

(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
2015年3月12日(12.03.2015)



(10) 国際公開番号
WO 2015/033958 A1

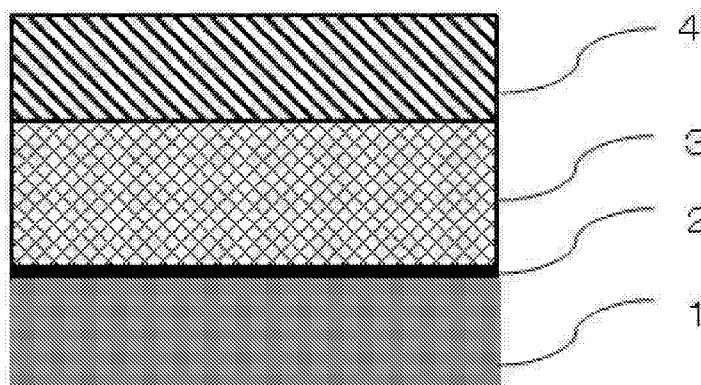
- (51) 国際特許分類:
H01M 2/02 (2006.01) C08L 23/16 (2006.01)
B32B 15/085 (2006.01) C08L 23/20 (2006.01)
C08L 23/14 (2006.01) C09K 3/10 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2014/073189
- (22) 国際出願日: 2014年9月3日(03.09.2014)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2013-181741 2013年9月3日(03.09.2013) JP
特願 2013-184172 2013年9月5日(05.09.2013) JP
- (71) 出願人: 大日本印刷株式会社(DAI NIPPON PRINTING CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 山下 力也(YAMASHITA, Rikiya); 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP). 道家 弘毅(DOUKE, Hiroki); 〒1628001 東京都新宿区市谷加賀町一丁目1番1号 大日本印刷株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 山田 威一郎, 外(YAMADA, Iichiro et al.); 〒5300005 大阪府大阪市北区中之島6-2-4 O 中之島インテス2 1階 Osaka (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, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, 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).

[続葉有]

(54) Title: RESIN COMPOSITION FOR SEALANT LAYER OF BATTERY PACKAGING MATERIAL

(54) 発明の名称: 電池用包装材料のシーラント層用の樹脂組成物

[図1]



(57) Abstract: [Problem] The first invention provided by the present invention is a resin composition that is capable of imparting high insulating properties, sealing properties, and moldability to a battery packaging material. The second invention provided by the present invention is a resin composition that minimizes the occurrence of cracks when said resin composition is used in the sealant layer of a battery packaging material and a heat seal section of the battery packaging material is bent, and that is capable of imparting high insulating properties to the battery packaging material. [Solution] The first invention is a resin composition for use in the sealant layer of a battery packaging material that contains: at least one of a propylene-ethylene random copolymer (A-1) that has a melting point of 156 °C or more and an ethylene content of 5 mass% or less and a propylene-ethylene block copolymer (A-2) that has a melting point of 158 °C or more and an ethylene content of 7 mass% or less; and a polyolefin elastomer (B) that has a melting point of 135 °C or more. The second invention is a resin composition for the sealing layer of a battery packaging material that contains a polyolefin resin having an isotactic fraction (mm) of 99% or less.

(57) 要約:

[続葉有]



WO 2015/033958 A1



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

【課題】本発明の第 1 発明は、電池用包装材料に高い絶縁性、密封性、及び成形性を付与し得る樹脂組成物を提供する。本発明の第 2 発明は、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料のヒートシール部を屈曲した際のクラックの発生を抑制し、電池用包装材料に高い絶縁性を付与し得る樹脂組成物を提供する。【解決手段】第 1 発明は、(A-1) 融点が 156°C 以上でエチレン含有量が 5 質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び (A-2) 融点が 158°C 以上でエチレン含有量が 7 質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体の少なくとも一方と、(B) 融点が 135°C 以上のポリオレフィン系エラストマーと、を含む、電池用包装材料のシーラント層用の樹脂組成物である。第 2 発明は、アイソタクチック分率 (mm) が 99% 以下であるポリオレフィン系樹脂を含む、電池用包装材料のシーラント層用の樹脂組成物である。

明 細 書

発明の名称：電池用包装材料のシーラント層用の樹脂組成物

技術分野

[0001] 本発明の第1発明は、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料に高い絶縁性、密封性、及び成形性を付与し得る樹脂組成物に関する。本発明の第2発明は、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料に高い絶縁性を付与し得る樹脂組成物に関する。

背景技術

[0002] 従来、様々なタイプの電池が開発されているが、あらゆる電池において、電極や電解質等の電池素子を封止するために包装材料が不可欠な部材になっている。従来、電池用包装として金属製の包装材料が多用されていたが、近年、電気自動車、ハイブリッド電気自動車、パソコン、カメラ、携帯電話等の高性能化に伴い、電池には、多様な形状が要求されると共に、薄型化や軽量化が求められている。しかしながら、従来多用されていた金属製の電池用包装材料では、形状の多様化に追従することが困難であり、しかも軽量化にも限界があるという欠点がある。

[0003] そこで、近年、多様な形状に加工が容易で、薄型化や軽量化を実現し得る電池用包装材料として、基材層／接着層／金属層／シーラント層が順次積層されたフィルム状の積層体が提案されている（例えば、特許文献1参照）。このようなフィルム状の電池用包装材料では、シーラント層同士を対向させて周縁部をヒートシールにて熱溶着させることにより電池素子を封止できるように形成されている。

[0004] 例えば、特許文献1には、外側層としての2軸延伸ポリアミドフィルム層と、内側層としての熱可塑性樹脂未延伸フィルム層と、これら両フィルム層間に配設されたアルミニウム箔層とを含む電池ケース用包材が開示されている。

[0005] 従来、このような電池用の包装材料においては、耐電解液性、シール強度などを考慮して、シーラント層を形成する樹脂としては、ポリプロピレンなどが一般に用いられている。ポリプロピレンは、融点が120℃以上であるため、電池用包装材料が高温に晒された場合にも、高いシール強度を有するという利点を有する。

[0006] ポリプロピレンは、結晶部分と非晶部分とを有し、非晶部分が多くなると融点が低くなり、結晶部分が多くなると融点が高くなる。例えば、非晶部分の多いポリプロピレンをシーラント層に用いた場合、例えば80℃程度で熱融解が始まり、電池の温度が上昇した場合のシール強度が不十分になるという問題がある。一方、結晶部分の多いポリプロピレンをシーラント層に用いた場合、融点が高くなるため、高温時のシール強度は高められるが、ヒートシールした後の冷却過程における結晶性の制御（例えば、結晶核の成長、結晶核数の増加などの制御）が困難である。このため、例えばヒートシール後にシール部を屈曲した際に、シーラント層のシール部またはその近傍部分において、クラックが発生し、絶縁性が低下しやすくなるという問題がある。

[0007] このような問題点を解決するために、例えば、結晶部分が多く融点の高いポリプロピレンをシーラント層に用いてヒートシールした後に、シール部に冷却板を押しつけたり、冷却エアーを吹き付ける冷却工程を設ける場合もある。しかしながら、このような冷却工程を設けた場合にも、シール部におけるクラックの発生を抑制することは容易ではない。さらに、電池用の包装材料には、絶縁性だけでなく、高い密封性及び成形性が求められているため、シーラント層を形成する樹脂にはこれらの特性を付与することも求められている。

[0008] また、近年、電池の薄型化や軽量化の要求に伴い、さらに薄い電池用包装材料が求められており、シーラント層についても、厚みをより一層薄くすることが求められている。しかしながら、シーラント層の厚みが薄くなると、電池用包装材料の絶縁性が低下しやすくなる。特に、電池の製造過程において、電池用包装材料によって電池素子を封止する際には、電池用包装材料を

ヒートシールした後に、ヒートシール部を内側に屈曲して成形されることがある。このような場合、シーラント層のヒートシール部またはその近傍部分において、クラックが発生するなどして、絶縁性が特に低下しやすくなるという問題がある。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：特開2008-287971号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] このような状況下、本発明の第1発明は、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料のヒートシールされたシール部を屈曲した場合のクラックの発生を抑制し、さらにシール部が高温または電解液に晒された場合にも高いシール強度を有し、電池用包装材料の成形時などにおいて延伸された場合のクラックの発生を抑制することによって、電池用包装材料に高い絶縁性、密封性、及び成形性を付与し得る樹脂組成物を提供することを主な目的とする。第1発明は、さらに、当該樹脂組成物をシーラント層に用いた電池用包装材料を提供することも目的とする。

[0011] また、本発明の第2発明は、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料のヒートシール部を屈曲した際のクラックの発生を抑制し、電池用包装材料に高い絶縁性を付与し得る樹脂組成物を提供することを主な目的とする。第2発明は、さらに、当該樹脂組成物をシーラント層に用いた電池用包装材料を提供することも目的とする。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明者は、前記第1発明の課題を解決すべく鋭意検討を行ったところ、
(A-1) 融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び(A-2) 融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体の

少なくとも一方と、(B)融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマーとを含む樹脂組成物は、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料のヒートシールされたシール部を屈曲した場合のクラックの発生を抑制して高い絶縁性を付与できること、さらにシール部が高温または電解液に晒された場合にも高いシール強度を有し高い密封性を付与できること、電池用包装材料が延伸された場合のクラックの発生を抑制して高い成形性を付与できることを見出した。第1発明は、かかる知見に基づいて更に検討を重ねることにより完成したものである。

[0013] また、本発明者は、前記第2発明の課題を解決すべく鋭意検討を行ったところ、アイソタクチック分率(m)が99%以下であるポリオレフィン系樹脂を含む樹脂組成物は、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料のヒートシール部を屈曲した際のクラックの発生を抑制し、電池用包装材料に高い絶縁性を付与し得ることを見出した。第2発明は、かかる知見に基づいて更に検討を重ねることにより完成したものである。

[0014] 即ち、本発明は、下記に掲げる態様の発明を提供する。

項1. (A-1)融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び(A-2)融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体の少なくとも一方と、

(B)融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマーと、
を含む、電池用包装材料のシーラント層用の樹脂組成物。

項2. 前記(B)融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマーの含有量が、20~75質量%である、項1に記載の樹脂組成物。

項3. (A-1)融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び(A-2)融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体の含有量の合計が、25~80質量%である、項1または2に記載の樹脂組成物。

項4. (C) 重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド分率 (mmmm) が90%以下、融点が70°C以上である低立体規則性オレフィンをさらに含む、項1～3のいずれかに記載の樹脂組成物。

項5. 前記(C) 低立体規則性オレフィンが、1-ブテン系重合体を含む、項4に記載の樹脂組成物。

項6. 前記(B) 融点が135°C以上のポリオレフィン系エラストマーの含有量が、20～65質量%、前記(C) 重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド分率 (mmmm) が90%以下、融点が70°C以上である低立体規則性オレフィンの含有量が、2～30質量%である、項4または5に記載の樹脂組成物。

項7. アイソタクチック分率 (mm) が99%以下であるポリオレフィン系樹脂を含む、電池用包装材料のシーラント層用の樹脂組成物。

項8. 前記ポリオレフィン系樹脂は、エチレン単位の含有量が0.1～10mol%である、項7に記載の樹脂組成物。

項9. 前記ポリオレフィン系樹脂は、80°Cにおいてn-デカンに可溶な成分量が0.1～15質量%である、項7または8に記載の樹脂組成物。

項10. 前記ポリオレフィン系樹脂が、構成モノマーとして少なくともプロピレンを含む、項7～9のいずれかに記載の樹脂組成物。

項11. 少なくとも、基材層、金属層、及びシーラント層をこの順に有する積層体からなる電池用包装材料であって、

前記シーラント層が、項1～10のいずれかに記載の樹脂組成物により形成された層を含む、電池用包装材料。

項12. 前記樹脂組成物により形成された層の厚みが、1～20μmである、項11に記載の電池用包装材料。

項13. 前記シーラント層の厚みが、40μm以下である、項11または12に記載の電池用包装材料。

項14. 正極、負極、及び電解質を備えた電池素子が、項11～13のいずれかに記載の電池用包装材料により封止されてなる、電池。

発明の効果

[0015] 本発明の第1発明の樹脂組成物によれば、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料のヒートシールされたシール部を屈曲した場合のクラックの発生を抑制し、さらにシール部が高温または電解液に晒された場合にも高いシール強度を有し、電池用包装材料が延伸された場合のクラックの発生を抑制することによって、電池用包装材料に高い絶縁性、密封性、及び成形性を付与することができる。

[0016] また、本発明の第2発明によれば、電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料のヒートシール部を屈曲した際のクラックの発生を抑制し、電池用包装材料に高い絶縁性を付与し得る樹脂組成物を提供することができる。また、本発明によれば、当該樹脂組成物をシーラント層に用いた電池用包装材料、及び電池を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]第1発明及び第2発明の電池用包装材料の略図的断面図である。

[図2]第1発明及び第2発明の電池用包装材料の略図的断面図である。

発明を実施するための形態

[0018] 本発明の第1発明の樹脂組成物は、(A-1)融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び(A-2)融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体の少なくとも一方と、(B)融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマーとを含むことを特徴とする。

[0019] 本発明の第2発明の樹脂組成物は、アイソタクチック分率(mm)が99%以下であるポリオレフィン系樹脂を含むことを特徴とする。

[0020] 以下、第1発明及び第2発明の樹脂組成物、これをシーラント層に用いた電池用包装材料、及び電池について、それぞれ詳述する。

[0021] 1. 第1発明の樹脂組成物

第1発明の樹脂組成物は、例えば後述するような電池用包装材料のシーラント層に用いられる樹脂組成物であって、(A-1)融点が156℃以上で

エチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び(A-2)融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体の少なくとも一方と、(B)融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマーとを含む。

[0022] (A-1)融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体(以下、単に「(A-1)ランダム共重合体」と表記することがある)は、融点が156℃以上であり、当該(A-1)ランダム共重合体中のエチレンの割合が5質量%以下であり、構成モノマーであるプロピレンとエチレンとがランダムに重合されたものであれば、特に制限されない。(A-1)ランダム共重合体の融点は、分子量、結晶性部分の割合、プロピレンとエチレンの割合などによって調整することができる。

(A-1)ランダム共重合体としては、市販品を使用することもできる。また、(A-1)ランダム共重合体の融点の上限値としては、第1発明の効果奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは165℃、より好ましくは163℃が挙げられる。また、(A-1)ランダム共重合体におけるエチレン含有量の下限値としては、第1発明の効果奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは2質量%が挙げられる。なお、第1発明の樹脂組成物に含まれる各成分の融点は、示差走査熱量計(DSC)により測定される値である。

[0023] 第1発明の樹脂組成物中における(A-1)ランダム共重合体の含有量としては、第1発明の効果奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは25~80質量%程度、より好ましくは30~70質量%程度、さらに好ましくは33~65質量%程度が挙げられる。

[0024] (A-2)融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体(以下、単に「(A-2)ブロック共重合体」と表記することがある)は、融点が158℃以上であり、当該(A-2)ブロック共重合体中のエチレンの割合が7質量%以下であり、構成モノ

マーであるプロピレンとエチレンとがブロック重合されたものであれば、特に制限されない。(A-2) ブロック共重合体の融点は、分子量、結晶性部分の割合、プロピレンとエチレンの割合などによって調整することができる。(A-2) ブロック共重合体としては、市販品を使用することもできる。

(A-2) ブロック共重合体の融点の上限値としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは165℃、より好ましくは163℃が挙げられる。また、(A-2) ブロック共重合体におけるエチレン含有量の下限値としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは2質量%が挙げられる。

[0025] 第1発明の樹脂組成物中における(A-2) ブロック共重合体の含有量としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは25~80質量%程度、より好ましくは30~70質量%程度、さらに好ましくは33~65質量%程度が挙げられる。

[0026] なお、第1発明の樹脂組成物中における(A-1) ランダム共重合体と(A-2) ブロック共重合体の合計量としては、好ましくは25~80質量%程度、より好ましくは30~70質量%程度、さらに好ましくは33~65質量%程度が挙げられる。

[0027] (B) 融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマー(以下、単に「(B) ポリオレフィン系エラストマー」と表記することがある)は、融点が135℃以上であり、エラストマーとしての特性を備えるもの(即ち、ポリオレフィン系エラストマー)であれば、特に制限されない。(B) ポリオレフィン系エラストマーとしては、シール強度の向上、ヒートシール後の層間剥離の防止等の観点から、好ましくはプロピレン系エラストマーが挙げられる。プロピレン系エラストマーとしては、プロピレンと、1種又は2種以上の炭素数2~20の α -オレフィン(プロピレンを除く)を構成モノマーとして含む重合体が挙げられ、プロピレン系エラストマーを構成する炭素数2~20の α -オレフィン(プロピレンを除く)としては、具体的には、エチレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、4-メチル-1-ペン

テン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-エイコセン等が挙げられる。(B)ポリオレフィン系エラストマーは、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせて使用してもよい。第1発明の樹脂組成物においては、上記の(A-1)ランダム共重合体と(A-2)ブロック共重合体の少なくとも一方という、共に特定の融点とエチレン含有量を有するプロピレン-エチレン共重合体に対して、特定の融点を有する(B)ポリオレフィン系エラストマーを配合することによって、樹脂組成物の柔軟性が向上し、樹脂組成物が電池用包装材料のシーラント層に使用された場合に、電池用包装材料のヒートシールされたシール部を屈曲した場合にも高い絶縁性を付与することができる。また、(B)ポリオレフィン系エラストマーを加えることにより、電池用包装材料のシール部が高温または電解液に晒された場合にも高いシール強度を有するため、優れた密閉性を付与することができ、さらに、電池用包装材料が延伸された場合のクラックの発生が抑制されるため、優れた成形性を付与することもできる。

[0028] (B)ポリオレフィン系エラストマーの融点は、分子量、結晶性部分の割合、プロピレンとエチレンの割合などによって調整することができる。(B)ポリオレフィン系エラストマーとしては、市販品を使用することもできる。(B)ポリオレフィン系エラストマーの融点の上限値としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは165℃、より好ましくは163℃が挙げられる。

[0029] 第1発明の樹脂組成物中における(B)ポリオレフィン系エラストマーの含有量としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは20~75質量%程度、より好ましくは25~70質量%程度、さらに好ましくは30~65質量%程度が挙げられる。

[0030] 第1発明の樹脂組成物は、上記の(A-1)ランダム共重合体及び(A-2)ブロック共重合体の少なくとも一方と、(B)ポリオレフィン系エラストマーに加えて、さらに(C)重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド

分率（mmmm）が90%以下、融点が70℃以上である低立体規則性オレフィン（以下、単に「（C）低立体規則性オレフィン」ということがある）をさらに含むことが好ましい。第1発明の樹脂組成物が、（C）低立体規則性オレフィンを含む場合、樹脂組成物の融点を実質的に下げることなく、樹脂組成物に高い柔軟性を付与することが可能となる。これにより、第1発明の樹脂組成物を電池用包装材料のシーラント層に用いた場合に、後述の電池用包装材料の引張降伏点強度（MD+TD）を低くすることができるため、ヒートシール時に付加される圧力を均一化する効果が高くなり、均一なシールが可能となって、高い密封性が得られる。さらに、ヒートシール後に起こる樹脂冷却において、樹脂組成物における結晶核の成長や結晶核数の増加を抑制する効果が発現し、シール後の結晶核の増大や不均一化で起こる微細なクラック等が防止できる。このため、シール強度を高め得るとともに、内容物である電解液の浸透性を抑制することも可能となり、安定した密封性が得られる。

[0031] （C）低立体規則性オレフィンとしては、重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド分率（mmmm）が90%以下、融点が70℃以上であるオレフィンであれば、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されず、これらの物性を充足する公知の低立体規則性オレフィンを用いることができ、市販品を用いることもできる。（C）低立体規則性オレフィンとしては、例えば、特開2002-220503号公報に開示されたようなポリオレフィン系樹脂組成物を使用することができる。（C）低立体規則性オレフィンの重量平均分子量としては、好ましくは3万以上が挙げられる。メソペンタッド分率（mmmm）としては、好ましくは80%以下が挙げられる。融点としては、好ましくは75℃以上が挙げられる。また、（C）低立体規則性オレフィンの重量平均分子量の上限值としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、例えば100万程度、好ましくは50万程度が挙げられる。メソペンタッド分率（mmmm）の下限值としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、例えば2

0%、好ましくは35%が挙げられる。融点の上限値としては、第1発明の効果奏することを限度として特に制限されないが、例えば140℃、好ましくは100℃が挙げられる。なお、第1発明において、重量平均分子量は、標準サンプルとしてポリスチレンを用いたゲル浸透クロマトグラフ(GPC)により測定された値である。また、第1発明において、メソペンタッド分率(mmmm)は、「Polymer Journal, 16, 717 (1984)」、「Macromol. Chem. Phys., C29, 201 (1989)」、及び「Macromol. Chem. Phys., 198, 1257 (1997)」で提案された方法に準拠して求められる値である。すなわち、¹³C核磁気共鳴スペクトルを用いてメチレン基、メチン基のシグナルを測定してメソペンタッド分率が求められる。

[0032] (C) 低立体規則性オレフィンの上記の物性を充足する観点から、(C) 低立体規則性オレフィンは、1-ブテン系重合体を含むことが好ましい。1-ブテン系重合体は、1-ブテンの単独重合体であってもよいし、1-ブテンと、エチレン及び炭素数3~20の α -オレフィン(ただし、1-ブテンを除く)の少なくとも一方などのオレフィンとの共重合体であってもよい。1-ブテン系重合体は、1種類単独で使用してもよいし、2種類以上を組み合わせ使用してもよい。1-ブテン系重合体の重量平均分子量としては、好ましくは1万以上が挙げられる。また、1-ブテン系重合体のメソペンタッド分率(mmmm)としては、好ましくは90%以下、より好ましくは85%以下が挙げられる。また、1-ブテン系重合体の融点としては、好ましくは140℃以下、より好ましくは100℃以下が挙げられる。なお、1-ブテン系重合体の重量平均分子量の上限値としては、好ましくは100万程度、より好ましくは50万程度が挙げられる。メソペンタッド分率(mmmm)の下限値としては、好ましくは20%、より好ましくは40%が挙げられる。1-ブテン系重合体の分子量分布(Mw/Mn)としては、好ましくは4以下、より好ましくは3.5~1.5、さらに好ましくは3.0~1.5が挙げられる。

[0033] (C) 低立体規則性オレフィンは、1-ブテン系重合体のみにより構成されていてもよいし、1-ブテン系重合体とポリオレフィン類との混合物であってもよい。ポリオレフィン類としては、(C) 低立体規則性オレフィンの上記の物性を充足できるものであれば特に制限されないが、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、炭素数4以上の α -オレフィンからなるポリ α -オレフィン、ポリビニルシクロアルカン、シンジオクタチックポリスチレン、ポリアルケニルシランなどが挙げられる。ポリプロピレンとしては、プロピレンのみの重合体であるホモポリプロピレン、例えばプロピレン-エチレンのランダムポリプロピレン、例えばプロピレン/プロピレン-エチレンのブロックポリプロピレン等があり、ポリエチレンとしては、高密度ポリエチレン、低高密度ポリエチレン、例えばエチレン-ブテン-1、エチレン-ヘキセン-1、エチレン-オクテン-1のような直鎖状低高密度ポリエチレン等がある。また、ポリ α -オレフィンとしては、ポリブテン-1、ポリ(4-メチルペンテン-1)、ポリ(3-メチルペンテン-1)、ポリ(3-メチルブテン-1)等がある。ポリビニルシクロアルカンとしては、好ましくはポリビニルシクロヘキサン、ポリビニルシクロペンタン等がある。またポリアルケニルシランとしては、アルケニル基の炭素数が2~20のもの、具体的にはビニルシラン、ブテンシラン、アリルシランなどがある。これらの中で相溶性の観点からポリプロピレン、ポリエチレンおよびポリ α -オレフィンが好ましく、耐熱性と柔軟性の観点からポリプロピレンが更に好ましい。ポリオレフィン類の重量平均分子量としては、好ましくは1万以上が挙げられる。ポリオレフィン類は、1種類単独で使用してもよいし、2種類以上を組み合わせ使用してもよい。

[0034] (C) 低立体規則性オレフィンが1-ブテン系重合体とポリオレフィン類とを含む場合、(C) 低立体規則性オレフィンにおける1-ブテン系重合体とポリオレフィン類の質量比としては、特に制限されないが、好ましくは1:99~99:1程度、より好ましくは10:90~90:10程度、さらに好ましくは10:90~60:40程度が挙げられる。

[0035] 第1発明の樹脂組成物が(C)低立体規則性オレフィンを含む場合、(C)低立体規則性オレフィンの含有量としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、好ましくは2~30質量%程度、より好ましくは3~25質量%程度、さらに好ましくは5~20質量%程度が挙げられる。また、第1発明の樹脂組成物中に(C)低立体規則性オレフィンを含む場合、第1発明の樹脂組成物中における(B)ポリオレフィン系エラストマーの含有量としては、好ましくは20~65質量%程度、より好ましくは25~60質量%程度、さらに好ましくは20~50質量%程度が挙げられる。

[0036] 第1発明の樹脂組成物の230℃におけるメルトフローレート(MFR)としては、特に制限されないが、好ましくは1~20g/10分、より好ましくは2.5~15g/10分が挙げられる。第1発明において、メルトフローレートは、JIS K7210に記載の方法に準拠し、メルトフローレート測定器を用いて測定される値である。

[0037] 第1発明の樹脂組成物は、第1発明の効果を阻害しないことを限度として、上記の(A-1)ランダム共重合体、(A-2)ブロック共重合体、(B)ポリオレフィン系エラストマー、及び(C)低立体規則性オレフィン以外の樹脂成分を含んでいてもよい。このような樹脂成分としては、例えば、上記の(A-1)ランダム共重合体、(A-2)ブロック共重合体、(B)ポリオレフィン系エラストマー、及び(C)低立体規則性オレフィンにおいて、少なくとも1つの物性を満たさないものが挙げられ、例えば、(A-1)ランダム共重合体の物性値を満たさないものとして、融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%を超えるプロピレン-エチレンのランダム共重合体、融点が156℃未満でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、融点が156℃未満でエチレン含有量が5質量%を超えるプロピレン-エチレンのランダム共重合体など；(A-2)ブロック共重合体の物性値を満たさないものとして、融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%を超えるプロピレン-エチレンのブロック共重合体、

融点が158℃未満でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体、融点が158℃未満でエチレン含有量が7質量%を超えるプロピレン-エチレンのブロック共重合体など；(B)ポリオレフィン系エラストマーの物性値を満たさないものとして、融点が135℃未満のポリオレフィン系エラストマーなど；(C)低立体規則性オレフィンの物性値を満たさないものとして、重量平均分子量が1万未満、メソペンタッド分率(mmmm)が90%以下、融点が70℃以上であるオレフィン、重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド分率(mmmm)が90%を超え、融点が70℃以上であるオレフィン、重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド分率(mmmm)が90%以下、融点が70℃未満であるオレフィン、重量平均分子量が1万未満、メソペンタッド分率(mmmm)が90%を超え、融点が70℃以上であるオレフィン、重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド分率(mmmm)が90%を超え、融点が70℃未満であるオレフィン、重量平均分子量が1万未満、メソペンタッド分率(mmmm)が90%以下、融点が70℃未満であるオレフィン、重量平均分子量が1万未満、メソペンタッド分率(mmmm)が90%を超え、融点が70℃未満であるオレフィンなどが挙げられる。第1発明の樹脂組成物に、(A-1)ランダム共重合体、(A-2)ブロック共重合体、(B)ポリオレフィン系エラストマー、及び(C)低立体規則性オレフィン以外の樹脂成分が含まれる場合、第1発明の樹脂組成物中におけるこのような樹脂成分の含有量の合計としては、好ましくは30質量%以下、より好ましくは25質量%以下が挙げられる。

[0038] 第1発明の樹脂組成物は、電池用包装材料のシーラント層を形成する樹脂組成物として好適に使用することができる。以下、第1発明の樹脂組成物を用いて製造される電池用包装材料及び電池の構成について詳述する。

[0039] 2. 第1発明の電池用包装材料

電池用包装材料は、少なくとも、基材層1、金属層3、及びシーラント層4をこの順に有する積層体からなる。図1に示すように、電池用包装材料は

、基材層 1 と金属層 3 との間に接着層 2 を有していてもよい。第 1 発明の電池用包装材料が電池に使用される際には、基材層 1 が最外層になり、シーラント層 4 が最内層（電池素子側）になる。電池の組み立て時に、電池素子の周縁に位置するシーラント層 4 同士を接面させて熱溶着することにより電池素子が密封され、電池素子が封止される。また、電池用包装材料は、図 2 に示すように、金属層 3 とシーラント層 4 との間に接着層 5 を有していてもよい。

[0040] 3. 第 1 発明の電池用包装材料を形成する各層の組成

[基材層 1]

第 1 発明の電池用包装材料において、基材層 1 は最外層を形成する層である。基材層 1 を形成する素材については、絶縁性を備えるものであることを限度として特に制限されるものではない。基材層 1 を形成する素材としては、例えば、ポリエステル、ポリアミド、エポキシ、アクリル、フッ素樹脂、ポリウレタン、珪素樹脂、フェノール、ポリエーテルイミド、ポリイミド、及びこれらの混合物や共重合物等が挙げられる。

[0041] ポリエステルとしては、具体的には、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリエチレンイソフタレート、ポリカーボネート、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステル、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステル等が挙げられる。また、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステルとしては、具体的には、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体としてエチレンイソフタレートと重合する共重合体ポリエステル（以下、ポリエチレン（テレフタレート／イソフタレート）にならって略す）、ポリエチレン（テレフタレート／イソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／アジペート）、ポリエチレン（テレフタレート／ナトリウムスルホイソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／ナトリウムイソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／フェニルジカルボキシレート）、ポ

リエチレン（テレフタレート／デカンジカルボキシレート）等が挙げられる。また、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステルとしては、具体的には、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体としてブチレンイソフタレートと重合する共重合体ポリエステル（以下、ポリブチレン（テレフタレート／イソフタレート）にならって略す）、ポリブチレン（テレフタレート／アジペート）、ポリブチレン（テレフタレート／セバケート）、ポリブチレン（テレフタレート／デカンジカルボキシレート）、ポリブチレンナフタレート等が挙げられる。これらのポリエステルは、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。ポリエステルは、耐電解液性に優れ、電解液の付着に対して白化等が発生し難いという利点があり、基材層1の形成素材として好適に使用される。

[0042] また、ポリアミドとしては、具体的には、ナイロン6、ナイロン66、ナイロン610、ナイロン12、ナイロン46、ナイロン6とナイロン6,6との共重合体等の脂肪族系ポリアミド；テレフタル酸及び／又はイソフタル酸に由来する構成単位を含むナイロン6I、ナイロン6T、ナイロン6IT、ナイロン6I6T（Iはイソフタル酸、Tはテレフタル酸を表す）等のヘキサメチレンジアミン－イソフタル酸－テレフタル酸共重合ポリアミド、ポリメタキシリレンアジパミド（MXD6）等の芳香族を含むポリアミド；ポリアミノメチルシクロヘキシルアジパミド（PACM6）等の脂環系ポリアミド；さらにラクタム成分や、4,4'-ジフェニルメタン－ジイソシアネート等のイソシアネート成分を共重合させたポリアミド、共重合ポリアミドとポリエステルやポリアルキレンエーテルグリコールとの共重合体であるポリエステルアミド共重合体やポリエーテルエステルアミド共重合体；これらの共重合体等が挙げられる。これらのポリアミドは、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。延伸ポリアミドフィルムは延伸性に優れており、成形時の基材層1の樹脂割れによる白化の発生を防ぐことができ、基材層1の形成素材として好適に使用される。

[0043] 基材層1は、1軸又は2軸延伸された樹脂フィルムで形成されていてもよ

く、また未延伸の樹脂フィルムで形成してもよい。中でも、1軸又は2軸延伸された樹脂フィルム、とりわけ2軸延伸された樹脂フィルムは、配向結晶化することにより耐熱性が向上しているため、基材層1として好適に使用される。また、基材層1は、上記の素材を金属層3上にコーティングして形成されていてもよい。

[0044] これらの中でも、基材層1を形成する樹脂フィルムとして、好ましくはナイロン、ポリエステル、更に好ましくは2軸延伸ナイロン、2軸延伸ポリエステル、特に好ましくは2軸延伸ナイロンが挙げられる。

[0045] 基材層1は、耐ピンホール性及び電池の包装体とした時の絶縁性を向上させるために、異なる素材の樹脂フィルム及びコーティングの少なくとも一方を積層化することも可能である。具体的には、ポリエステルフィルムとナイロンフィルムとを積層させた多層構造や、2軸延伸ポリエステルと2軸延伸ナイロンとを積層させた多層構造等が挙げられる。基材層1を多層構造にする場合、各樹脂フィルムは接着剤を介して接着してもよく、また接着剤を介さず直接積層させてもよい。接着剤を介さず接着させる場合には、例えば、共押し出し法、サンドラミ法、サーマルラミネート法等の熱熔融状態で接着させる方法が挙げられる。また、接着剤を介して接着させる場合、使用する接着剤は、2液硬化型接着剤であってもよく、また1液硬化型接着剤であってもよい。更に、接着剤の接着機構についても、特に制限されず、化学反応型、溶剤揮発型、熱熔融型、熱圧型、UVやEBなどの電子線硬化型等のいずれであってもよい。接着剤の成分としてポリエステル系樹脂、ポリエーテル系樹脂、ポリウレタン系樹脂、エポキシ系樹脂、フェノール樹脂系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、ポリ酢酸ビニル系樹脂、セルロース系樹脂、(メタ)アクリル系樹脂、ポリイミド系樹脂、アミノ樹脂、ゴム、シリコン系樹脂が挙げられる。

[0046] 基材層1には、成形性を向上させるために低摩擦化させておいてもよい。基材層1を低摩擦化させる場合、その表面の摩擦係数については特に制限されないが、例えば1.0以下が挙げられる。基材層1を低摩擦化するには、

例えば、マット処理、スリップ剤の薄膜層の形成、これらの組み合わせ等が挙げられる。

[0047] マット処理としては、予め基材層1にマット化剤を添加し表面に凹凸を形成したり、エンボスロールによる加熱や加圧による転写法や、表面を乾式又は湿式ブラスト法やヤスリで機械的に荒らす方法が挙げられる。マット化剤としては、例えば、粒径が0.5 nm～5 μm程度の微粒子が挙げられる。マット化剤の材質については、特に制限されないが、例えば、金属、金属酸化物、無機物、有機物等が挙げられる。また、マット化剤の形状についても、特に制限されないが、例えば、球状、繊維状、板状、不定形、バルーン状等が挙げられる。マット化剤として、具体的には、はタルク、シリカ、グラファイト、カオリン、モンモリロイド、モンモリロナイト、合成マイカ、ハイドロタルサイト、シリカゲル、ゼオライト、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、酸化亜鉛、酸化マグネシウム、酸化アルミニウム、酸化ネオジウム、酸化アンチモン、酸化チタン、酸化セリウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、炭酸カルシウム、ケイ酸カルシウム、炭酸リチウム、安息香酸カルシウム、シュウ酸カルシウム、ステアリン酸マグネシウム、アルミナ、カーボンブラック、カーボンナノチューブ類、高融点ナイロン、架橋アクリル、架橋スチレン、架橋ポリエチレン、ベンゾグアナミン、金、アルミニウム、銅、ニッケル等が挙げられる。これらのマット化剤は、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。これらのマット化剤の中でも、分散安定性やコスト等の観点から、好ましくはシリカ、硫酸バリウム、酸化チタンが挙げられる。また、マット化剤には、表面に絶縁処理、高分散性処理等の各種表面処理を施しておいてもよい。

[0048] スリップ剤の薄膜層は、基材層1上にスリップ剤をブリードアウトにより表面に析出させて薄膜を形成させる方法や、基材層1にスリップ剤を積層することで形成できる。スリップ剤としては、特に制限されないが、例えば、脂肪酸アמיד、金属石鹼、親水性シリコーン、シリコーンをグラフトしたアクリル、シリコーンをグラフトしたエポキシ、シリコーンをグラフトした

ポリエーテル、シリコンをグラフトしたポリエステル、ブロック型シリコンアクリル共重合体、ポリグリセロール変性シリコン、パラフィン等が挙げられる。これらのスリップ剤は、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0049] 基材層1の厚さは、例えば、10～50 μm 、好ましくは15～30 μm が挙げられる。

[0050] [接着層2]

第1発明の電池用包装材料において、接着層2は、基材層1と金属層3とを接着させるために、必要に応じて設けられる層である。

[0051] 接着層2は、基材層1と金属層3とを接着可能である接着剤によって形成される。接着層2の形成に使用される接着剤は、2液硬化型接着剤であってもよく、また1液硬化型接着剤であってもよい。更に、接着層2の形成に使用される接着剤の接着機構についても、特に制限されず、化学反応型、溶剤揮発型、熱溶解型、熱圧型等のいずれであってもよい。

[0052] 接着層2の形成に使用できる接着剤の樹脂成分としては、具体的には、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリエチレンイソフタレート、ポリカーボネート、共重合ポリエステル等のポリエステル系樹脂；ポリエーテル系接着剤；ポリウレタン系接着剤；エポキシ系樹脂；フェノール樹脂系樹脂；ナイロン6、ナイロン66、ナイロン12、共重合ポリアミド等のポリアミド系樹脂；ポリオレフィン、酸変性ポリオレフィン、金属変性ポリオレフィン等のポリオレフィン系樹脂；ポリ酢酸ビニル系樹脂；セルロース系接着剤；（メタ）アクリル系樹脂；ポリアミド系樹脂；尿素樹脂、メラミン樹脂等のアミノ樹脂；クロロプレンゴム、ニトリルゴム、スチレン-ブタジエンゴム等のゴム；シリコン系樹脂；フッ化エチレンプロピレン共重合体等が挙げられる。これらの接着剤成分は1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせて使用してもよい。2種以上の接着剤成分の組み合わせ態様については、特に制限されないが、例えば、その接着剤成分として、ポリ

アミドと酸変性ポリオレフィンとの混合樹脂、ポリアミドと金属変性ポリオレフィンとの混合樹脂、ポリアミドとポリエステル、ポリエステルと酸変性ポリオレフィンとの混合樹脂、ポリエステルと金属変性ポリオレフィンとの混合樹脂等が挙げられる。これらの中でも、展延性、高湿度条件下における耐久性や応変抑制作用、ヒートシール時の熱劣化抑制作用等が優れ、基材層 1 と金属層 3 との間のラミネーション強度の低下を抑えてデラミネーションの発生を効果的に抑制するという観点から、好ましくはポリウレタン系 2 液硬化型接着剤；ポリアミド、ポリエステル、又はこれらと変性ポリオレフィンとのブレンド樹脂が挙げられる。

[0053] また、接着層 2 は異なる接着剤成分で多層化してもよい。接着層 2 を異なる接着剤成分で多層化する場合、基材層 1 と金属層 3 とのラミネーション強度を向上させるという観点から、基材層 1 側に配される接着剤成分を基材層 1 との接着性に優れる樹脂を選択し、金属層 3 側に配される接着剤成分を金属層 3 との接着性に優れる接着剤成分を選択することが好ましい。接着層 2 は異なる接着剤成分で多層化する場合、具体的には、金属層 3 側に配置される接着剤成分としては、好ましくは、酸変性ポリオレフィン、金属変性ポリオレフィン、ポリエステルと酸変性ポリオレフィンとの混合樹脂、共重合ポリエステルを含む樹脂等が挙げられる。

[0054] 接着層 2 の厚さについては、例えば、2～50 μm 、好ましくは3～25 μm が挙げられる。

[0055] [金属層 3]

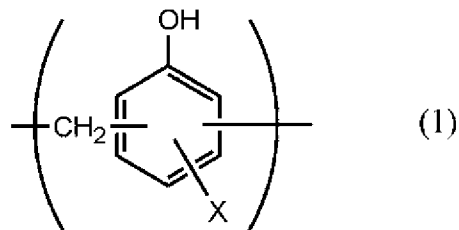
第 1 発明の電池用包装材料において、金属層 3 は、包装材料の強度向上の他、電池内部に水蒸気、酸素、光等が侵入するのを防止するためのバリア層として機能する層である。金属層 3 を形成する金属としては、具体的には、アルミニウム、ステンレス、チタン等の金属箔が挙げられる。これらの中でも、アルミニウムが好適に使用される。包装材料の製造時にしわやピンホールを防止するために、第 1 発明において金属層 3 として、軟質アルミニウム、例えば、焼きなまし処理済みのアルミニウム (J I S A 8 0 2 1 P - O

) 又は (JIS A8079P-0) 等を用いることが好ましい。

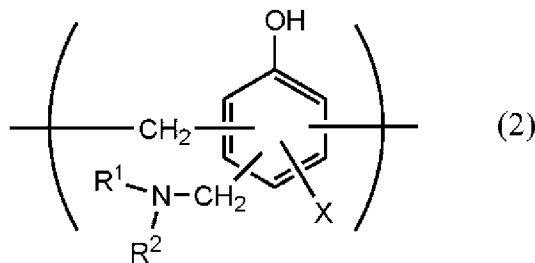
[0056] 金属層3の厚さについては、例えば、10～200 μm 、好ましくは20～100 μm が挙げられる。

[0057] また、金属層3は、接着の安定化、溶解や腐食の防止等のために、少なくとも一方の面、好ましくは少なくともシーラント層4側の面、更に好ましくは両面が化成処理されていることが好ましい。ここで、化成処理とは、金属層3の表面に耐酸性皮膜を形成する処理である。化成処理は、例えば、硝酸クロム、フッ化クロム、硫酸クロム、酢酸クロム、蔞酸クロム、重リン酸クロム、クロム酸アセチルアセテート、塩化クロム、硫酸カリウムクロム等のクロム酸化合物を用いたクロム酸クロメート処理；リン酸ナトリウム、リン酸カリウム、リン酸アンモニウム、ポリリン酸等のリン酸化合物を用いたリン酸クロメート処理；下記一般式(1)～(4)で表される繰り返し単位からなるアミノ化フェノール重合体を用いたクロメート処理等が挙げられる。

[0058] [化1]

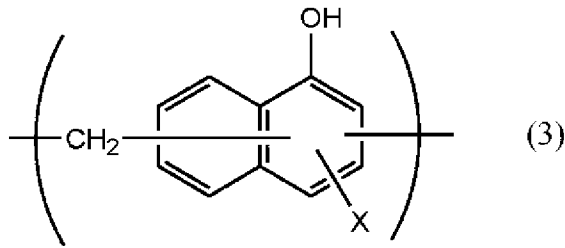


[0059] [化2]

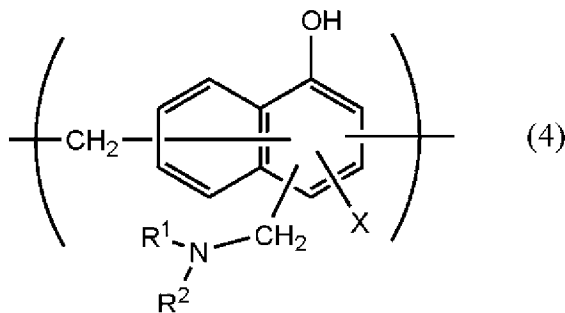


[0060]

[化3]



[0061] [化4]



[0062] 一般式(1)～(4)中、Xは水素原子、ヒドロキシル基、アルキル基、ヒドロキシアルキル基、アリル基又はベンジル基を示す。また、R¹及びR²は、同一又は異なって、ヒドロキシル基、アルキル基、又はヒドロキシアルキル基を示す。一般式(1)～(4)において、X、R¹、R²で示されるアルキル基としては、例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、イソプロピル基、n-ブチル基、イソブチル基、tert-ブチル基等の炭素数1～4の直鎖又は分枝鎖状アルキル基が挙げられる。また、X、R¹、R²で示されるヒドロキシアルキル基としては、例えば、ヒドロキシメチル基、1-ヒドロキシエチル基、2-ヒドロキシエチル基、1-ヒドロキシプロピル基、2-ヒドロキシプロピル基、3-ヒドロキシプロピル基、1-ヒドロキシブチル基、2-ヒドロキシブチル基、3-ヒドロキシブチル基、4-ヒドロキシブチル基等のヒドロキシ基が1個置換された炭素数1～4の直鎖又は分枝鎖状アルキル基が挙げられる。一般式(1)～(4)において、Xは、水素原子、ヒドロキシル基、及び、ヒドロキシアルキル基のいずれかであることが好ましい。一般式(1)～(4)で表される繰り返し単位からなるアミノ化フェノール重合体の数平均分子量は、例えば、約500～約100万、好ましく

は約1000～約2万が挙げられる。

[0063] また、金属層3に耐食性を付与する化成処理方法として、リン酸中に、酸化アルミ、酸化チタン、酸化セリウム、酸化スズ等の金属酸化物や硫酸バリウムの微粒子を分散させたものをコーティングし、150℃以上で焼付け処理を行うことにより、金属層3の表面に耐食処理層を形成する方法が挙げられる。また、耐食処理層の上には、カチオン性ポリマーを架橋剤で架橋させた樹脂層を形成してもよい。ここで、カチオン性ポリマーとしては、例えば、ポリエチレンイミン、ポリエチレンイミンとカルボン酸を有するポリマーからなるイオン高分子錯体、アクリル主骨格に1級アミンをグラフトさせた1級アミングラフトアクリル樹脂、ポリアリルアミンまたはその誘導体、アミノフェノール等が挙げられる。これらのカチオン性ポリマーは1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。また、架橋剤としては、例えば、イソシアネート基、グリシジル基、カルボキシル基、及びオキサゾリン基よりなる群から選ばれる少なくとも1種の官能基を有する化合物、シランカップリング剤等が挙げられる。これらの架橋剤は1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0064] これらの化成処理は、1種の化成処理を単独で行ってもよく、2種以上の化成処理を組み合わせ行ってもよい。更に、これらの化成処理は、1種の化合物を単独で使用して行ってもよく、また2種以上の化合物を組み合わせ使用して行ってもよい。これらの中でも、好ましくはクロム酸クロメート処理、更に好ましくはクロム酸化合物、リン酸化合物、及びアミノ化フェノール重合体を組み合わせたクロメート処理が挙げられる。

[0065] 化成処理において金属層3の表面に形成させる耐酸性皮膜の量については、特に制限されないが、例えばクロム酸化合物、リン酸化合物、及びアミノ化フェノール重合体を組み合わせてクロメート処理を行う場合であれば、金属層3の表面1m²当たり、クロム酸化合物がクロム換算で約0.5～約50mg、好ましくは約1.0～約40mg、リン化合物がリン換算で約0.5～約50mg、好ましくは約1.0～約40mg、及びアミノ化フェノール

重合体が約1～約200mg、好ましくは約5.0～150mgの割合で含有されていることが望ましい。

[0066] 化成処理は、耐酸性皮膜の形成に使用する化合物を含む溶液を、バーコート法、ロールコート法、グラビアコート法、浸漬法等によって、金属層3の表面に塗布した後に、金属層3の温度が70～200℃程度になるように加熱することにより行われる。また、金属層3に化成処理を施す前に、予め金属層3を、アルカリ浸漬法、電解洗浄法、酸洗浄法、電解酸洗浄法等による脱脂処理に供してもよい。このように脱脂処理を行うことにより、金属層3の表面の化成処理を一層効率的に行うことが可能になる。

[0067] [シーラント層4]

第1発明の電池用包装材料において、シーラント層4は、最内層に該当し、電池の組み立て時にシーラント層4同士が熱溶着して電池素子を密封する層である。第1発明において、シーラント層4は、第1発明の樹脂組成物により形成された層を含む。シーラント層4は、第1発明の樹脂組成物により形成された1層により構成されていてもよいし、当該樹脂組成物により形成された複数の層により構成されていてもよい。また、シーラント層4は、第1発明の樹脂組成物により形成された層に加えて、さらに他の層を1層以上有していてもよい。他の層を形成する樹脂としては、第1発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、例えば、ポリオレフィン、環状ポリオレフィン、カルボン酸変性ポリオレフィン、カルボン酸変性環状ポリオレフィンなどが挙げられる。

[0068] ポリオレフィンとしては、具体的には、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、線状低密度ポリエチレンなどのポリエチレン；ホモポリプロピレン、ポリプロピレンのブロックコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのブロックコポリマー）、ポリプロピレンのランダムコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのランダムコポリマー）などの結晶性または非晶性のポリプロピレン；エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマーなどが挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、ポリエチ

レン及びポリプロピレンが好ましい。

[0069] 環状ポリオレフィンとは、オレフィンと環状モノマーとの共重合体である。オレフィンとしては、例えば、エチレン、プロピレン、4-メチル-1-ペンテン、スチレン、ブタジエン、イソプレンなどが挙げられる。また、環状モノマーとしては、例えば、ノルボルネンなどの環状アルケン；シクロペンタジエン、ジシクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、ノルボルナジエンなどの環状ジエンなどが挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、環状アルケンが好ましく、ノルボルネンがさらに好ましい。

[0070] カルボン酸変性ポリオレフィンとは、ポリオレフィンをカルボン酸で変性したポリマーである。変性に使用されるカルボン酸としては、例えば、マレイン酸、アクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸などが挙げられる。

[0071] カルボン酸変性環状ポリオレフィンとは、環状ポリオレフィンを構成するモノマーの一部を、 α 、 β -不飽和カルボン酸またはその酸無水物に代えて共重合することにより、或いは環状ポリオレフィンに対して α 、 β -不飽和カルボン酸またはその酸無水物をブロック共重合またはグラフト共重合することにより得られるポリマーである。カルボン酸変性される環状ポリオレフィンは、上記の環状ポリオレフィンと同様とすることができる。また、変性に使用されるカルボン酸としては、上記の酸変性シクロオレフィンコポリマーの変性に用いられるものと同様とすることができる。

[0072] これらの樹脂成分の中でも、好ましくは結晶性または非晶性のポリオレフィン、環状ポリオレフィン、及びこれらのブレンドポリマー；さらに好ましくはポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンとノルボルネンの共重合体、及びこれらの中の2種類以上のブレンドポリマーが挙げられる。

[0073] 他の層は、1種類の樹脂成分のみから形成されていてもよく、2種類以上の樹脂成分を組み合わせたブレンドポリマーから形成されていてもよい。

[0074] シーラント層4の厚みは、特に制限されないが、例えば、 $2\ \mu\text{m}$ ~ $2000\ \mu\text{m}$ 程度、好ましくは $5\ \mu\text{m}$ ~ $1000\ \mu\text{m}$ 程度、さらに好ましくは 10

μm ～ $500\mu\text{m}$ とすることができる。

[0075] [接着層5]

第1発明の電池用包装材料においては、金属層3とシーラント層4とを強固に接着させることなどを目的として、図2に示されるように、金属層3とシーラント層4との間に接着層5をさらに設けてもよい。接着層5は、1層により形成されていてもよいし、複数層により形成されていてもよい。

[0076] 接着層5は、金属層3とシーラント層4とを接着可能な樹脂によって形成される。接着層5を形成する樹脂としては、金属層3とシーラント層4とを接着可能な樹脂であれば特に制限されないが、好ましくは上記の酸変性ポリオレフィン、ポリエステル樹脂、フッ素系樹脂、ポリエーテル系樹脂、ポリウレタン系樹脂、エポキシ系樹脂、フェノール樹脂系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、ポリ酢酸ビニル系樹脂、セルロース系樹脂、(メタ)アクリル系樹脂、ポリイミド系樹脂、アミノ樹脂、ゴム、シリコン系樹脂等が挙げられる。接着層5を形成する樹脂は、1種類単独で使用してもよいし、2種類以上を組み合わせ使用してもよい。

[0077] 酸変性ポリオレフィンとは、ポリオレフィンを不飽和カルボン酸でグラフト重合すること等により変性したポリマーである。酸変性されるポリオレフィンとしては、具体的には、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、線状低密度ポリエチレン等のポリエチレン；ホモポリプロピレン、ポリプロピレンのブロックコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのブロックコポリマー）、ポリプロピレンのランダムコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのランダムコポリマー）等の結晶性又は非晶性のポリプロピレン；エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマー等が挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、耐熱性の点で、好ましくは、少なくともプロピレンを構成モノマーとして有するポリオレフィン、更に好ましくは、エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマー、及びプロピレン-エチレンのランダムコポリマーが挙げられる。変性に使用される不飽和カルボン酸としては、例えば、マレイン酸、アクリル酸、イタコン酸、クロトン

酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸等が挙げられる。これらの不飽和カルボン酸の中でも、好ましくはマレイン酸、無水マレイン酸が挙げられる。これらの酸変性ポリオレフィン、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0078] ポリエステル樹脂としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリエチレンイソフタレート、ポリカーボネート、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステル、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステル等が挙げられる。また、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステルとしては、具体的には、エチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体としてエチレンイソフタレートと重合する共重合体ポリエステル（以下、ポリエチレン（テレフタレート／イソフタレート）にならって略す）、ポリエチレン（テレフタレート／イソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／アジペート）、ポリエチレン（テレフタレート／ナトリウムスルホイソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／ナトリウムイソフタレート）、ポリエチレン（テレフタレート／フェニルジカルボキシレート）、ポリエチレン（テレフタレート／デカンジカルボキシレート）等が挙げられる。また、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体とした共重合ポリエステルとしては、具体的には、ブチレンテレフタレートを繰り返し単位の主体としてブチレンイソフタレートと重合する共重合体ポリエステル（以下、ポリブチレン（テレフタレート／イソフタレート）にならって略す）、ポリブチレン（テレフタレート／アジペート）、ポリブチレン（テレフタレート／セバケート）、ポリブチレン（テレフタレート／デカンジカルボキシレート）、ポリブチレンナフタレート等が挙げられる。これらのポリエステル樹脂は、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0079] フッ素系樹脂としては、テトラフルオロエチレン、トリフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデン、ポリフッ化ビニル、エチレンテトラフルオロエチ

レン、ポリクロロトリフルオロエチレン、エチレンクロロトリフルオロエチレン共重合体、テトラフルオロエチレンーヘキサフルオロプロピレン共重合体、フッ素系ポリオールなどが挙げられる。これらのフッ素系樹脂は、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0080] 接着層5は、これらの樹脂の少なくとも1種のみから形成されていてもよく、また必要に応じてこれら以外の樹脂成分を含んでいてもよい。接着層5にこれら以外の樹脂成分を含有させる場合、シーラント層4中の酸変性ポリオレフィン、ポリエステル樹脂、フッ素系樹脂、ポリエーテル系樹脂、ポリウレタン系樹脂、エポキシ系樹脂、フェノール樹脂系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、ポリ酢酸ビニル系樹脂、セルロース系樹脂、(メタ)アクリル系樹脂、ポリイミド系樹脂、アミノ樹脂、ゴム、及びシリコン系樹脂の含有量については、第1発明の効果を妨げない限り特に制限されないが、例えば10～95質量%、好ましくは30～90質量%、更に50～80質量%が挙げられる。

[0081] また、接着層5は、硬化剤をさらに含むことが好ましい。接着層5が硬化剤を含むことにより、接着層5の機械的強度が高められ、電池用包装材料の絶縁性を効果的に高めることができる。硬化剤は、1種類単独で使用してもよいし、2種類以上を組み合わせ使用してもよい。

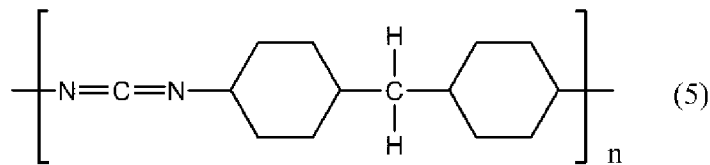
[0082] 硬化剤は、酸変性ポリオレフィン、ポリエステル樹脂、フッ素系樹脂、ポリエーテル系樹脂、ポリウレタン系樹脂、エポキシ系樹脂、フェノール樹脂系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、ポリ酢酸ビニル系樹脂、セルロース系樹脂、(メタ)アクリル系樹脂、ポリイミド系樹脂、アミノ樹脂、ゴム、またはシリコン系樹脂を硬化させるものであれば、特に限定されない。硬化剤としては、例えば、多官能イソシアネート化合物、カルボジイミド化合物、エポキシ化合物、オキサゾリン化合物などが挙げられる。

[0083] 多官能イソシアネート化合物は、2つ以上のイソシアネート基を有する化合物であれば、特に限定されない。多官能イソシアネート化合物の具体例としては、イソホロンジイソシアネート (IPDI)、ヘキサメチレンジイソ

シアネート（HD I）、トリレンジイソシアネート（TD I）、ジフェニルメタンジイソシアネート（MD I）、これらをポリマー化やヌレート化したもの、これらの混合物や他ポリマーとの共重合物などが挙げられる。

[0084] カルボジイミド化合物は、カルボジイミド基（ $-N=C=N-$ ）を少なくとも1つ有する化合物であれば、特に限定されない。カルボジイミド化合物としては、カルボジイミド基を少なくとも2つ以上有するポリカルボジイミド化合物が好ましい。特に好ましいカルボジイミド化合物の具体例としては、下記一般式（5）：

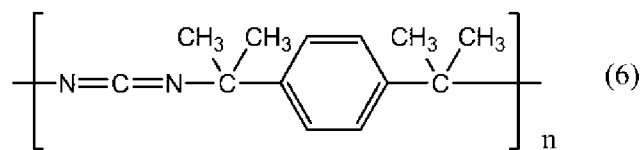
[0085] [化5]



[一般式（5）において、 n は2以上の整数である。]

で表される繰り返し単位を有するポリカルボジイミド化合物、
下記一般式（6）：

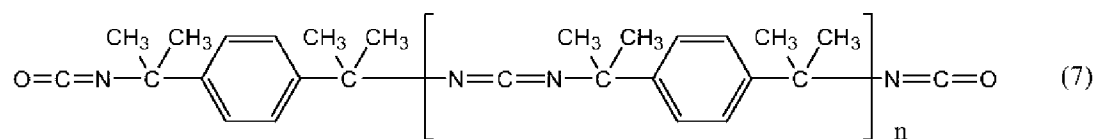
[0086] [化6]



[一般式（6）において、 n は2以上の整数である。]

で表される繰り返し単位を有するポリカルボジイミド化合物、
及び下記一般式（7）：

[0087] [化7]



[一般式（7）において、 n は2以上の整数である。]

で表されるポリカルボジイミド化合物が挙げられる。一般式（4）～（7）

において、 n は、通常30以下の整数であり、好ましくは3～20の整数である。

[0088] エポキシ化合物は、少なくとも1つのエポキシ基を有する化合物であれば、特に限定されない。エポキシ化合物としては、例えば、ビスフェノールAジグリシジルエーテル、変性ビスフェノールAジグリシジルエーテル、ノボラックグリシジルエーテル、グリセリンポリグリシジルエーテル、ポリグリセリンポリグリシジルエーテルなどのエポキシ樹脂が挙げられる。

[0089] オキサゾリン化合物は、オキサゾリン骨格を有する化合物であれば、特に限定されない。オキサゾリン化合物としては、具体的には、日本触媒社製のエポクロスシリーズなどが挙げられる。

[0090] 接着層5の機械的強度を高めるなどの観点から、硬化剤は、2種類以上の化合物により構成されていてもよい。

[0091] 接着層5において、硬化剤の含有量は、酸変性ポリオレフィン、ポリエステル樹脂、フッ素系樹脂、ポリエーテル系樹脂、ポリウレタン系樹脂、エポキシ系樹脂、フェノール樹脂系樹脂、ポリアミド系樹脂、ポリオレフィン系樹脂、ポリ酢酸ビニル系樹脂、セルロース系樹脂、(メタ)アクリル系樹脂、ポリアイミド系樹脂、アミノ樹脂、ゴム、またはシリコン系樹脂100質量部に対して、0.1質量部～50質量部の範囲にあることが好ましく、0.1質量部～30質量部の範囲にあることがより好ましい。また、接着層5において、硬化剤の含有量は、酸変性ポリオレフィンなどの各樹脂中のカルボキシル基1当量に対して、硬化剤中の反応基として1当量～30当量の範囲にあることが好ましく、1当量～20当量の範囲にあることがより好ましい。これにより、電池用包装材料の絶縁性や耐久性をより高め得る。

[0092] 接着層5が硬化剤を含む場合、接着層5は、2液硬化型接着樹脂により形成してもよいし、1液硬化型接着樹脂により形成してもよい。さらに、接着剤の接着機構についても、特に制限されず、化学反応型、溶剤揮発型、熱溶解型、熱圧型、UVやEBなどの電子線硬化型等のいずれであってもよい。

[0093] 接着層5の厚みとしては、特に制限されないが、好ましくは0.01 μm

以上、より好ましくは0.05~20 μm が挙げられる。なお、接着層5の厚みが0.01 μm 未満であると、金属層3とシーラント層4との間を安定して接着させることが困難になる場合がある。

[0094] 4. 第1発明の電池用包装材料の製造方法

第1発明の電池用包装材料の製造方法については、所定の組成の各層を積層させた積層体を得られる限り、特に制限されないが、例えば、以下の方法が例示される。

[0095] まず、基材層1、接着層2、金属層3が順に積層された積層体（以下、「積層体A」と表記することもある）を形成する。積層体Aの形成は、具体的には、基材層1と必要に応じて表面が化成処理された金属層3とを、接着層2を形成する接着剤を用いて、サーマルラミネート法、サンドラミネート法、又はこれらの組み合わせ等によって積層させることにより行われる。

[0096] サーマルラミネート法による積層体Aの形成は、例えば、基材層1と接着層2とが積層された多層フィルムを予め用意し、接着層2に金属層3を重ね合わせて加熱ロールにより、基材層1と金属層3で接着層2を挟持しながら熱圧着することにより行うことができる。また、サーマルラミネート法による積層体Aの形成は、金属層3と接着層2とが積層された多層フィルムを予め用意し、加熱した金属層3と接着層2に基材層1を重ね合わせて基材層1と金属層3で接着層2を挟持しながら熱圧着することにより行ってもよい。また、基材層1と金属層3とは、接着層2を介さずに、直接積層してもよい。

[0097] なお、サーマルラミネート法において予め用意する基材層1と接着層2とが積層された多層フィルムは、基材層1を構成する樹脂フィルムに接着層2を構成する接着剤を溶融押し出し又は溶液コーティング（液状塗工）により積層して乾燥させた後、接着層2を構成する接着剤の融点以上の温度で焼付けて形成する。焼付けを行うことにより、金属層3と接着層2との接着強度が向上する。また、サーマルラミネート法において予め用意する金属層3と接着層2とが積層された多層フィルムについても、同様に金属層3を構成す

る金属箔に接着層2を構成する接着剤を溶融押し出し又は溶液コーティングにより積層して乾燥させた後、接着層2を構成する接着剤の融点以上の温度で焼付けることにより形成される。

[0098] また、サンドラミネート法による積層体Aの形成は、例えば、接着層2を構成する接着剤を金属層3の上面に溶融押し出しして基材層1を構成する樹脂フィルムを金属層に貼り合わせるにより行うことができる。このとき、樹脂フィルムを貼り合わせて仮接着した後、再度加熱して本接着を行うことが望ましい。なお、サンドラミネート法においても接着層2を異なる樹脂種で多層化してもよい。この場合、基材層1と接着層2とが積層された多層フィルムを予め用意し、金属層3の上面に接着層2を構成する接着剤を溶融押し出して多層の樹脂フィルムとサーマルラミネート法により積層すればよい。これにより、多層フィルムを構成する接着層2と、金属層3の上面に積層された接着層2とが接着して2層の接着層2が形成される。接着層2を異なる樹脂種で多層化する場合には、金属層3と接着層2とが積層された多層フィルムを予め用意し、基材層1上に接着層2を構成する接着剤を溶融押し出して、これを金属層3上の接着層2と積層してもよい。これにより、多層の樹脂フィルと基材層1との間に2層の異なる接着剤で構成される接着層2が形成される。

[0099] 次いで、積層体Aの金属層3上に、シーラント層4を積層させる。積層体Aの金属層3上へのシーラント層4の積層は、共押し出し法、サーマルラミネート法、サンドラミネート法、コーティング法、又はこれらの組み合わせ等によって行うことができる。例えば、接着層5を設けない場合、シーラント層4は、金属層3の上にシーラント層4を溶融押し出し法、サーマルラミネート法、コーティング法などにより形成することができる。また、接着層5を設ける場合、金属層3の上に接着層5を溶融押し出し法、サーマルラミネート法、コーティング法などにより形成した後、同様の方法でシーラント層4を形成することができる。また、金属層3の上に、接着層5とシーラント層4とを同時に溶融押し出しする共押し出し法を行ってもよい。また、金属層3上に

接着層5を溶融押出しすると共に、フィルム状のシーラント層4を貼り合わせるサンドラミネート法を行うこともできる。シーラント層4が2層により形成されている場合、例えば、金属層3上に接着層5とシーラント層4の1層を共押出しした後、シーラント層4の他の1層をサーマルラミネート法で貼り付ける方法が挙げられる。また、金属層3上に接着層5とシーラント層4の1層を共押出しすると共に、フィルム状のシーラント層4の他の1層を貼り合わせる方法なども挙げられる。なお、シーラント層4を3層以上にする場合、さらに溶融押出し法、サーマルラミネート法、コーティング法などによってシーラント層4を形成することができる。

[0100] 上記のようにして、基材層1／必要に応じて設けられる接着層2／必要に応じて表面が化成処理された金属層3／必要に応じて設けられる接着層5／シーラント層4からなる積層体が形成される。接着層2の接着性を強固にするために、更に、熱ロール接触、熱風、近又は遠赤外線照射、誘電加熱、熱抵抗加熱等の加熱処理に供してもよい。このような加熱処理の条件としては、例えば150～250℃で1～10時間が挙げられる。

[0101] また、第1発明の電池用包装材料において、積層体を構成する各層は、必要に応じて、製膜性、積層化加工、最終製品2次加工（パウチ化、エンボス成形）適性等を向上又は安定化するために、コロナ処理、ブラスト処理、酸化処理、オゾン処理等の表面活性化処理を施していてもよい。

[0102] 5. 第1発明の電池用包装材料の用途

第1発明の電池用包装材料は、正極、負極、電解質などの電池素子を密封して収容するための包装材料として使用される。

[0103] 具体的には、少なくとも、正極、負極、及び電解質を備えた電池素子を、正極及び負極の各々に接続された金属端子を外側に突出させた状態で、電池素子の周縁にフランジ部（シーラント層同士が接触する領域）が形成できるようにして、第1発明の電池用包装材料で被覆する。次に、フランジ部のシーラント層同士をヒートシールして密封させることによって、第1発明の電池用包装材料で密封された電池が提供される。第1発明の電池用包装材料を

用いて電池素子を收容する場合、第1発明の電池用包装材料のシーラント層4が内側（電池素子と接する面）になるようにして用いられる。

[0104] 第1発明の電池用包装材料は、一次電池、二次電池のいずれにも用いることができるが、特に二次電池に用いることが適している。第1発明の電池用包装材料が適用される二次電池の種類としては、特に制限されず、例えば、リチウムイオン電池、リチウムイオンポリマー電池、鉛蓄電池、ニッケル・水素蓄電池、ニッケル・カドミウム蓄電池、ニッケル・鉄蓄電池、ニッケル・亜鉛蓄電池、酸化銀・亜鉛蓄電池、金属空気電池、多価カチオン電池、コンデンサー、キャパシタなどが挙げられる。これらの二次電池の中でも、第1発明の電池用包装材料の好適な適用対象として、リチウムイオン電池及びリチウムイオンポリマー電池が挙げられる。

[0105] 第1発明の電池用包装材料において、シーラント層4同士を対向させた状態でヒートシール（ヒートシール条件：190℃、面圧1.0MPaで3秒間）した部分のシール強度としては、25℃において、好ましくは30（N/15mm）以上、より好ましくは40～200（N/15mm）が挙げられる。また、第1発明の電池用包装材料において、シーラント層4同士を対向させた状態でヒートシール（ヒートシール条件：190℃、面圧1.0MPaで3秒間）した部分のシール強度としては、125℃において、好ましくは4（N/15mm）以上、より好ましくは5～100（N/15mm）が挙げられる。さらに、第1発明の電池用包装材料の引張降伏点強度（MD+TD）としては、好ましくは50MPa以下、より好ましくは35MPa以下が挙げられる。第1発明の電池用包装材料の引張降伏点強度がこのような低い値になる場合、シーラント層4が柔らかく、電池用包装材料が延伸された場合のクラックの発生がより効果的に抑制されるため、成形性に優れ、さらに、シール部を屈曲した場合のクラックの発生がより効果的に抑制されるため、絶縁性も優れる。すなわち、樹脂組成物の融点を実質的に下げることなく、樹脂組成物に高い柔軟性を付与することが可能となる。これにより、第1発明の樹脂組成物を電池用包装材料のシーラント層に用いた場合に、

後述の電池用包装材料の引張降伏点強度（MD + TD）を低くすることができ、ヒートシール時に付加される圧力を均一化する効果が高くなり、均一なシールが可能となって、高い密封性が得られる。さらに、ヒートシール後に起こる樹脂冷却において、樹脂組成物における結晶核の成長や結晶核数の増加を抑制する効果が発現し、シール後の結晶核の増大や不均一化で起こる微細なクラック等が防止できる。このため、シール強度を高め得るとともに、内容物である電解液の浸透性を抑制することも可能となり、安定した密封性が得られる。なお、第1発明の電池用包装材料の引張降伏点強度は、JIS K 7161-1994に準拠した方法により測定した値である。

[0106] 6. 第2発明の樹脂組成物

第2発明の樹脂組成物は、例えば後述するような電池用包装材料のシーラント層に用いられる樹脂組成物であって、アイソタクチック分率（mm）が99%以下であるポリオレフィン系樹脂を含む。なお、ポリオレフィン系樹脂のアイソタクチック分率（mm）は、¹³C核磁気共鳴スペクトルの測定により得られた値である。

[0107] 上述の通り、電池の製造過程においては、電池用包装材料によって電池素子を封止する際に、ヒートシール部を内側に屈曲して成形する場合がある。このとき、シーラント層のヒートシール部またはその近傍部分においてクラックが発生し、電池用包装材料の絶縁性が低下しやすくなる。特に、ヒートシール部が薄く（例えば40μm以下）形成されると、絶縁性の低下が顕著になるという問題がある。これに対して、第2発明の樹脂組成物を電池用包装材料のシーラント層に用いることにより、シーラント層を薄く形成した場合にも、ヒートシール部を屈曲した際の絶縁性の低下を効果的に抑制することができる。第2発明の樹脂組成物をシーラント層に用いることにより、シーラント層の厚みを薄くした場合にも、絶縁性が高められる機序の詳細は必ずしも明らかではないが、例えば、次のように考えることができる。すなわち、第2発明の樹脂組成物に含まれるアイソタクチック分率（mm）が99%以下であるポリオレフィン系樹脂は、高分子鎖の立体規則性が低く、結晶

性が低い。このため、第2発明の樹脂組成物により形成された層がシーラント層に含まれる場合、電池用包装材料のヒートシール部が屈曲された際に加わる外部応力に対してもシーラント層が追従しやすくなり、クラックの発生が抑制され、結果として絶縁性が高められていると考えられる。

[0108] ポリオレフィン系樹脂のアイソタクチック分率 (mm) としては、99%以下であれば特に制限されないが、シーラント層を薄く形成した場合にも、電池用包装材料に高い絶縁性を付与し得る観点からは、好ましくは90%以上、より好ましくは93%以上、さらに好ましくは95%以上が挙げられる。

[0109] 第2発明の樹脂組成物に含まれるポリオレフィン系樹脂は、上記のアイソタクチック分率を充足するものであれば、特に制限されない。ポリオレフィン系樹脂は、1種類の樹脂により構成されていてもよいし、2種類以上の樹脂により構成されていてもよい。ポリオレフィン系樹脂は、例えば、ポリオレフィンにより構成することができる。ポリオレフィンについては、上記の物性を有するものであれば、特に制限されないが、例えば、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、線状低密度ポリエチレン等のポリエチレン；ホモポリプロピレン、ポリプロピレンのブロックコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのブロックコポリマー）、ポリプロピレンのランダムコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのランダムコポリマー）等の結晶性又は非晶性のポリプロピレン；エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマー等が挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、耐熱性の点で、好ましくは、少なくともプロピレンを構成モノマーとして有するポリオレフィン、更に好ましくは、プロピレン-エチレンのランダムコポリマー、プロピレン-エチレン-ブテンのターポリマー、及びプロピレンのホモポリマーが挙げられ、特に好ましくはプロピレン-エチレンのランダムコポリマーが挙げられる。これらのポリオレフィンは、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0110] ポリオレフィン系樹脂を構成する樹脂として、ポリオレフィン以外の樹脂

としては、例えば、酸変性ポリオレフィンが挙げられる。酸変性ポリオレフィンとは、ポリオレフィンを不飽和カルボン酸でグラフト重合すること等により変性したポリマーである。酸変性されるポリオレフィンとしては、具体的には、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、線状低密度ポリエチレン等のポリエチレン；ホモポリプロピレン、ポリプロピレンのブロックコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのブロックコポリマー）、ポリプロピレンのランダムコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのランダムコポリマー）等の結晶性又は非晶性のポリプロピレン；エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマー等が挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、耐熱性の点で、好ましくは、少なくともプロピレンを構成モノマーとして有するポリオレフィン、更に好ましくは、エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマー、及びプロピレン-エチレンのランダムコポリマーが挙げられる。変性に使用される不飽和カルボン酸としては、例えば、マレイン酸、アクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸等が挙げられる。これらの不飽和カルボン酸の中でも、好ましくはマレイン酸、無水マレイン酸が挙げられる。これらの酸変性ポリオレフィンは、1種単独で使用してもよく、また2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0111] 電池用包装材料のヒートシール部を屈曲した際の絶縁性をより一層高める観点からは、ポリオレフィン系樹脂は、エチレン単位の含有量が0.1~10mol%程度であることが好ましく、1~8mol%程度であることがより好ましく、1~6mol%程度であることがさらに好ましい。ポリオレフィン系樹脂のエチレン単位の含有量がこのような範囲にあることにより、ポリオレフィン系樹脂を構成する分子鎖の可動性が高まり、柔軟性が高められると考えられる。このため、電池用包装材料のヒートシール部が屈曲された際に加わる外部応力に対してもシーラント層がより追従しやすくなり、クラックの発生が抑制され、結果として絶縁性がより高められていると考えられる。なお、第2発明において、ポリオレフィン系樹脂のエチレン単位の含有

量は、 ^{13}C 核磁気共鳴スペクトルの測定により得られた値である。

[0112] また、電池用包装材料のヒートシール部を屈曲した際の絶縁性をより一層高める観点からは、ポリオレフィン系樹脂は、 80°C においてn-デカンに可溶性成分量が0.1~15質量%であることが好ましく、1~12質量%であることがより好ましく、1~10質量%であることがより好ましい。立体規則性の低い高分子ほどn-デカンに溶出しやすい傾向を有するため、ポリオレフィン系樹脂の 80°C におけるn-デカンに可溶性成分量がこのような範囲にあることにより、ポリオレフィン系樹脂を構成する分子鎖の可動性が高まり、柔軟性が高められると考えられる。このため、電池用包装材料のヒートシール部が屈曲された際に加わる外部応力に対してもシーラント層がより追従しやすくなり、クラックの発生が抑制され、結果として絶縁性がより高められていると考えられる。なお、ポリオレフィン系樹脂において、n-デカンに可溶性成分量は、100質量部のポリオレフィン系樹脂を 80°C で1000質量部のn-デカン中で攪拌し、溶解しなかったポリオレフィン系樹脂の量から算出した値である。

[0113] ポリオレフィン系樹脂のアイソタクチック分率、エチレン単位の含有量、 80°C においてn-デカンに可溶性成分量などの物性は、ポリオレフィン系樹脂の分子量、構成モノマーの種類や比率等によって定まる。ポリオレフィン系樹脂においては、少なくともアイソタクチック分率(mm)が99%以下の物性となるように、その分子量、構成モノマーの種類や比率等が設定される。

[0114] 7. 第2発明の電池用包装材料

第2発明の電池用包装材料は、少なくとも、基材層1、金属層3、及びシーラント層4をこの順に有する積層体からなる。図1に示すように、第2発明の電池用包装材料は、基材層1と金属層3との間に接着層2を有していてもよい。第2発明の電池用包装材料が電池に使用される際には、基材層1が最外層になり、シーラント層4が最内層(電池素子側)になる。電池の組み立て時に、電池素子の周縁に位置するシーラント層4同士を接面させて熱溶

着することにより電池素子が密封され、電池素子が封止される。また、第2発明の電池用包装材料は、図2に示すように、金属層3とシーラント層4との間に接着層5を有していてもよい。

[0115] 8. 第2発明の電池用包装材料を形成する各層の組成

第2発明における基材層1、接着層2、及び金属層3については、上記第2発明と同様である。

[0116] [シーラント層4]

第2発明の電池用包装材料において、シーラント層4は、最内層に該当し、電池の組み立て時にシーラント層4同士が熱溶着して電池素子を密封する層である。第2発明において、シーラント層4は、第2発明の樹脂組成物により形成された層を含む。シーラント層4は、第2発明の樹脂組成物により形成された1層により構成されていてもよいし、当該樹脂組成物により形成された複数の層により構成されていてもよい。また、シーラント層4は、第2発明の樹脂組成物により形成された層に加えて、さらに第2発明の樹脂組成物により形成されていない他の層を1層以上有していてもよい。例えば、第2発明電池用包装材料において、シーラント層4は、金属層3側に位置する第1シーラント層と、シーラント層4の中でも最内層に位置する第2シーラント層により形成されており、第2シーラント層が第2発明の樹脂組成物により形成された層に該当し、第1シーラント層が第2発明の樹脂組成物により形成されていない他の層に該当する層構成を有していてもよいし、その逆の層構成などを有していてもよい。

[0117] なお、第2発明の樹脂組成物により形成された層は、アイソタクチック分率が99%を超えるポリオレフィン系樹脂を含んでいてもよい。また、第2発明の樹脂組成物により形成された層は、ポリオレフィン系樹脂以外の樹脂を含んでいてもよい。

[0118] 第2発明の樹脂組成物により形成された層が、アイソタクチック分率が99%を超えるポリオレフィン系樹脂、またはポリオレフィン系樹脂以外の樹脂を含む場合、当該層中のアイソタクチック分率が99%以下のポリオレフ

イン系樹脂の含有量については、第2発明の効果を妨げない限り特に制限されないが、好ましくは50質量%以上が挙げられる。第2発明の樹脂組成物により形成された層は、実質的にアイソタクチック分率が99%以下のポリオレフィン系樹脂のみにより形成されていてもよい。

[0119] シーラント層4において、第2発明の樹脂組成物により形成された層の融点 T_{m1} としては、特に制限されないが、電池用包装材料のヒートシール部を屈曲した際の絶縁性をより一層高める観点からは、好ましくは100~160℃、より好ましくは105~150℃、さらに好ましくは110~140℃が挙げられる。また、第2発明の樹脂組成物により形成された層の軟化点 T_{s1} としては、特に制限されないが、融点と同様の観点からは、好ましくは60~150℃、より好ましくは65~140℃、さらに好ましくは70~120℃が挙げられる。

[0120] ここで、上記の融点 T_{m1} は、第2発明の樹脂組成物により形成された層を構成する樹脂成分の融点をJIS K6921-2 (ISO1873-2, 2:95)に準拠しDSC法により測定した値である。また、この層が複数の樹脂成分を含むブレンド樹脂で形成されている場合には、その融点 T_{m1} は、当該ブレンド樹脂をJIS K6921-2 (ISO1873-2, 2:95)に準拠しDSC法に供し、総ピーク面積を1として各樹脂成分に該当する融点のピーク面積の比率を算出し、各樹脂成分に該当する融点と当該ピーク面積の比率を掛けた値(融点×面積比)を算出し、更に融点毎に算出された当該値(融点×面積比)を加算することにより求められる。

[0121] また、上記の軟化点 T_{s1} は、ピカット軟化温度試験法JIS K7206により測定される値である。また、この層が、複数の樹脂成分を含むブレンド樹脂で形成されている場合には、その軟化点 T_{s1} は、当該ブレンド樹脂の構成成分の軟化点×配合分率の和により求められる。

[0122] 電池用包装材料の高い絶縁性を維持しつつ、シーラント層4をできるだけ薄く形成する観点からは、第2発明の樹脂組成物により形成された層の厚みとしては、例えば、1~20 μm 、好ましくは3~18 μm 、更に好ましく

は5～15 μm が挙げられる。

[0123] 一方、第2発明の樹脂組成物により形成されておらず、任意に設けられる他の層を形成する樹脂としては、第2発明の効果を奏することを限度として特に制限されないが、例えば、カルボン酸変性ポリオレフィン、カルボン酸変性環状ポリオレフィンなどの酸変性ポリオレフィンや、ポリオレフィン、環状ポリオレフィンが挙げられる。

[0124] ポリオレフィンとしては、具体的には、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、線状低密度ポリエチレンなどのポリエチレン；ホモポリプロピレン、ポリプロピレンのブロックコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのブロックコポリマー）、ポリプロピレンのランダムコポリマー（例えば、プロピレンとエチレンのランダムコポリマー）などの結晶性または非晶性のポリプロピレン；エチレン-ブテン-プロピレンのターポリマーなどが挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、ポリエチレン及びポリプロピレンが好ましい。

[0125] 環状ポリオレフィンとは、オレフィンと環状モノマーとの共重合体である。オレフィンとしては、例えば、エチレン、プロピレン、4-メチル-1-ペンテン、スチレン、ブタジエン、イソプレンなどが挙げられる。また、環状モノマーとしては、例えば、ノルボルネンなどの環状アルケン；シクロペンタジエン、ジシクロペンタジエン、シクロヘキサジエン、ノルボルナジエンなどの環状ジエンなどが挙げられる。これらのポリオレフィンの中でも、環状アルケンが好ましく、ノルボルネンがさらに好ましい。

[0126] カルボン酸変性ポリオレフィンとは、上記のようなポリオレフィンをカルボン酸で変性したポリマーである。変性に使用されるカルボン酸としては、例えば、マレイン酸、アクリル酸、イタコン酸、クロトン酸、無水マレイン酸、無水イタコン酸などが挙げられる。

[0127] カルボン酸変性環状ポリオレフィンとは、環状ポリオレフィンを構成するモノマーの一部を、 α 、 β -不飽和カルボン酸またはその酸無水物に代えて共重合することにより、或いは環状ポリオレフィンに対して α 、 β -不飽和

カルボン酸またはその酸無水物をブロック共重合またはグラフト共重合することにより得られるポリマーである。カルボン酸変性される環状ポリオレフィン、上記の環状ポリオレフィンと同様とすることができる。また、変性に使用されるカルボン酸としては、上記の酸変性シクロオレフィンコポリマーの変性に用いられるものと同様とすることができる。

[0128] これらの樹脂成分の中でも、好ましくは酸変性ポリオレフィン、結晶性または非晶性のポリオレフィン、環状ポリオレフィン、及びこれらのブレンドポリマー；さらに好ましくはポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンとノルボルネンの共重合体、及びこれらの中の2種類以上のブレンドポリマーが挙げられる。

[0129] 他の層は、1種類の樹脂成分のみから形成されていてもよく、2種類以上の樹脂成分を組み合わせたブレンドポリマーから形成されていてもよい。

[0130] シーラント層4において、他の層の融点 T_{m2} としては、特に制限されないが、電池用包装材料のヒートシール部を屈曲した際の絶縁性をより一層高める観点からは、好ましくは $100\sim 160^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $105\sim 150^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $110\sim 140^{\circ}\text{C}$ が挙げられる。また、他の層の軟化点 T_{s2} としては、特に制限されないが、融点と同様の観点からは、好ましくは $60\sim 150^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $65\sim 140^{\circ}\text{C}$ 、さらに好ましくは $75\sim 120^{\circ}\text{C}$ が挙げられる。

[0131] なお、他の層の融点 T_{m2} 及び軟化点 T_{s2} の算出方法は、上記の第2発明の樹脂組成物により形成された層の融点 T_{m1} 及び軟化点 T_{s1} の場合と同様である。

[0132] (シーラント層4の総厚み)

シーラント層4の総厚みとしては、電池用包装材料の高い絶縁性を維持しつつ、シーラント層4をできるだけ薄く形成する観点からは、好ましくは $40\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $20\sim 40\mu\text{m}$ が挙げられる。

[0133] [接着層5]

第2発明の電池用包装材料においては、金属層3とシーラント層4を強固

に接着させることなどを目的として、金属層3とシーラント層4との間に接着層5をさらに設けてもよい。

[0134] 接着層5は、金属層3と後述のシーラント層4とを接着可能な接着剤成分によって形成される。接着層5の形成に使用される接着剤は、2液硬化型接着剤であってもよく、また1液硬化型接着剤であってもよい。また、接着層5の形成に使用される接着剤成分の接着機構についても、特に限定されず、例えば、化学反応型、溶剤揮発型、熱溶融型、熱圧型などが挙げられる。

[0135] 接着層5の形成に使用できる接着剤成分の具体的としては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエチレンナフタレート、ポリブチレンナフタレート、ポリエチレンイソフタレート、ポリカーボネート、共重合ポリエステルなどのポリエステル系樹脂；ポリエーテル系接着剤；ポリウレタン系接着剤；エポキシ系樹脂；フェノール樹脂系樹脂；ナイロン6、ナイロン66、ナイロン12、共重合ポリアミドなどのポリアミド系樹脂；ポリオレフィン、カルボン酸変性ポリオレフィン、金属変性ポリオレフィンなどのポリオレフィン系樹脂、ポリ酢酸ビニル系樹脂；セルロース系接着剤；（メタ）アクリル系樹脂；ポリイミド系樹脂；尿素樹脂、メラミン樹脂などのアミノ樹脂；クロロプレンゴム、ニトリルゴム、スチレンーブタジエンゴムなどのゴム；シリコーン系樹脂などが挙げられる。これらの接着剤成分は1種類のみを用いてもよく、2種類以上を組み合わせ用いてもよい。

[0136] 接着層5の厚みとしては、特に制限されないが、好ましくは0.01 μ m以上、より好ましくは0.05~20 μ mが挙げられる。

[0137] 9. 第2発明の電池用包装材料の製造方法

第2発明の電池用包装材料の製造方法は、第1発明の樹脂組成物の代わりに第2発明の樹脂組成物を用いること以外は、上記の「4. 第1発明の電池用包装材料の製造方法」と同様である。

[0138] 10. 第2発明の電池用包装材料の用途

第2発明の電池用包装材料の用途は、上記の「5. 第1発明の電池用包装

材料の用途」と同様である。

実施例

[0139] 以下に実施例及び比較例を示して本発明の第1発明及び第2発明を詳細に説明する。但し、本発明の第1発明及び第2発明は実施例に限定されるものではない。

[0140] 第1発明の実施例1A-10A及び比較例1A-6A

[電池用包装材料の製造]

二軸延伸ナイロンフィルム（厚さ25 μm ）からなる基材層の上に、両面に化成処理を施したアルミニウム箔（厚さ40 μm ）からなる金属層をドライミネーション法により積層させた。具体的には、アルミニウム箔の一方面に、2液型ウレタン接着剤（ポリエステル系の主剤とイソシアネート系の硬化剤）を塗布し、金属層上に接着層（厚さ4 μm ）を形成した。次いで、金属層上の接着層と基材層を加圧加熱貼合した後、60 $^{\circ}\text{C}$ で24時間のエージング処理を実施することにより、基材層/接着層/金属層の積層体を調製した。なお、金属層として使用したアルミニウム箔の化成処理は、フェノール樹脂、フッ化クロム化合物、及びリン酸からなる処理液をクロムの塗布量が10 mg/m^2 （乾燥重量）となるように、ロールコート法によりアルミニウム箔の両面に塗布し、皮膜温度が180 $^{\circ}\text{C}$ 以上となる条件で20秒間焼付けすることにより行った。

[0141] 次いで、金属層の上に、カルボン酸変性ポリプロピレン樹脂により形成された接着層と、表1Aに記載の樹脂により形成されたシーラント層4とを共押出法により積層させた。かくして、基材層/接着層/金属層/接着層/シーラント層が順に積層された積層体からなる電池用包装材料を得た。シーラント層4に用いた樹脂は、表1に記載のプロピレン-エチレン共重合体、プロピレン系エラストマー、及び低立体規則性樹脂である。なお、実施例A及び比較例Aで使用した低立体規則性樹脂の製品名は、以下の通りである。

<低立体規則性オレフィン>

実施例3A、5A、10A、比較例6A：出光興産株式会社製の製品名「エ

ルモードYS400」

実施例4A：出光興産株式会社製の製品名「エルモードYS901」

[0142] なお、各位樹脂成分の融点は、示差走査熱量計（DSC）により測定される値である。また、230℃におけるメルトフローレート（MFR）は、JIS K7210に記載の方法に準拠し、メルトフローレート測定器を用いて測定される値である。重量平均分子量は、標準サンプルとしてポリスチレンを用いたゲル浸透クロマトグラフ（GPC）により測定した値である。低立体規則性オレフィンのメソペンタッド分率（mmmm）は、¹³C核磁気共鳴スペクトルの測定により測定した値である。

[0143] 次に、実施例1A～10A及び比較例1A～6Aで得られた電池用包装材料について、それぞれ、以下の項目を評価した。結果を表2Aに示す。

[0144] <引張降伏点強度の測定>

引張降伏点強度は、JIS K7161-1994に準拠し、幅15mm、長さ100mmのサンプルを用意し、引っ張り速度300mm/分として測定した。

[0145] <シール強度の測定>

(1) 25℃の場合

シーラント層同士が対向するようにして電池用包装材料を重ね、190℃、面圧1.0MPaで3秒間の条件でヒートシールした後、25℃で2分間放置し、25℃下において、引張り試験機（島津製作所製、AGS-50D（商品名））でヒートシール部のシーラント層を300mm/分の速度で10mm剥離させ、剥離時の最大強度をシール強度とした。

(2) 125℃の場合

シーラント層同士が対向するようにして電池用包装材料を重ね、190℃、面圧1.0MPaで3秒間の条件でヒートシールした後、125℃で2分間放置し、125℃下において、引張り試験機（島津製作所製、AGS-50D（商品名））でヒートシール部のシーラント層を300mm/分の速度で10mm剥離させ、剥離時の最大強度をシール強度とした。

(3) 電解液に晒した場合

電池用包装材料を、それぞれ150mm (MD方向、縦方向) × 80mm (TD方向、横方向) に裁断した後、MD方向の中央で折り返し、75mm × 80mmとした。次に、MD方向の2辺を7mm幅で内寸法75mm (MD方向) × 65mm (TD方向) となるようにヒートシールし、袋状とした。次に、ヒートシールしていない1辺の開口から電解液(1MのLiPF₆と、エチレンカーボネート、ジエチルカーボネート及びジメチルカーボネート(容量比1:1:1)の混合液とからなる)を3g充填し、この1辺をヒートシールした。なお、ヒートシール条件は、いずれも190℃、面圧1.0MPaで3秒間とした。次に、最後にヒートシールした1辺が下になる様にして、65℃で14日環静置した。次に、25℃になるまで室温で放置した後、25℃下において、引張り試験機(島津製作所製、AGS-50D(商品名))でヒートシール部のシーラント層を300mm/分の速度で10mm剥離させ、剥離時の最大強度をシール強度とした。

[0146] <延伸によるクラック発生の有無>

各電池用包装材料を150mm (MD方向) × 80mm (TD方向) に裁断した後、35mm × 50mmの口径の成形金型(メス型)とこれに対応した成形金型(オス型)にて、0.4MPaで3.0mmの深さに冷間成形し、その中心部分に凹部を形成した。その後、凹部分の白化の有無を目視で確認した。

[0147] <シール部を屈曲した後の絶縁性の評価>

電池用包装材料を60mm (MD方向) × 60mm (TD方向) のシート片に裁断した。次に、これらのシート片をMD方向に2つ折りし、対向する2辺を7mm巾でヒートシールして1辺が開口を有するパウチタイプの外装体を作製した。次に、得られた外装体を、開口する1辺から金属端子が外部に延出するようにセルを含むリチウムイオン電池本体を封入し、電解液を入れ金属端子を挟持しながら、開口部を3mm巾で密封シールして、リチウムイオン電池を作製した。このとき、ヒートシールは、面圧2.0MPa、シ

ール温度170℃、シール時間5.0秒の条件で行なった。次に、得られたリチウムイオン電池のヒートシールした部分を内側に屈曲し、元に戻した。次に、インパルス印加方式（株式会社日本テクナート製、リチウムイオン電池絶縁試験器）を用いて、クラックに対する絶縁性評価試験を実施した。まず、上記リチウムイオン電池を、それぞれ10個用意して、各リチウムイオン電池の負極端子とアルミニウム箔との間に印加電圧100Vのインパルス電圧を印加し、99 msec後の電圧降下が40V以内のものを合格とし、合格品の割合が50%以上のものを○とした。合格品の割合が50%未満のものを×とした。

[0148]

[表1A]

	プロピレン-エチレン共重合体					ポリプロピレン系エラストマー				低立体規則性オレフィン					
	重合タイプ	エチレンの割合(質量%)	融点(°C)	230°C MFR (g/10分)	含有量(質量%)	融点(°C)	230°C MFR (g/10分)	含有量(質量%)	融点(°C)	重量平均分子量	含有量(質量%)	融点(°C)	重量平均分子量	含有量(質量%)	メソペンタッド分率(%)
実施例1A	ランダム	3	158	7	50	145	8	50	-	-	-	-	-	-	-
実施例2A	ランダム	2.5	159	7	80	160	30	20	-	-	-	-	-	-	-
実施例3A	ランダム	3	158	4	65	160	7	25	80	4.5万	10	80	4.5万	50	
実施例4A	ランダム	5	157	7	65	160	7	30	80	12万	5	80	12万	40	
実施例5A	ランダム	3	160	12	60	140	30	35	80	4.5万	5	80	4.5万	45	
実施例6A	ブロック	5	161	2	50	145	30	50	-	-	-	-	-	-	
実施例7A	ブロック	5	161	2	50	160	7	50	-	-	-	-	-	-	
実施例8A	ブロック	2	162	4	72	160	30	28	-	-	-	-	-	-	
実施例9A	ブロック	2	162	2	50	138	7	50	-	-	-	-	-	-	
実施例10A	ブロック	7	159	9	60	160	7	35	80	4.5万	5	80	4.5万	70	
比較例1A	ポリエチレン	100	120	7	100	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
比較例2A	ランダム	3	158	7	100	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
比較例3A	ランダム	8	132	7	100	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
比較例4A	ブロック	5	161	2	100	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
比較例5A	ランダム	3	158	7	50	80	25	50	-	-	-	-	-	-	-
比較例6A	ランダム	8	132	7	65	140	30	25	80	4.5万	10	80	4.5万	50	

[0149]

[表2A]

	引張降伏点強度 (MD+TD) (Mpa)	シール強度 (N/15mm)			延伸でのクラック 目視	シール部を屈曲した 後の絶縁性評価
		25℃	125℃	電解液		
実施例1A	35	83	25	78	無し	○
実施例2A	37	78	20	70	無し	○
実施例3A	25	100	30	94	無し	○
実施例4A	30	92	32	90	無し	○
実施例5A	30	90	25	85	無し	○
実施例6A	35	85	30	85	無し	○
実施例7A	42	75	40	72	無し	○
実施例8A	48	72	50	42	無し	○
実施例9A	45	73	45	69	無し	○
実施例10A	30	90	40	85	無し	○
比較例1A	35	60	10	5	無し	○
比較例2A	55	71	15	65	有り	×
比較例3A	40	72	15	70	有り	×
比較例4A	60	70	25	65	有り	○
比較例5A	55	65	10	30	有り	×
比較例6A	40	65	15	60	無し	○

[0150] 表1A及び表2Aに示されるように、融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び融点が135℃以上のポリプロピレン系エラストマーをシーラント層に用いた実施例1A及び2Aの電池用包装材料では、引張降伏点強度が低く、25℃下、125℃下、及び電解液に晒した場合のシール強度も高かった。さらに、実施例1A及び2Aの電池用包装材料では、延伸によるクラックも見られず、シール部を屈曲した後の絶縁性も高かった。また、低立体規則性オレフィンをシーラント層にさらに配合した実施例3A～5Aの電池用包装材料においては、引張降伏点強度がさらに低くなり、シール強度も非常に高くなった。

[0151] 融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体、及び融点が135℃以上のポリプロピレン系エラストマーをシーラント層に用いた実施例6A～9Aの電池用包装材料においても、引張降伏点強度が低く、25℃下、125℃下、及び電解液に晒した場合のシール強度も高かった。さらに、実施例6A～9Aの電池用包装材料では、延伸によるクラックも見られず、シール部を屈曲した後の絶縁性も高かった。また、低立体規則性オレフィンをシーラント層にさらに配合した実

施例 10A の電池用包装材料においては、引張降伏点強度がさらに低くなり、シール強度も非常に高くなった。

[0152] 一方、シーラント層をポリエチレンで形成した比較例 1A の電池用包装材料では、引張降伏点強度は低かったものの、125℃のシール強度が低くなる傾向を示し、電解液に晒した後のシール強度が著しく低かった。また、シーラント層に、融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体を用いたものの、融点が135℃以上のポリプロピレン系エラストマーを用いなかった比較例 2A 及び 3A の電池用包装材料では、シール部を屈曲した後の絶縁性が低かった。また、比較例 2A 及び 3A の電池用包装材料では、125℃のシール強度が低くなる傾向を示し、延伸でのクラックも認められた。シーラント層に、融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体を用いたものの、融点が80℃のポリプロピレン系エラストマーを用いた比較例 5A の電池包装材料では、電解液に晒した後におけるシール強度が低く、電解液の変色が観察され、添加したポリプロピレンエラストマーの溶解が認められた。また、比較例 5A では、延伸でのクラックも認められ、シール部を屈曲した後の絶縁性が悪かった。

[0153] 融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体を用いたものの、融点が135℃以上のポリプロピレン系エラストマーを用いなかった比較例 4A の電池用包装材料では、引張降伏点強度が非常に高くなり、延伸でのクラックが認められた。融点が135℃以上のポリプロピレン系エラストマー、メソペンダット分率 (mmmm) が90%以下の低立体規則性オレフィンを用いたものの、融点が132℃でエチレン含有量が8質量%のプロピレン-エチレンのランダム共重合体を用いた比較例 6A は、引張降伏点強度は低かったものの、125℃でのシール強度が低くなった。

[0154] 第2発明の実施例 1B-16B 及び比較例 1B-4B

[電池用包装材料の製造]

二軸延伸ナイロンフィルム（厚さ25 μm ）からなる基材層の上に、両面に化成処理を施したアルミニウム箔（厚さ40 μm ）からなる金属層をドライミネーション法により積層させた。具体的には、アルミニウム箔の一方面に、2液型ウレタン接着剤（ポリエステル系の主剤とイソシアネート系の硬化剤）を塗布し、金属層上に接着層（厚さ4 μm ）を形成した。次いで、金属層上の接着層と基材層を加圧加熱貼合した後、60 $^{\circ}\text{C}$ で24時間のエージング処理を実施することにより、基材層／接着層／金属層の積層体を調製した。なお、金属層として使用したアルミニウム箔の化成処理は、フェノール樹脂、フッ化クロム化合物、及びリン酸からなる処理液をクロムの塗布量が10 mg/m^2 （乾燥重量）となるように、ロールコート法によりアルミニウム箔の両面に塗布し、皮膜温度が180 $^{\circ}\text{C}$ 以上となる条件で20秒間焼付けすることにより行った。

[0155] 次いで、前記積層体の金属層側に第1シーラント層を形成する樹脂と第2シーラント層を形成する樹脂を熔融状態で共押し出しすることにより、金属層3上に第1シーラント層と第2シーラント層を積層させた。各シーラント層を形成する樹脂、厚み、及び融点については、表1Bに示す通りである。また、第2シーラント層を形成する樹脂について、エチレン単位の含有量（ $\text{mol}\%$ ）、アイソタクチック分率（ $\%$ ）、及び n -デカンに可溶性成分（質量 $\%$ ）は、それぞれ、表1Bの通りである。斯して、基材層1／接着層2／金属層3／第1シーラント層4a／第2シーラント層4bが順に積層された積層体からなる電池用包装材料を得た。

[0156] なお、各樹脂の融点は、示差走査熱量計（DSC）により測定された値である。また、エチレン単位の含有量及びアイソタクチック分率（ mm ）は、それぞれ、 ^{13}C 核磁気共鳴スペクトルの測定により得られた値である。また、樹脂の n -デカンに可溶性成分は、100質量部の樹脂を80 $^{\circ}\text{C}$ で1000質量部の n -デカン中で攪拌し、溶解しなかった樹脂の量から算出した。

[0157] 次に、実施例1B～16B及び比較例1B～4Bで得られた電池用包装材料について、以下の様にして、シール部を屈曲した後の絶縁性を評価した。

[0158] <シール部を1回屈曲した後の絶縁性の評価>

電池用包装材料を60mm(MD方向)×60mm(TD方向)のシート片に裁断した。次に、これらのシート片をMD方向に2つ折りし、対向する2辺を7mm巾でヒートシールして1辺が開口を有するパウチタイプの外装体を作製した。次に、得られた外装体を、開口する1辺から金属端子が外部に延出するようにセルを含むリチウムイオン電池本体を封入し、電解液を入れ金属端子を挟持しながら、開口部を3mm巾で密封シールして、リチウムイオン電池を作製した。このとき、ヒートシールは、面圧2.0MPa、シール温度170℃、シール時間5.0秒の条件で行なった。次に、得られたリチウムイオン電池のヒートシールした部分を内側に屈曲し、元に戻した。次に、インパルス印加方式(株式会社日本テクナート製、リチウムイオン電池絶縁試験器)を用いて、クラックに対する絶縁性評価試験を実施した。まず、上記リチウムイオン電池を、それぞれ20個用意して、各リチウムイオン電池の負極端子とアルミニウム箔との間に印加電圧100Vのインパルス電圧を印加し、99msec後の電圧降下が20V以内のものを合格とした。合格品の割合を表1Bに示す。

[0159]

[表1B]

	第1シールド層			第2シールド層						n-デカン可溶成分量 (質量%)	シール部を1回屈曲した後の絶縁性評価 (合格品の割合)
	樹脂	融点 (°C)	厚み (μm)	樹脂	融点 (°C)	厚み (μm)	エチレン単位の含量 (mol%)	アインタクチック分率 (%)			
実施例1B	PPa(1)	160	15	PP(1)	150	15	1	95	5	90%	
実施例2B	PPa(1)	160	15	PP(1)	150	8	1	95	5	80%	
実施例3B	PPa(1)	160	15	PP(2)	155	15	1	99	5	85%	
実施例4B	PPa(1)	160	15	PP(2)	155	8	1	99	5	80%	
実施例5B	PPa(1)	160	15	PP(3)	140	15	6	95	5	95%	
実施例6B	PPa(1)	160	15	PP(3)	140	8	6	95	5	80%	
実施例7B	PPa(1)	160	15	PP(4)	145	15	6	99	5	80%	
実施例8B	PPa(1)	160	15	PP(4)	145	8	6	99	5	75%	
実施例9B	PPa(2)	140	15	PP(5)	150	15	3	95	1	90%	
実施例10B	PPa(2)	140	15	PP(5)	150	8	3	95	1	80%	
実施例11B	PPa(2)	140	15	PP(6)	155	15	3	99	1	80%	
実施例12B	PPa(2)	140	15	PP(6)	155	8	3	99	1	75%	
実施例13B	PPa(2)	140	15	PP(7)	130	15	3	95	10	90%	
実施例14B	PPa(2)	140	15	PP(7)	130	8	3	95	10	85%	
実施例15B	PPa(2)	140	15	PP(8)	135	15	3	99	10	85%	
実施例16B	PPa(2)	140	15	PP(8)	135	8	3	99	10	75%	
比較例1B	PPa(1)	160	15	PP(9)	156	15	1	99.5	5	20%	
比較例2B	PPa(1)	160	15	PP(10)	141	15	6	99.5	5	40%	
比較例3B	PPa(1)	160	15	PP(11)	157	15	3	99.5	1	10%	
比較例4B	PPa(1)	160	15	PP(12)	138	15	3	99.5	10	25%	

[0160] 表1Bに記載の樹脂は、以下の通りである。

PPa(1) : 酸変性ランダムポリプロピレン、融点160℃

PPa(2) : 酸変性ランダムポリプロピレン、融点140℃

PP(1) : ランダムポリプロピレン、融点150℃

PP(2) : ランダムポリプロピレン、融点155℃

PP(3) : ランダムポリプロピレン、融点140℃

PP (4) : ランダムポリプロピレン、融点145℃

PP (5) : ランダムポリプロピレン、融点150℃

PP (6) : ランダムポリプロピレン、融点155℃

PP (7) : ランダムポリプロピレン、融点130℃

PP (8) : ランダムポリプロピレン、融点135℃

PP (9) : ランダムポリプロピレン、融点156℃

PP (10) : ランダムポリプロピレン、融点141℃

PP (11) : ランダムポリプロピレン、融点157℃

PP (12) : ランダムポリプロピレン、融点138℃

[0161] 表1Bに示されるように、アイソタクチック分率(m m)が99%以下であるランダムポリプロピレンを用いた実施例1B~16Bの電池用包装材料においては、いずれも、シール部を1回屈曲した後の絶縁性の評価において、合格品の割合が75%以上と高かった。一方、アイソタクチック分率(m m)が99.5%であった比較例1B~4Bでは、いずれも、ヒートシール部を1回屈曲した後の絶縁性の評価において、合格品の割合が非常に低かった。

符号の説明

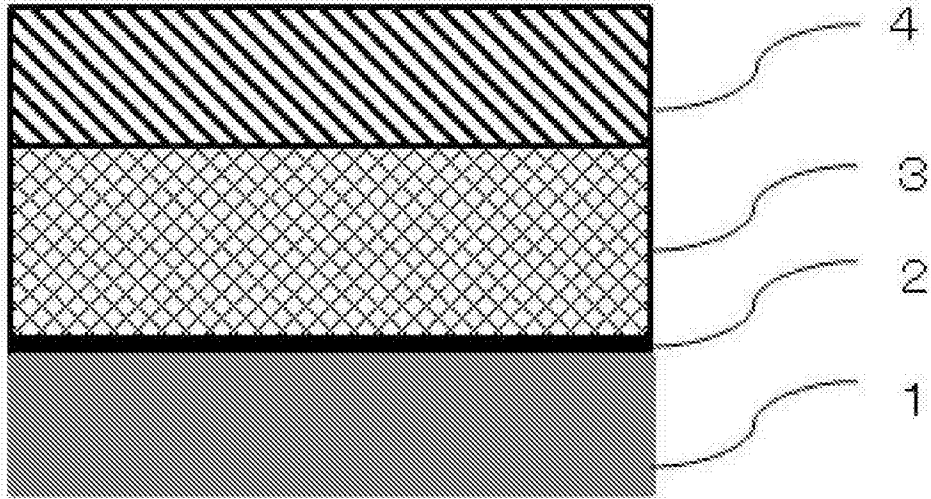
- [0162] 1 基材層
2 接着層
3 金属層
4 シーラント層
5 接着層

請求の範囲

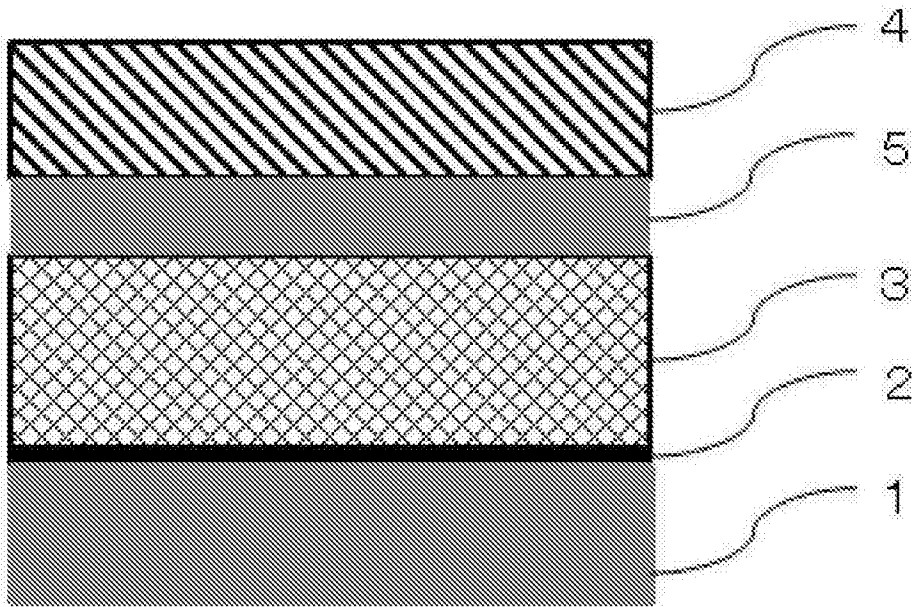
- [請求項1] (A-1) 融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び(A-2) 融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体の少なくとも一方と、
- (B) 融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマーと、を含む、電池用包装材料のシーラント層用の樹脂組成物。
- [請求項2] 前記(B) 融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマーの含有量が、20~75質量%である、請求項1に記載の樹脂組成物。
- [請求項3] (A-1) 融点が156℃以上でエチレン含有量が5質量%以下のプロピレン-エチレンのランダム共重合体、及び(A-2) 融点が158℃以上でエチレン含有量が7質量%以下のプロピレン-エチレンのブロック共重合体の含有量の合計が、25~80質量%である、請求項1または2に記載の樹脂組成物。
- [請求項4] (C) 重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド分率(mmm)が90%以下、融点が70℃以上である低立体規則性オレフィンをさらに含む、請求項1~3のいずれかに記載の樹脂組成物。
- [請求項5] 前記(C) 低立体規則性オレフィンが、1-ブテン系重合体を含む、請求項4に記載の樹脂組成物。
- [請求項6] 前記(B) 融点が135℃以上のポリオレフィン系エラストマーの含有量が、20~65質量%、前記(C) 重量平均分子量が1万以上、メソペンタッド分率(mmm)が90%以下、融点が70℃以上である低立体規則性オレフィンの含有量が、2~30質量%である、請求項4または5に記載の樹脂組成物。
- [請求項7] アイソタクチック分率(mm)が99%以下であるポリオレフィン系樹脂を含む、電池用包装材料のシーラント層用の樹脂組成物。
- [請求項8] 前記ポリオレフィン系樹脂は、エチレン単位の含有量が0.1~10mol%である、請求項7に記載の樹脂組成物。

- [請求項9] 前記ポリオレフィン系樹脂は、80℃においてn-デカンに可溶な成分量が0.1～15質量%である、請求項7または8に記載の樹脂組成物。
- [請求項10] 前記ポリオレフィン系樹脂が、構成モノマーとして少なくともプロピレンを含む、請求項7～9のいずれかに記載の樹脂組成物。
- [請求項11] 少なくとも、基材層、金属層、及びシーラント層をこの順に有する積層体からなる電池用包装材料であって、
前記シーラント層が、請求項1～10のいずれかに記載の樹脂組成物により形成された層を含む、電池用包装材料。
- [請求項12] 前記樹脂組成物により形成された層の厚みが、1～20μmである、請求項11に記載の電池用包装材料。
- [請求項13] 前記シーラント層の厚みが、40μm以下である、請求項11または12に記載の電池用包装材料。
- [請求項14] 正極、負極、及び電解質を備えた電池素子が、請求項11～13のいずれかに記載の電池用包装材料により封止されてなる、電池。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/073189

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M2/02(2006.01)i, B32B15/085(2006.01)i, C08L23/14(2006.01)i, C08L23/16(2006.01)i, C08L23/20(2006.01)i, C09K3/10(2006.01)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)
H01M2/02, C08L23/14, C08L23/16, C08L23/20, C09K3/10

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

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	JP 2013-101778 A (Showa Denko Packaging Co.), 23 May 2013 (23.05.2013), paragraphs [0024] to [0041] & US 2013/0143107 A1 & CN 103094497 A & KR 10-2013-0050246 A	1-6, 11-14
A	JP 2009-176647 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.), 06 August 2009 (06.08.2009), paragraphs [0011] to [0012] (Family: none)	1-6, 11-14
A	WO 2010/100979 A1 (Nissan Motor Co., Ltd.), 10 September 2010 (10.09.2010), paragraph [0058] & JP 5333576 B & US 2011/0294007 A1 & EP 2405524 A1 & CN 102341948 A & KR 10-2011-0111524 A	1-6, 11-14

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
26 November, 2014 (26.11.14)

Date of mailing of the international search report
09 December, 2014 (09.12.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/073189

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-220503 A (Idemitsu Petrochemical Co., Ltd.), 09 August 2002 (09.08.2002), claims & US 2003/0069320 A1 & EP 1260525 A1 & WO 2002/016450 A1 & TW 263645 B	4-6
A	JP 2005-103955 A (Toray Industries, Inc.), 21 April 2005 (21.04.2005), paragraphs [0019] to [0021]; fig. 1 (Family: none)	7-14
A	JP 2002-234124 A (Toray Industries, Inc.), 20 August 2002 (20.08.2002), paragraphs [0007] to [0025] (Family: none)	7-10
A	JP 2007-105893 A (Toray Industries, Inc.), 26 April 2007 (26.04.2007), paragraphs [0023] to [0034] (Family: none)	7-10

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））</p> <p>Int.Cl. H01M2/02(2006.01)i, B32B15/085(2006.01)i, C08L23/14(2006.01)i, C08L23/16(2006.01)i, C08L23/20(2006.01)i, C09K3/10(2006.01)i</p>														
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））</p> <p>Int.Cl. H01M2/02, C08L23/14, C08L23/16, C08L23/20, C09K3/10</p>														
<p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2014年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2014年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2014年</td> </tr> </table>			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2014年	日本国実用新案登録公報	1996-2014年	日本国登録実用新案公報	1994-2014年				
日本国実用新案公報	1922-1996年													
日本国公開実用新案公報	1971-2014年													
日本国実用新案登録公報	1996-2014年													
日本国登録実用新案公報	1994-2014年													
<p>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）</p>														
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>A</td> <td>JP 2013-101778 A (昭和電工パッケージング株式会社) 2013.05.23, 【0024】 - 【0041】 & US 2013/0143107 A1 & CN 103094497 A & KR 10-2013-0050246 A</td> <td>1-6, 11-14</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2009-176647 A (住友化学株式会社) 2009.08.06, 【0011】 - 【0012】 (ファミリーなし)</td> <td>1-6, 11-14</td> </tr> </tbody> </table>			引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	A	JP 2013-101778 A (昭和電工パッケージング株式会社) 2013.05.23, 【0024】 - 【0041】 & US 2013/0143107 A1 & CN 103094497 A & KR 10-2013-0050246 A	1-6, 11-14	A	JP 2009-176647 A (住友化学株式会社) 2009.08.06, 【0011】 - 【0012】 (ファミリーなし)	1-6, 11-14			
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	JP 2013-101778 A (昭和電工パッケージング株式会社) 2013.05.23, 【0024】 - 【0041】 & US 2013/0143107 A1 & CN 103094497 A & KR 10-2013-0050246 A	1-6, 11-14												
A	JP 2009-176647 A (住友化学株式会社) 2009.08.06, 【0011】 - 【0012】 (ファミリーなし)	1-6, 11-14												
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>														
<table border="0"> <tr> <td>* 引用文献のカテゴリー</td> <td>の日の後に公表された文献</td> </tr> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「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）</td> <td>「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</td> </tr> <tr> <td>「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</td> <td>「&」同一パテントファミリー文献</td> </tr> <tr> <td>「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願</td> <td></td> </tr> </table>			* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献	「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	「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	「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	「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	「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）	「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	「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献	「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	
* 引用文献のカテゴリー	の日の後に公表された文献													
「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	「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													
「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	「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													
「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）	「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													
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献													
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願														
<p>国際調査を完了した日</p> <p>26.11.2014</p>	<p>国際調査報告の発送日</p> <p>09.12.2014</p>													
<p>国際調査機関の名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁（ISA/J P）</p> <p>郵便番号100-8915</p> <p>東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>	<p>特許庁審査官（権限のある職員）</p> <p>松本 陶子</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3477</p>	<table border="1"> <tr> <td>4 X</td> <td>4 4 2 9</td> </tr> </table>	4 X	4 4 2 9										
4 X	4 4 2 9													

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 2010/100979 A1 (日産自動車株式会社) 2010. 09. 10, 【0058】 & JP 5333576 B & US 2011/0294007 A1 & EP 2405524 A1 & CN 102341948 A & KR 10-2011-0111524 A	1-6, 11-14
A	JP 2002-220503 A (出光石油化学株式会社) 2002. 08. 09, 特許請求の範囲 & US 2003/0069320 A1 & EP 1260525 A1 & WO 2002/016450 A1 & TW 263645 B	4-6
A	JP 2005-103955 A (東レ株式会社) 2005. 04. 21, 【0019】 - 【0021】 及び図1 (ファミリーなし)	7-14
A	JP 2002-234124 A (東レ株式会社) 2002. 08. 20, 【0007】 - 【0025】 (ファミリーなし)	7-10
A	JP 2007-105893 A (東レ株式会社) 2007. 04. 26, 【0023】 - 【0034】 (ファミリーなし)	7-10