

審決

不服 2015- 9713

大韓民国 07336 ソウル, ヨンドウンポグ, ヨイーデロ 128
請求人 エルジー・ケム・リミテッド

東京都新宿区西新宿一丁目6番1号
代理人弁理士 龍華国際特許業務法人

特願2013-548373「二次電池用電極組立体及びこれを含むリチウム二次電池」拒絶査定不服審判事件〔平成25年 1月 3日国際公開、WO2013/002608、平成26年 2月27日国内公表、特表2014-505335〕について、次のとおり審決する。

結 論

本件審判の請求は、成り立たない。

理 由

第1 手続の経緯

本願は、2012年6月29日（パリ条約による優先権主張外国庁受理2011年6月30日、大韓民国）を国際出願日とする出願であって、平成26年7月28日付けで拒絶の理由が通知され、これに対し、同年10月30日付けで意見書が提出されるとともに手続補正がなされたが、平成27年1月19日付けで拒絶査定がなされた。

本件は、これを不服として、同年5月26日に請求された拒絶査定不服審判であって、請求と同時に手続補正がなされたものである。

第2 平成27年5月26日付けの手続補正についての補正の却下の決定

〔補正の却下の決定の結論〕

平成27年5月26日付けの手続補正（以下「本件補正」という。）を却下する。

〔理由〕

1 補正の内容

本件補正は、特許請求の範囲を補正するものであって、本件補正前の

「【請求項1】

二次電池用電極組立体であって、

正極集電体上に正極活物質層が形成された正極と、

負極集電体上に負極活物質層が形成された負極と、

前記正極と前記負極との間に介在されているポリオレフィン系分離膜とを備えてなるものであり、

前記正極又は前記負極の少なくとも何れか一つの活物質層の上面には、

PTC (Positive Temperature Coefficient: 正温度係数) 物質層が形成され、前記PTC物質層の面積はそれぞれの活物質層の面積と同じことを特徴とする、二次電池用電極組立体。

【請求項2】

前記PTC物質層の有効動作温度が、80乃至140℃の範囲内であることを特徴とする、請求項1に記載の二次電池用電極組立体。

【請求項3】

前記PTC物質層の厚さが1乃至30 μ mであることを特徴とする、請求項1又は2に記載の二次電池用電極組立体。

【請求項4】

前記PTC物質層が、カーボンブラック、カーボンファイバー、又はこれらの混合物を含むことを特徴とする、請求項1～3の何れか一項に記載の二

次電池用電極組立体。

【請求項5】

前記電極組立体が、連続的に長く裁断された分離フィルム上にバイセル（B i - c e l l）とフルセル（F u l l - c e l l）が交差した状態で折りたたんで製造するスタック型及び折りたたみ型電極組立体、

バイセルのみを前記分離フィルム上に置いた状態で折りたたんで製造するスタック型及び折りたたみ型電極組立体、

フルセルのみ前記分離フィルム上に置いた状態で折りたたんで製造するスタック型及び折りたたみ型電極組立体、

前記バイセル又はフルセルを分離フィルムにジグザグ方向に折りたたんで製造するZ型スタック型及び折りたたみ型電極組立体、

前記バイセル又はフルセルを同じ方向に連続して折りたたんで製造するスタック型及び折りたたみ型電極組立体、

長く裁断された分離フィルム上に正極と負極を交差した状態で折りたたんで製造する電極組立体、

正極板、分離膜、負極板の順に配置された状態で一方向に巻いて製造するジェリー・ロール型電極組立体、及び

スタック型電極組立体からなる群から選択される何れか一つであることを特徴とする、請求項1～4の何れか一項に記載の二次電池用電極組立体。

【請求項6】

請求項1～5の何れか一項に記載の二次電池用電極組立体を備えてなることを特徴とする、リチウム二次電池。

【請求項7】

請求項6に係るリチウム二次電池を備えてなることを特徴とする、電池パック。

【請求項8】

前記電池パックが、中型又は大型デバイスの電源として用いられることを特徴とする、請求項7に記載の電池パック。

【請求項9】

前記中大型デバイスが、パワーツール（power tool）、電気車（Electric Vehicle、EV）、ハイブリッド電気車（Hybrid Electric Vehicle、HEV）、及びプラグインハイブリッド電気車（Plug-in Hybrid Electric Vehicle、PHEV）を包含する電気車；E-bike、E-scooterを包含する電気二輪車；電動ゴルフカート（Electric golf cart）；電気トラック、電気乗用車、及び電力貯蔵用システムからなる群から選択される何れか一つであることを特徴とする、請求項8に記載の電池パック。」を

「【請求項1】

二次電池用電極組立体であって、

正極集電体上に正極活物質層が形成された正極と、

負極集電体上に負極活物質層が形成された負極と、

前記正極と前記負極との間に介在されているポリオレフィン系分離膜とを備えてなるものであり、

前記正極又は前記負極の少なくとも何れか一つの活物質層の上面には、PTC（Positive Temperature Coefficient：正温度係数）物質層が形成され、前記PTC物質層の面積はそれぞれの活物質層の面積と同じであり、

前記PTC物質層は、 0.94 g/cm^3 超過の密度を有する高密度ポリエチレンをPTC組成物の総重量の40乃至60重量%で含むことを特徴とする、二次電池用電極組立体。

【請求項2】

前記PTC物質層の有効動作温度が、80乃至140℃の範囲内であることを特徴とする、請求項1に記載の二次電池用電極組立体。

【請求項3】

前記PTC物質層の厚さが1乃至30 μm であることを特徴とする、請求項1又は2に記載の二次電池用電極組立体。

【請求項4】

前記PTC物質層が、カーボンブラック、カーボンファイバー、又はこれらの混合物を含むことを特徴とする、請求項1～3の何れか一項に記載の二

次電池用電極組立体。

【請求項5】

前記電極組立体が、連続的に長く裁断された分離フィルム上にバイセル（B i - c e l l）とフルセル（F u l l - c e l l）が交差した状態で折りたたんで製造するスタック型及び折りたたみ型電極組立体、

バイセルのみを前記分離フィルム上に置いた状態で折りたたんで製造するスタック型及び折りたたみ型電極組立体、

フルセルのみ前記分離フィルム上に置いた状態で折りたたんで製造するスタック型及び折りたたみ型電極組立体、

前記バイセル又はフルセルを分離フィルムにジグザグ方向に折りたたんで製造するZ型スタック型及び折りたたみ型電極組立体、

前記バイセル又はフルセルを同じ方向に連続して折りたたんで製造するスタック型及び折りたたみ型電極組立体、

長く裁断された分離フィルム上に正極と負極を交差した状態で折りたたんで製造する電極組立体、

正極板、分離膜、負極板の順に配置された状態で一方向に巻いて製造するジェリー・ロール型電極組立体、及び

スタック型電極組立体からなる群から選択される何れか一つであることを特徴とする、請求項1～4の何れか一項に記載の二次電池用電極組立体。

【請求項6】

請求項1～5の何れか一項に記載の二次電池用電極組立体を備えてなることを特徴とする、リチウム二次電池。

【請求項7】

請求項6に係るリチウム二次電池を備えてなることを特徴とする、電池パック。

【請求項8】

前記電池パックが、中型又は大型デバイスの電源として用いられることを特徴とする、請求項7に記載の電池パック。

【請求項9】

前記中大型デバイスが、パワーツール（power tool）、電気車（Electric Vehicle、EV）、ハイブリッド電気車（Hybrid Electric Vehicle、HEV）、及びプラグインハイブリッド電気車（Plug-in Hybrid Electric Vehicle、PHEV）を包含する電気車；E-bike、E-scooterを包含する電気二輪車；電動ゴルフカート（Electric golf cart）；電気トラック、電気乗用車、及び電力貯蔵用システムからなる群から選択される何れか一つであることを特徴とする、請求項8に記載の電池パック。」と補正するものである。

2 補正の目的の適否、及び、新規事項の有無

本件補正は、本件補正前の請求項1に係る発明の発明特定事項である

「PTC物質層」に関し、本件明細書の「高密度」とは、

0.94 g/cm³ 超過の密度を有することをいう」（【0030】）との記載、及び、「熱可塑性ポリマーの量は、PTC組成物の総重量の・・・（略）・・・40乃至60重量%であり得る」（【0031】）との記載に

基づき、「0.94 g/cm³ 超過の密度を有する高密度ポリエチレンをPTC組成物の総重量の40乃至60重量%で含む」点を追加する補正事項を含むものである。

上記補正事項は、本件補正前の請求項1に記載された「PTC物質層」に関し、本件明細書に記載された事項の範囲内において、技術的に限定するものであるから、明らかに特許請求の範囲の減縮を目的とするものであって、補正前後の請求項1に係る発明は、それらの発明の産業上の利用分野及び解決しようとする課題が同一であるものといえる。

したがって、本件補正は、特許法第17条の2第5項第2号に掲げる特許請求の範囲の減縮を目的としたものであって、また、新規事項の追加に該当せず、同法第17条の2第3項の要件を満たすものである。

そこで、本件補正後の特許請求の範囲の請求項1を引用する請求項6に係る発明が、特許法第17条の2第6項において準用する同法第126条第7項の規定に適合するか、すなわち、特許出願の際独立して特許を受けること

ができるものであるか否かについて、以下検討する。

3 本件補正発明

本件補正後の特許請求の範囲の請求項 1 を引用する請求項 6 に係る発明（以下「本件補正発明」という。）は、引用関係を解消して記載を整理すると、次のとおりのものである。

「二次電池用電極組立体であって、
正極集電体上に正極活物質層が形成された正極と、
負極集電体上に負極活物質層が形成された負極と、
前記正極と前記負極との間に介在されているポリオレフィン系分離膜とを備えてなるものであり、
前記正極又は前記負極の少なくとも何れか一つの活物質層の上面には、
PTC (Positive Temperature Coefficient: 正温度係数) 物質層が形成され、前記 PTC 物質層の面積はそれぞれの活物質層の面積と同じであり、

前記 PTC 物質層は、 0.94 g/cm^3 超過の密度を有する高密度ポリエチレンを PTC 組成物の総重量の 40 乃至 60 重量% で含む、
二次電池用電極組立体を備えてなる、リチウム二次電池。」

4 引用刊行物

(1) 引用刊行物 1

これに対して、原査定の拒絶の理由に引用され、本願の優先日前である平成 18 年 7 月 6 日に頒布された「特開 2006-179432 号公報」（以下、「引用例 1」という。）には、次の事項が記載されている。なお、下線は当審で付した。

ア 特許請求の範囲の記載

「【請求項 1】

正極と、負極と、前記正極と前記負極との間に配置されたセパレータと、非水電解液とを含む非水電解液二次電池であって、

前記正極及び前記負極から選ばれる少なくとも一方の電極の前記セパレータ側の表面には、多孔質層が配置され、

前記多孔質層は、キュリー温度が 40°C 以上 200°C 以下の電子伝導性材料を含むことを特徴とする非水電解液二次電池。」

「【請求項 9】

前記セパレータは、ポリオレフィンからなる請求項 1 に記載の非水電解液二次電池。」

イ 発明の詳細な説明の記載

「【技術分野】

【0001】

本発明は、安全性の高い非水電解液二次電池に関する。」

「【発明を実施するための最良の形態】

【0010】

本発明の非水電解液二次電池の一例は、正極と、負極と、この正極と負極との間に配置されたセパレータと、非水電解液とを含み、上記正極及び上記負極から選ばれる少なくとも一方の電極のセパレータ側の表面には、多孔質層が配置され、この多孔質層は、キュリー温度が 40°C 以上 200°C 以下の電子伝導性材料を含む非水電解液リチウム二次電池である。

【0011】

上記電子伝導性材料は、キュリー温度に達すると、その正の温度特性係数によって電気抵抗が急激に増大する特性を有する。以下、この特性を PTC (Positive Temperature Coefficient) 特性という。即ち、キュリー温度とは、その温度に達すると急激に物質の電気抵抗が増大する温度をいう。

【0012】

これにより、内部短絡などによる発熱により電池温度が上昇しても、多孔質層の温度が上記キュリー温度に達すると、多孔質層に含まれる電子伝導性材料の電気抵抗が上昇し、短絡電流の増大を抑制することができる。また、短絡による電池温度の上昇により多孔質層の電気抵抗が上昇しても微少な短

絡電流は流れるので、電池の内部エネルギーを徐々に放出でき、電池の安全性をより高めることができるからである。

【0013】

上記電子伝導性材料のキュリー温度は、 40°C 以上 200°C 以下であることが必要であり、 50°C 以上 150°C 以下がより好ましく、 60°C 以上 120°C 以下がさらに好ましく、 70°C 以上 100°C 以下が最も好ましい。この範囲内であれば、負荷特性などの電池性能に影響を与えることなく、電池の安全性を確保できるからである。

【0014】

また、上記電子伝導性材料のキュリー温度は、シャットダウン機能を有するセパレータを用いた場合には、そのセパレータの熔融温度（シャットダウン温度）よりも 10°C 以上低いことが好ましく、 20°C 以上低いことがより好ましい。これにより、多孔質層のPTC特性とセパレータのシャットダウン機能とを併用して、短絡電流の増大をより効果的に抑制でき、電池の安全性を確実に確保できるからである。

【0015】

上記電子伝導性材料は、上記キュリー温度を有し、電池内で化学的且つ電気化学的に安定で、非水電解液に溶出しない材料であれば特に限定されないが、電子伝導性を付与した無機材料、電子伝導性を付与した高分子材料、及びこれらの無機材料と高分子材料との複合材料から選ばれる少なくとも1種の材料を用いることができる。

【0016】

上記無機材料としては、微量の希土類元素（例えば、 Y_2O_3 、 La など）を添加した BaTiO_3 が好適に用いられる。微量の希土類元素を添加した BaTiO_3 は電子伝導性を有し、希土類元素の添加量を調整することにより、キュリー温度を任意に調整可能だからである。

【0017】

上記高分子材料は、導電性付与材を添加した高分子化合物が好適に用いられる。この高分子材料は電子伝導性を有し、高分子化合物の分子量を調整することや添加剤の導入により、キュリー温度を任意に調整可能だからである。添加剤としては、例えば、重油、パラフィン、ワックスなどが使用できる。

【0018】

上記高分子化合物としては、結晶性高分子化合物が好ましく、さらには結晶化度が10%以上で、 $40\sim 200^{\circ}\text{C}$ 程度の融点を有するものがより好ましい。これらはキュリー温度の調整が容易だからである。具体的には、高密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、低密度ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリメチレン、エチレン・プロピレン共重合体、ポリブタジエンなどのポリオレフィンを代表とするポリマーやオリゴマー、又はポリエチレンテレフタレート、芳香族ポリアミド、セルロースなどの樹脂系高分子化合物；スチレン・ブタジエンゴム、イソプレンゴム、ブタジエンゴム、エチレン・プロピレンゴムなどのゴム状高分子化合物；スチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体及びその水素添加物、スチレン・エチレン・ブタジエン・スチレンブロック共重合体及びその水素添加物、スチレン・イソプレン・スチレンブロック共重合体及びその水素添加物などの熱可塑性エラストマー状高分子化合物；シンジオタクチック1, 2-ポリブタジエン、エチレン・酢酸ビニル共重合体、プロピレン・ α -オレフィン（炭素数2～12）共重合体などの軟質樹脂状高分子化合物；ポリフッ化ビニリデン、ポリテトラフルオロエチレン、ポリテトラフルオロエチレン・エチレン共重合体などのフッ素系高分子化合物；各種ワックス、アスファルトなどが用いられる。その他、ポリアミド樹脂、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシド、微粒子状のフェノール樹脂などを用いることができる。これらの中で特に低分子量のポリエチレンワックス、低密度ポリエチレン、融点 $50\sim 100^{\circ}\text{C}$ のワックスを代表とする分子量が大きい重合体（ポリマー）は、材料コストと生産性に優れているのでより好ましい。これらの高分子化合物は、一種類だけを選択して用いてもよいし、必要な正の温度特性を得るために二種類以上を組み合わせて用いてもよい。また、高分子化合物の融点を下げるため、例えば、重油、パラフィンなどの添加物を加えてもよい。但し、これらの添加物は電解液への溶出や電気化学的及び化学的に安定であることが要求される。

【0019】

また、上記高分子化合物として、結晶化度が10%未満の非晶質高分子化合物を用いることもできる。この非晶質高分子化合物としては、常温で溶剤に可溶なものが取扱い上好ましく、具体的には、天然ゴム又はイソプレンゴム、ニトリルゴム、エチレン・プロピレン・ジエンモノマー共重合体などの合成ゴム、アルキルアクリレート重合体などが用いられる。

【0020】

上記高分子化合物の合成・加工方法などは特に制限されることはない。接着性の弱い結晶性高分子化合物を用いる場合には、一般的に官能基の導入や被着物である電極と結晶性高分子化合物の両方に親和性のある有機物（カップリング剤、分散剤など）を含有させることができるが、諸特性を考慮すれば、官能基の導入が好ましい。また、この高分子化合物には、さらに架橋剤、架橋促進剤、加工助剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤などを配合することもできる。

【0021】

上記高分子化合物に添加する導電性付与材としては、例えば、カーボン材料、導電性非酸化物、金属微粒子などが用いられる。」

「【0025】

上記高分子化合物に添加される導電性付与材の添加量は特に限定されないが、高分子材料の全質量に対して10～90質量%とすることができ、好ましくは30～80質量%であり、さらに好ましくは40～70質量%である。この範囲内であれば、高分子化合物のPTC特性を良好に維持しつつ、高分子材料全体の電気抵抗を低くすることができるからである。」

「【0039】

上記正極に用いる正極活物質としては、リチウムを吸蔵・放出可能な化合物を用いることが好ましい。これにより、電池の安全性をさらに向上できる。この正極活物質としては、例えば、 LiCoO_2 などのリチウムコバルト酸化物、 LiMn_2O_4 などのリチウムマンガン酸化物、 LiNiO_2 などのリチウムニッケル酸化物、リチウムマンガン・ニッケル複合酸化物、リチウムマンガン・ニッケル・コバルト複合酸化物、二酸化マンガン、五酸化バナジウム、クロム酸化物、リチウムチタン酸化物などの金属酸化物、これらの金属酸化物の混合物、又は二硫化チタン、二硫化モリブデンなどの金属硫化合物などを用いることができる。

【0040】

特に LiNiO_2 、 LiCoO_2 、 LiMn_2O_4 、リチウムマンガン・ニッケル・コバルト複合酸化物、及びこれらの酸化物の混合物など、充電時の開路電圧がLi基準で4V以上を示すリチウム複合酸化物を正極活物質として用いる場合には、高エネルギー密度のリチウム二次電池が得られるので望ましい。

【0041】

また、上記正極は、例えば、正極活物質に導電助剤やポリフッ化ビニリデンなどのバインダーなどを適宜添加した合剤を、アルミニウム箔などの集電材料に塗布して、帯状の成形体に形成したものが用いられる。但し、正極の作製方法は上記例示のものに限定されることはない。

【0042】

また、上記負極に用いる負極活物質としては、リチウムを吸蔵・放出可能な化合物を用いることが好ましい。これにより、電池の安全性をさらに向上できる。この負極活物質としては、例えば、炭素材料、Si、Snなどのリチウムと合金化可能な金属又はその合金などを用いることができるが、特に炭素材料が好ましい。炭素材料は充放電特性に優れているからである。その炭素材料としては、例えば、黒鉛、熱分解炭素類、コークス類、ガラス状炭素類、有機高分子化合物の焼成体、メソカーボンマイクロビーズ、炭素繊維、活性炭などを用いることができる。

【0043】

上記炭素材料は、(002)面の面間隔 d_{002} が0.350nm以下であることが好ましく、0.345nm以下がより好ましく、0.340nm以下がさらに好ましい。これにより、電池の高容量化を実現できるからである。なお、 d_{002} の下限値は特に限定されないが、理論的にはほぼ0.335nmである。また、炭素材料の結晶構造におけるc軸方向の結晶子の大きさ L_c は、3nm以上が好ましく、8nm以上がより好ましく、

25 nm以上がさらに好ましい。この範囲であればリチウムの吸蔵・放出がより容易になるからである。Lcの上限は特に限定されないが、通常200 nm程度である。

【0044】

上記炭素材料の平均粒径は、3 μm以上15 μm以下が好ましく、10 μm以上13 μm以下がより好ましく、その純度は99.9%以上が好ましい。この範囲内であれば入手が容易だからである。

【0045】

上記負極は、例えば、負極活物質に必要なに応じて導電助剤や結着剤などを適宜加えた合剤を、銅箔などの集電材料に塗布して、帯状の成形体に形成したものが用いられる。但し、負極の作製方法は上記例示のもののみに限られることはない。」

「【0057】

次に、本発明の非水電解液二次電池の一例を図面に基づき説明する。図1は、本発明の非水電解液二次電池の電極構造の一例を示す模式断面図であり、図2は、図1に示した負極の一部を拡大した模式断面図である。

【0058】

図1において、正極1と負極2との間には、セパレータ3が配置され、負極2のセパレータ3側の表面には、多孔質層4が配置されている。また、正極1は、例えばアルミニウム箔からなる集電体5の上に一体化して配置され、負極2は、例えば銅箔からなる集電体6の上に一体化して配置されている。正極1、負極2、セパレータ3及び多孔質層4の詳細は、前述したとおりであり、その説明は省略する。図1では、負極2の表面に多孔質層4を形成した例を示したが、正極1の表面に形成してもよく、正極1及び負極2の両方に形成してもよい。

【0059】

図2において、負極2の表面には、粒子状の電子伝導性材料7からなる多孔質層4が配置されている。電子伝導性材料7の詳細も、前述したとおりであり、その説明は省略する。図2では、集電体6の片面に負極2を形成した例を示したが、集電体6の両面に形成してもよい。」

「【実施例】

【0062】

以下、実施例に基づき本発明をより具体的に説明する。但し、本発明は以下の実施例のみに限定されるものではない。

【0063】

(実施例1)

以下に示すようにして、電極と、多孔質層と、電池の作製を行った。

【0064】

<電極の作製>

正極は次のようにして作製した。まず、92質量部のLiCoO₂（正極活物質）に導電助剤として燐片状黒鉛を5質量部加えて混合し、この混合物にポリフッ化ビニリデン（バインダー）3質量部をN-メチルピロリドン（NMP）に溶解させた溶液を加えて混合して正極合剤スラリーとした。この正極合剤スラリーを100メッシュの網を通過させて粒径が大きなものを取り除いた後、この正極合剤スラリーを厚さ15 μmのアルミニウム箔からなる正極集電体の両面に均一に塗付して乾燥し、ロールプレス機により圧縮成形して総厚さを160 μmに調整して、正極シートを得た。その後、この正極シートを縦150mm、横120mmに切断し、アルミニウム製のリード部を溶接して、矩形状の正極を作製した。この正極の電気容量は、両面で1000mAhとした。

【0065】

負極活物質としては、BET比表面積が0.4 m²/gのメソカーボンマイクロビーズ（MCMB）を用い、バインダーとしてポリフッ化ビニリデン（PVDF）を用い、MCMBとPVDFとを質量比95：5の割合で混合し、さらにNMPを加えて混合して負極合剤ペーストとした。この負極合剤ペーストを厚さ10 μmの銅箔からなる負極集電体の両面に均一に塗布して乾燥し、その後、ロールプレス機により圧縮成形して総厚さを146 μmに調整して、負極シートを得た。

【0066】

<多孔質層の形成>

カーボンブラック60質量部と、低密度ポリエチレン30質量部と、ポリエチレン微粉末ワックス10質量部とを混合し、ジェットミルにより粒径が $1\mu\text{m}\sim 5\mu\text{m}$ となるように粉砕して、キュリー温度が約 100°C の電子伝導性材料を調製した。この電子伝導性材料は、 25°C における体積固有抵抗が $0.2\Omega\cdot\text{cm}$ 、 100°C における体積固有抵抗が $20\Omega\cdot\text{cm}$ であり、PTC特性を有する。

【0067】

次に、この電子伝導性材料97質量部と、PVDF（バインダー）3質量部とを分散媒であるNMPに分散させてスラリーを得た。このスラリーを先に作製した負極シートの両面に塗布し、NMPを蒸発させて乾燥して、負極の両面に多孔質層を形成した。その後、多孔質層を形成した負極シートを 100°C で真空乾燥し、その後、ロールプレス機により圧縮成形した後、縦 153mm 、横 123mm に切断し、ニッケル製のリード部を溶接して、矩形状の負極を作製した。この負極の電気容量は両面で 1130mAh とした。

【0068】

この負極の多孔質層の厚さを電子顕微鏡を用いて測定したところ、約 $10\mu\text{m}$ であった。また、この多孔質層の多孔度をマイクロメリテックス社製の水銀ポロシメータ“ポアサイザ9310”（商品名）で測定したところ、 48% であった。

【0069】

＜電池の作製＞

まず、非水電解液としては、ジメチルカーボネートとエチレンカーボネートとの体積比3：7の混合溶媒に、LiPF₆を 1.0mol/L 溶解させたものを準備した。

【0070】

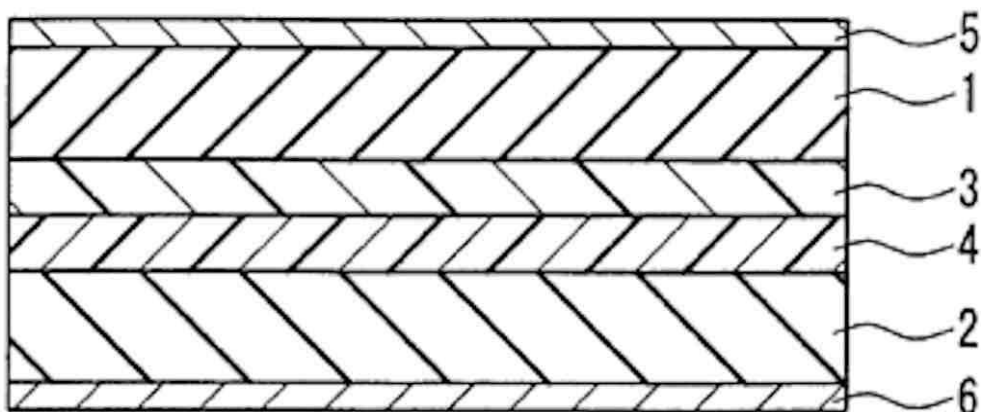
次に、厚さ $25\mu\text{m}$ 、縦 155mm 、横 125mm の微孔性ポリエチレンフィルム（開孔率 41% ）を2枚重ね、周囲3辺を熱溶着して袋状セパレータを作製した。この袋状セパレータに上記正極を挿入し、セパレータ付き正極を準備した。次に、このセパレータ付き正極4枚と、上記負極5枚とを、正極と負極のリード部が重ならないように交互に積層し、扁平状の電極積層体を作製した。続いて、各正極のリード部を束にしてアルミニウム製の正極端子（縦 30mm 、横 20mm 、厚さ 0.01mm ）に超音波溶接し、さらに、各負極のリード部を束にしてニッケル製の負極端子（縦 30mm 、横 20mm 、厚さ 0.01mm ）に超音波溶接した。

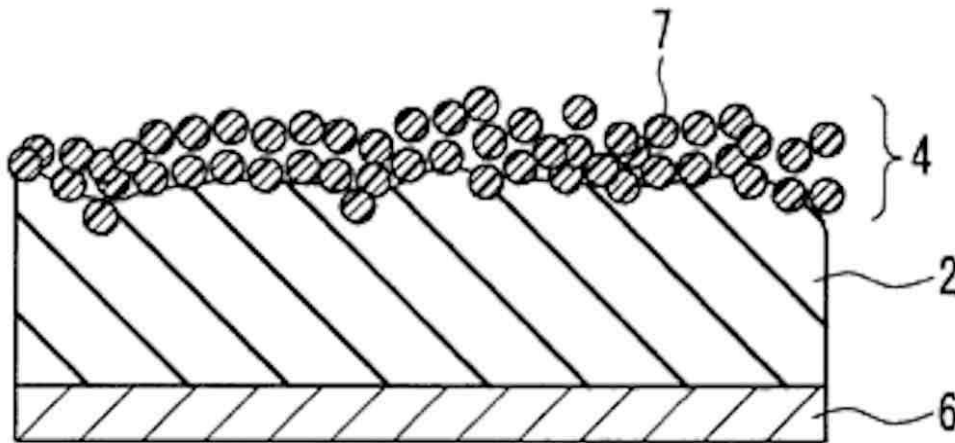
【0071】

続いて、この端子付き電極積層体を、縦 175mm 、横 145mm 、厚さ 0.07mm のポリエステルフィルム－アルミニウム箔－変性ポリオレフィンフィルムからなる三層構造のラミネートフィルムケースに挿入した。その後、ラミネートフィルムケースの開口部から上記非水電解液を注入し、非水電解液がセパレータなどに十分に浸透した後、開口部を熱溶着して封止した。その後、予備充電及びエイジングを行い、図4に示したものと同様の構造の非水電解液二次電池を作製した。」

ウ 図面の記載

「【図1】





」

(1-1) 引用例 1 の請求項 1 の記載に基づく引用発明

ア 請求項 1 を引用する請求項 9 の「非水電解液二次電池」は、「正極と、負極と、前記正極と前記負極との間に配置されたセパレータと、非水電解液を含む非水電解液二次電池であって、前記正極及び前記負極から選ばれる少なくとも一方の電極の前記セパレータ側の表面には、多孔質層が配置され、前記多孔質層は、キュリー温度が 40°C 以上 200°C 以下の電子伝導性材料を含み、「セパレータは、ポリオレフィンからなる」ものである。

イ 上記(1)の記載事項イの【0041】より、「非水電解液二次電池」の「正極」に関し、「正極活物質に導電助剤やポリフッ化ビニリデンなどのバインダーなどを適宜添加した合剤を、アルミニウム箔などの集電材料に塗布して、帯状の成形体に形成したものが用いられる」とされているから、請求項 9 の「非水電解液二次電池」の「正極」は、正極活物質を含む層を集電材料上に形成したものといえる。

ウ 上記(1)の記載事項イの【0045】より、「非水電解液二次電池」の「負極」に関し、「負極活物質に必要なに応じて導電助剤や結着剤などを適宜加えた合剤を、銅箔などの集電材料に塗布して、帯状の成形体に形成したものが用いられる」とされているから、請求項 9 の「非水電解液二次電池」の「負極」は、負極活物質を含む層を集電材料上に形成したものといえる。

エ 上記(1)の記載事項イの【0015】より、「非水電解液二次電池」の「電子伝導性材料」に関し、「電子伝導性材料は、……電子伝導性を付与した高分子材料……を用いることができる」とされており、また、上記(1)の記載事項イの【0017】より、「高分子材料」に関し、「高分子材料は、導電性付与材を添加した高分子化合物が好適に用いられる」とされており、さらに、上記(1)の記載事項イの【0018】より、「高分子化合物」に関し、「高密度ポリエチレン……が用いられる」とされているから、請求項 9 の「非水電解液二次電池」の「電子伝導性材料」は、高密度ポリエチレンを含むといえる。

オ 高密度ポリエチレンが $0.94 \sim 0.96 \text{ g/cm}^3$ の密度を有することは技術常識（「岩波理化学辞典」、第 4 版第 9 刷、岩波書店、1994 年 7 月 18 日発行、第 1234 頁、「ポリエチレン」項）であるから、請求項 9 の「非水電解液二次電池」の「電子伝導性材料」に含まれる高密度ポリエチレンも、 $0.94 \sim 0.96 \text{ g/cm}^3$ の密度を有することは明らかである。

カ 上記(1)の記載事項イの【0025】より、「非水電解液二次電池」の「電子伝導性材料」の「高分子化合物」及び「導電性付与材」に関し、

「上記高分子化合物に添加される導電性付与材の添加量は・・・・・・高分子材料の全質量に対して・・・・・・４０～７０質量％である」とされているから、請求項９の「非水電解液二次電池」の「電子伝導性材料」は、高分子化合物に添加される導電性付与材の添加量が、高分子材料の全質量に対して４０～７０質量％である、すなわち、高分子化合物が高分子材料の全質量に対して３０～６０質量％であるといえる。

そして、上記（１）の記載事項イの【００１５】の「電子伝導性材料」は、・・・・・・電子伝導性を付与した高分子材料・・・・・・を用いることができる」との事項から、「電子伝導性を付与した高分子材料」は「電子伝導性材料」であるといえ、上記エより、請求項９の「非水電解液二次電池」の「電子伝導性材料」の「高分子化合物」は、高密度ポリエチレンであるから、請求項９の「非水電解液二次電池」の「電子伝導性材料」は、電子伝導性材料の高密度ポリエチレンの量が、電子伝導性材料の全質量に対して３０～６０質量％であることを含むといえる。

キ 引用例１において実施例１として記載されている、上記（１）の記載事項イの【００６５】より、「非水電解液二次電池」の「負極」に関し、負極活物質、バインダー及びNMPからなる負極合剤ペーストを負極集電体の両面に均一に塗布して乾燥し、圧縮成形して負極シートを得たことが記載されており、また、上記（１）の記載事項イの【００６７】より、「非水電解液二次電池」の「負極」及び「電子伝導性材料」に関し、電子伝導性材料と、バインダーとを分散媒に分散させたスラリーを、負極シートの両面に塗布し、乾燥して、負極の両面に多孔質層を形成し、多孔質層を形成した負極シートを真空乾燥し、その後、ロールプレス機により圧縮成形した後、縦１５３mm、横１２３mmに切断し、ニッケル製のリード部を溶接して、矩形状の負極を作製したとされている。

すなわち、該負極は、負極活物質を含む層が塗布された負極シートに、電子伝導性材料を含む層を塗布した上で、矩形状に切断しているから、負極活物質を含む層と電子伝導性材料を含む層との面積が同じであるといえる。

また、実施例２は、正極に電子伝導性材料を含む多孔質層を形成するもの（【００７３】～【００７４】参照。）であり、実施例３及び実施例４は実施例１と同様にして電子伝導性材料を含む多孔質層を有する負極を作製するもの（実施例３は【００７８】～【００７９】、実施例４は【００８２】参照。）であり、引用例１には、他に負極活物質を含む層の面積、及び、電子伝導性材料を含む層の面積に関する記述が存在しない。

そうすると、請求項９の「非水電解液二次電池」の「負極」は、負極活物質を含む層と電子伝導性材料を含む層との面積が同じであるといえる。

ク 上記（１）の記載事項イの【００１０】より、「非水電解液二次電池」に関し、「本発明の非水電解液二次電池の一例は、・・・・・・非水電解液リチウム二次電池である」とされており、他に具体的な非水電解液二次電池についての記載がないことに照らせば、請求項９の「非水電解液二次電池」は非水電解液リチウム二次電池である。

ケ 上記ア～クより、引用例１には、以下の発明（以下「引用発明１」という。）が記載されていると認められる。

「正極活物質を含む層を集電材料上に形成した正極と、負極活物質を含む層を集電材料上に形成した負極と、前記正極と前記負極との間に配置されたセパレータと、非水電解液とを含む非水電解液リチウム二次電池であって、

前記正極及び前記負極から選ばれる少なくとも一方の電極の前記セパレータ側の表面には、多孔質層が配置され、前記多孔質層は、キュリー温度が４０℃以上２００℃以下の電子伝導性材料を含み、

セパレータは、ポリオレフィンからなり、

電子伝導性材料は、 $0.94 \sim 0.96 \text{ g/cm}^3$ の密度を有する高密度ポリエチレンを含み、

電子伝導性材料の高密度ポリエチレンの量が、電子伝導性材料の全質量に対して３０～６０質量％であり、

負極活物質を含む層と電子伝導性材料を含む層との面積が同じである、

非水電解液リチウム二次電池。」

(1-2) 引用例1の実施例1の記載に基づく引用発明

ア 上記(1)の記載事項イの【0063】～【0071】は、実施例1の「非水電解液二次電池」に関するものである。

また、実施例1の「非水電解液二次電池」は、どのような非水電解液二次電池か明記されていないが、上記(1)の記載事項イの【0010】に、「非水電解液二次電池」の一例が「非水電解液リチウム二次電池」であることが記載されており、他に具体的な非水電解液二次電池についての記載がないことに照らせば、実施例1の「非水電解液二次電池」は、「非水電解液リチウム二次電池」であるといえる。

イ 「非水電解液二次電池」の「電極積層体」について、上記(1)の記載事項イの【0070】より、袋状セパレータに正極を挿入したセパレータ付き正極4枚と、負極5枚とを、積層して作製している。

ウ 「非水電解液二次電池」の「正極」について、上記(1)の記載事項イの【0064】より、正極活物質に導電助剤を加えて溶液に溶解させた正極合剤スラリーを、正極集電体の両面に塗付して、正極シートを得て、その後、この正極シートを縦150mm、横120mmに切断して、矩形状の正極を作製している。

エ 「非水電解液二次電池」の「負極シート」について、上記(1)の記載事項イの【0065】より、負極活物質とバインダーとを混合し、溶液を加えた負極合剤ペーストを負極集電体の両面に塗布して、負極シートを得ている。

オ 「非水電解液二次電池」の「負極」について、上記(1)の記載事項イの【0066】及び【0067】より、カーボンブラック60質量部と、低密度ポリエチレン30質量部と、ポリエチレン微粉末ワックス10質量部とを混合して調製した、キュリー温度が約100℃の電子伝導性材料と、バインダーとを分散媒に分散させてスラリーを得て、このスラリーを負極シートの両面に塗布して、負極の両面に多孔質層を形成し、その後、縦153mm、横123mmに切断し、矩形状の負極を作製している。

また、上記(1)の記載事項イの【0021】及び【0022】より、カーボンブラックは導電性付与材であり、上記(1)の記載事項イの【0018】より、低密度ポリエチレン及びポリエチレン微粉末ワックスは高分子化合物である。

カ 「非水電解液二次電池」の「セパレータ」について、上記(1)の記載事項イの【0070】より、微孔性ポリエチレンフィルムの袋状セパレータを用いている。

キ 上記ウより、「非水電解液二次電池」の「正極」は、正極活物質を含む層が正極集電体の両面に形成されたものであるといえる。

ク 上記エより、「非水電解液二次電池」の「負極シート」は、負極活物質を含む層が負極集電体の両面に形成されたものであるといえる。

ケ 上記オ及びクより、「非水電解液二次電池」の「負極」は、負極活物質を含む層が負極集電体の両面に形成された負極シートの両面に、電子伝導性材料を含む多孔質層が形成されたものであるといえる。

コ 上記エ及びオより、「非水電解液二次電池」の「負極」は、負極活物質とバインダーとを混合し、溶液を加えた負極合剤ペーストを負極集電体の両面に塗布して、負極シートを得てから、電子伝導性材料とバインダーとを分散媒に分散させてスラリーを得て、このスラリーを負極シートの両面に塗布して、負極の両面に多孔質層を形成してから、縦153mm、横123mmに切断し、作製しているから、負極活物質を含む層と電子伝導性材料を含む多孔質層とは同じ面積であるといえる。

サ 上記イより、「非水電解液二次電池」の「セパレータ」は、正極と負極との間に介在するものであるといえる。

シ 上記オより、「非水電解液二次電池」の「電子伝導性材料」は、導電性付与材であるカーボンブラック60質量部と、高分子化合物である低密度ポリエチレン30質量部と、ポリエチレン微粉末ワックス10質量部とを混合して調製したものであり、キュリー温度が約100℃である。

ス 上記ア～シより、引用例1には、以下の発明（以下「引用発明2」という。）が記載されていると認められる。

「袋状セパレータに正極を挿入したセパレータ付き正極4枚と、負極5枚とを、積層して作製した電極積層体であって、

正極活物質を含む層が正極集電体の両面に形成された正極と、

負極活物質を含む層が負極集電体の両面に形成された負極シートの両面に、電子伝導性材料を含む多孔質層が形成され、負極活物質を含む層と電子伝導性材料を含む多孔質層とは同じ面積である負極と、

正極と負極との間に介在するセパレータであって、微孔性ポリエチレンフィルムの袋状セパレータと、

電子伝導性材料は、導電性付与材であるカーボンブラック60質量部と、高分子化合物である低密度ポリエチレン30質量部と、ポリエチレン微粉末ワックス10質量部とを混合して調製したものであり、キュリー温度が約100℃である、

電極積層体を備えた非水電解液リチウム二次電池。」

（2）引用刊行物2

また、本願の優先日前である平成16年11月18日に頒布された「特開2004-327183号公報」（以下、「引用例2」という。）には、次の事項が記載されている。なお、下線は当審で付した。

ア 発明の詳細な説明の記載

「【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、耐熱性及びイオン伝導性に優れるセパレータと、短絡電流の増大を抑制することのできる電極とを備えた電池に関するものである。

【0002】

【従来の技術】

近年、携帯型電子機器の発達に伴い、電源として使用されている電池の高容量化及び高出力密度化が進みつつある。これらの要求を満たす電池として、リチウムイオン二次電池が注目されている。リチウム二次電池は、高電圧、高エネルギー密度であることから、内部短絡や外部短絡などによる異常発熱に対する十分な対応策が必要とされている。

現在実用化されているリチウム二次電池では、リチウム-コバルト複合酸化物などの活物質粉末、電子伝導性粉末及びバインダー樹脂を混合してペースト状にし、それをアルミニウム集電体に塗布したものを正極として用い、炭素系等の活物質粉末及びバインダー樹脂を混合してペースト状にし、それを銅集電体に塗布したものを負極として用い、120～160℃の融点を有するポリオレフィン系樹脂からなる多孔質膜をセパレータとして用いている。このような電池においては、短絡等が発生して異常発熱すると、樹脂が溶融して膜内の微多孔が閉塞され、セパレータのイオン伝導性が低下し、これにより短絡電流を遮断させるという対応策がとられている。しかしながら、樹脂の融点よりも更に温度が上昇すると、樹脂が溶融、流動化してしまい、セパレータ自体が収縮したり、セパレータに大きな穴が生じたりすることにより、正極及び負極間の絶縁が不十分となり内部短絡に至る恐れがある。

【0003】

そこで、1000℃以上の融点を有する無機酸化物などの絶縁性物質粒子と、200℃程度の融点を有するバインダー樹脂との集合体からなる耐熱性の優れる多孔質セパレータを用いた電池が提案されている（例えば、特許文献1参照）。また、電池の温度上昇に伴って抵抗が大きくなる活物質層を有する電極を用いることにより、温度が異常上昇した時の電流を減少させる電池が提案されている（例えば、特許文献2参照）。

【0004】

【特許文献1】

国際公開第97/08763号パンフレット

【特許文献2】

国際公開第99/40640号パンフレット

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、上記の耐熱性の優れる多孔質セパレータを用いた電池では、多孔質セパレータの融点が高いために、短絡等による電池の異常温度上昇時に電池反応を遮断する機能がなく、低融点材料を含有させた多孔質セパレータの場合には、異常温度上昇時に電池反応を遮断する機能を有するが、この機能が一旦働くと、多孔質セパレータが目詰まりしてしまうために、温度が下がっても電池として使用できなくなるという問題がある。また、上記の電池温度上昇に伴って抵抗が大きくなる電極を用いた電池では、セパレータに耐熱性を有する材料を用いていないため、短絡等による電池の異常温度上昇時にセパレータが目詰まりし、温度が下がっても電池として使用できなくなるという問題がある。

【0006】

本発明は、上記のような課題を解決するためになされたものであり、イオン伝導性及び耐熱性に優れるセパレータと、 $90^{\circ}\text{C}\sim 160^{\circ}\text{C}$ において、反応遮断機能又は電流遮断機能を有する材料を含む活物質層を有する電極とを備えた電池及びその製造方法を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】

本発明は、電解質を保持するセパレータと、前記電解質を保持するセパレータの両面にそれぞれ配置され、活物質層を有する電極とを具備した電池において、前記電解質を保持するセパレータが、イオン伝導性を有しており、 160°C より高い耐熱性を有する材料から構成され、且つ少なくとも一方の前記活物質層が、 $90^{\circ}\text{C}\sim 160^{\circ}\text{C}$ において、反応遮断機能又は電流遮断機能を有する材料を含むことを特徴とする電池である。

【0008】

【発明の実施の形態】

図1は、本実施の形態による電池の断面図である。図1において、電池は、電解質を保持するセパレータ3と、電解質を保持するセパレータ3の一方の面に配置され、正極活物質層6を有する正極1と、電解質を保持するセパレータ3の他方の面に配置され、負極活物質層7を有する負極2とを備えている。そして、電解質を保持するセパレータ3は、絶縁性粒子及びマトリックス樹脂を含むか、又は 160°C より高い融点を有する多孔質樹脂膜からなるものであり、少なくとも一方の活物質層6、7は、活物質8、PTC導電性材料9及びバインダー10を含むものである。さらに、正極は正極集電体4を有し、負極は負極集電体5を有しており、電解質を保持するセパレータには電解液11が含浸されている。そして、これらの電極、電解質を保持するセパレータ及び電解液は、電池容器12によって包含されている。

【0009】

〔電極〕

本実施の形態における電極は、 $90^{\circ}\text{C}\sim 160^{\circ}\text{C}$ において反応遮断機能又は電流遮断機能を有する材料を含む活物質層を有する。この反応遮断機能とは、所定温度において、活物質の表面をコーティングするなどにより活物質の反応を遮断する機能やイオンの経路を閉塞するなどにより電解質イオンの移動を遮断する機能を示し、電流遮断機能とは、所定温度において、電極の抵抗が増大するなどの電極中の電子の流れを遮断する機能を示している。より具体的には、 $90^{\circ}\text{C}\sim 160^{\circ}\text{C}$ において反応遮断機能又は電流遮断機能を有する材料は、電極活物質、PTC導電性材料及びバインダーを含むものである。そして、その活物質層は集電体上に配置されている。

本実施の形態において、正極に用いる活物質としては、例えば、コバルト、マンガン、ニッケルなどの遷移金属のリチウム複合酸化物及び各種の添加元素を含有するこれらのリチウム複合酸化物、銅、鉄、クロム、チタン、アルミニウムなどの金属のリチウム複合酸化物及び各種の添加元素を含有するこれらのリチウム複合酸化物、リチウムとバナジウム、リチウムとモリブデン、リチウムとカルコゲンなどの複合化合物及び各種の添加元素を有するこれらの複合化合物、ポリピロール、ポリアニリン、ポリジサルファイドなどの複合ポリマーを挙げることができ、これらを単独で又は二種以上を組み合わせ用いることができる。活物質層に含まれる正極活物質の割合は、50重量%～98重量%が好ましく、70重量%～98重量%がより好ましい。

正極に用いる活物質の平均粒子径は、 $0.05 \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.1 \sim 50 \mu\text{m}$ がより好ましい。この範囲内であれば、活物質の充填密度を高められ、且つ、他の材料との接触が良好となるので、電池特性を向上させることができる。

負極に用いる活物質としては、例えば、易黒鉛化炭素、難黒鉛化炭素、天然黒鉛、人造黒鉛、ポリアセンなどの炭素質材料、 V-Sn 、 Cu-Sn 、 Fe-Sn 、 Sn-S_2 、 SnO などのすず系の合金化合物やホウ素系の酸化物、 Li_2CoO_4 などの窒化物を挙げることができ、化学的特性に関わらず用いることができる。これらの中でも、その形状は粒状のものが用いられる。活物質層に含まれる負極活物質の割合は、 $50 \text{重量}\% \sim 98 \text{重量}\%$ が好ましく、 $70 \text{重量}\% \sim 98 \text{重量}\%$ がより好ましい。負極に用いる活物質の平均粒子径は、 $0.05 \sim 100 \mu\text{m}$ が好ましく、 $0.1 \sim 50 \mu\text{m}$ がより好ましい。この範囲内であれば、活物質の充填密度を高められ、且つ、他の材料との接触が良好となるので、電池特性を向上させることができる。また、負極活物質として、金属リチウムを用いることもでき、粒状、箔状いずれの形状のものでもよい。

【0010】

また、上記の正極活物質及び負極活物質の導電性を補うために、導電助剤を併用してもよい。導電助剤としては、例えば、アセチレンブラック、ケッチェンブラック及び人造黒鉛などの炭素質材料、金属材料、導電性を有する金属化合物、導電性を有する高分子を挙げることができる。

【0011】

本実施の形態において、PTC (Positive Temperature Coefficient) 導電性材料とは、所定の温度域、特に $90^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$ 付近の温度で、その抵抗値の変化率が増加し、それによりその抵抗が大きくなる特性（以下、PTC特性と略す）を有する材料を意味する。このPTC導電性材料を活物質層に含有させることで、電極の温度が $90^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$ に上昇した時、短絡電流を減少させることができる。このPTC導電性材料は、セラミックス系材料や導電性充填材と結晶性樹脂とを含有する複合材料などがある。セラミックス系材料の場合、温度に対するセラミックス材料自身の構造変化（キュリー温度における構造転移）によりPTC特性が発現する。導電性充填材と結晶性樹脂とを含有する複合材料の場合、その結晶性樹脂が軟化、熔融し、体積膨張することによりそれ自身の抵抗値が上昇する。従って、PTC特性を示す温度は、PTC導電性材料中に含まれる結晶性樹脂の融点に依存するので、結晶性樹脂の種類を変えることにより、PTC特性を示す温度を調節することが可能である。このPTC特性を示す温度が 90°C 以下であることは安全性の確保という観点からは好ましいが、電池が通常使用される温度範囲において電極の抵抗値が上昇することになるので電池性能の低下が起こる。また、PTC特性を示す温度が 160°C を越す場合には、電池の内部温度がこの温度まで上昇することになり、安全面の観点から好ましくない。従って、PTC特性を示す温度は $90^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$ の範囲となるように、PTC導電性材料を設計することが望ましい。一方、正常時（即ち、PTC特性を示す前）における電極の抵抗の大きさは、活物質層に対するPTC導電性材料の割合を変えることにより調節することができ、抵抗値の変化割合（ $(90^\circ\text{C} \sim 160^\circ\text{C}$ における抵抗値－正常時における抵抗値)／正常時における抵抗値）は、 $1.5 \sim 10,000$ が好ましい。本実施の形態におけるPTC導電性材料は、上記のPTC特性を2回以上発現できるような可逆性を有しており、一度PTC特性を示した後に温度を下げると、抵抗値が再び低下するものである。本実施の形態において、可逆性を有するとは、正常時における抵抗値からPTC特性発現時の抵抗値への変化量を 100% とした場合、PTC特性を示した後に温度を下げた時の抵抗値が 90% 以下になることを言う。

【0012】

導電性充填材としては、例えば、カーボンブラック、グラファイト、カーボンファイバー及び金属炭化物などのカーボン材料の他、金属窒化物、金属ケイ素化合物及び金属ホウ化物などの導電性非酸化物を挙げることができ、これらを単独で又は二種以上を組み合わせ用いることができる。カーボンブラックとは、例えば、アセチレンブラック、ファーネスブラック、ランプブラックなどである。金属炭化物とは、例えば、 TiC 、 ZrC 、 VC 、 VbC 、 TaC 、 Mo_2C 、 WC 、 B_4C 、 Cr_3C_2 などである。金属

窒化物とは、例えば、 TiN 、 ZrN 、 VN 、 NbN 、 TaN 、 Cr_2N などである。金属ホウ化物とは、例えば、 TiB_2 、 ZrB_2 、 NbB_2 、 TaB_2 、 CrB 、 MoB 、 WB などである。PTC導電性材料に含まれる導電性充填材の割合は、30重量%～80重量%が好ましく、この範囲内であれば、電極の導電性をより向上させることができる。

【0013】

結晶性樹脂としては、 $90^{\circ}C \sim 160^{\circ}C$ の融点を有し、結晶性を示す樹脂であればよく、例えば、高密度ポリエチレン（融点： $130^{\circ}C \sim 140^{\circ}C$ ）、低密度ポリエチレン（融点： $110^{\circ}C \sim 112^{\circ}C$ ）、ポリウレタンエラストマー（融点： $140^{\circ}C \sim 160^{\circ}C$ ）、ポリ塩化ビニル（融点：約 $145^{\circ}C$ ）などの重合体を挙げることができる。PTC導電性材料に含まれる結晶性樹脂の割合は、20重量%～70重量%が好ましく、この範囲内であれば、電極の導電性を維持しつつ、良好なPTC特性を発現させることができる。

【0014】

PTC導電性材料の製造方法としては、特に限定しないが、例えば、導電性充填材と結晶性樹脂とを混練してペレットにした後、そのペレットをジェットミル装置やボールミル装置などにより粉碎する方法が挙げられる。PTC導電性材料の形状は、好ましくは粒子状であるが、繊維状、鱗片状であってもよい。PTC導電性材料が粒子状の場合、その平均粒子径は、 $0.05\mu m \sim 20\mu m$ が好ましく、 $0.1\mu m \sim 10\mu m$ がより好ましい。この範囲内であれば、PTC導電性材料同士がネットワークを形成し易くなるので、正常時における電極の抵抗をより小さくすることができる。活物質層に含まれるPTC導電性材料の割合は、活物質層の全固形分100重量部に対して、0.5重量部～15重量部が好ましく、0.7重量部～12重量部がより好ましい。この範囲内であれば、正常時における電極の抵抗を小さくし、且つ電池の放電容量を高くすることができる。

【0015】

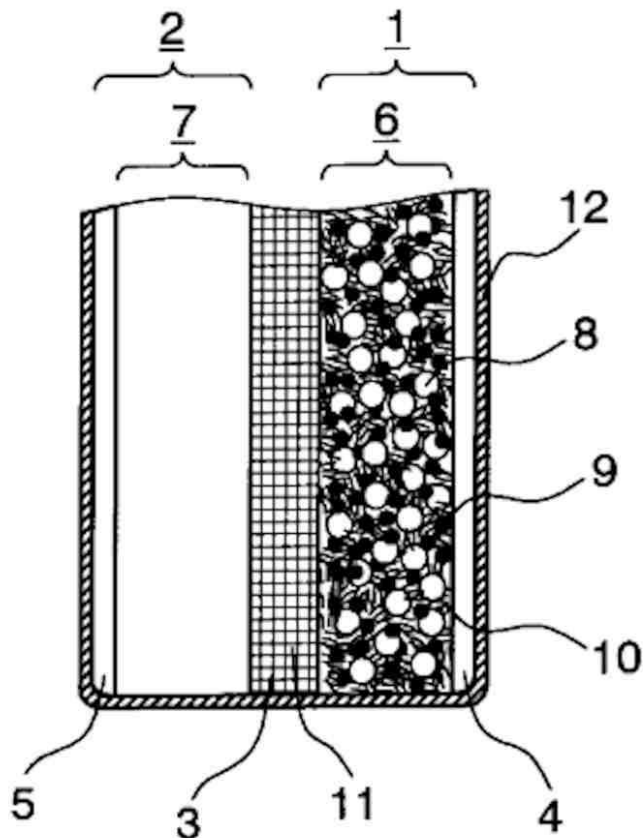
バインダーは、活物質、PTC導電性材料、導電助剤などの活物質層を構成する材料を接着し、且つ活物質層と集電体とを接着接合させることができるものであればよく、例えば、フッ化ビニリデン、四フッ化エチレン、アクリロニトリル、エチレンオキシドなどの単独重合体又は共重合体、スチレンーブタジエンゴムなどを挙げることができる。特に、 $90^{\circ}C \sim 160^{\circ}C$ の融点を有するバインダーを用いることにより、この温度域においてバインダーが熔融し、活物質層を構成する材料間の接着性が低下するので、電極の抵抗が大きくなり、短絡電流を減少させることができる。活物質層に含まれるバインダーの割合は、1重量%～20重量%が好ましく、1重量%～10重量%がより好ましい。この範囲内であれば、活物質層を構成する材料を効率よく接着することができる。

【0016】

本実施の形態において、集電体は、電池内で安定な金属であればよいが、正極にはアルミニウム、負極には銅が好ましく用いられる。集電体の形状は、箔、網状、エキスパンドメタルなど、何れの形状のものでも用いることができる。集電体の厚みは、 $5\mu m \sim 100\mu m$ が好ましく、 $5\mu m \sim 25\mu m$ がより好ましい。この範囲内であれば、十分な機械的強度を維持しつつ、電池の薄型化が可能である。」

イ 図面の記載

「【図1】



」

ウ 上記アの記載事項の【０００２】ないし【０００７】の記載からすると、上記ア及びイの記載事項の「電池」は、【０００２】に記載されている「リチウム二次電池」であることは明らかである。

エ 上記アの記載事項の【０００８】より、「リチウム二次電池」について、正極活物質層６を有する正極１と、負極活物質層７を有する負極２とを備え、少なくとも一方の活物質層６，７は、ＰＴＣ導電性材料９を含んでいるから、ＰＴＣ導電性材料９を含む活物質層６，７を有する正極１または負極２を有するといえる。

オ 上記アの記載事項の【００１１】より、「リチウム二次電池」のＰＴＣ導電性材料が導電性充填材と結晶性樹脂とを含有する複合材料の場合、ＰＴＣ特性を示す温度は、ＰＴＣ導電性材料中に含まれる結晶性樹脂の融点に依存するので、結晶性樹脂の種類を変えることにより、ＰＴＣ特性を示す温度を調節することが可能であるといえる。

カ 上記アの記載事項の【００１１】及び【００１３】より、「リチウム二次電池」のＰＴＣ導電性材料の結晶性樹脂としては、例えば、高密度ポリエチレン（融点：１３０℃～１４０℃）を挙げることができる。

キ 引用例２の記載事項

上記ウ～カの記載事項から、引用例２には以下の事項が記載されていると認められる。

「リチウム二次電池において、

ＰＴＣ導電性材料を含む活物質層を有する正極または負極を有し、

ＰＴＣ導電性材料が導電性充填材と結晶性樹脂とを含有する複合材料の場合、ＰＴＣ導電性材料のＰＴＣ特性を示す温度は、ＰＴＣ導電性材料中に含まれる結晶性樹脂の融点に依存するので、結晶性樹脂の種類を変えることにより、ＰＴＣ特性を示す温度を調節することが可能であり、

結晶性樹脂としては、例えば、高密度ポリエチレン（融点：１３０℃～１４０℃）を挙げることができる。」

5 対比及び当審の判断

5-1 引用発明1を主引例とした場合

本件補正発明と引用発明1とを対比する。

(1) 引用発明1の「正極活物質を含む層」、「正極」の「集電材料」、「負極活物質を含む層」、「負極」の「集電材料」は、本件補正発明の「正極活物質層」、「正極集電体」、「負極活物質層」、「負極集電体」にそれぞれ相当する。

(2) 引用発明1の「正極活物質を含む層を集電材料上に形成した正極」は、本件補正発明の「正極集電体上に正極活物質層が形成された正極」に相当する。

(3) 引用発明1の「負極活物質を含む層を集電材料上に形成した負極」は、本件補正発明の「負極集電体上に負極活物質層が形成された負極」に相当する。

(4) 引用発明1の「正極と前記負極との間に配置され」、「ポリオレフィンからなる「セパレータ」は、本件補正発明の「正極と前記負極との間に介在されているポリオレフィン系分離膜」に相当する。

(5) 引用発明の「キュリー温度が40℃以上200℃以下の電子伝導性材料を含む「多孔質層」は、キュリー温度に達すると、その正の温度係数によって電気抵抗が急激に増大する特性、すなわちPTC特性を有する物質の層であるから、本件補正発明の「PTC (Positive Temperature Coefficient: 正温度係数) 物質層」に相当する。

(6) 本件補正発明の「二次電池用電極組立体」は、「正極と、・・・負極と、・・・ポリオレフィン系分離膜とを備えてなるものであり、」「PTC (Positive Temperature Coefficient: 正温度係数) 物質層が形成され」たものであるところ、引用発明の「非水電解液リチウム二次電池」は、「正極と、・・・負極と、・・・セパレータと」「を含」み、「キュリー温度が40℃以上200℃以下の電子伝導性材料を含む「多孔質層が配置され」たものであるから、引用発明1の「非水電解液リチウム二次電池」は、本件補正発明の「二次電池用電極組立体」に相当するものを含むものであるといえる。

(7) 二次電池において、活物質が電極のセパレータ側に形成されることは技術常識であるから、本件補正発明の「正極活物質層」及び「負極活物質層」は、それぞれ「正極集電体」及び「負極集電体」のセパレータ側に形成されているといえる。

そうすると、引用発明1の「正極及び前記負極から選ばれる少なくとも一方の電極の前記セパレータ側の表面には、多孔質層が配置され、前記多孔質層は、キュリー温度が40℃以上200℃以下の電子伝導性材料を含む事項は、本件補正発明の「正極又は前記負極の少なくとも何れか一つの活物質層の上面には、PTC (Positive Temperature Coefficient: 正温度係数) 物質層が形成され」ている事項に相当する。

(8) 引用発明1の「負極活物質を含む層と電子伝導性材料を含む層との面積が同じである事項は、本件補正発明の「PTC物質層の面積はそれぞれの活物質層の面積と同じである事項に相当する。

(9) 本件補正発明の「PTC組成物」は、その名称から、PTC現象、すなわち「温度が増加するにつれて抵抗が急に大きく増加する現象」(本件明細書【0025】)が現れる組成物であり、引用発明1の「キュリー温度が40℃以上200℃以下の電子伝導性材料」は、「キュリー温度に達すると、その正の温度特性係数によって電気抵抗が急激に増大する特性を有する」(引用例1の【0011】)ものであるから、引用発明1の「電子伝導性材料」は、本件補正発明の「PTC組成物」に相当する。

そうすると、引用発明1の「電子伝導性材料は、

0.94～0.96 g/cm³の密度を有する高密度ポリエチレンを含み、電子伝導性材料の高密度ポリエチレンの量が、電子伝導性材料の全質量に対して30～60質量%である」事項は、本件補正発明の「PTC物質層は、0.94 g/cm³超過の密度を有する高密度ポリエチレンをPTC組成物の総重量の40乃至60重量%で含む」事項に相当する。

(10) 引用発明1の「非水電解液リチウム二次電池」は、本件補正発明の「リチウム二次電池」に相当する。

上記(1)～(10)の点から、本件補正発明と引用発明1は、
「二次電池用電極組立体であって、
正極集電体上に正極活物質層が形成された正極と、
負極集電体上に負極活物質層が形成された負極と、
前記正極と前記負極との間に介在されているポリオレフィン系分離膜とを備えてなるものであり、
前記正極又は前記負極の少なくとも何れか一つの活物質層の上面には、PTC (Positive Temperature Coefficient: 正温度係数) 物質層が形成され、
前記PTC物質層の面積はそれぞれの活物質層の面積と同じであり、
前記PTC物質層は、0.94 g/cm³超過の密度を有する高密度ポリエチレンをPTC組成物の総重量の40乃至60重量%で含む、
二次電池用電極組立体を備えてなる、リチウム二次電池。」で一致し、相違点はない。

よって、本件補正発明は、引用例1に記載された発明であり、特許法第29条第1項第3号に該当するから、特許出願の際独立して特許を受けることができない。

5-2 引用発明2を主引例とした場合

次に、本件補正発明と引用発明2とを対比する。

(1) 引用発明2の「正極活物質を含む層」、「負極活物質を含む層」は、本件補正発明の「正極活物質層」、「負極活物質層」にそれぞれ相当する。

(2) 引用発明2の「袋状セパレータに正極を挿入したセパレータ付き正極4枚と、負極5枚とを、積層して作製した電極積層体」は、「非水電解液リチウム二次電池」の「電極積層体」であるから、本件補正発明の「二次電池用電極組立体」に相当する。

(3) 本件補正発明の「PTC組成物」は、その名称から、PTC現象、すなわち「温度が増加するにつれて抵抗が急に大きく増加する現象」(本件明細書【0025】)が現れる組成物であるといえ、引用発明2の「キュリー温度が約100℃である」「電子伝導性材料」は、キュリー温度に達すると、その正の温度係数によって電気抵抗が急激に増大する特性、すなわちPTC特性を有する物質であるから、本件補正発明の「PTC組成物」に相当する。

(4) 上記(3)を勘案すれば、引用発明2の「電子伝導性材料を含む多孔質層」は、本件補正発明の「PTC (Positive Temperature Coefficient: 正温度係数) 物質層」に相当する。

(5) 引用発明2の「正極活物質を含む層が正極集電体の両面に形成された正極」は、本件補正発明の「正極集電体上に正極活物質層が形成された正極」に相当する。

(6) 引用発明2の「負極活物質を含む層が負極集電体の両面に形成された負極シート」を有する「負極」は、本件補正発明の「負極集電体上に負極活物質層が形成された負極」に相当する。

(7) ポリエチレンがポリオレフィンの一例であることは技術常識であるから、引用発明2の「正極と負極との間に介在するセパレータであって、微孔性ポリエチレンフィルムの袋状セパレータ」は、本件補正発明の「正極と前記負極との間に介在されているポリオレフィン系分離膜」に相当する。

(8) 引用発明2は、「負極活物質を含む層が負極集電体の両面に形成された負極シートの両面に、電子伝導性材料を含む多孔質層が形成され」ているから、本件補正発明の「正極又は前記負極の少なくとも何れか一つの活物質層の上面には、PTC (Positive Temperature Coefficient : 正温度係数) 物質層が形成され」ている事項を有するものである。

(9) 本件補正発明において、「PTC (Positive Temperature Coefficient : 正温度係数) 物質層が形成され」ているのは、「正極又は前記負極の少なくとも何れか一つ」であるから、引用発明2の「負極活物質を含む層と電子伝導性材料を含む多孔質層とは同じ面積である」事項は、本件補正発明の「PTC物質層の面積はそれぞれの活物質層の面積と同じである」事項に相当する。

(10) 引用発明2の「電子伝導性材料」の「低密度ポリエチレン」及び「ポリエチレン微粉末ワックス」と、本件補正発明の「PTC物質層」の「高密度ポリエチレン」は、いずれもPTC組成物に含まれる高分子化合物である点で共通するものである。

そして、引用発明2の「電子伝導性材料」は、「導電性付与材であるカーボンブラック60質量部と、高分子化合物である低密度ポリエチレン30質量部と、ポリエチレン微粉末ワックス10質量部とを混合して調製したものである」から、電子伝導性材料の総重量の40%の高分子化合物を含むものであるといえる。

また、引用発明2の「多孔質層」は、「電子伝導性材料」を「含む」ものであることからすると、引用発明2の「電子伝導性材料は、導電性付与材であるカーボンブラック60質量部と、高分子化合物である低密度ポリエチレン30質量部と、ポリエチレン微粉末ワックス10質量部とを混合して調製したものであり、キュリー温度が約100℃である」事項と、本件補正発明

の「PTC物質層は、 0.94 g/cm^3 超過の密度を有する高密度ポリエチレンをPTC組成物の総重量の40乃至60重量%で含む」事項とは、「PTC物質層は、高分子化合物をPTC組成物の総重量の40乃至60重量%で含む」事項で共通する。

(11) 引用発明2の「非水電解液リチウム二次電池」は、本件補正発明の「リチウム二次電池」に相当する。

上記(1)～(11)の点から、本件補正発明と引用発明2とは、「二次電池用電極組立体であって、正極集電体上に正極活物質層が形成された正極と、負極集電体上に負極活物質層が形成された負極と、前記正極と前記負極との間に介在されているポリオレフィン系分離膜とを備えてなるものであり、前記正極又は前記負極の少なくとも何れか一つの活物質層の上面には、PTC (Positive Temperature Coefficient : 正温度係数) 物質層が形成され、前記PTC物質層の面積はそれぞれの活物質層の面積と同じであり、前記PTC物質層は、高分子化合物をPTC組成物の総重量の40乃至60重量%で含む、二次電池用電極組立体を備えてなる、リチウム二次電池。」で一致し、以下の点で相違する。

(相違点)

「PTC組成物」に含まれる高分子化合物が、本件補正発明では、「 0.94 g/cm^3 超過の密度を有する高密度ポリエチレン」であるのに対し、引用発明2では、「低密度ポリエチレン」及び「ポリエチレン微粉

末ワックス」である点。

以下、上記相違点について検討する。

ア 引用例 1 には、電子伝導性材料として用いられる導電性付与材を添加した高分子化合物に関し、「この高分子化合物は電子伝導性を有し、高分子化合物の分子量を調整することや添加剤の導入により、キュリー温度を任意に調整可能」（【0017】）であると記載され、また、「これらの高分子化合物は、一種類だけを選択して用いてもよいし、必要な正の温度特性を得るために二種類以上を組み合わせて用いてもよい」（【0018】）と記載されており、これらの記載からすると、引用発明 2 の「電子伝導性材料」のキュリー温度を適宜調整することが示唆されているといえる。

イ また、引用例 1 には、「電子伝導性材料は、・・・・・・電子伝導性を付与した高分子材料・・・・・・を用いることができる」

（【0015】）、「上記高分子材料は、導電性付与材を添加した高分子化合物が好適に用いられる」（【0017】）、「上記高分子化合物としては、結晶性高分子化合物が好ましく、・・・・・・具体的には、高密度ポリエチレン・・・・・・低密度ポリエチレン・・・・・・などを用いることができる」（【0018】）と記載され、高密度ポリエチレンが低密度ポリエチレンと並列的に例示されているから、引用発明 2 の「電子伝導性材料」として、低密度ポリエチレンに代えて高密度ポリエチレンを用いることが示唆されているといえる。

ウ 一方、高密度ポリエチレンに関し、引用例 2 には、「リチウム二次電池において、PTC 導電性材料を含む活物質層を有する正極または負極を有し、PTC 導電性材料が導電性充填材と結晶性樹脂とを含有する複合材料の場合、PTC 導電性材料の PTC 特性を示す温度は、PTC 導電性材料中に含まれる結晶性樹脂の融点に依存するので、結晶性樹脂の種類を変えることにより、PTC 特性を示す温度を調節することが可能であり、結晶性樹脂としては、例えば、高密度ポリエチレン（融点：130℃～140℃）を挙げることができる」との事項が記載されている。（上記「第 2」「4」「（2）」「キ」参照。）

このように、PTC 導電性材料に含まれる結晶性樹脂の種類を変えることにより PTC 温度が調整可能であり、結晶性樹脂として、例えば、高密度ポリエチレンを採用すると、PTC 温度を 130～140℃にできることが知られている。

なお、引用例 2 記載の上記事項の「PTC 導電性材料」は、「導電性充填材と結晶性樹脂とを含有する複合材料」であるのに対し、引用発明 2 の「電子伝導性材料」は、「導電性付与材であるカーボンブラック 60 質量部と、高分子化合物である低密度ポリエチレン 30 質量部と、ポリエチレン微粉末ワックス 10 質量部とを混合して調製したものである」。そして、引用例 2 記載の上記事項の「導電性充填材」、「結晶性樹脂」は、各々、引用発明 2 の「導電性付与材であるカーボンブラック」、「低密度ポリエチレン」及び「ポリエチレン微粉末ワックス」にそれぞれ相当するから、引用例 2 記載の上記事項の「PTC 導電性材料」は、引用発明 2 の「電子伝導性材料」に相当する。

エ ここで、引用発明 2 の「非水電解液リチウム二次電池」の「電子伝導性材料」は「キュリー温度が約 100℃である」が、電池の使用環境は室温程度からそれより高い温度まで様々であるから、より高い温度環境で使用されるリチウム二次電池とするために、PTC 温度を高め設定することは当然のことといえる。

オ そうすると、上記アのとおり、引用例 1 には、引用発明 2 の「電子伝導性材料」のキュリー温度を適宜調整することが示唆されていること、上記イのとおり、引用例 1 には、引用発明 2 の「電子伝導性材料」として、低密度ポリエチレンに代えて高密度ポリエチレンを用いることが示唆されていること、及び、上記ウのとおり、PTC 導電性材料に含まれる結晶性樹脂の種類を変えることにより PTC 温度が調整可能であり、結晶性樹脂として、高密度ポリエチレンを採用すると、PTC 温度を 130～140℃にできることからすると、引用発明 2 の「非水電解液リチウム二次電池」において、より高温の環境で使用される電池として、適切な PTC 温度とするために、

「キュリー温度が約 100℃である」「低密度ポリエチレン」及び「ポリエチレン微粉末ワックス」に代えて、引用例 2 に記載された、融点が「130℃～140℃」の「高密度ポリエチレン」を採用することは、当業

者が容易になし得たことである。

カ そして、高密度ポリエチレンが 0.94 g/cm^3 超過の密度を有することは技術常識（「岩波理化学辞典」、第4版第9刷、岩波書店、1994年7月18日発行、第1234頁、「ポリエチレン」項）であって、引用例2記載の上記事項の「高密度ポリエチレン」も

0.94 g/cm^3 超過の密度を有することは明らかである。

してみると、引用発明2において、上記相違点に係る本件補正発明の発明特定事項とすることは、当業者が容易になし得たことである。

また、本件補正発明によってもたらされる効果は、引用発明、引用例1、2記載の事項、及び、技術常識から当業者が予測できる程度のものと認められる。

よって、本件補正発明は、引用発明、引用例1、2記載の事項、及び、技術常識に基いて、当業者が容易に発明をすることができたものであるから、特許法第29条第2項の規定により、特許出願の際独立して特許を受けることができない。

6 本件補正についての補正の却下の決定のむすび

以上のとおり、本件補正は、特許法第17条の2第6項において準用する同法第126条第7項の規定に違反するものであるから、同法第159条第1項において読み替えて準用する同法第53条第1項の規定により却下すべきものである。

第3 本願発明について

1 本願発明

平成27年5月26日付けの手續補正は上記「第2」のとおり却下されたので、本願の特許請求の範囲の請求項1を引用する請求項6に係る発明（以下「本願発明」という。）は、平成26年10月30日付けの手續補正書により補正された特許請求の範囲の請求項1及び請求項6に記載されたとおりのものであって、引用関係を解消して記載を整理すると、次のとおりのものである。

「二次電池用電極組立体であって、
正極集電体上に正極活物質層が形成された正極と、
負極集電体上に負極活物質層が形成された負極と、
前記正極と前記負極との間に介在されているポリオレフィン系分離膜とを備えてなるものであり、
前記正極又は前記負極の少なくとも何れか一つの活物質層の上面には、
PTC (Positive Temperature Coefficient : 正温度係数) 物質層が形成され、前記PTC物質層の面積はそれぞれの活物質層の面積と同じことを特徴とする、
二次電池用電極組立体を備えてなることを特徴とする、リチウム二次電池。」

2 原査定の理由

原査定の拒絶の理由の一つは、本願の請求項1～9に係る発明は、引用例1に記載された発明であるから、特許法第29条第1項第3号に該当し、特許を受けることができないというものである。

3 引用刊行物

原査定の拒絶の理由に引用され、本願の優先日前に頒布された引用例1及びその記載事項並びに引用発明2は、上記「第2」「4」「(1)」及び「(1-2)」のとおりである。

4 対比及び当審の判断

ここで、本願発明と引用発明2とを対比するに、本願発明は、本件補正発明から「PTC物質層は、 0.94 g/cm^3 超過の密度を有する高密度ポリエチレンをPTC組成物の総重量の40乃至60重量%で含む」事項を省いたものであるから、上記「第2」「5」「5-2」「(1)」～

「(11)」に照らせば、本願発明は引用発明と全ての構成で一致し、相違点はない。

よって、本願発明は引用発明2である。

5 むすび

以上のとおり、本願発明は、引用例1に記載された発明であるから、特許法第29条第1項第3号の規定により、特許を受けることができない。

したがって、その余の請求項に係る発明について言及するまでもなく、本願は拒絶すべきものである。

よって、結論のとおり審決する。

平成28年 9月27日

審判長	特許庁審判官	板谷 一弘
	特許庁審判官	土屋 知久
	特許庁審判官	池淵 立

(行政事件訴訟法第46条に基づく教示)

この審決に対する訴えは、この審決の謄本の送達があった日から30日(附加期間がある場合は、その日数を附加します。)以内に、特許庁長官を被告として、提起することができます。

〔審決分類〕 P 1 8 . 1 1 3 - Z (H O 1 M)
1 2 1
5 7 5

出訴期間として90日を附加する。

審判長	特許庁審判官	板谷 一弘	8821
	特許庁審判官	池淵 立	8831
	特許庁審判官	土屋 知久	8826