

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開2022-51521
(P2022-51521A)

(43)公開日 令和4年3月31日(2022.3.31)

(51)Int.Cl.		F I		テーマコード(参考)
H O 1 M 50/417 (2021.01)		H O 1 M 50/417		4 F 0 7 1
H O 1 M 50/494 (2021.01)		H O 1 M 50/494		4 F 0 7 4
H O 1 M 50/489 (2021.01)		H O 1 M 50/489		4 F 1 0 0
H O 1 M 50/449 (2021.01)		H O 1 M 50/449		5 E 0 7 8
H O 1 G 11/06 (2013.01)		H O 1 G 11/06		5 H 0 2 1

審査請求 未請求 請求項の数 16 O L (全 48 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号	特願2021-142586(P2021-142586)	(71)出願人	000000033
(22)出願日	令和3年9月1日(2021.9.1)		旭化成株式会社
(31)優先権主張番号	特願2020-157298(P2020-157298)		東京都千代田区有楽町一丁目1番2号
(32)優先日	令和2年9月18日(2020.9.18)	(74)代理人	100099759
(33)優先権主張国・地域又は機関			弁理士 青木 篤
	日本国(JP)	(74)代理人	100123582
(31)優先権主張番号	特願2020-157385(P2020-157385)		弁理士 三橋 真二
(32)優先日	令和2年9月18日(2020.9.18)	(74)代理人	100108903
(33)優先権主張国・地域又は機関			弁理士 中村 和広
	日本国(JP)	(74)代理人	100142387
			弁理士 齋藤 都子
		(74)代理人	100135895
			弁理士 三間 俊介

最終頁に続く

(54)【発明の名称】蓄電デバイス用セパレータ

(57)【要約】

【課題】本発明は、高強度かつ長期使用に伴う目詰まりを抑制した薄膜な蓄電デバイス用セパレータを提供することを目的とする。

【解決手段】主成分がポリオレフィン(A)である微多孔層(X)を含む蓄電デバイス用セパレータが提供され、前記微多孔層(X)の荷重2.16kg及び温度230℃におけるメルトフローレート(MFR)が、0.90g/10min以下であり、かつ走査型電子顕微鏡(SEM)による前記微多孔層(X)のMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において、前記微多孔層(X)に存在する孔の平均長孔径が、100nm以上である。

【選択図】なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

主成分がポリオレフィン（A）である微多孔層（X）を含み、
 前記微多孔層（X）の荷重 2.16 kg 及び温度 230℃におけるメルトフローレート（MFR）が、0.90 g/10 分以下であり、かつ
 走査型電子顕微鏡（SEM）による前記微多孔層（X）の MD-TD 表面観察または ND-MD 断面観察において、前記微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径が、100 nm 以上である、
 蓄電デバイス用セパレータ。

10

【請求項 2】

前記 SEM による前記微多孔層（X）の MD-TD 表面観察または ND-MD 断面観察において、前記微多孔層（X）に存在する孔の最大長孔径が、100 nm 以上 400 nm 以下である、
 請求項 1 に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項 3】

温度 230℃で測定した際の前記微多孔層（X）の溶融張力が、16 mN 以上である、
 請求項 1 又は 2 に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項 4】

温度 230℃で測定した際の前記微多孔層（X）の溶融張力が、16 mN 以上 40 mN 以下である、
 請求項 1 又は 2 に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

20

【請求項 5】

前記蓄電デバイス用セパレータの機械方向の引張強度（SMD）と幅方向の引張強度（STD）の比（SMD/STD）が、SMD/STD>5 である、
 請求項 1～4 のいずれか 1 項に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項 6】

前記蓄電デバイス用セパレータの 105℃1 時間熱処理後の熱収縮率が、TD において 1% 以下、MD において 4% 以下であり、
 前記蓄電デバイス用セパレータの 120℃1 時間熱処理後の熱収縮率が、TD において 1% 以下、MD において 10% 以下である、請求項 1～5 のいずれか 1 項に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

30

【請求項 7】

前記蓄電デバイス用セパレータの厚みを 14 μm に換算した際の透気度が、250 秒/100 cm³ 以下である、
 請求項 1～6 のいずれか 1 項に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項 8】

厚みが 8 μm 以上 18 μm 以下であり、かつ、厚みを 14 μm に換算した際の突刺強度が 230 gf 以上である、請求項 1～7 のいずれか 1 項に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

40

【請求項 9】

前記ポリオレフィン（A）が、ポリプロピレンを含む、
 請求項 1～8 のいずれか 1 項に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項 10】

前記ポリオレフィン（A）に対する、前記ポリプロピレンの割合が 50～100 質量% である、
 請求項 9 に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項 11】

前記ポリプロピレンのペンタッド分率が、95.0% 以上である、
 請求項 9 又は 10 に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

50

【請求項 12】

前記微多孔層 (X) の重量平均分子量 (Mw) が、500,000以上1,500,000以下である、

請求項1～11のいずれか1項に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項13】

前記微多孔層 (X) のMwを数平均分子量 (Mn) で除した値 (Mw/Mn) が、6以下である、

請求項1～12のいずれか1項に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項14】

ポリオレフィン (B) を主成分とする微多孔層 (Y) をさらに備える、請求項1～13のいずれか1項に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

10

【請求項15】

前記ポリオレフィン (B) がポリエチレンである、請求項14に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

【請求項16】

請求項1～15のいずれか1項に記載の蓄電デバイス用セパレータを備える、蓄電デバイス。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、蓄電デバイス用セパレータ等に関する。

20

【背景技術】

【0002】

微多孔膜、特にポリオレフィン系微多孔膜は、精密濾過膜、電池用セパレータ、コンデンサー用セパレータ、燃料電池用材料等の多くの技術分野で使用されており、特にリチウムイオン電池に代表される蓄電デバイス用セパレータとして使用されている。リチウムイオン電池は、携帯電話、ノート型パーソナルコンピュータ等の小型電子機器用途のほか、ハイブリッド自動車、及びプラグインハイブリッド自動車を含む電気自動車等、様々な用途へ応用されている。

【0003】

近年、高エネルギー容量、高エネルギー密度、かつ高い出力特性を有するリチウムイオン電池が求められ、それに伴い、薄膜かつ高強度（例えば、高突刺強度）なセパレータの需要が高まっている。

30

【0004】

特許文献1は、微多孔性フィルムの剛性、及び一定の厚みでの製品不良率の低減の観点から、ポリプロピレン樹脂 (X) 5～30重量%と、ポリプロピレン樹脂 (Y) 95～70重量%とを含む微多孔性フィルム用ポリプロピレン樹脂組成物を記載する。特許文献1に記載のポリプロピレン樹脂 (X) は、特定のメルトフローレート (MFR)、分子量分布 (Mw/Mn)、及び長鎖分岐構造を有する。特許文献1に記載のポリプロピレン樹脂 (Y) は、特定のMFRを有し、且つポリプロピレン樹脂 (X) を除く。

【0005】

40

特許文献2は、微多孔膜の電気化学的安定性、高いメルトダウン温度、高い電解質親和性、及び低い水分保持性の改善されたバランスの観点から、次の3つの層 (a)～(c) を有する微多孔膜が記載する：

(a) 6.0×10^5 以上の重量平均分子量 (Mw) を有するアイソタクチックポリプロピレン40.0～85.0重量%を含有する第一の層と、

(b) ポリオレフィンを含有する第二の層と、

(c) 6.0×10^5 以上のMwを有するアイソタクチックポリプロピレン40.0～85.0重量%を含有する第三の層。

【0006】

特許文献3は、融点 T_{mA} を有する第1の樹脂組成物を含む第1の微多孔性フィルムと、

50

前記融点 T_{mA} よりも低い融点 T_{mB} を有する第2の樹脂組成物を含む第2の微多孔性フィルムと、を備え、伸長粘度が、 $18000 \sim 40000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ であり、せん断粘度が、 $5000 \sim 10000 \text{ Pa} \cdot \text{s}$ である、積層微多孔性フィルムを記載する。

【0007】

特許文献4は、分子量が5万以下の成分量が25～60重量%、分子量が70万以上の成分量が19～30重量%、重量平均分子量が35万～50万、かつ溶融張力が $1.1 \sim 3.2 \text{ g}$ であるプロピレン系樹脂からなる、プロピレン系樹脂微孔フィルムを記載する。

【0008】

特許文献5は、極限粘度 $[\eta]$ が 1 dl/g 以上 7 dl/g 未満であり、メソペンタッド分率が94.0～99.5%の範囲であり、昇温時の 100°C までの溶出積分量が10%以下であり、融点が $153 \sim 167^\circ\text{C}$ であり、溶出温度－溶出量曲線において、最大ピークのピークトップ温度が $105 \sim 130^\circ\text{C}$ に存在し、該ピークの半値幅が 7.0°C 以下である、プロピレン単独重合体を必須成分とする、微多孔膜形成用ポリプロピレン樹脂組成物を記載する。

【0009】

特許文献6は、ポリプロピレン系樹脂を含むポリオレフィン微多孔膜であって、メルトダウン温度が 195°C 以上 230°C 以下であるポリオレフィン微多孔膜を記載し、当該ポリプロピレン系樹脂の重量平均分子量が50万以上80万以下であってよいこと、及び分子量分布が7.5以上16以下であってよいことを記載する。

【0010】

特許文献7は、第1の樹脂組成物からなる第1の微多孔性フィルムと、第2の樹脂組成物からなる第2の微多孔性フィルムとを積層して備え、第1の樹脂組成物及び第2の樹脂組成物のMFRがいずれも 1.0 g/10分 以下であり、第1の樹脂組成物に含まれる樹脂の分子量分布(M_w/M_n)が10以上である積層微多孔性フィルムを記載する。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0011】

【特許文献1】特開2018-030992号公報

【特許文献2】特表2013-517152号公報

【特許文献3】特開2016-022676号公報

【特許文献4】特開2012-092286号公報

【特許文献5】国際公開第2010/079784号

【特許文献6】国際公開第2017/138512号

【特許文献7】特開2016-22679号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0012】

微多孔膜に高分子量のポリオレフィンを使用することで、高強度の微多孔膜を提供できることが知られている。

【0013】

しかしながら、微多孔層の製造に高分子量のポリオレフィンを用いると、成膜性、製造時の開孔性が不十分となり、微多孔膜の孔径が小さくなったり、透気度（すなわち透気抵抗度）が悪化したりする傾向、及び、溶融時の粘度が高いことで、薄膜（例えば厚み $20 \mu\text{m}$ 以下）のセパレータの作製が困難となる傾向がある。

【0014】

したがって、本発明は、高強度かつ長期使用に伴う目詰まりを抑制した薄膜の蓄電デバイス用セパレータを提供することを目的とする。

さらに、本発明は、蓄電デバイスの高安全性に寄与する、高強度（特に高突刺強度）及び高温での高い寸法安定性を有しながら、高出力かつ薄膜化の可能な蓄電デバイス用セパレータを提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0015】

本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討を重ねた結果、特定のメルトフローレート（MFR）を有するポリオレフィンを主成分とし、かつ特定の平均長孔径を有する微多孔層を使用することが、上記課題の解決に有利であることを見出し、本発明を完成させるに至った。本発明の実施形態の例を以下に列記する。

〔1〕 主成分がポリオレフィン（A）である微多孔層（X）を含み、前記微多孔層（X）の荷重2.16kg及び温度230℃におけるメルトフローレート（MFR）が、0.90g/10分以下であり、かつ走査型電子顕微鏡（SEM）による前記微多孔層（X）のMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において、前記微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径が、100nm以上である、蓄電デバイス用セパレータ。

10

〔2〕 前記SEMによる前記微多孔層（X）のMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において、前記微多孔層（X）に存在する孔の最大長孔径が、100nm以上400nm以下である、上記態様1に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔3〕 温度230℃で測定した際の前記微多孔層（X）の溶融張力が、16mN以上である、上記態様1又は2に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔4〕 温度230℃で測定した際の前記微多孔層（X）の溶融張力が、16mN以上40mN以下である、上記態様1又は2に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

20

〔5〕 前記蓄電デバイス用セパレータの機械方向の引張強度（SMD）と幅方向の引張強度（STD）の比（SMD/STD）が、SMD/STD>5である、上記態様1～4のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔6〕 前記蓄電デバイス用セパレータの105℃1時間熱処理後の熱収縮率が、TDにおいて1%以下、MDにおいて4%以下であり、前記蓄電デバイス用セパレータの120℃1時間熱処理後の熱収縮率が、TDにおいて1%以下、MDにおいて10%以下である、上記態様1～5のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

30

〔7〕 前記蓄電デバイス用セパレータの厚みを14μmに換算した際の透気度が、250秒/100cm³以下である、上記態様1～6のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔8〕 厚みが8μm以上18μm以下であり、かつ、厚みを14μmに換算した際の突刺強度が230gf以上である、上記態様1～7のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔9〕 前記ポリオレフィン（A）が、ポリプロピレンを含む、上記態様1～8のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔10〕 前記ポリオレフィン（A）に対する、前記ポリプロピレンの割合が50～100質量%である、上記態様9に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

40

〔11〕 前記ポリプロピレンのペンタッド分率が、95.0%以上である、上記態様9又は10に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔12〕 前記微多孔層（X）の重量平均分子量（Mw）が、500,000以上1,500,000以下である、上記態様1～11のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔13〕 前記微多孔層（X）のMwを数平均分子量（Mn）で除した値（Mw/Mn）が、6以下である、上記態様1～12のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

上記態様1～12のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔14〕 ポリオレフィン（B）を主成分とする微多孔層（Y）をさらに備える、上記態

50

様1～13のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔15〕 前記ポリオレフィン（B）がポリエチレンである、上記態様14に記載の蓄電デバイス用セパレータ。

〔16〕 上記態様1～15のいずれかに記載の蓄電デバイス用セパレータを備える、蓄電デバイス。

【発明の効果】

【0016】

本発明によれば、高強度でかつ、リチウムイオン二次電池などの蓄電デバイス内での目詰まりを抑制できる蓄電デバイス用セパレータを提供することができる。さらに、本発明によれば、蓄電デバイスの高安全性に寄与する、高強度（特に高突刺強度）及び高温での高い寸法安定性を有しながら、高出力で、かつ薄膜化の可能な蓄電デバイス用セパレータを提供することができる。なお、上述の記載は、本発明の全ての実施形態及び本発明に関する全ての利点を開示したものとはみなしてはならない。本発明の更なる実施形態及びその利点は、以下の記載を参照することにより明らかとなる。

【発明を実施するための形態】

【0017】

以下、本発明の実施形態（以下、「本実施形態」という。）を例示する目的で詳細に説明するが、本発明は本実施形態に限定されるものではない。なお、本実施形態のポリオレフィンの重量平均分子量（ M_w ）、数平均分子量（ M_n ）、および M_w/M_n は、GPC（ゲルパーミエーションクロマトグラフィー）測定により得られるポリスチレン換算の分子量である。

【0018】

《蓄電デバイス用セパレータ》

〈微多孔層〉

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、ポリオレフィンを主成分とする微多孔層を備える。本実施形態において、微多孔層とは、蓄電デバイス用セパレータを構成する一層の微多孔層を指し、二層以上を積層して多層で用いてもよい。一態様において、蓄電デバイス用セパレータは、ポリオレフィン（A）を主成分とする微多孔層（X）を有する。蓄電デバイス用セパレータは、所望により、ポリオレフィン（B）を主成分とする微多孔層（Y）をさらに備えてよい。

【0019】

なお、セパレータが多層の微多孔層からなる場合も、粘着テープをセパレータ端部に貼り、引っ張ることにより、容易に各微多孔層を剥がして回収し、後述される溶融張力、メルトフローレート（MFR）、分子量、長孔径、気孔率、厚み等の物性を測定することが可能である。

【0020】

〈微多孔層（X）〉

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、微多孔層（X）を有する。蓄電デバイス用セパレータは、微多孔層（X）を一層のみ有していても、二層以上有していてもよい。本実施形態における、ポリオレフィン（A）を主成分とするとは、当該微多孔層（X）の全質量を基準として、ポリオレフィン（A）を50質量%以上含むものをいう。微多孔層（X）中のポリオレフィン（A）の含有量の下限は、セパレータの電解液に対する濡れ性、薄膜化、及びシャットダウン特性等の観点から、50質量%以上であり、好ましくは55質量%以上、60質量%以上、70質量%以上、80質量%以上、90質量%以上、又は95質量%以上である。微多孔層（X）中のポリオレフィン（A）の含有量の上限は、例えば、60質量%以下、70質量%以下、80質量%以下、90質量%以下、95質量%以下、98質量%以下、又は99質量%以下でよく、100質量%でもよい。

【0021】

〈ポリオレフィン（A）〉

本実施形態におけるポリオレフィン（A）は、炭素-炭素二重結合を有するモノマーを繰

り返し単位として含むポリマーである。ポリオレフィン (A) を構成するモノマーとしては、限定されないが、炭素-炭素二重結合を有する炭素原子数 1 以上 10 未満のモノマー、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、及び1-オクテン等が挙げられる。ポリオレフィン (A) は、例えば、ホモポリマー、コポリマー、又は多段重合ポリマー等であり、好ましくはホモポリマーである。

【0022】

ポリオレフィン (A) としては、具体的には、シャットダウン特性等の観点から、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンとプロピレンとの共重合体、及びこれらの混合物が好ましい。ポリオレフィン (A) は、より好ましくはポリプロピレンである。同様の観点から、微多孔層 (X) の主成分であるポリオレフィン (A) に対するポリプロピレンの割合の下限は、好ましくは50質量%以上、より好ましくは60質量%以上、更に好ましくは70質量%以上である。微多孔層 (X) の主成分であるポリオレフィン (A) に対するポリプロピレンの割合の下限は、好ましくは100質量%以下である。

10

【0023】

ポリプロピレンの立体規則性は、限定されないが、例えば、アタクチック、アイソタクチック、又はシンジオタクチックのポリプロピレン等が挙げられる。本実施形態に係るポリプロピレンは、好ましくは高結晶性のアイソタクチック、又はシンジオタクチックのホモポリマーである。

【0024】

ポリオレフィン (A) として使用可能なポリプロピレンは、好ましくはホモポリマーであり、プロピレン以外のコモノマー、例えば α -オレフィンコモノマーを共重合したコポリマー、例えばブロックポリマーであってもよい。ポリプロピレンの繰返し単位として含まれるプロピレン構造の量の下限は、例えば70モル%以上、80モル%以上、90モル%以上、95モル%以上、又は99モル%以上でよい。ポリプロピレンには、プロピレン構造以外の繰返し単位が含まれる場合がある。その場合、コモノマーに由来する繰返し単位 (ただし、プロピレン構造を除く) の量の上限は、例えば30モル%以下、20モル%以下、10モル%以下、5モル%以下、又は1モル%以下でよい。ポリプロピレンは、1種を単独で、又は2種以上を混合して使用することができる。

20

【0025】

ポリオレフィン (A) の重量平均分子量 (M_w) の下限は、微多孔層 (X) の強度等の観点から、好ましくは300,000以上、より好ましくは500,000以上、さらに好ましくは600,000以上、特に好ましくは800,000以上である。ポリオレフィン (A) の重量平均分子量 (M_w) の上限は、微多孔層 (X) の孔径を大きくし、目詰まりを抑制して高出力を得る観点から、好ましくは1,500,000以下、より好ましくは1,300,000以下、さらに好ましくは1,100,000以下、より更に好ましくは1,000,000以下、特に好ましくは960,000以下である。

30

【0026】

ポリオレフィン (A) の重量平均分子量 (M_w) を数平均分子量 (M_n) で除した値 (M_w/M_n) の上限値は、好ましくは7以下、6.5以下、6以下、5.5以下、又は5以下である。 M_w/M_n の値が小さいほど、分子同士の絡み合いが少なくなるため、得られる微多孔層 (X) の溶融張力も小さくなる傾向にある。したがって、ポリオレフィン (A) の M_w/M_n の値が7以下であると、微多孔層 (X) の溶融張力を低く制御し、微多孔層 (X) をより薄膜で安定的に作製できるため、好ましい。また、ポリオレフィン (A) の M_w/M_n の下限値は、好ましくは1以上、1.3以上、1.5以上、2.0以上、又は2.5以上である。 M_w/M_n が1以上であることにより、適度な分子の絡み合いが維持され、成膜時の安定性が良好となる傾向がある。

40

【0027】

従来のセパレータは、厚みが20 μm から40 μm のものが多く、特に多層構造を有するセパレータにおいて、上記よりも薄膜のセパレータを作製することは困難であった。これは、高分子量のポリオレフィンを用いると成膜時の溶融張力が高くなり、薄膜の微多孔層

50

を安定的に生成することが困難であるためと考えられる。ポリオレフィン（A）の分子量、及び M_w/M_n で表される分子量分布を上記で説明された数値範囲内に制御することは、より薄膜のセパレータを作製する観点から有利である。

【0028】

ポリオレフィン（A）がポリプロピレンである場合、ポリプロピレンの重量平均分子量（ M_w ）の下限は、微多孔層（X）の強度等の観点から、好ましくは300、000以上、より好ましくは500、000以上、さらに好ましくは600、000以上、より更に好ましくは700、000以上、特に好ましくは800、000以上である。ポリプロピレンの M_w の上限は、微多孔層の孔径を大きくし、目詰まりを抑制する観点から、好ましくは1、500、000以下、より好ましくは1、300、000以下、さらに好ましくは1、100、000以下、より更に好ましくは1、000、000以下、特に好ましくは960、000以下である。

10

【0029】

ポリオレフィン（A）がポリプロピレンである場合、ポリプロピレンの重量平均分子量（ M_w ）を数平均分子量（ M_n ）で除した値（ M_w/M_n ）の上限値は、好ましくは7以下、6.5以下、6以下、5.5以下、又は5以下である。ポリプロピレンの M_w/M_n の値が小さいほど、得られる微多孔層（X）の溶融張力も小さくなる傾向にある。したがって、ポリプロピレンの M_w/M_n の値が7以下であることは、微多孔層（X）の溶融張力を30mN以下に制御するために好ましい。また、ポリプロピレンの M_w/M_n は、好ましくは1以上、1.3以上、1.5以上、2.0以上、又は2.5以上である。ポリプロピレンの M_w/M_n が1以上であることにより、適度な分子の絡み合いが維持され、成膜時の安定性が良好となる傾向がある。

20

【0030】

ポリオレフィン（A）の密度の下限は、好ましくは0.85 g/cm³以上、0.88 g/cm³以上、0.89 g/cm³以上、又は0.90 g/cm³以上である。ポリオレフィン（A）の密度の上限は、好ましくは1.1 g/cm³以下、1.0 g/cm³以下、0.98 g/cm³以下、0.97 g/cm³以下、0.96 g/cm³以下、0.95 g/cm³以下、0.94 g/cm³以下、0.93 g/cm³以下、又は0.92 g/cm³以下である。ポリオレフィン（A）の密度は、ポリオレフィン（A）の結晶性に関連し、ポリオレフィン（A）の密度を0.85 g/cm³以上とすることで微多孔層（X）の開孔性が向上し、特に、乾式で樹脂原反を多孔化する方法（以下、乾式法という）において有利である。

30

【0031】

〈微多孔層（X）の溶融張力〉

温度230℃で測定した際の微多孔層（X）の溶融張力（単層の溶融張力）の上限値は、微多孔層（X）の成形性の観点から、好ましくは40mN以下、より好ましくは38mN以下、さらに好ましくは35mN以下、最も好ましくは30mN以下である。微多孔層（X）の溶融張力（単層の溶融張力）の下限値は、微多孔層（X）の強度等の観点から、好ましくは16mN以上、より好ましくは17mN以上、さらに好ましくは20mN以上、最も好ましくは24mN以上である。

40

【0032】

〈メルトフローレート（MFR）〉

荷重2.16 kg、温度230℃で測定した際の微多孔層（X）のメルトフローレート（MFR）（すなわち単層のMFR）の上限値は、高強度のセパレータを得る観点から、0.9 g/10分以下であり、例えば0.90 g/10分以下、0.85 g/10分以下、0.7 g/10分以下、0.65 g/10分以下、0.6 g/10分以下、又は0.55 g/10分以下であってよい。微多孔層（X）のMFR（単層のMFR）の下限値は、微多孔層（X）の成形性等の観点から、例えば0.15 g/10分以上、0.2 g/10分以上、0.25 g/10分以上、0.3 g/10分以上、0.35 g/10分以上、0.38 g/10分以上、又は0.4 g/10分以上、0.45 g/10分以上、0.50 g

50

／10分以上、0.55g／10分以上、0.60g／10分以上、0.65g／10分以上、又は0.70g／10分以上でよい。

【0033】

微多孔層(X)に含まれるポリオレフィン(A)の分子量が高いことで、微多孔層(X)のMFRが0.9g／10分以下になる傾向がある。ポリオレフィンの分子量が高いことにより、結晶質同士を結合するタイ分子が多くなるため、高強度の微多孔層が得られる傾向にある。一態様において、ポリオレフィン(A)の M_w/M_n として表される分子量分布が7以下かつMFRが0.9g／10分以下、特に0.6g／10分以下であることは、高強度かつ薄膜の蓄電デバイス用セパレータを得る観点から有利である。一態様においては、微多孔層(X)のMFRが0.15g／10分以上であることにより、微多孔層(X)の溶融張力が高くなり過ぎず、高強度、高出力かつ薄膜のセパレータがより得られ易い。

10

【0034】

ポリオレフィン(A)がポリプロピレンである場合、荷重2.16kg、温度230℃で測定した際のMFRの上限値は、高強度のセパレータを得る観点から、好ましくは0.9g／10分以下、0.90g／10分以下、0.85g／10分以下、0.8g／10分以下、0.7g／10分以下、0.6g／10分以下、又は0.55g／10分以下である。ポリプロピレンのMFRの下限値は、微多孔層(X)の成形性等の観点から、好ましくは0.2g／10分以上、0.25g／10分以上、0.3g／10分以上、0.35g／10分以上、0.4g／10分以上、0.45g／10分以上、又は0.5g／10分以上である。

20

【0035】

〈微多孔層(X)の分子量〉

微多孔層(X)の重量平均分子量(M_w)の下限は、微多孔層(X)の強度の観点、および微多孔層(X)のMFRの観点から、好ましくは500,000以上、より好ましくは700,000以上である。微多孔層(X)の M_w の上限は、微多孔層(X)の孔径を大きくして目詰まりを抑制して高出力を得る観点から、好ましくは1,500,000以下、より好ましくは1,100,000以下である。

【0036】

微多孔層(X)の M_w を数平均分子量(M_n)で除した値(M_w/M_n)の上限は、微多孔層(X)の強度の観点、微多孔層(X)の溶融張力を低く制御して薄くする観点、および微多孔層(X)の孔径を大きくして目詰まりを抑制して高出力を得る観点から、好ましくは6以下、5.5以下、又は5以下である。微多孔層(X)の M_w/M_n の下限は、微多孔層(X)の安定性の観点から、好ましくは1以上、1.3以上、1.5以上、2.0以上、又は2.5以上である。

30

【0037】

〈ペンタッド分率〉

ポリオレフィン(A)がポリプロピレンである場合、本実施形態において、 ^{13}C -NMR(核磁気共鳴法)で測定されるポリプロピレンのペンタッド分率の下限値は、低透気度の微多孔層(X)を得る観点から、好ましくは94.0%以上、95.0%以上、96.0%以上、96.5%以上、97.0%以上、97.5%以上、98.0%以上、98.5%以上、又は99.0%以上である。ポリプロピレンのペンタッド分率の上限値は、例えば99.9%以下、99.8%以下、又は99.5%以下でよい。

40

【0038】

ポリプロピレンのペンタッド分率が94.0%以上であると、ポリプロピレンの結晶性が高くなる。延伸開孔法、特に乾式法で得られるセパレータは、複数の結晶質部分の間にある非晶質部分が延伸されることにより開孔するため、ポリプロピレンの結晶性が高いと、開孔性が良好となり、気孔率、及び走査型電子顕微鏡(SEM)によるMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において微多孔層(X)に存在する孔の平均長孔径を大きくすることができ、目詰まりを抑制し、かつ、透気度を低く制御することができるため好ま

50

しい。高分子量のポリプロピレンを用いた場合、強度は高くなるが、分子鎖同士の絡み合いが大きくなることで開孔性が悪くなり、結果、低い透気度が得られ難い。このことは、乾式法において高分子量のポリプロピレンを用い難い大きな要因の一つと考えられる。これに対して、ペンタッド分率が高いポリプロピレンのような、非常に良く制御された構造のポリプロピレンを用いることで、高分子量のポリプロピレンを用いても高い開孔性を得ることが可能となる。より好ましくは、このような制御された構造のポリプロピレンを用い、かつ制御された製造条件を製造プロセスに付与することで、高分子量のポリプロピレンを用いても、より高い開孔性を得ることが可能となる。

【0039】

〈微多孔層（X）の平均長孔径および最大長孔径〉

10

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータにおいて、走査型電子顕微鏡（SEM）によるMD-TD表面観察の場合には、微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径が100nm以上であることが好ましく、かつ／又は400nm以下であることが好ましい。本開示で、機械方向（MD）とは、微多孔層の成膜方向を示し、幅方向（TD）とは、微多孔層の当該成膜方向と垂直の方向を示し、法線方向（ND）とは、微多孔層の厚み方向（すなわちMD及びTDと垂直の方向）を示す。微多孔層を有するセパレータのMDは、ロールであれば長手方向である。このMD-TD表面に存在する孔の平均長孔径を当該範囲にすることは、リチウムイオン二次電池等の蓄電デバイス内での目詰まりの抑制、及びセパレータの透気度の調整に寄与する傾向にある。

【0040】

20

SEMによるMD-TD表面観察において、微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径の下限は、蓄電デバイス内での目詰まり抑制の観点から、好ましくは100nm以上、より好ましくは130nm以上、さらに好ましくは140nm以上である。SEMによるMD-TD表面観察において、微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径の上限は、蓄電デバイス内での短絡抑制の観点から、好ましくは400nm以下、より好ましくは350nm以下、さらに好ましくは300nm以下である。

【0041】

SEMによるND-MD断面観察において、微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径の下限は、蓄電デバイス内での目詰まり抑制の観点から、好ましくは100nm以上、より好ましくは130nm以上、さらに好ましくは140nm以上である。SEMによるND-MD断面観察において、微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径の上限は、蓄電デバイス内での短絡抑制の観点から、好ましくは400nm以下、より好ましくは350nm以下、さらに好ましくは300nm以下である。

30

【0042】

SEMによるMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において、微多孔層（X）に存在する孔の最大長孔径の下限は、蓄電デバイス内での目詰まり抑制の観点から、好ましくは100nm以上、より好ましくは220nm以上、更に好ましくは230nm以上である。SEMによるMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において、微多孔層（X）に存在する孔の最大長孔径の上限は、蓄電デバイス内での短絡抑制の観点から、好ましくは400nm以下、より好ましくは375nm以下、更に好ましくは360nm以下、特に好ましくは350nm以下である。

40

【0043】

なお、本開示において、平均長孔径は、SEMによる微多孔層のMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において、微多孔層に存在する各孔の面積に基づき算出された長径の面積平均値である。最大長孔径は、SEMによる微多孔層のMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において、微多孔層に存在する各孔の長径のうち、最大のものである。平均長孔径および最大長孔径は、セパレータのMD-TD表面（MD-TD表面に存在する孔の平均長孔径を求める場合）又はND-MD断面（ND-MD断面に存在する孔の平均長孔径を求める場合）のSEM（走査型電子顕微鏡）観察を行い、得られたSEM画像の4μm×4μmの範囲の画像解析により測定することができる。詳細の条件は実施例

50

に示す。

【0044】

SEMによる微多孔層のMD-TD表面観察またはND-MD断面観察において、微多孔層の平均長孔径及び最大長孔径が大きくなるとセパレータの透気度が低下し、蓄電デバイス内での目詰まりが減少することでリチウムイオン電池の寿命が向上することが期待できる。また、微多孔層(X)の平均長孔径及び最大長孔径が大きすぎると、微多孔層(X)を含むセパレータの強度と絶縁性が低下し、蓄電デバイスの安全性が低下する懸念がある。

【0045】

〈微多孔層(X)のMFRと平均長孔径の両立〉

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータにおいて、微多孔層(X)は、好ましくは、MFRが、 $0.90\text{ g}/10\text{ 分}$ 以下であり、かつ、表面または断面SEM観察の場合にMD-TD表面またはND-MD断面での平均長孔径が 100 nm 以上である。従来、多層構造を有するセパレータ、特に乾式法により得られた多層セパレータにおいては、製造時、可塑剤を用いないため、MFRを $0.90\text{ g}/10\text{ 分}$ 以下のように低くし、かつ、MD-TD表面またはND-MD断面での平均長孔径を 100 nm 以上に大きくすることは非常に困難であった。MFRが $0.90\text{ g}/10\text{ 分}$ 以下と低い、すなわちポリオレフィンの分子量が高い場合には、延伸開孔時に孔が開き難く、開孔しても平均長孔径が小さくなる傾向があった。また、上記のように透気度を $200\text{ 秒}/100\text{ ml}$ 程度に調整した従来の技術においても、セパレータの平均長孔径が小さいと蓄電デバイス内での目詰まりを抑制し難い傾向があった。さらに、多層構造のセパレータは、各層の膜厚を特に薄くする必要がある。例えば、厚み $18\text{ }\mu\text{m}$ の三層構造のセパレータであれば、各層の厚み比を $1:1:1$ とする場合、各層の厚みは $6\text{ }\mu\text{m}$ にする必要がある。このような薄膜で、高分子量のポリオレフィンを用いながら大孔径を実現することは一層困難であった。本実施形態においては、これに限定されないが、後述の《蓄電デバイス用セパレータの製造方法》の項で例示するような精密に制御された成膜および延伸条件を適用すること、及び／又は、ペンタッド分率が制御されたポロプロピレンをポリオレフィンとして用いることで、低MFR（すなわち高分子量）のポリオレフィンを主成分とする微多孔層(X)においても、SEMによる微多孔層(X)のMD-TD表面観察またはND-MD断面観察での平均長孔径を上記範囲に制御可能である。

【0046】

〈微多孔層(X)の気孔率〉

本実施形態に係る微多孔層(X)の気孔率の下限は、蓄電デバイス内での目詰まり抑制の観点、及びセパレータの透気度を制御する観点から、好ましくは 20% 以上、より好ましくは 25% 以上、更に好ましくは 30% 以上、より更に好ましくは 35% 以上、特に好ましくは 40% 以上である。微多孔層(X)の気孔率の上限は、セパレータの強度保持の観点から、好ましくは 70% 以下、より好ましくは 65% 以下、さらに好ましくは 60% 以下、特に好ましくは 55% 以下である。気孔率は、実施例に記載の方法で測定される。

【0047】

〈微多孔層(X)の厚み〉

本実施形態に係る微多孔層(X)の厚みの上限値は、蓄電デバイスの高エネルギー密度化等の観点から、好ましくは $10\text{ }\mu\text{m}$ 以下、 $8\text{ }\mu\text{m}$ 以下、 $7\text{ }\mu\text{m}$ 以下、 $6\text{ }\mu\text{m}$ 以下、 $5\text{ }\mu\text{m}$ 以下、 $4.5\text{ }\mu\text{m}$ 以下、又は $4\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。微多孔層(X)の厚みの下限値は、強度等の観点から、好ましくは $1\text{ }\mu\text{m}$ 以上、 $2\text{ }\mu\text{m}$ 以上、 $3\text{ }\mu\text{m}$ 以上、又は $3.5\text{ }\mu\text{m}$ 以上である。

【0048】

〈添加剤〉

本実施形態において、ポリオレフィン(A)を主成分とする微多孔層(X)は、ポリオレフィン(A)以外に、エラストマー、流動改質材（例えばフッ素系流動改質材）、ワックス類、結晶核剤、酸化防止剤、脂肪族カルボン酸金属塩等の金属石鹸類、紫外線吸収剤、

10

20

30

40

50

光安定剤、帯電防止剤、防曇剤、着色顔料、フィラーなどの添加剤を必要に応じて更に含有してもよい。

【0049】

〈微多孔層(Y)〉

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、ポリオレフィン(B)を主成分とする微多孔層(Y)を有していてもよい。ここで、本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、微多孔層(Y)を一層のみ有していても良く、二層以上有していても良い。本実施形態における、ポリオレフィン(B)を主成分とするとは、当該微多孔層(Y)の全質量を基準として、ポリオレフィン(B)を50質量%以上含むものをいう。微多孔層(Y)中のポリオレフィン(B)の含有量の下限は、セパレータの電解液に対する濡れ性、薄膜化、及びシャットダウン特性等の観点から、好ましくは55質量%以上、60質量%以上、70質量%以上、80質量%以上、90質量%以上、又は95質量%以上である。微多孔層(Y)中のポリオレフィン(B)の含有量の上限は、例えば60質量%以下、70質量%以下、80質量%以下、90質量%以下、95質量%以下、98質量%以下、又は99質量%以下でよく、100質量%でもよい。

【0050】

〈ポリオレフィン(B)〉

本実施形態におけるポリオレフィン(B)は、炭素-炭素二重結合を有するモノマーを繰り返し単位として含み、かつ本実施形態のポリオレフィン(A)と分子構造(より具体的には、化学組成、分子量、結晶構造等)が異なるポリマーである。ポリオレフィン(B)を構成するモノマーとしては、限定されないが、炭素-炭素二重結合を有する炭素原子数1~10のモノマー、例えば、エチレン、プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、及び1-オクテン等が挙げられる。ポリオレフィン(B)は、例えば、ホモポリマー、コポリマー、又は多段重合ポリマー等であり、好ましくはホモポリマーである。

【0051】

ポリオレフィン(B)としては、具体的には、シャットダウン特性等の観点から、ポリエチレン、ポリプロピレン、エチレンとプロピレンとの共重合体、及びこれらの混合物が好ましい。ポリオレフィン(B)は、より好ましくはポリエチレンである。

【0052】

ポリオレフィン(B)としてポリエチレンを用いる場合、荷重2.16kg、温度190℃で測定されるポリエチレンのMFRの下限は、良好な開孔性、および目詰まり抑制の観点から、好ましくは0.1g/10分以上、より好ましくは0.15g/10分以上、さらに好ましくは0.18g/10分以上、特に好ましくは0.2g/10分以上である。ポリエチレンのMFRの上限は、セパレータの強度の観点から、好ましくは2.0g/10分以下、より好ましくは1.0g/10分以下、さらに好ましくは0.8g/10分以下、特に好ましくは0.5g/10分以下である。

【0053】

〈微多孔層(Y)の平均長孔径〉

本実施形態において、SEMによるND-MD断面観察の場合には、微多孔層(Y)に存在する孔の平均長孔径の下限は、目詰まり抑制及びセパレータの低透気度の観点から、好ましくは100nm以上、より好ましくは150nm以上である。SEMによるND-MD断面観察において微多孔層(Y)に存在する孔の平均長孔径の上限は、リチウムイオン電池等の蓄電デバイス内での短絡抑制の観点から、好ましくは2000nm以下、より好ましくは1000nm以下である。

【0054】

〈微多孔層(X)と微多孔層(Y)の平均長孔径の比率〉

本実施形態において、SEMによる微多孔層(X)および微多孔層(Y)のND-MD断面観察の場合には、微多孔層(Y)に存在する孔の平均長孔径は、微多孔層(X)に存在する孔の平均長孔径の1.2倍以上10倍以下であることが好ましい。これは、すなわち

、微多孔層（Y）のND-MD断面に存在する孔の平均長孔径が、微多孔層（X）のND-MD断面に存在する孔の平均長孔径に対し、ある特定の範囲で大きいことを示す。SEMによるND-MD断面観察において、微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径より1.2倍以上大きい平均長孔径を有する微多孔層（Y）をセパレータが備えることにより、効果的に目詰まりを抑制することが可能となる。蓄電デバイス内での短絡を抑制する観点から、SEMによるND-MD断面観察において、微多孔層（Y）に存在する孔の平均長孔径は、微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径の10倍以下であることが好ましい。SEMによるND-MD断面観察において、微多孔層（X）に存在する孔の平均長孔径に対する微多孔層（Y）に存在する孔の平均長孔径の比率は、より好ましくは1.4倍以上8倍以下である。

10

【0055】

〈微多孔層（Y）の厚み〉

本実施形態に係る微多孔層（Y）の厚みの上限値は、蓄電デバイスの高エネルギー密度化等の観点から、好ましくは10 μ m以下、8 μ m以下、7 μ m以下、6 μ m以下、5 μ m以下、4.5 μ m以下、又は4 μ m以下である。微多孔層（Y）の厚みの下限値は、強度等の観点から、好ましくは1 μ m以上、2 μ m以上、3 μ m以上、又は3.5 μ m以上である。

【0056】

〈多層構造〉

蓄電デバイス用セパレータは、上記で説明したポリオレフィン（A）を主成分とする微多孔層（X）の単層でもよいし、当該微多孔層（X）と、ポリオレフィン（B）を主成分とする微多孔層（Y）とを積層させた多層構造を有していてもよい。ポリオレフィン（B）を主成分とする更なる微多孔層（Y）は、一態様において、微多孔層（X）に関して上記で説明した特性（例えば、特定のメルトフローレート（MFR）及び分子量分布（Mw/Mn）等のうち1つ以上）を有するポリエチレン微多孔層であってよく、一態様において、これらの特性を有しないポリエチレン微多孔層であってよい。また、微多孔層（Y）は、ポリプロピレン微多孔層であっても良い。ポリエチレンは溶融シャットダウンに適した融点を有するため、シャットダウン特性の観点で、微多孔層（Y）は、ポリエチレンを主成分とすることが好ましい。

20

【0057】

多層構造は、本実施形態のポリオレフィン（A）を主成分とする微多孔層（X）を含む、二層以上の構造を意味する。一態様においては、三層以上の微多孔層が積層された多層構造が好ましい。多層構造は、本実施形態のポリオレフィン（A）を主成分とする微多孔層（X）の少なくとも二層と、ポリオレフィン（B）を主成分とする微多孔層（Y）の少なくとも一層とを有することが更に好ましい。多層構造は、ポリプロピレンを主成分とする微多孔層（X）（PP微多孔層）の少なくとも二層と、ポリエチレンを主成分とする微多孔層（Y）（PE微多孔層）の少なくとも一層とを有することがより更に好ましい。

30

【0058】

多層構造は、どのような順番に積層されていても本実施形態の利点を発現し得るが、PP微多孔層／PE微多孔層／PP微多孔層の順に積層された三層構造を有することが特に好ましい。PP微多孔層／PE微多孔層／PP微多孔層の三層構造を有することにより、PE微多孔層による良好なシャットダウン特性を備えつつ、PP微多孔層によって良好な機械的強度を維持することができる。該PP微多孔層は、上記で説明した特定のメルトフローレート（MFR）等を有する微多孔層（X）であることが好ましい。

40

【0059】

〈セパレータの厚み〉

本実施形態に係る蓄電デバイス用セパレータの厚みの上限値は、蓄電デバイスの高エネルギー密度化等の観点から、好ましくは25 μ m以下、22 μ m以下、20 μ m以下、18 μ m以下、16 μ m以下、14 μ m以下、又は12 μ m以下である。本実施形態に係る蓄電デバイス用セパレータの厚みの下限値は、強度等の観点から、好ましくは6 μ m以上、

50

7 μm 以上、8 μm 以上、9 μm 以上、10 μm 以上、又は11 μm 以上である。

【0060】

〈セパレータの気孔率〉

蓄電デバイス用セパレータの気孔率の下限は、蓄電デバイス内での目詰まり抑制の観点、及びセパレータの透気度を制御する観点から、好ましくは20%以上、より好ましくは25%以上、さらに好ましくは30%以上、特に好ましくは35%以上である。蓄電デバイス用セパレータの気孔率の上限は、セパレータの強度保持の観点から、好ましくは70%以下、より好ましくは65%以下、さらに好ましくは60%以下、特に好ましくは55%以下である。気孔率は、実施例に記載の方法で測定される。

【0061】

〈セパレータの透気度（透気抵抗度）〉

蓄電デバイス用セパレータの透気度の上限値は、厚みを14 μm に換算した場合に、好ましくは300秒/100 cm^3 以下であり、より好ましくは、290秒/100 cm^3 以下、280秒/100 cm^3 以下、270秒/100 cm^3 以下、又は250秒/100 cm^3 以下であり、更に好ましくは180秒/100 cm^3 以下、170秒/100 cm^3 以下、160秒/100 cm^3 以下、150秒/100 cm^3 以下、又は140秒/100 cm^3 以下である。セパレータの透気度の下限値は、セパレータの厚みを14 μm に換算した場合に、例えば50秒/100 cm^3 以上、60秒/100 cm^3 以上、70秒/100 cm^3 以上、100秒/100 cm^3 以上、110秒/100 cm^3 以上、又は120秒/100 cm^3 以上でよい。

【0062】

〈突刺強度〉

蓄電デバイス用セパレータの突刺強度の下限値は、厚みを14 μm に換算した場合に、好ましくは、230 gf 以上、240 gf 以上、250 gf 以上、260 gf 以上、280 gf 以上、又は300 gf 以上であり、より好ましくは、310 gf 以上、320 gf 以上、330 gf 以上、340 gf 以上、350 gf 以上、又は360 gf 以上である。蓄電デバイス用セパレータの突刺強度の上限値は、蓄電デバイス用セパレータの厚みを14 μm に換算した場合に、好ましくは550 gf 以下、500 gf 以下、又は480 gf 以下である。特に好ましい態様においては、蓄電デバイス用セパレータの厚みが8 μm 以上18 μm 以下であり、かつ上記突刺強度が230 gf 以上である。

【0063】

〈厚み、透気度及び突刺強度のバランス〉

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、上記で説明したように、特定の溶融張力及びメルトフローレート（MFR）を有するポリオレフィンを含む主成分とする微多孔層を使用することにより、薄膜でありながら、低透気度かつ高強度な蓄電デバイス用セパレータを得ることができる。例えば、本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、微多孔層の多層構造を含み、多層構造の厚みが18 μm 以下であり、該多層構造の厚みを14 μm に換算した際の透気度が300秒/100 cm^3 以下であり、かつ、厚みを14 μm に換算した際の突刺強度が300 gf 以上であることが更に好ましい。多層構造の厚さが18 μm 以下であり、多層構造に含まれる本実施形態の微多孔層の厚さ（単層としての厚さ）が6 μm 以下であり、該多層構造の厚みを14 μm に換算した際の透気度が300秒/100 cm^3 以下であり、かつ、突刺強度が300 gf 以上であることがより更に好ましい。

【0064】

〈セパレータの引張試験特性〉

本実施形態に係る蓄電デバイス用セパレータの引張試験において、機械方向の引張強度（SMD）と幅方向の引張強度（STD）の比（SMD/STD）が、次の関係を満たすことが好ましい。

$\text{SMD}/\text{STD} > 5$

SMD/STDが5を超えるセパレータは、高強度セパレータとして使用可能である。高強度セパレータとしては、 $\text{SMD}/\text{STD} \geq 7$ がより好ましく、 $\text{SMD}/\text{STD} \geq 10$ が

更に好ましく、 $SMD/S\ T\ D \geq 1\ 2$ がより更に好ましく、 $SMD/S\ T\ D \geq 1\ 4$ が特に好ましい。なお、セパレータの引張試験は、実施例の項目に記載の方法により行われる。

【0065】

〈熱収縮率〉

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、 $1\ 0\ 5^{\circ}\text{C}$ 1時間熱処理後の熱収縮率が、 $T\ D$ において1%以下、 $M\ D$ において4%以下であり、かつ、 $1\ 2\ 0^{\circ}\text{C}$ 1時間熱処理後の熱収縮率が、 $T\ D$ において1%以下、 $M\ D$ において10%以下であることが好ましい。 $1\ 0\ 5^{\circ}\text{C}$ 熱処理後の熱収縮率は、蓄電デバイスの使用時、特に、過酷な高温環境に置かれた場合、又は異常発熱状態などの場合に、蓄電デバイス用セパレータの寸法安定性の指標である。 $1\ 2\ 0^{\circ}\text{C}$ 熱処理後の熱収縮率は、蓄電デバイス使用時、特に、蓄電デバイスが異常状態である条件下で、蓄電デバイス用セパレータの寸法安定性の指標である。本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、 $1\ 0\ 5^{\circ}\text{C}$ 1時間熱処理後及び $1\ 2\ 0^{\circ}\text{C}$ 1時間熱処理後において、 $T\ D$ 及び $M\ D$ の熱収縮率が特定範囲内に制御されていることにより、電池等の蓄電デバイスの内部での高温時の寸法安定性を担保することが可能となり、蓄電デバイスの異常状態を抑制して、良好なデバイス特性を確保することが可能となる。本開示の熱収縮率の測定方法の詳細は実施例にて説明する。

【0066】

$1\ 0\ 5^{\circ}\text{C}$ 1時間熱処理後の $T\ D$ の熱収縮率は、蓄電デバイス内部での寸法安定性の観点から、1%以下であり、好ましくは、0.9%以下、より好ましくは、0.8%以下である。 $T\ D$ の当該熱収縮率は、低い程望ましいが、蓄電デバイス用セパレータの製造容易性の観点から、例えば、-1%以上、-0.5%以上、又は0%以上であよい。また、 $1\ 0\ 5^{\circ}\text{C}$ 1時間熱処理後の $M\ D$ の熱収縮率は、蓄電デバイス内部での寸法安定性の観点から、4%以下であり、好ましくは、3.8%以下、より好ましくは、3.5%以下、さらに好ましくは、3.2%以下、特に好ましくは、3%以下、最も好ましくは2.7%以下である。 $M\ D$ の当該熱収縮率は、低い程望ましいが、蓄電デバイス用セパレータの製造容易性の観点から、例えば0%以上、0.5%以上、又は1%以上でよい。

【0067】

$1\ 2\ 0^{\circ}\text{C}$ 1時間熱処理後の $T\ D$ の熱収縮率は、蓄電デバイス内部での寸法安定性の観点から、1%以下であり、好ましくは、0.9%以下、より好ましくは、0.8%以下である。 $T\ D$ の当該熱収縮率は、低い程望ましいが、蓄電デバイス用セパレータの製造容易性の観点から、例えば、-1%以上、-0.5%以上、又は0%以上でよい。また、 $1\ 2\ 0^{\circ}\text{C}$ 1時間熱処理後の $M\ D$ の熱収縮率は、蓄電デバイス内部での寸法安定性の観点から、10%以下であり、好ましくは、9.0%以下、より好ましくは、8.5%以下、さらに好ましくは、8.0%以下、特に好ましくは、7.5%以下、最も好ましくは7.0%以下である。 $M\ D$ の当該熱収縮率は、低い程望ましいが、蓄電デバイス用セパレータの製造容易性の観点から、例えば、0%以上、0.5%以上、又は1%以上でよい。

【0068】

〈透気度、突刺強度及び熱収縮率のバランス〉

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、特定のメルトフローレート(MFR)を有するポリオレフィン(A)を主成分とする微多孔層(X)を使用し、低透気度、高強度、かつ低熱収縮率である。一般に、低いMFR、すなわち高分子量のポリオレフィン、ポリマー同士の絡み合いが大きいため、それを用いたセパレータは開孔性が十分でなく、その結果、透気度を低く制御することが困難となる。そのため、従来のセパレータでは、十分に高い分子量のポリオレフィンを用いることができず、突刺強度が不十分な傾向となるか、又は、高分子量のポリオレフィンを用いた場合には、開孔性が不十分となり、低透気度、大孔径の達成が困難であった。このように、従来、低透気度と高強度(特に高突刺強度)とは相反する関係にあった。さらに、従来の乾式セパレータでは、 $M\ D$ の熱収縮率が高い傾向にあり、高強度、低透気度、及び低熱収縮率の三項目を両立するセパレータを得ることは非常に困難であった。本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、微多孔層(X)に特定のポリオレフィン(A)を用いることで、低透気度、高突刺強度及び低熱収縮率

を併せ持つことが可能となった。このような蓄電デバイス用セパレータは、これに限定されないが、例えば、後述の《蓄電デバイス用セパレータの製造方法》の項で例示するような精密に制御された成膜および延伸条件を適用すること、及び／又は、ペンタッド分率が制御されたポリプロピレンをポリオレフィン（A）として用いることで製造可能である。

【0069】

《蓄電デバイス用セパレータの製造方法》

本実施形態の微多孔層の製造方法としては、一般に、上記で説明されたポリオレフィンを含む樹脂組成物（以下、ポリオレフィン系樹脂組成物という）を溶融押出して樹脂フィルムを得る溶融押出工程、及び得られた樹脂フィルムを開孔して多孔化する孔形成工程を含み、任意にアニーリング工程、延伸工程、及び熱緩和工程等を含む。微多孔層の製造方法は、孔形成工程に溶剤を使用しない乾式法と、溶剤を使用する湿式法とに大別される。上記溶融押出の方法としては、Tダイ法によるものとインフレーション法によるもの等が挙げられる。

【0070】

ポリオレフィン系樹脂組成物は、一態様において微多孔層（X）の構成成分からなる組成物であり、一態様において微多孔層（Y）の構成成分からなる組成物である。ポリオレフィン系樹脂組成物は、微多孔層の製造方法に応じて、又は目的の微多孔層の物性に応じて、任意に、ポリオレフィン以外の樹脂、及び添加剤等を含有してもよい。添加剤としては、例えば孔形成材、フッ素系流動改質材、エラストマー、ワックス、結晶核材、酸化防止剤、脂肪族カルボン酸金属塩等の金属石鹸類、紫外線吸収剤、光安定剤、帯電防止剤、防曇剤、及び着色顔料等が挙げられる。孔形成材としては、可塑剤、無機充填材又はそれらの組み合わせが挙げられる。

【0071】

可塑剤としては、例えば、流動パラフィン、パラフィンワックス等の炭化水素類；フタル酸ジオクチル、フタル酸ジブチル等のエステル類；オレイルアルコール、ステアリルアルコール等の高級アルコール等が挙げられる。

【0072】

無機充填材としては、例えば、アルミナ、シリカ（珪素酸化物）、チタニア、ジルコニア、マグネシア、セリア、イットリア、酸化亜鉛、酸化鉄などの酸化物系セラミックス；窒化ケイ素、窒化チタン、窒化ホウ素等の窒化物系セラミックス；シリコンカーバイド、炭酸カルシウム、硫酸アルミニウム、水酸化アルミニウム、チタン酸カリウム、タルク、カオリンクレー、カオリナイト、ハロイサイト、パイロフィライト、モンモリロナイト、セリサイト、マイカ、アメサイト、ベントナイト、アスベスト、ゼオライト、ケイ酸カルシウム、ケイ酸マグネシウム、ケイ藻土、ケイ砂等のセラミックス；ガラス繊維が挙げられる。

【0073】

溶融混練時の押出機の温度は、「ポリオレフィン系樹脂組成物の融点よりも20℃高い温度」以上で且つ「ポリオレフィン系樹脂組成物の融点よりも110℃高い温度」以下であることが好ましい。温度が上記の下限以上である場合、得られるポリオレフィン系樹脂フィルムの厚みが均一になり、押出時にフィルムが切れるという現象が発生し難い。また温度が上記の上限以下である場合、ポリオレフィン系樹脂組成物に含まれるポリオレフィンの配向性が高く当該ポリオレフィンにおいてラメラ構造が良好に生成されるため、得られる蓄電デバイス用セパレータの透気度が低く、リチウムイオン二次電池等の蓄電デバイスが低抵抗になる。ポリオレフィン系樹脂フィルムが、互いに異なるポリオレフィン系樹脂組成物を用いて形成された複数の層を有する場合、上記融点とは、より低い融点を有するポリオレフィン系樹脂組成物の融点を指す。なお融点は、一態様において、DSC（示差走査熱量計）を用い昇温速度10℃／分で昇温したときに観測される吸熱ピークのうちピーク高さが最大であるもののピークトップ温度として評価される。

【0074】

ポリオレフィン系樹脂組成物を押出機からフィルム状に押出す際におけるドロワー比は、5

0～400が好ましく、75～350がより好ましく、100～300が特に好ましい。なお、ドロー比とは、Tダイ又はインフレダイのリップのクリアランスを、ダイリップから押出されたポリオレフィン系樹脂フィルムで除した値をいう。ドロー比を上記で示された範囲内に調整することで、ポリオレフィンの分子配向が良好になり、ラメラが良好に生成でき、セパレータの透気度を低く制御できる。それと共に、フィルムの成膜安定性が低下せず、得られるポリオレフィン系樹脂フィルムの厚み精度及び幅精度を高めることができる。

【0075】

ダイから押出されたポリオレフィン系樹脂組成物は、エアで冷却されてよい。
ダイから押出されたポリオレフィン樹脂をエアで十分冷却すると、ポリオレフィン系樹脂が結晶化してラメラを生成するので、平均長孔径、最大長孔径が大きく、気孔率が高くなり、低透気度な微多孔層を有するセパレータが得られる。エアの風量としては、ダイ幅500mmに対し、300L/min以上、1000L/min以下が好ましい。風量を上記の下限以上とすると、ダイから押出されたポリオレフィン系樹脂組成物がエアによって十分冷却されるので、ポリオレフィンが結晶化してラメラを生成し、微多孔層が低透気度になる傾向にあるため好ましい。また、風量を上記の上限以下とすることは、フィルムの成膜安定性と、得られるポリオレフィン系樹脂シートの厚み精度及び幅精度とを向上させる観点から好ましい。エアの温度としては、成膜安定性、厚み精度及び幅精度の観点から、好ましくは0℃以上40℃以下である。

【0076】

本実施形態の微多孔層を含み、かつ複数の微多孔層が積層されている多層構造を有する蓄電デバイス用セパレータの製造方法としては、これらに限定されないが、例えば、共押出法及びラミネート法が挙げられる。共押出法では、各層の樹脂組成物を共押出し、二層以上に積層化して原反フィルムを作製する。得られた二層以上の原反フィルムを延伸開孔させて微多孔層を作製することができる。単層の微多孔層をそれぞれ作製するよりも、二層以上に積層化させたフィルムの原反を作製してからこれを開孔することにより微多孔層を作製する方が、高強度の微多孔層を得ることが容易である。ラミネート法では、各層を別々に作製した後に貼合することにより、各層を互いに密着させる。ラミネート法としては、接着剤等を使用するドライラミネート法、加熱により複数の層を貼合する熱ラミネート法等が挙げられるが、得られる蓄電デバイス用セパレータの透気度及び強度をより向上する観点からは熱ラミネート法が好ましい。

【0077】

次いで、得られたポリオレフィン系樹脂フィルムを熱処理するアニーリング工程を行う。このアニーリング工程は、押出工程におけるポリオレフィン系樹脂フィルムに生成されたラメラを成長させる。この処理を行うことで、フィルムの開孔性を良くし、得られる蓄電デバイス用セパレータの透気度を低減できる。

【0078】

ポリオレフィン系樹脂フィルムのアニーリング温度は、「ポリオレフィン系樹脂フィルムの融点よりも40℃低い温度」以上であり、且つ「ポリオレフィン系樹脂フィルムの融点よりも1℃低い温度」以下に設定されることが好ましい。ただし、ポリオレフィン系樹脂フィルムが積層構造を有する場合、アニーリング温度は、「融点が最も低い樹脂フィルムの融点よりも40℃低い温度」以上、且つ「融点が最も低い樹脂フィルムの融点よりも1℃低い温度」以下に限定されることが好ましい。なお、アニーリング温度とは、アニーリング装置内部の雰囲気温度である。アニーリング温度が上記の下限以上である場合、ラメラが良好に成長し、フィルムの延伸工程において開孔され易く、アニーリング温度が上記の上限以下である場合、ポリオレフィン系樹脂フィルムのポリオレフィンの配向緩和によるラメラ構造崩壊が抑制される。

【0079】

ポリオレフィン系樹脂フィルムのアニーリング時間は、ラメラを良好に成長させ、ポリオレフィン系樹脂フィルムを延伸工程において良好に開孔させる観点から、10分以上であ

ることが好ましい。アニーリング時間は、一態様において、180分以下であってよい。

【0080】

ポリオレフィン系樹脂フィルムのアニーリングは、ポリオレフィン系樹脂フィルムを走行させながら行ってもよく、ポリオレフィン系樹脂フィルムをロール状に巻き取った状態で行ってもよい。

【0081】

次に、アニーリングされたポリオレフィン系樹脂フィルムを延伸して開孔する延伸工程を行う。この延伸工程は、第一延伸工程と、この第一延伸工程に続く第二延伸工程とを含むことが好ましい。

【0082】

第一延伸工程において、ポリオレフィン系樹脂フィルム中に生成されたラメラ同士を離隔させることで、ラメラ間の非晶質部分に微細な亀裂を生じさせ、この亀裂を起点として多数の微小孔を形成させる。第一延伸工程ではMDの一軸延伸を行う。

【0083】

第一延伸工程において、ポリオレフィン系樹脂フィルムの温度の下限は、好ましくは -20°C 以上、より好ましくは 0°C 以上である。第一延伸工程において、ポリオレフィン系樹脂フィルムの温度の上限は、好ましくは 110°C 以下、より好ましくは 80°C 以下である。温度が上記の下限以上である場合、延伸時のポリオレフィン系樹脂フィルムの破断が抑制され、温度が上記の上限以下である場合、ラメラ間の非晶質部分において亀裂が良好に発生し、フィルムのネックインが抑制される。

【0084】

第一延伸工程において、ポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸倍率の下限は、好ましくは1.02倍以上、より好ましくは1.06倍以上である。第一延伸工程において、ポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸倍率の上限は、好ましくは1.5倍以下、より好ましくは1.4倍以下である。延伸倍率が上記の下限以上である場合、ラメラ間の非晶質部分において微小孔が形成され易い。延伸倍率が上記の上限以下である場合、微小孔が過剰に形成されず、孔径が小さくなりすぎないため、透気度を低くできる。本開示において、ポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸倍率とは、延伸後のポリオレフィン系樹脂フィルムの長さを延伸前のポリオレフィン系樹脂フィルムの長さで除した値をいう。

【0085】

ポリオレフィン系樹脂フィルムの第一延伸工程における延伸速度は、 $10\sim1000\%$ /分が好ましく、 $50\sim600\%$ /分がより好ましい。延伸速度が上記の下限以上である場合、ラメラ間の非晶質部分において微小孔が均一に形成され易く、上記の上限以下である場合、ポリオレフィン系樹脂フィルムの破断を抑制できる。

【0086】

なお、本開示において、ポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸速度とは、単位時間当たりのポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸方向における寸法の変化割合をいう。

【0087】

上記第一延伸工程におけるポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸方法は、ポリオレフィン系樹脂フィルムを一軸延伸することができれば、特に限定されず、例えば、ポリオレフィン系樹脂フィルムを、一軸延伸装置を用いて所定温度にて延伸する方法などが挙げられる。

【0088】

次いで、第一延伸工程における一軸延伸後のポリオレフィン系樹脂フィルムに、好ましくは、装置内部の雰囲気温度が、第一延伸工程での一軸延伸時の雰囲気温度よりも高く、且つポリオレフィン系樹脂フィルム（多層構造の場合は最も低融点の樹脂フィルム）の融点より 1°C 以上 60°C 以下低い温度以下であるように、延伸する第二延伸工程を行なうことが好ましい。第二延伸工程においても、ポリオレフィン系樹脂フィルムを好ましくは機械方向にのみ一軸延伸する。このように、第一延伸工程における装置内雰囲気温度よりも高い雰囲気温度にて、ポリオレフィン系樹脂フィルムに延伸処理を行なうことによって、第

10

20

30

40

50

一延伸工程にてポリオレフィン系樹脂フィルムに形成された多数の微小孔を成長させることができる。温度が上記の下限以上である場合、第一延伸工程においてポリオレフィン系樹脂フィルムに形成された微小孔が成長し易く、得られる蓄電デバイス用セパレータの透気度を低くできる。温度が上記の上限以下である場合、第一延伸工程においてポリオレフィン系樹脂フィルムに形成された微小孔が閉塞し難く、得られる蓄電デバイス用セパレータの透気度を低くできる。

【0089】

第二延伸工程において、ポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸倍率は、1.5倍以上、3倍以下が好ましく、1.8倍以上、2.5倍以下がより好ましい。延伸倍率が上記の下限以上である場合、第一延伸工程時にポリオレフィン系樹脂フィルムに形成された微小孔が成長し易く、得られる蓄電デバイス用セパレータの透気度を低くできる。延伸倍率が上記の上限以下である場合、第一延伸工程においてポリオレフィン系樹脂フィルムに形成された微小孔が閉塞し難く、得られる蓄電デバイス用セパレータの透気度を低くできる。

【0090】

第二延伸工程において、ポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸速度は、第一延伸工程において形成された微小孔を均一に広げる観点から、好ましくは60%/分以下、又は30%以下である。延伸速度は、プロセス効率の観点から、例えば2%以上、又は3%/分以上であってよい。

【0091】

第二延伸工程におけるポリオレフィン系樹脂フィルムの延伸方法としては、ポリオレフィン系樹脂フィルムを一軸延伸することができれば、特に限定されず、例えば、一軸延伸装置を用いて所定温度にて一軸延伸する方法等が挙げられる。

【0092】

第二延伸工程にて一軸延伸されたポリオレフィン系樹脂フィルムには、加熱して、残留応力を緩和する熱緩和工程が付与される。第二延伸工程における延伸によってポリオレフィン系樹脂フィルムに残存応力が生じることがある。熱緩和工程は、残存応力を緩和して、得られるポリオレフィン系樹脂微多孔層が、熱緩和工程とは別の加熱により熱収縮するのを抑制して、得られる蓄電デバイス用セパレータの安全性を向上するために行われる。

【0093】

上述のとおり、ポリオレフィン系樹脂微多孔層の加熱時における寸法安定性を良好にするためにはポリオレフィン系樹脂フィルムの残存応力を緩和する必要がある。そのためには、熱緩和工程における装置内雰囲気温度は、ポリオレフィン系樹脂フィルム（多層構造の場合は最も低融点の樹脂フィルム）の融点よりも、40℃低い温度もしくはそれ以上、又は20℃低い温度もしくはそれ以上であることが好ましい。また上記温度は、延伸工程で形成された微小孔の閉塞を抑制する観点から、ポリオレフィン系樹脂フィルム（多層構造の場合は最も低融点の樹脂フィルム）の融点よりも、1℃以上、又は4℃以上、低いことが好ましい。

【0094】

熱緩和工程におけるポリオレフィン系樹脂フィルムの熱収縮率の下限は、好ましくは25%以上、より好ましくは30%以上である。熱緩和工程におけるポリオレフィン系樹脂フィルムの熱収縮率の上限は、好ましくは60%以下、より好ましくは50%以下である。なお、熱緩和工程におけるポリオレフィン系樹脂フィルムの熱収縮率とは、熱緩和工程における延伸方向におけるポリオレフィン系樹脂フィルムの収縮長さを、第二延伸工程後の延伸方向におけるポリオレフィン系樹脂フィルムの長さで除して100を乗じた値をいう。熱収縮率が上記の下限以上である場合、ポリオレフィン系樹脂フィルムの残存応力が十分緩和され、得られるポリオレフィン系樹脂微多孔層の加熱時における寸法安定性が良好であり、高温時でのリチウムイオン二次電池等の蓄電デバイスの安全性が良好である。また、収縮率熱が上記の上限以下である場合、ポリオレフィン系樹脂フィルムにたるみが生じ難く、ロールの巻き取り不良又は均一性の低下が抑制される。

【0095】

第二延伸工程及び熱緩和工程においては、応力を十分に緩和して熱収縮率を小さくする観点から、延伸速度及び搬送速度をこれらが過度に大きくならないように調整することが好ましい。

【0096】

また、熱緩和工程の後に、熱緩和工程の温度と同じ温度またはそれ以上の温度で、且つ熱緩和工程の温度より20℃高い温度またはそれ以下の温度にて、再度、熱緩和を付与することが好ましい。本工程を付与することにより、より良好な熱収縮物性を有する蓄電デバイス用セパレータを得ることが可能となる。

【0097】

《蓄電デバイス》

本実施形態の蓄電デバイスは、本実施形態の蓄電デバイス用セパレータを備える。本実施形態の蓄電デバイスは、正極と負極とを有する。蓄電デバイス用セパレータは、好ましくは、正極と負極との間に積層されるか、電池外装内で正極若しくは負極の外側に位置するか、又は電極を包んでいる。所望により、正極および負極が外部の機器等と接続可能なように、正極および負極にリード体をそれぞれ接続してよい。

【0098】

蓄電デバイスとしては、限定されないが、例えばリチウム二次電池、リチウムイオン二次電池、ナトリウム二次電池、ナトリウムイオン二次電池、マグネシウム二次電池、マグネシウムイオン二次電池、カルシウム二次電池、カルシウムイオン二次電池、アルミニウム二次電池、アルミニウムイオン二次電池、ニッケル水素電池、ニッケルカドミウム電池、電気二重層キャパシタ、リチウムイオンキャパシタ、レドックスフロー電池、リチウム硫黄電池、リチウム空気電池、及び亜鉛空気電池などが挙げられる。これらの中でも、本実施形態に係るセパレータとの適合性の観点から、リチウム二次電池、リチウムイオン二次電池、ニッケル水素電池、又はリチウムイオンキャパシタが好ましく、より好ましくはリチウムイオン二次電池である。

【0099】

蓄電デバイスは、例えば、次の方法により作製することができる：

正極と負極とを、上記で説明されたセパレータを介して重ね合わせて、必要に応じて捲回して、積層電極体又は捲回電極体を形成する。その後、積層電極体又は捲回電極体を外装体に装填する。その際に、外装体内の正負極は、それぞれにリード体が接続され、かつリード体の端部が外装体の外側に出るように配置されることできる。正極および負極がそれぞれ複数の場合には、同一極のタブ同士を溶接等により接合して1つのリード体に接合して外装体の外側に出してよい。同一極のタブは、集電体の露出部から構成されることができ、又は集電体の露出部に金属片を溶接して構成されることができ、正負極と、外装体の正負極端子とを、リード体などを介して接続する。その際に、リード体の一部と外装体の一部とを熱融着等により接合してよい。さらに、鎖状及び／又は環状カーボネート等の非水溶媒とリチウム塩等の電解質を含む非水電解液を外装体内に注入する。その後、外装体を封止して蓄電デバイスを作製することができる。

【実施例】

【0100】

以下、実施例及び比較例により本発明を具体的に説明するが、本発明は以下の実施例に限定されるものではない。

【0101】

《測定及び評価方法》

[メルトフローレート (MFR) の測定]

微多孔層のメルトフローレート (MFR) は、JIS K 7210に準拠し、温度230℃及び荷重2.16kgの条件下で測定した(単位はg/10分である)。ポリプロピレンのMFRは、JIS K 7210に準拠し、温度230℃及び荷重2.16kgの条件下で測定した。ポリエチレンのメルトフローレート (MFR) は、JIS K 7210に準拠し、温度190℃及び荷重2.16kgの条件下で測定した。エラストマーの

10

20

30

40

50

MFRは、JIS K 7210に準拠し、温度230℃及び荷重2.16 kgの条件下で測定した。

【0102】

[GPC (ゲルパーミエーションクロマトグラフィ) によるMw及びMnの測定]
アジレントテクノロジー株式会社のアジレント PL-GPC 220を用い、標準ポリスチレンを以下の条件で測定して校正曲線を作成した。試料のポリマーについても同様の条件でクロマトグラフを測定し、校正曲線に基づいて、下記条件によりポリマーの重量平均分子量 (Mw)、数平均分子量 (Mn)、及び重量平均分子量 (Mw) を数平均分子量 (Mn) で除した値 (Mw/Mn) を算出した。

【0103】

カラム : TSK gel GMHHR-H (20) HT (7.8 mm I. D. × 30 cm) 2本

移動相 : 1, 2, 4-トリクロロベンゼン

検出器 : RI

カラム温度 : 160℃

試料濃度 : 1 mg/ml

校正曲線 : ポリスチレン

【0104】

[溶融張力の測定]

株式会社東洋精機製作所製キャピログラフを用いて、以下の条件で微多孔層の溶融張力 (20 mN) を測定した。

・キャピラリー : 直径1.0 mm、長さ20 mm

・シリンダー押出速度 : 2 mm/分

・引き取り速度 : 60 m/分

・温度 : 230℃

【0105】

[ペンタッド分率の測定]

ポリプロピレンのペンタッド分率は、高分子分析ハンドブック (日本分析化学会編集) の記載に基づいて帰属した¹³C-NMRスペクトルから、ピーク高さ法によって算出した。

¹³C-NMRスペクトルの測定は、日本電子株式会社のJEOLE-ECZ 500を使用し、ポリプロピレンをo-ジクロロベンゼン-dに溶解させ、測定温度145℃、積算回数25000回の条件で行った。

【0106】

[厚み (μm) の測定]

株式会社ミットヨ製のデジマチックインジケータIDC 112を用いて、室温23 ± 2℃で、セパレータの厚み (μm) を測定した。

【0107】

[気孔率 (%) の測定]

10 cm × 10 cm角の試料をセパレータから切り取り、その体積 (cm³) と質量 (g) を求め、それらと密度 (g/cm³) より、気孔率を計算した。

【0108】

[透気抵抗度 (秒/100 cm³) の測定]

JIS P-8117に準拠したガーレー式透気度計を用いて、セパレータの透気抵抗度 (秒/100 cm³) を測定し、単位がμmである厚みで除した後14をかけることにより、厚み14 μm換算の透気抵抗度 (透気度) を算出した。

【0109】

[突刺強度の測定]

先端が半径0.5 mmの半球状である針を用意し、直径 (dia.) 11 mmの開口部を有するプレート2つの間にセパレータを挟み、針、セパレータ及びプレートをセットした。株式会社イマダ製「MX 2-50 N」を用いて、針先端の曲率半径0.5 mm、セパレ

10

20

30

40

50

ータ保持プレートの開口部直径11mm及び突刺速度25mm/分の条件下で突刺試験を行った。針とセパレータを接触させ、最大突刺荷重（すなわち、突刺強度（gf））を測定した。得られた突刺強度を厚みで除した後14をかけることにより、厚み14μm換算の突刺強度を算出した。

【0110】

〔引張試験〕

引張試験機（株式会社島津製作所 オートグラフAG-A型）を用いて引張試験を行い、試料破断時の強度を、試験前の試料断面積で除し、引張破断強度（kg/cm²）とした。測定条件は、温度；23±2℃、試料形状；幅10mm×長さ100mm、チャック間距離；50mm、引張速度；200mm/minでMDの引張強度SMD及びTDの引張強度STDを測定して、SMD/STDを算出した。

10

【0111】

〔平均長孔径と最大長孔径の測定〕

平均長孔径および最大長孔径は、MD-TD表面またはND-MD断面に存在する孔のSEM観察での画像解析により測定した。前処理として、セパレータにルテニウム染色を行った。得られた試料を導電性接着剤（カーボン系）でSEM試料台に固定し、乾燥した後、オスミウムコーター（HPC-30W、株式会社真空デバイス製）を用いて導電処理を行った後、印加電圧調整つまみ設定4.5、放電時間0.5秒の条件でオスミウムコーティングを実施し、検鏡試料とした。

【0112】

20

上記検鏡試料を、走査型電子顕微鏡（SEM）で加速電圧1.0kVにて観察し、SEM像を取得した。得られた表面または断面SEM画像4μm×4μmの範囲の各孔の長孔径を測定し、必要に応じて樹脂部と孔部とを分ける二値化処理を行なって、最大長孔径と平均長孔径を算出した。この際、4μm×4μmの範囲と範囲外の部分に跨って存在している微小孔、及び面積が0.001μm²以下の孔については、測定範囲から除外した。孔の長孔径について、孔の面積加重の平均値を算出することで、平均長孔径の値を得た。孔の長径のうち、最大のを最大長孔径として採用した。表1～表6には、MD-TD表面のSEM観察により測定された最大長孔径または平均長孔径を示す。

【0113】

〔熱収縮率の測定〕

30

セパレータをMD/TDそれぞれ50mmの方形に切り出して得た試料を、105℃、及び120℃のそれぞれに加熱（常圧、大気下）してある熱風乾燥機（ヤマト科学株式会社製、DF1032）に入れた。1時間後、及び2時間後に熱風乾燥機より試料を取り出し、熱収縮率を求めた。試料は、乾燥機の内壁等に付着しないように、かつ試料同士が融着しないように、コピー紙の上に乗せてから熱風乾燥機に入れた。

熱収縮率（%）：（加熱前の寸法（mm）－加熱後の寸法（mm））／（加熱前の寸法（mm））×100

【0114】

〔シート状リチウムイオン二次電池の作製〕

40

電解液として、エチレンカーボネートとエチルメチルカーボネートとを体積比1：2で混合したものに、リチウム塩としてLiPF₆を1mol/L含有させた電解液を用いた。

【0115】

正極活物質としてリチウム・ニッケル・マンガン・コバルト複合酸化物（LiNi_{0.5}Co_{0.2}Mn_{0.3}O₂）と、導電助剤としてカーボンブラック粉末（Timcal株式会社製、商品名：SuperP Li）と、バインダーとしてPVDFとを、複合酸化物：導電助剤：バインダー＝100：3.5：3の質量比で混合した。得られた混合物を、溶剤（N-メチルピロリドン）に分散させ、分散体を形成した。厚さ15μmの正極集電体としてのアルミニウム箔の両面に分散体を塗布し、溶剤を乾燥除去後、ロールプレスでプレスして、両面塗工正極を作製した。

【0116】

50

負極活物質として粒子径 $22\ \mu\text{m}$ (D50) の黒鉛粉末 (日立化成株式会社製、商品名: MAG) と、バインダー (日本ゼオン株式会社製、商品名: BM400B) と、増粘剤としてカルボキシメチルセルロース (ダイセル株式会社製、商品名: #2200) とを、黒鉛粉末: バインダー: 増粘剤 = 100: 1.5: 1.1 の質量比で混合した。得られた混合物を、溶剤 (水) に分散させ、水分散体を作製した。水分散体を厚さ $10\ \mu\text{m}$ の負極集電体としての銅箔の片面に塗布して、片面塗工体を作製した。片面塗工体とは別に、水分散体を厚さ $10\ \mu\text{m}$ の負極集電体としての銅箔の両面に塗布して、両面塗工体を作製した。片面塗工体および両面塗工体から、溶剤 (水) を乾燥除去し、その後、塗布された銅箔をロールプレスでプレスして、それぞれ片面塗工負極と両面塗工負極を作製した。

【0117】

10

得られた正極及び負極を、それぞれの活物質の対向面に、下記で作製したセパレータを挟みながら、片面塗工負極/両面塗工正極/両面塗工負極/両面塗工正極/片面塗工負極の順に積層した。次いで、得られた積層体を、アルミニウム箔 (厚さ $40\ \mu\text{m}$) の両面を樹脂層で被覆したラミネートフィルムで形成された袋 (電池外装) の内部に挿入した。電池外装からは、挿入された電極の端子が突設されている。その後、上述のようにして作製した電解液 $0.8\ \text{mL}$ を袋内に注入し、袋に真空封止を行うことによってシート状リチウムイオン二次電池を作製した。

【0118】

〔電池性能評価および目詰まりの観察〕

得られたシート状リチウムイオン二次電池を、 25°C に設定した恒温槽 (二葉科学社製、商品名: PLM-73S) に收容し、充放電装置 (アスカ電子株式会社製、商品名: ACD-01) に接続し、16時間静置した。次いで、その電池を、 $0.05\ \text{C}$ の定電流で充電して、電圧が $4.35\ \text{V}$ に到達してから $4.35\ \text{V}$ の定電圧で2時間充電した後、 $0.2\ \text{C}$ の定電流で $3.0\ \text{V}$ まで放電するという充放電サイクルを、3回繰り返すことによって、電池の初期充放電を行った。なお、 $1\ \text{C}$ とは、電池の全容量を1時間で放電させる場合の電流値を示す。

20

【0119】

上記初期充放電後、 50°C に設定した恒温槽に上記電池を收容し、その電池を、 $1\ \text{C}$ の定電流で充電して、電圧が $4.35\ \text{V}$ に到達してから $4.35\ \text{V}$ の定電圧で1時間充電した後、 $1\ \text{C}$ の定電流で $3.0\ \text{V}$ まで放電するという充放電サイクルを、100回繰り返した。電池のサイクル試験は、上記の充放電サイクルを100回繰り返す試験である。

30

【0120】

100サイクル目の放電容量 (mAh) を1サイクル目の放電容量 (mAh) で除した値 (百分率) をサイクル容量維持率とした。また、100サイクル終了後のシート状リチウムイオン二次電池をアルゴン雰囲気下で解体し、セパレータを取り出した。セパレータをエチルメチルカーボネート含有槽に30秒間浸漬して取り出すことにより1回目の浸漬洗浄を行った。計3回の浸漬洗浄を行った。2回目と3回目の浸漬洗浄では槽内のエチルメチルカーボネートを入れ替えた。その後、光学顕微鏡にて倍率 $100\sim 1000$ 倍の条件下でセパレータ負極側表面を $1\ \text{mm}$ 角の範囲で観察し、セパレータ表面の目詰まりの有無を確認した。表1～表4に、目詰まりの有無を示す。

40

【0121】

〔リチウムイオン二次電池内での短絡評価〕

得られたシート状リチウムイオン二次電池を、 25°C に設定した恒温槽 (二葉科学社製、商品名: PLM-73S) に收容し、充放電装置 (アスカ電子株式会社製、商品名: ACD-01) に接続し、16時間静置した。次いで、その電池を、 $0.05\ \text{C}$ の定電流で充電して、電圧が $4.35\ \text{V}$ に到達してから $4.35\ \text{V}$ の定電圧で2時間充電した後、 $0.2\ \text{C}$ の定電流で $3.0\ \text{V}$ まで放電するという充放電サイクルを、3回繰り返すことによって、電池の初期充放電を行った。なお、 $1\ \text{C}$ とは、電池の全容量を1時間で放電させる場合の電流値を示す。

【0122】

50

上記初期充放電後、0.2 Cの定電流で4.0 Vまで充電し、恒温槽に上記電池を収容し、恒温槽の温度を25℃から10分ごとに5℃ずつ昇温し、電池電圧が0.5 V以下に低下する温度を確認し、電池安全性の指標となる短絡発生温度とした。

【0123】

《実施例1》

[単層セパレータ(微多孔層(X))の作製]

高分子量のポリプロピレン樹脂(PP、MFR(230℃)=0.51 g/10分、密度=0.91 g/cm³、Mw/Mn=5.2、ペンタッド分率=99.3%)を2.5インチの押出機で熔融し、ダイ幅が500 mm、ダイリップのクリアランスが3.3 mmに調整されたTダイへとギアポンプを使って供給した。Tダイの温度は210℃に設定した。熔融したポリマーをTダイから吐出した。その後、500 L/minの風量の12℃の吹込空気によって吐出樹脂を十分に冷却し、ロールに巻き取った。ロールに巻き取られた原反フィルムは、15 μmの厚さを有し、ドロー比は220であった。次いで、原反フィルムを130℃で20分間アニールした。アニールされた原反フィルムを、室温で8%まで冷間延伸し、次いで116℃で185%熱間延伸し、126℃で45%熱緩和することにより微多孔を形成し、PP単層構造の微多孔層(X)からなるセパレータを得た。上記延伸開孔の後、得られたセパレータの透気度、突刺強度、気孔率、平均長孔径及び最大長孔径の測定を行った。結果を表1に示す。

【0124】

《実施例2~11》

表1に示すとおり原料及び製造条件を変更したこと以外は実施例1と同じ方法に従って微多孔層(X)からなるセパレータを得て、得られたセパレータを評価した。

【0125】

《比較例1~11》

表2に示すとおり原料及び製造条件を変更したこと以外は実施例1と同じ方法に従って微多孔層(X)からなるセパレータを作製し、セパレータを評価した。

【0126】

《実施例12》

[三層セパレータ(微多孔層(X)/微多孔層(Y)/微多孔層(X))の作製]

高分子量のポリプロピレン樹脂(PP、MFR(230℃)=0.51 g/10分、密度=0.91 g/cm³、Mw/Mn=5.2、ペンタッド分率=99.3%)を2.5インチの押出機で熔融し、Tダイへとギアポンプを使って供給した。Tダイの温度は230℃に設定した。熔融したポリマーをTダイから吐出した。その後、吹込空気によって吐出樹脂を冷却し、微多孔層(X)の前駆体であるPP原反フィルム(X')をロールに巻き取った。

同様に、ポリエチレン樹脂(PE、MFR(190℃)=0.38 g/10分、密度=0.96 g/cm³)を2.5インチの押出機で熔融し、Tダイへとギアポンプを使って供給した。Tダイの温度は220℃に設定した。熔融したポリマーをTダイから吐出した。その後、吹込空気によって吐出樹脂を冷却し、微多孔層(Y)の前駆体であるPE原反フィルム(Y')をロールに巻き取った。

ロールに巻き取られたPP原反フィルム(X')及びPE原反フィルム(Y')は、それぞれ5 μmの厚さを有し、次いで、PP原反フィルム(X')及びPE原反フィルム(Y')を、PP原反フィルム(X')/PE原反フィルム(Y')/PP原反フィルム(X')となるように結着し、PP/PE/PPの三層構造を有する原反フィルムを得た。次いで、三層構造の原反フィルムを130℃で20分間アニールした。アニールされた原反フィルムを、室温で11%まで冷間延伸し、次いで125℃で158%まで熱間延伸し、125℃で113%まで緩和することにより微多孔を形成し、微多孔層(X)/微多孔層(Y)/微多孔層(X)からなるPP/PE/PP三層構造のセパレータを得た。

【0127】

上記延伸開孔の後、得られた三層構造セパレータの透気抵抗度、及び突刺強度の測定、並

びに微多孔層 (X) の MFR 及び溶融張力の測定を行った。PP 原反フィルム (X') の下限厚みは、PP 原反フィルム (X') を製造後、吐出量一定のまま引取速度を上げることで評価した。また、得られた下限厚みの PP 原反フィルムを上記 5 μ m 厚の PE 原反フィルム (Y') とラミネートし、その後、上記アニール及び延伸条件 (125°C で 20 分間アニールし、室温で 11 % まで冷間延伸し、125°C で 158 % まで熱間延伸し、125°C で 113 % まで緩和する) で延伸開孔させることで、三層構造を有するセパレータを作製し、セパレータの厚みを確認した。結果を表 3 に示す。

【0128】

《実施例 13 ~ 16》

表 3 に示すとおり原料と製造条件を変更したこと以外は実施例 12 と同じ方法に従って三層構造を有するセパレータを得て、得られたセパレータを評価した。

【0129】

《比較例 12 ~ 18》

表 4 に示すとおり原料と製造条件を変更したこと以外は実施例 12 と同じ方法に従って三層構造を有するセパレータを作製し、得られたセパレータを評価した。

【0130】

《実施例 17》

〔微多孔層の作製〕

高分子量のポリプロピレン (PP、MFR (230°C) = 0.51 g/10 分、密度 = 0.91 g/cm³、Mw = 900000、Mw/Mn = 5.2、ペンタッド分率 = 99.3 %) を 2.5 インチの押出機で溶融し、T ダイへとギアポンプを使って供給した。T ダイの温度は 230°C に設定した。溶融したポリマーを T ダイから吐出した。その後、チラーにより 10°C に冷却した 800 L/分の吹込空気によって吐出樹脂を急冷しながら、ロール速度 25 m/分でロールに巻き取ることで約 6 μ m 厚みの前駆体 (X') (微多孔層 (X) の前駆体) を得た。ここで、T ダイの TD のリップ幅は 500 mm、T ダイのリップ間距離 (リップクリアランス) は、2.4 mm に設定し、3.8 kg/h の吐出量で吐出した。

同様にして、ポリオレフィン (B) として、ポリエチレン (PE、MFR (190°C) = 0.38 g/10 分、密度 = 0.96 g/cm³) を 2.5 インチの押出機で溶融し、T ダイへとギアポンプを使って供給した。T ダイの温度は 210°C に設定した。溶融したポリマーを T ダイから吐出した。その後、チラーにより 10°C に冷却した 800 L/分の吹込空気によって吐出樹脂を急冷しながら、ロール速度 25 m/分でロールに巻き取ることで約 6 μ m 厚みの前駆体 (Y') (微多孔層 (Y) の前駆体) を得た。ここで、T ダイの TD のリップ幅は 500 mm、T ダイのリップ間距離 (リップクリアランス) は、2.4 mm に設定し、3.8 kg/h の吐出量で吐出した。

【0131】

次いで、得られた前駆体 (X') 及び前駆体 (Y') を、前駆体 (X') / 前駆体 (Y') / 前駆体 (X') となるように、熱圧着ラミネータを用いて 120°C、4 m/分で熱圧着処理することにより、三層構造の前駆体 (Z) を得た。次いで、得られた前駆体 (Z) を乾燥機に投入し、120°C で、1 時間アニール処理を実施した。その後、アニールされた前駆体 (Z) を室温にて 8 % 冷間延伸し、延伸後の膜を収縮させることなく 116°C のオーブン中に投入し、185 % まで熱間延伸し、その後、124°C で 25 % 緩和させ、さらに、128°C で 20 % 緩和させることにより、微多孔層 (X) / 微多孔層 (Y) / 微多孔層 (X) からなる三層構造を有するセパレータを得た。得られたセパレータの構造、物性及び電池性能評価結果を表 5 に示す。

【0132】

《実施例 18 ~ 21、比較例 19、比較例 20》

表 5 及び表 6 に示すとおり原料を変更したこと以外は実施例 17 と同じ方法に従って微多孔層を得て、得られたセパレータを評価した。

【0133】

10

20

30

40

50

《実施例 2 2》

熱緩和工程において、一段階目の熱緩和を 1 2 4℃で 1 5 %緩和させ、さらに二段階目の熱緩和を 1 2 8℃で 1 0 %緩和させたこと以外は、実施例 1 7 と同じ方法に従って微多孔層を得て、微多孔層、及びそれを用いて得られたセパレータを評価した。

【0 1 3 4】

《実施例 2 3》

熱緩和工程において、一段階目の熱緩和を 1 2 6℃で 2 0 %緩和させ、二段階目の熱緩和を行わなかったこと以外は、実施例 1 7 と同じ方法に従って微多孔層を得て、微多孔層、及びそれを用いて得られたセパレータを評価した。

【0 1 3 5】

《比較例 2 1》

表 6 に示すとおりにポリオレフィンの原料を変更し、ラミネートプロセスではなく、共押出プロセスにより成膜を行った。具体的には、表 6 に示すポリプロピレンを 2 . 5 インチの押出機で 2 2 0℃で、実施例 1 7 に記載のポリエチレンを 2 0 0℃で、それぞれ溶融した。次いで、ポリプロピレン溶融樹脂およびポリエチレン溶融樹脂を、ポリプロピレン／ポリエチレン／ポリプロピレンの三層構造となるように吐出量比 1 : 1 : 1 で共押出用の T ダイ (2 2 0℃) に供給し、溶融したポリマーを T ダイから 1 1 . 4 k g / h で吐出した。その後、チラーにより 2 0℃に冷却した 8 0 0 L / 分の吹込空気によって吐出樹脂を急冷しながら、ロール速度 2 5 m / 分でロールに巻き取ることで約 1 8 μ m 厚みの三層構造の前駆体 (Z) (微多孔層 (Z) の前駆体) を得た。得られた前駆体 (Z) を乾燥機に投入し、1 2 0℃で、1 時間アニール処理を実施した。その後、アニールされた前駆体 (Z) を室温にて 8 %冷間延伸し、延伸後の膜を収縮させることなく 1 2 5℃のオーブン中に投入し、1 5 0 %まで熱間延伸を行い、その後、2 5 %緩和させることにより、微多孔層 (X) / 微多孔層 (Y) / 微多孔層 (X) からなる三層構造を有するセパレータを得た。得られたセパレータの構造、物性及び電池性能評価結果を表 6 に示す。

【0 1 3 6】

10

20

30

40

50

【表 1 - 1】

表1. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	実施例				
		1	2	3	4	5
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.51	0.38	0.6	0.87	0.51
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	900000	940000	920000	780000	900000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.2	5.3	5.9	5.8	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	99.3	97.9	95.8	97.1	99.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	26	29	29	20	26
PPの押出温度	°C	210	210	210	210	210
PP押出時のエア風量	L/min	500	500	500	500	800
PP押出時のエア温度	°C	12	12	12	12	12
アニール温度	°C	130	130	130	130	130
アニール時間	min	20	20	20	20	180
セパレータ厚み	μm	14.2	14.0	14.3	14.1	14.5
セパレータの気孔率	%	49	48	50	48	52
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	152	186	148	160	133
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	323	336	307	305	309
SMD/STD	—	16.3	16.5	15.9	15.8	16.6
平均長孔径	μm	115	105	121	108	268
最大長孔径	μm	265.0	253.0	273	257	649
サイクル容量維持率	%	80.0	76.0	81.0	78.0	85.0
サイクル後の目詰まり	μm	なし	なし	なし	なし	なし

10

20

30

40

50

【0137】
【表1-2】

表1. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	実施例			
		6	7	8	9
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.51	0.38	0.6	0.51
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	900000	940000	920000	900000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.2	5.3	5.9	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	99.3	97.9	95.8	99.3
微多孔層(X)の熔融張力	mN	26	29	29	26
PPの押出温度	°C	210	210	210	210
PP押出時のエア風量	L/min	600	600	600	700
PP押出時のエア温度	°C	12	12	12	12
アニール温度	°C	130	130	130	130
アニール時間	min	60	60	60	60
セパレータ厚み	μm	14.1	14.1	14.2	14.4
セパレータの気孔率	%	50	50	51	52
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	149	170	151	144
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	334	342	322	320
SMD/STD	—	16.5	16.0	16.2	16.2
平均長孔径	μm	148	139	162	186
最大長孔径	μm	—	—	—	—
サイクル容量維持率	%	81.3	82.1	82.2	84.3
サイクル後の目詰まり	μm	なし	なし	なし	なし

【0138】

10

20

30

40

50

【表 1－3】

表1. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	実施例	
		10	11
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.25	0.87
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	980000	780000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.5	5.8
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	97.5	97.1
微多孔層(X)の溶融張力	mN	36	17
PPの押出温度	℃	220	210
PP押出時のエア風量	L/min	700	500
PP押出時のエア温度	℃	12	12
アニール温度	℃	130	130
アニール時間	min	120	20
セパレータ厚み	μm	14.0	14.8
セパレータの気孔率	%	49	54
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	192	136
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	358	303
SMD/STD	—	17.2	15.6
平均長孔径	μm	108	338
最大長孔径	μm	—	—
サイクル容量維持率	%	76.6	75.4
サイクル後の目詰まり	μm	なし	なし

【0139】

10

20

30

40

50

【表 2 - 1】

表2. 単層セパレータ (微多孔層(X)) の評価

項目	単位	比較例						
		1	2	3	4	5	6	7
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.48	0.93	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	910000	720000	900000	900000	900000	900000	900000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.5	5.5	5.2	5.2	5.2	5.2	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	93.8	90.3	99.3	99.3	99.3	99.3	99.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	27	15	26	26	26	26	26
PPの押出温度	°C	210	210	260	210	210	210	210
PP押出時のエア風量	L/min	500	500	500	200	400	400	400
PP押出時のエア温度	°C	12	12	12	25	60	25	25
アニール温度	°C	130	130	130	130	130	110	130
アニール時間	min	20	20	20	20	20	20	5
セパレータ厚み	μm	13.8	13.9	13.6	13.7	13.9	13.5	13.6
セパレータの気孔率	%	45	46	43	44	46	40	41
セパレータの透気抵抗度 (14μm厚換算値)	秒/100cm ³	236	242	255	251	249	283	275
セパレータの突刺強度 (14μm厚換算値)	gf	328	293	326	317	331	311	315
SMD/STD	—	16	15.2	14.2	13.9	15	14.6	14.9
平均長孔径	μm	93	97	91	92	97	89	89
最大長孔径	μm	239.0	248.0	238	241	248	248	249
サイクル容量維持率	%	61.0	69.0	58.0	63.0	70.0	49.0	55.0
サイクル後の目詰まり	μm	あり	あり	あり	あり	あり	あり	あり

10

20

30

40

50

【0140】
【表2-2】

表2. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	比較例			
		8	9	10	11
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.93	1.1	1.4	0.93
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのM _w	—	720000	710000	660000	720000
微多孔層(X)に用いたPPのM _w /M _n	—	5.5	9.4	7.4	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	90.3	—	—	90.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	15	14	9	15
PPの押出温度	°C	210	210	210	210
PP押出時のエア風量	L/min	600	600	600	1000
PP押出時のエア温度	°C	12	12	12	12
アニール温度	°C	130	130	130	140
アニール時間	min	60	60	60	180
セパレータ厚み	μm	14.4	14.3	14.6	14.9
セパレータの気孔率	%	50	51	51	54
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	193	187	185	175
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	274	257	251	254
SMD/STD	—	15.8	14.9	15.4	14.8
平均長孔径	μm	124	135	142	418
最大長孔径	μm	—	—	—	—
サイクル容量維持率	%	76.8	76.4	76.7	41.0
サイクル後の目詰まり	μm	なし	なし	なし	なし

【0141】

10

20

30

40

50

【表 3】

表 3. PP/PE/PP 三層セパレータ (微多孔層 (X)/微多孔層 (Y)/微多孔層 (X)) の評価

項目	単位	実施例				
		12	13	14	15	16
微多孔層 (X) の MFR	g/10min	0.51	0.38	0.6	0.87	0.51
微多孔層 (X) に用いた PP の密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層 (X) に用いた PP の Mw	—	900000	940000	920000	780000	900000
微多孔層 (X) に用いた PP の Mw/Mn	—	5.2	5.3	5.9	5.8	5.2
微多孔層 (X) に用いた PP の ペンタッド分率	%	99.3	97.9	95.8	97.1	99.3
微多孔層 (X) の 溶融張力	mN	26	29	29	20	26
PP の 押出温度	°C	230	230	230	230	230
PP 押出時の エア風量	L/min	500	500	500	500	800
PP 押出時の エア温度	°C	12	12	12	12	12
アニール温度	°C	125	125	125	125	125
アニール時間	min	20	20	20	20	180
セパレータ 厚み	μm	14.2	14	14.2	14.1	14.3
セパレータ の 気孔率	%	50	48	52	49	55
セパレータ の 透気抵抗度 (14 μm 厚換算値)	秒/100cm ³	169	174	162	175	143
セパレータ の 突刺強度 (14 μm 厚換算値)	gf	358	363	319	311	347
SMD/STD	—	15.1	15.5	14.5	14.3	15.3
平均長孔径	μm	109	107	118	108	237
最大長孔径	μm	257.0	256.0	271	253	620
サイクル容量維持率	%	84.0	83.0	86	81	87
サイクル後の目詰まり	μm	なし	なし	なし	なし	なし

【表 4】

表 4. P P / P E / P P 三層セパレータ (微多孔層 (X) / 微多孔層 (Y) / 微多孔層 (X)) の評価

項目	単位	比較例							
		12	13	14	15	16	17	18	
微多孔層 (X) の MFR	g/10min	0.48	0.93	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51	
微多孔層 (X) に用いた PP の密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	
微多孔層 (X) に用いた PP の Mw	—	910000	720000	900000	900000	900000	900000	900000	
微多孔層 (X) に用いた PP の Mw/Mn	—	5.5	5.5	5.2	5.2	5.2	5.2	5.2	
微多孔層 (X) に用いた PP のペンタッド分率	%	93.8	90.3	99.3	99.3	99.3	99.3	99.3	
微多孔層 (X) の溶融張力	mN	27	15	26	26	26	26	26	
PP の押出温度	°C	210	210	260	210	210	210	210	
PP 押出時のエア風量	L/min	500	500	500	200	500	500	500	
PP 押出時のエア温度	°C	12	12	12	12	60	12	12	
アニール温度	°C	125	125	125	125	125	110	125	
アニール時間	min	20	20	20	20	20	20	5	
セパレータ厚み	μm	14	14.1	13.9	14	14.1	13.8	13.7	
セパレータの気孔率	%	46	46	45	45	45	42	43	
セパレータの透気抵抗 (14 μm 厚換算値)	秒/100cm ³	253	245	193	256	250	288	285	
セパレータの突刺強度 (14 μm 厚換算値)	gf	320	294	331	328	325	316	320	
SMD/STD	—	15	14.6	14.9	15.1	15.3	14.7	14.9	
平均長孔径	μm	96	97	98	96	97	92	91	
最大長孔径	μm	243.0	241.0	239.0	247	240	233	229	
サイクル容量維持率	%	69.0	65.0	65.0	61.0	68.0	53.0	49.0	
サイクル後の目詰まり	μm	あり	あり	あり	あり	あり	あり	あり	

10

20

30

40

50

【 0 1 4 3 】

10

20

30

40

50

【表5】

表5. P P / P E / P P 三層セパレータ (微多孔層(X)/微多孔層(Y)/微多孔層(X))の評価

項目	単位	実施例						
		17	18	19	20	21	22	23
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.51	0.38	0.35	0.60	0.83	0.51	
微多孔層(X)に用いたPPのM _w	—	900000	940000	960000	920000	740000	900000	
微多孔層(X)に用いたPPのM _w /M _n	—	5.2	5.3	4.9	5.9	6.0	5.2	
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	99.3	97.9	98.3	94.8	90.1	99.3	
微多孔層(X)の溶融張力	mN	26	29	29	29	17	26	
セパレータ厚み	μm	15.8	15.4	15.5	15.7	16.1	15.9	
セパレータの気孔率	%	54.7	52.7	52.9	54.4	55.6	55.5	
微多孔層(X)の平均長孔径	nm	174	129	137	142	167	181	
セパレータの透気抵抗度(14μ換算)	秒/100ml	139	154	157	167	164	142	
セパレータの突刺強度(14μ換算)	gf	312	310	308	298	252	321	
105℃1時間でのMD方向熱収縮率	%	2.3	2.2	2.2	2.4	3.8	3.7	
105℃2時間でのMD方向熱収縮率	%	2.4	2.2	2.3	2.4	3.8	3.8	
105℃1時間でのTD方向熱収縮率	%	0.0	0.0	0.1	0.1	0.0	0.1	
120℃1時間でのMD方向熱収縮率	%	6.8	6.6	6.7	6.9	9.8	9.4	
120℃2時間でのMD方向熱収縮率	%	6.8	6.7	6.7	6.9	9.8	9.5	
120℃1時間でのTD方向熱収縮率	%	0.1	0.1	0.1	0.0	0.1	0.1	
リチウムイオン二次電池中の短絡発生温度	℃	130	130	130	130	125	125	

10

20

30

40

50

【0144】
【表6】

表6. P P / P E / P P 三層構造微多孔膜の評価

項目	単位	実施例	比較例		
			19	20	21
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.51	1.1	1.4	0.53
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	90000	71000	66000	97000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.2	9.4	7.4	7.5
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	99.3	91.2	92.8	95.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	26	14	9	39
セパレータ厚み	μm	15.8	16.2	16.1	15.8
セパレータの気孔率	%	55.6	51.9	51.7	50.4
微多孔層(X)の平均長孔径	nm	178	146	137	71
セパレータの透気抵抗度(14μ換算)	秒/100ml	147	214	224	221
セパレータの突刺強度(14μ換算)	gf	314	218	207	287
105℃1時間でのMD方向熱収縮率	%	4.4	4.2	5.4	4.4
105℃2時間でのMD方向熱収縮率	%	4.4	4.3	5.4	4.5
105℃1時間でのTD方向熱収縮率	%	0.1	0.0	0.0	0.0
120℃1時間でのMD方向熱収縮率	%	9.8	11.4	12.1	9.5
120℃2時間でのMD方向熱収縮率	%	9.7	11.4	12.1	9.5
120℃1時間でのTD方向熱収縮率	%	0.1	0.0	0.1	0.1
リチウムイオン二次電池中の短絡発生温度	℃	120	115	115	120

【産業上の利用可能性】

【0145】

本実施形態の蓄電デバイス用セパレータは、高強度かつ薄膜化が可能であり、蓄電デバイス、例えばリチウムイオン二次電池等のセパレータとして好適に利用することができる。

10

20

30

40

50

【手続補正書】

【提出日】 令和3年10月5日(2021.10.5)

【手続補正1】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0112

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【0112】

上記検鏡試料を、走査型電子顕微鏡（SEM）で加速電圧1.0 kVにて観察し、SEM像を取得した。得られた表面または断面SEM画像4 μm \times 4 μm の範囲の各孔の長孔径を測定し、必要に応じて樹脂部と孔部とを分ける二値化処理を行なって、最大長孔径と平均長孔径を算出した。この際、4 μm \times 4 μm の範囲と範囲外の部分に跨って存在している微小孔、及び面積が0.001 nm^2 以下の孔については、測定範囲から除外した。孔の長孔径について、孔の面積加重の平均値を算出することで、平均長孔径の値を得た。孔の長径のうち、最大のを最大長孔径として採用した。表1～表6には、MD-TD表面のSEM観察により測定された最大長孔径または平均長孔径を示す。

10

【手続補正2】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0136

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【0136】

20

30

40

50

【表 1 - 1】

表1. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	実施例				
		1	2	3	4	5
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.51	0.38	0.6	0.87	0.51
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	900000	940000	920000	780000	900000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.2	5.3	5.9	5.8	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	99.3	97.9	95.8	97.1	99.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	26	29	29	20	26
PPの押出温度	℃	210	210	210	210	210
PP押出時のエア風量	L/min	500	500	500	500	800
PP押出時のエア温度	℃	12	12	12	12	12
アニール温度	℃	130	130	130	130	130
アニール時間	min	20	20	20	20	180
セパレータ厚み	μm	14.2	14.0	14.3	14.1	14.5
セパレータの気孔率	%	49	48	50	48	52
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	152	186	148	160	133
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	323	336	307	305	309
SMD/STD	—	16.3	16.5	15.9	15.8	16.6
平均長孔径	nm	115	105	121	108	268
最大長孔径	nm	265.0	253.0	273	257	649
サイクル容量維持率	%	80.0	76.0	81.0	78.0	85.0
サイクル後の目詰まり	—	なし	なし	なし	なし	なし

【補正対象書類名】明細書
【補正対象項目名】0 1 3 7
【補正方法】変更
【補正の内容】
【0 1 3 7】

10

20

30

40

50

【表 1 - 2】

表1. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	実施例			
		6	7	8	9
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.51	0.38	0.6	0.51
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	900000	940000	920000	900000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.2	5.3	5.9	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	99.3	97.9	95.8	99.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	26	29	29	26
PPの押出温度	°C	210	210	210	210
PP押出時のエア風量	L/min	600	600	600	700
PP押出時のエア温度	°C	12	12	12	12
アニール温度	°C	130	130	130	130
アニール時間	min	60	60	60	60
セパレータ厚み	μm	14.1	14.1	14.2	14.4
セパレータの気孔率	%	50	50	51	52
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	149	170	151	144
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	334	342	322	320
SMD/STD	—	16.5	16.0	16.2	16.2
平均長孔径	nm	148	139	162	186
最大長孔径	nm	—	—	—	—
サイクル容量維持率	%	81.3	82.1	82.2	84.3
サイクル後の目詰まり	—	なし	なし	なし	なし

【補正対象書類名】明細書
 【補正対象項目名】0138
 【補正方法】変更
 【補正の内容】
 【0138】
 【表1-3】

表1. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	実施例	
		10	11
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.25	0.87
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	980000	780000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.5	5.8
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	97.5	97.1
微多孔層(X)の溶融張力	mN	36	17
PPの押出温度	°C	220	210
PP押出時のエア風量	L/min	700	500
PP押出時のエア温度	°C	12	12
アニール温度	°C	130	130
アニール時間	min	120	20
セパレータ厚み	μm	14.0	14.8
セパレータの気孔率	%	49	54
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	192	136
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	358	303
SMD/STD	—	17.2	15.6
平均長孔径	nm	108	338
最大長孔径	nm	—	—
サイクル容量維持率	%	76.6	75.4
サイクル後の目詰まり	—	なし	なし

【手続補正5】
 【補正対象書類名】明細書
 【補正対象項目名】0139
 【補正方法】変更

10

20

30

40

50

【補正の内容】
 【0139】
 【表2-1】

表2. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	比較例						
		1	2	3	4	5	6	7
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.48	0.93	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	910000	720000	900000	900000	900000	900000	900000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.5	5.5	5.2	5.2	5.2	5.2	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	93.8	90.3	99.3	99.3	99.3	99.3	99.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	27	15	26	26	26	26	26
PPの押出温度	°C	210	210	260	210	210	210	210
PP押出時のエア風量	L/min	500	500	500	200	400	400	400
PP押出時のエア温度	°C	12	12	12	25	60	25	25
アニール温度	°C	130	130	130	130	130	110	130
アニール時間	min	20	20	20	20	20	20	5
セパレータ厚み	μm	13.8	13.9	13.6	13.7	13.9	13.5	13.6
セパレータの気孔率	%	45	46	43	44	46	40	41
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	236	242	255	251	249	283	275
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	328	293	326	317	331	311	315
SMD/STD	—	16	15.2	14.2	13.9	15	14.6	14.9
平均長孔径	nm	93	97	91	92	97	89	89
最大長孔径	nm	239.0	248.0	238	241	248	248	249
サイクル容量維持率	%	61.0	69.0	58.0	63.0	70.0	49.0	55.0
サイクル後の目詰まり	—	あり	あり	あり	あり	あり	あり	あり

10

20

30

40

50

【手続補正 6】
 【補正対象書類名】 明細書
 【補正対象項目名】 0 1 4 0
 【補正方法】 変更
 【補正の内容】
 【0 1 4 0】
 【表 2 - 2】

表2. 単層セパレータ(微多孔層(X))の評価

項目	単位	比較例			
		8	9	10	11
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.93	1.1	1.4	0.93
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	720000	710000	660000	720000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.5	9.4	7.4	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	90.3	—	—	90.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	15	14	9	15
PPの押出温度	°C	210	210	210	210
PP押出時のエア風量	L/min	600	600	600	1000
PP押出時のエア温度	°C	12	12	12	12
アニール温度	°C	130	130	130	140
アニール時間	min	60	60	60	180
セパレータ厚み	μm	14.4	14.3	14.6	14.9
セパレータの気孔率	%	50	51	51	54
セパレータの透気抵抗度(14μm厚換算値)	秒/100cm ³	193	187	185	175
セパレータの突刺強度(14μm厚換算値)	gf	274	257	251	254
SMD/STD	—	15.8	14.9	15.4	14.8
平均長孔径	nm	124	135	142	418
最大長孔径	nm	—	—	—	—
サイクル容量維持率	%	76.8	76.4	76.7	41.0
サイクル後の目詰まり	—	なし	なし	なし	なし

【手続補正 7】
 【補正対象書類名】 明細書

10

20

30

40

50

【補正対象項目名】 0 1 4 1
【補正方法】 変更
【補正の内容】
【 0 1 4 1 】

10

20

30

40

50

【表 3】

表 3. P P / P E / P P 三層セパレータ (微多孔層(X)/微多孔層(Y)/微多孔層(X)) の評価

項目	単位	実施例				
		12	13	14	15	16
微多孔層(X)のMFR	g/10min	0.51	0.38	0.6	0.87	0.51
微多孔層(X)に用いたPPの密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層(X)に用いたPPのMw	—	900000	940000	920000	780000	900000
微多孔層(X)に用いたPPのMw/Mn	—	5.2	5.3	5.9	5.8	5.2
微多孔層(X)に用いたPPのペンタッド分率	%	99.3	97.9	95.8	97.1	99.3
微多孔層(X)の溶融張力	mN	26	29	29	20	26
PPの押出温度	°C	230	230	230	230	230
PP押出時のエア風量	L/min	500	500	500	500	800
PP押出時のエア温度	°C	12	12	12	12	12
アニール温度	°C	125	125	125	125	125
アニール時間	min	20	20	20	20	180
セパレータ厚み	μm	14.2	14	14.2	14.1	14.3
セパレータの気孔率	%	50	48	52	49	55
セパレータの透気抵抗度 (14 μm厚換算値)	秒/100cm ³	169	174	162	175	143
セパレータの突刺強度 (14 μm厚換算値)	gf	358	363	319	311	347
SMD/STD	—	15.1	15.5	14.5	14.3	15.3
平均長孔径	nm	109	107	118	108	237
最大長孔径	nm	257.0	256.0	271	253	620
サイクル容量維持率	%	84.0	83.0	86	81	87
サイクル後の目詰まり	—	なし	なし	なし	なし	なし

【補正対象書類名】明細書
【補正対象項目名】0 1 4 2
【補正方法】変更
【補正の内容】
【0 1 4 2】

10

20

30

40

50

【表 4】

表 4. P P / P E / P P 三層セパレータ (微多孔層 (X) / 微多孔層 (Y) / 微多孔層 (X)) の評価

項目	単位	比較例						
		12	13	14	15	16	17	18
微多孔層 (X) の MFR	g/10min	0.48	0.93	0.51	0.51	0.51	0.51	0.51
微多孔層 (X) に用いた PP の密度	g/cm ³	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91
微多孔層 (X) に用いた PP の Mw	—	910000	720000	900000	900000	900000	900000	900000
微多孔層 (X) に用いた PP の Mw/Mn	—	5.5	5.5	5.2	5.2	5.2	5.2	5.2
微多孔層 (X) に用いた PP のペンタッド分率	%	93.8	90.3	99.3	99.3	99.3	99.3	99.3
微多孔層 (X) の溶融張力	mN	27	15	26	26	26	26	26
PP の押出温度	℃	210	210	260	210	210	210	210
PP 押出時のエア風量	L/min	500	500	500	200	500	500	500
PP 押出時のエア温度	℃	12	12	12	12	60	12	12
アニール温度	℃	125	125	125	125	125	110	125
アニール時間	min	20	20	20	20	20	20	5
セパレータ厚み	μm	14	14.1	13.9	14	14.1	13.8	13.7
セパレータの気孔率	%	46	46	45	45	45	42	43
セパレータの透気抵抗値 (14 μm 厚換算値)	秒/100cm ³	253	245	193	256	250	288	285
セパレータの突刺強度 (14 μm 厚換算値)	gf	320	294	331	328	325	316	320
SMD/STD	—	15	14.6	14.9	15.1	15.3	14.7	14.9
平均長孔径	nm	96	97	98	96	97	92	91
最大長孔径	nm	243.0	241.0	239.0	247	240	233	229
サイクル容量維持率	%	69.0	65.0	65.0	61.0	68.0	53.0	49.0
サイクル後の目詰まり	—	あり	あり	あり	あり	あり	あり	あり

10

20

30

40

50

フロントページの続き

(51) Int. Cl.			F I		テーマコード(参考)	
<i>H 0 1 G</i>	<i>11/52</i>	<i>(2013. 01)</i>	<i>H 0 1 G</i>	<i>11/52</i>		
<i>C 0 8 J</i>	<i>9/04</i>	<i>(2006. 01)</i>	<i>C 0 8 J</i>	<i>9/04</i>	<i>1 0 1</i>	
<i>C 0 8 J</i>	<i>5/18</i>	<i>(2006. 01)</i>	<i>C 0 8 J</i>	<i>5/18</i>		<i>C E S</i>
<i>C 0 8 J</i>	<i>9/00</i>	<i>(2006. 01)</i>	<i>C 0 8 J</i>	<i>9/00</i>	<i>A</i>	
<i>B 3 2 B</i>	<i>5/32</i>	<i>(2006. 01)</i>	<i>B 3 2 B</i>	<i>5/32</i>		
<i>B 3 2 B</i>	<i>27/32</i>	<i>(2006. 01)</i>	<i>B 3 2 B</i>	<i>27/32</i>	<i>E</i>	

(72)発明者 浜崎 真也
東京都千代田区有楽町一丁目1番2号 旭化成株式会社内

(72)発明者 高橋 真生
東京都千代田区有楽町一丁目1番2号 旭化成株式会社内

(72)発明者 多川 友哉
東京都千代田区有楽町一丁目1番2号 旭化成株式会社内

F ターム(参考) 4F071 AA15 AA20 AA81 AA88 AA89 AF08Y AF14 AF52 AF61Y AG28
AH15 BA01 BB06 BB07 BC01 BC12
4F074 AA17 AA24 AB01 AB05 CA04 CA06 CA07 CC02Y CC04X CC04Y
CC04Z CC32X CC32Y CC32Z DA02 DA03 DA08 DA10 DA22 DA23
DA24 DA49
4F100 AK03A AK03B AK04B AK07A BA02 DJ00A DJ00B EH20 EH23 GB41
JA03 JA06A JA07A JA20 JD02 JK01 JK02 YY00A
5E078 AA01 AA09 AA10 AA13 AA14 AB02 AB06 CA06 CA19
5H021 BB20 CC04 EE04 EE23 EE24 HH00 HH01 HH03 HH06 HH07