(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2019年10月3日(03.10.2019)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2019/188719 A1

(51) 国際特許分類:
H01M 4/139 (2010.01) *H01M 10/0566* (2010.01)
H01M 2/16 (2006.01) *H01M 10/058* (2010.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/011885

(22) 国際出願日： 2019年3月20日(20.03.2019)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2018-058887 2018年3月26日(26.03.2018) JP

(71) 出願人: 日本ゼオン株式会社 (**ZEON CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 田口 裕之 (**TAGUCHI Hiroyuki**); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP). 田中 慶一朗 (**TANAKA Keiichiro**); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP). 脇坂 康尋 (**WAKIZAKA Yasuhiro**); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目６番２号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 杉村 憲司 (**SUGIMURA Kenji**); 〒1000013 東京都千代田区霞が関三丁目２番１号 霞が関コモンゲート西館３６階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類：
一 国際調査報告（条約第21条(3)）

(54) **Title:** NON-AQUEOUS SECONDARY BATTERY LAYERED-BODY MANUFACTURING METHOD, AND NON-AQUEOUS SECONDARY BATTERY MANUFACTURING METHOD

(54) 発明の名称： 非水系二次電池用積層体の製造方法および非水系二次電池の製造方法

(57) **Abstract:** Provided is a method for efficiently manufacturing a non-aqueous secondary battery layered-body with excellent process adhesion. The method for manufacturing a non-aqueous secondary battery layered-body obtained by adhering an electrode and a separator to each other, the method comprising: step (A) in which a surface layer on an adhering surface side of at least one of the electrode and the separator is provided with a polymer, and a substance that is capable of plasticizing the polymer is supplied to at least one of the adhering surface of the electrode and the adhering surface of the separator; and step (B) in which the electrode and the separator are adhered to each other after step (A).

(57) 要約：本発明は、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体の効率的な製造方法を提供する。本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法は、電極と、セパレータとを貼り合わせてなる非水系二次電池用積層体の製造方法であって、電極およびセパレータの少なくとも一方は、貼り合わせ面側の表層部に重合体を有し、電極の貼り合わせ面およびセパレータの貼り合わせ面の少なくとも一方に重合体を可塑化可能な物質を供給する工程（Ａ）と、工程（Ａ）の後、電極とセパレータとを貼り合わせる工程（Ｂ）とを含む。

WO 2019/188719 A1

明　細　書

発明の名称 ：

非水系二次電池用積層体の製造方法および非水系二次電池の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、非水系二次電池用積層体の製造方法および非水系二次電池の製造方法に関するものである。

背景技術

[0002] リチウムイオン二次電池などの非水系二次電池（以下、単に「二次電池」と略記する場合がある。）は、小型で軽量、且つエネルギー密度が高く、更に繰り返し充放電が可能という特性があり、幅広い用途に使用されている。そして、非水系二次電池は、一般に、正極、負極、および、正極と負極とを隔離して正極と負極との間の短絡を防ぐセパレータなどの電池部材を備えている。

[0003] ここで、近年では、非水系二次電池の更なる高性能化を目的として、電極とセパレータとを接着層により接着して一体化し、充放電の繰り返しに伴うセルの膨らみ及び極板間距離の拡大を抑制することにより、非水系二次電池の電気的特性を向上させる技術が提案されている（例えば、特許文献１，２参照）。

[0004] また、例えば特許文献３では、電極とセパレータとを良好に密着させた二次電池用積層体を電極間の抵抗を増大させずに製造する方法として、接着性樹脂をＮ－メチルピロリドンなどの第１の溶剤に溶解させてなる接着性樹脂溶液をセパレータに塗着した後、接着性樹脂の溶解性が第１の溶剤よりも低い第２の溶剤（例えば、水など）をセパレータ上の接着性樹脂溶液に供給し、その後、正極および負極をセパレータに貼り合わせて乾燥させる方法が提案されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２００１－８４９８５号公報

特許文献2：国際公開第２０１５／１９８５３０号

特許文献3：国際公開第９９／３１７４９号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] ここで、二次電池の製造プロセスにおいては、電極とセパレータとを積層・一体化して二次電池用積層体を得る際、並びに、得られた二次電池用積層体を切断または運搬する際に、電極とセパレータとが位置ズレなどを起こし、不良の発生、生産性の低下といった問題を生じることがある。従って、非水系二次電池用積層体には、電解液に浸漬する前の状態においても、電極とセパレータとが良好に接着している（即ち、プロセス接着性に優れている）ことが求められている。

[0007] しかし、上記従来の非水系二次電池用積層体には、プロセス接着性を更に向上させるという点において改善の余地があった。

[0008] そこで、本発明は、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体の効率的な製造方法を提供することを目的とする。

また、本発明は、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体を用いた非水系二次電池の効率的な製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者は、上記課題を解決することを目的として鋭意検討を行った。そして、本発明者は、電極とセパレータとを貼り合わせる際に電極とセパレータとの接着に用いられる重合体を可塑化させることでプロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体が効率的に得られることを見出し、本発明を完成させた。

[0010] 即ち、この発明は、上記課題を有利に解決することを目的とするものであり、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法は、電極と、セパレータとを貼り合わせてなる非水系二次電池用積層体の製造方法であって、前記電極および前記セパレータの少なくとも一方は、貼り合わせ面側の表層部に重合

体を有し、前記電極の貼り合わせ面および前記セパレータの貼り合わせ面の少なくとも一方に前記重合体を可塑化可能な物質を供給する工程（Ａ）と、前記工程（Ａ）の後、前記電極と前記セパレータとを貼り合わせる工程（Ｂ）とを含むことを特徴とする。このように、重合体を可塑化可能な物質（以下、単に「物質」と称することがある。）を貼り合わせ面の少なくとも一方に供給した後に貼り合わせを行えば、可塑化させた重合体を利用して電極とセパレータとを接着させることができるので、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体が効率的に得られる。

[0011] ここで、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法は、前記重合体の前記物質に対する膨潤度が、１１０％以上２０００％以下であることが好ましい。重合体を可塑化可能な物質に対する重合体の膨潤度が上記範囲内であれば、非水系二次電池用積層体のプロセス接着性を十分に高めることができる。

なお、本発明において、「重合体の膨潤度」は、本明細書の実施例に記載の方法を用いて測定することができる。

[0012] また、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法は、前記工程（Ａ）において、前記物質を０．００５ｇ／ｍ^{2}以上５ｇ／ｍ^{2}以下の供給量で供給することが好ましい。物質の供給量が上記範囲内であれば、非水系二次電池用積層体を用いた非水系二次電池の電池特性が低下するのを抑制しつつ、非水系二次電池用積層体のプロセス接着性を十分に高めることができる。

[0013] 更に、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法は、前記セパレータは、貼り合わせ面側の表層部に重合体を有し、前記工程（Ａ）で前記物質を供給する前の前記貼り合わせ面同士の接着力が８Ｎ／ｍ以下であることが好ましい。貼り合わせ面側の表層部に重合体を有するセパレータを使用するに当たり、重合体を可塑化可能な物質を供給する前の貼り合わせ面同士の接着力が８Ｎ／ｍ以下であれば、セパレータが保存中や運搬中に貼り合わせ面を介して膠着（ブロッキング）するのを抑制することができる。

なお、本発明において、「物質を供給する前の貼り合わせ面同士の接着力

」は、本明細書の実施例に記載の方法を用いて測定することができる。

[0014] また、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法は、前記工程（Ａ）で前記物質を供給した後の前記電極と前記セパレータとの接着力が、前記工程（Ａ）で前記物質を供給する前の前記電極と前記セパレータとの接着力の１．２倍以上であることが好ましい。重合体を可塑化可能な物質を供給する前後の接着力の比（供給後の接着力／供給前の接着力）が上記下限値以上であれば、非水系二次電池用積層体のプロセス接着性を十分に高めることができる。

なお、本発明において、「物質を供給する前の電極とセパレータとの接着力」および「物質を供給した後の電極とセパレータとの接着力」は、それぞれ、本明細書の実施例に記載の方法を用いて測定することができる。

[0015] また、この発明は、上記課題を有利に解決することを目的とするものであり、本発明の非水系二次電池の製造方法は、上述した非水系二次電池用積層体の製造方法の何れかを用いて非水系二次電池用積層体を製造する工程と、前記非水系二次電池用積層体と、電解液とを用いて非水系二次電池を組み立てる工程とを含むことを特徴とする。このように、上述した非水系二次電池用積層体の製造方法の何れかを用いて製造した、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体を使用すれば、優れた性能を発揮し得る非水系二次電池が効率的に得られる。

発明の効果

[0016] 本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法によれば、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体を効率的に得ることができる。

また、本発明の非水系二次電池の製造方法によれば、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体を使用し、優れた性能を発揮し得る非水系二次電池が効率的に得られる。

発明を実施するための形態

[0017] 以下、本発明の実施形態について詳細に説明する。

ここで、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法は、電極（正極およ

び／または負極）と、セパレータとを貼り合わせてなる非水系二次電池用積層体を製造する際に用いられる。そして、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法を用いて製造した非水系二次電池用積層体は、例えば、本発明の非水系二次電池の製造方法を用いて非水系二次電池を製造する際に用いることができる。

[0018] （非水系二次電池用積層体の製造方法）

本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法は、少なくとも一方が貼り合わせ面側の表層部に重合体を有する電極およびセパレータを貼り合わせて非水系二次電池用積層体を製造する方法である。そして、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法では、電極の貼り合わせ面およびセパレータの貼り合わせ面の少なくとも一方に重合体を可塑化可能な物質を供給した後（工程（Ａ））、電極とセパレータとを貼り合わせて（工程（Ｂ））、非水系二次電池用積層体を得る。このように、物質を供給した後で電極とセパレータとを貼り合わせることにより、例えば貼り合わせの際のプレス時間を長くする等の操作なしに、可塑化させた重合体に十分な接着力を発揮させ、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体を効率的に得ることができる。

[0019] ＜非水系二次電池用積層体＞

非水系二次電池用積層体は、電極とセパレータとが貼り合わせ面を介して貼り合わされたものである。ここで、セパレータと貼り合わされて非水系二次電池用積層体を構成する電極は、正極のみであってもよいし、負極のみであってもよいし、正極および負極の双方であってもよい。また、正極および負極の双方をセパレータと貼り合わせて非水系二次電池用積層体とする場合、非水系二次電池用積層体が有する正極、負極およびセパレータの数は、それぞれ、１つであってもよいし、２つ以上であってもよい。

即ち、本発明の製造方法を用いて製造する非水系二次電池用積層体の構造は、下記（１）～（４）の何れであってもよい。

（１）正極／セパレータ

（２）負極／セパレータ

（３）正極／セパレータ／負極

（４）複数の正極および負極がセパレータを介して交互に積層された構造（例えば、正極／セパレータ／負極／セパレータ／正極・・・・・／セパレータ／負極など）

[0020] ＜電極＞

ここで、電極としては、特に限定されることなく、例えば、集電体の片面または両面に電極合材層を形成してなる電極基材からなる電極、或いは、電極基材の電極合材層上に多孔膜層および／または接着層を更に形成してなる電極を用いることができる。因みに、上記（４）の構造の積層体を製造する場合、積層方向両端に位置する正極および負極以外の電極としては、通常、集電体の両面に電極合材層が形成されているものを用いる。

なお、集電体、電極合材層、多孔膜層および接着層としては、特に限定されることなく、例えば特開２０１３－１４５７６３号公報に記載のもの等、非水系二次電池の分野において使用され得る任意の集電体、電極合材層、多孔膜層および接着層を使用し得る。

[0021] ＜セパレータ＞

また、セパレータとしては、特に限定されることなく、例えば、セパレータ基材からなるセパレータ、或いは、セパレータ基材の片面または両面に多孔膜層および／または接着層を形成してなるセパレータを用いることができる。

なお、セパレータ基材、多孔膜層および接着層としては、特に限定されることなく、例えば特開２０１２－２０４３０３号公報や特開２０１３－１４５７６３号公報に記載のもの等、非水系二次電池の分野において使用され得る任意のセパレータ基材、多孔膜層および接着層を使用し得る。

[0022] ＜重合体＞

重合体は、後に詳細に説明する工程（Ａ）において供給される物質によって可塑化されるものであり、電極の貼り合わせ面側の表層部と、セパレータの貼り合わせ面側の表層部との少なくとも一方に存在する。

なお、表層部に存在する重合体は、１種類のみであってもよいし、２種類以上であってもよい。また、重合体が存在する表層部には、物質によって可塑化される重合体以外の重合体（以下、「その他の重合体」と称することがある。）が含まれていてもよい。

[0023] ここで、電極の貼り合わせ面側の表層部に重合体が存在する場合、当該重合体は、通常、電極基材からなる電極の場合には電極合材層内に存在し、電極基材の電極合材層上に多孔膜層および／または接着層を更に形成してなる電極の場合には電極の最表面に位置する多孔膜層または接着層内に存在する。

また、セパレータの貼り合わせ面側の表層部に重合体が存在する場合、当該重合体は、セパレータ基材上に多孔膜層および／または接着層を形成してなるセパレータの場合にはセパレータの最表面に位置する多孔膜層または接着層内に存在する。

[0024] そして、重合体としては、物質によって可塑化させることが可能であれば特に限定されることなく、例えばアクリル系重合体（（メタ）アクリル酸アルキルエステル単量体単位を主として含む重合体）；ポリビニリデンフルオライド（ＰＶｄＦ）、ポリビニリデンフルオライド－ヘキサフルオロプロピレン（ＰＶｄＦ－ＨＦＰ）共重合体等のフッ素系重合体（フッ素含有単量体単位を主として含む重合体）；スチレン－ブタジエン共重合体（ＳＢＲ）等の脂肪族共役ジエン／芳香族ビニル系共重合体（脂肪族共役ジエン単量体単位および芳香族ビニル単量体単位を主として含む重合体）およびその水素化物；ブタジエン－アクリロニトリル共重合体（ＮＢＲ）等の脂肪族共役ジエン／アクリロニトリル系共重合体およびその水素化物；並びに、ポリビニルアルコール（ＰＶＡ）等のポリビニルアルコール系重合体；などの二次電池の分野において使用し得る任意の重合体を用いることができる。

ここで、上述した単量体単位を形成し得る各種単量体としては、既知のものを使用することができる。なお、本発明において、１種または複数種の単量体単位を「主として含む」とは、「重合体に含有される全単量体単位の量

を１００質量％とした場合に、当該１種の単量体単位の含有割合または当該複数種の単量体単位の含有割合の合計が５０質量％を超える」ことを意味する。また、本発明において、「（メタ）アクリル酸」とは、アクリル酸および／またはメタクリル酸を意味する。

そして、上述した重合体は、１種を単独で用いてもよいし、２種以上を併用してもよい。

[0025] 中でも、重合体としては、ガラス転移温度が３０℃以上の重合体（以下、「高Ｔｇ重合体」と称することがある。）を含むことが好ましく、ガラス転移温度が３０℃以上の重合体と、ガラス転移温度が３０℃未満の重合体（以下、「低Ｔｇ重合体」と称することがある。）との双方を含むことがより好ましい。重合体として高Ｔｇ重合体を含んでいれば、電池部材（電極および／またはセパレータ）の表層部に存在する重合体が常温（２３℃）下において過度な接着力を発揮するのを抑制して、表層部に重合体を有する電池部材同士が保存中や運搬中にブロッキングするのを抑制することができる。また、高Ｔｇ重合体と低Ｔｇ重合体との双方を含有していれば、表層部に重合体を有する電池部材がブロッキングするのを抑制しつつ、表層部から重合体等が脱落するのを抑制することができる。

なお、電池部材の耐ブロッキング性を更に高める観点からは、高Ｔｇ重合体のガラス転移温度は、３５℃以上であることが好ましく、４０℃以上であることがより好ましい。更に、電解液中においても重合体に優れた接着性を発揮させる観点からは、高Ｔｇ重合体のガラス転移温度は、１１０℃以下であることが好ましく、９０℃以下であることがより好ましく、６０℃以下であることが更に好ましい。また、電池部材の耐ブロッキング性を確保する観点からは、低Ｔｇ重合体のガラス転移温度は、－７５℃以上であることが好ましく、－５５℃以上であることがより好ましく、－３５℃以上であることが更に好ましい。更に、電池部材から重合体等の成分が脱落するのを抑制する観点からは、低Ｔｇ重合体のガラス転移温度は、２０℃以下であることが好ましく、１５℃以下であることがより好ましい。

そして、本発明において、「ガラス転移温度」は、実施例に記載の方法を用いて測定することができる。

[0026] ここで、重合体として高Ｔｇ重合体と低Ｔｇ重合体との双方を含む場合、表層部における低Ｔｇ重合体の含有量は、高Ｔｇ重合体１００質量部当たり、１０質量部以上であることが好ましく、２５質量部以上であることがより好ましく、３０質量部以上であることが更に好ましく、７０質量部以下であることが好ましく、５０質量部以下であることがより好ましく、４０質量部以下であることが更に好ましい。低Ｔｇ重合体の含有量が上記下限値以上であれば、電池部材から重合体等の成分が脱落するのを十分に抑制することができる。また、低Ｔｇ重合体の含有量が上記上限値以下であれば、電池部材の耐ブロッキング性を十分に確保することができる。

[0027] なお、セパレータの最表面に位置して例えば特開２０１３－１４５７６３号公報に記載されているような非導電性粒子を含む多孔膜層内に高Ｔｇ重合体を含む重合体が存在する場合には、上述した高Ｔｇ重合体の含有量は、非導電性粒子１００質量部当たり、１質量部以上１００質量部以下であることが好ましく、１質量部以上２５質量部以下であることがより好ましい。高Ｔｇ重合体の含有量が上記範囲内であれば、多孔膜に所期の機能を発揮させつつ、接着力を十分に高めることができる。

また、同様の理由により、高Ｔｇ重合体の含有割合は、非導電性粒子（１００体積％）当たり、５体積％以上であることが好ましく、１０体積％以上であることがより好ましく、１００体積％以下であることが好ましく、８０体積％以下であることがより好ましい。

更に、非導電性粒子を含む多孔膜層内に高Ｔｇ重合体と低Ｔｇ重合体との双方を含む重合体が存在する場合には、上述した低Ｔｇ重合体の含有量は、非導電性粒子と高Ｔｇ重合体との合計（１００質量％）に対し、０．１質量％以上であることが好ましく、０．２質量％以上であることがより好ましく、０．５質量％以上であることが更に好ましく、２０質量％以下であることが好ましく、１５質量％以下であることがより好ましく、１０質量％以下で

あることが更に好ましい。

[0028] そして、上述した重合体は、粒子状であってもよいし、非粒子状であってもよい。また、重合体は、コアシェル構造を有する重合体などの複合重合体であってもよい。

[0029] なお、重合体が粒子状である場合、当該重合体の体積平均粒子径Ｄ５０は、０．１μｍ以上であることが好ましく、０．１２μｍ以上であることがより好ましく、０．１５μｍ以上であることが更に好ましく、１μｍ以下であることが好ましく、０．９μｍ以下であることがより好ましく、０．８μｍ以下であることが更に好ましい。重合体の体積平均粒子径Ｄ５０が上記下限値以上であれば、積層体の内部抵抗の上昇を抑制し、積層体を用いた二次電池の出力特性を向上させることができる。一方、重合体の体積平均粒子径Ｄ５０が上記上限値以下であれば、電解液中での重合体の接着性を高め、二次電池のサイクル特性を向上させることができる。

なお、重合体の体積平均粒子径Ｄ５０は、本明細書の実施例に記載の測定方法を用いて測定することができる。

[0030] そして、上述した重合体は、特に限定されることはないが、例えば、各種単量体単位を形成し得る単量体を含む単量体組成物を重合することにより、調製し得る。この際、単量体組成物中の各単量体の含有割合は、重合体中の各繰り返し単位（単量体単位）の含有割合に準じて定めることができる。また、コアシェル構造を有する重合体は、例えば、コア部の重合体の単量体と、シェル部の重合体の単量体とを用い、経時的にそれらの単量体の比率を変えて段階的に重合することにより、調製することができる。具体的には、コアシェル構造を有する重合体は、先の段階の重合体を後の段階の重合体が順次に被覆するような連続した多段階乳化重合法および多段階懸濁重合法によって調製することができる。

なお、重合様式は、特に制限なく、溶液重合法、懸濁重合法、塊状重合法、乳化重合法などのいずれの方法も用いることができる。また、重合反応としては、イオン重合、ラジカル重合、リビングラジカル重合などいずれの反

応も用いることができる。重合に際しては、シード粒子を採用してシード重合を行ってもよい。重合条件は、重合方法などに応じて適宜調整しうる。

また、重合には、乳化剤、重合開始剤、重合助剤、分散安定剤、補助安定剤などの添加剤を使用することができ、その使用量も、一般に使用される量とし得る。

[0031] ＜物質＞

物質としては、重合体を可塑化可能であれば、常温（２３℃）・常圧（１ａｔｍ）下で固体の物質を使用してもよいし、常温（２３℃）・常圧（１ａｔｍ）下で液体の物質を使用してもよい。中でも、電池部材（電極および／またはセパレータ）の貼り合わせ面に対して均一に供給し易い観点から、物質としては、常温（２３℃）・常圧（１ａｔｍ）下で液体の物質を使用することが好ましい。

なお、本発明において、「重合体を可塑化可能」とは、重合体のガラス転移温度を低減することを指す。

[0032] ここで、電池部材の表層部に存在する重合体の種類にもよるが、常温（２３℃）・常圧（１ａｔｍ）下で固体の物質としては、例えば、ベンゾフェノン、ベンジルアニリン、メトキシビフェニル、フェノキシアニリン等の芳香族化合物などを用いることができる。

また、常温（２３℃）・常圧（１ａｔｍ）下で液体の物質としては、例えば、イソプロピルアルコール等のアルコール類；プロピレンカーボネート等のカーボネート類；リモネン、シメン等のテルペン類；シクロヘキサン等の環状炭化水素；ヘプタン等の鎖状炭化水素；酢酸エチル、酢酸ブチル等のエステル化合物；アニリン、エチルベンゼン、ベンゼン、キシレン等の芳香族化合物；ジエチレングリコールモノブチルエーテル、エチレングリコールモノブチルエーテル等のエーテル化合物；アセトニトリル等のニトリル類；アセトン等のケトン類；などを用いることができる。中でも、安全性の観点からは、リモネン、シメン等のテルペン類が好ましい。

上述した物質は、１種を単独で、または、２種以上を任意の比率で混合し

て用いることができる。

[0033] また、物質は、常圧（１ａｔｍ）下における沸点が、７０℃以上であることが好ましく、１００℃以上であることがより好ましく、１２０℃以上であることが更に好ましい。物質の沸点が上記下限値以上であれば、物質の揮発により非水系二次電池用積層体のプロセス接着性が低下するのを抑制することができるので、長期に亘って非水系二次電池用積層体に優れたプロセス接着性を発揮させ得る。

[0034] 更に、物質は、上述した重合体を膨潤または溶解させ得ることが好ましい。具体的には、物質は、実施例に記載の方法を用いて物質に対する重合体の膨潤度を測定した際に、重合体の膨潤度が好ましくは１１０％以上２０００％以下、より好ましくは１５０％以上２０００％以下、更に好ましくは２００％以上２０００％以下、特に好ましくは５００％以上２０００％以下、より一層好ましくは５００％以上１０００％以下であることが好ましい。重合体の膨潤度が上記範囲内になる物質を使用すれば、重合体が適度な弾性率を保ちつつ十分に可塑化することができるので、非水系二次電池用積層体のプロセス接着性を更に高めることができる。

[0035] ＜工程（Ａ）＞

そして、工程（Ａ）では、上述した物質を電極の貼り合わせ面およびセパレータの貼り合わせ面の少なくとも一方に供給する。なお、物質が供給される貼り合わせ面は、通常、固体からなる。

[0036] ここで、物質を供給する貼り合わせ面を有する電池部材は、表層部に上述した重合体が存在しない電池部材であってもよい。互いに接合される貼り合わせ面の少なくとも一方に物質を供給しておけば、電極とセパレータとを貼り合わせた際に上述した重合体を可塑化させることができるからである。なお、非水系二次電池用積層体のプロセス接着性を高める観点からは、物質を供給する貼り合わせ面を有する電池部材は、表層部に上述した重合体が存在する電池部材であることが好ましい。

[0037] そして、貼り合わせ面への物質の供給は、物質が常温（２３℃）・常圧（

１ａｔｍ）下で固体の場合には、例えば、散布等の方法を用いて行うことができる。

[0038] また、物質が常温（２３℃）・常圧（１ａｔｍ）下で液体の場合には、貼り合わせ面への物質の供給は、例えば、バー塗工、ロール塗工、浸漬塗工、ハケ塗工等の直接塗布法；スプレー塗工、インクジェット塗工等の噴霧法；ベーパー法；などの方法を用いて行うことができる。

[0039] そして、工程（Ａ）において貼り合わせ面に供給する物質の量は、０．００５ｇ／ｍ^{2}以上であることが好ましく、０．１ｇ／ｍ^{2}以上であることがより好ましく、０．２ｇ／ｍ^{2}以上であることが更に好ましく、１ｇ／ｍ^{2}以上であることが特に好ましく、５ｇ／ｍ^{2}以下であることが好ましく、４ｇ／ｍ^{2}以下であることがより好ましく、３ｇ／ｍ^{2}以下であることが更に好ましい。物質の供給量が上記下限値以上であれば、非水系二次電池用積層体のプロセス接着性を更に高めることができる。また、物質の供給量が上記上限値以下であれば、積層体を用いた二次電池の電池特性が低下するのを抑制することができる。

[0040] また、工程（Ａ）において物質を貼り合わせ面に供給する際の温度は、物質の揮発を抑制する観点から、３０℃以下であることが好ましく、２８℃以下であることがより好ましく、２５℃以下であることが更に好ましく、通常０℃以上である。

[0041] ＜工程（Ｂ）＞

工程（Ｂ）では、少なくとも一方に物質が供給された貼り合わせ面を重ね合わせて電極とセパレータとを貼り合わせる。なお、電極とセパレータとの貼り合わせは、貼り合わせ面に供給した物質に対して乾燥などの処理を行うことなく行う。また、供給した物質の揮発を防止する観点からは、貼り合わせは、物質の供給後、３０分以内に行うことが好ましく、１０分以内に行うことがより好ましく、５分以内に行うことが更に好ましく、１分以内に行うことが特に好ましい。

[0042] ここで、貼り合わせは、特に限定されることなく、例えば、貼り合わせ面

を介して重ね合わせた電極とセパレータとの積層体を加圧および／または加熱することにより行うことができる。

[0043] そして、工程（Ｂ）において積層体を加圧する場合、積層体に加える圧力は、０．３ＭＰａ以上であることが好ましく、０．５ＭＰａ以上であることがより好ましく、１．０ＭＰａ以上であることが更に好ましく、２０ＭＰａ以下であることが好ましく、１５ＭＰａ以下であることがより好ましく、１０ＭＰａ以下であることが更に好ましい。

[0044] また、工程（Ｂ）において電極とセパレータとを貼り合わせる際の温度は、１０℃以上であることが好ましく、２０℃以上であることがより好ましく、３０℃以上であることが更に好ましく、４０℃以上であることが特に好ましく、通常６０℃以下である。温度が上記下限値以上であれば、セパレータと電極とを良好に接着させることができる。

更に、貼り合わせ時の積層体の中心部の温度は、１０℃以上であることが好ましく、２０℃以上であることがより好ましく、３０℃以上であることが更に好ましい。積層体の中心部の温度が上記下限値以上であれば、セパレータと電極とを良好に接着させることができる。

[0045] そして、工程（Ｂ）において積層体を加圧および／または加熱する時間は、５秒以上とすることが好ましく、１０秒以上とすることがより好ましく、２０秒以上とすることが更に好ましく、１２０秒以下とすることが好ましく、１００秒以下とすることがより好ましく、８０秒以下とすることが更に好ましい。積層体を加圧および／または加熱する時間が上記下限値以上であれば、セパレータと電極とを良好に接着させることができる。また、積層体を加圧および／または加熱する時間が上記上限値以下であれば、積層体の生産性を高めることができる。

[0046] ＜電極とセパレータとの接着力＞

なお、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法では、工程（Ａ）で物質を供給する前の電極とセパレータとの接着力が、０Ｎ／ｍ以上０．３Ｎ／ｍ以下であることが好ましく、０Ｎ／ｍ以上０．２Ｎ／ｍ以下であることが

より好ましく、０Ｎ／ｍ以上０．１Ｎ／ｍ以下であることが更に好ましい。物質を供給する前の電極とセパレータとの接着力が上記上限値以下であれば、セパレータや電極などの電池部材を捲き取った状態または積層した状態で保存および運搬する際に、隣接する電池部材同士が膠着、即ちブロッキングするのを抑制することができる。従って、不良の発生や生産性の低下を抑制することができる。

なお、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法では、物質の供給により重合体を可塑化させて積層体のプロセス接着性を得ているので、物質を供給する前の電極とセパレータとの接着力を高めることなく（即ち、ブロッキング発生の虞を増大させることなく）、プロセス接着性に優れる積層体を得ることができる。

[0047] ここで、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法において、少なくともセパレータの貼り合わせ面側の表層部に重合体が存在する場合、工程（Ａ）で物質を供給する前のセパレータの貼り合わせ面同士の接着力は、８Ｎ／ｍ以下であることが好ましく、６Ｎ／ｍ以下であることがより好ましく、４Ｎ／ｍ以下であることが更に好ましい。重合体を可塑化可能な物質を供給する前のセパレータの貼り合わせ面同士の接着力が８Ｎ／ｍ以下であれば、セパレータが保存中や運搬中に貼り合わせ面を介して膠着（ブロッキング）するのを抑制することができる。

[0048] また、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法では、工程（Ａ）で物質を供給した後の電極とセパレータとの接着力が、０．５Ｎ／ｍ以上であることが好ましく、０．７Ｎ／ｍ以上であることがより好ましく、１．０Ｎ／ｍ以上であることが更に好ましい。物質を供給した後の電極とセパレータとの接着力が上記下限値以上であれば、得られる積装体のプロセス接着性を十分に向上させることができる。

[0049] そして、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法では、工程（Ａ）で物質を供給した後の電極とセパレータとの接着力が、工程（Ａ）で物質を供給する前の電極とセパレータとの接着力の１．２倍以上であることが好まし

く、１．６倍以上であることがより好ましく、２．６倍以上であることが更に好ましく、１０倍以上であることが特に好ましい。物質を供給する前の電極とセパレータとの接着力に対する物質を供給した後の電極とセパレータとの接着力の比（供給後の接着力／供給前の接着力）が上記下限値以上であれば、非水系二次電池用積層体のプロセス接着性を十分に高めることができる。

[0050] （非水系二次電池の製造方法）

本発明の非水系二次電池の製造方法は、上述した本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法を用いて非水系二次電池用積層体を製造する工程と、非水系二次電池用積層体と、電解液とを用いて非水系二次電池を組み立てる工程（組み立て工程）とを含む。そして、本発明の非水系二次電池の製造方法では、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法に従って製造した、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体を使用しているので、優れた性能を発揮し得る非水系二次電池を効率的に製造することができる。

[0051] ＜組み立て工程＞

ここで、電解液としては、通常、有機溶媒に支持電解質を溶解した有機電解液が用いられる。例えば、非水系二次電池がリチウムイオン二次電池である場合には、支持電解質としては、リチウム塩が用いられる。リチウム塩としては、例えば、$LiPF_6$、$LiAsF_6$、$LiBF_4$、$LiSbF_6$、$LiAlCl_4$、$LiClO_4$、CF_3SO_3Li、$C_4F_9SO_3Li$、CF_3COOLi、$(CF_3CO)_2NLi$、$(CF_3SO_2)_2NLi$、$(C_2F_5SO_2)NLi$などが挙げられる。なかでも、溶媒に溶けやすく高い解離度を示すので、$LiPF_6$、$LiClO_4$、CF_3SO_3Liが好ましく、$LiPF_6$が特に好ましい。なお、電解質は１種類を単独で用いてもよく、２種類以上を任意の比率で組み合わせて用いてもよい。通常は、解離度の高い支持電解質を用いるほどリチウムイオン伝導度が高くなる傾向があるので、支持電解質の種類によりリチウムイオン伝導度を調節することができる。

[0052] 更に、電解液に使用する有機溶媒としては、支持電解質を溶解できるもの

であれば特に限定されないが、例えば、ジメチルカーボネート（ＤＭＣ）、エチレンカーボネート（ＥＣ）、ジエチルカーボネート（ＤＥＣ）、プロピレンカーボネート（ＰＣ）、ブチレンカーボネート（ＢＣ）、エチルメチルカーボネート（ＥＭＣ）、ビニレンカーボネート（ＶＣ）等のカーボネート類；γ－ブチロラクトン、ギ酸メチル等のエステル類；１，２－ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン等のエーテル類；スルホラン、ジメチルスルホキシド等の含硫黄化合物類；などが好適に用いられる。また、これらの溶媒の混合液を用いてもよい。中でも、誘電率が高く、安定な電位領域が広いのでカーボネート類を用いることが好ましい。通常、用いる溶媒の粘度が低いほどリチウムイオン伝導度が高くなる傾向があるので、溶媒の種類によりリチウムイオン伝導度を調節することができる。

なお、電解液中の電解質の濃度は適宜調整することができる。また、電解液には、既知の添加剤を添加してもよい。

[0053] そして、非水系二次電池は、本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法に従って製造した非水系二次電池用積層体に対し、必要に応じて追加の電池部材（電極および／またはセパレータなど）を更に積層した後、得られた積層体を必要に応じて電池形状に応じて巻く、折るなどして電池容器に入れ、電池容器に電解液を注入して封口することにより組み立てることができる。なお、非水系二次電池の内部の圧力上昇、過充放電等の発生を防止するために、必要に応じて、ヒューズ、ＰＴＣ素子等の過電流防止素子、エキスパンドメタル、リード板などを設けてもよい。また、二次電池の形状は、例えば、コイン型、ボタン型、シート型、円筒型、角形、扁平型など、何れであってもよい。

[0054] ここで、得られる非水系二次電池に優れた電池特性を発揮させる観点からは、電解液中における電極とセパレータとの接着力は、０．５Ｎ／ｍ以上であることが好ましく、０．８Ｎ／ｍ以上であることがより好ましく、１．０Ｎ／ｍ以上であることが更に好ましい。

実施例

[0055] 以下、本発明について実施例に基づき具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。なお、以下の説明において、量を表す「％」及び「部」は、特に断らない限り、質量基準である。

実施例および比較例において、重合体のガラス転移温度、体積平均粒子径Ｄ５０および物質に対する膨潤度、セパレータの貼り合わせ面同士の接着力、電極とセパレータとのドライ接着力、電極とセパレータとの電解液中接着力、積層体のプロセス接着性、並びに、二次電池のサイクル特性は、下記の方法で測定および評価した。

[0056] ＜ガラス転移温度＞

重合体を含む分散液を湿度５０％、温度２３～２５℃の環境下で３日間乾燥させて、厚み１±０．３ｍｍのフィルムを得た。このフィルムを、１２０℃の熱風オーブンで１時間乾燥させた。その後、乾燥させたフィルムをサンプルとして、ＪＩＳ Ｋ７１２１に準拠し、測定温度－１００℃～１８０℃、昇温速度５℃／分にて、示差走査熱量分析計（ナノテクノロジー社製、ＤＳＣ６２２０ＳＩＩ）を用いて重合体のガラス転移温度を測定した。なお、重合体がコアシェル構造を有する場合には、コア部を構成する重合体のガラス転移温度を測定した。

＜体積平均粒子径Ｄ５０＞

分散液中の重合体について、レーザー回折・光散乱方式粒度分布測定装置（ＬＳ２３０、ベックマンコールター社製）を用いて、体積平均粒子径Ｄ５０を測定した。

＜物質に対する膨潤度＞

測定対象の重合体を１００℃、２０ｋｇ／ｃｍ^{2}の条件で５分間熱プレスして、厚み０．５ｍｍのフィルムを作製した。なお、製造した重合体が液中に分散または溶解している場合は、ポリテトラフルオロエチレン製のシャーレに入れ、温度６０℃で１２時間乾燥した後、シャーレから取り出し、乾燥した重合体を同様の条件でプレスし、０．５ｍのフィルムを作製した。

そして、得られたフィルムを１ｃｍ角に裁断し、試験片を得た。この試験

片の重量を測定し、Ｗ０とした。また、試験片を物質に温度２３℃で２時間接触させた。その後、試験片を取り出し、試験片の表面の物質を拭き取り、接触後の試験片の重量Ｗ１を測定した。そして、これらの重量Ｗ０およびＷ１を用いて、膨潤度Ｓ（％）を、Ｓ＝（Ｗ１／Ｗ０）×１００％にて計算した。

＜セパレータの貼り合わせ面同士の接着力(耐ブロッキング性)＞

セパレータを幅４ｃｍ×長さ４ｃｍに２枚切り出した。そして、セパレータの表層部に重合体が有する面（貼り合わせ面）同士を重ね合わせ、温度４０℃、圧力８ＭＰａにて２分間プレスした後、重ね合わせられたセパレータ同士を鉛直上方に引張り速度５０ｍｍ／分で引っ張って剥がしたときの応力(セパレータの貼り合わせ面同士の接着力)を測定した。

＜ドライ接着力＞

物質の供給前と供給後との双方について、負極とセパレータとを、積層体の作製時と同じ条件でプレスして貼り合わせ、幅１ｃｍ×長さ５ｃｍに裁断して試験片とした。この試験片に対して、セパレータの表面にセロハンテープを貼り付けた。この際、セロハンテープとしてはＪＩＳ Ｚ１５２２に規定されるものを用いた。また、セロハンテープは水平な試験台に固定しておいた。そして、負極の一端を鉛直上方に引張り速度５０ｍｍ／分で引っ張って剥がしたときの応力を測定した。この測定を３回行い、応力の平均値をドライ接着力として求めた。

＜電解液中接着力＞

積層体の作製時と同じ条件で負極とセパレータとを貼り合わせ、それぞれ１０ｍｍ幅に切り出して、試験片を得た。この試験片を電解液（溶媒：エチレンカーボネート／ジエチルカーボネート／ビニレンカーボネート＝６８．５／３０／１．５（体積比）、電解質：濃度１ＭのＬｉＰＦ$_6$）中に温度６０℃で３日間浸漬した。その後、試験片を取り出し、表面に付着した電解液を拭き取り、当該試験片を、負極の表面を下にして、負極の表面にセロハンテープを貼り付けた。この際、セロハンテープは水平な試験台に固定しておい

た。また、セロハンテープとしては、ＪＩＳ Ｚ１５２２に規定されるものを用いた。その後、セパレータの一端を鉛直上方に引張り速度５０ｍｍ／分で引っ張って剥がしたときの応力を測定した。この測定を３回行い、応力の平均値を求めた。そして、得られた平均値を電解液中のピール強度として、以下の基準に従って評価した。ピール強度が大きいほど、電解液中における接着性に優れていることを示す。

Ａ：ピール強度が０．８Ｎ／ｍ以上

Ｂ：ピール強度が０．６Ｎ／ｍ以上０．８Ｎ／ｍ未満

Ｃ：ピール強度が０．４Ｎ／ｍ以上０．６Ｎ／ｍ未満

Ｄ：ピール強度が０．２Ｎ／ｍ以上０．４Ｎ／ｍ未満

Ｅ：ピール強度が０．２Ｎ／ｍ未満

＜プロセス接着性＞

得られた積層体について、卓上型振動試験機（アズワン製、ＣＶ－１０１Ｍ）を用いて振動試験を実施した。具体的には、周波数１０Ｈｚ、振動時間１分、振幅０．５ｍｍの条件にて振動試験をした後、積層体のずれを測定し、以下の基準に従って評価した。ずれの大きさが小さいほど、プロセス接着性に優れていることを示す。

Ａ：振動試験後のずれが０．３ｍｍ未満

Ｂ：振動試験後のずれが０．３ｍｍ以上０．５ｍｍ未満

Ｃ：振動試験後のずれが０．５ｍｍ以上０．７ｍｍ未満

Ｄ：振動試験後のずれ精度が０．７ｍｍ以上１ｍｍ未満

Ｅ：振動試験後のずれ精度が１ｍｍ以上

＜サイクル特性＞

作製したリチウムイオン二次電池を、電解液注液後、温度２５℃で５時間静置した。次に、温度２５℃、０．２Ｃの定電流法にて、セル電圧３．６５Ｖまで充電し、その後、温度６０℃で１２時間エージング処理を行った。そして、温度２５℃、０．２Ｃの定電流法にて、セル電圧３．００Ｖまで放電した。その後、０．２Ｃの定電流法にて、ＣＣ－ＣＶ（定電流－定電圧）充

電（上限セル電圧４．２０Ｖ）を行い、０．２Ｃの定電流法にて３．００ＶまでＣＣ放電し、その初期放電容量Ｘ１を測定した。その後、温度４５℃の環境下、セル電圧４．２０－３．００Ｖ、１．０Ｃの充放電レートにて充放電の操作を５０サイクル行った。引き続き、０℃の環境下、セル電圧４．２０－３．００Ｖ、０．５Ｃの充放電レートにて充放電の操作を５０サイクル行った。さらにその後、温度２５℃、０．２Ｃの定電流法にて、ＣＣ－ＣＶ充電（セル電圧４．２０Ｖ）して、０．２Ｃの定電流法にてセル電圧３．００Ｖまで放電し、その放電容量Ｘ２を測定した。初期放電容量Ｘ１および放電容量Ｘ２を用いて、ΔＣ’＝（Ｘ２／Ｘ１）×１００（％）で示される容量維持率を求め、以下の基準に従って評価した。容量維持率ΔＣが大きいほど、サイクル特性に優れていることを示す。

Ａ：容量維持率ΔＣが８５％以上

Ｂ：容量維持率ΔＣが８０％以上８５％未満

Ｃ：容量維持率ΔＣが７５％以上８０％未満

Ｄ：容量維持率ΔＣが７０％以上７５％未満

Ｅ：容量維持率ΔＣが７０％未満

[0057]（実施例１）

＜低Ｔｇ重合体の調製＞

撹拌機を備えた反応器に、イオン交換水７０部、乳化剤としてのポリオキシエチレンラウリルエーテル（花王ケミカル社製、「エマルゲン（登録商標）１２０」）０．１５部、および、過流酸アンモニウム０．５部を、それぞれ供給し、気相部を窒素ガスで置換し、６０℃に昇温した。

一方、別の容器でイオン交換水５０部、乳化剤としてのポリオキシエチレンラウリルエーテル（花王ケミカル社製、「エマルゲン（登録商標）１２０」）０．５部、そして、２－エチルヘキシルアクリレート（２－ＥＨＡ）７０部、スチレン（ＳＴ）２５部、アリルグリシジルエーテル（ＡＧＥ）１．７部、アリルメタクリレート０．３部、および、アクリル酸（ＡＡ）３部を混合して単量体組成物を得た。この単量体組成物を４時間かけて前記反応器

Ａに連続的に添加して重合を行った。添加中は、７０℃で反応を行った。添加終了後、さらに８０℃で３時間撹拌して反応を終了し、粒子状重合体Ａを含む水分散液を製造した。

得られた粒子状重合体Ａのガラス転移温度Ｔｇを測定したところ、観測されるガラス転移温度Ｔｇは一点のみ（－２０℃）であり、粒子状重合体がランダム共重合体であることを確認した。また、得られた粒子状重合体Ａの体積平均粒子径Ｄ５０は２００ｎｍであった。

＜高Ｔｇ重合体の調製＞

攪拌機を備えた反応器に、イオン交換水１００部および過硫酸アンモニウム０．３部供給し、気相部を窒素ガスで置換し、８０℃に昇温した。

一方、別の容器で、イオン交換水４０部、ドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム０．２部、スチレン５３．８部、２－エチルヘキシルアクリレート３３部、アクリロニトリル１０部、エチレングリコールジメタクリレート０．２部、および、メタクリル酸３部を混合して、単量体混合物を得た。この単量体混合物を４時間かけて前記反応器に連続的に添加して、重合を行った。単量体混合物の添加中は、８０℃で反応を行った。単量体混合物の添加の終了後、さらに８０℃で２時間攪拌してから反応を終了し、粒子状の高Ｔｇ重合体の水分散液を得た。

得られた重合体について、ガラス転移温度、体積平均粒子径Ｄ５０および物質に対する膨潤度を測定した。結果を表１に示す。

＜多孔膜層用スラリー組成物の調製＞

非導電性粒子としてのアルミナ（住友化学社製、製品名「ＡＫＰ３０００」、体積平均粒子径Ｄ５０：０．５μｍ）８６部と、上述の操作で得られた高Ｔｇ重合体の水分散液を固形分相当で１４部（アルミナ：高Ｔｇ重合体（体積比）＝６０：４０）とを混合した。更に、低Ｔｇ重合体の水分散液を固形分相当で５部と、増粘剤としてのポリアクリルアミド１．５部と、分散剤としてのポリアクリル酸０．８部とを添加し、固形分濃度が１５％となるようにイオン交換水を加え、ボールミルを用いて混合することにより、多孔膜

層用スラリー組成物を調製した。

＜セパレータの製造＞

ポリプロピレン（ＰＰ）製のセパレータ基材（製品名「セルガード２５００」）上に、上記多孔膜層用スラリー組成物を塗布し、５０℃で３分間乾燥させた。この操作をセパレータ基材の両面に対して行ない、厚み５μｍの多孔膜層を両面に備えるセパレータを得た。

そして、セパレータの耐ブロッキング性を評価した。結果を表１に示す。

＜負極の製造＞

攪拌機付き５ＭＰａ耐圧容器に、１，３－ブタジエン３３部、イタコン酸３．５部、スチレン６３．５部、乳化剤としてドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム０．４部、イオン交換水１５０部および重合開始剤としての過硫酸カリウム０．５部を入れ、十分に攪拌した後、５０℃に加温して重合を開始した。重合転化率が９６％になった時点で冷却して反応を停止し、負極合材層用結着材（ＳＢＲ）を含む混合物を得た。上記負極合材層用結着材を含む混合物に、５％水酸化ナトリウム水溶液を添加して、ｐＨ８に調整後、加熱減圧蒸留によって未反応単量体の除去を行った。その後、３０℃以下まで冷却し、所望の負極合材層用結着材を含む水分散液を得た。

次に、負極活物質としての人造黒鉛（体積平均粒子径：１５．６μｍ）１００部、粘度調整剤としてのカルボキシメチルセルロースナトリウム塩（日本製紙社製、製品名「ＭＡＣ３５０ＨＣ」）の２％水溶液を固形分相当で１部、およびイオン交換水を混合して固形分濃度６８％に調整した後、２５℃で６０分間さらに混合した。更に、イオン交換水で固形分濃度を６２％に調整した後、２５℃で１５分間更に混合した。得られた混合液に、上記の負極合材層用結着材を含む水分散液を固形分相当で１．５部、およびイオン交換水を入れ、最終固形分濃度が５２％となるように調整し、さらに１０分間混合した。これを減圧下で脱泡処理して流動性の良い二次電池負極用スラリー組成物を得た。

得られた二次電池負極用スラリー組成物を、コンマコーターで、集電体と

しての厚さ２０μｍの銅箔の上に、乾燥後の膜厚が１５０μｍ程度になるように塗布し、乾燥させた。この乾燥は、銅箔を０．５ｍ／分の速度で６０℃のオーブン内を２分間かけて搬送することにより行った。その後、１２０℃にて２分間加熱処理して、プレス前の負極原反を得た。得られたプレス前の負極原反をロールプレスで圧延して、負極合材層の厚みが８０μｍのプレス後の負極を得た。

そして、ドライ接着力および電解液中接着力を評価した。結果を表１に示す。

＜正極の製造＞

正極活物質としての体積平均粒子径１２μｍのＬｉＣｏＯ$_2$を１００部と、導電材としてのアセチレンブラック（電気化学工業社製、製品名「ＨＳ－１００」）を２部と、正極合材層用結着材としてのポリフッ化ビニリデン（クレハ社製、製品名「＃７２０８」）を固形分相当で２部と、溶媒としてのＮ－メチルピロリドンとを混合して全固形分濃度を７０％とした。これらをプラネタリーミキサーにより混合し、二次電池正極用スラリー組成物を得た。

得られた二次電池正極用スラリー組成物を、コンマコーターで、集電体である厚さ２０μｍのアルミ箔の上に、乾燥後の膜厚が１５０μｍ程度になるように塗布し、乾燥させた。この乾燥は、アルミ箔を０．５ｍ／分の速度で６０℃のオーブン内を２分間かけて搬送することにより行った。その後、１２０℃にて２分間加熱処理して、プレス前の正極原反を得た。このプレス前の正極原反をロールプレス機で圧延することにより、正極合材層を備えるプレス後の正極を得た。

＜積層体の製造＞

上記で得られたプレス後の正極を４ｃｍ×４ｃｍの正方形に切り出した。また、上記で得られたセパレータを５ｃｍ×５ｃｍに切り出した。更に、上記の通り作製したプレス後の負極を４．２ｃｍ×４．２ｃｍに切り出した。

次に、市販の霧吹きを用いて、セパレータの両面に対して、物質としてのリモネン（融点：－７４℃、沸点：１７６℃）を吹き付け量が２ｇ／ｍ^{2}にな

るように吹き付けた。

そして、負極、セパレータ、正極の順番に重ね合わせ、積層体とした。次いで、得られた積層体を温度５０℃、圧力１ＭＰａの条件で５０秒間プレスし、接着させた。また、積層体中心部に熱電対を設置したモデルサンプルを用いて、プレス中の積層体中心部の温度を測定した。

得られた積層体について、プロセス接着性を評価した。結果を表１に示す。

＜二次電池の製造＞

得られた積層体を電池の外装としてのアルミ包材外装で包み、電解液（溶媒：エチレンカーボネート（ＥＣ）／ジエチルカーボネート（ＤＥＣ）／ビニレンカーボネート（ＶＣ）（体積比）＝６８．５／３０／１．５、電解質：濃度１ＭのＬｉＰＦ$_6$）を空気が残らないように注入した。そして、温度１５０℃でアルミ包材外装の開口をヒートシールし、８００ｍＡｈのラミネート型リチウムイオン二次電池を製造した。

そして、製造したリチウムイオン二次電池について、サイクル特性を評価した。結果を表１に示す。

[0058] （実施例２）

積層体およびリチウムイオン二次電池を以下のようにして製造した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

＜積層体の製造＞

まず、１２０ｃｍ×５．５ｃｍの長方形に切り出したセパレータの両面に対して、市販の霧吹きを用いて、物質としてのリモネンを吹き付け量が２ｇ／ｍ^{2}になるように吹き付けた。

次に、プレス後の正極を４９ｃｍ×５ｃｍの長方形に切り出して正極合材層側の表面が上側になるように置き、その正極合材層上に物質を吹き付けたセパレータ（寸法：１２０ｃｍ×５．５ｃｍ）を、正極がセパレータの長手

方向左側に位置するように配置した。更に、プレス後の負極を５０×５．２ｃｍの長方形に切り出し、セパレータ上に、負極合材層側の表面がセパレータに向かい合うように、かつ、負極がセパレータの長手方向右側に位置するように配置した。

次いで、得られた積層体を温度５０℃、圧力１ＭＰａの条件で８０秒間プレスし、接着させた。また、積層体中心部に熱電対を設置したモデルサンプルを用いて、プレス中の積層体中心部の温度を測定した。

＜二次電池の製造＞

得られた積層体を捲回機により捲回し、捲回体を得た。得られた捲回体を電池の外装としてのアルミ包材外装で包み、電解液（溶媒：エチレンカーボネート（ＥＣ）／ジエチルカーボネート（ＤＥＣ）／ビニレンカーボネート（ＶＣ）（体積比）＝６８．５／３０／１．５、電解質：濃度１ＭのＬｉＰＦ$_6$）を空気が残らないように注入した。そして、温度１５０℃でアルミ包材外装の開口をヒートシールし、容量８００ｍＡｈの捲回型リチウムイオン二次電池を製造した。

[0059]（実施例３）

積層体の製造時に、リモネンに替えてシメン（融点：－６８℃、沸点：１７７℃）を用いた以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0060]（実施例４）

積層体の製造時に、リモネンに替えてジエチレングリコールモノブチルエーテル（融点：－６８℃、沸点：２３４℃）を使用し、市販の霧吹きに替えて富士フィルム社製のマテリアルプリンター(ＤＭＰ－２８５０)を用いて塗布した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0061]（実施例５）

積層体の製造時に、リモネンに替えて酢酸ブチル（融点：－７８℃、沸点：１２６℃）を用いた以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0062]（実施例６）

積層体の製造時に、リモネンに替えてキシレン（融点：－２５℃、沸点：１４４℃）を用いた以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0063]（実施例７）

積層体の製造時に、リモネンに替えてヘプタン（融点：－９１℃、沸点：９８℃）を用いた以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0064]（実施例８）

積層体の製造時に、リモネンに替えてシクロヘキサン（融点：７℃、沸点：８１℃）を用いた以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0065]（実施例９）

積層体の製造時に、シクロヘキサンに替えて冷却下の乳鉢中で粉砕したベンゾフェノン（融点：４８℃、沸点：３０５℃）をセパレータの両面に対して散布した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多

孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0066] （実施例１０）

積層体の製造時に、霧吹きを用いたリモネンの吹き付けに替えて、セパレータとリモネンとを直接接触しないようにガラス製の密閉容器に入れ、１時間放置した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

なお、放置前後でセパレータの重さを測定したところ、セパレータの単位面積当たりの重さは０．００５ｇ／ｍ^{2}増加していた。

[0067] （実施例１１）

積層体の製造時にリモネンの吹き付け量を５ｇ／ｍ^{2}に変更した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0068] （実施例１２）

高Ｔｇ重合体の調製時に、スチレンの量を７５．８部に変更し、２－エチルヘキシルアクリレートの量を１１部に変更した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0069] （実施例１３）

以下のようにして調製した高Ｔｇ重合体を使用した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

＜高Ｔｇ重合体の調製＞

高Ｔｇ重合体としてコアシェル構造を有する粒子状重合体を調製した。具

体的には、まず、コア部の形成にあたり、攪拌機付き５ＭＰａ耐圧容器に、メタクリル酸メチル単量体４２部、アクリル酸ブチル２４．５部、メタクリル酸２．８部、エチレングリコールジメタクリレート０．７部、乳化剤としてのドデシルベンゼンスルホン酸ナトリウム１部、イオン交換水１５０部、及び、重合開始剤としての過硫酸カリウム０．５部を入れ、十分に攪拌した後、６０℃に加温して重合を開始した。重合転化率が９６％になった時点で、シェル部を形成するために、スチレン２９．７部およびメタクリル酸０．３部を連続添加し、７０℃に加温して重合を継続し、転化率が９６％になった時点で、冷却し反応を停止して、コアシェル構造を有する粒子状重合体を含む水分散液を得た。

[0070] （実施例１４）

積層体の製造時に、リモネンに替えてプロピレンカーボネート（融点：－５５℃、沸点：２４２℃）を使用した以外は実施例１３と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0071] （実施例１５）

高Ｔｇ重合体の調製時に、スチレンの量を６４．０部に変更し、アクリロニトリルおよびエチレングリコールジメタクリレートを使用しなかった以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0072] （実施例１６）

高Ｔｇ重合体の調製時に、２－エチルヘキシルアクリレートの量を２３部に変更し、アクリロニトリルの量を２０部に変更した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0073] （実施例１７）

多孔膜層用スラリー組成物の調製時に、アルミナの量を９０部に変更し、高Ｔｇ重合体の水分散液１４部（固形分相当）に替えて、ポリビニリデンフルオライド－ヘキサフルオロプロピレン（ＰＶｄＦ－ＨＦＰ）共重合体（ＳＩＧＭＡ－ＡＬＤＲＩＣＨ社製）を１０部使用した（アルミナ：ＰＶｄＦ－ＨＦＰ（体積比）＝８０：２０）以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0074] （実施例１８）

積層体の製造時に、リモネンに替えてプロピレンカーボネート（融点：－５５℃、沸点：２４２℃）を使用した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0075] （実施例１９）

積層体の製造時に、リモネンを吹き付ける場所を、セパレータの両面から正極の正極合材層の表面および負極の負極合材層の表面に変更した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0076] （実施例２０～２１）

積層体の製造時に、プレス温度をそれぞれ３０℃（実施例２０）および２０℃（実施例２１）に変更した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0077] （比較例１）

積層体の製造時にセパレータの両面に対してリモネンを吹き付けなかった以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0078] （比較例２）

積層体の製造時に、リモネンに替えて水（融点：０℃、沸点：１００℃）を使用した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0079] （比較例３）

積層体の製造時に、リモネンに替えてエタノール（融点：－１１４℃、沸点：７８℃）を使用した以外は実施例１と同様にして、低Ｔｇ重合体、高Ｔｇ重合体、多孔膜層用スラリー組成物、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

[0080] （比較例４）

以下のようにして製造した多孔膜層用スラリー組成物、セパレータおよび積層体を使用した以外は実施例１と同様にして、セパレータ、負極、正極、積層体および二次電池を作製した。そして、実施例１と同様にして評価した。結果を表１に示す。

＜多孔膜層用スラリー組成物の調製＞

非導電性粒子としてのアルミナ（住友化学社製、製品名「ＡＫＰ３０００」、体積平均粒子径Ｄ５０：０．５μｍ）９０部と、ポリビニリデンフルオライド－ヘキサフルオロプロピレン（ＰＶｄＦ－ＨＦＰ）共重合体（ＳＩＧＭＡ－ＡＬＤＲＩＣＨ社製）１０部とを混合した。更に、低Ｔｇ重合体の水分散液を固形分相当で５部と、増粘剤としてのポリアクリルアミド１．５部と、分散剤としてのポリアクリル酸０．８部とを添加し、固形分濃度が１５％となるようにイオン交換水を加え、ボールミルを用いて混合することによ

り、多孔膜層用スラリー組成物を調製した。

＜セパレータの製造＞

上記多孔膜層用スラリー組成物を、ポリプロピレン製のセパレータ基材（製品名「セルガード２５００」）上にバーコーターを用いて塗工量が６ｇ／ｍ^{2}となるように塗工した。その後、溶液を塗工したセパレータを温度２５℃、湿度６０％に調整した恒温恒湿空間に１５秒以上放置し、吸湿させた（放置前後の重量変化：０．０１ｇ／ｍ^2）。

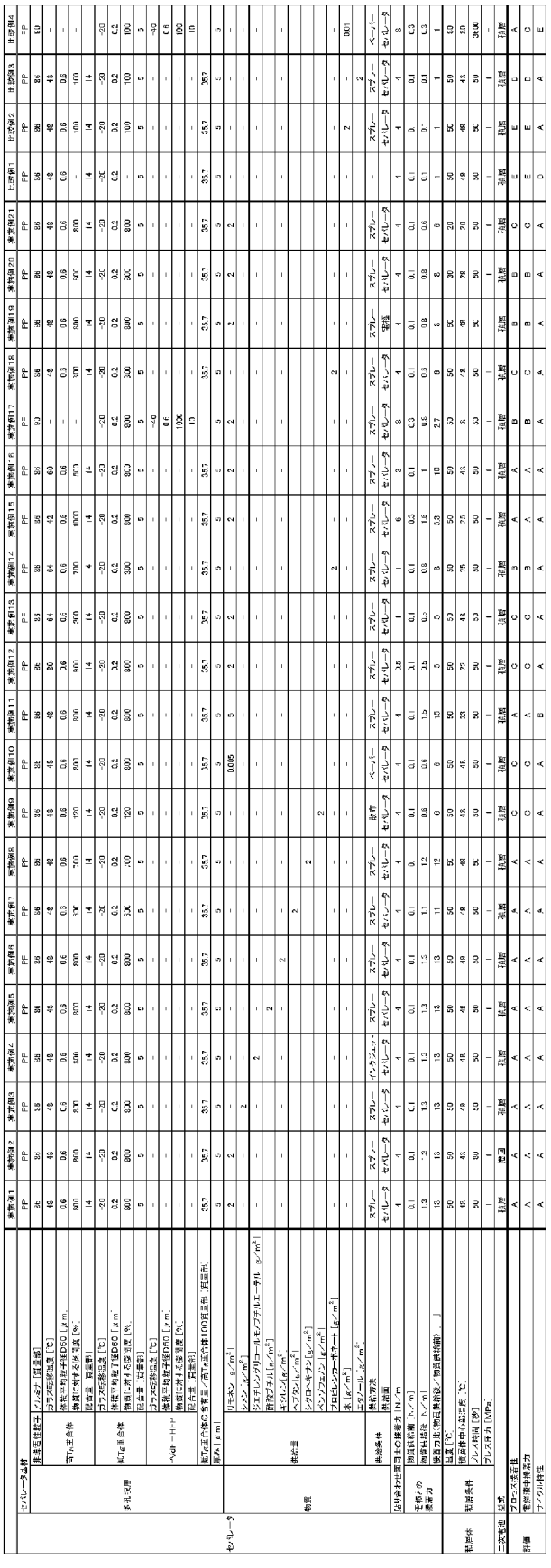
＜積層体の製造＞

プレス後の正極を４ｃｍ×４ｃｍの正方形に切り出した。また、上記で得られたセパレータを５ｃｍ×５ｃｍに切り出した。更に、プレス後の負極を４．２ｃｍ×４．２ｃｍに切り出した。

そして、負極、セパレータ、正極、セパレータの順番に重ね合わせ、積層体とした。次いで、得られた積層体を８０℃の温風乾燥機に１時間入れて、正極および負極と、セパレータとを貼り合わせた。

[0081]

[表1]



[0082] 表１より、重合体を可塑化可能な物質を使用した実施例１～２１では、重合体を可塑化可能な物質を使用しなかった比較例１～３と比較し、プロセス接着性に優れる積層体が得られることが分かる。また、実施例１～２１では、重合体を可塑化可能な物質を使用せずに長い時間をかけて貼り合わせを行った比較例４と比較し、プロセス接着性に優れる積層体を短い時間で効率的に得られることが分かる。

産業上の利用可能性

[0083] 本発明の非水系二次電池用積層体の製造方法によれば、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体を効率的に得ることができる。

また、本発明の非水系二次電池の製造方法によれば、プロセス接着性に優れる非水系二次電池用積層体を使用し、優れた性能を発揮し得る非水系二次電池が効率的に得られる。

請求の範囲

[請求項1] 電極と、セパレータとを貼り合わせてなる非水系二次電池用積層体の製造方法であって、

前記電極および前記セパレータの少なくとも一方は、貼り合わせ面側の表層部に重合体を有し、

前記電極の貼り合わせ面および前記セパレータの貼り合わせ面の少なくとも一方に前記重合体を可塑化可能な物質を供給する工程（Ａ）と、

前記工程（Ａ）の後、前記電極と前記セパレータとを貼り合わせる工程（Ｂ）と、

を含む、非水系二次電池用積層体の製造方法。

[請求項2] 前記重合体の前記物質に対する膨潤度が、１１０％以上２０００％以下である、請求項１に記載の非水系二次電池用積層体の製造方法。

[請求項3] 前記工程（Ａ）において、前記物質を０．００５ｇ／ｍ^{2}以上５ｇ／ｍ^{2}以下の供給量で供給する、請求項１または２に記載の非水系二次電池用積層体の製造方法。

[請求項4] 前記セパレータは、貼り合わせ面側の表層部に重合体を有し、前記工程（Ａ）で前記物質を供給する前の前記貼り合わせ面同士の接着力が８Ｎ／ｍ以下である、請求項１～３の何れかに記載の非水系二次電池用積層体の製造方法。

[請求項5] 前記工程（Ａ）で前記物質を供給した後の前記電極と前記セパレータとの接着力が、前記工程（Ａ）で前記物質を供給する前の前記電極と前記セパレータとの接着力の１．２倍以上である、請求項１～４の何れかに記載の非水系二次電池用積層体の製造方法。

[請求項6] 請求項１～５の何れかに記載の非水系二次電池用積層体の製造方法を用いて非水系二次電池用積層体を製造する工程と、

前記非水系二次電池用積層体と、電解液とを用いて非水系二次電池を組み立てる工程と、

を含む、非水系二次電池の製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/011885

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. H01M4/139(2010.01)i, H01M2/16(2006.01)i, H01M10/0566(2010.01)i, H01M10/058(2010.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl. H01M4/139, H01M2/16, H01M10/0566, H01M10/058

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2017/073022 A1 (ZEON CORPORATION) 04 May 2017, entire text & US 2018/0287189 A1 & EP 3370277 A1 & CN 108140785 A & KR 10-2018-0068968 A	1-6
A	JP 2017-50215 A (NISSAN MOTOR CO., LTD.) 09 March 2017, entire text (Family: none)	1-6
A	JP 2015-162337 A (HITACHI MAXELL LTD.) 07 September 2015, entire text (Family: none)	1-6

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 08.05.2019	Date of mailing of the international search report 21.05.2019
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/011885

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2014/081035 A1 (ZEON CORPORATION) 30 May 2014, entire text & US 2015/0311490 A1 & EP 2924781 A1 & CN 104769753 A & KR 10-2015-0089000 A	1-6

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１９／０１１８８５

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01M4/139(2010.01)i, H01M2/16(2006.01)i, H01M10/0566(2010.01)i, H01M10/058(2010.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　H01M4/139, H01M2/16, H01M10/0566, H01M10/058

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１９年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	WO 2017/073022 A1（日本ゼオン株式会社）2017.05.04, 全文 & US 2018/0287189 A1 & EP 3370277 A1 & CN 108140785 A & KR 10-2018-0068968 A	1-6
A	JP 2017-50215 A（日産自動車株式会社）2017.03.09, 全文（ファミリーなし）	1-6
A	JP 2015-162337 A（日立マクセル株式会社）2015.09.07, 全文（ファミリーなし）	1-6

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。　　☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
０８．０５．２０１９	２１．０５．２０１９

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｘ　３１３２
結城　佐織
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４７７

C（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	WO 2014/081035 A1（日本ゼオン株式会社）2014.05.30, 全文 & US 2015/0311490 A1 & EP 2924781 A1 & CN 104769753 A & KR 10-2015-0089000 A	1-6