

(12) JAPANESE UNEXAMINED PATENT APPLICATION PUBLICATION (A)

(19) Japan Patent Office (JP)

(11) Patent Application Publication Number

Japanese Patent Publication No. 2004-303590

(P2004-303590A)

(43) Publication Date: October 28, 2004 (2004.10.28)

(51) Int.Cl. ⁷	FI	Theme Code (for reference)	
H01 M 10/40	HO1M 10/40	Z	5H01M
H01 M 2/02	HO IM 10/40	B	5H022
H01 M 2/26	HO IM 2/02	K	5H029
	HO IM 2/26	A	

Request for Examination: Unrequested, Number of Claims: 6 (8 pages Total)

(21) Application Number: Japanese Patent Application No. 2003-95834 (P2003-95834)

(22) Application Filing Date: March 31, 2003 (2003.3.31)

(71) Applicant 000001889

SANYO Electric Co., Ltd.

2-5-5 Keihan Hondori, Moriguchi City, Osaka

Prefecture

(74) Agent 100093470

Fujio Oda, Patent Attorney

(74) Agent 100119747

Tomoyasu Nomi, Patent Attorney

(72) Inventor: Yasunobu Kodama

SANYO Electric Co., Ltd., 2-5-5 Keihan-Hondori,

Moriguchi City, Osaka Prefecture

F-Term (Reference) 5H011 AA03 AA13 CC02 DD13

5H022 AA09 BB02 BB11 CC02 CC30

5H029 AJ03 AK03 AM02 AM07 AM16

BJ03 BJ04 BJ14 CJ03 CJ07

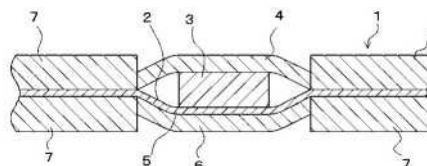
DJ02 DJ05 EJ04 EJ12 HJ12

(54) [TITLE OF INVENTION] LAMINATED BATTERY AND METHOD FOR MANUFACTURING THE SAME

(57) [ABSTRACT]

[Problem] To provide a laminated battery with improved liquid retention and gas release properties, and improved battery capacity.

[Solution] A positive electrode 1 is formed by coating a positive electrode mixture 7 containing a positive electrode active material that absorbs and releases lithium ions onto a metal core foil 5, and a negative electrode is formed by coating a negative electrode mixture containing a negative electrode active material that absorbs and releases lithium ions onto a metal negative electrode core foil. Both electrodes are provided with positive electrode tabs 3 and negative electrode tabs, respectively, and a flattened wound electrode body is formed by crushing a stacked wound electrode body with a separator therebetween. In the laminated battery in which the flat-wound electrode body is enclosed with a laminating sheet, an uncoated portion 2 of the positive electrode mixture 7 are provided on both the front and back sides near the center of the longitudinal direction of the positive electrode, a positive electrode tab 3 is welded to one side of the uncoated portion 2 and covered with insulating tape 4, and the opposite side of the uncoated portion 2 is covered with protective tape 6 to prevent irregularities occurring inside the flattened wound electrode.



[Selected Drawing] Figure 3

[CLAIMS]

[Claim 1]

A laminated battery, comprising: at a minimum, a positive electrode having a positive electrode tab and coated with a positive electrode mixture containing a positive electrode active material that absorbs and releases lithium ions; a negative electrode provided on the metal coil foil and coated with a negative electrode mixture containing a negative electrode active material that absorbs and release lithium ions; and a flattened wound electrode body formed by crushing—after laminating and winding—the positive and negative electrodes insulated from each other by the separator placed therebetween, wherein: in the laminated battery having a laminated outer casing, there is provided a positive electrode mixture uncoated portion on both the front and back sides near the center of the longitudinal direction of the positive electrode, a positive electrode tab is welded to one side of the positive electrode mixture uncoated portion and the exposed surface is covered with insulating tape, and the other side of the positive electrode mixture uncoated portion is covered with insulating tape.

[Claim 2]

The laminated battery according to Claim 1, wherein the positive electrode is cut in the positive electrode mixture coating portion so that the core foil surface at the winding start and end is not exposed.

[Claim 3]

The laminated battery according to Claim 1, wherein the laminated battery is a three-side sealed battery.

[Claim 4]

The laminated battery according to Claim 1, wherein the laminated battery has a polymer electrolyte.

[Claim 5]

The laminated battery according to Claim 1, wherein the negative electrode tab is located at the winding start of the negative electrode.

[Claim 6]

A method for manufacturing a laminated battery, comprising steps (1) to (4):

(1) Winding a positive electrode and a negative electrode with a separator in between to form a wound electrode body;

(2) Crushing and shaping the above-mentioned wound electrode body to form a flattened wound electrode body;

(3) Laminating the wound electrode body and injecting the electrolyte; and

(4) Pressing the laminated wound electrode body.

[DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION]

[0001]

[TECHNICAL FIELD]

The present invention relates to a laminated battery, and more particularly to a laminated battery using flattened wound electrodes, which improves the liquid retention and gas release properties of the electrolyte, and eliminates defects such as insulation failure between the positive and negative electrodes, and as a result, increasing the battery's reliability.

[0002]

[PRIOR ART]

The rapid proliferation of portable electronic devices increased the stringency of the specifications required for the batteries used therein year by year. In particular, there is a growing demand for smaller, thinner batteries with high capacity, excellent cycle, and stable performance. In the field of secondary batteries, lithium-40 non-aqueous electrolyte secondary batteries, which have a higher energy density compared to other batteries, are gaining attention. There is significant growth in the share of these lithium-40 non-aqueous electrolyte secondary batteries in the secondary battery market.

[0003]

This lithium non-aqueous electrolyte secondary battery has a negative electrode, which is made of a long, narrow sheet of copper foil or the like, having a negative electrode core (current collector) coated on both sides with a negative electrode mixture containing a negative electrode active material that absorbs and releases lithium ions, and a positive electrode, which is made of a long, narrow sheet of aluminum foil or the like, having a positive electrode core coated on both sides with a positive electrode mixture containing a positive electrode active material that absorbs and releases lithium ions, with a separator made of microporous polypropylene film or the like placed therebetween. The negative and positive electrodes are insulated from each other by a separator and wound into a cylindrical or elliptical shape. In the case of a rectangular battery, the wound electrode body is further flattened, and negative and positive electrode tabs are connected to predetermined parts of the negative and positive electrodes, respectively. The outside of the battery is then covered with an outer casing.

[0004]

In conventional non-aqueous electrolyte secondary batteries, the non-aqueous electrolyte battery is manufactured by inserting a wound electrode into a cylindrical outer casing and then injecting a non-aqueous electrolyte. As shown in FIG. 4, this wound electrode body has an uncoated portion 42 where the metal core foil is exposed at the winding start and end of the positive or negative electrode 41. A tab 43, typically made of aluminum or nickel, is welded to this uncoated portion 42, and this tab portion is covered with insulating tape 44. The tab 43 is then connected to the electrode terminals of the battery. (See Patent Document 1).

[0005]

Further, in the aforementioned non-aqueous electrolyte secondary battery, a metal casing is mainly used to provide strength and serve as the outer casing. In recent years, laminated batteries using laminated film have come into production for purposes such as weight reduction and increased battery capacity per unit volume. Therefore, to understand the present invention, the conventional manufacturing process of laminated batteries 50 will be described below with reference to FIG. 5.

[0006]

First, a flattened wound electrode body 11 is manufactured in the same manner as in the conventional example described above. In this case, the flattened wound electrode body 11 has a negative electrode tab 12 welded to the exposed metal core foil portion of the negative electrode, and a positive electrode tab 13 welded to the exposed metal core foil portion of the positive electrode. Next, as shown in FIG. 5(A), a well-known laminated film 54 of a predetermined size, such as an aluminum laminated film 20, is folded in half, and the flattened wound electrode body 51 is placed inside. If necessary, thin sealing material 55, 55' is placed on both sides of the outlet portions of the negative electrode tab 52 and positive electrode tab 53. Then, the top portion (tab side) of the laminated film 54 is welded using a bar-shaped mold (not shown) to form the top sealing portion 56. In this process, an unsealed portion 56' is provided on the outer edge of the top sealing portion 56 to prevent the melted sealant layer from spilling out from the laminated film 54 and adhering to the mold.

[0007]

Next, as shown in FIG. 5(B), a bar-shaped mold is used to weld one side of the laminated film 54 to form the first side sealing portion 57. In this case as well, the outer edge of the first side sealing portion 57 is provided with an unwelded portion 57' to prevent the melted sealant layer from overflowing from the laminated film and adhering to the mold. Next, the liquid electrolyte is injected from the opposite side portion 58. As a result, this liquid electrolyte penetrates sufficiently into the interior of the flattened wound electrode body 51. Subsequently, as shown in FIG. 5(C), the opposite side of the laminated film 54 is temporarily welded using a bar-shaped mold to form a temporary sealing portion 60. Next, after pre-charging and aging, the opposite side of the laminated film 54 is welded with a bar-shaped mold to form the second side sealing portion 61, as shown in FIG. 5(D). Then, the unnecessary portion of the laminated film is cut off to obtain a conventional laminated battery 50 as shown in FIG. 5 (E).

[0008]

Thus, even in conventional laminated batteries, the tabs of each electrode are placed on the core foil at the winding start or winding end of each electrode, and the surface of these tabs is covered with insulating tape, similar to the electrodes shown in FIG. 4, to prevent short circuits with the corresponding electrodes. Further, especially when a negative electrode active material is present opposite the positive electrode core foil, short circuits are likely to occur due to conductive powder detached from the negative electrode active material. Therefore, the exposed portion of the positive electrode core that is not coated with positive electrode active material may be covered with insulating tape (see Patent Document 2).

[0009]

Therefore, a positive electrode, in which a positive electrode mixture containing a positive electrode active material that absorbs and releases lithium ions is coated on a metal core foil, and a negative electrode, in which a negative electrode mixture containing a negative electrode active material that absorbs and releases lithium ions is coated on a metal core foil, are wound together in an insulated manner via two separators made of microporous polypropylene film, and then crushed to produce a flattened wound electrode body. Further, due to the tabs on each electrode and the presence of insulating tape on the surface of these tabs, irregularities are created on the inner surface of the flattened wound electrode body. Therefore, this area is prone to stress, and bubbles tended to accumulate in this stressed area when the electrolyte was injected into the laminated battery and when the charging gas was generated.

[0010]

This phenomenon will be explained in more detail using the drawings. FIG. 6 is a cross-sectional view of the flattened wound electrode body 70 as observed from the direction of the tab portion. A positive electrode tab 72 is welded to one surface of a metal positive electrode core foil 71, and insulating tape 73, a negative electrode 74, and a separator 75 are sequentially laminated on that surface to form a flattened wound electrode body 70. The surface of this flattened wound electrode body 70 is flattened in order to be crushed during the manufacturing of the flattened wound electrode body. However, because of the presence of the positive electrode tab 72 and the insulating tape 73, stress is applied inward, causing it to deform into

the shape shown in FIG. 6. In this case, stress is applied to the separator near the edge 76 of the positive electrode tab 72 and to the negative electrode, and when a non-aqueous electrolyte is injected or when gas is generated due to charging, gas tends to accumulate in the stressed area.

[0011]

On the other hand, it is known that as the positive electrode of a cylindrical non-aqueous electrolyte secondary battery, as shown in FIG. 7, a positive electrode mixture 84 is applied to the surface of a long metal foil 81, and then a strip-shaped mixture peeling portion 82 is formed in the middle of the long positive electrode. Further, a positive electrode tab (lead plate) 83 is connected to the peeling portion, and insulating tape 85 is applied to cover the positive electrode tab 83, the surface of the peeling portion 82, and the surrounding positive electrode mixture 84 (see Patent Document 3).

The positive electrode has positive electrode tabs partially provided in the width direction of the electrode plate, and because the thickness of the upper and lower parts differs in the width direction, insulating tape is attached to the peeling portion of the mixture to prevent misalignment of the positive electrode plate when forming the wound electrode body.

[0012]

However, since the non-aqueous electrolyte secondary battery shown in FIG. 7 is used in the form of a cylindrical wound electrode, problems that may occur when using it as a flattened wound electrode have not been indicated. That is, since cylindrical wound electrodes are not crushed, the problems caused by stress resulting from crushing, as seen in flattened wound electrodes, do not inherently occur.

[0013]

[Patent Document 1]

Japanese Patent Publication No. 2000-277155 (Paragraphs [0002] to [0006])

[Patent Document 2]

Japanese Patent Publication No. 2002-42881 (Paragraphs [0002] to [0013])

[Patent Document 3]

Japanese Patent Publication No. H8-7877 (Paragraphs [0002] to [0008])

[0014]

[PROBLEM TO BE SOLVED BY THE INVENTION]

Thus, since laminated batteries use flattened wound electrode bodies manufactured by crushing, if tabs are present at the tips of the electrodes, the portion immediately outside the electrode where the tabs are located is the laminated casing and has a flat surface. Therefore, the thickness of the tabs causes wrinkles to form on the inside. Therefore, because of the presence of the positive electrode tab and insulating tape, the flattened wound electrode body has irregularities on its inner surface, which causes the problem of bubbles easily accumulating in these irregular areas when electrolyte is injected into the laminated battery and when charging gas is generated.

[0015]

As a result of various studies to solve the above-mentioned problem, the inventors have found that in a laminated battery using a flattened wound electrode body, if the positive electrode tab is provided on the exposed core foil portion located in the middle of the positive electrode, then even if the positive electrode tab and the insulating tape insulating the positive electrode tab are present, no unevenness will occur in their thickness. Further, it was discovered that by pressurizing the flattened wound electrode body again after injecting the electrolyte, the air bubbles accumulated inside the flattened wound electrode body can be effectively removed to increase the battery capacity, and thus, the present invention was conceived.

[0016]

That is, the present invention aims to provide a laminated battery having a flattened wound electrode body, which increases the battery capacity by improving the electrolyte content compared to conventional laminate batteries, and a method for manufacturing the same.

[0017]

[MEANS FOR SOLVING THE PROBLEM]

The object of the present invention can be achieved by the following configuration. According to the first technical aspect of the present invention, there is provided a laminated battery, comprising: at a minimum, a positive electrode having a positive electrode tab and coated with a positive electrode mixture containing a positive electrode active material that absorbs and releases lithium ions; a negative electrode provided on the metal coil foil and coated with a negative electrode mixture containing a negative electrode active material that absorbs and release lithium ions; and a flattened wound electrode body formed by crushing - after laminating and winding - the positive and negative electrodes insulated from each other by the separator placed therebetween; wherein: in the laminated battery having a laminated outer casing, there is provided a positive electrode mixture uncoated portion on both the front and back sides near the center of the longitudinal direction of the positive electrode, a positive electrode tab is welded to one side of the positive electrode mixture uncoated portion and the exposed surface is covered with insulating tape, and the other side of the positive electrode mixture uncoated portion is covered with insulating tape.

[0018]

According to this embodiment, even if a positive electrode tab and insulating tape insulating the positive electrode tab are present, no irregularities will occur inside the flattened wound electrode, making it less likely for air bubbles to accumulate inside, and as a result, increasing the battery capacity. That is, if the tab is located in the center of the electrode, the tab will be sandwiched between the two electrodes. The electrode is coated with an active material mixture on both sides, but the mixture is removed from the tab portion, so a space equal to the thickness of the mixture on both sides is secured in the tab portion. Therefore, because the tabs and insulating tape fit into that space, there are no irregularities, and no unevenness occurs inside the flattened wound electrode body.

10 [0019]

According to this embodiment, it is preferable that the positive electrode is cut in the positive electrode mixture coating portion such that the core foil surface at the winding start and end is not exposed. This configuration eliminates the need to expose the core foil surface at the winding start and end, increasing the amount of active material mixture that can be applied, and further increasing the battery capacity. That is, conventionally, because there was a tab at the positive electrode end, the active material mixture in that area had to be removed. However, in the present invention, since the positive electrode tab is located in the center, there is no need to remove the active material mixture from the tip.

[0020]

Further, according to this technical aspect, it is preferable that the laminated battery is a three-sided sealed battery. This configuration makes it easier to manufacture laminated batteries. Further, according to this embodiment, it is preferable that the laminated battery has a polymer electrolyte. This configuration gels or solidifies the electrolyte, reducing the likelihood of leakage. Further, in this embodiment, it is preferable that the negative electrode tab is located at the winding start of the negative electrode. According to this embodiment, a conventionally used negative electrode can be used.

20 [0021]

Further, according to a second technical aspect of the present invention, there is provided a method for manufacturing a laminated battery, comprising steps (1) to (4):

- (1) Winding a positive electrode and a negative electrode with a separator in between to form a wound electrode body;
- (2) Crushing and shaping the above wound electrode body to form a flattened wound electrode body;
- (3) Laminating the wound electrode body and injecting the electrolyte; and
- (4) Pressing the laminated wound electrode body.

Employing this method effectively removes air bubbles accumulated within the flattened wound electrode, thereby increasing battery capacity.

[0022]

30 [EMBODIMENTS]

Next, preferred embodiments of the present invention will be described. The following embodiments illustrate laminate batteries and methods for manufacturing the same that embody the technical concept of the present invention, and the present invention is not limited thereto.

[0023]

[EXAMPLES]

Hereinafter, embodiments of the present invention will be described in detail with reference to the drawings. FIG. 1(A) is a plan view of the positive electrode before winding, and FIG. 1(B) is a bottom view. FIG. 2 is a plan view of the negative electrode before winding, and FIG. 3 is an enlarged cross-sectional view of the main portion of the positive electrode after winding.

[0024]

40 In the manufacturing of the laminated battery of the present invention, a positive electrode is formed by coating a positive electrode mixture containing a positive electrode active material that intercepts and releases lithium ions onto a metal core foil such as aluminum, and a negative electrode is formed by coating a negative electrode mixture containing a negative electrode active material that intercepts and releases lithium ions onto a metal core foil such as copper. These two electrodes are insulated by two separators and wound together. The laminated winding is pressure-molded to form a flattened wound electrode body.

[0025]

For the positive electrode, for example, lithium cobalt oxide (LiCoO_2) is used as the active material, and a paste-like mixture of carbon as the conductive agent and polytetrafluoroethylene resin as the binder is used. For the negative electrode, for example, a paste-like mixture of a carbon material such as graphite is used as the active material and polytetrafluoroethylene resin is used as the binder. These mixtures are applied to both sides of each core foil substrate, dried, rolled, and cut to the specified dimensions. Further, microporous films such as polyethylene and polypropylene are used as separators.

[0026]

50 As shown in FIG. 1(A), before winding, the positive electrode 1 has an uncoated portion 2 of the positive electrode mixture 7 on both sides near the

center of its longitudinal direction, and the positive electrode tab 3 is welded to the uncoated portion 2. Further, insulating tape 4, similar to an adhesive tape that serves both as reinforcement and insulation, is attached to the positive electrode tab 3, and the uncoated portion 2 of the positive electrode core foil 5. Further, protective tape 6 is applied to the portion on the back side where the positive electrode active material is not provided, covering the surface of the positive electrode core foil so that it is not exposed. The tape is applied so as to cover only the uncoated portion 2 of the positive electrode mixture 7 and not overlap the layers of the adjacent positive electrode mixture 7. The uncoated portion 2 can be created by either adopting the method of leaving an uncoated portion 30 when applying the mixture to the substrate, or applying the mixture to the entire substrate, then peeling off the mixture after pressing. Further, both tips of the positive electrode 1 are cut at the portion coated with the positive electrode mixture 7, and the active material mixture is applied all the way to the tip of the positive electrode 1.

[0027]

FIG. 2 is a plan view of the negative electrode 21 before winding, in which a negative electrode tab 22 is welded to the winding start tip 21a of the negative electrode tab, and the welded portion of the negative electrode tab is covered with insulating tape 23. The opposing surface of the negative electrode tab welded portion, via the negative electrode core foil 24, is a negative electrode active material layer coated with a negative electrode active material mixture.

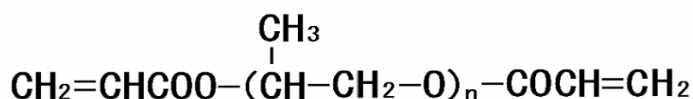
[0028]

The positive electrode 1 and the negative electrode 21 are wound together via a separator (not shown), and the laminated winding is pressure-molded to form a flattened wound electrode body similar to that of the conventional example. In this state, the tab 3 portion of the positive electrode 1 has the mixture removed, so a space equal to the thickness of both sides of the mixture is secured. Thus, as shown in FIG. 3, when the tab or insulating tape is placed there, the thickness of the tab 3 portion of the positive electrode 1 becomes approximately the same as that of the positive electrode 1. Unlike conventional examples, no irregularities occur within the wound electrode body, and no areas are subjected to particular stress. The wound electrode body formed in this manner was inserted into an aluminum laminating sheet that had been folded in half to form the bottom. First, the top sealing portion and one side of the side sealing portion were welded together to form a laminate outer casing with the other side of the side sealing portion open.

[0029]

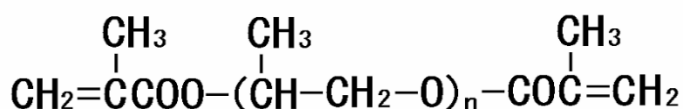
Next, an organic electrolyte solution was injected into the laminate outer casing through the unsealed portion of the side sealing portion. The electrolytic solution consists of a polymer electrolyte-forming material, an electrolyte solution prepared by dissolving lithium phosphate hexafluoride at a ratio of 1 mol/l in a mixed solvent mixed in predetermined proportions, and polypropylene glycol diacrylate.

[Chemical Formula 1]



Alternatively, polypropylene glycol dimethacrylate

[Chemical Formula 2]



(However, n=3)

Solution was prepared by mixing these two materials above in a weight ratio of 12:1, to which 5,000 ppm of t-hexyl peroxyvalate was added as a polymerization initiator. This solution was then injected into the inside of a laminate packaging material containing a wound electrode body.

[0030]

In addition to LiPF₆, LiBF₄, LiN(SO₂CF₃)₂, LiN(SO₂C₂F₅)₂, and mixtures thereof can be used as electrolytes. Next, the other side of the laminated casing, into which the electrolyte solution had been injected, was temporarily welded. Then, it was left to heat-cur in a 60°C oven for 3 hours, followed by pre-charging and aging.

[0031]

Then, one side (the remaining side) of the temporarily welded laminate was welded with a mold to form the final sealing portion. The unnecessary portion of the spare chamber was cut and removed, and the side sealing portion was folded to obtain a lithium laminated battery.

[0032]

For both an embodiment of the laminated battery of the present invention and a comparative example of a conventional laminated battery in which the positive electrode tab is provided at the winding start tip of the metal core foil, batteries with a size of $2.6 \times 80 \times 120$ mm and a nominal capacity of 2,200 mAh (nominal voltage of 3.6 V) were manufactured, and charge-discharge tests were performed under the conditions described below.

(1) Charging: initially, the battery was charged with a constant current of 2,200 mA, and when the battery voltage rose to 4.2 V, the charging method was switched from constant current to constant voltage. In constant voltage charging, the current was gradually reduced as charging progressed to maintain the battery voltage at 4.2 V, and charging was terminated when the current reached 440 mA.

(2) Discharge: the battery was discharged with a constant current of 2,200 mA, and the discharge process was terminated when the battery voltage dropped to 3 V.

The measurement results are summarized in Table 1.

[0033]

[Table 1]

	Battery Capacity
Example 1	2,312 mAh
Comparative Example 1	2,232 mAh

[0034]

The table above shows that the embodiment of the present invention yielded a larger volume compared to the comparative example.

[0035]

[EFFECTS OF THE INVENTION]

As described above, the laminated battery of the present invention has the advantage of suppressing the unevenness of the flattened wound electrode body and improving liquid retention and gas release due to the positive electrode tab being positioned near the center of the positive electrode in the longitudinal direction, and as a result, increasing battery capacity compared to conventional laminated batteries.

[BRIEF EXPLANATION OF THE DRAWING]

Figure 1 shows the positive electrode of the present invention before winding; Figure 1(A) is a plan view, and Figure 1(B) is a bottom view.

Figure 2 is a plan view of the negative electrode of the present invention before winding.

Figure 3 is an enlarged cross-sectional view of the main part of the positive electrode after winding pressure molding according to the present invention.

Figure 4 is a plan view of a conventional electrode before winding.

Figure 5 shows a conventional method for manufacturing laminated batteries.

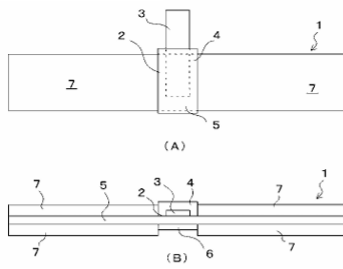
Figure 6 is a cross-sectional view of the positive electrode tab portion of a conventional flattened wound electrode body after crushing.

Figure 7 is a plan view of a conventional electrode before winding, which has a tab in the center in the longitudinal direction.

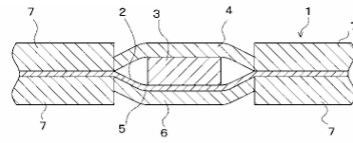
[EXPLANATION OF SYMBOLS]

- 1 positive electrode
- 2 uncoated portion
- 3 positive electrode tab
- 4 insulating tape
- 5 positive electrode core foil
- 6 protective tape
- 7 positive electrode mixture
- 21 negative electrode
- 21a negative electrode winding start tip
- 22 negative electrode tab
- 23 insulating tape
- 24 negative electrode core foil

[Figure 1]



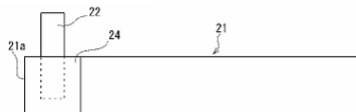
[Figure 3]



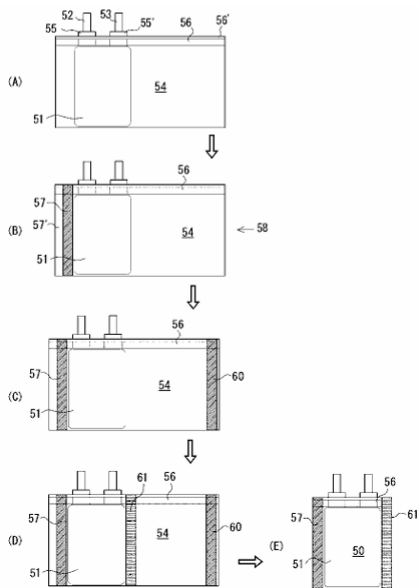
[Figure 4]



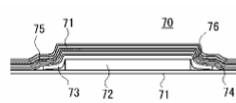
[Figure 2]



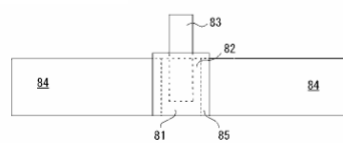
[Figure 5]



[Figure 6]



[Figure 7]



(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2004-303590

(P2004-303590A)

(43) 公開日 平成16年10月28日(2004. 10. 28)

(51) Int.Cl.⁷

H01M 10/40

H01M 2/02

H01M 2/26

F I

H01M 10/40

H01M 10/40

H01M 2/02

H01M 2/26

テーマコード (参考)

5H011

5H022

5H029

審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願2003-95834 (P2003-95834)

(22) 出願日 平成15年3月31日 (2003. 3. 31)

(71) 出願人 000001889

三洋電機株式会社

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号

(74) 代理人 100093470

弁理士 小田 富士雄

(74) 代理人 100119747

弁理士 能美 知康

(72) 発明者 児玉 康伸

大阪府守口市京阪本通2丁目5番5号 三

洋電機株式会社内

Fターム(参考) 5H011 AA03 AA13 CC02 DD13

5H022 AA09 BB02 BB11 CC02 CC30

5H029 AJ03 AK03 AM02 AM07 AM16

BJ03 BJ04 BJ14 CJ03 CJ07

DJ02 DJ05 EJ04 EJ12 HJ12

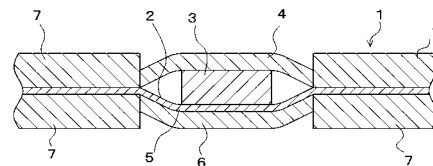
(54) 【発明の名称】 ラミネート電池及びその製造方法

(57) 【要約】

【課題】ラミネート電池において、含液性、ガス抜き性が改善され、電池容量が向上したラミネート電池を提供すること。

【解決手段】金属製芯体箔5上にリチウムイオンを吸蔵放出する正極活物質を含む正極合剤7を塗布した正極1と、金属製負極芯体箔上にリチウムイオンを吸蔵放出する負極活物質を含む負極合剤を塗布した負極とを、それぞれ正極タブ3、負極タブを設け、セパレータを介して積層巻回した巻回電極体を押し潰して偏平巻回電極体を形成し、この偏平巻回電極体をラミネートシートで外装してなるラミネート電池において、該正極の長手方向の中央部付近の表裏に正極合剤7の不塗布部分2を設け、該不塗布部分2の片面に正極タブ3を溶接して絶縁テープ4で被覆するとともに、該不塗布部分2の反対側の面を保護テープ6で被覆し、偏平巻回電極内部に凹凸が生じないようにする。

【選択図】 図3



【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも、金属製芯体箔上に正極タブが設けられていると共にリチウムイオンを吸蔵放出する正極活物質を含む正極合剤が塗布された正極と、金属製芯体箔上に負極タブが設けられていると共にリチウムイオンを吸蔵放出する負極活物質を含む負極合剤が塗布された負極との間にセパレータを配置し、正極及び負極をセパレータにより互いに絶縁した状態で積層巻回した後、押し潰して成形した偏平巻回電極体と、ラミネート外装を有するラミネート電池において、該正極の長手方向の中央部付近の表裏に正極合剤不塗布部分を設け、該正極合剤不塗布部分の一方の面に正極タブを溶着して露出面を絶縁テープで被覆するとともに、該正極合剤不塗布部分の他方の面を絶縁テープで被覆したことを特徴とするラミネート電池。 10

【請求項 2】

前記正極は、巻き始め及び巻き終わりの芯体箔表面が露出しないように正極合剤塗布部において切断されていることを特徴とする請求項 1 に記載のラミネート電池。

【請求項 3】

前記ラミネート電池が三方封止式の電池であることを特徴とする請求項 1 に記載のラミネート電池。

【請求項 4】

前記ラミネート電池がポリマー電解質を有していることを特徴とする請求項 1 に記載のラミネート電池。 20

【請求項 5】

前記負極タブが前記負極の巻き始めに位置していることを特徴とする請求項 1 に記載のラミネート電池。

【請求項 6】

下記 (1) ~ (4) の工程から成ることを特徴とするラミネート電池の製造方法。

(1) 正極と負極とをセパレータを介して巻回し、巻回電極体を形成する工程、(2) 前記巻回電極体を押し潰し成形して偏平巻回電極体を形成する工程、

(3) 前記巻回電極体をラミネート被覆すると共に電解液を注入する工程、

(4) 前記ラミネート被覆された巻回電極体を押圧する工程。

【発明の詳細な説明】 30

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、ラミネート電池に関し、特に偏平巻回電極を使用したラミネート電池において、電解液の含液性やガス抜け性を良くし、また正負極間の絶縁不良等不具合をなくしてその信頼性を高めたラミネート電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

携帯型の電子機器の急速な普及に伴い、それに使用される電池への要求仕様は、年々厳しくなり、特に小型・薄型化され、高容量でサイクル特性が優れ、性能の安定したものが要求されている。そして、二次電池分野では他の電池に比べて高エネルギー密度であるリチウム非水電解質二次電池が注目され、このリチウム非水電解質二次電池の占める割合は二次電池市場において大きな伸びを示している。 40

【0003】

このリチウム非水電解質二次電池は、細長いシート状の銅箔等からなる負極芯体（集電体）の両面にリチウムイオンを吸蔵放出する負極活物質を含む負極合剤を塗布した負極と、細長いシート状のアルミニウム箔等からなる正極芯体の両面にリチウムイオンを吸蔵・放出する正極活物質を含む正極合剤を塗布した正極との間に、微多孔性ポリプロピレンフィルム等からなるセパレータを配置し、負極及び正極をセパレータにより互いに絶縁した状態で円柱状又は楕円形状に巻回した後、角型電池の場合は更に巻回電極体を押し潰して偏平状に形成し、負極及び正極の各所定部分にそれぞれ負極タブ及び正極タブを接続し、そ 50

の外側を外装で被覆することにより製造されている。

【0004】

従来の非水電解質二次電池においては、巻回電極体を円筒形の外装缶内に挿入した後、非水電解液を注入することにより非水電解質電池が製造されているが、この巻回電極体は、図4に示す如く、正極ないしは負極41の巻き始めか巻き終りの端に金属製芯体箔が露出した合剤の未塗布部42を設け、この未塗布部42にアルミニウム、ニッケルで代表されるタブ43を溶接し、このタブ部分を絶縁テープ44で被覆すると共に、このタブ43を電池の電極端子に接続する構造をとることが慣用的に行われている。（特許文献1参照）。

【0005】

ところで、上述の非水電解質二次電池においては、外装とし強度を与えるために主として金属製の外装缶が使用されているが、近年に至り重量低減、単位体積当たりの電池容量の増大等の目的でラミネートフィルムを使用したラミネート電池が製造されるようになってきた。そこで、本発明の理解のために、以下において図5を用いて従来から慣用的に行われているラミネート電池50の製造工程について説明する。

【0006】

まず最初に、前述の従来例と同様にして偏平巻回電極体11を製造する。その際、この偏平巻回電極体11は、負極の金属製芯体箔露出部に負極タブ12を溶接しておくと共に、正極の金属製芯体箔露出部にも正極タブ13を溶接しておく。続いて、図5（A）に示したように、所定の大きさの周知のラミネートフィルム54、例えばアルミラミネートフィルムを2つ折りし、この内部に前記偏平巻回電極体51を配置し、必要に応じて負極タブ52及び正極タブ53の導出部に両面に薄いシール材55、55'を配置した後、このラミネートフィルム54のトップ部（タブ側）をバー状の金型（図示せず）を用いて溶着し、トップ封止部56を形成する。なお、この際、トップ封止部56の外縁には、ラミネートフィルム54から溶けたシーラント層がはみ出して金型に付着しないようにするため、未溶着部56'が設けられている。

【0007】

次に、図5（B）に示したように、バー状の金型を用いて、ラミネートフィルム54のサイド部の一方側を溶着して第1のサイド封止部57を形成する。この場合も第1のサイド封止部57の外縁はラミネートフィルムから溶けたシーラント層がはみ出して金型に付着しないようにするため、未溶着部57'が設けられている。次いで、液状電解質をもう一方のサイド部側58から注入する。そうすると、この液状電解質は、偏平巻回電極体51の内部へ十分に浸透する。その後、図5（C）に示したように、ラミネートフィルム54の他方側をバー型の金型により仮溶着して仮封止部60を形成する。次いで、予備充電及びエージングした後、図5（D）に示したように、ラミネートフィルム54の他方側をバー型の金型で溶着して第2のサイド封止部61を形成する。そして、前記ラミネートフィルムの不要部を切断して、図5（E）に示したような従来例のラミネート電池50を得る。

【0008】

このように、従来例のラミネート電池においても、各電極のタブは各電極の巻き初めか巻き終わりの芯体箔に配置され、このタブの表面は対となる電極との間で短絡を起こさないようにするため、図4に示した電極と同様に、絶縁テープにより被覆されている。加えて、特に正極芯体箔の対面に負極活物質が存在すると、負極活物質から離脱した導電性の粉体により短絡しやすいことから、正極活物質が塗布されていない正極芯体露出部が絶縁テープで被覆されている場合もある（特許文献2参照）。

【0009】

したがって、金属製芯体箔上にリチウムイオンを吸蔵・放出する正極活物質を含む正極合剤が塗布された正極と、金属製芯体箔上にリチウムイオンを吸蔵放出する負極活物質を含む負極合剤が塗布された負極とを、微多孔性ポリプロピレンフィルムからなる2枚のセパレータを介して互いに絶縁した状態で巻回した後、押し潰して偏平巻回電極体を製造する

10

20

30

40

50

と、各電極のタブのため及びこのタブの表面に設けられた絶縁テープの存在のために、偏平巻回電極体の内面へ向かって凹凸ができてしまうので、この部分に応力がかかり、ラミネート電池内への電解液の注入時及び充電ガス発生時の気泡がこの応力がかかっている部分にたまりやすいという問題点が存在していた。

【0010】

この現象を図面を用いて更に詳細に説明する。図6は、偏平巻回電極体70をタブ部方向から見た横断面図である。金属製正極芯体箔71の一方の表面には正極タブ72が溶接されており、更にその表面に絶縁テープ73、負極74、セパレータ75と順次積層されて偏平状巻回電極体70が形成されている、この偏平巻回電極体70の表面は偏平巻回電極体を製造するときに押し潰すために平らになっているが、正極タブ72及び絶縁テープ73が存在しているため、内部に向かって応力が加えられ、図6に示したような形に変形している。この場合、正極タブ72の角部76近傍のセパレータや負極に応力がかかり、非水電解液を注入した際や充電によりガスが発生した際にはこの応力がかかっている部分にガスがたまりやすくなるわけである。

10

【0011】

一方、円筒形の非水電解質二次電池の正極として、図7に示すように長尺状の金属箔81の表面に正極合剤84を塗着した後、長尺状の正極の中間に帯状の合剤剥離部分82を形成し、この剥離部分に正極タブ（リード板）83を接続し、正極タブ83と合剤剥離部分82の表面と周囲の正極合剤84にまたがって絶縁テープ85を貼り付けて被覆していたものが知られている（特許文献3参照）。

20

この正極は、正極タブが極板の幅方向に部分的に設けられているので、幅方向で上下部の厚みが異なるため、巻回電極体を形成した場合に正極板の位置ずれが発生するのを防ぐ目的で合剤の剥離部分に絶縁テープを貼り付けたものを用いている。

【0012】

しかしながら、この図7に記載されている非水電解質二次電池は、円筒状巻回電極体の形で使用するものであるから、偏平巻回電極体として使用する際の問題点については何も示唆されてはいない。すなわち、円筒状巻回電極体は、押し潰されることがないため、偏平巻回電極体のように押し潰されることにより生じる応力に起因する問題点は本質的に生じないからである。

【0013】

30

【特許文献1】

特開2000-277155号公報（段落[0002]～[0006]）

【特許文献2】

特開2002-42881号公報（段落[0002]～[0013]）

【特許文献3】

特開平8-7877号公報（段落[0002]～[0008]）

【0014】

【発明が解決しようとする課題】

このように、偏平巻回電極体を使用するラミネート電池には、押し潰して偏平巻回電極体を製造するため、タブが電極の端部に存在している場合、タブが存在する電極のすぐ外側はラミネート外装体であり、フラットな面となっているので、タブの厚みの出っ張りは内側にしわ寄せが来る。したがって、正極タブ及び絶縁テープが存在しているため、偏平巻回電極体は内面へ向かって凹凸ができてしまうので、ラミネート電池内への電解液の注入時及び充電ガス発生時の気泡が、この凹凸状態となった部分にたまりやすいという問題点が存在していた。

40

【0015】

本発明者は、上述の問題点を解決すべく種々検討を重ねた結果、偏平巻回電極体を使用するラミネート電池において、正極タブを正極の中間部分に設けられた芯体箔露出部に設けると、正極タブ及びこの正極タブを絶縁する絶縁テープが存在してもその厚みに凹凸が生じないようにでき、しかも、電解液注入後に再度偏平巻回電極体を加圧すると、偏平巻回

50

電極体内に溜まっていた気泡を有効に除去することができるので、結果として電池の容量を大きくすることができることを見出し、本発明を完成するに至ったのである。

【0016】

すなわち、本発明は、偏平巻回電極体を有するラミネート電池において、従来のものよりも電解液の含液性を向上させて電池容量の増大を計ったラミネート電池及び該ラミネート電池の製造方法を提供することを目的とする。

【0017】

【課題を解決するための手段】

本発明の目的は、以下の構成により達成することができる。本発明の第1の態様によれば、少なくとも、金属製芯体箔上に正極タブが設けられていると共にリチウムイオンを吸蔵放出する正極活物質を含む正極合剤が塗布された正極と、金属製芯体箔上に負極タブが設けられていると共にリチウムイオンを吸蔵放出する負極活物質を含む負極合剤が塗布された負極との間にセパレータを配置し、正極及び負極をセパレータにより互いに絶縁した状態で積層巻回した後、押し潰して成形した偏平巻回電極体と、ラミネート外装を有するラミネート電池において、該正極の長手方向の中央部付近の表裏に正極合剤不塗布部分を設け、該正極合剤不塗布部分の一方の面に正極タブを溶着して露出面を絶縁テープで被覆するとともに、該正極合剤不塗布部分の他方の面を絶縁テープで被覆したラミネート電池が提供される。

10

【0018】

係る態様によれば、正極タブ及びこの正極タブを絶縁する絶縁テープが存在しても偏平巻回電極体内に凹凸が生じないようにできるので、内部に気泡が溜まりにくくなり、結果として電池の容量が増加する。すなわち、タブが電極の中央に存在している場合、タブは電極と電極との間に挟まれる。電極には活物質合剤が両面に塗布されているが、タブの部分は合剤が除去されているから、タブの領域は合剤両面分の厚みだけ空間が確保される。したがって、そこにタブや絶縁テープが収まることによって出っ張りが無くなるので、偏平巻回電極体の内部に凹凸が生じないようになる。

20

【0019】

係る態様によれば、前記正極は、巻き始め及び巻き終わりの芯体箔表面が露出しないように正極合剤塗布部において切断されていることが好ましい。このような構成であれば、巻き初め及び巻き終わりの芯体箔表面を露出させる必要はないので、その分だけ活物質合剤の塗布量を増加させることができ、電池の容量をより増加させることができる。すなわち、従来は正極端部にタブがあったためにその部分の活物質合剤を除去していたが、本発明では、正極タブが中央部にあるので端部の活物質合剤を除去する必要はなくなる。

30

【0020】

また、係る態様によれば、前記ラミネート電池が三方封止式の電池であることが好ましい。このような構成であればラミネート電池の製造が容易になる。さらに、係る態様によれば、前記ラミネート電池がポリマー電解質を有するものとするのが好ましい。かかる構成であれば、電解質がゲル化ないしは固体化しているので漏液することが少なくなる。更に、係る態様においては、前記負極タブが前記負極の巻き始めに位置していることが好ましい。係る態様によれば、従来から普通に使用されている負極を使用することができる。

40

【0021】

また、本発明の第2の態様によれば、下記(1)～(4)の工程から成るラミネート電池の製造方法が提供される。

(1) 正極と負極とをセパレータを介して巻回し、巻回電極体を形成する工程、(2) 前記巻回電極体を押し潰し成形して偏平巻回電極体を形成する工程、

(3) 前記巻回電極体をラミネート被覆すると共に電解液を注入する工程

(4) 前記ラミネート被覆された巻回電極体を押圧する工程。

このような方法を採用すれば、偏平巻回電極体内に溜まっていた気泡を有効に除去することができるので、結果として電池の容量を大きくすることができる。

【0022】

50

【発明の実施の形態】

次に本発明の好ましい態様について説明するが、以下に示す実施例は本発明の技術思想を具体化するためのラミネート電池及びその製造方法を例示するものであって、本発明はこれらに限定されるものではない。

【0023】**【実施例】**

以下、図面を参照して本発明の実施例を詳細に説明する。図1(A)は巻き回前の正極の平面図及び図1(B)は底面図であり、図2は巻き回前の負極の平面図、図3は巻き回後の正極の要部拡大断面図である。

【0024】

本発明のラミネート電池の製造においては、アルミニウム等の金属製芯体箔上にリチウムイオンを吸蔵放出する正極活物質を含む正極合剤を塗布した正極と、銅等の金属製芯体箔上にリチウムイオンを吸蔵放出する負極活物質を含む負極合剤を塗布した負極とを2枚のセパレータにより絶縁して巻き取り、積層巻回されたものを加圧成型して偏平な巻回電極体とする。

【0025】

正極には、例えばコバルト酸リチウム LiCoO_2 を活物質とし、導電剤として炭素、結着剤としてポリ四フッ化エチレン樹脂を練り合わせペースト状とした合剤が、負極には例えば黒鉛等炭素材料を活物質とし、結着剤としてポリ四フッ化エチレン樹脂を練り合わせペースト状とした合剤が用いられている。これらの合剤はそれぞれの芯体箔基材の両面に塗布、乾燥、圧延し、所定の寸法に切断される。また、セパレータにはポリエチレン、ポリプロピレン等の微多孔性フィルムが使用される。

【0026】

図1(A)に示したように、巻き回前の正極1には、その正極1の長手方向の中央部付近に両面に正極合剤7の不塗布部分2が設けられ、この不塗布部分2に正極タブ3が溶接されている。さらに、正極タブ3には、補強と絶縁を兼ねた粘着テープのような絶縁テープ4が不塗布部分2の正極芯体箔5に貼り付けられ、また、その背面の正極活物質が設けられていない部分にも保護テープ6が施こされ、正極芯体箔表面が露出しないように被覆されている。これらのテープは、正極合剤7の不塗布部分2のみを覆い、隣接する正極合剤7層にはかからないように施される。なお、不塗布部分2は基材への合剤塗布時に不塗布部分を設けるか、基材に合剤を全面塗布しプレス加工後合剤を剥離して設ける方法があり、何れの方法を採用してもよい。そして、正極1の両端は、正極合剤7の塗布された部分で切断されており、正極1の端部まで活物質合剤が塗布されている。

【0027】

図2は、巻き回前の負極21の平面図で、その巻き始め端部21aに負極タブ22が溶接され、負極タブ溶接部の上は絶縁テープ23で覆われている。負極タブ溶接部の負極芯体箔24を介した対向面は、負極活物質合剤が塗布された負極活物質層となっている。

【0028】

正極1及び負極21を図示しないセパレータを介して重ねて巻き取り、積層巻回されたものを加圧成型して従来例のものと同様な偏平巻回電極体とする。この状態における正極1のタブ3の部分は、合剤が除去されているので合剤両面分の厚みだけ空間が確保されている。したがって、図3に示したように、そこにタブや絶縁テープが収まることによって、正極1のタブ3の部分の厚みは正極1と略同じになるので、従来例のように巻回電極体内に凹凸が生じることはなく、特に応力が加わっている部分が生じることがない。このようにして成型した巻回電極体をアルミラミネートシートを二つ折り状に折り曲げて底部を形成したものに挿入し、まず最初にトップ封止部側とサイド封止部の一方側を溶着して、サイド封止部の他方側が開口しているラミネート外装体を形成した。

【0029】

次いで、サイド封止部の未溶着部分からラミネート外装体内に有機電解液を注液した。電解液は、ポリマー電解質形成材料からなり、所定の割合に混合した混合溶媒に6フッ化リ

10

20

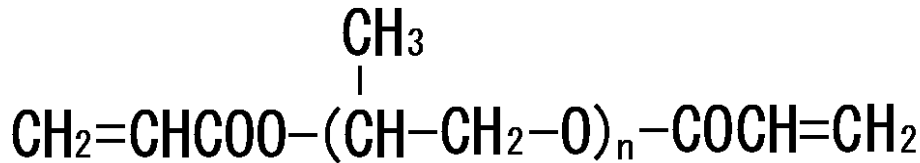
30

40

50

ン酸リチウムを 1 m o l / l の割合で溶解した電解液とポリプロピレングリコールジアクリレート

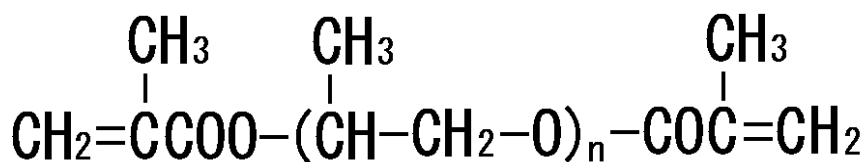
【化 1】



10

又は、ポリプロピレングリコールジメタクリレート

【化 2】



20

(ただし、 $n = 3$)

を、重量比で 1 2 : 1 の割合で混合した溶液に重合開始剤として t -ヘキシルパーオキシピバレートを 5 0 0 0 p p m 添加して形成し、巻回電極体を収納したラミネート包材の内部に注液した。

【0 0 3 0】

なお、電解質としては LiPF_6 のほかに LiBF_4 、 $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{C}_2\text{F}_5)_2$ 及びこれらを混合したものをを用いることができる。次いで、電解液を注液したラミネート外装体の他方のサイド側を仮溶着した後、6 0 °C オープン中に 3 時間静置して熱硬化させ、予備充電及びエージングを行った。

30

【0 0 3 1】

結いで、仮溶着されていたラミネートのサイド部の片側(残り側)を、金型で溶着して本封止部を形成した。予備室の不要部分を切断除去し、サイド封止部を折り曲げてリチウムラミネート電池を得た。

【0 0 3 2】

本発明のラミネート電池に係る実施例と、正極タブを金属製芯体箔の巻き初めに設けた従来のラミネート電池に係る比較例とについて、それぞれ電池サイズ 2 . 6 × 8 0 × 1 2 0 mm、公称容量 2 2 0 0 m A h (公称電圧 3 . 6 V) の電池を作製し、以下に述べる条件下で充放電試験を行った。

(1) 充電：初期には 2 2 0 0 m A の定電流で充電し、電池電圧が 4 . 2 V まで上昇したときに定電流充電から定電圧充電に切換えた。定電圧充電では電池電圧を 4 . 2 V に保つように、充電の進行に伴って電流値を低下させていき、電流値が 4 4 0 m A になったときに充電終了とした。

40

(2) 放電：2 2 0 0 m A の定電流で放電させ、電池電圧が 3 V まで低下したときに放電終了とした。

その測定結果を結果を表 1 にまとめて示す。

【0 0 3 3】

【表 1】

	電 池 容 量
実施例 1	2 3 1 2 m A h
比較例 1	2 2 3 2 m A h

【 0 0 3 4 】

上記の表により、本発明の実施例の方が比較例に比べ大きい容量が得られたことが分かる 10
。

【 0 0 3 5 】

【発明の効果】

以上述べたように、本発明のラミネート電池によれば、正極タブが正極の長さ方向中央部付近に配置されていることにより、偏平巻回電極体の凹凸が抑制され、含液性及びガス抜け性が向上し、結果として従来のラミネート電池より電池容量が増大するという効果が得られる。

【図面の簡単な説明】

【図 1】本発明の巻回前の正極を示し、図 1（A）は平面図、図 1（B）は底面図である 20
。

【図 2】本発明の巻回前の負極の平面図である。

【図 3】本発明の巻回加圧成形後の正極の要部拡大断面図

【図 4】従来の巻回される前の電極の平面図である。

【図 5】従来のラミネート電池の製造方法を示す図である。

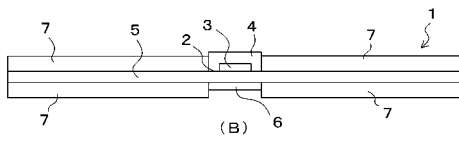
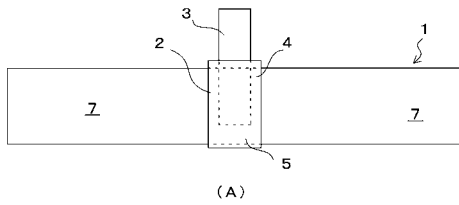
【図 6】従来の偏平巻回電極体の押し潰し成形後の正極タブ部の断面図である。

【図 7】従来の長さ方向中央部にタブを有する巻回される前の電極の平面図である。

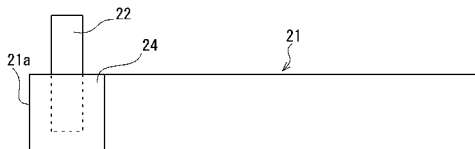
【符号の説明】

- 1 正極
- 2 不塗布部分
- 3 正極タブ
- 4 絶縁テープ
- 5 正極芯体箔
- 6 保護テープ
- 7 正極合剤
- 2 1 負極
- 2 1 a 負極巻き始め端部
- 2 2 負極タブ
- 2 3 絶縁テープ
- 2 4 負極芯体箔

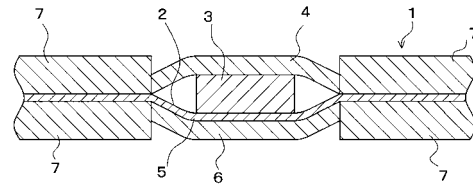
【図 1】



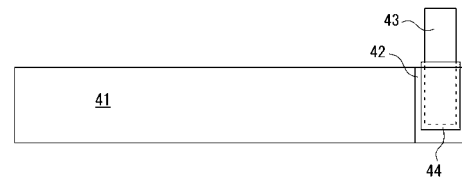
【図 2】



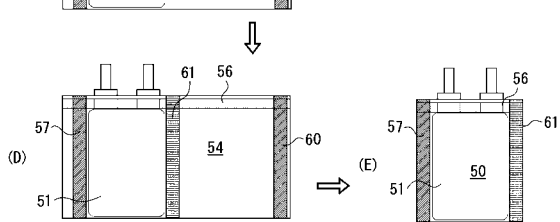
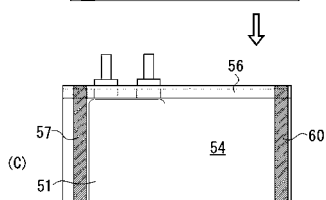
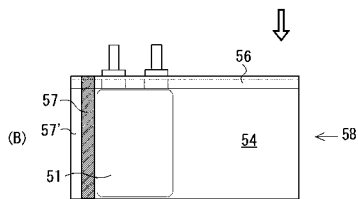
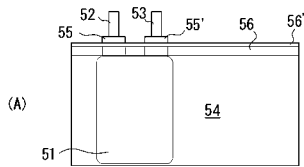
【図 3】



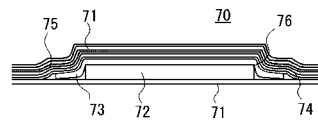
【図 4】



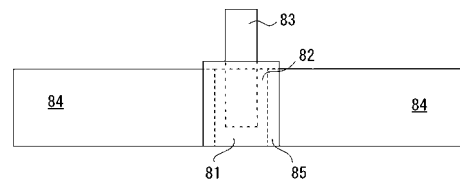
【図 5】



【図 6】



【図 7】



TRANSLATION CERTIFICATION

Date: May 2, 2026

To whom it may concern:

I, SHAUN WU, a translator fluent in the JAPANESE and ENGLISH languages, on behalf of Morningside, do solemnly and sincerely declare that the following is, to the best of my knowledge and belief, a true and correct translation of the document(s) listed below in a form that best reflects the intention and meaning of the original text.

I hereby declare that all statements made herein of my own knowledge are true and that all statements made on information and belief are believed to be true; and further that these statements were made with the knowledge that willful false statements and the like so made are punishable by fine or imprisonment, or both, under Section 1001 of Title 18 of the United States Code.

The document is designated as:

- JP2004303590A (Kodama)



Signature

SHAUN WU

Print