

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5369171号

(P5369171)

(45) 発行日 平成25年12月18日 (2013.12.18)

(24) 登録日 平成25年9月20日 (2013.9.20)

(51) Int.Cl.

F I

H O 1 M 2/16 (2006.01)

H O 1 M 2/16 L

B 3 2 B 27/32 (2006.01)

H O 1 M 2/16 M

B 3 2 B 27/20 (2006.01)

H O 1 M 2/16 P

B 3 2 B 5/32 (2006.01)

B 3 2 B 27/32 E

B 3 2 B 27/20 Z

請求項の数 4 (全 49 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2011-503827 (P2011-503827)
 (86) (22) 出願日 平成22年3月9日 (2010.3.9)
 (86) 国際出願番号 PCT/JP2010/053899
 (87) 国際公開番号 W02010/104077
 (87) 国際公開日 平成22年9月16日 (2010.9.16)
 審査請求日 平成23年8月29日 (2011.8.29)
 (31) 優先権主張番号 特願2009-54795 (P2009-54795)
 (32) 優先日 平成21年3月9日 (2009.3.9)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)
 (31) 優先権主張番号 特願2009-64533 (P2009-64533)
 (32) 優先日 平成21年3月17日 (2009.3.17)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)
 (31) 優先権主張番号 特願2009-280486 (P2009-280486)
 (32) 優先日 平成21年12月10日 (2009.12.10)
 (33) 優先権主張国 日本国 (JP)

(73) 特許権者 309002329
 旭化成イーマテリアルズ株式会社
 東京都千代田区神田神保町一丁目105番
 地
 (74) 代理人 100079108
 弁理士 稲葉 良幸
 (74) 代理人 100109346
 弁理士 大貫 敏史
 (74) 代理人 100117189
 弁理士 江口 昭彦
 (74) 代理人 100134120
 弁理士 内藤 和彦
 (72) 発明者 大橋 正寛
 東京都千代田区神田神保町一丁目105番
 地

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 積層セパレータ及びその製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ポリオレフィン第1微多孔層と、前記第1微多孔層に積層され、かつ前記第1微多孔層とは異なるポリオレフィン第2微多孔層とを有し、

前記第1微多孔層と前記第2微多孔層のうち少なくとも前記第1微多孔層が、一次粒子径として1nm以上80nm以下である無機充填材を含有し、

前記ポリオレフィン第1微多孔層が表面層であり、前記ポリオレフィン第2微多孔層が中間層である少なくとも2種3層構造を有するとともに、

前記ポリオレフィン第1微多孔層は、前記第1微多孔層の構成成分であるポリオレフィン樹脂と無機充填材との総量に対して20～80質量%の無機充填剤を含有し、

前記ポリオレフィン第2微多孔層は、前記第2微多孔層の構成成分であるポリオレフィン樹脂と無機充填材との総量に対して15質量%以下の無機充填剤を含有する、

積層セパレータ。

【請求項 2】

前記無機充填材が、シリカ、アルミナ、及びチタニアからなる群から選ばれるいずれか1種以上である請求項1に記載の積層セパレータ。

【請求項 3】

請求項1又は2に記載の、ポリオレフィン第1微多孔層と、前記第1微多孔層に積層され、かつ前記第1微多孔層とは異なるポリオレフィン第2微多孔層とを有する積層セパレータの製造方法であって、

(1) ポリオレフィンと可塑剤、及び、必要に応じて無機充填材を混練して混練物を形成する混練工程、

(2) 前記混練工程の後、所望の層構成に応じて前記混練物をシート状に押出し、冷却固化させ、シート状成形体加工するシート成形工程、

(3) 前記成形工程の後、前記シート状成形体を面倍率が20倍以上200倍以下で二軸延伸し、延伸物を形成する延伸工程、

(4) 前記延伸工程の後、前記延伸物から可塑剤を抽出して多孔体を形成する多孔体形成工程、

(5) 前記多孔体形成工程の後、前記多孔体に対し、前記ポリオレフィン樹脂の融点以下にて熱処理を行い、幅方向に延伸を行う熱処理工程、を有し、

前記第1微多孔層と前記第2微多孔層の少なくとも一方が、一次粒子径として1nm以上80nm以下である無機充填剤を含有することを特徴とする製造方法。

【請求項4】

前記混練物が、更に粘度平均分子量800以上1万以下の低分子量樹脂を含む請求項3に記載の積層セパレータの製造方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、積層セパレータ、ポリオレフィン微多孔膜、及び蓄電デバイス用セパレータ等に関する。

【背景技術】

【0002】

ポリオレフィン樹脂微多孔膜は、電池用セパレータ、特にリチウムイオン電池用セパレータとして使用されている。リチウムイオン電池は、携帯電話、ノート型パーソナルコンピュータなどの小型電子機器に用いられ、さらには電動工具、ハイブリッド自動車、電気自動車などへの応用も図られている。

従来、リチウムイオン電池用セパレータにはポリエチレン微多孔膜が使用されている。その理由はポリエチレン微多孔膜が透過性に優れているとともに、電池の安全性確保のために130 から150 でポリマーを溶融させて連通孔を閉塞し、電流をシャットダウンする機能を有するからである。「シャットダウン」とは、微多孔膜の孔が溶融した樹脂によって閉塞され、膜の電気抵抗が増大することにより、リチウムイオンの流れを遮断する現象である。

ここで、セパレータには、蓄電デバイスの安全性をより向上させる観点から、繰り返しの充放電の間に破膜しない一定以上の機械的特性以外に、異常加熱した場合には速やかに電池反応が停止される特性（ヒューズ特性）や、高温になっても形状を維持して正極物質と負極物質が直接反応する危険な事態を防止する性能（ショート特性）等も要求される。

【0003】

ヒューズする際の温度としては、低いほど安全性への効果が高いとされ、ショートする際の温度としては、孔閉塞後もフィルム形状を維持し、電極間の絶縁を保持する観点から高い方が望ましい。

【0004】

近年、さらなる電池の安全性向上のために、セパレータと電極との間に絶縁性無機フィラーを主成分とする層を形成する方法や（例えば、特許文献1）、ポリエチレン微多孔膜に無機物を含有したセパレータが提案されている（例えば、特許文献2、3）。

【0005】

また、セパレータの耐熱性を高くする試みとして、ポリエチレンに融点の高いポリプロピレンをブレンドする試みや、ポリエチレン微多孔膜とポリプロピレン微多孔膜を積層する試みが行われている（例えば、特許文献4、5参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【 0 0 0 6 】

【特許文献 1】特開平 1 1 - 0 8 0 3 9 5 号公報

【特許文献 2】特許第 4 0 4 9 4 1 6 号公報

【特許文献 3】特開 2 0 0 1 - 2 6 6 8 2 8 号公報

【特許文献 4】特開昭 6 3 2 4 3 1 4 6 号公報

【特許文献 5】特開昭 6 2 0 1 0 8 5 7 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 0 7 】

すなわち、本発明は以下の通りである。

10

[1]

ポリオレフィン第 1 微多孔層と、前記第 1 微多孔層に積層され、かつ前記第 1 微多孔層とは異なるポリオレフィン第 2 微多孔層とを有し、

前記第 1 微多孔層と前記第 2 微多孔層のうち少なくとも前記第 1 微多孔層が、一次粒子径として 1 nm 以上 80 nm 以下である無機充填材を含有し、

前記ポリオレフィン第 1 微多孔層が表面層であり、前記ポリオレフィン第 2 微多孔層が中間層である少なくとも 2 種 3 層構造を有するとともに、

前記ポリオレフィン第 1 微多孔層は、前記第 1 微多孔層の構成成分であるポリオレフィン樹脂と無機充填材との総量に対して 20 ~ 80 質量%の無機充填剤を含有し、

前記ポリオレフィン第 2 微多孔層は、前記第 2 微多孔層の構成成分であるポリオレフィン樹脂と無機充填材との総量に対して 15 質量%以下の無機充填剤を含有する、

20

積層セパレータ。

[2]

前記無機充填材が、シリカ、アルミナ、及びチタニアからなる群から選ばれるいずれか 1 種以上である前項 [1] に記載の積層セパレータ。

[3]

前項 [1] 又は [2] に記載の、ポリオレフィン第 1 微多孔層と、前記第 1 微多孔層に積層され、かつ前記第 1 微多孔層とは異なるポリオレフィン第 2 微多孔層とを有する積層セパレータの製造方法であって、

(1) ポリオレフィンと可塑剤、及び、必要に応じて無機充填材を混練して混練物を形成する混練工程、

30

(2) 前記混練工程の後、所望の層構成に応じて前記混練物をシート状に押出し、冷却固化させ、シート状成形体に加工作るシート成形工程、

(3) 前記成形工程の後、前記シート状成形体を面倍率が 20 倍以上 200 倍以下で二軸延伸し、延伸物を形成する延伸工程、

(4) 前記延伸工程の後、前記延伸物から可塑剤を抽出して多孔体を形成する多孔体形成工程、

(5) 前記多孔体形成工程の後、前記多孔体に対し、前記ポリオレフィン樹脂の融点以下にて熱処理を行い、幅方向に延伸を行う熱処理工程、を有し、

前記第 1 微多孔層と前記第 2 微多孔層の少なくとも一方が、一次粒子径として 1 nm 以上 80 nm 以下である無機充填剤を含有することを特徴とする製造方法。

40

[4]

前記混練物が、更に粘度平均分子量 800 以上 1 万以下の低分子量樹脂を含む前項 [3] に記載の積層セパレータの製造方法。

【 0 0 0 8 】

また、特許文献 4 , 5 に記載された微多孔膜はいずれも、繰り返しの充放電を経た後に良好に電池容量を保つ特性 (サイクル特性) の観点からは、なお改善の余地を有するものである。

上記事情に鑑み、本発明は、蓄電デバイスのサイクル特性を向上させ得るセパレータとして好適な、ポリオレフィン微多孔膜を提供することを第 2 の課題とする。

50

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明者は上記事情に鑑み鋭意検討の結果、粒子径が特定の範囲内である無機粒子を含有し、かつ積層構造を有する積層セパレータが、耐熱性、シャットダウン特性、及びサイクル特性を高度な次元で両立し得ることを見出した。

【0010】

また、特定の組成を有するポリプロピレン系ポリオレフィン微多孔膜が、上記第2の課題を解決し得ることを見出した。

【0011】

さらに、ポリプロピレン系の微多孔膜において、特定のプロピレン共重合体を特定量配合することにより上記第2の課題を解決し得ることを見出した。

10

【0012】

さらにまた、無機充填材を含有するポリプロピレン系の微多孔膜において、特定のプロピレン共重合体を特定量配合することにより上記第2の課題を解決し得ることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0013】

すなわち、本発明は以下の通りである。

[1]

ポリオレフィン第1微多孔層と、前記第1微多孔層に積層され、かつ前記第1微多孔層とは異なるポリオレフィン第2微多孔層とを有し、

20

前記第1微多孔層と前記第2微多孔層の少なくとも一方が、一次粒子径として1nm以上80nm以下である無機粒子を含有する積層セパレータ。

[2]

前記ポリオレフィン第1微多孔層のポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量中に占める無機粒子濃度C1と、前記ポリオレフィン第2微多孔層のポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量中に占める無機粒子濃度C2との差が、10質量%以上95質量%以下である[1]記載の積層セパレータ。

[3]

前記無機粒子が、珪素酸化物、アルミニウム酸化物、及びチタン酸化物よりなる群から選択される1種又は2種以上である[1]又は[2]記載の積層セパレータ。

30

[4]

前記ポリオレフィン第1微多孔層が表面層であり、前記ポリオレフィン第2微多孔層が中間層である少なくとも2種3層構造を有するとともに、

前記ポリオレフィン第1微多孔層は、前記第1微多孔層の構成成分であるポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量に対して5～90質量%のポリオレフィン樹脂を含有し、前記ポリオレフィン第2微多孔層は、前記第2微多孔層の構成成分であるポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量に対して60～100質量%のポリオレフィン樹脂を含有する、[1]～[3]のいずれかに記載の積層セパレータ。

[5]

前記表面層において、前記ポリオレフィン樹脂がポリエチレンとポリプロピレンとを含むと共に、前記ポリプロピレンが、前記ポリエチレンとポリプロピレンとの総量中に占める割合が10質量%以上95質量%以下である[4]に記載の積層セパレータ。

40

[6]

ポリプロピレンを50～99質量%、プロピレン- - オレフィン共重合体を1～50質量%含むポリオレフィン樹脂を主成分として形成され、

前記プロピレン- - オレフィン共重合体中の - オレフィン含有率が、1質量%を超えて15質量%以下であるポリオレフィン微多孔膜。

[7]

前記ポリプロピレンと、前記プロピレン- - オレフィン共重合体との配合比(ポリプロピレン/プロピレン- - オレフィン共重合体)(質量比)が1.5以上60以下であ

50

る〔 6 〕記載のポリオレフィン微多孔膜。

〔 8 〕

前記ポリオレフィン樹脂が高密度ポリエチレンを更に含むと共に、前記高密度ポリエチレンが前記ポリオレフィン樹脂中に占める割合が 5 ～ 45 質量%である〔 6 〕又は〔 7 〕記載のポリオレフィン微多孔膜。

〔 9 〕

無機充填材を更に含むと共に、前記無機充填材の、無機充填材と前記ポリオレフィン樹脂との総量中に占める割合が 1 ～ 80 質量%である〔 6 〕～〔 8 〕のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜。

〔 10 〕

前記無機充填材が、シリカ、アルミナ、及びチタニアからなる群から選ばれるいずれか 1 種以上である〔 9 〕記載のポリオレフィン微多孔膜。

〔 11 〕

〔 6 〕～〔 10 〕のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜の少なくとも一方の面に、前記ポリオレフィン微多孔膜とは異なる他のポリオレフィン微多孔膜が積層された積層ポリオレフィン微多孔膜。

〔 12 〕

〔 6 〕～〔 10 〕のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜、又は〔 11 〕記載の積層ポリオレフィン微多孔膜からなる蓄電デバイス用セパレータ。

〔 13 〕

(ポリプロピレン)/(プロピレン共重合体)(質量比)が 80/20 ～ 0/100 であるポリプロピレン系樹脂を主成分として含むプロピレン系樹脂組成物にて形成され、

前記プロピレン共重合体の融点が 120 以上 145 以下であることを特徴とするポリオレフィン微多孔膜。

〔 14 〕

前記プロピレン共重合体がランダム共重合体であることを特徴とする〔 13 〕記載のポリオレフィン微多孔膜。

〔 15 〕

前記プロピレン共重合体に含まれるモノマー含有量が 1 質量%を超えて 20 質量%以下であることを特徴とする〔 13 〕または〔 14 〕記載のポリオレフィン微多孔膜。

〔 16 〕

前記プロピレン系樹脂組成物が更に高密度ポリエチレンを含むと共に、当該高密度ポリエチレンが前記プロピレン系樹脂組成物に占める割合が 5 ～ 50 質量%である〔 13 〕～〔 15 〕のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜。

〔 17 〕

前記プロピレン系樹脂組成物が更に無機充填材を含むと共に、当該無機充填材が、前記プロピレン系樹脂組成物に占める割合が 5 ～ 60 質量%である〔 13 〕～〔 16 〕のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜。

〔 18 〕

〔 13 〕～〔 17 〕のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜の少なくとも一面に、当該ポリオレフィン微多孔膜とは異なる他のポリオレフィン微多孔膜が積層された積層ポリオレフィン微多孔膜。

〔 19 〕

〔 13 〕～〔 17 〕のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜、又は〔 18 〕に記載の積層ポリオレフィン微多孔膜からなる非水電解液用セパレータ。

〔 20 〕

〔 13 〕～〔 17 〕のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜、又は〔 18 〕に記載の積層ポリオレフィン微多孔膜の製造方法であって、

(1) 所望の層構成に応じて、(ポリプロピレン)/(プロピレン共重合体)(質量比)が 80/20 ～ 0/100 であるポリプロピレン系樹脂を主成分として含むプロピレン系

10

20

30

40

50

樹脂組成物と可塑剤及び必要に応じて高密度ポリエチレン、無機充填材を混練して混練物を形成する混練工程、

(2) 前記混練工程の後、所望の層構成に応じて各層の原料をシート状に押出し、必要に応じて積層して冷却固化させ、シート状成形体(単層成形体または積層成形体)に加工するシート成形工程、

(3) 前記成形工程の後、前記シート状成形体を面倍率が20倍以上200倍以下で二軸延伸し、延伸物を形成する延伸工程、

(4) 前記延伸工程の後、前記延伸物から可塑剤を抽出して多孔体を形成する多孔体形成工程、

(5) 前記多孔体形成工程の後、前記多孔体に対し、前記ポリオレフィン樹脂の融点以下にて熱処理を行い、幅方向に延伸を行う熱処理工程、
を有することを特徴とする製造方法。 10

[21]

前記プロピレン共重合体の融解熱が60J/g以上であることを特徴とする[20]記載の製造方法。

[22]

(ポリプロピレン)/(プロピレン共重合体)(質量比)が90/10~0/100であるポリプロピレン系樹脂20~95質量%と、無機充填材5~80質量%とを含むポリプロピレン系樹脂組成物にて形成され、

前記プロピレン共重合体の融点は110~150であり、 20

(プロピレン共重合体)/(無機充填材)(質量比)が0.1/1~1.5/1であることを特徴とするポリオレフィン微多孔膜。

[23]

前記プロピレン共重合体がランダム共重合体であることを特徴とする[22]記載のポリオレフィン微多孔膜。

[24]

前記プロピレン共重合体に含まれるコモノマー含有量が1質量%を超えて20質量%以下であることを特徴とする[22]または[23]記載のポリオレフィン微多孔膜。

[25]

前記プロピレン系樹脂組成物が更に高密度ポリエチレンを含むと共に、 30

当該高密度ポリエチレンが前記プロピレン系樹脂組成物中に占める割合が5~60質量%である[22]~[24]のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜。

[26]

前記無機充填材が、シリカ、アルミナ、又はチタニアのいずれかである[22]~[25]のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜。

[27]

[22]~[26]のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜の少なくとも一面に、当該ポリオレフィン微多孔膜とは異なる他のポリオレフィン微多孔膜が積層された積層ポリオレフィン微多孔膜。

[28]

[22]~[26]のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜、又は[27]に記載の積層ポリオレフィン微多孔膜からなる非水電解液用セパレータ。 40

[29]

[22]~[26]のいずれかに記載のポリオレフィン微多孔膜、又は[27]に記載の積層ポリオレフィン微多孔膜の製造方法であって、

(1) 所望の層構成に応じて、(ポリプロピレン)/(プロピレン共重合体)(質量比)が90/10~0/100であるポリプロピレン系樹脂20~95質量%と、無機充填材5~80質量%とを含むポリプロピレン系樹脂組成物と可塑剤及び必要に応じて高密度ポリエチレンを混練して混練物を形成する混練工程、

(2) 前記混練工程の後、所望の層構成に応じて各層の原料をシート状に押出し、必要に 50

応じて積層して冷却固化させ、シート状成形体（単層成形体または積層成形体）に加工するシート成形工程、

（３）前記成形工程の後、前記シート状成形体を面倍率が２０倍以上２００倍以下で二軸延伸し、延伸物を形成する延伸工程、

（４）前記延伸工程の後、前記延伸物から可塑剤を抽出して多孔体を形成する多孔体形成工程、

（５）前記多孔体形成工程の後、前記多孔体に対し、前記ポリオレフィン樹脂の融点以下にて熱処理を行い、幅方向に延伸を行う熱処理工程、
を有することを特徴とする製造方法。

【３０】

前記プロピレン共重合体の融解熱が６０Ｊ／ｇ以上であることを特徴とする【２９】記載の製造方法。

【発明の効果】

【００１４】

本発明によれば、耐熱性、シャットダウン特性、及びサイクル特性を高度な次元で両立するセパレータが提供される。

また、本発明によれば、蓄電デバイスのサイクル特性を向上させ得るセパレータとして好適な、ポリオレフィン微多孔膜が提供される。

【図面の簡単な説明】

【００１５】

【図１】実施例で用いたシャットダウン温度測定装置の概略図を示す。

【発明を実施するための形態】

【００１６】

以下、本発明を実施するための形態（以下、「本実施形態」と略記する。）について詳細に説明する。尚、本発明は、以下の実施の形態に限定されるものではなく、その要旨の範囲内で種々変形して実施することができる。

【００１７】

【第１の実施形態】

本発明の第１の実施形態（以下、「本実施形態１」と略記する。）の積層セパレータは、ポリオレフィン第１微多孔層（以下、「第１微多孔層」とも言う。）と、前記第１微多孔層に積層され、かつ前記第１微多孔層とは異なるポリオレフィン第２微多孔層（以下、「第２微多孔層」とも言う。）とを有し、前記第１微多孔層と前記第２微多孔層の少なくとも一方が、一次粒子径として１ｎｍ以上８０ｎｍ以下である無機粒子（「無機充填材」と記載することもある）を含有する。

【００１８】

本実施形態１において用いられる無機粒子の一次粒子径は１ｎｍ以上８０ｎｍ以下である。一次粒子径が上記範囲である無機粒子はポリオレフィン中に良好に微分散し得るため、ポリオレフィンと良好に融着し、セパレータの有する三次元網状骨格構造のフィブリル部分のメルトテンションを大幅に向上させ得るものと推察される。

【００１９】

一方、本実施形態１の積層セパレータは積層構造を有し、各層は異なる状態で構成されるため、各層間で孔構造、溶融挙動、無機粒子の分散状態等が異なるものと推察される。そして、上述した特定範囲の一次粒子径を有する無機粒子、及び積層構造を採用することにより、耐熱性、シャットダウン特性、及びサイクル特性が高度な次元で両立されるという意外な効果の実現される。

【００２０】

その作用の詳細は詳らかでないものの、上述のような各層間の溶融挙動等の差異の存在（界面の存在）がセパレータ全体としての耐熱性の向上に寄与し得ると共に、特定範囲の一次粒子径を有する無機粒子の使用と相俟って、各層の孔構造がそれぞれ適度に均一化され、電解液の濡れ性向上、ひいてはサイクル特性の向上に寄与し、更にシャットダウン特

10

20

30

40

50

性の向上に寄与し得るものと推察される。

【0021】

ここで、前記ポリオレフィン第1微多孔層と前記ポリオレフィン第2微多孔層とは異なるものであるが、ここでいう「異なる」とは、原料としての相違であってもよいし、構造としての相違（即ち、気孔率や孔構造の相違等）であってよい。

【0022】

前記ポリオレフィン第1微多孔層、又はポリオレフィン第2微多孔層に用いられるポリオレフィン樹脂としては、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、及び1-オクテン等のモノマーを重合して得られる重合体（ホモ重合体や共重合体、多段重合体等）が挙げられる。これら重合体は1種を単独で、又は2種以上を併用して用いることができる。

10

【0023】

また、前記ポリオレフィン樹脂としては、例えば、ポリエチレン（例えば、低密度ポリエチレン、線状低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン（密度：0.942 g/cm³以上）、超高分子量ポリエチレン）、ポリプロピレン（例えば、アイソタクティックポリプロピレン、アタクティックポリプロピレン）、ポリブテン、エチレンプロピレンラバー、プロピレン-エチレン共重合体、プロピレン- α -オレフィン共重合体等が挙げられる。前記プロピレン-エチレン共重合体、プロピレン- α -オレフィン共重合体について、エチレン及び α -オレフィンのポリマー鎖中の位置については特に限定は無く、ランダム共重合体、ブロック共重合体のいずれを使用することもできる。なお、以下、ポリエチレンを「PE」、ポリプロピレンを「PP」と略記することがある。

20

【0024】

前記ポリオレフィン樹脂の粘度平均分子量としては、好ましくは5万以上、より好ましくは10万以上であり、上限として好ましくは1000万以下、より好ましくは300万以下である。粘度平均分子量を5万以上とすることは、溶融成形の際のメルトテンションを大きくし、成形性の向上が期待できる上に、十分な分子間の絡み合いが期待でき、高強度となる傾向にあるため好ましい。一方、粘度平均分子量を1000万以下とすることは、均一な溶融混練を実施する観点、及び、シートの成形性、特に厚み安定性を向上させる観点から好ましい。特に、粘度平均分子量を300万以下とすることは、より成形性を向上させる観点から好ましい。

30

【0025】

前記ポリオレフィン樹脂には、シャットダウン温度を低下させ、安全性を向上させる観点から、粘度平均分子量が好ましくは800以上、より好ましくは900以上、さらに好ましくは1000以上であり、上限として好ましくは1万以下の低分子量樹脂が含まれていてもよい。

低分子量樹脂としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブテン、エチレン-プロピレン共重合体（エラストマー含む）等があげられるが、製膜性や均一にシャットダウンをさせる観点からポリエチレン、ポリプロピレンがより好ましい。

なお、このような低分子量樹脂が前記ポリオレフィン樹脂中に占める割合としては、好ましくは0.1質量%以上、より好ましくは0.5質量%以上、更に好ましくは1質量%以上であり、上限として好ましくは20質量%以下、より好ましくは15質量%以下、更に好ましくは10質量%以下である。

40

【0026】

なお、後述する無機粒子を含有する層には、無機粒子を均一に分散させる観点から、PEとして、粘度平均分子量が20万以上300万以下の高密度ポリエチレン、又は粘度平均分子量が100万以上の超高分子量ポリエチレンを単独で用いるか、または両者を併用することが好ましい。

【0027】

前記無機粒子としては、例えば、

（1）珪素、アルミニウム、チタンといった元素の、酸化物又は窒化物、

50

(2) カルシウム、バリウムといった元素の、炭酸塩又は硫酸塩、を挙げることができる。上記(1)又は(2)の無機粒子を用いることは、得られるセパレータの耐熱性とサイクル特性とをより高度な次元で両立する観点から好適である。

【0028】

このような無機粒子は、微多孔層中に単独分散して存在するのが好ましいが、凝集している部分が存在してもよい。

【0029】

無機粒子の一次粒子径としては、下限として1 nm以上、好ましくは6 nm以上、より好ましくは10 nm以上であり、上限として80 nm以下、好ましくは50 nm以下、より好ましくは30 nm以下である。

10

【0030】

前記ポリオレフィン樹脂を含む樹脂組成物(以下、「ポリオレフィン組成物」とも言う。)には必要に応じ、各種添加剤を配合することができる。このような添加剤としては、例えば、フェノール系やリン系やイオウ系等の酸化防止剤、核剤、ステアリン酸カルシウムやステアリン酸亜鉛等の金属石鹸類、紫外線吸収剤、光安定剤、帯電防止剤、防曇剤、着色顔料、等が挙げられる。

【0031】

このような添加剤がポリオレフィン組成物中に占める割合としては、好ましくは5質量%以下、より好ましくは2質量%以下であり、実質的に0質量%であってもよい。

【0032】

20

前記ポリオレフィン第1微多孔層のポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量中に占める無機粒子濃度C1と、前記ポリオレフィン第2微多孔層のポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量中に占める無機粒子濃度C2との濃度差としては、好ましくは10質量%以上、より好ましくは20質量%以上、更に好ましくは40質量%以上、特に好ましくは60質量%以上である。一方、上限として好ましくは95質量%以下、より好ましくは80質量%以下である。当該濃度差を10質量%以上とすることは、耐熱性、サイクル特性の向上の観点から好ましい。一方、95質量%以下とすることは、シャットダウン特性、突刺強度確保の観点から好ましい。

なお、本実施形態1において「無機粒子濃度」とは、無機粒子が、ポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量中に占める割合を意味する。

30

【0033】

また、前記無機充填材が、前記ポリオレフィン第1微多孔層中に占める体積としての割合と、前記ポリオレフィン第2微多孔層中に占める体積としての割合との差としては、好ましくは10体積%以上、より好ましくは15体積%以上、更に好ましくは20体積%以上、特に好ましくは60体積%以上である。一方、上限として好ましくは95体積%以下、より好ましくは80体積%以下である。

【0034】

以下、本実施形態1の積層セパレータを、前記ポリオレフィン第1微多孔層が表面層であり、前記ポリオレフィン第2微多孔層が中間層である2種3層構造を有する態様を中心に説明する。

40

前記表面層を形成する第1微多孔層のポリオレフィン樹脂濃度としては、好ましくは5~90質量%、より好ましくは20~80質量%である。

ここで、表面層を形成するポリオレフィン樹脂としては、PEとPPとを含むことが好ましい。当該PPが、PEとPPとの総量中に占める割合としては、好ましくは10質量%以上、より好ましくは20質量%以上、さらに好ましくは40質量%以上であり、好ましくは95質量%以下、好ましく90質量%以下、さらに好ましくは80質量%以下である。

このような表面層を形成することは、良好な耐熱性を得る観点、及び、延伸性を向上させて高突刺強度の多孔膜を得る観点から好ましい。

なお、本実施形態1において、「ポリオレフィン樹脂濃度」とは、ポリオレフィン樹脂

50

が、ポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量中に占める割合を意味する。

【0035】

表面層における前記C1としては、好ましくは10質量%以上、より好ましくは20質量%以上、更に好ましくは40質量%以上、特に好ましくは60質量%以上であり、上限として好ましくは95質量%以下、より好ましくは90質量%以下、さらに好ましくは80質量%以下である。当該割合を10質量%以上とすることは、耐熱性、サイクル特性の向上の観点から好ましい。一方、95質量%以下とすることは、高延伸倍率での成膜性を向上させ、ポリオレフィン樹脂微多孔膜の突刺強度を向上させる観点から好ましい。

表面層において無機粒子、PE、及びPPを併用すると共に、各成分の割合を上記範囲に設定することは、ポリオレフィン樹脂と無機粒子との相互作用をより向上させ、ひいては得られる積層セパレータの耐熱性とサイクル特性とをより高度な次元で両立する観点から好ましい。

【0036】

また、前記無機充填材が、前記ポリオレフィン第1微多孔層中に占める体積としての割合は、好ましくは10体積%以上、より好ましくは15体積%、さらに好ましくは20体積%以上であり、上限として好ましくは95体積%である。

【0037】

前記中間層を形成する第2微多孔層のポリオレフィン樹脂濃度としては、好ましくは60質量%以上、より好ましくは80質量%以上、さらに好ましくは90質量%以上であり、100質量%であってもよい。

また、中間層に用いられるポリオレフィン樹脂としてはPEを主成分とすることが好ましいが、シャットダウン特性を損なわない範囲でPPを併用することも可能である。中間層において、PEが、PEとPPとの総量中に占める割合としては、好ましくは60質量%以上、より好ましくは80質量%以上であり、100質量%であってもよい。

【0038】

中間層における前記C2としては、好ましくは60質量%以下、より好ましくは40質量%以下、さらに好ましくは20質量%以下、さらにより好ましくは10質量%以下であり、0質量%であってもよい。当該割合を60質量%以下とすることは、シャットダウン特性の観点から好ましい。

【0039】

また、前記無機充填材が、前記ポリオレフィン第2微多孔層中に占める体積としての割合は、好ましくは60体積%以下、より好ましくは40体積%以下、さらに好ましくは20体積%以下であり、さらにより好ましくは10体積%以下であり、0体積%であってもよい。

【0040】

また、前記無機充填材の比重としては、好ましくは 1.0 g/cm^3 以上、より好ましくは 1.2 g/cm^3 以上であり、さらに好ましくは 1.5 g/cm^3 以上であり、上限として好ましくは 10.0 g/cm^3 以下である。

【0041】

前記第1微多孔層が表面層であり、前記第2微多孔層が中間層である2種3層構造を有すると共に、前記第1微多孔層はポリオレフィン樹脂と無機粒子とを含有し、前記第2微多孔層は無機粒子を含有しない構成とすることは、耐熱性とシャットダウン特性、サイクル特性の観点から好ましい。

一方、前記第2微多孔層が表面層であり、前記第1微多孔層が中間層である2種3層構造を有すると共に、前記第1微多孔層はポリオレフィン樹脂と無機粒子とを含有し、前記第2微多孔層は無機粒子を含有しない構成とすることは、シャットダウン特性とサイクル特性及び電池作製の生産性の観点から好ましい。

【0042】

本実施形態1の積層セパレータの製造方法としては、特に限定されないが、例えば、下記(1)～(4)の各工程、

10

20

30

40

50

(1) 各層を形成する原料 (ポリオレフィン組成物、及び可塑剤) を各々熔融混練する工程、

(2) (1) の工程後、熔融混練して得られた混練物を共押出し、積層シートを形成し、冷却固化する工程、

(3) (2) の工程後、面倍率が 2 0 倍以上 2 0 0 倍未満で少なくとも一軸方向に延伸する工程、

(4) (3) の工程の前、又は後に、可塑剤を抽出する工程、を含む製造方法を挙げることができる。

【 0 0 4 3 】

(1) の工程で用いる可塑剤としては、ポリオレフィン樹脂と混合した際にポリオレフィン樹脂の融点以上において均一熔融樹脂を形成しうる不揮発性溶媒であることが好ましく、常温において液体であることが好ましい。可塑剤としては、例えば、流動パラフィンやパラフィンワックス等の炭化水素類、フタル酸ジオクチルやフタル酸ジブチル等のエステル類、オレイルアルコールやステアシルアルコール等の高級アルコール等が挙げられる。

10

【 0 0 4 4 】

ポリオレフィン組成物に対する可塑剤の配合割合としては、均一な熔融混練が可能な比率であり、シート状の微多孔膜前駆体を成形しうるのに十分な比率であり、かつ生産性を損なわない程度であることが好ましい。具体的には、ポリオレフィン組成物と可塑剤との総量中に占める可塑剤の含有率 (可塑剤量比) として、好ましくは 2 0 質量 % 以上 8 0 質量 % 以下、より好ましくは 3 0 質量 % 以上 7 0 質量 % 以下である。可塑剤の含有率を 8 0 質量 % 以下とすることは、熔融成形時のメルトテンションを高く維持し、成形性を確保する観点から好ましい。一方、可塑剤の含有率を 2 0 質量 % 以上とすることは、成形性を確保する観点、及び、ポリオレフィン樹脂の結晶領域におけるラメラ晶を効率よく引き伸ばす観点から好ましい。ここで、ラメラ晶が効率よく引き伸ばされることは、ポリオレフィン樹脂鎖の切断が生じずにポリオレフィン樹脂鎖が効率よく引き伸ばされることを意味し、均一かつ微細な孔構造の形成や、微多孔膜の強度の向上に寄与し得るものと考えられる。

20

【 0 0 4 5 】

ポリオレフィン組成物と可塑剤とを熔融混練する方法としては、複数の押出機を用いて、ポリオレフィン樹脂と、必要に応じて無機粒子及び各種添加剤を投入し、ポリオレフィン組成物を加熱熔融させながら任意の比率で可塑剤を導入し、さらに組成物を混練することにより、均一熔融樹脂を得る方法が好ましい。さらにポリオレフィン樹脂と無機粒子と可塑剤を熔融混練する好ましい方法としては、あらかじめポリオレフィン樹脂と無機粒子と可塑剤をヘンシェルミキサー等で所定の割合に事前混練する工程を経て、該混練物を押出機に投入し、加熱熔融させながら任意の比率で可塑剤を導入しさらに混練することが挙げられる。

30

【 0 0 4 6 】

(2) の工程における共押出しの方法としては、複数の押出機からの熔融物を一つのダイリップから押し出すダイ内接着が好ましく、多数マニホールド法、フィードブロック法を用いるのが好ましい。ここで、ダイは T ダイ、コートハンガーダイ等のフラットダイを用いるのが好ましい。

40

【 0 0 4 7 】

また、(2) の工程における冷却固化は、シート状に成形したものを熱伝導体に接触させて樹脂の結晶化温度より十分に低い温度まで冷却すること等の方法により行うことが好ましい。

【 0 0 4 8 】

(3) の工程において、延伸方向は少なくとも一軸延伸である。二軸方向に高倍率延伸した場合、面方向に分子配向するため裂けにくく安定な構造となり、高い突刺強度が得られる傾向にあるため好ましい。延伸方法は同時二軸延伸、逐次二軸延、多段延伸、多数回

50

延伸等のいずれの方法を単独もしくは併用することも構わないが、延伸方法が同時二軸延伸であることが突刺強度の増加や膜厚均一化の観点から特に好ましい。

【0049】

MDとTDの延伸倍率比は0.5以上2以下が好ましい。また、延伸倍率は、面倍率で好ましくは20倍以上200倍未満の範囲であり、20倍以上100倍以下の範囲がより好ましく、25倍以上50倍以下の範囲がさらに好ましい。総面積倍率が20倍以上の場合は、膜に十分な突刺強度を付与できる傾向にあり、200倍未満の場合は、膜破断を防ぎ、高い生産性が得られる傾向にあるので好ましい。

なお、「MD」とはセパレータの長さ方向、もしくは製膜時の原料樹脂吐出方向を意味し、「TD」とはセパレータの幅方向を意味する。

10

【0050】

延伸温度はポリオレフィンの融点-50以上であることが好ましく、融点未満が好ましい。より好ましくはポリオレフィンの融点-30以上、融点-2以下であり、更に好ましくはポリオレフィンの融点-15以上、融点-3以下である。延伸温度をポリオレフィンの融点-50以上とすることは、高突刺強度の観点から好ましい。ポリオレフィンの融点未満とすることは、延伸ムラ低減の観点から好ましい。

【0051】

(4)の工程は、バッチ式、連続式のいずれでもよいが、抽出溶剤に積層シートを浸漬することにより可塑剤を抽出し、十分に乾燥させ、可塑剤を微多孔膜から実質的に除去することが好ましい。積層シートの収縮を抑えるために、浸漬、乾燥の一連の工程中に積層シートの端部を拘束することが好ましい。また、抽出後の積層シート中の可塑剤残存量は1質量%未満にすることが好ましい。添加剤が含まれている場合、添加剤は、可塑剤の抽出工程で可塑剤と共に抽出されることが好ましく、膜中の残存量としては実質的に0%であることが好ましい。

20

【0052】

抽出溶剤は、ポリオレフィン樹脂、無機粒子に対して貧溶媒であり、かつ可塑剤に対して良溶媒であり、沸点がポリオレフィン樹脂の融点より低いことが好ましい。このような抽出溶剤としては、例えば、n-ヘキサンやシクロヘキサン等の炭化水素類、塩化メチレンや1,1,1-トリクロロエタン等のハロゲン化炭化水素類、ハイドロフロロエーテルやハイドロフロロカーボン等の非塩素系ハロゲン化溶剤、エタノールやイソプロパノール等のアルコール類、ジエチルエーテルやテトラヒドロフラン等のエーテル類、アセトンやメチルエチルケトン等のケトン類が挙げられる。

30

【0053】

また、熱固定や熱緩和といった熱処理工程を加えることは、得られる積層セパレータの収縮がさらに抑制される傾向にあるため好ましい。

さらに、後処理工程を加えることも可能である。後処理工程としては、例えば、界面活性剤等による親水化处理、および電離性放射線等による架橋処理等が挙げられる。

【0054】

本実施形態1の積層セパレータについて、全体の膜厚としては、好ましくは2 μ m以上、より好ましくは5 μ m以上であり、好ましくは30 μ m以下、より好ましくは25 μ m以下、さらに好ましくは20 μ m以下である。全体の膜厚を2 μ m以上とすることは、機械強度を向上させる観点から好ましい。一方、全体の膜厚を30 μ m以下とすることは、セパレータの占有体積が減るため、電池の高容量化の観点において有利となる傾向にあるため好ましい。

40

【0055】

表面層の膜厚は、下限として好ましくは0.5 μ m以上、より好ましくは1 μ m以上、さらに好ましくは2 μ m以上であり、上限として好ましくは15 μ m以下、より好ましくは10 μ m以下、さらに好ましくは5 μ m以下である。表面層の膜厚を0.5 μ m以上とすることは、耐熱性の観点から好ましい。一方、表面層の膜厚を15 μ m以下とすることは、機械強度を向上させる観点から好ましい。

50

【 0 0 5 6 】

積層セパレータの気孔率としては、好ましくは40%以上、より好ましくは50%以上であり、好ましくは90%以下、より好ましくは80%以下である。気孔率を40%以上とすることは、電池特性の観点から好ましい。一方、気孔率を90%以下とすることは、突刺強度を確保する観点から好ましい。

【 0 0 5 7 】

積層セパレータの透気度は、好ましくは10秒/100cc以上、より好ましくは50秒/100cc以上であり、好ましくは1000秒/100cc以下、より好ましくは500秒/100cc以下、さらに好ましくは300秒/100cc以下である。透気度を10秒/100cc以上とすることは、電池の自己放電を抑制する観点から好ましい。一方、透気度を1000秒/100cc以下とすることは、良好な充放電特性を得る観点から好ましい。

10

【 0 0 5 8 】

積層セパレータの突刺強度は、好ましくは3.0N/20μm以上、より好ましくは4N/20μm以上であり、好ましくは10N/20μm以下、より好ましくは7N/20μm以下である。突刺強度を3.0N/20μm以上とすることは、電池捲回時における脱落した活物質等による破膜を抑制する観点から好ましい。一方、突刺強度を10N/20μm以下とすることは、熱収縮を低減する観点から好ましい。

【 0 0 5 9 】

積層セパレータのシャットダウン特性の指標であるシャットダウン温度は、好ましくは150℃以下、より好ましくは145℃以下、さらに好ましくは140℃以下である。シャットダウン温度を150℃以下とすることは、電池の安全性確保の観点から好ましい。

20

【 0 0 6 0 】

積層セパレータの耐熱性の指標であるハンダ試験における測定値としては、300℃では好ましくは5.0mm²以下、より好ましくは4.0mm²以下、400℃では好ましくは8.0mm²以下、より好ましくは7.0mm²以下である。ハンダ試験における測定値を、300℃で5.0mm²以下、400℃で8.0mm²以下とすることは、耐熱性、微多孔膜の均一な孔構造形成という観点から好ましい。

【 0 0 6 1 】

積層セパレータのサイクル特性の指標である容量維持率は、好ましくは80%以上であり、より好ましくは85%以上である。容量維持率を80%以上とすることは、電池の寿命の観点から好ましい。

30

【 0 0 6 2 】

本実施形態1の積層セパレータは、電池用、特にリチウムイオン電池用セパレータとして有用である。当該積層セパレータを用いて得られる電池は、サイクル特性、安全性に優れるので、携帯電話、ノート型パーソナルコンピュータ、電動工具、ハイブリッド自動車、電気自動車用として有用である。

【 0 0 6 3 】

〔 第 2 の 実 施 形 態 〕

本発明の第2の実施形態（以下、「本実施形態2」と略記する。）のポリオレフィン微多孔膜は、ポリプロピレンを50～99質量%、プロピレン- - オレフィン共重合体を1～50質量%含むポリオレフィン樹脂を主成分として形成され、

40

前記プロピレン- - オレフィン共重合体中の - オレフィン含有率が、1質量%を超えて15質量%以下である。

ここで、本実施形態2において、上記のような構成を採用することによりサイクル特性が良好な蓄電デバイス用セパレータを実現し得る理由については詳らかでないが、以下のように推察される。

即ち、本実施形態2においてはポリプロピレンとプロピレン- - オレフィン共重合体とが配合されるが、当該プロピレン- - オレフィン共重合体の - オレフィン部分は、ポリプロピレンの結晶化度を低下させる作用を有するものと推察される。ここで、前記ブ

50

ロピレン - - オレフィン共重合体中に特定量の - オレフィン部分が含有される場合、かかる - オレフィン部分がポリプロピレン部分に適度に作用し、ポリプロピレン部分において形成されるラメラ層を適度な薄さに調整するものと考えられる。そして、適度な薄さのラメラ層が多数生じると、微多孔膜を形成する際に均一な大きさを有する孔部が多数生じることになるものと考えられる。そのような均一な大きさの孔部を多数有する微多孔膜を電池内部に配置した場合、イオンの透過流路が粗密無く均質に存在することとなり、繰り返し充放電の際に目詰まりが生じ難く、電池としてのサイクル特性が向上するものと推察される。

【0064】

前記ポリプロピレンとしては、例えば、アイソタクティックポリプロピレン、アタクティックポリプロピレンが挙げられる。これらポリプロピレンは、1種類または2種類以上を混合して使用することができる。

10

【0065】

また、ポリプロピレンが、前記ポリオレフィン樹脂中に占める割合としては、50質量%以上、好ましくは60質量%以上、より好ましくは70質量%以上であり、上限としては99質量%以下である。

【0066】

一方、前記プロピレン - - オレフィン共重合体（単に「プロピレン共重合体」と記載することがある。）は、モノマーとしてプロピレンと、プロピレンとは異なるモノマーとしての - オレフィンとを用いて形成される。

20

このような - オレフィンとしては、例えば、エチレン、1 - ブテン、4 - メチル - 1 - ペンテン、1 - ヘキセン、及び1 - オクテン等が挙げられる。なお、前記プロピレン - - オレフィン共重合体について、 - オレフィンのポリマー鎖中の位置については特に限定は無く、ランダム共重合体、ブロック共重合体のいずれを使用することもできる。

【0067】

前記プロピレン - - オレフィン共重合体中の - オレフィン含有率としては、1質量%を超えて15質量%以下、好ましくは2質量%以上10質量%以下である。当該含有率が1質量%を超えることは、電池特性の向上に寄与し得る。一方、15質量%以下とすることは、得られる微多孔膜の耐熱性を向上し、電池の安全性を向上させる観点から好適である。

30

【0068】

また、プロピレン - - オレフィン共重合体が、前記ポリオレフィン樹脂中に占める割合としては、1質量%以上、より好ましくは3質量%以上、さらに好ましくは5質量%以上であり、上限としては50質量%以下である。

【0069】

なお、前記ポリオレフィン樹脂には上述したポリプロピレンや、プロピレン - - オレフィン共重合体の他、その他の樹脂成分が配合されていてもよい。

その他の樹脂成分としては、例えば、エチレン、プロピレン、1 - ブテン、4 - メチル - 1 - ペンテン、1 - ヘキセン、及び1 - オクテン等のモノマーを重合して得られる重合体（ホモ重合体や共重合体、多段重合体等）が挙げられる。これら重合体は1種を単独で、又は2種以上を併用して用いることができる。但し、ポリプロピレンと、プロピレン - - オレフィン共重合体は除かれる。

40

【0070】

また、その他の樹脂成分としては、例えば、ポリエチレン{低密度ポリエチレン(910 kg/m³以上930 kg/m³未満)、線状低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン(930 kg/m³以上942 kg/m³未満)、高密度ポリエチレン(942 kg/m³以上)、超高分子量ポリエチレン}、ポリブテン等が挙げられる。

【0071】

前記ポリオレフィン樹脂としては、得られるポリオレフィン微多孔膜の突刺し強度を向上させる観点から、高密度ポリエチレンを含むことが好ましい。

50

【0072】

高密度ポリエチレンが、前記ポリオレフィン樹脂中に占める割合としては、0質量%でもよいが、好ましくは5質量%以上、より好ましくは10質量%以上であり、好ましくは45質量%以下である。高密度ポリエチレンの割合を45質量%以下とすることは、耐熱性を向上させ、電池の安全性を向上させる観点から好ましい。

【0073】

上述した各種ポリオレフィン成分の粘度平均分子量（複数のポリオレフィン成分が用いられる場合には、各々のポリオレフィン成分について測定される値を意味する。）としては、好ましくは10万以上、より好ましくは12万以上であり、上限として好ましくは1000万以下、より好ましくは300万以下である。当該粘度平均分子量を10万以上とすることは、熔融成形の際のメルトテンションを高く維持し良好な成形性を確保する観点、又は、十分な絡み合いを付与し微多孔膜の強度を高める観点から好ましい。一方、粘度平均分子量を1000万以下とすることは、均一な熔融混練を実現し、シートの成形性、特に厚み安定性を向上させる観点から好ましい。粘度平均分子量を300万以下とすることは、より成形性を向上させる観点から好ましい。

10

【0074】

前記ポリオレフィン樹脂には、上記本実施形態1で挙げたものと同様のものが挙げられる。また、その配合量としても本実施形態1と同様である。

【0075】

本実施形態2のポリオレフィン微多孔膜は、ポリプロピレンと、プロピレン - オレフィン共重合体を含むポリオレフィン樹脂を主成分として含有する。ここでいう「主成分」とは、ポリオレフィン樹脂がポリオレフィン微多孔膜に占める割合として、好ましくは20質量%以上、より好ましくは30質量%以上、更に好ましくは50質量%以上、更に好ましくは70質量%以上、特に好ましくは90質量%以上であり、100質量%であってもよいことを意味する。

20

【0076】

前記ポリプロピレンと、前記プロピレン - オレフィン共重合体との配合比（ポリプロピレン/プロピレン - オレフィン共重合体）（質量比）としては、1.5以上60以下であることが好ましく、より好ましくは2以上55以下である。当該配合比を60以下とすることは、電池特性の向上の観点から好ましく、1.5以上とすることは、耐熱性を向上し、電池の安全性を向上させる観点から好適である。

30

【0077】

本実施形態2のポリオレフィン微多孔膜は、無機充填材を更に含有してもよい。

このような無機充填材としては、例えば、アルミナ、シリカ（珪素酸化物）、チタニア、ジルコニア、マグネシア、セリア、イットリア、酸化亜鉛、酸化鉄などの酸化物系セラミックス、窒化ケイ素、窒化チタン、窒化ホウ素等の窒化物系セラミックス、シリコンカーバイド、炭酸カルシウム、硫酸アルミニウム、水酸化アルミニウム、チタン酸カリウム、タルク、カオリンクレー、カオリナイト、ハロイサイト、パイロフィライト、モンモリロナイト、セリサイト、マイカ、アメサイト、ベントナイト、アスベスト、ゼオライト、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ藻土、ケイ砂等のセラミックス、ガラス繊維などが挙げられる。これらは1種を単独で、又は2種以上を併用することができる。中でも、電気化学的安定性の観点から、シリカ、アルミナ、チタニアがより好ましく、特にシリカが好ましい。

40

【0078】

前記無機充填材の平均粒径としては、好ましくは1nm以上、より好ましくは6nm以上、更に好ましくは10nm以上であり、上限として好ましくは100nm以下、好ましくは80nm以下、更に好ましくは60nm以下である。平均粒径が100nm以下であると、延伸等を施した場合でもポリオレフィンと無機充填材間での剥離が生じにくくなる傾向にあり、マクロボイドの発生を抑制する観点から好ましい。ここで、ポリオレフィンと無機充填材間での剥離が生じにくいことは、微多孔膜を構成するフィブリル自身の高硬

50

度化の観点から好ましく、ポリオレフィン微多孔膜の局所領域での耐圧縮性能に優れる傾向、又は耐熱性に優れる傾向が観察されるため好ましい。また、ポリオレフィンと無機充填材間とが密着していることは、蓄電デバイス用セパレータの非水電解液との親和性を向上させ、出力保持性能、サイクル保持性能等に優れたセパレータを実現する観点から好ましい。一方、平均粒径を1 nm以上とすることは、無機充填材の分散性を確保し、局所領域における耐圧縮性を向上させる観点から好ましい。

【0079】

更に、ポリオレフィン樹脂がポリエチレンを含む場合、ポリエチレンとポリプロピレンとを含む組成物に対して、平均粒径が1 nm以上100 nm以下の無機充填材を配合することは、ポリエチレンとポリプロピレンとの相溶性を向上させて両者の相分離を抑制し、良好な延伸性を確保する観点から好ましい。

10

【0080】

前記無機充填材の可塑剤吸油量としては、好ましくは150 ml / 100 g以上であり、上限として好ましくは1000 ml / 100 g以下、より好ましくは500 ml / 100 g以下である。当該吸油量を150 ml / 100 g以上とすることは、ポリオレフィン樹脂、無機充填材、可塑剤を含む混練物中に凝集物が生じることを抑制し、良好な成形性を確保する観点から好ましい。また、ポリオレフィン微多孔膜を蓄電デバイス用セパレータとして使用した場合の、非水電解液の含浸性、保液性に優れ、蓄電デバイス生産性や長期使用における性能維持を確保する観点から好ましい。一方、当該吸油量を1000 ml / 100 g以下とすることは、ポリオレフィン微多孔膜を生産する際の、無機充填材の取り扱い性の観点から好ましい。

20

【0081】

前記無機充填材が、無機充填材と前記ポリオレフィン樹脂との総量中に占める割合としては、好ましくは1質量%以上、より好ましくは5質量%以上、更に好ましくは20質量%以上であり、上限として好ましくは80質量%以下、より好ましくは60質量%以下、更に好ましくは50質量%以下、特に好ましくは40質量%以下である。

当該割合を1質量%以上とすることは、ポリオレフィン微多孔膜を高気孔率に成膜する観点や、ポリオレフィン微多孔膜の140における横方向(幅方向、TD方向)の熱収縮率を向上させる観点、更には、突刺クリープにおける膜厚さ保持率を高く、膜厚さ減少率を小さく調整する観点から好ましい。また、当該割合を20質量%以上とすることは、耐熱性を向上させる観点から好ましい。

30

一方、当該割合を80質量%以下とすることは、高延伸倍率での成膜性を向上させ、ポリオレフィン微多孔膜の突刺強度を向上させる観点から好ましい。

【0082】

また、前記無機充填材が、前記ポリオレフィン樹脂中に占める体積としての割合は、好ましくは10体積%以上、より好ましくは15体積%、さらに好ましくは20体積%以上であり、上限として好ましくは80体積%である。

【0083】

また、前記無機充填材の比重としては、好ましくは1.0 g / cm³以上、より好ましくは1.2 g / cm³以上であり、さらに好ましくは1.5 g / cm³以上であり、上限として好ましくは10.0 g / cm³以下である。

40

【0084】

本実施形態2のポリオレフィン微多孔膜は、各種の添加剤を更に含有してもよい。

このような添加剤としては、フェノール系やリン系やイオウ系等の酸化防止剤；ステアリン酸カルシウムやステアリン酸亜鉛等の金属石鹸類；紫外線吸収剤、光安定剤、帯電防止剤、防曇剤、着色顔料等の各種添加剤を用いることができる。これら添加剤の添加量は、ポリオレフィン樹脂を含む組成物(以下、「ポリオレフィン組成物」とも言う。)に対して、0.01質量%以上1質量%以下が好ましい。

【0085】

本実施形態2の積層ポリオレフィン微多孔膜は、上述したポリオレフィン微多孔膜の少

50

なくとも一方の面に、前記ポリオレフィン微多孔膜とは異なる他のポリオレフィン微多孔膜が積層されたものである。このような積層ポリオレフィン微多孔膜とすることは、低ヒューズ機能等の、その他の性能を付与する観点から好ましい。生産性の観点からは、表面層の二層が同一の組成で、中間層が異なる組成の二種三層構造の形態がより好ましい。

なお、他のポリオレフィン微多孔膜としては、公知の微多孔膜を用いることができる。

【0086】

前記ポリオレフィン微多孔膜、又は前記積層ポリオレフィン微多孔膜の製造方法としては、特に限定されず、例えば、下記(1)～(5)の各工程を含む製造方法を用いることができる。

(1) 所望の層構成に応じて、各層の原料となるポリオレフィン組成物、及び可塑剤を混練して混練物を形成する混練工程。

(2) 前記混練工程の後、所望の層構成に応じて各層の原料をシート状に押出し、必要に応じて積層して冷却固化させ、シート状成形体(単層成形体または積層成形体)に加工するシート成形工程。

(3) 前記成形工程の後、前記シート状成形体を面倍率が20倍以上200倍以下で二軸延伸し、延伸物を形成する延伸工程。

(4) 前記延伸工程の後、前記延伸物から可塑剤を抽出して多孔体を形成する多孔体形成工程。

(5) 前記多孔体形成工程の後、前記多孔体に対し、前記ポリオレフィン樹脂の融点以下の温度で熱処理を行い、幅方向に延伸を行う熱処理工程。

【0087】

前記(1)の工程で用いられる可塑剤としては、ポリオレフィン樹脂と混合した際にポリオレフィン樹脂の融点以上において均一溶液を形成しうる不揮発性溶媒であることが好ましい。また、常温において液体であることが好ましい。

【0088】

前記可塑剤としては、例えば、流動パラフィンやパラフィンワックス等の炭化水素類；フタル酸ジエチルヘキシルやフタル酸ジブチル等のエステル類；オレイルアルコールやステアシルアルコール等の高級アルコール類；等が挙げられる。

【0089】

特にポリオレフィン樹脂にポリエチレンが含まれる場合、可塑剤として流動パラフィンをを用いることは、ポリオレフィン樹脂と可塑剤との界面剥離を抑制し、均一な延伸を実施する観点、又は高突刺強度を実現する観点から好ましい。また、フタル酸ジエチルヘキシルを用いることは、混練物を溶融押出しする際の負荷を上昇させ、無機充填材の分散性を向上させる(品位の良い膜を実現する)観点から好ましい。

【0090】

前記可塑剤が、前記混練物中に占める割合としては、好ましくは25質量%以上、より好ましくは30質量%以上であり、上限として好ましくは80質量%以下、好ましくは75質量%以下である。当該割合を80質量%以下とすることは、溶融成形時のメルトテンションを高く維持し、成形性を確保する観点から好ましい。一方、当該割合を25質量%以上とすることは、成形性を確保する観点、及び、ポリオレフィンの結晶領域におけるラメラ晶を効率よく引き伸ばす観点から好ましい。ここで、ラメラ晶が効率よく引き伸ばされることは、ポリオレフィン鎖の切断が生じずにポリオレフィン鎖が効率よく引き伸ばされることを意味し、均一かつ微細な孔構造の形成や、ポリオレフィン微多孔膜の強度及び結晶化度の向上に寄与し得る。

【0091】

ポリオレフィン樹脂と無機充填材と可塑剤とを混練する方法としては、例えば、以下の(a)、(b)の方法が挙げられる。

(a) ポリオレフィン樹脂と無機充填材とを押出機、ニーダー等の樹脂混練装置に投入し、樹脂を加熱溶融混練させながら更に可塑剤を導入し混練する方法。

(b) 予めポリオレフィン樹脂と無機充填材と可塑剤を、ヘンシェルミキサー等を用い所

10

20

30

40

50

定の割合で事前混練する工程を経て、該混練物を押出機に投入し、加熱溶融させながら更に可塑剤を導入し混練する方法。

【0092】

前記(b)の方法における事前混練に際しては、無機充填材の分散性を向上させ、高倍率の延伸を破膜することなく実施する観点から、ポリオレフィン樹脂と無機充填材に対し、下式(1)の範囲で設定される量の可塑剤を配合して事前混練することが好ましい。

$$0.6 \leq \frac{\text{可塑剤重量}}{(\text{可塑剤吸油量} \times \text{無機充填材重量} \times \text{可塑剤密度})} \times 100 \leq 1.2 \quad (1)$$

【0093】

前記(2)の工程は、例えば、前記混練物をＴダイ等を介してシート状に押し出し、熱伝導体に接触させて冷却固化させ、ゲルシートを得る工程である。積層ゲルシートを成形する場合には、それぞれの押出機から各層を構成するゲルシートを一体化させて一つのダイで共押出する方法、各層を構成するゲルシートを重ね合わせて熱融着する方法のいずれでも作製できる。中でも、共押出する方法が、高い層間接着強度を得やすく、さらに、層間に連通孔を形成しやすいため高透過性を維持しやすく、生産性にも優れるためにより好ましい。当該熱伝導体としては、金属、水、空気、あるいは可塑剤自身等が使用できる。また、冷却固化をロール間で挟み込むことにより行なうことは、シート状成形体の膜強度を増加させる観点や、シート状成形体の表面平滑性を向上させる観点から好ましい。

【0094】

前記(3)の工程における延伸方法としては、例えば、同時二軸延伸、逐次二軸延、多段延伸、多数回延伸等の方法が挙げられる。中でも、同時二軸延伸方法を採用することは、ポリオレフィン微多孔膜の突刺強度増加や膜厚均一化の観点から好ましい。

【0095】

また、前記(3)の工程における面倍率としては、好ましくは１０倍以上、好ましくは１５倍以上であり、上限として好ましくは２００倍以下、より好ましくは１００倍以下である。当該面倍率を１０倍以上とすることは、セパレータとして十分な強度を確保する観点から好ましい。

【0096】

前記(3)の工程における延伸温度としては、ポリオレフィン樹脂の融点温度を基準温度として、好ましくは融点温度 - ５０ 以上、より好ましくは融点温度 - ３０ 以上、更に好ましくは融点温度 - ２０ 以上であり、上限として好ましくは融点温度 - ２ 以下、より好ましくは融点温度 - ３ 以下である。延伸温度を融点温度 - ５０ 以上とすることは、ポリオレフィン樹脂と無機充填材との界面、もしくはポリオレフィン樹脂と可塑剤との界面を良好に密着させ、ポリオレフィン微多孔膜の局所的かつ微小領域での耐圧縮性能を向上させる観点から好ましい。例えば、ポリオレフィン樹脂として高密度ポリエチレンを用いた場合、延伸温度としては１１５ 以上１３２ 以下が好適である。複数のポリオレフィンを混合し用いた場合は、その融解熱量が大きい方のポリオレフィンの融点を基準とすることができる。

【0097】

前記(4)の工程は、ポリオレフィン微多孔膜の突刺強度を向上させる観点から、前記(3)の工程の後に行うことが好ましい。抽出方法としては、前記可塑剤の溶剤に対して前記延伸物を浸漬する方法が挙げられる。なお、抽出後の微多孔膜中の可塑剤残存量としては１質量％未満にすることが好ましい。

【0098】

前記(5)の工程は、熱固定及び／又は熱緩和を行う工程であることが好ましい。

ここで、(5)の工程における延伸倍率としては、面倍率として好ましくは４倍未満、より好ましくは３倍未満である。面倍率を４倍未満とすることは、マクロポイドの発生や突刺強度低下を抑制する観点から好ましい。

【0099】

また、熱処理温度としては、ポリオレフィン樹脂の融点温度を基準として、好ましくは

10

20

30

40

50

100 以上であり、上限として好ましくはポリオレフィンの融点温度以下である。熱処理温度を100 以上とすることは、膜の破れ等の発生を抑制する観点から好適である。一方、ポリオレフィンの融点温度以下とすることは、ポリオレフィン樹脂の収縮を抑制し、ポリオレフィン微多孔膜の熱収縮率を低減する観点から好適である。

【0100】

なお、前記(5)の工程の後、得られたポリオレフィン微多孔膜に対して後処理を施してもよい。このような後処理としては、例えば、界面活性剤等による親水化処理や、電離性放射線等による架橋処理等が挙げられる。

【0101】

本実施形態2のポリオレフィン微多孔膜又は積層ポリオレフィン微多孔膜(単に「微多孔膜」と略記することがある)について、その突刺し強度は、好ましくは200g/20μm以上、より好ましくは240g/20μm以上、さらに好ましくは300g/20μm以上であり、上限として好ましくは2000g/20μm以下、より好ましくは1000g/20μm以下である。突刺し強度を200g/20μm以上とすることは、電池捲回時における脱落した活物質等による破膜を抑制する観点から好ましい。また、充放電に伴う電極の膨張収縮によって短絡する懸念を抑制する観点からも好ましい。一方、2000g/20μm以下とすることは、加熱時の配向緩和による幅収縮を低減できる観点から好ましい。

なお、上記突刺し強度は、延伸倍率、延伸温度を調整すること等により調節可能である。

【0102】

前記微多孔膜の気孔率は、好ましくは20%以上、より好ましくは35%以上であり、上限として好ましくは90%以下、より好ましくは80%以下である。気孔率を20%以上とすることは、セパレータの透過性を確保する観点から好適である。一方、90%以下とすることは、突刺し強度を確保する観点から好ましい。

なお、気孔率は、延伸倍率を変更すること等により調節可能である。

【0103】

前記微多孔膜の平均孔径は、好ましくは0.1μm以下、より好ましくは0.8μm以下であり、下限として好ましくは0.01μm以上である。平均孔径を0.1μm以下とすることは、蓄電デバイスの自己放電を抑制し、容量低下を抑制する観点から好適である。

なお、上記平均孔径は、延伸倍率を変更すること等により調節可能である。

【0104】

前記微多孔膜の膜厚さは、好ましくは2μm以上、より好ましくは5μm以上であり、上限として好ましくは100μm以下、より好ましくは60μm以下、更に好ましくは50μm以下である。膜厚さを2μm以上とすることは、機械強度を向上させる観点から好適である。一方、膜厚さを100μm以下とすることは、セパレータの占有体積が減るため、電池の高容量化の点において有利となる傾向にあるので好ましい。

【0105】

前記微多孔膜の透気度は、好ましくは10sec/100cc以上、より好ましくは50sec/100cc以上であり、上限として好ましくは1000sec/100cc以下、より好ましくは500sec/100cc以下である。透気度を10sec/100cc以上とすることは、蓄電デバイスの自己放電を抑制する観点から好適である。一方、1000sec/100cc以下とすることは、良好な充放電特性を得る観点から好ましい。

なお、上記透気度は、延伸温度、延伸倍率を変更すること等により調節可能である。

【0106】

本実施形態2のポリオレフィン微多孔膜は、特に非水電解液を用いるような蓄電デバイス用セパレータとして有用である。蓄電デバイスは通常、上述した微多孔膜をセパレータに用い、正極と、負極と、電解液とを含む。

【 0 1 0 7 】

前記蓄電デバイスは、例えば、前記微多孔膜を幅 1 0 ~ 5 0 0 m m (好ましくは 8 0 ~ 5 0 0 m m)、長さ 2 0 0 ~ 4 0 0 0 m (好ましくは 1 0 0 0 ~ 4 0 0 0 m) の縦長形状のセパレータとして調製し、当該セパレータを、正極 セパレータ 負極 セパレータ、または負極 セパレータ 正極 セパレータの順で重ね、円または扁平な渦巻状に巻回して巻回体を得、当該巻回体を電池缶内に収納し、更に電解液を注入することにより製造することができる。また、前記蓄電デバイスは、正極 セパレータ 負極 セパレータ、または負極 セパレータ 正極 セパレータの順に平板状に積層し、袋状のフィルムでラミネートし、電解液を注入する工程を経て製造することもできる。

【 0 1 0 8 】

10

[第 3 の実施形態]

本発明の第 3 の実施形態 (以下、「本実施形態 3」とも略記する。) のポリオレフィン微多孔膜は、(ポリプロピレン) / (プロピレン共重合体) (質量比) が 8 0 / 2 0 ~ 0 / 1 0 0 であるポリプロピレン系樹脂を主成分として含むプロピレン系樹脂組成物にて形成され、

前記プロピレン共重合体の融点が 1 2 0 以上 1 4 5 以下であることを特徴とする。

ここで、本実施の形態においては上記のような構成を採用することにより、サイクル特性が良好な蓄電デバイス用セパレータを実現し得る理由については詳らかでないが、以下のように推察される。

【 0 1 0 9 】

20

即ち、本実施形態 3 においてはポリプロピレンと、特定の融点を有するプロピレン共重合体 (プロピレン - エチレン共重合体またはプロピレン - - オレフィン共重合体) とが配合されるが、当該プロピレン - エチレン共重合体のエチレン部分やプロピレン - - オレフィン共重合体の - オレフィン部分は、ポリプロピレンの結晶化度を低下させる作用を有するものと推察される。これは、前記プロピレン - エチレン共重合体のエチレン部分やプロピレン - - オレフィン共重合体の - オレフィン部分がポリプロピレン部分に適度に作用し、ポリプロピレン部分において形成されるラメラ層を適度な薄さに調整するものと考えられる。そして、適度な薄さのラメラ層が多数生じると、微多孔膜を形成する際に均一な大きさを有する孔部が多数生じることになるものと考えられる。

また、プロピレン - エチレン共重合体またはプロピレン - - オレフィンランダム共重合体の融点を 1 2 0 以上 1 4 5 以下という特定範囲に設定することにより、組成物全体の延伸性が向上し、孔径がより大きくなると考えられる。

30

そのような大孔径かつ均一な大きさの孔部を多数有する微多孔膜を電池内部に配置した場合、イオンの透過流路が粗密無く均質に存在することとなり、繰り返し充放電の際に目詰まりが生じ難く、電池としてのサイクル特性が向上するものと推察される。

【 0 1 1 0 】

本実施形態 3 のポリオレフィン微多孔膜は、ポリプロピレン、及びプロピレン共重合体とからなるポリプロピレン系樹脂を主成分として含むポリプロピレン系樹脂組成物にて形成される。

前記ポリプロピレンとしては、例えば、アイソタクティックポリプロピレン、アタクティックポリプロピレンが挙げられる。これらポリプロピレンは、一種類または二種類以上を混合して使用することができる。

40

また、前記ポリプロピレンの融解熱は、8 0 J / g 以上が好ましく、より好ましくは 8 5 J / g 以上、さらに好ましくは 9 0 J / g 以上である。当該ポリプロピレンの融解熱を 8 0 J / g 以上とすることは、気孔率を向上させる観点から好ましい。

【 0 1 1 1 】

一方、前記プロピレン共重合体 (プロピレン - エチレン共重合体またはプロピレン - - オレフィン共重合体) は、モノマーとしてプロピレンと、プロピレンとは異なるモノマーとしてのエチレンまたは - オレフィンとを用いて形成される。

このような - オレフィンとしては、例えば、1 - ブテン、4 - メチル - 1 - ペンテン

50

、1-ヘキセン、及び1-オクテン等が挙げられる。なお、前記プロピレン-エチレン共重合体またはプロピレン- -オレフィン共重合体について、エチレンまたは -オレフィンのポリマー鎖中の位置についてはブロック共重合体でもランダム共重合体でもよいが、延伸性を向上させ、孔径を大きくする観点からランダム共重合体が好ましい。

【0112】

プロピレン-エチレン共重合体またはプロピレン- -オレフィン共重合体の融解熱は、ポリオレフィン微多孔膜の気孔率を向上させる観点から60 J/g以上が好ましく、より好ましくは65 J/g以上、さらに好ましくは70 J/g以上である。

当該プロピレン-エチレン共重合体またはプロピレン- -オレフィン共重合体の融解熱を60 J/g以上とすることは、気孔率を向上させる観点から好ましい。

10

【0113】

前記プロピレン共重合体中のエチレンまたは -オレフィン含有率としては、1質量%を超えて20質量%以下、好ましくは2質量%以上18質量%以下である。当該含有率が1質量%を超えることは、電池特性の向上に寄与し得る。一方、20質量%以下とすることは、得られる微多孔膜の耐熱性を向上し、電池の安全性を向上させる観点から好適である。

また、前記プロピレン共重合体が、前記ポリプロピレン系樹脂中に占める割合としては、20質量%以上、より好ましくは25質量%以上、さらに好ましくは30質量%以上であり、上限としては100質量%以下である。

当該割合と20質量%以上とすることは、ポリオレフィン微多孔膜の孔を均一かつ大きくする観点や高延伸倍率での製膜性を向上させる観点から好ましい。

20

【0114】

また、前記プロピレン共重合体の融点としては、120 以上、好ましくは122 以上、更に好ましくは125 以上であり、上限としては145 以下、好ましくは143 以下、更に好ましくは140 以下である。

当該プロピレン共重合体の融点を120 以上とすることは、延伸性を向上させる観点から好ましい。

【0115】

なお、前記ポリプロピレン系樹脂組成物には上述したポリプロピレンやプロピレン共重合体の他、その他の樹脂成分が配合されていてもよい。

30

その他の樹脂成分としては、上記本実施形態2で挙げたものと同様のものが挙げられる。

【0116】

前記ポリプロピレン系樹脂組成物としては、得られるポリオレフィン微多孔膜の突刺強度を向上させる観点から、高密度ポリエチレンを含むことが好ましい。

高密度ポリエチレンが、前記ポリプロピレン系樹脂組成物中に占める割合としては、好ましくは5質量%以上、より好ましくは10質量%以上であり、上限として好ましくは50質量%以下である。高密度ポリエチレンの割合を50質量%以下とすることは、耐熱性を向上させ、電池の安全性を向上させる観点から好ましい。

【0117】

40

なお、前記ポリプロピレンが、前記ポリプロピレン系樹脂組成物中に占める割合としては、好ましくは0質量%以上、より好ましくは20質量%以上であり、上限として好ましくは80質量%以下である。ポリプロピレンの割合を80質量%以下とすることは、延伸性を向上させる観点から好ましい。

【0118】

上述した各種成分の粘度平均分子量(複数の成分が用いられる場合には、各々の成分について測定される値を意味する。)としては、好ましくは10万以上、より好ましくは12万以上であり、上限として好ましくは1000万以下、より好ましくは300万以下である。当該粘度平均分子量を10万以上とすることは、熔融成形の際のメルトテンションを高く維持し良好な成形性を確保する観点、又は、十分な絡み合いを付与し微多孔膜の強

50

度を高める観点から好ましい。一方、粘度平均分子量を1000万以下とすることは、均一な熔融混練を実現し、シートの成形性、特に厚み安定性を向上させる観点から好ましい。粘度平均分子量を300万以下とすることは、より成形性を向上させる観点から好ましい。

【0119】

前記ポリオレフィン樹脂には、上記本実施形態1で挙げたものと同様のものが挙げられる。また、その配合量としても本実施形態1と同様である。

【0120】

本実施形態3のポリオレフィン微多孔膜は、ポリプロピレン系樹脂を主成分として含有することが好ましい。ここでいう「主成分」とは、ポリプロピレン系樹脂がポリプロピレン系樹脂組成物に占める割合として、好ましくは20質量%以上、より好ましくは30質量%以上、更に好ましくは40質量%以上、特に好ましくは45質量%以上であることを意味する。なお、上限として好ましくは100質量%以下である。

【0121】

本実施形態3のポリオレフィン微多孔膜は、更に無機充填材を含有してもよい。

このような無機充填材としては、上記本実施形態2で挙げたものと同様のものが挙げられる。

【0122】

前記無機充填材の一次粒子径としては、好ましくは1nm以上、より好ましくは6nm以上、更に好ましくは10nm以上であり、上限として好ましくは100nm以下、好ましくは80nm以下、更に好ましくは60nm以下である。一次粒子径を100nm以下とすることは、延伸等を施した場合でもポリオレフィンと無機粒子間での剥離が生じ難くなる傾向にあり、マクロポイドの発生を抑制する観点から好ましい。ここで、ポリオレフィンと無機充填材間での剥離が生じ難いことは、微多孔膜を構成するフィブリル自身の高硬度化の観点から好ましく、ポリオレフィン微多孔膜の局所領域での耐圧縮性能に優れる傾向、又は耐熱性に優れる傾向が観察されるため好ましい。また、ポリオレフィンと無機充填材間とが密着していることは、蓄電デバイス用セパレータの非水電解液との親和性を向上させ、出力保持性能、サイクル保持性能等に優れたセパレータを実現する観点から好ましい。

【0123】

前記無機充填材の可塑剤吸油量としては、好ましくは150ml/100g以上であり、上限として好ましくは1000ml/100g以下、より好ましくは500ml/100g以下である。当該吸油量を150ml/100g以上とすることは、ポリオレフィン樹脂、無機充填材、可塑剤を含む混練物中に凝集物が生じることを抑制し、良好な成形性を確保する観点から好ましい。また、ポリオレフィン微多孔膜を蓄電デバイス用セパレータとして使用した場合の、非水電解液の含浸性、保液性に優れ、蓄電デバイス生産性や長期使用における性能維持を確保する観点から好ましい。一方、当該吸油量を1000ml/100g以下とすることは、ポリオレフィン微多孔膜を生産する際の、無機充填材の取り扱い性の観点から好ましい。

【0124】

前記無機充填材が、前記プロピレン系樹脂組成物中に占める割合としては、好ましくは5質量%以上、より好ましくは10質量%以上、更に好ましくは20質量%以上であり、上限として好ましくは60質量%以下、より好ましくは50質量%以下、更に好ましくは40質量%以下である。

当該割合を5質量%以上とすることは、ポリオレフィン微多孔膜を高気孔率に成膜する観点や、ポリオレフィン微多孔膜の140における横方向（幅方向、TD方向）の熱収縮率を向上させる観点、更には、突刺クリープにおける膜厚さ保持率を高く、膜厚さ減少率を小さく調整する観点から好ましい。また、当該割合を20質量%以上とすることは、耐熱性を向上させる観点から好ましい。

一方、当該割合を60質量%以下とすることは、高延伸倍率での成膜性を向上させ、ポ

10

20

30

40

50

リオレフィン微多孔膜の突刺強度を向上させる観点から好ましい。

【0125】

また、前記無機充填材が、前記プロピレン系樹脂組成物中に占める体積としての割合は、好ましくは10体積%以上、より好ましくは15体積%以上、さらに好ましくは20体積%以上であり、上限として好ましくは80体積%以下である。

【0126】

また、前記無機充填材の比重としては、好ましくは 1.0 g/cm^3 以上、より好ましくは 1.2 g/cm^3 以上であり、さらに好ましくは 1.5 g/cm^3 以上であり、上限として好ましくは 10.0 g/cm^3 以下である。

【0127】

前記プロピレン系樹脂組成物は、更に各種の添加剤を含有してもよい。

このような添加剤としては、上記本実施形態2で挙げたものと同様のものが挙げられる。

【0128】

本実施形態3の積層ポリオレフィン微多孔膜は、上述したポリオレフィン微多孔膜の少なくとも一面に、当該ポリオレフィン微多孔膜とは異なる他のポリオレフィン微多孔膜が積層されたものである。このような積層ポリオレフィン微多孔膜とすることは、低ヒューズ機能等、他の性能を付与する観点から好ましい。生産性の観点からは、表面層の二層が同一の組成で、中間層が異なる組成の二種三層構造の形態がより好ましい。

なお、他のポリオレフィン微多孔膜としては、公知の微多孔膜を用いることができる。

【0129】

前記ポリオレフィン微多孔膜、又は前記積層ポリオレフィン微多孔膜の製造方法としては、上記本実施形態2と同様の製造方法を用いることができる。

【0130】

本実施形態3のポリオレフィン微多孔膜又は積層ポリオレフィン微多孔膜（単に「微多孔膜」と略記することがある）について、その突刺し強度、気孔率、平均孔径、膜厚さ、透気度に関する好適な数値範囲は、上記本実施形態2と同様である。

【0131】

積層セパレータのサイクル特性の指標である容量維持率は、好ましくは70%以上であり、より好ましくは75%である。容量維持率を70%以上とすることは、電池の寿命の観点から好ましい。

【0132】

積層セパレータの高温保存特性は、好ましくは60%以上であり、より好ましくは65%である。高温保存特性を65%以上とすることは、電池の寿命の観点から好ましい。

【0133】

積層セパレータの耐熱性の指標であるショート温度は、好ましくは160℃以上であり、より好ましくは165℃以上である。ショート温度を160℃以上とすることは、電池の安全性の観点から好ましい。

【0134】

前記微多孔膜は、特に非水電解液を用いるような蓄電デバイス用セパレータとして有用である。蓄電デバイスは通常、上述した微多孔膜をセパレータに用い、正極と、負極と、電解液とを含む。

前記蓄電デバイスは、上記本実施形態2と同様の方法により製造することができる。

【0135】

[第4の実施形態]

本発明の第4の実施形態（以下、「本実施形態4」とも略記する。）のポリオレフィン微多孔膜は、（ポリプロピレン）/（プロピレン共重合体）（質量比）が90/10～0/100であるポリプロピレン系樹脂20～95質量%と、無機充填材5～80質量%とを含むポリプロピレン系樹脂組成物にて形成され、前記プロピレン共重合体の融点は110～150℃であり、（プロピレン共重合体）/（無機充填材）（質量比）が0.1/

10

20

30

40

50

1 ~ 1.5 / 1であることを特徴とする。

なお、前記「プロピレン共重合」とは、「プロピレン - エチレン共重合体またはプロピレン - - オレフィン共重合体」を意味する。

ここで、本実施形態4においては上記のような構成を採用することにより、サイクル特性が良好な蓄電デバイス用セパレータを実現し得る理由については詳らかでないが、以下のように推察される。

【0136】

即ち、本実施形態4においては、ポリプロピレンの存在下、特定の融点を有するプロピレン共重合体と、無機充填材とが配合される。そのような特定のプロピレン共重合体が無機充填材に対して一定量配合される場合、ポリプロピレンの熔融温度領域下においてプロピレン共重合体がポリプロピレン、及び無機充填材に対して良好に相互作用し得、その結果、熔融状態における樹脂の全体的な流動性が低下し得る。樹脂の全体的な流動性が低下することは、原料中に低分子量成分や結晶化度が低いポリマー成分が含まれている場合であっても、そのような成分が製膜中に微多孔膜の表面へ移動することが抑制され、スキン層が形成されにくくなることに繋がるものと推察される。スキン層が形成されることは、微多孔膜の表面に存在する孔構造が損なわれる（孔が閉塞される）ことに繋がり得る。つまり、本実施の形態においてはスキン層の形成が抑制され、表面層の孔が閉塞されていない、均一な大きさを有する孔部を多数備える微多孔膜が実現し得る。そのような微多孔膜を電池内部に配置した場合、イオンの透過流路が粗密無く均質に存在することとなり、繰り返し充放電の際に目詰まりが生じ難く、電池としてのサイクル特性が向上するものと推察される。

【0137】

本実施形態4のポリオレフィン微多孔膜は、ポリプロピレン、及びプロピレン共重合体とからなるポリプロピレン系樹脂と、無機充填材とを含むポリプロピレン系樹脂組成物にて形成される。

前記ポリプロピレンとしては、例えば、アイソタクティックポリプロピレン、アタクティックポリプロピレンが挙げられる。これらポリプロピレンは、一種類または二種類以上を混合して使用することができる。

【0138】

ポリオレフィン微多孔膜の高温保存特性及び製膜性を向上させる観点から、前記ポリプロピレンのMFR（「メルトフローレート」を意味する。以下、同様。）としては、0.1 g / 10分以上10.0 g / 10分以下であることが好ましく、より好ましくは8.0 g / 分以下、さらに好ましくは5.0 g / 分以下である。

【0139】

また、前記ポリプロピレンの融解熱は、80 J / g以上が好ましく、より好ましくは85 J / g以上、さらに好ましくは90 J / g以上である。当該ポリプロピレンの融解熱を80 J / g以上とすることは、気孔率を向上させる観点から好ましい。

【0140】

一方、前記プロピレン共重合体（プロピレン - エチレン共重合体またはプロピレン - - オレフィン共重合体）は、モノマーとしてプロピレンと、プロピレンとは異なるモノマーとしてエチレンまたは - オレフィンとを用いて形成される。

このような - オレフィンとしては、例えば、1 - プテン、4 - メチル - 1 - ペンテン、1 - ヘキセン、及び1 - オクテン等が挙げられる。なお、前記プロピレン - エチレン共重合体またはプロピレン - - オレフィン共重合体について、エチレンまたは - オレフィンのポリマー鎖中の位置についてはブロック共重合体でもランダム共重合体でもよいが、ランダム共重合体が好ましい。

【0141】

前記プロピレン共重合体がプロピレン系樹脂中に占める割合としては、好ましくは10質量%以上、より好ましくは15質量%以上、更に好ましくは20質量%以上であり、上限として好ましくは100質量%以下、より好ましくは80質量%以下、更に好ましくは

60質量%以下である。

当該割合と10質量%以上とすることは、ポリオレフィン微多孔膜の孔を均一かつ大きくする観点や高延伸倍率での製膜性を向上させる観点から好ましい。

【0142】

また、前記プロピレン共重合体の融点としては、110以上、好ましくは115以上、更に好ましくは120以上であり、上限としては150以下、好ましくは147以下、更に好ましくは145以下である。

当該プロピレン共重合体の融点を110以上とすることは、延伸性を向上させる観点から好ましい。

【0143】

プロピレン共重合体のMFRとしては、ポリオレフィン微多孔膜の製膜性を向上させる観点から、0.1g/10分以上20.0g/10分以下であることが好ましく、より好ましくは15.0g/10分以下、さらに好ましくは10.0g/10分以下である。

【0144】

また、プロピレン共重合体の融解熱は、60J/g以上が好ましく、より好ましくは65J/g以上、さらに好ましくは70J/g以上である。

当該プロピレン共重合体の融解熱を60J/g以上とすることは、気孔率を向上させる観点から好ましい。

【0145】

前記プロピレン共重合体中のモノマーの含有率（エチレン及び α -オレフィン含有率）としては、1質量%を超えて20質量%以下、好ましくは2質量%以上18質量%以下である。当該含有率が1質量%を超えることは、電池特性の向上に寄与し得る。一方、20質量%以下とすることは、得られる微多孔膜の耐熱性を向上し、電池の安全性を向上させる観点から好適である。

【0146】

なお、前記ポリプロピレン系樹脂組成物には上述したポリプロピレンやプロピレン共重合体の他、その他の樹脂成分が配合されていてもよい。

その他の樹脂成分としては、本実施形態2で挙げたものと同様なものが挙げられる。

【0147】

前記ポリプロピレン系樹脂組成物としては、得られるポリオレフィン微多孔膜の突刺強度を向上させる観点から、高密度ポリエチレンを含むことが好ましい。

高密度ポリエチレンが、前記ポリプロピレン系樹脂組成物中に占める割合としては、好ましくは5質量%以上、より好ましくは10質量%以上であり、上限として好ましくは60質量%以下である。高密度ポリエチレンの割合を60質量%以下とすることは、耐熱性を向上させ、電池の安全性を向上させる観点から好ましい。

【0148】

上述した各種成分の粘度平均分子量（複数の成分が用いられる場合には、各々の成分について測定される値を意味する。）としては、好ましくは10万以上、より好ましくは12万以上であり、上限として好ましくは1000万以下、より好ましくは300万以下である。当該粘度平均分子量を10万以上とすることは、溶融成形の際のメルトテンションを高く維持し良好な成形性を確保する観点、又は、十分な絡み合いを付与し微多孔膜の強度を高める観点から好ましい。一方、粘度平均分子量を1000万以下とすることは、均一な溶融混練を実現し、シートの成形性、特に厚み安定性を向上させる観点から好ましい。粘度平均分子量を300万以下とすることは、より成形性を向上させる観点から好ましい。

【0149】

前記ポリオレフィン樹脂には、上記本実施形態1で挙げたものと同様のものが挙げられる。また、その配合量としても本実施形態1と同様である。

【0150】

本実施形態4のポリオレフィン微多孔膜は、ポリプロピレン系樹脂を主成分として含有

10

20

30

40

50

することが好ましい。ここでいう「主成分」とは、ポリプロピレン系樹脂がポリプロピレン系樹脂組成物に占める割合として、好ましくは20質量%以上、より好ましくは30質量%以上、更に好ましくは40質量%以上、特に好ましくは45質量%以上であることを意味する。なお、上限としては、好ましくは95質量%以下である。

【0151】

本実施形態4のポリオレフィン微多孔膜は、更に無機充填材を含有する。

このような無機充填材としては、上記本実施形態2で挙げたものと同様のものが挙げられる。

【0152】

前記無機充填材の平均粒径としては、好ましくは1nm以上、より好ましくは6nm以上、更に好ましくは10nm以上であり、上限として好ましくは100nm以下、好ましくは80nm以下、更に好ましくは60nm以下である。平均粒径を100nm以下とすることは、延伸等を施した場合でもポリオレフィンと無機粒子間での剥離が生じにくい傾向となり、マクロポイドの発生を抑制する観点から好ましい。ここで、ポリオレフィンと無機充填材間での剥離が生じにくいことは、微多孔膜を構成するフィブリル自身の高硬化の観点から好ましく、ポリオレフィン微多孔膜の局所領域での耐圧縮性能に優れる傾向、又は耐熱性に優れる傾向が観察されるため好ましい。また、ポリオレフィンと無機充填剤間とが密着していることは、蓄電デバイス用セパレータの非水電解液との親和性を向上させ、出力保持性能、サイクル保持性能等に優れたセパレータを実現する観点から好ましい。

一方、平均粒径を1nm以上とすることは、無機充填材の分散性を確保し、局所領域における耐圧縮性を向上させる観点から好ましい。

更に、ポリエチレンとポリプロピレンとを含む組成物に対して粒径が1nm以上100nm以下の無機粒子を配合することは、ポリエチレンとポリプロピレンとの相溶性を向上させて両者の相分離を抑制し、良好な延伸性を確保する観点から好ましい。

【0153】

前記無機充填材の可塑剤吸油量としては、好ましくは150ml/100g以上であり、上限として好ましくは1000ml/100g以下、より好ましくは500ml/100g以下である。当該吸油量を150ml/100g以上とすることは、ポリオレフィン樹脂、無機充填材、可塑剤を含む混練物中に凝集物が生じることを抑制し、良好な成形性を確保する観点から好ましい。また、ポリオレフィン微多孔膜を蓄電デバイス用セパレータとして使用した場合の、非水電解液の含浸性、保液性に優れ、蓄電デバイス生産性や長期使用における性能維持を確保する観点から好ましい。一方、当該吸油量を1000ml/100g以下とすることは、ポリオレフィン微多孔膜を生産する際の、無機充填材の取り扱い性の観点から好ましい。

【0154】

前記無機充填材が、無機充填材と前記ポリオレフィン樹脂との総量中に占める割合としては、好ましくは5質量%以上、より好ましくは10質量%以上、更に好ましくは20質量%以上であり、上限として好ましくは80質量%以下、より好ましくは60質量%以下、更に好ましくは50質量%以下、特に好ましくは40質量%以下である。

当該割合を5質量%以上とすることは、ポリオレフィン微多孔膜を高気孔率に成膜する観点や、ポリオレフィン微多孔膜の140における横方向(幅方向、TD方向)の熱収縮率を向上させる観点、更には、突刺クリープにおける膜厚さ保持率を高く、膜厚さ減少率を小さく調整する観点から好ましい。また、当該割合を20質量%以上とすることは、耐熱性を向上させる観点から好ましい。

一方、当該割合を80質量%以下とすることは、高延伸倍率での成膜性を向上させ、ポリオレフィン微多孔膜の突刺強度を向上させる観点から好ましい。

【0155】

また、前記無機充填材が、前記プロピレン系樹脂組成物中に占める体積としての割合は、好ましくは10体積%以上、より好ましくは15体積%、さらに好ましくは20体積%

以上であり、上限として好ましくは80体積%である。

【0156】

また、前記無機充填材の比重としては、好ましくは 1.0 g/cm^3 以上、より好ましくは 1.2 g/cm^3 以上であり、さらに好ましくは 1.5 g/cm^3 以上であり、上限として好ましくは 10.0 g/cm^3 以下である。

【0157】

前記プロピレン共重合体と無機充填材との配合比としては、(プロピレン共重合体)/(無機充填材)(質量比)として、 $0.1/1 \sim 1.5/1$ 、好ましくは $0.1/1 \sim 1.3/1$ 、更に好ましくは $0.1/1 \sim 1.2/1$ である。配合比を上記範囲に設定することは、低分子量ポリマーや結晶化度が低いポリマーによるスキン層の形成を抑制する観点から好ましい。

10

【0158】

前記プロピレン系樹脂組成物は、更に各種の添加剤を含有してもよい。

このような添加剤としては、上記本実施形態2で挙げたものと同様のものが挙げられる。

【0159】

本実施形態4の積層ポリオレフィン微多孔膜は、上述したポリオレフィン微多孔膜の少なくとも一面に、当該ポリオレフィン微多孔膜とは異なる他のポリオレフィン微多孔膜が積層されたものである。このような積層ポリオレフィン微多孔膜とすることは、低ヒューズ機能等、他の性能を付与する観点から好ましい。生産性の観点からは、表面層の二層が同一の組成で、中間層が異なる組成の二種三層構造の形態がより好ましい。

20

なお、他のポリオレフィン微多孔膜としては、公知の微多孔膜を用いることができる。

【0160】

前記ポリオレフィン微多孔膜、又は前記積層ポリオレフィン微多孔膜の製造方法としては、上記本実施形態2と同様の製造方法を用いることができる。

【0161】

本実施形態4のポリオレフィン微多孔膜又は積層ポリオレフィン微多孔膜(単に「微多孔膜」と略記することがある)について、その突刺し強度、気孔率、平均孔径、膜厚さ、透気度、容量維持率、高温保存特性、ショート温度に関する好適な数値範囲は、上記本実施形態2及び3と同様である。

30

【0162】

前記微多孔膜は、特に非水電解液を用いるような蓄電デバイス用セパレータとして有用である。蓄電デバイスは通常、上述した微多孔膜をセパレータに用い、正極と、負極と、電解液とを含む。

前記蓄電デバイスは、上記本実施形態2と同様の方法により製造することができる。

【0163】

なお、本実施形態1～4における上述した各種パラメータの測定値については、特に断りの無い限り、後述する各実施形態に対応する実施例における測定法に準じて測定される値である。

【実施例】

40

【0164】

[本実施形態1]

次に、実施例及び比較例を挙げて本実施形態1をより具体的に説明するが、本実施形態1はその要旨を超えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。なお、実施例中の物性は以下の方法により測定した。

【0165】

(1) 粘度平均分子量(M_v)

A S T M - D 4 0 2 0 に基づき、デカリン溶媒における135 での極限粘度[]を求めた。

ポリエチレンのM_vは次式により算出した。

50

$[] = 6.77 \times 10^{-4} M v^{0.67}$
 ポリプロピレンの $M v$ は次式により算出した。

$$[] = 1.10 \times 10^{-4} M v^{0.80}$$

【0166】

(2) 全体膜厚 (μm)

微小測厚器 (東洋精機製 タイプ K B M) を用いて室温 23 で測定した。

【0167】

(3) 表面層膜厚 (μm)

走査型電子顕微鏡等の断面観察方法にて断面を観察することにより測定した。

【0168】

(4) 無機粒子の一次粒子径 (nm)

積層セパレータから測定対象を採取し、走査型電子顕微鏡を用いて 30000 倍で観察し、縦 3.0 μm 、横 3.0 μm の視野像の中で無機粒子径を確認した。なお、「一次粒子径」とは個々の粒子が単独でマトリックス中に分散している状態での粒子径、または凝集していても、その中で構成されている最小の粒子径を意味する。また、測定値は、10 点の観察値の平均値とした。

【0169】

(5) 気孔率 (%)

10 cm \times 10 cm 角の試料を微多孔膜から切り取り、その体積 (cm^3) と質量 (g) を求め、それらと膜密度 (g/cm^3) より、次式を用いて計算した。

$$\text{気孔率 (\%)} = (\text{体積} - \text{質量} / \text{混合組成物の密度}) / \text{体積} \times 100$$

なお、混合組成物の密度は、用いたポリオレフィン樹脂と無機粒子の各々の密度と混合比より計算で求められる値を用いた。

【0170】

(6) 透気度 ($sec/100cc$)

JIS P-8117 準拠のガーレー式透気度計 (東洋精機製) にて測定した。

【0171】

(7) 突刺強度 ($N/20 \mu m$)

カトーテック製、商標、KES-G5 ハンディー圧縮試験器を用いて、針先端の曲率半径 0.5 mm、突刺速度 2 mm/sec の条件で突刺試験を行い、最大突刺荷重を突刺強度 (N) とした。これに 20 (μm) / 膜厚 (μm) を乗じることにより 20 μm 膜厚換算の突刺強度 ($N/20 \mu m$) を算出した。

【0172】

(8) シャットダウン温度 ()

図 1 (A) にシャットダウン温度の測定装置の概略図を示す。1 は微多孔膜 (測定対象としての積層セパレータ) であり、2 A 及び 2 B は厚さ 10 μm のニッケル箔、3 A 及び 3 B はガラス板である。4 は電気抵抗測定装置 (安藤電気製 LCR メーター「AG-4311」(商標)) でありニッケル箔 2 A、2 B と接続されている。5 は熱電対であり温度計 6 と接続されている。7 はデーターコレクターであり、電気抵抗装置 4 及び温度計 6 と接続されている。8 はオープンであり、微多孔膜を加熱する。

さらに詳細に説明すると、図 1 (B) に示すようにニッケル箔 2 A 上に微多孔膜 1 を重ねて、縦方向に「テフロン (登録商標)」テープ (図の斜線部) でニッケル箔 2 A に固定する。微多孔膜 1 には電解液として 1 mol / リットルのハウフツ化リチウム溶液 (溶媒: プロピレンカーボネート / エチレンカーボネート / γ -ブチラクトン = 1 / 1 / 2) が含浸されている。ニッケル箔 2 B 上には図 1 (C) に示すように「テフロン (登録商標)」テープ (図の斜線部) を貼り合わせ、箔 2 B の中央部分に 15 mm \times 10 mm の窓の部分を残してマスキングした。

ニッケル箔 2 A とニッケル箔 2 B を微多孔膜 1 をはさむような形で重ね合わせ、さらにその両側からガラス板 3 A、3 B によって 2 枚のニッケル箔をはさみこんだ。このとき、箔 2 B の窓の部分と、微多孔膜 1 が相対する位置に来るようにした。

2枚のガラス板は市販のダブルクリップではさむことにより固定した。熱電対5は「テフロン（登録商標）」テープでガラス板に固定した。

このような装置で連続的に温度と電気抵抗を測定した。なお、温度は25 から200まで2/minの速度にて昇温させ、電気抵抗値は1V、1kHzの交流にて測定した。シャットダウン温度とは微多孔膜の電気抵抗値が 10^3 に達するときの温度と定義した。

【0173】

(9) ハンダ試験 (mm^2)

直径1mmのハンダコテを、枠固定した微多孔膜に垂直になるように設置した。ハンダコテの温度を300 または400 に設定した。温度が安定してから、ハンダコテを10mm/secで下降させ、微多孔膜に3秒間突き刺した後、上昇させた。穴の面積を光学顕微鏡で観察し、画像処理により面積を求めた。

【0174】

(10) 容量維持率 (%)

a. 正極の作成

正極活物質としてリチウムコバルト複合酸化物 (LiCoO_2) を92.2質量%、導電材としてリン片状グラファイトとアセチレンブラックをそれぞれ2.3質量%、バインダーとしてポリフッ化ビニリデン (PVDF) 3.2質量%をN-メチルピロリドン (NMP) 中に分散させてスラリーを調製した。このスラリーを正極集電体となる厚さ20 μm のアルミニウム箔の片面にダイコーターで塗布し、130 で3分間乾燥後、ロールプレス機で圧縮成形した。この時、正極の活物質塗布量は250 g/m^2 、活物質嵩密度は3.00 g/cm^3 になるようにした。

b. 負極の作成

負極活物質として人造グラファイト96.9質量%、バインダーとしてカルボキシメチルセルロースのアンモニウム塩1.4質量%とスチレン-ブタジエン共重合体ラテックス1.7質量%を精製水中に分散させてスラリーを調製した。このスラリーを負極集電体となる厚さ12 μm の銅箔の片面にダイコーターで塗布し、120 で3分間乾燥後、ロールプレス機で圧縮成形した。この時、負極の活物質塗布量は106 g/m^2 、活物質嵩密度は1.35 g/cm^3 になるようにした。

c. 非水電解液の調製

エチレンカーボネート：エチルメチルカーボネート = 1：2（体積比）の混合溶媒に、溶質として LiPF_6 を濃度1.0mol/Lとなるように溶解させて調製した。

d. 電池組立

セパレータを30mm、正極及び負極を16mmの円形に切り出し、正極と負極の活物質面が対向するよう、負極、セパレータ、正極の順に重ね、蓋付きステンレス金属製容器に収納した。容器と蓋は絶縁されており、容器は負極の銅箔と、蓋は正極のアルミニウム箔と接していた。この容器内に前記した非水電解液を注入して密閉した。室温にて一日放置した後、25 雰囲気下、2.0mA (0.33C) の電流値で電池電圧4.2Vまで充電し、到達後4.2Vを保持するようにして電流地を2.0mAから絞り始めるという方法で、合計8時間電池作成後の最初の充電を行った。続いて2.0mA (0.33C) の電流値で電池電圧3.0Vまで放電した。

e. 容量維持率 (%)

充放電は60 雰囲気下で100サイクル実施した。充電は6.0mA (1.0C) の電流値で電池電圧4.2Vまで充電し、到達後4.2Vを保持するようにして電流値を6.0mAから絞り始めるという方法で、合計3時間充電した。放電は6.0mA (1.0C) の電流値で電池電圧3.0Vまで放電した。100サイクル目の放電容量と1サイクル目の放電容量から、容量維持率を算出した。容量維持率が高い場合、良好なサイクル特性を有するものと評価した。

【0175】

[実施例1 - 1]

10

20

30

40

50

ポリオレフィン第1微多孔層の原料を、一次粒径が15nmであるSiO₂「DM10C」(商標、トクヤマ社製 ジメチルジクロロシランで疎水処理実施)を24.0質量部(無機粒子濃度として60質量%)、粘度平均分子量(Mv)200万の超高分子量ポリエチレン「UH850」(商標、旭化成ケミカルズ社製)を6.4質量部(ポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量中の割合として16質量%)、Mv40万のホモポリプロピレン「H-100M」(プライムポリマー社製)を9.6質量部(ポリオレフィン樹脂と無機粒子との総量中の割合として24質量%)、可塑剤として流動パラフィン「スモイルP-350P」(商標、松村石油研究所社製)を28.8質量部、酸化防止剤としてペンタエリスリチル-テトラキス-[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]を0.3質量部添加したものをスーパーミキサーにて予備混合することにより調製した。

10

ポリオレフィン第2微多孔層の原料を、Mv70万の高密度ポリエチレン「UH650」(商標、旭化成ケミカルズ社製)20質量部(ポリオレフィン樹脂総量中50質量%)、Mv27万の高密度ポリエチレン「SH800」(商標、旭化成ケミカルズ社製)20質量部(ポリオレフィン樹脂総量中50質量%)に、酸化防止剤としてペンタエリスリチル-テトラキス-[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]を0.3質量部添加して調製した。

各原料をフィーダーにより2台の二軸同方向スクリー式押出機フィード口へ供給した。また各原料ともに、熔融混練し押し出される全混合物中に占める可塑剤量比が60質量%となるように、流動パラフィンを二軸押出機シリンダーヘサイドフィードした。押出機における熔融混練条件は、第1微多孔層の原料は設定温度200、スクリー回転数100rpm、吐出量5kg/hで行い、第2微多孔層の原料は設定温度200、スクリー回転数120rpm、吐出量16kg/hで行った。

20

続いて、熔融混練物をそれぞれ、220に温度設定されたギアポンプ、導管、2種3層の共押出が可能なTダイを経て、表面温度30に制御されたロールに押し出し、表面温度25のロールにて冷却させ、前記第1微多孔層の原料からなる第1層が表層となっている、厚み1200μmのシート状の組成物を得た。次に連続して同時二軸テンターへ導き、縦方向に7倍、横方向に7倍に同時二軸延伸を行った。この時同時二軸テンターの設定温度は123であった。次に抽出槽に導き、十分に塩化メチレンに浸漬して流動パラフィンを抽出除去した。その後塩化メチレンの乾燥を行った。さらに横テンターに導きTDに1.4倍延伸したのち最終出口はTDに1.2倍となるように緩和し巻取りを行った(表中、「1.4-1.2」と表記している)。TD延伸部の設定温度は120で、緩和部の設定温度は125であった(表中、「120-125」と表記している)。得られた積層セパレータの特性を表1に示す。

30

【0176】

[実施例1-2~1-17、比較例1-2]

表1及び2に記載の条件以外は実施例1-1と同様にして積層セパレータを得た。結果を表1及び2に示す。

[実施例1-18]

ポリオレフィン第1微多孔層の原料を一次粒径が15nmであるSiO₂を24.0質量部、粘度平均分子量(Mv)27万の超高分子量ポリエチレンを5.1質量部、粘度平均分子量(Mv)1000のポリエチレンを1.3質量部、Mv40万のホモポリプロピレンを9.6質量部とした以外は実施例1-1と同様にして積層セパレータを得た。

40

得られた積層セパレータはシャットダウン特性に優れていた。

なお、各原料の素性は以下の通りである。

[無機粒子]

SiO₂: 平均一次粒径が15nmであるシリカ「DM10C」(商標、トクヤマ社製。ジメチルジクロロシランで疎水処理実施)。

Al₂O₃: 平均一次粒径が13nm~100nmである各種市販のアルミナ。

[PP]

50

Mv 40万：Mvが40万のホモポリプロピレン「H-100M」（プライムポリマー社製）。

[PE]

Mv 200万：Mvが200万の超高分子量ポリエチレン「UH850」（商標、旭化成ケミカルズ社製）。

Mv 70万：Mvが70万の高密度ポリエチレン「UH650」（商標、旭化成ケミカルズ社製）。

Mv 27万：Mvが27万の高密度ポリエチレン「SH800」（商標、旭化成ケミカルズ社製）。

【0177】

10

[比較例1-1]

平均一次粒径が15nmであるシリカ「DM10C」（商標、トクヤマ社製。ジメチルジクロロシランで疎水処理実施）を24.0質量部、粘度平均分子量（Mv）200万の超高分子量ポリエチレン「UH850」（商標、旭化成ケミカルズ社製）を6.4質量部、Mv 40万のホモポリプロピレン「H-100M」（プライムポリマー社製）を9.6質量部、可塑剤として流動パラフィン「スモイル P-350P」（商標、松村石油研究所社製）を28.8質量部、酸化防止剤としてペンタエリスリチル-テトラキス-[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]を0.3質量部添加したものをスーパーミキサーにて予備混合することにより原料を調製した。

原料をフィーダーにより1台の二軸同方向スクリー式押出機フィード口へ供給した。溶融混練し押し出される全混合物中に占める可塑剤量比が60質量%となるように、流動パラフィンを二軸押出機シリンダーヘサイドフィードした。押出機における溶融混練条件は、設定温度200、スクリー回転数150rpm、吐出量20kg/hで行った。続いて、溶融混練物をそれぞれ220に温度設定されたギアポンプ、導管、単層のTダイを経て、表面温度30に制御されたロールに押し出し、さらに表面温度25に制御されたロールにて冷却させ、厚み1200μmのシート状の組成物を得た。次に連続して同時二軸テンターへ導き、縦方向に7倍、横方向に7倍に同時二軸延伸を行った。この時同時二軸テンターの設定温度は123であった。次に抽出槽に導き、十分に塩化メチレンに浸漬して流動パラフィンを抽出除去した。その後塩化メチレンの乾燥を行った。さらに横テンターに導き横方向に1.4倍延伸したのち最終出口は1.2倍となるように緩和し巻取りを行った。横延伸部の設定温度は120で緩和部の設定温度は125であった。得られた微多孔膜の特性を表2に示す。

20

【0178】

30

【表 1】

構成	実施例1-1		実施例1-2		実施例1-3		実施例1-4		実施例1-5		実施例1-6		実施例1-7		実施例1-8		実施例1-9		実施例1-10	
	第1層/第2層/第1層	SiO ₂	第1層/第2層/第1層	Al ₂ O ₃	第1層/第2層/第1層	Al ₂ O ₃	第1層/第2層/第1層	Al ₂ O ₃	第1層/第2層/第1層	SiO ₂	第1層/第2層/第1層	SiO ₂	第1層/第2層/第1層	SiO ₂	第1層/第2層/第1層	SiO ₂	第1層/第2層/第1層	SiO ₂	第1層/第2層/第1層	SiO ₂
第1層組成	無機粒子種類																			
	無機粒子の一次粒子径	nm	15	13	50	80	80	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15
	PP(Mv)	万	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	PE(Mv)	万	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
	無機粒子	質量%	60	60	60	60	60	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80
	PP	質量%	24	24	24	24	24	12	36	36	36	48	32	16	24	24	24	24	24	24
	プロピレン-エチレン共重合体	質量%	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	PE	質量%	16	16	16	16	16	8	24	24	24	32	8	24	24	24	24	24	24	24
	第1層のPP含有量(PO比)	質量%	60	60	60	60	60	80	80	80	80	20	60	60	60	60	60	60	60	60
	無機粒子種類																			
第2層組成	無機粒子の一次粒子径	nm	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	PP(Mv)	万	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	PE1(Mv)	万	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
	PE2(Mv)	万	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27	27
	無機粒子	質量%	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	PP	質量%	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	PE1	質量%	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
	PE2	質量%	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50	50
	押出量	kg/h	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
	可塑剤量比	質量%	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
押出(第1層)	回転数	rpm	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	温度	℃	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
	押出量	kg/h	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16
	可塑剤量比	質量%	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60
	回転数	rpm	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120
	温度	℃	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
	二軸テンター	℃	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123
	温度	℃	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7
	倍率	倍	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125
	温度	℃	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2
織物	全体膜厚	μm	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18
	表面膜膜厚	μm	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)	2(2層とも)
	気孔率	%	57	55	58	60	61	61	53	49	56	58	58	56	58	58	58	58	58	58
	透気度	sec/100cc	170	188	159	133	131	208	234	183	165	142	142	142	142	142	142	142	142	142
	実測強度	N/20μm	4.5	4.5	4.4	4.2	4.3	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5	4.5
	シャットダウン温度	℃	141	141	141	141	141	141	141	140	139	141	141	141	141	141	141	141	141	144
	ハンダ試験	300℃	3.3	3.5	3.9	4.4	3.1	4.5	4.8	3.2	3.8	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3	3.3
	ハンダ試験	400℃	6.1	6.3	7.0	7.5	5.8	7.4	7.9	5.9	6.8	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0	6.0
	容量維持率	%	87	87	86	84	88	88	84	82	88	84	87	87	87	87	87	87	87	87

【 0 1 7 9 】

【表 2】

構成	実施例1-11 第1層/第2層 第1層/第2層	実施例1-12 第1層/第2層 第1層/第2層	実施例1-13 第1層/第2層 第1層/第2層	実施例1-14 第1層/第2層 第1層/第2層	実施例1-15 第1層/第2層 第1層/第2層	実施例1-16 第1層/第2層 第1層/第2層	実施例1-17 第1層/第2層 第1層/第2層	比較例1-1 第1層/第2層	比較例1-2 第1層/第2層
	SiO ₂	SiO ₂	SiO ₂	SiO ₂	SiO ₂	SiO ₂	SiO ₂	SiO ₂	Al ₂ O ₃
第1層組成	無機粒子種類	nm	nm	nm	nm	nm	nm	nm	nm
	無機粒子の一次粒子径	15	15	15	15	15	15	15	100
	PP(Mv)	40	40	40	40	40	40	40	40
	PE(Mv)	200	200	200	27	27	27	200	200
	無機粒子	60	60	60	30	30	30	60	60
第2層組成	PP	24	24	24	49	34	34	24	24
	プロピレン-エチレン共重合体	-	-	-	-	15	15	-	-
	PE	16	16	16	21	21	21	16	16
	第1層のPP含有量(PO比)	60	60	60	70	70	70	60	60
	無機粒子種類	-	-	-	-	-	-	-	-
第3層組成	無機粒子の一次粒子径	nm	nm	nm	nm	nm	nm	nm	nm
	PP(Mv)	40	40	40	40	40	40	40	40
	PE1(Mv)	70	70	70	70	70	70	70	70
	PE2(Mv)	27	27	27	27	27	27	27	27
	無機粒子	0	0	15	0	0	0	0	0
押出(第1層)	PP	0	15	0	5	20	5	0	0
	PE1	50	42.5	42.5	47.5	40	47.5	50	50
	PE2	50	42.5	42.5	47.5	40	47.5	50	50
	押出量	kg/h	14	5	5	5	5	5	5
	可塑剤量比	質量%	60	60	60	60	60	60	60
押出(第2層)	回転数	rpm	140	100	100	100	100	100	100
	温度	°C	200	200	200	200	200	200	200
	押出量	kg/h	7	16	16	16	16	16	16
	可塑剤量比	質量%	60	60	60	60	60	60	60
	回転数	rpm	80	120	120	120	120	120	120
二軸テンダー	温度	°C	200	200	200	200	200	200	200
	温度	°C	123	123	123	123	123	123	123
	倍率	倍	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7	7x7
	温度	°C	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125
	倍率	倍	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2
緩和	温度	°C	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125
	倍率	倍	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2
	温度	°C	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125
	倍率	倍	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2	1.4-1.2
	温度	°C	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125	120-125
全体膜厚	膜厚	μm	18	18	18	18	18	18	18
	膜厚	μm	62	58	55	52	53	66	63
	気孔率	%	127	179	161	220	210	82	106
	透気度	sec/100cc	3.3	4.5	4.5	3.5	3.4	2.9	4
	突刺強度	N/20 μm	143	143	143	141	140	140	141
シャットダウン温度	300°C	mm2	4.2	3.3	3.1	4.2	4.6	5.4	5.2
	ハンダ試験	mm2	7.2	6.0	5.9	7.0	7.4	8.5	8.3
	容量維持率	%	84	87	87	84	85	78	79

【0180】

上記表1及び2の結果から、以下の内容が読み取れる。

(1) 実施例1-1～1-4と比較例1-1, 1-2との対比から、一次粒子径が特定の範囲内である無機粒子を含有し、かつ積層構造を有する本実施形態1の積層セパレータは、一次粒子径が上記特定の範囲を逸脱する実施態様、又は積層構造を有しない実施態様に比し、耐熱性、サイクル特性、及びシャットダウン特性をバランス良く両立している。

(2) 実施例1-1、及び実施例1-5～1-7の結果から、耐熱性、サイクル特性、及びシャットダウン特性を両立するという効果については、広範囲の無機粒子含有量において実現されている。

(3) 実施例1-1、及び実施例1-8, 1-9の結果から、耐熱性、サイクル特性、及びシャットダウン特性を両立するという効果については、広範囲のPP含有量において実現されている。

(4) 実施例1-1、及び実施例1-10～1-13の結果から、耐熱性、サイクル特性、及びシャットダウン特性を両立するという効果については、種々の表層の厚さ、種々の層構成において実現されている。

10

20

30

40

50

【 0 1 8 1 】

[本実施形態 2]

次に、実施例及び比較例を挙げて本実施形態 2 をより具体的に説明するが、本実施形態 2 はその要旨を超えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。なお、実施例中の物性は以下の方法により測定した。

【 0 1 8 2 】

(1) 粘度平均分子量 (M_v)

A S R M - D 4 0 2 0 に基づき、デカリン溶剤における 1 3 5 での極限粘度 [] を求めた。

ポリエチレンの M_v は次式により算出した。

$$[] = 0.00068 \times M_v^{0.67}$$

ポリプロピレンの M_v は次式より算出した。

$$[] = 1.10 \times M_v^{0.80}$$

層の M_v はポリエチレンの式を用いて算出した。

【 0 1 8 3 】

(2) 膜厚 (μm)

微小測厚器 (東洋精機製作所 (株) タイプ K B M) を用いて室温 23 ± 2 で測定した。

【 0 1 8 4 】

(3) 気孔率 (%)

10 cm x 10 cm 角の試料を微多孔膜から切り取り、その体積 (cm^3) と質量 (g) を求め、それらと膜密度 (g / cm^3) より、次式を用いて計算した。

$$\text{気孔率 (\%)} = (\text{体積} - \text{質量} / \text{混合組成物の密度}) / \text{体積} \times 100$$

なお、混合組成物の密度は、用いたポリオレフィン樹脂と無機充填材の各々の密度と混合比より計算で求められる値を用いた。

【 0 1 8 5 】

(4) 透気度 ($sec / 100 cc$)

J I S P - 8 1 1 7 準拠のガーレー式透気度計 (東洋精機製) にて測定した。

【 0 1 8 6 】

(5) 突刺強度 (g)

カトーテック製、商標、K E S - G 5 ハンディー圧縮試験器を用いて、針先端の曲率半径 0.5 mm、突刺速度 2 mm / sec の条件で突刺試験を行い、最大突刺荷重を突刺強度 (g) とした。

【 0 1 8 7 】

(6) 電解液含浸性

電解液として、1 mol / L の六フッ化リン酸リチウム溶液 (溶媒 : プロピレンカーボネート) を使用し、グローブボックス内で該電解液を微多孔膜に滴下した。30 秒後に電解液と液滴と微多孔膜が接している面の 80 % 以上が透明であった場合を含浸性が良好 () と判定し、80 % 未満であった場合を含浸性が十分ではない (x) と判定した。

【 0 1 8 8 】

(7) サイクル特性 (% / 100 回)

エチレンカーボネート (E C) : メチレンカーボネート (M E C) = 1 : 2 (重量比) からなる溶媒に L i P F ₆ 1 M を添加した電解液を調製し、負極に炭素電極及び正極に L i C o O ₂ を用い、セパレータとして測定試料の微多孔膜を用いたリチウムイオン電池を作製した。この電池を 4.2 V に充電し、その後放電させる操作を 25 で 100 回繰り返すサイクル試験を行い、サイクル試験後の電池容量変化を調べた。

【 0 1 8 9 】

(8) シャットダウン温度 ()、ショート温度 ()

図 1 (A) にシャットダウン温度の測定装置の概略図を示す。1 は微多孔膜 (測定対象としての積層セパレータ) であり、2 A 及び 2 B は厚さ 10 μm のニッケル箔、3 A 及び

10

20

30

40

50

3 Bはガラス板である。4は電気抵抗測定装置（安藤電気製LCRメーター「AG-4311」（商標））でありニッケル箔2 A、2 Bと接続されている。5は熱電対であり温度計6と接続されている。7はデーターコレクターであり、電気抵抗装置4及び温度計6と接続されている。8はオープンであり、微多孔膜を加熱する。

さらに詳細に説明すると、図1（B）に示すようにニッケル箔2 A上に微多孔膜1を重ねて、縦方向に「テフロン（登録商標）」テープ（図の斜線部）でニッケル箔2 Aに固定する。微多孔膜1には電解液として1 mol / リットルのホウフッ化リチウム溶液（溶媒：プロピレンカーボネート / エチレンカーボネート / γ -ブチラクトン = 1 / 1 / 2）が含浸されている。ニッケル箔2 B上には図1（C）に示すように「テフロン（登録商標）」テープ（図の斜線部）を貼り合わせ、箔2 Bの中央部分に15 mm x 10 mmの窓の部分を残してマスキングした。

10

ニッケル箔2 Aとニッケル箔2 Bを微多孔膜1をはさむような形で重ね合わせ、さらにその両側からガラス板3 A、3 Bによって2枚のニッケル箔をはさみこんだ。このとき、箔2 Bの窓の部分と、微多孔膜1が相対する位置に来るようにした。

2枚のガラス板は市販のダブルクリップではさむことにより固定した。熱電対5は「テフロン（登録商標）」テープでガラス板に固定した。

このような装置で連続的に温度と電気抵抗を測定した。なお、温度は25 から200まで2 / minの速度にて昇温させ、電気抵抗値は1 V、1 kHzの交流にて測定した。シャットダウン温度とは微多孔膜の電気抵抗値が 10^3 に達するときの温度、膜がシャットダウンし、孔が閉塞状態に達した後、再びインピーダンスが 10^3 を下回った時点の温度をショート温度とした。

20

【0190】

（9）ポリプロピレン - エチレン共重合体中のエチレン含有率

下記の条件で測定する ^{13}C -NMRスペクトルから、Kakugoらの報告(Macromolecules 1982,15,1150-1152)に基づいて求めた。10 mm の試験管中で約200 mgのプロピレン - エチレンブロック共重合体を3 mlのオルソジクロロベンゼンに均一に溶解させて試料を調製し、以下の条件にて測定を行った。

測定温度：135

パルス繰り返し時間：10秒

パルス幅：45°

積算回数：2500回

30

【0191】

（10）無機充填材の可塑剤吸油量

FRONT EX S410可塑剤吸油量測定器を用いて次のように測定した。無機充填材5 gを投入し、混練しながら可塑剤（パラフィン油）を滴下した。混練時のトルクが上昇し、最大トルクの70%に減少するときの可塑剤添加量（ml）を求め、それと無機充填材重量（g）より、次式を用いて計算した。

可塑剤吸油量（ml / 100 g）= 可塑剤添加量 / 無機充填材重量 × 100

【0192】

[実施例2 - 1]

40

粘度平均分子量40万のポリプロピレン（融点163）21.2質量部（78質量%）、粘度平均分子量25万、エチレン含有量3質量%のプロピレン - エチレン共重合体（融点160）0.4質量部（2質量%）、粘度平均分子量25万の高密度ポリエチレン（融点137）5.4質量部（20質量%）、核剤としてビス（p - エチルベンジリデン）ソルビトールを0.3質量部、酸化防止剤としてテトラキス - [メチレン - （3', 5' - ジ - t - ブチル - 4' - ヒドロキシフェニル）プロピオネート]メタンを0.2質量部、パラフィン油（松村石油研究所製：P350P）63質量部（70質量%）を配合し原料を調製した。配合物をバッチ式熔融混練機（東洋精機社製：ラボプラストミル）を用いて200・50rpmで10分間混練した。得られた混練物を200の加熱プレスで5MPaにて成形し3分間そのまま熱処理をした後、25に制御された水冷プレス

50

で5MPaにて冷却し、厚さ500 μ mのシートとした。これを同時2軸延伸機（東洋精機社製）を用いて4 \times 4倍に120 で延伸し、その後塩化メチレンでパラフィン油を抽出除去し、乾燥させた。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表3に示す。

【0193】

[実施例2-2~2-5、比較例2-1~2-3]

表3に示す条件以外は実施例2-1と同様にしてポリエチレン微多孔膜を得た。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表3に示す。

なお、無機充填材として使用されるシリカの吸油量は200mL/100gであった。

【0194】

[実施例2-6]

粘度平均分子量40万のポリプロピレン（融点163 ）31.4質量部、粘度平均分子量25万、エチレン含有量3質量%のポリプロピレン-エチレン共重合体（融点160 ）0.6質量部、粘度平均分子量25万の高密度ポリエチレン（融点137 ）8.0質量部、核剤としてビス（p-エチルベンジリデン）ソルビトールを0.3質量部、酸化防止剤としてテトラキス- [メチレン-（3'、5'-ジ-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル）プロピオネート]メタンを0.2質量部、可塑剤として流動パラフィン（松村石油研究所製：P350P）9.6質量部をミキサーで攪拌し、表面層の原料を調製した。

粘度平均分子量25万の高密度ポリエチレン14.25質量部、粘度平均分子量70万の高密度ポリエチレン14.25質量部、粘度平均分子量40万のポリプロピレン1.5質量部、酸化防止剤としてテトラキス- [メチレン-（3'、5'-ジ-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル）プロピオネート]メタンを0.2質量部配合し、中間層の原料を調製した。

各配合物は2台の口径25mm、L/D=48の二軸押出機フィーダーを介して投入した。さらに、表面層の原料には流動パラフィン65質量部、中間層の原料には流動パラフィン70質量部をサイドフィードでそれぞれの押出機に注入し、両表面層、中間層の押出量がそれぞれ、1時間当たり4kg、16kgとなるように調整し、200 、200rpmの条件で混練した後、押出機先端に取り付けた共押出（二種三層）が可能なTダイから220 の条件で押出した。ただちに、表面温度70 に制御されたロールに押出し、さらに表面温度25 に制御されたロールにて冷却させ、厚さ1.4mmのシートを成形した。このシートを同時二軸延伸機で123 の条件で7 \times 7倍に延伸した後、塩化メチレンに浸漬して、流動パラフィンを抽出除去後乾燥し、テンター延伸機により119 の条件で横方向に1.4倍延伸した。その後、この延伸シートを124 で21%幅方向に緩和して熱処理を行い、表面層の二層が同一の組成で、中間層が異なる組成の二種三層構造を有する微多孔膜を得た。得られた微多孔膜の物性を表4に示す。

【0195】

[実施例2-7~2-15、比較例2-4~2-5]

表4に示す条件以外は実施例2-6と同様にしてポリエチレン微多孔膜を得た。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表4に示す。

[実施例2-16]

ポリオレフィン第1微多孔層の原料を粘度平均分子量40万のポリプロピレン（融点163 ）を24.4質量部、粘度平均分子量25万、エチレン含有量3質量%のポリプロピレン-エチレン共重合体（融点160 ）を1.2質量部、粘度平均分子量25万の高密度ポリエチレン（融点137 ）を5.9質量部、粘度平均分子量1000のポリエチレン（融点120 ）を0.5質量部、平均一次粒径が15nmであるシリカを8質量部とした以外は実施例2-6と同様にして二種三層構造を有する微多孔膜を得た。

得られた積層セパレータはシャットダウン特性に優れていた。

なお、無機充填材として使用されるシリカの吸油量は200mL/100gであった。

【0196】

【表 3】

サンプル		実施例2-1	実施例2-2	実施例2-3	実施例2-4	実施例2-5	比較例2-1	比較例2-2	比較例2-3
第1の層 (A)	ポリプロピレン								
	Mv(万)	40	40	40	40	40	40	40	40
	融点(℃)	163	163	163	163	163	163	163	163
	wt%	78	78	56	61	45	80	78	64
	プロピレン-エチレン共重合体								
	Mv(万)	25	25	25	25	25	—	25	—
	融点(℃)	160	160	160	160	160	—	160	—
	エチレン含有率(wt%)	3	10	3	3	3	—	20	—
	wt%	2	2	24	3	19	0	2	0
	高密度ポリエチレン								
	Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25
	融点(℃)	137	137	137	137	137	137	137	137
	wt%	20	20	20	16	16	20	20	16
	シリカ								
	wt%	0	0	0	20	20	0	0	20
第2の層 (B)	ポリオレフィン樹脂濃度(wt%)*	30	30	30	24	24	30	30	24
	ポリプロピレン								
	Mv(万)								
	融点(℃)								
	wt%								
	高密度ポリエチレン								
	Mv(万)								
	融点(℃)								
	wt%								
	Mv(万)								
	融点(℃)								
	wt%								
	ポリオレフィン樹脂濃度(wt%)*								
	層構成	A	A	A	A	A	A	A	A
	混練温度(℃)	200	200	200	200	200	200	200	200
製造条件	第1の延伸								
	延伸温度(℃)	120	120	120	120	120	123	123	123
	延伸倍率(倍)	4×4	4×4	4×4	4×4	4×4	7×7	7×7	7×7
	第2の延伸								
	延伸温度(℃)	—	—	—	—	—	119	119	119
	延伸倍率(倍)	—	—	—	—	—	1.4	1.4	1.4
	膜厚比(A/B/A)	—	—	—	—	—	—	—	—
	膜厚(μm)	18	18	18	18	18	18	18	18
	気孔率(%)	64	62	64	64	62	59	59	61
	透気度(s/100cc)	140	190	150	115	130	286	300	270
膜物性	突刺強度(g)	180	190	180	140	140	200	180	150
	サイクル特性(%/100回)	80	80	80	90	90	60	65	65
	電解液含浸性	x	x	x	○	○	x	x	○
	Short温度(℃)	170	170	170	170	170	170	170	170

*)ポリオレフィン樹脂が、ポリオレフィン樹脂、無機充填材、及び可塑剤の総量に占める割合。

【 0 1 9 7 】

【表 4】

サンプル	実施例2-6		実施例2-7		実施例2-8		実施例2-9		実施例2-10		実施例2-11		実施例2-12		実施例2-13		実施例2-14		実施例2-15		比較例2-4		比較例2-5	
	ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン		ポリアプロピレン	
第1の層 (A)	Mv(万)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	融点(°C)	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163
	wt%	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78	78
	プロピレン-エチレン共重合体																							
	Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
	融点(°C)	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160	160
	エチレン含有率(wt%)	3	10	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
	wt%	2	2	24	3	3	19	3	3	3	3	3	2	2	3	3	2	3	2	3	0	0	0	0
	高密度ポリエチレン																							
	Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
第2の層 (B)	融点(°C)	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137
	wt%	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20	20
	シリカ																							
	wt%	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	ポリアレフィン樹脂濃度(wt%)*	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35	35
	ポリアプロピレン																							
	Mv(万)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	融点(°C)	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163
	wt%	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
	高密度ポリエチレン																							
第2の層 (B)	Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
	融点(°C)	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137
	wt%	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5
	Mv(万)	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
	融点(°C)	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137
	wt%	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5
	ポリアレフィン樹脂濃度(wt%)*	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
	層構成	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A
	混練温度(°C)	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
	第1の延伸																							
製造条件	延伸温度(°C)	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123
	延伸倍率(倍)	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7
	第2の延伸																							
	延伸温度(°C)	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119
	延伸倍率(倍)	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4
	膜厚比	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1
	膜厚(μm)	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18
	気孔率(%)	56	55	53	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57	57
	透気度(s/100cc)	240	245	260	210	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220	220
	突刺強度(g)	300	300	310	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300	300
製造条件	サイクル特性(%/100回)	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80	80
	電解液含浸性	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×	×
	Short温度(°C)	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<
	第1の延伸																							
	延伸温度(°C)	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123	123
	延伸倍率(倍)	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7
	第2の延伸																							
	延伸温度(°C)	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119	119
	延伸倍率(倍)	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4	1.4
	膜厚比	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1

*)ポリアレフィン樹脂が、ポリアレフィン樹脂、無機充填材、及び可塑剤の総量に占める割合。

【0198】

表3及び4の結果から明らかなように、本実施形態2の微多孔膜は蓄電デバイスのサイクル特性を向上させ得るセパレータとして好適である。

[本実施形態3]

次に、実施例及び比較例を挙げて本実施形態3をより具体的に説明するが、本実施形態3はその要旨を超えない限り、以下の実施例に限定されるものではない。なお、実施例中の物性は以下の方法により測定した。

【0199】

粘度平均分子量(Mv)、膜厚、気孔率、透気度、突刺強度、無機充填材の可塑剤吸油量は、上記本実施形態2の実施例と同様の方法により測定した。

10

20

30

40

50

【0200】

(1) 融点 ()

島津製作所社製 DSC60 を使用し測定した。試料を 3 mg 採取し測定サンプルとして用いた。これを直径 5 mm のアルミ製オープンサンプルパンに敷き詰め、クランピングカバーを乗せサンプルシーラーでアルミパン内に固定した。窒素雰囲気下、昇温速度 10 / min で 30 から 200 までを測定し、融解吸熱曲線を得た。得られた融解吸熱曲線について、85 ~ 175 の範囲に直線ベースラインを設定し、係る直線ベースラインと吸熱融解曲線とで囲まれる部分の面積から熱量を算出し、これを試料質量あたりに換算して、融解熱を算出した。また、同様にして融解熱 H と吸熱融解曲線における極小値の温度を融点として測定した。

10

【0201】

(2) 無機粒子の一次粒子径 (nm)

積層セパレータから測定対象を採取し、走査型電子顕微鏡を用いて 30000 倍で観察し、縦 3.0 μm、横 3.0 μm の視野像の中で無機粒子径を確認した。なお、「一次粒子径」とは個々の粒子が単独でマトリックス中に分散している状態での粒子径、または凝集していても、その中で構成されている最小の粒子径を意味する。また、測定値は、10 点の観察値の平均値とした。

【0202】

(3) サイクル特性 (% / 100 回)

a. 正極の作成

20

正極活物質としてリチウムコバルト複合酸化物 (LiCoO_2) を 92.2 質量%、導電材としてリン片状グラファイトとアセチレンブラックをそれぞれ 2.3 質量%、バインダーとしてポリフッ化ビニリデン (PVDF) 3.2 質量% を N-メチルピロリドン (NMP) 中に分散させてスラリーを調製した。このスラリーを正極集電体となる厚さ 20 μm のアルミニウム箔の片面にダイコーターで塗布し、130 で 3 分間乾燥後、ロールプレス機で圧縮成形した。この時、正極の活物質塗布量は 250 g / m²、活物質嵩密度は 3.00 g / cm³ になるようにした。

b. 負極の作成

負極活物質として人造グラファイト 96.9 質量%、バインダーとしてカルボキシメチルセルロースのアンモニウム塩 1.4 質量% とスチレン-ブタジエン共重合体ラテックス 1.7 質量% を精製水中に分散させてスラリーを調製した。このスラリーを負極集電体となる厚さ 12 μm の銅箔の片面にダイコーターで塗布し、120 で 3 分間乾燥後、ロールプレス機で圧縮成形した。この時、負極の活物質塗布量は 106 g / m²、活物質嵩密度は 1.35 g / cm³ になるようにした。

30

c. 非水電解液の調製

エチレンカーボネート：エチルメチルカーボネート = 1 : 2 (体積比) の混合溶媒に、溶質として LiPF_6 を濃度 1.0 mol / L となるように溶解させて調製した。

d. 電池組立

セパレータを 30 mm、正極及び負極を 16 mm の円形に切り出し、正極と負極の活物質面が対向するよう、負極、セパレータ、正極の順に重ね、蓋付きステンレス金属製容器に収納した。容器と蓋は絶縁されており、容器は負極の銅箔と、蓋は正極のアルミニウム箔と接していた。この容器内に前記した非水電解液を注入して密閉した。室温にて一日放置した後、25 雰囲気下、2.0 mA (0.33 C) の電流値で電池電圧 4.2 V まで充電し、到達後 4.2 V を保持するようにして電流地を 2.0 mA から絞り始めるという方法で、合計 8 時間電池作成後の最初の充電を行った。続いて 2.0 mA (0.33 C) の電流値で電池電圧 3.0 V まで放電した。

40

e. 容量維持率 (%)

充放電は 60 雰囲気下で 100 サイクル実施した。充電は 6.0 mA (1.0 C) の電流値で電池電圧 4.2 V まで充電し、到達後 4.2 V を保持するようにして電流値を 6.0 mA から絞り始めるという方法で、合計 3 時間充電した。放電は 6.0 mA (1.0

50

C)の電流値で電池電圧3.0Vまで放電した。100サイクル目の放電容量と1サイクル目の放電容量から、容量維持率を算出した。容量維持率が高い場合、良好なサイクル特性を有するものと評価した。

【0203】

(4) 高温保存特性評価(%)

上記a～dのように組み立てた簡易電池を25℃雰囲気下、3mA(約0.5C)の電流値で電池電圧4.2Vまで充電し、到達後4.2Vを保持するようにして電流値を3mAから絞り始めるという方法で、合計6時間の充電を行った。そして3mAの電流値で電池電圧3.0Vまで放電した。

次に25℃雰囲気下、6mA(約1.0C)の電流値で電池電圧4.2Vまで充電し、到達後4.2Vを保持するようにして電流値を6mAから絞り始めるという方法で、合計3時間充電を行った。そして6mAの電流値で電池電圧3.0Vまで放電する。このときの放電容量をA(mAh)とした。

次に25℃雰囲気下、6mA(約1.0C)の電流値で電池電圧4.2Vまで充電し、到達後4.2Vを保持するようにして電流値を6mAから絞り始めるという方法で、合計3時間充電を行った。充電状態に保持したセルを60℃雰囲気下で7日間保持した。その後セルを取り出し25℃雰囲気下、6mAの電流値で電池電圧3.0Vまで放電した。次に25℃雰囲気下、6mA(約1.0C)の電流値で電池電圧4.2Vまで充電し、到達後4.2Vを保持するようにして電流値を6mAから絞り始めるという方法で、合計3時間充電を行った。そして6mAの電流値で電池電圧3.0Vまで放電した。このときの放電容量をB(mAh)とした。BのAに対する比率から、容量維持率を高温保存特性として算出した。

【0204】

(5) シャットダウン温度()、ショート温度()

図1(A)にシャットダウン温度の測定装置の概略図を示す。1は微多孔膜(測定対象としての積層セパレータ)であり、2A及び2Bは厚さ10μmのニッケル箔、3A及び3Bはガラス板である。4は電気抵抗測定装置(安藤電気製LCRメーター「AG-4311」(商標))でありニッケル箔2A、2Bと接続されている。5は熱電対であり温度計6と接続されている。7はデーターコレクターであり、電気抵抗装置4及び温度計6と接続されている。8はオープンであり、微多孔膜を加熱する。

さらに詳細に説明すると、図1(B)に示すようにニッケル箔2A上に微多孔膜1を重ねて、縦方向に「テフロン(登録商標)」テープ(図の斜線部)でニッケル箔2Aに固定する。微多孔膜1には電解液として1mol/リットルのホウフッ化リチウム溶液(溶媒:プロピレンカーボネート/エチレンカーボネート/-ブチルラクトン=1/1/2)が含浸されている。ニッケル箔2B上には図1(C)に示すように「テフロン(登録商標)」テープ(図の斜線部)を貼り合わせ、箔2Bの中央部分に15mm×10mmの窓の部分を残してマスキングした。

ニッケル箔2Aとニッケル箔2Bを微多孔膜1をはさむような形で重ね合わせ、さらにその両側からガラス板3A、3Bによって2枚のニッケル箔をはさみこんだ。このとき、箔2Bの窓の部分と、微多孔膜1が相対する位置に来るようにした。

2枚のガラス板は市販のダブルクリップではさむことにより固定した。熱電対5は「テフロン(登録商標)」テープでガラス板に固定した。

このような装置で連続的に温度と電気抵抗を測定した。なお、温度は25℃から200℃まで2/minの速度にて昇温させ、電気抵抗値は1V、1kHzの交流にて測定した。シャットダウン温度とは微多孔膜の電気抵抗値が 10^3 に達するときの温度、膜がシャットダウンし、孔が閉塞状態に達した後、再びインピーダンスが 10^3 を下回った時点の温度をショート温度とした。

【0205】

(6) 共重合されたモノマーの含有率

プロピレン共重合体中のモノマー(エチレン及び-オレフィン)の同定、及びその

含有率の測定はC.J.Carmanらによって報告されている ^{13}C -NMR法による方法(Macromolecules, 10, 537(1977))をもとに行った。

【0206】

(7) 平均孔径

キャピラリー内部の流体は、流体の平均自由行程がキャピラリーの孔径より小さいときはポアズイユの流れ、大きいときはクヌーセンの流れに従うことが知られている。ここで、透気度測定における空気の流れがクヌーセンの流れ、常温での透湿度測定における水の流れがポアズイユの流れに従うと仮定すると、平均孔径 d (m) 及び孔屈曲率 (無次元) は、空気の透過速度定数 R_{gas} 、水の透過速度定数 R_{liq} 、水の粘度 (Pa・sec)、標準圧力 P_s (101325 Pa)、気孔率 (無次元)、膜厚 L (m)、気体の分子速度 (m/sec) から、次式を用いて求めることができる；

$$d = 2 \left(R_{liq} / R_{gas} \right) \left(16 / 3 \right) \left(1 / P_s \right)$$

ここで、 R_{gas} は透気度 (sec) から次式を用いて求められる；

$$R_{gas} \left(\text{m}^3 / (\text{m}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa}) \right) = 0.0001 / \text{透気度} / 0.0006424 / (0.01276 \times 101325)$$

また、 R_{liq} は透湿度 (cm³ / (cm²・sec・Pa)) から次式を用いて求められる

$$R_{liq} \left(\text{m}^3 / \text{m}^2 \cdot \text{sec} \cdot \text{Pa} \right) = \text{透湿度} / 1000000 / 0.0001$$

上記式中の透湿度は以下のようにして測定する；

直径42mmのステンレス製の透液セルに、あらかじめエタノールに浸しておいた微多孔膜をセットし、該膜のエタノールを水で洗浄した後、約5000Paの差圧で水を透過させ、120秒間経過した際の透水量 (cm³) から、単位時間、単位圧力、単位面積当たりの透水量を計算し、これを透湿度 (cm³ / (cm²・sec・Pa)) とする。

さらに、 R は気体定数 (8.314 J/mol・K)、絶対温度 T (K)、円周率、気体の平均分子量 M (= 2.896 × 10⁻²) (kg/mol) から次式を用いて求められる；

$$2 = 8RT / M$$

【0207】

[実施例3-1]

粘度平均分子量40万のポリプロピレン (融点163) 50.4質量部、粘度平均分子量25万、エチレン含有量5質量%、融解熱70J/gのプロピレン-エチレンランダム共重合体 (融点140) 12.6質量部、核剤としてビス(p-エチルベンジリデン)ソルビトールを0.3質量部、酸化防止剤としてテトラキス-[メチレン-(3', 5'-ジ-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタンを0.2質量部、パラフィン油 (松村石油研究所製：P350P、可塑剤密度0.868g/cm³) 63質量部を配合し原料を調製した。配合物をバッチ式熔融混練機 (東洋精機社製：ラボプラストミル) を用いて200・50rpmで10分間混練した。得られた混練物を200の加熱プレスで5MPaにて成形し3分間そのまま熱処理をした後、25に制御された水冷プレスで5MPaにて冷却し、厚さ500μmのシートとした。これを同時2軸延伸機 (東洋精機社製) を用いて5×5倍に125で延伸し、その後塩化メチレンでパラフィン油を抽出除去し、乾燥させた。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表5に示す。

【0208】

[実施例3-2～3-8、比較例3-1～3-4]

表5に示す条件以外は実施例3-1と同様にしてポリエチレン微多孔膜を得た。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表5に示す。

なお、無機充填材として使用されるシリカの吸油量は200mL/100gである。

また、使用される高密度ポリエチレンの粘度平均分子量は25万、融点は137である。

【0209】

[実施例 3 - 9]

表面層の原料として、粘度平均分子量 40 万のポリプロピレン（融点 163 ）50 . 4 質量部、粘度平均分子量 25 万、エチレン含有量 5 質量 % のプロピレン - エチレンランダム共重合体（融点 140 、融解熱 70 J / g ）12 . 6 質量部、核剤としてビス（ p - エチルベンジリデン）ソルビトールを 0 . 3 質量部、酸化防止剤としてテトラキス - [メチレン - （ 3 ' , 5 ' - ジ - t - ブチル - 4 ' - ヒドロキシフェニル）プロピオネート] メタンを 0 . 2 質量部配合し原料を調製した。

中間層の原料として、粘度平均分子量 25 万、融点 137 の高密度ポリエチレン 1 を 14 . 25 質量部、粘度平均分子量 70 万、融点 137 の高密度ポリエチレン 2 を 14 . 25 質量部、粘度平均分子量 40 万、融点 163 のポリプロピレン 1 . 5 質量部、酸化防止剤としてテトラキス - [メチレン - （ 3 ' , 5 ' - ジ - t - ブチル - 4 ' - ヒドロキシフェニル）プロピオネート] メタンを 0 . 2 質量部配合し原料を調製した。

各配合物は 2 台の口径 25 mm、L / D = 48 の二軸押出機フィーダーを介して投入した。さらに、表面層には流動パラフィン 63 質量部、中間層には 68 質量部をサイドフィードでそれぞれの押出機に注入し、両表面層、中間層の押出量がそれぞれ、1 時間当たり 4 kg、16 kg となるように調整し、200 、200 rpm の条件で混練した後、押出機先端に取り付けた共押出（二種三層）が可能な T ダイから 200 の条件で押出した。ただちに、表面温度 90 に制御されたロールに押し出し、さらに表面温度 25 に制御されたロールにて冷却させ、厚さ 1 . 4 mm のシートを成形した。このシートを同時二軸延伸機で 125 の条件で 7 × 7 倍に延伸した後、塩化メチレンに浸漬して、流動パラフィンを抽出除去後乾燥し、テンター延伸機により 120 の条件で横方向に 1 . 5 倍延伸した。その後、この延伸シートを 125 で 13 % 幅方向に緩和して熱処理を行い、表面層の二層が同一の組成で、中間層が異なる組成の二種三層構造を有する微多孔膜を得た。得られた微多孔膜の物性を表 6 に示す。

【 0 2 1 0 】

[実施例 3 - 10 ~ 3 - 21、比較例 3 - 5 ~ 3 - 8]

表 6 に示す条件以外は実施例 3 - 9 と同様にしてポリエチレン微多孔膜を得た。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表 6 に示す。

[実施例 3 - 22]

ポリオレフィン第 1 微多孔層の原料を粘度平均分子量 40 万のポリプロピレン（融点 163 ）を 24 . 4 質量部、粘度平均分子量 25 万、エチレン含有量 5 質量 % のプロピレン - エチレン共重合体（融点 160 ）を 1 . 2 質量部、粘度平均分子量 25 万の高密度ポリエチレン（融点 137 ）を 5 . 9 質量部、粘度平均分子量 1000 のポリエチレン（融点 120 ）を 0 . 5 質量部、平均一次粒径が 15 nm であるシリカを 8 質量部とした以外は実施例 3 - 9 と同様にして二種三層構造を有する微多孔膜を得た。

得られた積層セパレータはシャットダウン特性に優れていた。

なお、無機充填材として使用されるシリカの吸油量は 200 mL / 100 g である。

【 0 2 1 1 】

【表 5】

第1の層 (A)	サンプル										比較例3-1 比較例3-2 比較例3-3 比較例3-4									
	ポリプロピレン																			
第1の層 (A)	Mv(万)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	融点(°C)	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163
	wt%	80	20	80	80	80	64	51	39	29	90	80	80	80	80	80	80	80	80	90
	プロピレン共重合体																			
	Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
	融点(°C)	140	140	134	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	147
	融解熱(J/g)	70	70	65	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
	重合形態	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム
	共重合されたモノマーの含有率(wt%)	5	5	15	15	15	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5	5
	共重合されたモノマーの種類	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン
製造条件	wt%	20	80	20	20	20	16	13	17	13	10	10	20	20	20	20	16	16	10	10
	高密度ポリエチレン																			
	Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
	融点(°C)	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137
	wt%	0	0	0	0	0	20	16	24	18	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	無機充填材																			
	無機充填材種類	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ
	無機充填材の一次粒子径(nm)	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15
	wt%	0	0	0	0	0	0	20	20	40	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
	ポリオレフィン樹脂濃度(wt%)*	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37	37
膜物性	層構成	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
	混練温度(°C)	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
	第1の延伸																			
	延伸温度(°C)	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125
	延伸倍率(倍)	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5
	第2の延伸																			
	延伸温度(°C)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	延伸倍率(倍)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	膜厚比																			
	膜厚(μm)	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16	16
膜物性	気孔率(%)	54	54	55	55	55	54	55	57	59	53	53	52	53	53	53	53	53	53	51
	透気度(s/100cc)	470	420	480	490	480	380	310	280	160	540	520	480	480	480	480	480	480	480	520
	突刺強度(g)	300	300	360	360	360	300	300	290	310	200	210	210	240	240	240	240	240	240	230
	平均孔径(μm)	0.035	0.037	0.038	0.039	0.04	0.043	0.045	0.046	0.046	0.031	0.033	0.033	0.033	0.033	0.033	0.033	0.033	0.033	0.033
	サイクル特性(%/100回)	60	60	55	55	65	65	70	70	75	45	45	45	45	45	45	45	45	45	45
	高温保存特性(%/100回)	65	66	62	63	64	68	66	66	70	65	65	65	66	66	66	66	66	66	65
	Short温度(°C)	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170
	*)ポリオレフィン樹脂が、ポリオレフィン樹脂、無機充填材、及び可塑性の総量に占める割合。																			

【表 6】

| 第1の層
(A) | サンプル | 実施例3-9 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-10 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-11 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-12 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-13 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-14 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-15 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-16 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-17 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-18 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-19 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-20 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-21 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-22 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-23 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-24 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-25 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-26 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-27 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-28 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-29 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-30 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-31 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-32 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-33 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-34 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-35 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-36 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-37 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-38 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-39 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-40 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-41 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-42 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-43 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-44 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-45 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-46 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-47 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-48 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-49 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-50 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-51 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-52 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-53 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-54 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-55 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-56 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-57 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-58 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-59 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-60 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-61 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-62 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-63 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-64 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-65 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-66 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-67 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-68 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-69 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-70 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-71 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-72 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-73 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-74 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-75 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-76 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-77 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-78 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-79 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-80 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-81 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-82 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-83 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-84 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-85 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-86 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-87 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-88 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-89 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-90 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-91 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-92 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-93 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-94 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-95 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-96 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-97 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-98 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-99 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-100 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-101 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-102 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-103 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-104 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-105 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-106 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-107 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-108 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-109 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-110 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-111 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-112 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-113 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-114 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-115 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-116 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-117 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-118 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-119 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-120 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-121 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-122 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-123 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-124 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-125 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-126 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-127 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-128 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-129 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-130 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-131 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-132 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-133 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-134 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-135 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-136 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-137 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-138 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-139 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-140 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-141 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-142 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-143 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-144 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-145 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-146 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-147 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-148 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-149 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-150 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-151 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-152 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-153 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-154 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-155 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-156 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
実施例3-157 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-158 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-159 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-160 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-161 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-162 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-163 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-164 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-165 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-166 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-167 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-168 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-169 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-170 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-171 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-172 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-173 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-174 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-175 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-176 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-177 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-178 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-179 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-180 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-181 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-182 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-183 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-184 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-185 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-186 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-187 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-188 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-189 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-190 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-191 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-192 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-193 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-194 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-195 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-196 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-197 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-198 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-199 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-200 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-201 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-202 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-203 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-204 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-205 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-206 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-207 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-208 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-209 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-210 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-211 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-212 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-213 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-214 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-215 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-216 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-217 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-218 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-219 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-220 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-221 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-222 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-223 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-224 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-225 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-226 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-227 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-228 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-229 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-230 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-231 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-232 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-233 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-234 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-235 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-236 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-237 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-238 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-239 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-240 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-241 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-242 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-243 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-244 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-245 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-246 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-247 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-248 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-249 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-250 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-251 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-252 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-253 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-254 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-255 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-256 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-257 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-258 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-259 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-260 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-261 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-262 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-263 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-264 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-265 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-266 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-267 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-268 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-269 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-270 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-271 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-272 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-273 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-274 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-275 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-276 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-277 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-278 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-279 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-280 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-281 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-282 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-283 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-284 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-285 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-286 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-287 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-288 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-289 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-290 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-291 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-292 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-293 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-294 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-295 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-296 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-297 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-298 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-299 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-300 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-301 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-302 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-303 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
実施例3-304 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-305 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-306 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-307 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-308 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-309 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-310 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-311 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-312 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-313 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-314 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-315 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-316 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-317 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-318 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-319 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-320 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-321 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-322 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-323 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-324 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-325 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-326 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-327 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-328 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-329 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-330 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-331 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-332 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-333 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-334 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-335 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-336 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-337 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-338 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-339 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-340 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-341 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-342 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-343 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-344 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-345 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-346 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-347 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-348 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-349 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-350 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-351 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-352 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-353 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-354 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-355 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-356 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-357 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-358 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-359 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-360 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-361 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-362 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-363 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-364 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-365 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-366 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-367 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-368 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-369 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-370 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-371 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-372 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-373 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-374 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-375 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-376 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-377 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-378 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-379 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-380 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-381 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-382 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-383 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-384 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-385 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-386 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-387 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-388 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-389 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-390 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-391 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-392 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-393 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-394 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-395 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-396 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-397 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-398 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-399 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-400 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-401 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-402 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-403 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-404 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-405 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-406 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-407 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-408 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-409 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-410 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-411 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-412 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-413 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-414 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-415 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-416 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-417 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-418 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-419 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-420 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-421 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-422 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-423 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-424 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-425 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-426 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-427 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-428 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-429 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-430 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-431 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-432 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-433 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-434 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-435 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-436 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-437 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-438 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-439 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-440 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-441 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-442 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-443 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-444 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-445 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-446 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-447 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-448 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-449 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-450 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
実施例3-451 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-452 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-453 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-454 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-455 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-456 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-457 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-458 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-459 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-460 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-461 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-462 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-463 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-464 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-465 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-466 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-467 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-468 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-469 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-470 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-471 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-472 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-473 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-474 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-475 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-476 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-477 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-478 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-479 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-480 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-481 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-482 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-483 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-484 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-485 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-486 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-487 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-488 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-489 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-490 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-491 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-492 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-493 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-494 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-495 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-496 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-497 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-498 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-499 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-500 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-501 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-502 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-503 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-504 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-505 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-506 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-507 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-508 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-509 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-510 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-511 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-512 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-513 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-514 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-515 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-516 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-517 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-518 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-519 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-520 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-521 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-522 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-523 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-524 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-525 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-526 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-527 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-528 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-529 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-530 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-531 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-532 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-533 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-534 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-535 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-536 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-537 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-538 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-539 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-540 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-541 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-542 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-543 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-544 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-545 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-546 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-547 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-548 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-549 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-550 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-551 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-552 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-553 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-554 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-555 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-556 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-557 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-558 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-559 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-560 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-561 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-562 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-563 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-564 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-565 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-566 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-567 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-568 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-569 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-570 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-571 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-572 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-573 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-574 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-575 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-576 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-577 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-578 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-579 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-580 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-581 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-582 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-583 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-584 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-585 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-586 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-587 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-588 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-589 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-590 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-591 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-592 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-593 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-594 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-595 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-596 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-597 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
実施例3-598 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-599 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-600 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-601 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-602 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-603 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-604 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-605 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-606 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-607 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-608 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-609 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-610 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-611 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-612 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-613 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-614 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-615 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-616 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-617 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-618 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-619 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-620 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-621 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-622 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-623 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-624 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-625 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-626 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-627 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-628 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-629 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-630 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-631 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-632 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-633 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-634 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-635 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-636 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-637 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-638 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-639 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-640 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-641 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-642 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-643 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-644 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-645 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-646 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-647 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-648 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-649 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-650 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-651 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-652 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-653 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-654 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-655 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-656 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-657 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-658 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-659 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-660 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-661 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-662 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-663 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-664 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-665 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-666 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-667 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-668 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-669 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-670 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-671 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-672 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-673 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-674 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-675 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-676 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-677 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-678 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-679 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-680 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-681 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-682 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-683 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-684 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-685 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-686 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-687 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-688 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-689 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-690 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-691 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-692 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-693 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-694 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-695 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-696 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-697 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-698 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-699 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-700 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-701 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-702 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-703 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-704 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-705 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-706 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-707 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-708 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-709 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-710 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-711 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-712 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-713 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-714 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-715 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-716 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-717 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-718 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-719 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-720 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-721 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-722 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-723 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-724 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-725 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-726 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-727 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-728 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-729 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-730 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-731 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-732 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-733 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-734 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-735 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-736 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-737 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-738 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-739 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-740 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-741 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-742 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-743 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-744 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
実施例3-745 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-746 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-747 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-748 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-749 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-750 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-751 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-752 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-753 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-754 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-755 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-756 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-757 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-758 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-759 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-760 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-761 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-762 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-763 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-764 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-765 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-766 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-767 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-768 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-769 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-770 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-771 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-772 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-773 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-774 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-775 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-776 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-777 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-778 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-779 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-780 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-781 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-782 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-783 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-784 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-785 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | 実施例3-786 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
|-------------|------|--------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|---------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--
----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																																				
-------------	------	--------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	---------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	----------	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--
----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--
----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--
----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--
----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--
----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|----------|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|--|

れたモノマーの含有率、無機充填材の可塑剤吸油量は、上記本実施形態 2 及び 3 の実施例と同様の方法により測定した。

【0215】

[実施例 4 - 1]

粘度平均分子量 40 万のポリプロピレン（融点 163 °C）12.9 質量部、粘度平均分子量 25 万、エチレン含有量 5 質量%のプロピレン - エチレンランダム共重合体（融点 140 °C）5.7 質量部、粘度平均分子量 25 万の高密度ポリエチレン（融点 137 °C）8.0 質量部、シリカ（吸油量 200 ml / 100 g）8 質量部、核剤としてビス（p - エチルベンジリデン）ソルビトールを 0.3 質量部、酸化防止剤としてテトラキス - [メチレン - (3', 5' - ジ - t - ブチル - 4' - ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタンを 0.2 質量部、パラフィン油（松村石油研究所製：P350P、可塑剤密度 0.868 g / cm³）62 質量部を配合し原料を調製した。配合物をバッチ式溶融混練機（東洋精機社製：ラボプラストミル）を用いて 200 ~ 500 rpm で 10 分間混練した。得られた混練物を 200 °C の加熱プレスで 5 MPa にて成形し 3 分間そのまま熱処理をした後、25 °C に制御された水冷プレスで 5 MPa にて冷却し、厚さ 500 μm のシートとした。これを同時 2 軸延伸機（東洋精機社製）を用いて 5 × 5 倍に 125 °C で延伸し、その後塩化メチレンでパラフィン油を抽出除去し、乾燥させた。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表 7 に示す。

10

【0216】

[実施例 4 - 2 ~ 4 - 6、比較例 4 - 1 ~ 4 - 3]

表 7 に示す条件以外は実施例 4 - 1 と同様にしてポリエチレン微多孔膜を得た。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表 7 に示す。

20

【0217】

[実施例 4 - 7]

表面層の原料として、粘度平均分子量 40 万のポリプロピレン（融点 163 °C）16.3 質量部、粘度平均分子量 25 万、エチレン含有量 5 質量%のプロピレン - エチレンランダム共重合体（融点 140 °C、融解熱 70 J / g）7.2 質量部、粘度平均分子量 25 万の高密度ポリエチレン（融点 137 °C）10.1 質量部、シリカ（吸油量 200 ml / 100 g）14.4 質量部、核剤としてビス（p - エチルベンジリデン）ソルビトールを 0.3 質量部、酸化防止剤としてテトラキス - [メチレン - (3', 5' - ジ - t - ブチル - 4' - ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタンを 0.2 質量部、可塑剤として流動パラフィン（松村石油研究所製：P350P）17.3 質量部をミキサーで攪拌し原料を調製した。

30

中間層の原料として、粘度平均分子量 25 万、融点 137 °C の高密度ポリエチレン 1 を 14.25 質量部、粘度平均分子量 70 万、融点 137 °C の高密度ポリエチレン 2 を 14.25 質量部、粘度平均分子量 40 万、融点 163 °C のポリプロピレン 1.5 質量部、酸化防止剤としてテトラキス - [メチレン - (3', 5' - ジ - t - ブチル - 4' - ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタンを 0.2 質量部配合し原料を調製した。

各配合物は 2 台の口径 25 mm、L / D = 48 の二軸押出機フィーダーを介して投入した。さらに、表面層には流動パラフィン 60 質量部、中間層には 70 質量部をサイドフィードでそれぞれの押出機に注入し、両表面層、中間層の押出量がそれぞれ、1 時間当たり 4 kg、16 kg となるように調整し、200 °C、200 rpm の条件で混練した後、押出機先端に取り付けた共押出（二種三層）が可能な T ダイから 220 °C の条件で押出した。ただちに、表面温度 70 °C に制御されたロールに押出し、さらに表面温度 25 °C に制御されたロールにて冷却させ、厚さ 1.4 mm のシートを成形した。このシートを同時二軸延伸機で 125 °C の条件で 7 × 7 倍に延伸した後、塩化メチレンに浸漬して、流動パラフィンを抽出除去後乾燥し、テンター延伸機により 125 °C の条件で横方向に 1.5 倍延伸した。その後、この延伸シートを 132 °C で 21% 幅方向に緩和して熱処理を行い、表面層の二層が同一の組成で、中間層が異なる組成の二種三層構造を有する微多孔膜を得た。得られた微多孔膜の物性を表 8 に示す。

40

50

【 0 2 1 8 】

[実施例 4 - 8 ~ 4 - 1 7、比較例 4 - 4 ~ 4 - 6]

表 8 に示す条件以外は実施例 4 - 7 と同様にしてポリエチレン微多孔膜を得た。得られたポリエチレン微多孔膜の物性を表 8 に示す。

[実施例 4 - 1 8]

ポリオレフィン第 1 微多孔層の原料を粘度平均分子量 4 0 万のポリプロピレン（融点 1 6 3 ）を 2 4 . 4 質量部、粘度平均分子量 2 5 万、エチレン含有量 5 質量%のプロピレン - エチレン共重合体（融点 1 6 0 ）を 1 . 2 質量部、粘度平均分子量 2 5 万の高密度ポリエチレン（融点 1 3 7 ）を 5 . 9 質量部、粘度平均分子量 1 0 0 0 のポリエチレン（融点 1 2 0 ）を 0 . 5 質量部、平均一次粒径が 1 5 n m であるシリカを 8 質量部とした以外は実施例 4 - 7 と同様にして二種三層構造を有する微多孔膜を得た。

得られた積層セパレータはシャットダウン特性に優れていた。

【 0 2 1 9 】

【表 7】

サンプル	実施例 4-1		実施例 4-2		実施例 4-3		実施例 4-4		実施例 4-5		実施例 4-6		比較例 4-1		比較例 4-2		比較例 4-3	
	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ
第1の層 (A)	ポリプロピレン	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
	Mv(万)	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163
	融点(°C)	34	15	34	34	34	34	34	34	34	29	34	32	34	32	34	34	34
	wt%	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
	Mv(万)	140	140	125	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	105
	融点(°C)	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
	融解熱(J/g)	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム
	重合形態	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム
	共重合されたモノマーの種類	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン
	共重合されたモノマーの含有率(wt%)	5	5	15	5	5	5	5	5	5	15	3	5	5	5	5	5	30
第2の層 (B)	wt%	15	34	15	15	15	8	13	15	15	13	15	32	15	32	15	15	15
	高密度ポリエチレン	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
	Mv(万)	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137
	融点(°C)	21	21	21	21	21	21	28	18	30	30	16	30	16	30	16	30	30
	wt%	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ
	無機充填材の種類	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ
	無機充填材の一次粒径(nm)	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15
	無機充填材のwt%	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
	プロピレン共重合体/無機充填材(質量比)	0.5	1.1	0.5	0.5	0.5	0.3	0.3	0.3	0.5	0.5	1.6	0.5	0.5	1.6	0.5	0.5	0.5
	ポリオレフィン樹脂濃度(wt%) ^{*)}	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38
製造条件	ポリプロピレン	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ
	Mv(万)	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15
	融点(°C)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
	wt%	0.5	1.1	0.5	0.5	0.5	0.3	0.3	0.3	0.5	0.5	1.6	0.5	0.5	1.6	0.5	0.5	0.5
	高密度ポリエチレン	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38
	Mv(万)	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15
	融点(°C)	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
	wt%	0.5	1.1	0.5	0.5	0.5	0.3	0.3	0.3	0.5	0.5	1.6	0.5	0.5	1.6	0.5	0.5	0.5
	ポリオレフィン樹脂濃度(wt%) ^{*)}	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38
	層構成	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A	A
膜物性	混練温度(°C)	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
	第1の延伸	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125
	延伸温度(°C)	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5	5×5
	延伸倍率(倍)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	第2の延伸	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	延伸温度(°C)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	延伸倍率(倍)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	膜厚比	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	膜厚(μm)	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18
	気孔率(%)	52	52	51	52	53	53	55	51	52	51	52	52	52	52	52	52	52
膜物性	透気度(s/100cc)	350	380	380	340	300	300	230	370	950	1200	330	330	330	330	330	330	330
	突刺強度(g)	300	300	320	310	300	340	320	340	320	340	320	340	320	340	320	340	320
	サイクル特性(%/100回)	70	70	70	70	70	70	75	80	65	40	30	40	30	40	30	40	30
	常温保存特性(%/100回)	66	64	63	61	60	60	70	65	55	50	50	50	50	50	50	50	50
	Short温度(°C)	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170
	第1の延伸	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	延伸温度(°C)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	延伸倍率(倍)	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	膜厚比	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
	膜厚(μm)	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18	18
	気孔率(%)	52	52	51	52	53	53	55	51	52	51	52	52	52	52	52	52	52
	透気度(s/100cc)	350	380	380	340	300	300	230	370	950	1200	330	330	330	330	330	330	330
	突刺強度(g)	300	300	320	310	300	340	320	340	320	340	320	340	320	340	320	340	320
	サイクル特性(%/100回)	70	70	70	70	70	70	75	80	65	40	30	40	30	40	30	40	30
	常温保存特性(%/100回)	66	64	63	61	60	60	70	65	55	50	50	50	50	50	50	50	50
	Short温度(°C)	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170	170

*)ポリオレフィン樹脂が、ポリオレフィン樹脂、無機充填材、及び可塑剤の総量に占める割合。

【 0 2 2 0 】

【表 8】

	実測例4-7	実測例4-8	実測例4-9	実測例4-10	実測例4-11	実測例4-12	実測例4-13	実測例4-14	実測例4-15	実測例4-16	実測例4-17	比較例4-1	比較例4-2	比較例4-3	比較例4-4	比較例4-5	比較例4-6
サンプル	ポリプロピレン																
Mv(万)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
融点(℃)	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163
wt%	34	15	34	34	34	29	34	8	15	25	29	34	32	34	32	34	34
プロビレン共重合体																	
Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
融点(℃)	140	140	125	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140	140
融解熱(J/g)	70	70	70	40	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
重合形態	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム	ランダム
共重合されたモノマーの種類	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン	エチレン
共重合されたモノマーの含有率(wt%)	5	5	15	5	5	15	5	5	5	5	15	3	5	3	5	30	15
wt%	15	34	15	15	8	13	15	15	34	10	13	15	32	15	32	15	15
高密度ポリエチレン																	
Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
融点(℃)	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137
wt%	21	21	21	21	28	18	21	42	21	15	18	30	16	30	16	30	30
無機充填材																	
シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ
無機充填材の種類	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ	シリカ
無機充填材の一次粒子径(μm)	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	15	13	15	15	15	15	15
wt%	30	30	30	30	30	40	30	30	30	30	50	40	30	20	30	30	30
プロビレン共重合体／無機充填材(質量比)	0.5	1.1	0.5	0.5	0.3	0.3	0.5	0.5	1.1	0.2	0.3	0.5	1.6	0.5	1.6	0.5	0.5
ポリオレフィン樹脂濃度(wt%) ⁽¹⁾	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38	38
ポリプロピレン																	
Mv(万)	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
融点(℃)	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163	163
wt%	5	5	5	5	5	5	5	20	5	5	5	5	5	5	5	5	5
高密度ポリエチレン1																	
Mv(万)	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25	25
融点(℃)	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137
wt%	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	40	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5
高密度ポリエチレン2																	
Mv(万)	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
融点(℃)	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137	137
wt%	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	40	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5	47.5
ポリオレフィン樹脂濃度(wt%) ⁽¹⁾	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32	32
層積式	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	B/A/B	B/A/B	B/A/B	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A	A/B/A
溶融温度(℃)	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200	200
第1の延伸																	
延伸温度(℃)	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125	125
延伸倍率(倍)	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7	7×7
第2の延伸																	
延伸温度(℃)	132	132	132	132	132	132	132	132	132	132	132	132	132	132	132	132	132
延伸倍率(倍)	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	2/1/2	1/8/1	2/1/2	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1	1/8/1
膜厚(μm)	14	14	13	13	14	13	14	13	14	14	14	14	14	14	14	14	14
気孔率(%)	40	40	41	38	41	43	40	44	40	46	44	42	43	42	43	42	42
透気度(s/100cc)	210	230	240	260	190	180	180	170	200	150	200	280	280	880	880	900	900
変形強度(g)	300	300	320	310	300	340	300	300	300	300	320	300	300	300	300	300	300
サイクル特性(%/100回)	90	85	80	75	80	95	90	90	85	95	90	65	90	65	50	45	45
高温保持特性(%/100回)	83	81	78	81	75	82	80	68	79	85	83	83	83	68	64	64	64
Short温度(℃)	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<	200<

*)ポリオレフィン樹脂が、ポリオレフィン樹脂、無機充填材、及び可塑剤の総量に占める割合。

【 0 2 2 1 】

表 7、8 の結果から明らかなように、本実施形態 4 の微多孔膜は蓄電デバイスのサイクル特性を向上させ得るセパレータとして好適である。

【 0 2 2 2 】

本出願は、２００９年３月９日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願２００９－０５４７９５）、２００９年３月１７日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願２００９－０６４５３３）、２００９年１２月１０日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願２００９－２８０４８６）、２００９年１２月１０日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願２００９－２８０４８８）、２０１０年２月３日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願２０１０－０２１８５９）、及び２０１０年２月３日に日本国特許庁へ出願された日本特許出願（特願２０１０－０２２４８１）に基づくものであり、その内容はここに参照として取り込まれる。

【産業上の利用可能性】

【0223】

本発明によれば、耐熱性、サイクル特性、及びシャットダウン特性を高度な次元で両立するセパレータが提供される。かかるセパレータは、特に、リチウムイオン電池用セパレータとしての産業上利用可能性を有する。

また、本発明によれば、蓄電デバイスのサイクル特性を向上させ得るセパレータとして好適なポリオレフィン微多孔膜が提供される。

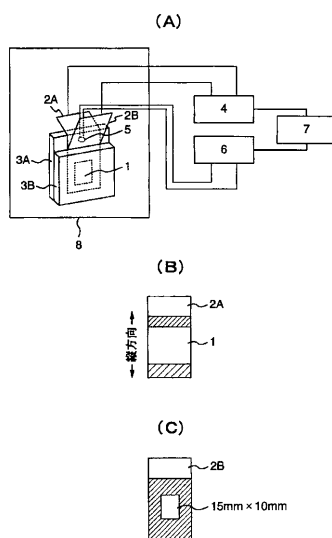
【符号の説明】

【0224】

- 1：微多孔膜
- 2A、2B：厚さ10 μ mのニッケル箔
- 3A、3B：ガラス板
- 4：電気抵抗測定装置
- 5：熱電対
- 6：温度計
- 7：データーコレクター
- 8：オープン

10

【図1】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. F I
B 3 2 B 5/32

(31)優先権主張番号 特願2009-280488(P2009-280488)

(32)優先日 平成21年12月10日(2009.12.10)

(33)優先権主張国 日本国(JP)

(31)優先権主張番号 特願2010-21859(P2010-21859)

(32)優先日 平成22年2月3日(2010.2.3)

(33)優先権主張国 日本国(JP)

(31)優先権主張番号 特願2010-22481(P2010-22481)

(32)優先日 平成22年2月3日(2010.2.3)

(33)優先権主張国 日本国(JP)

(72)発明者 飴山 圭太郎

東京都千代田区神田神保町一丁目105番地

(72)発明者 榊原 譲

東京都千代田区神田神保町一丁目105番地

審査官 守安 太郎

(56)参考文献 特開2001-266828(JP,A)

特開2008-254288(JP,A)

国際公開第2006/038532(WO,A1)

特開2009-185093(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl.,DB名)

H01M 2/16