

(19) 日本国特許庁(JP)

## 再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02016/121687

発行日 平成29年11月9日(2017.11.9)

(43) 国際公開日 平成28年8月4日(2016.8.4)

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>GO 1 N 21/17 (2006.01)</b>	GO 1 N 21/17 Z	2 G 0 5 9
<b>GO 1 N 21/27 (2006.01)</b>	GO 1 N 21/27 B	5 E 0 7 8
<b>HO 1 M 4/139 (2010.01)</b>	HO 1 M 4/139	5 H 0 5 0
<b>HO 1 G 11/50 (2013.01)</b>	HO 1 G 11/50	
<b>HO 1 G 11/06 (2013.01)</b>	HO 1 G 11/06	
審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 16 頁) 最終頁に続く		

出願番号	特願2016-572018 (P2016-572018)	(71) 出願人	000004178
(21) 国際出願番号	PCT/JP2016/052006		J S R株式会社
(22) 国際出願日	平成28年1月25日 (2016.1.25)		東京都港区東新橋一丁目9番2号
(31) 優先権主張番号	特願2015-17055 (P2015-17055)	(74) 代理人	110000578
(32) 優先日	平成27年1月30日 (2015.1.30)		名古屋国際特許業務法人
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)	(72) 発明者	直井 雅也
			東京都港区東新橋一丁目9番2号 J S R株式会社内
		(72) 発明者	井上 雅裕
			東京都世田谷区南烏山3-7-24 株式会社M1テック内
		Fターム(参考)	2G059 AA03 BB08 CC03 DD13 EE02
			EE12 EE13 GG02 HH02 HH06
			JJ02 JJ05 JJ06 LL04 MM12
			5E078 AA15 AB06 BA18 BA26 BA73
			最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 リチウムの吸蔵状態を評価する方法、電極の製造方法、リチウムの吸蔵状態を評価するための装置および電極の製造システム

## (57) 【要約】

リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層に可視光線を含む光を照射し、その反射光、又は、その反射率からリチウムの吸蔵状態を評価する。

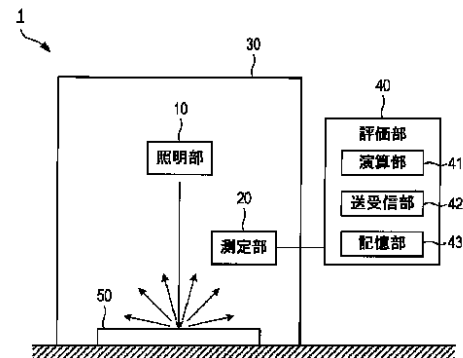


FIG. 1

10... LIGHTING UNIT  
 20... MEASUREMENT UNIT  
 40... EVALUATION UNIT  
 41... COMPUTATION UNIT  
 42... TRANSCIVER UNIT  
 43... STORAGE UNIT

**【特許請求の範囲】****【請求項 1】**

リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層に可視光線を含む光を照射し、その反射光からリチウムの吸蔵状態を評価する方法。

**【請求項 2】**

リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層に可視光線を含む光を照射し、その反射率からリチウムの吸蔵状態を評価する方法。

**【請求項 3】**

1 種又は相互に異なる 2 種以上の波長における反射率を利用してリチウムの吸蔵状態を評価する、請求項 2 に記載の方法。

10

**【請求項 4】**

リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層に白色光を照射し、その反射光を分光し、次いで相互に異なる 2 種の波長における分光反射率の差又は比を測定することによりリチウムの吸蔵状態を評価する方法。

**【請求項 5】**

前記相互に異なる 2 種の波長における分光反射率の差又は比が、相互に 50 nm 以上異なる 2 種の波長における分光反射率の差又は比である、請求項 4 に記載の方法。

**【請求項 6】**

前記相互に 50 nm 以上異なる 2 種の波長における分光反射率の差又は比が、380 - 500 nm の範囲にある特定の波長における分光反射率と 600 - 780 nm の範囲にある特定の波長における分光反射率との差又は比である、請求項 5 に記載の方法。

20

**【請求項 7】**

リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層に波長が相互に異なる 2 種の可視領域にある単色光を含む光を照射し、それらの反射率の差を測定することによりリチウムの吸蔵状態を評価する方法。

**【請求項 8】**

前記波長が相互に異なる 2 種の可視領域にある単色光が、波長が相互に 50 nm 以上異なる 2 種の単色光である、請求項 7 に記載の方法。

**【請求項 9】**

前記波長が相互に 50 nm 以上異なる 2 種の可視領域にある単色光が、380 - 500 nm の範囲にある単色光と 600 - 780 nm の範囲にある単色光である、請求項 8 に記載の方法。

30

**【請求項 10】**

前記リチウムを吸蔵した電極活物質が負極活物質である、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

**【請求項 11】**

前記電極活物質が炭素材料を含むものである、請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

**【請求項 12】**

請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の方法により電極活物質中のリチウムの吸蔵状態を評価する工程を含む電極の製造方法。

40

**【請求項 13】**

(1) リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層に可視光線を含む光を照射する照射部、及び (2) 前記リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層からの反射光を受光し、反射光に関する情報を測定する測定部を備える電極活物質中のリチウムの吸蔵状態を評価するための装置。

**【請求項 14】**

電極活物質にリチウムを吸蔵させるための装置、及び請求項 13 に記載の装置を備える電極の製造システム。

**【発明の詳細な説明】**

50

## 【関連出願の相互参照】

## 【0001】

本国際出願は、2015年1月30日に日本国特許庁に出願された日本国特許出願第2015-17055号に基づく優先権を主張するものであり、日本国特許出願第2015-17055号の全内容を本国際出願に参照により援用する。

## 【技術分野】

## 【0002】

本開示は、リチウムの吸蔵状態を評価する方法、電極の製造方法、リチウムの吸蔵状態を評価するための装置および電極の製造システムに関する。

## 【背景技術】

## 【0003】

近年、電子機器の小型化・軽量化の進歩は目覚ましく、それに伴い、当該電子機器の駆動用電源として用いられる電池に対しても小型化・軽量化の要求が一層高まっている。このような小型化・軽量化の要求を満足するために、リチウムイオン二次電池に代表される非水電解質二次電池が蓄電デバイスとして開発されている。また、高エネルギー密度特性及び高出力特性を必要とする用途に対応する蓄電デバイスとして、リチウムイオンキャパシタが知られている。

## 【0004】

このような蓄電デバイスにおいては、様々な目的のために、予めリチウムを電極に吸蔵させるプロセス（一般にプレドープと呼ばれている）が採用されている。リチウムを電極に吸蔵させる方法としては様々な方法が知られているが、例えば、特許文献1では、リチウム供給源となる金属とリチウムがドーピングされる電極間の開路電位を測定することを特徴とするフリードープ方法が提案されている。また、特許文献2では、所謂ロールツーロール方式により、リチウムを負極活物質層に吸蔵させる方法が開示されている。

## 【先行技術文献】

## 【特許文献】

## 【0005】

【特許文献1】特開2012-28729号公報

【特許文献2】特開2007-280926号公報

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0006】

特許文献1で提案されているような方法では、リチウムの吸蔵量を正確に測定することが困難であった。また、面積の大きい電極において、電極面内のリチウム吸蔵量の均一性を評価することが不可能であった。更に、特許文献1で提案されている方法では、ロールツーロール方式等による電極の製造ラインを構築しようとした場合、製造ラインへの適合性に乏しい。

## 【0007】

本開示の一局面では、未だ十分に確立されていないリチウムの吸蔵状態を評価する方法を提供することが望ましい。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0008】

本開示の第1の態様は、リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層に可視光線を含む光を照射し、その反射光からリチウムの吸蔵状態を評価する方法を提供する。

## 【0009】

本開示の第2の態様は、上記第1の態様に係る評価する方法に基づく工程を含む電極の製造方法を提供する。

本開示の第3の態様は、(1)リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層に可視光線を含む光を照射する照射部、及び(2)前記リチウムを吸蔵した電極活物質を含む層からの反

10

20

30

40

50

射光を受光し、反射光に関する情報を測定する測定部を備える電極活物質中のリチウムの吸蔵状態を評価するための装置を提供する。

【 0 0 1 0 】

本開示の第 4 の態様は、電極の電極活物質にリチウムを吸蔵させるための装置、及び第 3 の態様に係る装置を備える電極の製造システムを提供する。

【 発明の効果 】

【 0 0 1 1 】

本開示の第 1 の態様に係る評価方法および第 3 の態様に係る装置を用いることで、電極活物質中のリチウムの吸蔵量を正確且つ極めて簡便に測定することができる。また、本開示の評価方法および装置を用いれば、面積の大きい電極において、電極面内の任意の箇所におけるリチウムの吸蔵量を測定することが可能となるため、電極面内のリチウム吸蔵量の均一性を評価することもできる。したがって、本開示の評価方法および装置は、リチウムイオン二次電池、リチウムイオンキャパシタ等の電池又はキャパシタの電極の評価に極めて有用である。

10

【 0 0 1 2 】

本開示の第 2 の態様に係る電極の製造方法および第 4 の態様に係る製造システムを用いることで、製造される電極におけるリチウムの吸蔵量が一定になり、面積の大きい電極において、電極面内のリチウム吸蔵量の均一性が高くなる。したがって、本開示の電極の製造方法および製造システムは、リチウムイオン二次電池、リチウムイオンキャパシタ等の電池又はキャパシタの電極の製造に極めて有用である。

20

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 1 3 】

【 図 1 】 本開示のリチウムの吸蔵状態を評価する装置の構成を説明する模式図である。

【 符号の説明 】

【 0 0 1 4 】

1 ... 装置、 1 0 ... 照射部、 2 0 ... 測定部

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 5 】

以下、本開示について詳細に説明する。

〔 リチウムの吸蔵状態を評価する方法 〕

30

電極活物質を含む層（以下「電極活物質層」ともいう。）は、その形態が特に限定されるものではないが、通常、電極活物質及びバインダー等を含有するスラリーを調製し、これを集電体上に塗布し乾燥させることにより、集電体上に形成される。電極活物質層の他の形態としては、蒸着、スパッタリング等の物理的手法により電極活物質を集電体上に堆積させたもの、アルカリ金属を吸蔵した電極活物質及び有機溶媒からなるケーキをアプリケーションターバー等で層状にしたもの等が挙げられる。

【 0 0 1 6 】

電極活物質は、リチウムイオンの挿入／脱離を利用する電池又はキャパシタに用いられる電極活物質であれば特に限定されるものではなく、負極活物質であっても、正極活物質であってもよい。

40

【 0 0 1 7 】

負極活物質としては、例えば、黒鉛、易黒鉛化炭素、難黒鉛化炭素、黒鉛粒子をピッチや樹脂の炭化物で被覆した複合炭素材料等の炭素材料； S i、 S n 等のリチウムと合金化が可能な金属や半金属又はこれらの酸化物を含む材料等が挙げられる。炭素材料の具体例としては、特開 2 0 1 3 - 2 5 8 3 9 2 号公報に記載の炭素材料が挙げられる。リチウムと合金化が可能な金属や半金属又はこれらの酸化物を含む材料の具体例としては、特開 2 0 0 5 - 1 2 3 1 7 5 号公報、特開 2 0 0 6 - 1 0 7 7 9 5 号公報に記載の材料が挙げられる。

【 0 0 1 8 】

正極活物質としては、マンガン酸化物、バナジウム酸化物等の遷移金属酸化物；硫黄単

50

体、金属硫化物等の硫黄系活物が挙げられる。

本開示の評価方法は、負極活物質を含む層の評価に適しており、また、電極活物質として炭素材料を含む層の評価に適している。

#### 【0019】

電極活物質にリチウムを吸蔵させる方法としては、様々な方法が知られているが、例えば、リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質層とリチウム供給源を直接接触させる方法、リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質層を有する電極とリチウム供給源を電気化学的に接触させる方法、リチウムイオンを含む有機溶媒を使用せずに電極活物質層とリチウム供給源を接触させる方法、リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質粒子とリチウム供給源を直接接触させる方法が挙げられる。上記リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質層とリチウム供給源を直接接触させる方法の具体例としては、特開平5-41249号公報、特開2007-280926号公報等が開示されている。上記リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質層を有する電極とリチウム供給源を電気化学的に接触させる方法の具体例としては、特開昭63-10462号公報、特開昭64-14870号公報、特開平9-293499号公報等が開示されている。上記リチウムイオンを含む有機溶媒を使用せずに電極活物質層とリチウム供給源を接触させる方法の具体例としては、特開2007-214109号公報、特開2008-293954号公報等が開示されている。上記リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質粒子とリチウム供給源を直接接触させる方法の具体例としては、特開2012-209195号公報等が開示されている。本開示の評価方法は、リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質層を有する電極とリチウム供給源を電気化学的に接触させる方法、又はリチウムイオンを含む有機溶媒を使用せずに電極活物質層とリチウム供給源を接触させる方法によりリチウムを吸蔵させた電極におけるリチウムの吸蔵状態を評価するのに適しており、特に、リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質層を有する電極とリチウム供給源を電気化学的に接触させる方法によりリチウムを吸蔵させた電極におけるリチウムの吸蔵状態を評価するのに適している。

#### 【0020】

本開示の評価方法は、理論容量に対して好ましくは30%以上、より好ましくは50%以上、特に好ましくは70%以上のリチウムを吸蔵させた活物質を含む電極におけるリチウムの吸蔵状態を評価するのに適している。また、理論容量に対して95%以下のリチウムを吸蔵させた活物質を含む電極におけるリチウムの吸蔵状態を評価するのに適している。

#### 【0021】

なお、本開示における「リチウムを吸蔵」や「リチウムの吸蔵」との記載で示される範囲には、リチウムイオンの状態でインターカレーション（Intercalation）している場合や、リチウム合金を形成する場合が含まれる。したがって、「リチウムを吸蔵」等との記載における「リチウム」とは、元素としてのリチウムであることを意味するものである。また、「吸蔵」とは、インターカレーションや、合金化等を含む概念であり、リチウム元素を含有していることを意味するものである。

#### 【0022】

本開示の評価方法において用いられる可視光線としては、可視領域（360～830nm）にある電磁波であれば特に限定されるものではなく、多波長であっても単波長であってもよいが、多波長であるか、リチウム吸蔵に伴い反射光強度又は反射率が関数的に変化する波長の単色光であることが好ましく、特に多波長であることが好ましい。本開示の評価方法において用いられる可視光線が単波長である場合、600～780nmの範囲にある一の単色光を選択することが好ましく、特に650～780nmの範囲にある一の単色光を選択することが好ましい。上記の範囲内においては、リチウム吸蔵前の電極活物質層とリチウム吸蔵率の高い電極活物質層とを比較した場合に、反射率（あるいは反射光強度）の変化率が大きくなる傾向にあるからである。上記多波長の可視光線としては、白色光であるか、波長が相互に異なる2種の単色光を含んでいることが好ましい。このような

照射光を用いれば、電極活物質層表面の平坦性の程度によって反射光強度や反射率が変動した場合、2種の波長における反射率（あるいは反射光強度）を測定し、その差や比を求めることにより、その変動が評価結果に与える影響を低減できるからである。また、照射光として白色光を用いれば、反射光から色彩値や色差値を測定して評価することも可能になるからである。波長が相互に異なる2種の単色光としては、波長が相互に50 nm以上異なる2種の単色光が好ましく、特に、380 - 500 nmの範囲にある単色光と600 - 780 nmの範囲にある単色光を含んでいることが好ましい。光源としては、白色光の光源としてハロゲンランプ、キセノンランプ等が、単色光の光源としてLED等が挙げられる。なお、本開示において、単色光とは、半値幅が50 nm以下の光を意味するものとする。また、本開示において、例えば600 - 780 nmの範囲にある単色光とは、単色光のスペクトルにおいて最大の強度を示す波長が600 - 780 nmの範囲内にあることを意味するものとする。

10

#### 【0023】

本開示の評価方法においては、外乱光の影響が小さくなるよう、遮光部を備えた環境下で可視光線を含む光を照射し、その反射光からリチウムの吸蔵状態を評価することが好ましい。

#### 【0024】

本開示の評価方法においては、反射光の強度又は反射率を測定し、その結果を利用しても、反射光から色彩値又は色差値を測定し、その結果を利用してもよい。中でも、照射光の揺らぎの影響を受け難い反射率を利用することが好ましい。反射光強度又は反射率を利用する場合、1種又は相互に異なる2種以上の波長における反射光強度又は反射率を利用することが好ましい。相互に異なる複数種の波長における反射光強度又は反射率を利用する場合、例えば、特定の2種の波長における反射光強度又は反射率を測定し、その差や比を利用して評価することができる。

20

#### 【0025】

照射光が白色光を含む場合、反射光を分光し、次いで特定の1の波長における分光反射強度又は分光反射率を測定するか、又は2種の波長における分光反射率を測定し、その差又は比を求めることにより、リチウムの吸蔵状態を評価することが好ましい。上記特定の1の波長としては、600 - 780 nmの範囲にある特定の波長であることが好ましく、特に650 - 780 nmの範囲にある特定の波長であることが好ましい。上記の範囲内においては、リチウム吸蔵前の電極活物質層とリチウム吸蔵率の高い電極活物質層とを比較した場合に、反射率（あるいは反射光強度）の変化率が大きくなる傾向にあるからである。また、上記2種の波長としては、相互に50 nm以上異なる2種の波長であることが好ましく、特に、380 - 500 nmの範囲にある特定の波長と600 - 780 nmの範囲にある特定の波長であることが好ましい。電極活物質層表面の平坦性の程度等によって分光反射強度及び分光反射率は変動するため、リチウムの吸蔵量を正確に測定するには、2種の波長における分光反射率を測定し、その差又は比を求めるが好ましく、特に、2種の波長における分光反射率を測定し、その差を求めることが好ましい。リチウム吸蔵前の電極活物質層とリチウム吸蔵率の高い電極活物質層とを比較した場合に、分光反射率の差及び比の変化率が大きいことから、上記の範囲内にある2種の波長において分光反射率を測定し、その差等を求めることが好ましい。

30

40

#### 【0026】

一方、照射光に含まれる可視光線が単色光である場合、その反射光強度又は反射率を測定することにより、リチウムの吸蔵状態を評価することができる。また、照射光が、波長が相互に異なる2種の単色光を含む場合、それらの反射率を測定し、その差又は比を求めることにより、リチウムの吸蔵状態を評価することができる。かかる場合、照射光としては、波長が相互に50 nm以上異なる2種の単色光が好ましく、特に380 - 500 nmの範囲にある単色光と600 - 780 nmの範囲にある単色光を含んでいることが好ましい。活物質層表面の平坦性の程度によって反射強度及び反射率は変動するため、リチウムの吸蔵量を正確に測定するには、波長が相互に異なる2種の単色光を含む光を照射し、そ

50

これらの反射率を測定し、その差又は比を求めることが好ましく、特に、波長が相互に異なる２種の単色光を含む光を照射し、それらの反射率を測定し、その差を求めることが好ましい。リチウム吸蔵前の電極活物質層とリチウム吸蔵率の高い電極活物質層とを比較した場合に、反射率の差及び比の変化率が大きいことから、上記の波長範囲内にある２種の単色光を含む光を照射し、それらの反射率を測定し、その差等を求めることが好ましい。

#### 【００２７】

本開示においては、以上のようにして得られた特定の波長間での反射率の差等を、予め作成しておいた検量線に当てはめることにより、リチウムの吸蔵率を求めることができる。かかる評価方法を適用すれば、電極活物質にリチウムを吸蔵させながら、リチウムの吸蔵率を追跡することができる。上記検量線は、リチウムの吸蔵率が既知の電極活物質層について、特定の波長間での反射率の差等を同様に測定し、その結果をプロットすることにより作成することができる。上記リチウムの吸蔵率が既知の電極活物質層は、例えば、リチウムイオンを含む有機溶媒中で、電極活物質層を有する電極とリチウム供給源との間に直流電流を通電することにより作成することができる。その際、リチウムの吸蔵率は、通電量と電極の不可逆容量によって決まる。なお、電極活物質の種類、電極活物質層の組成によって、リチウム吸蔵に伴う色相の変化の態様が異なることから、上記検量線は、電極活物質の種類及び電極活物質層の組成毎に作成する必要がある。

10

#### 【００２８】

また、本開示においては、面積の大きい電極活物質層の複数の箇所について、上記のようにして特定の波長間での反射率の差等を測定することにより、電極活物質層面内のリチウム吸蔵量の均一性を評価することができる。

20

#### 【００２９】

本開示の評価方法は、電池又はキャパシタの負極を構成する電極活物質層の評価に適している。より具体的には、リチウムイオンキャパシタ、リチウム空気電池、リチウム硫黄電池の負極を構成する電極活物質層の評価に適しており、特にリチウムイオンキャパシタの負極を構成する電極活物質層の評価に適している。

#### 〔電極の製造方法〕

本開示の電極の製造方法は、本開示の評価方法により電極活物質中のリチウムの吸蔵状態を評価する工程を含むことを特徴とする。電極としては、リチウムイオンの挿入／脱離を利用する電池又はキャパシタの電極であれば特に限定されるものではないが、電池又はキャパシタの負極であることが好ましく、リチウムイオンキャパシタ、リチウム硫黄電池又はリチウム空気電池の負極であることがより好ましく、特にリチウムイオンキャパシタの負極であることが好ましい。

30

#### 【００３０】

本開示の電極の製造方法は、特に限定されるものではないが、（Ａ）電極活物質層を形成する工程、（Ｂ）電極活物質にリチウムを吸蔵させる工程及び（Ｃ）本開示の評価方法により前記電極活物質中のリチウムの吸蔵状態を評価する工程を含んでいることが好ましい。

#### 【００３１】

（Ａ）工程において、電極活物質層は、通常、電極活物質及びバインダー等を含有するスラリーを調製し、これを集電体上に塗布し、乾燥させることにより製造される。

40

電極活物質としては、上記「リチウムの吸蔵状態を評価する方法」において既に例示したものを使用することができる。

#### 【００３２】

上記バインダーとしては、例えば、スチレン－ブタジエンゴム（ＳＢＲ）、ＮＢＲ等のゴム系バインダー；ポリ四フッ化エチレン、ポリフッ化ビニリデンなどのフッ素系樹脂；ポリプロピレン、ポリエチレンの他、特開２００９－２４６１３７号公報に開示されているようなフッ素変性（メタ）アクリル系バインダーが挙げられる。

#### 【００３３】

電極活物質層には、更に、カーボンブラック、黒鉛、気相成長炭素繊維、金属粉末等の

50

導電剤；カルボキシメチルセルロース、そのNa塩又はアンモニウム塩、メチルセルロース、ヒドロキシメチルセルロース、エチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ポリビニルアルコール、酸化スターチ、リン酸化スターチ、又はカゼイン等の増粘剤などが含有されていてもよい。

【0034】

電極活物質層の厚さは、特に限定されるものではないが、通常5～500 $\mu\text{m}$ 、好ましくは10～200 $\mu\text{m}$ 、特に好ましくは10～100 $\mu\text{m}$ である。電極活物質層の密度は、リチウムイオン二次電池に用いる電極である場合、好ましくは1.50～2.00 $\text{g/cc}$ であり、特に好ましくは1.60～1.90 $\text{g/cc}$ であり、リチウムイオンキャパシタに用いる電極である場合、好ましくは0.50～1.50 $\text{g/cc}$ であり、特に好ましくは0.70～1.20 $\text{g/cc}$ である。

10

【0035】

集電体の材質としては、負極集電体として銅、ニッケル、ステンレス等が好ましく、一方、正極集電体として、アルミニウム、ステンレス等が好ましい。集電体の厚みは、正負極どちらであっても、通常5～50 $\mu\text{m}$ である。

【0036】

(B)工程としては、特に限定されるものではなく、公知の方法を採用することができる。その具体的態様は、既に上記「リチウムの吸蔵状態を評価する方法」で示した通りである。

【0037】

(C)工程は、(B)工程と併行して行っても、(B)工程の後に行ってもよい。また、(C)工程は、外乱光の影響が小さくなるよう、遮光部を備えた環境下で行うことが好ましい。

20

【0038】

本開示の製造方法は電池又はキャパシタの負極の製造に好適であるが、本開示の製造方法により製造された負極を備える電池又はキャパシタは、本開示の製造方法により製造された負極を、別途製造された正極と共に外装体内に収納することにより製造することができる。外装体内には、正極及び負極の他、リチウムイオンを生成することができる電解質が供給される。上記電解質は、通常、溶媒中に溶解された電解液の状態で用いられる。リチウムイオンを生成することができる電解質としては、例えば、 $\text{LiClO}_4$ 、 $\text{LiAsF}_6$ 、 $\text{LiBF}_4$ 、 $\text{LiPF}_6$ 、 $\text{LiN}(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{FSO}_2)_2$ 、 $\text{LiC}_4\text{B}_2\text{O}_8$ 等が挙げられる。これらは、単独で又は2種以上を混合して使用することができる。

30

【0039】

電解質を溶解させるための溶媒としては、非プロトン性の有機溶媒が好ましく、具体的には、エチレンカーボネート、プロピレンカーボネート、ブチレンカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、 $\gamma$ -ブチロラクトン、アセトニトリル、ジメトキシエタン、テトラヒドロフラン、ジオキソラン、塩化メチレン、スルホラン等を挙げることができる。また、特開平11-307121号公報に記載の4級イミダゾリウム塩、4級ピリジニウム塩、特開2012-142340号公報に記載の4級ピロリジニウム塩等のイオン液体を使用することもできる。これらの有機溶媒は、単独で又は2種以上を混合して使用することができる。

40

【0040】

電解液中の電解質の濃度は、電解液による内部抵抗を小さくするため、0.1モル/L以上にすることが好ましく、0.5～1.5モル/Lの範囲内にすることがより好ましい。また、電解液には、ビニレンカーボネート、ビニルエチレンカーボネート、1-フルオロエチレンカーボネート、1-(トリフルオロメチル)エチレンカーボネート、無水コハク酸、無水マレイン酸、プロパンスルホン、ジエチルスルホン等の添加剤が含有されていてもよい。

【0041】

50



電解質は、上記のように通常は液状に調製されて使用されるが、ゲル状又は固体状の電解質を使用してもよい。この場合、例えば漏液を抑制することができる。

電解質が電解液の状態で用いられる場合、正極と負極の間には、通常、正極と負極とが物理的に接触しないようにするためにセパレータが設けられる。セパレータとしては、例えば、セルロースレーヨン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリアミド、ポリエステル、ポリイミド等を原料とする不織布又は多孔質フィルムを挙げることができる。

#### 【0042】

以上のようにして製造される電池又はキャパシタの構造としては、例えば、板状の正極と負極とがセパレータを介して各々3層以上積層された積層体が外装フィルム内に封入された積層型セル、带状の正極と負極とがセパレータを介して捲回された積層体が角型又は円筒型の容器に収納された捲回型セル等を挙げることができる。

10

#### 〔リチウムの吸蔵状態を評価するための装置〕

本開示のリチウムの吸蔵状態を評価する方法を用いて、リチウムを吸蔵した電極活物質を含む電極50におけるリチウムの吸蔵状態を評価するための装置1について図1を参照しながら説明する。装置1には、図1に示すように、照射部10と、測定部20と、遮蔽部30と、評価部40と、が主に設けられている。なお、本実施形態では装置1に遮蔽部30が設けられている例に適用して説明するが、遮蔽部30が設けられていなくてもよい。

#### 【0043】

照射部10は、評価対象である電極50に照射光として可視光線を照射するものであり、電極50、測定部20とともに遮蔽部30の内部に配置されるものである。照射部10が電極50に照射する可視光線は、その波長が特に限定されるものではないが、好ましくは、少なくとも600 - 780 nmの波長域に含まれる多波長光または単色光（以下、多波長光および単色光を総称して単に「光」とも表記する。）を有するものであり、より好ましくは、380 - 500 nmの波長域に含まれる光、および、600 - 780 nmの波長域に含まれる光を少なくとも有するものであり、特に好ましくは、380 - 500 nmの波長域に含まれる光、および、650 - 780 nmの波長域に含まれる光を少なくとも有するものである。

20

#### 【0044】

照射部10における可視光線を発生させる光源としては、ハロゲンランプ、キセノンランプなどを用いた白色光を出射する光源を用いてもよいし、LED（発光ダイオード）等を用いた単色光を出射する複数の光源の集合体であってもよい。本実施形態では、パルスキセノンランプを用いた白色光を出射する光源である例に適用して説明する。

30

#### 【0045】

なお、本実施形態において照射部10は、評価部40により可視光線の照射の開始や停止、照射光の強度や波長や照射方向などが制御されないものである例に適用して説明するが、評価部40により可視光線の照射の開始や停止、照射光の強度や波長や照射方向などが制御させるものであってもよく、その形態が特に限定されるものではない。

#### 【0046】

測定部20は、照射光が照射された電極50の反射光を検知し、反射光の反射率（反射光に関する情報に相当）を測定するものである。なお、測定部20は、反射光に関する情報として、上述の反射率の他に、検知した反射光の強度、色彩値または色差値を測定するものであってもよい。本実施形態では、強度、色彩値および色差値と比較して、照射光の揺らぎの影響が小さな反射率を測定するものである例に適用して説明する。

40

#### 【0047】

照射光が白色光の本実施形態では、測定部20には、入射した反射光を分光する分光部（図示せず）が設けられている。分光部における分光手段としては、プリズム、回折格子、光学フィルタ等が挙げられる。本実施形態では、平面回折格子を分光手段とする例に適用して説明する。また、本実施形態では、評価対象となる試料を評価する前に、白色の標準試料に白色光を照射し、その反射光の分光スペクトルを測定部20が記憶した後、評価

50

対象となる試料に白色光を照射し、その反射光の分光スペクトルと予め記憶されている標準試料の分光スペクトルから反射率を測定する例に適用して説明する。

【 0 0 4 8 】

測定部 2 0 は、分光部により分光された光の反射率（以下「分光反射率」とも表記する。）を測定し、分光反射率に関する測定信号を評価部 4 0 に出力するように構成されている。測定信号を出力する構成としては、ケーブルなどを介して測定信号を出力する有線通信による構成や、電波などを用いて測定信号を出力する無線通信による構成や、情報記録媒体を用いて測定信号を出力する構成などを例示することができる。本実施形態では、測定信号を出力する構成が、有線通信である例に適用して説明する。

【 0 0 4 9 】

なお、照射光が一の単色光であるか又は相互に波長が異なる 2 種の単色光からなる場合には、上述の分光部が測定部 2 0 に設けられていなくてもよい。

また、本実施形態において測定部 2 0 は、評価部 4 0 により反射率の測定や、測定信号の出力等を行うタイミングなどが制御されないものである例に適用して説明するが、評価部 4 0 により反射率の測定や、測定信号の出力等を行うタイミングなどが制御させるものであってもよい。

【 0 0 5 0 】

遮蔽部 3 0 は、照射部 1 0、電極 5 0 および測定部 2 0 を内部に収納可能であり、外部から内部へ光の入射を抑制するものである。言い換えると、測定部 2 0 により反射光の反射率を測定する際に、外乱光による影響を抑制するものである。なお、遮蔽部 3 0 としては、公知の材料を用いた種々の構成を有するものを用いることができ、その形態は特に限定されるものではない。

【 0 0 5 1 】

評価部 4 0 は、測定部 2 0 から入力された測定信号に基づき、電極 5 0 におけるリチウムの吸蔵状態の評価を行うものである。評価部 4 0 は、CPU（中央演算処理ユニット）、ROM、RAM、ハードディスク、入出力インタフェース等を有するコンピュータシステムである。ROM 等に記憶されている制御プログラムは、CPU を演算部 4 1 として機能させるものであり、入出力インタフェース等を送受信部 4 2 として機能させるものであり、ハードディスク等を記憶部 4 3 として機能させるものである。

【 0 0 5 2 】

演算部 4 1 は、測定信号に基づき、電極 5 0 におけるリチウムの吸蔵状態を評価する演算を行うものである。本実施形態では、波長が 7 0 0 nm における分光反射率と、波長が 4 4 0 nm における分光反射率との差を求める演算処理、横軸をリチウム吸蔵率、縦軸を分光反射率の差としたグラフにおいてガウシアン分布曲線や 2 次曲線を当てはめて検量線を作成する演算処理、作成した検量線において相関係数（ $R^2$ ）を求める演算処理、作成した検量線に基づいてリチウム吸蔵率を判定する演算処理を行う例に適用して説明する。なお、相関係数（ $R^2$ ）が一定値以上の検量線は、記憶部 4 3 に記憶される。

【 0 0 5 3 】

送受信部 4 2 は、測定部 2 0 から出力された測定信号が入力されるものである。さらに、演算部 4 1 による評価結果を外部に出力する場合や、ディスプレイ等に表示する場合に、評価結果に関する信号を出力するものでもある。また、評価部 4 0 によって照射部 1 0 や測定部 2 0 の制御を行う場合には、制御を行う信号を照射部 1 0 や測定部 2 0 に向けて出力するものである。

【 0 0 5 4 】

記憶部 4 3 は、外部から入力された検量線の情報や、演算部 4 1 において求められた相関係数（ $R^2$ ）の値や、送受信部 4 2 を介して入力された測定信号などを記憶するものである。また、記憶されている情報などが、上述の演算処理において必要となった際に、演算部 4 1 へ出力するものでもある。

〔電極の製造システム〕

本開示の電極の製造システムは、電極活物質にリチウムを吸蔵させるための装置、及び

10

20

30

40

50

本開示の評価装置を備える。

【0055】

電極活物質にリチウムを吸蔵させるための装置としては、特に限定されるものではないが、例えば、リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質層とリチウム供給源を直接接触させる装置、リチウムイオンを含む有機溶媒中で電極活物質層を有する電極とリチウム供給源を電気化学的に接触させる装置、リチウムイオンを含む有機溶媒を使用せずに電極活物質層とリチウム供給源を接触させる装置が挙げられる。その具体的態様は、特開平5-41249号公報の実施例、特開平10-308212号公報、特開2007-214109号公報の実施例、特開2007-280926号公報の実施例、特開2008-124007号公報の実施例、特開2012-49543号公報、特開2012-49544号公報等

10

【0056】

電極活物質にリチウムを吸蔵させる前には、通常、電極活物質等を含有するスラリーを調製し、これを集電体上に塗布し乾燥させることにより、集電体上に電極活物質層が形成された電極前駆体が製造される。集電体上に電極活物質層を形成させる装置としては、公知の装置を採用することができる。

【0057】

外乱光の影響が小さくなるよう、本開示の評価装置が遮光部を備えているか、本開示の評価装置が遮光部を備えた環境下に設置されていることが好ましい。

本開示の製造システムは、電池又はキャパシタの負極の製造に適している。より具体的には、リチウムイオンキャパシタ、リチウム空気電池、リチウム硫黄電池の負極の製造に適しており、特にリチウムイオンキャパシタの負極の製造に適している。

20

【実施例】

【0058】

以下、実施例を挙げて、本開示の実施の形態をさらに具体的に説明する。但し、本開示は、下記実施例に限定されない。なお、以下の実施例は、気温23℃、露点-40℃に制御された空気環境下で行った。

<リチウムキャパシタ用負極の製造及び検量線の作成>

70mm×382mm、厚さ15μm、表面粗さRa=0.1μmの銅箔からなる集電体の両面に、52mm×52mm、厚さ40μmの負極活物質層を集電体の長手方向に沿ってそれぞれ6カ所形成することにより負極前駆体を作製した。この際、集電体の長辺の一方の端部を長手方向に沿って延びる幅18mmの負極活物質層未形成部と、集電体の短辺の両端部及び負極活物質層間を短手方向に延びる幅10mmの負極活物質層未形成部を設けた。なお、負極活物質層は、黒鉛（活物質）、カルボキシメチルセルロース、アセチレンブラック（導電剤）、バインダー及び分散剤（質量比で88：3：5：3：1）を含む。

30

【0059】

リチウム供給源として50mm×50mm、厚さ1mmのリチウム金属板6枚を、厚さ2mmの銅板上に相互に12mmの間隔をあけて貼り付けることによりリチウム極を作製した。このようなリチウム極を2個作製した。

40

【0060】

厚さ1mmのポリプロピレン製不織布からなるセパレータを介して、上記負極活物質層と上記リチウム金属板が対向するよう、上記負極前駆体の両面に上記リチウム極を配置した。この際、対向する負極活物質層とリチウム金属板の中心位置がほぼ一致するよう、負極前駆体とリチウム極を配置した。

【0061】

上記負極前駆体、セパレータ及びリチウム極を樹脂製の保持部で挟んで固定し、液面センサーを備えたSUS製のチャンバー内に挿入した。この際、上記集電体の長辺の端部に設けた幅18mmの負極活物質層未形成部がチャンバー内の上側に位置するよう負極前駆体等を挿入した。その後、スクロール型ドライ真空ポンプを使用し、チャンバーの下部に

50

接続されている樹脂製の減圧用配管を介してチャンバー内を減圧した。チャンバー内を 100 Pa まで減圧した後、減圧用配管に備えられたコックを閉じた。

【0062】

次いで、チャンバーの下部に接続されている樹脂製の電解液供給用配管を介して、1.2 M の LiPF<sub>6</sub> と 3 質量 % の 1 - フルオロエチレンカーボネートを含む溶液（溶媒はエチレンカーボネート / エチルメチルカーボネート / ジメチルカーボネート = 3 / 4 / 3（体積比）の混合溶媒）を供給した。上記 LiPF<sub>6</sub> 等を含む溶液の液面が活物質層の上端より 5 mm 上に達したところで、電解液供給用配管に備えられたコックを閉じた。

【0063】

次いで、チャンバーの上部に備えられたリークバルブを開き、チャンバー内圧を大気圧まで戻した。次いで、チャンバーの上部に備えられたドープ用電極を介して、上記負極前駆体及びリチウム極を、電流・電圧モニター付き直流電源に接続し、300 mA の電流を通電した。通電時間は、不可逆容量を考慮した上、黒鉛の理論容量（372 mAh / g）に対してリチウムの吸蔵率が 40 % になる時間を設定した。なお、不可逆容量は、リチウムを吸蔵させた後の負極の放電容量を測定することにより予め見積もっていた。以上のようにしてリチウムを吸蔵させたリチウムイオンキャパシタ用負極を製造した。

10

【0064】

得られた負極をチャンバー内から取り出し、分光測色計（コニカミノルタ株式会社製 CM-700d）を用いて、負極活物質層の 10 カ所について分光反射率を測定した。なお、この際、負極活物質層に照射した光は、パルスキセノンランプを光源とする白色光である。また、上記分光測色計を負極活物質層に接触させて測定を行っているため、外乱光の影響は極めて小さい。

20

【0065】

通電時間を長く設定したこと以外は上記と同様にして、リチウムの吸蔵率が 70 %、80 %、85 %、90 %、95 %、100 % の負極をそれぞれ製造し、分光反射率を測定した。

【0066】

測定したデータをパーソナルコンピュータに送信し、リチウムの吸蔵率が異なる 7 種の負極について、波長 700 nm における分光反射率と波長 440 nm における分光反射率の差（波長 700 nm における分光反射率 - 波長 440 nm における分光反射率、以下「分光反射率差」ともいう。）を求めた。横軸をリチウム吸蔵率、縦軸を分光反射率差として、得られた結果をプロットし、ガウシアン分布曲線を当てはめたものを検量線とした。ガウシアン分布曲線を当てはめた際の相関係数（ $R^2$ ）は、0.989 であった。また、リチウムの吸蔵率が 85 % の負極において、5 カ所の測定ポイントをそれぞれ 5 回測定（合計 25 回測定）したときの分光反射率差のばらつき（標準偏差）は、0.12 であった。

30

【0067】

一方、横軸をリチウム吸蔵率、縦軸を波長 700 nm における分光反射率として、得られた結果をプロットし、ガウシアン分布曲線を当てはめたところ、相関係数（ $R^2$ ）は、0.615 であった。また、リチウムの吸蔵率が 85 % の負極において、5 カ所の測定ポイントをそれぞれ 5 回測定（合計 25 回測定）したときの波長 700 nm における分光反射率のばらつき（標準偏差）は、0.22 であった。なお、横軸をリチウム吸蔵率、縦軸を波長 700 nm における分光反射率として、リチウム吸蔵率が 40 %、70 %、80 %、85 % の場合の結果をプロットし、2 次曲線当てはめたところ、相関係数（ $R^2$ ）は、0.948 であった。

40

< リチウム吸蔵率の評価 >

上記 < リチウムキャパシタ用負極の製造及び検量線の作成 > において、負極前駆体及びリチウム極を外短絡させたこと以外は上記と同様にして、リチウムを吸蔵させたリチウムイオンキャパシタ用負極を製造し、分光反射率を測定し、分光反射率差を求めた。また、同条件にて別途製造した負極について放電容量を測定した。得られた分光反射率差を上

50

記検量線に当てはめることにより求められるリチウム吸蔵率は、放電容量より求められるリチウム吸蔵率と一致していた。

【図 1】

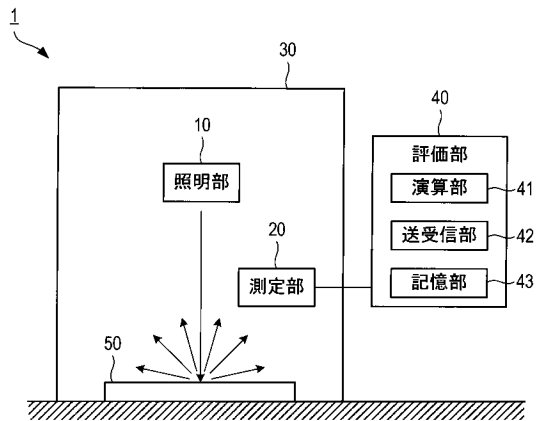


FIG. 1

## 【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2016/052006
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> G01N21/27(2006.01)i, H01G11/06(2013.01)i, H01G11/86(2013.01)i, H01G13/00(2013.01)i, H01M4/1393(2010.01)i  According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) G01N21/00-G01N21/958, H01M4/00-H01M4/62  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 1996-2016 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2016 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2016  Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) JSTPlus (JDreamIII)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2014-116251 A (Hitachi Maxell, Ltd.), 26 June 2014 (26.06.2014), paragraphs [0017], [0085] (Family: none)	1-14
P, X	JP 2015-95320 A (Hitachi Maxell, Ltd.), 18 May 2015 (18.05.2015), paragraphs [0039] to [0040], [0054] (Family: none)	1-14
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> 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 07 April 2016 (07.04.16)		Date of mailing of the international search report 19 April 2016 (19.04.16)
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer  Telephone No.

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 6 / 0 5 2 0 0 6									
<b>A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))</b> Int.Cl. G01N21/27(2006.01)i, H01G11/06(2013.01)i, H01G11/86(2013.01)i, H01G13/00(2013.01)i, H01M4/1393(2010.01)i											
<b>B. 調査を行った分野</b> 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. G01N21/00-G01N21/958, H01M 4/00-H01M 4/62											
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 <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>1971-2016年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2016年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2016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	1971-2016年	日本国実用新案登録公報	1996-2016年	日本国登録実用新案公報	1994-2016年
日本国実用新案公報	1922-1996年										
日本国公開実用新案公報	1971-2016年										
日本国実用新案登録公報	1996-2016年										
日本国登録実用新案公報	1994-2016年										
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語) JSTPlus (JDreamIII)											
<b>C. 関連すると認められる文献</b>											
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									
X	JP 2014-116251 A (日立マクセル株式会社) 2014.06.26, [0017], [0085] (ファミリーなし)	1-14									
P, X	JP 2015-95320 A (日立マクセル株式会社) 2015.05.18, [0039] - [0040], [0054] (ファミリーなし)	1-14									
<input 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。											
<table border="0"> <tr> <td> <b>* 引用文献のカテゴリー</b>            「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの            「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの            「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)            「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献            「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願         </td> <td>           の日の後に公表された文献            「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの            「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの            「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの            「&amp;」 同一パテントファミリー文献         </td> </tr> </table>				<b>* 引用文献のカテゴリー</b> 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献						
<b>* 引用文献のカテゴリー</b> 「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	の日の後に公表された文献 「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」 同一パテントファミリー文献										
国際調査を完了した日 07.04.2016		国際調査報告の発送日 19.04.2016									
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 比嘉 翔一 電話番号 03-3581-1101 内線 3292	2W 4005								

## フロントページの続き

(51) Int. Cl. F I テーマコード ( 参考 )  
H 0 1 G 11/32 (2013.01) H 0 1 G 11/32

(81) 指定国 AP ( BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW ), EA ( AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM ), EP ( 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 ), OA ( BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG ), 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, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

F ターム ( 参考 ) 5H050 AA19 BA16 BA17 CA02 CA05 CA11 CB07 CB08 CB11 DA03  
GA28 HA00

( 注 ) この公表は、国際事務局 ( W I P O ) により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願 ( 日本語実用新案登録出願 ) の国際公開の効果は、特許法第 1 8 4 条の 1 0 第 1 項 ( 実用新案法第 4 8 条の 1 3 第 2 項 ) により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。