれらの混合物である、項目 10 に記載のコポリマー。

(項目 12)

前記モノマー B が、n - プチルアクリレートまたはブチルビニルエーテルである、項目 11 に記載のコポリマー。

(項目 13)

前記モノマー B が、n - プチルアクリレートである、項目 12 に記載のコポリマー。

(項目 14)

前記モノマー C が、スチレンまたはその誘導体、アクリロニトリル、vinazene (商標) (イミダゾールの誘導体、さらに詳細には 2 - ビニル - 4 , 5 - ジシアノイミダゾール)、メチルメタクリレート、tert - ブチルメタクリレート、アクリロイルモルホリン、フェニルメタクリレート、ビニルフェロセン、フェロセンメチルメタクリレートまたはそれらの混合物である、項目 1 から 13 のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目 15)

前記モノマー C が、スチレンまたはアクリロニトリルである、項目 14 に記載のコポリマー。

(項目 16)

前記モノマー C がスチレンである、項目 15 に記載のコポリマー。

(項目 17)

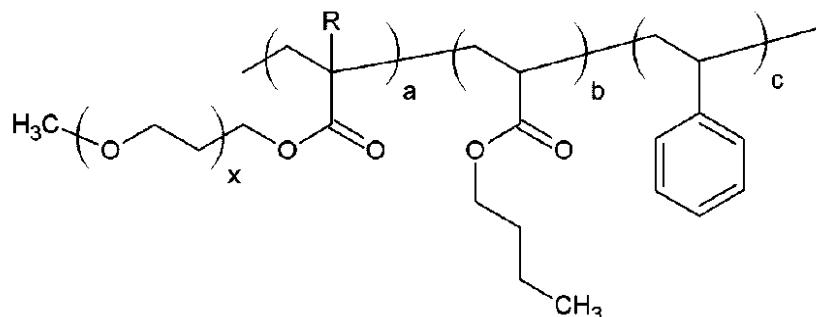
モノマー D としてアクリルアミドジケトンを含む、項目 1 から 16 のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目 18)

前記モノマー A が、ポリエチレングリコールメチルアクリレートまたはポリエチレング

リコールメチルメタクリレートであり、前記モノマーBがn-ブチルアクリレートであり、前記モノマーCがスチレンであり、好ましくは前記コポリマーが、次式

【化13】

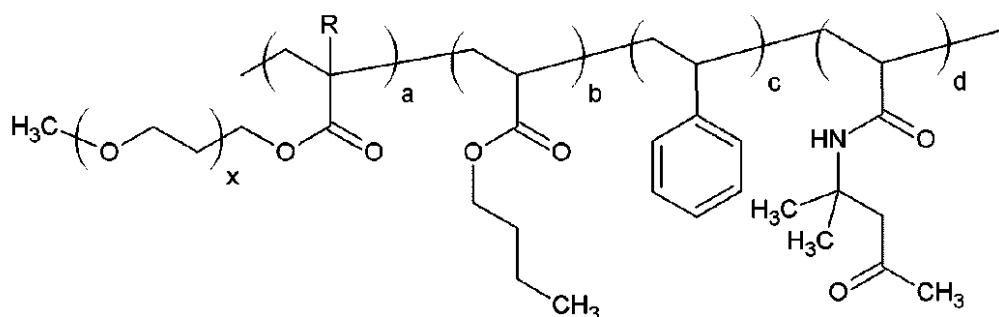


を有し、式中、Rおよびxは、項目6に定義した通りであり、a、bおよびcは、項目1に定義した通りである、項目1から17のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目19)

前記コポリマーが、モノマーDとしてアクリルアミドジケトンをさらに含み、好ましくは、前記コポリマーは、次式

【化14】



を有し、式中、Rおよびxは、項目6に定義した通りであり、a、bおよびcは、項目1に定義した通りであり、dは、項目2に定義した通りである、項目1から18のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目20)

前記コポリマーのガラス転移温度(Tg)が、約0から約20の間、好ましくは約5から約10の間である、項目1から19のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目21)

前記コポリマーのモル質量(Mn)が、約100,000g/molから約300,000g/molの間、好ましくは150,000g/molから約200,000g/molの間である、項目1から20のいずれか一項に記載のコポリマー。

(項目22)

項目1から21のいずれか一項に記載のコポリマーの、リチウムイオン電池電極用のバインダーとしての使用。

(項目23)

項目1から21のいずれか一項に記載のコポリマーを含むリチウムイオン電池電極用のバインダー。

(項目24)

水に懸濁している項目1から21のいずれか一項に記載のコポリマーを含むバインダ懸濁液。

(項目 25)

前記懸濁液の全重量に対して重量百分率で約10%および約20%、好ましくは約10%から約13%の間の前記コポリマーを含む、項目24に記載のバインダー懸濁液。

(項目 26)

界面活性剤をさらに含む、項目24または25に記載のバインダー懸濁液。

(項目 27)

前記懸濁液の全重量に対して重量百分率で約3%から約7%の間の前記界面活性剤を含む、項目26に記載のバインダー懸濁液。

(項目 28)

前記コポリマーが架橋されている、項目24から27のいずれか一項に記載のバインダー懸濁液。

(項目 29)

項目24から28のいずれか一項に記載のバインダー懸濁液を含むリチウムイオン電池電極用のバインダー。

(項目 30)

項目24から28のいずれか一項に記載のバインダー懸濁液の、前記リチウムイオン電池電極用のバインダーとしての使用。

(項目 31)

リチウムイオン電池用の電極を製造する方法であって、

a) 項目24から28のいずれか一項に記載のバインダー懸濁液を形成するステップ、

b) 活物質を前記バインダー懸濁液に添加し、それによって前記電極用の懸濁液を形成するステップ、

c) 前記電極用の前記懸濁液を電極集電体の表面に塗布するステップ、および

d) 乾燥し、それによって前記電極集電体上に膜を形成するステップ

を含む方法。

(項目 32)

ステップa)が、前記モノマーDを介した前記コポリマーの架橋を含む、項目30に記載の方法。

(項目 33)

ステップa)が、前記モノマーDの架橋用の架橋剤としてジヒドラジンまたはジヒドラジド化合物を使用する、項目31に記載の方法。

(項目 34)

ステップa)が、架橋剤としてジヒドラジドアジピン酸を使用する、項目32に記載の方法。

(項目 35)

前記方法が、ステップd)後に、前記電極集電体を適切なサイズに切断するステップをさらに含む、項目30から33のいずれか一項に記載の方法。

(項目 36)

項目24から28のいずれか一項に記載のバインダー懸濁液を含み、リチウムイオン電池電極用の活物質をさらに含む、電極用の懸濁液。

(項目 37)

電極用の前記懸濁液の全乾燥重量に対して重量百分率で約80%から約95%の間、好ましくは約90%から約95%の間または約80%から約90%の間の前記活物質を含む、項目36に記載の電極用の懸濁液。

(項目 38)

カーボンブラックをさらに含む、項目36または37に記載の電極用の懸濁液。

(項目 39)

電極用の前記懸濁液の前記全乾燥重量に対して重量百分率で約1%から約5%の間、好ましくは約3%のカーボンブラックを含む、項目38に記載の電極用の懸濁液。

(項目 40)

炭素纖維をさらに含む、項目36から38のいずれか一項に記載の電極用の懸濁液。

(項目41)

電極用の前記懸濁液の前記全乾燥重量に対して重量百分率で約1%から約5%の間、好ましくは約3%の炭素纖維を含む、項目40に記載の電極用の懸濁液。

(項目42)

電極用の前記懸濁液の前記全乾燥重量に対して重量百分率で約2%から約15%の間、好ましくは約3%から約10%の間、およびより好ましくは約5%から約10%の間の前記コポリマーを含む、項目36から41のいずれか一項に記載の電極用の懸濁液。

(項目43)

リチウムイオン電池用の電極であって、項目1から21のいずれか一項に記載のコポリマーと少なくとも1種の活物質の混合物によって形成された膜を、その表面の少なくとも一部分、好ましくは全部にわたって有する電極集電体を含む電極。

(項目44)

正極、負極、ならびに前記正極および前記負極と接触している電解液を含むリチウムイオン電池であって、前記正極および/または前記負極が、項目38に定義した通りの本発明による電極であるリチウムイオン電池。

したがって、本発明は、

- ・約0.01から約0.20の間、好ましくは約0.05から約0.10の間で変動するモル比aを有するモノマーA、
- ・約0.15から約0.4の間、好ましくは約0.15から約0.30の間で変動するモル比bを有するモノマーB、および
- ・約0.50から約0.70の間、好ましくは約0.60から約0.70の間で変動するモル比cを有するモノマーC

を含むコポリマーであって、

モノマーAが、低モル質量のポリ(エチレンオキシド)(POE)のペンドント型鎖を含む親水性モノマーであり、モノマーBが、約-30またはそれ未満のガラス転移温度(Tg)を有する疎水性モノマーであり、モノマーCが、モノマーBより疎水性であり、約80またはそれよりも高いガラス転移温度(Tg)を有し、

前記モノマーが、

- ・親水性セグメント、
- ・疎水性セグメント、および
- ・親水性セグメントと疎水性セグメントの間に位置する中間セグメントに組織化され、

中間セグメントが、親水性セグメントの親水性と疎水性セグメントの親水性の中ほどの親水性を有し、

親水性セグメントが、モノマーAおよびモノマーBの一部分を含み、中間セグメントおよび疎水性セグメントが、モノマーBの残りおよびモノマーCを含み、中間セグメントが、疎水性セグメントに比べてモノマーBが富化されており、疎水性セグメントが、中間セグメントに比べてモノマーCが富化されている、

コポリマーに関する。