

【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】平成25年7月4日 (2013.7.4)

【公表番号】特表2012-530803(P2012-530803A)

【公表日】平成24年12月6日 (2012.12.6)

【年通号数】公開・登録公報2012-051

【出願番号】特願2012-516128(P2012-516128)

【国際特許分類】

C 0 8 J 9/26 (2006.01)

H 0 1 M 2/16 (2006.01)

C 0 8 L 23/12 (2006.01)

C 0 8 L 23/06 (2006.01)

C 0 8 L 23/20 (2006.01)

【 F I 】

C 0 8 J 9/26 1 0 2

C 0 8 J 9/26 C E S

H 0 1 M 2/16 P

C 0 8 L 23/12

C 0 8 L 23/06

C 0 8 L 23/20

【手続補正書】

【提出日】平成25年5月15日 (2013.5.15)

【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】

ポリメチルペンテン、ポリプロピレン、およびポリエチレンを含む膜であって、
ポリメチルペンテン、ポリプロピレン、およびポリエチレンが、それぞれ（重量パーセン
トは膜の重量が基準である）、

5 . 0 重量 % ポリメチルペンテン 2 5 . 0 重量 %、

5 . 0 重量 % ポリプロピレン 2 5 . 0 重量 %、および

5 0 . 0 重量 % < ポリエチレン 7 5 . 0 重量 % の範囲の量で存在し、ポリメチルペンテ
ンの量（重量 %）が、ポリプロピレンの量（重量 %）以上であり、

ポリメチルペンテンおよびポリプロピレンが、膜の重量を基準として合わせて 2 5 . 0 重
量 % 以上の量で膜中に存在し、

かつ 1 8 0 . 0 以上のメルトダウン温度、7 5 . 0 秒 / 1 0 0 c m³ / μ m 以下の規格
化透気度、および 0 . 9 0 × 1 0² m N / μ m 以上の突刺強度を有することを特徴とする
微多孔膜。

【請求項 2】

ポリメチルペンテンが、2 0 0 . 0 以上の T m および 8 0 . 0 d g / 分以下の M F R を
 有することを特徴とする 請求項 1 に記載の微多孔膜。

【請求項 3】

ポリプロピレンが、6 . 0 × 1 0⁵ 以上の M w、8 . 5 以下の M W D、および 9 0 . 0 J
 / g 以上の H m を有するアイソタクチックポリプロピレンであることを特徴とする 請求
項 1 または 2 に記載の微多孔膜。

【請求項 4】

ポリエチレンが、炭素原子 1.0×10^4 個当たり 0.14 以下の末端不飽和基量を有することを特徴とする請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の微多孔膜。

【請求項 5】

前記微多孔膜が、5.0%以下の105におけるTD熱収縮、20.0%未満の130におけるTD熱収縮、および40.0%以下の170におけるTD熱収縮の少なくとも1の特性を有することを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の微多孔膜。

【請求項 6】

請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の微多孔膜を含むことを特徴とするバッテリーセパレータフィルム。

【請求項 7】

(旧請求項 11 + 請求項 15)

微多孔膜の製造方法であって、

(1)希釈剤と、

A1の量のポリメチルペンテン、

A2の量のポリプロピレン、および

A3の量のポリエチレンを含むポリマーとの混合物であり(重量パーセントはポリマー - 希釈剤混合物中のポリマーの重量が基準である)、

5.0重量% A1 < 25.0重量%、

5.0重量% A2 < 25.0重量%、かつ

A3 75.0重量%であり、

A1 A2であり、かつA1 + A2 25.0重量%である混合物を押し出す工程；

(2)押し出物を冷却する工程；

(3)押し出物を少なくとも1つの平面方向に延伸する工程；ならびに

(4)希釈剤の少なくとも一部を延伸押し出物から除去する工程

を含むことを特徴とする微多孔膜の製造方法。

【請求項 8】

10.0重量% A1 < 25.0重量%であり、かつポリメチルペンテンが、210.0 ~ 240.0 の範囲のTmおよび80.0 dg / 分以下のMFRを有することを特徴とする請求項 7 に記載の製造方法。

【請求項 9】

(i) 10.0重量% A2 < 25.0重量%であり、(ii)ポリプロピレンが、 6.0×10^5 以上のMw、8.5以下のMWD、および90.0 J / g以上のHmを有するアイソタクチックポリプロピレンであることを特徴とする請求項 7 または 8 に記載の製造方法。

【請求項 10】

50.0重量% < A3 75.0重量%であり、かつポリエチレンが、 $1.0 \times 10^5 \sim 2.0 \times 10^6$ の範囲のMwおよび130.0 以上のTmを有することを特徴とする請求項 7 ~ 9 のいずれかに記載の製造方法。

【請求項 11】

押し出しが、0.50 KWh / kg 以下の混合エネルギーで行われることを特徴とする請求項 7 ~ 10 のいずれかに記載の製造方法。

【請求項 12】

負極と、正極と、電解質と、負極と正極の間に位置するバッテリーセパレータとを含む電池であって、バッテリーセパレータが請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の微多孔膜であることを特徴とする電池。

【請求項 13】

請求項 12 に記載の電池に電氣的に接続された動力手段を含むことを特徴とする電気自動車またはハイブリッド電気自動車。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0006

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0006】

ある実施形態においては、本発明は、ポリメチルペンテン、ポリプロピレン、およびポリエチレンを含む膜であって、ポリメチルペンテン、ポリプロピレン、およびポリエチレンが、それぞれ（重量パーセントは膜の重量が基準である）、5.0重量% ポリメチルペンテン 25.0重量%、5.0重量% ポリプロピレン 25.0重量%、および50.0重量% < ポリエチレン 75.0重量%の範囲の量で存在し、ポリメチルペンテンの量（重量%）が、ポリプロピレンの量（重量%）以上であり、ポリメチルペンテンおよびポリプロピレンが、膜の重量を基準として合わせて25.0重量%以上の量で膜中に存在し、かつ180.0 以上のメルトダウン温度、75.0秒 / 100 cm³ / μm以下の規格化透気度、および0.90 × 10² mN / μm以上の突刺強度を有する、膜に関する。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0007

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0007】

別の実施形態においては、本発明は、微多孔膜の製造プロセスであって、

(1)希釈剤と、

A1の量のポリメチルペンテン、

A2の量のポリプロピレン、および

A3の量のポリエチレンを含むポリマーとの混合物であり（重量パーセントはポリマー - 希釈剤混合物中のポリマーの重量が基準である）、

5.0重量% A1 < 25.0重量%、

5.0重量% A2 < 25.0重量%、かつ

A3 75.0重量%であり、

A1 A2であり、かつA1 + A2 25.0重量%である混合物を押し出す工程；

(2)押出物を冷却する工程；

(3)押出物を少なくとも1つの平面方向に延伸する工程；ならびに

(4)希釈剤の少なくとも一部を延伸押出物から除去する工程

を含む、プロセスに関する。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0008

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0008】

さらに別の実施形態においては、本発明は、負極と、正極と、電解質と、負極と正極の間に位置するバッテリーセパレータとを含む電池であって、バッテリーセパレータが、ポリメチルペンテン、ポリプロピレン、およびポリエチレンを含む膜であって、ポリメチルペンテン、ポリプロピレン、およびポリエチレンが、それぞれ（重量パーセントは膜の重量が基準である）、5.0重量% ポリメチルペンテン 25.0重量%、5.0重量% ポリプロピレン 25.0重量%、および50.0重量% < ポリエチレン 75.0重量%の範囲の量で存在し、ポリメチルペンテンの量（重量%）が、ポリプロピレンの量（重量%）以上であり、ポリメチルペンテンおよびポリプロピレンが、膜の重量を基準として合わせて25.0重量%以上の量で膜中に存在し、かつ180.0 以上のメルトダウ

ン温度、75.0秒/100cm³/μm以下の規格化透気度、および0.90×10²mN/μm以上の突刺強度を有する微多孔膜である、電池に関する。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0047

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0047】

ある実施形態においては、ポリマーと希釈剤とは、例えば0.20KWh/kg<混合エネルギー__0.39KWh/kgの範囲といった、0.50KWh/kg未満の混合エネルギーを用いて混合する。混合エネルギーがこの範囲内であると、押出物を引き裂かれることなくより大きい倍率に延伸することが可能であり、それにより(a)このプロセスからのより高い膜の収率、および(b)最終膜におけるより高い強度の両方につながることがわかっている。混合エネルギーは、キロワット時/キログラムを単位とする。いかなる理論またはモデルにも拘束されることを望まないが、0.50KWh/kg以下の混合エネルギーを用いると混合物内のPMPの分散が改善され、それにより技術的に有用な突刺強度を持つ膜が得られると考えられる。例えば、一実施形態においては、膜は実質的に均質なポリマー（例えばポリマー種の相分離が実質的にない）を含み、例えば膜は、10nm以上の直径を有するPE、PP、またはPMPのポリマードメインを実質的に含まない。所望により、膜中のポリマーの全重量を基準として、例えば0.001重量%以下といった0.01重量%以下の膜中のポリマーは、10nm以上の直径を有するドメイン内にある。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0048

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0048】

0.20KWh/kg<より大きく0.39KWh/kg以下の混合エネルギーを用いると、ポリマー分解の量が減少し、かつ有用な透過度等の有利な動作特性が維持されとも考えられる。より高い混合エネルギーでは、（例えば混合中のずれ揺変により）ポリマーの分子量低下が起こると考えられ、また不十分な透過度が認められる。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0084

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0084】

【表 1】

表1

実施例	1	2	3	4	5	6	7	8
PMP 濃度 (重量%)	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0	20.0
種類	PP1	PP2	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1
PP 濃度 (重量%)	10.0	10.0	20.0	20.0	20.0	5.0	10.0	10.0
種類	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1	PE2	PE2
PE 濃度 (重量%)	40.0	40.0	30.0	30.0	30.0	57.0	40.0	52.0
	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4
	30.0	30.0	30.0	30.0	30.0	18.0	30.0	18.0
製造条件								
ポリマー濃度 (重量%)	25	25	28.5	28.5	28.5	25	25	25
ポリマー-溶剤混合物								
押出								
押出温度 (°C)	220	220	220	220	220	220	220	220
延伸								
温度 (°C)	115	115	114	114	114	115	115	115
延伸倍率 (MD x TD)	5 x 5	5 x 5	5 x 5	5 x 5	5 x 5	5 x 5	5 x 5	5 x 5
乾燥延伸								
温度 (°C)	-	-	-	125	125	-	-	-
延伸倍率	-	-	-	1.2	1.4	-	-	-
特性								
平均厚み (μm)	22	24	21	21	19	21	22	19
空隙率 (%)	38	43	42	46	46	38	37	35
規格化透気度 (sec/100 cm ³ /μm)	37.4	37.1	40.3	23.3	22.9	54.7	68.2	68.5
突刺強度 (mN/μm)	134.5	92.5	136.6	138.1	157.4	136.7	161.4	158.4
TD 熱収縮率 105°C (%)	3.1	2.9	4.1	7.1	7.4	2.6	3	2.3
TD 熱収縮率 130°C (%)	14	14	15	21	23	13	16	14
TD 熱収縮率 170°C (%)	33	33	30	36	42	22	38	32
マルチダウン温度 (°C)	200	197	205	198	202	204	201	199

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 8 5

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 8 5 】

【表 2】

表1 (続き)

比較例	1	2	3	4	5	6	7	8
PMP 濃度 (重量%)	10.0	30.0	25.0	30.0	10.0	10.0	10.0	40.0
種類	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1
PP 濃度 (重量%)	10.0	10.0	15.0	5.0	20.0	35.0	45.0	5.0
種類	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1
PE 濃度 (重量%)	62.0	42.0	42.0	47.0	52.0	37.0	27.0	37.0
	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4
	18.0	18.0	18.0	18.0	18.0	18.0	18.0	18.0
製造条件								
ポリマー濃度 (重量%)	25	25	25	25	25	25	25	25
ポリマー-溶剤混合物								
押出								
押出温度 (°C)	220	220	220	220	220	220	220	220
延伸								
温度 (°C)	115	115	115	115	115	115	115	115
延伸倍率 (MD x TD)	5 x 5	5 x 5	5 x 5	5 x 5	5 x 5	5 x 5	4 x 4	4 x 4
乾燥延伸								
温度 (°C)	-	-	-	-	-	-	-	-
延伸倍率	-	-	-	-	-	-	-	-
特性								
平均厚み (μm)	21	21	20	20	21	33	51	31
空隙率 (%)	37	38	37	33	39	55	58	34
規格化透気度 (sec/100 cm ³ /μm)	29.60	443.1	158.6	488.2	19.70	6.60	3.1	204.2
突刺強度 (mN/μm)	163.3	91.42	102	128	144.8	25.45	10.39	46.77
TD 熱収縮率 105°C (%)	3	2.7	2.5	2.2	3.4	2.7	2.6	-
TD 熱収縮率 130°C (%)	17	9	8	19	16	11	-	-
TD 熱収縮率 170°C (%)	34	21	23	27	36	32	-	-
メルトダウン温度 (°C)	177	207	203	204	177	181	184	213

【手続補正 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 8 6

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 8 6 】

【表 3】

表1 (続き)

比較例	9	10	11	12	13	14	15	16
PMP 濃度 (重量%)	40.0	30.0	20.0	-	30.0	30.0	35.0	20.0
PP 種類	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1	PP1
濃度 (重量%)	20.0	30.0	40.0	10.0	0.0	0.0	10.0	35.0
PE 種類	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1	PE1
濃度 (重量%)	22.0	22.0	22.0	85.0	52.0	40.0	37.0	27.0
	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4	PE4
	18.0	18.0	18.0	5.0	18.0	30.0	18.0	18.0
製造条件								
ポリマー濃度 (重量%)	25	25	25	37.5	25	25	25	25
ポリマー-溶剤混合物								
押出								
押出温度 (°C)	220	220	220	210	220	220	220	220
延伸								
温度 (°C)	115	115	115	115	115	115	115	115
延伸倍率 (MD x TD)	3 x 3	3 x 3	3 x 3	5 x 5	5 x 5	5 x 5	4 x 4	4 x 4
乾燥延伸								
温度 (°C)	-	-	-	-	-	-	-	-
延伸倍率	-	-	-	-	-	-	-	-
特性								
平均厚み (μm)	68	74	100	16	23	21	35	46
空孔率 (%)	42	50	62	32	36	36	35	53
規格化透気度 (sec/100 cm ³ /μm)	270.3	33.05	2.30	25.20	776.8	106.0	162.3	18.1
突刺強度 (mN/μm)	7.5	5.4	2.5	197.5	86.52	142.4	39.71	16.74
TD 熱収縮率 105°C (%)	-	-	-	4.9	2.5	3	2.2	2.6
TD 熱収縮率 130°C (%)	-	-	-	23	7	13	-	-
TD 熱収縮率 170°C (%)	-	-	-	-	29	29	-	-
マルチダウン温度 (°C)	211	205	203	177	207	207	210	204