

公告本

申請日期：89.3.27

案號：89105571

類別：IICIM 4/36

(以上各欄由本局填註)

發明專利說明書

477084

一、 發明名稱	中文	製造適合於鋰離子電池中使用之複合物件之濕壓濕塗佈方法
	英文	WET-ON-WET COATING PROCESS FOR THE PRODUCTION OF COMPOSITE ARTICLES WHICH ARE SUITABLE FOR USE IN LITHIUM ION BATTERIES
二、 發明人	姓名 (中文)	1. 史帝芬 包爾 2. 柏恩德 布朗斯特 3. 海莫特 莫瓦德 4. 鳶永 武
	姓名 (英文)	1. STEPHAN BAUER 2. BERND BRONSTERT 3. HELMUT MOHWALD 4. TAKESHI TOBINAGA
	國籍	1. 德國 2. 德國 3. 德國 4. 日本
	住、居所	1. 德國歐斯特卡佩恩市海利-奇威特街40號 2. 德國歐特斯泰德市札德街35號 3. 德國安威爾市馬克瓦德街16號 4. 日本國三重縣四日市市櫻台2-5-554
三、 申請人	姓名 (名稱) (中文)	1. 德商巴地斯顏料化工廠
	姓名 (名稱) (英文)	1. BASF AKTIENGESELLSCHAFT
	國籍	1. 德國
	住、居所 (事務所)	1. 德國來恩河勞域沙芬市
	代表人 姓名 (中文)	1. 安德瑞斯·拜伯拜奇 2. 維拉·史塔克
	代表人 姓名 (英文)	1. ANDREAS BIEBERBACH 2. VERA STARK



本案已向

國(地區)申請專利

德國 DE

申請日期

1999/04/09 19916042.2

案號

主張優先權

有

有關微生物已寄存於

寄存日期

寄存號碼

無



五、發明說明 (1)

本發明關於一種用於製造複合物件之特殊所謂的濕壓濕塗層法，其中該複合物件適合，特別是例如用於含鋰離子之電解質的電化學電池中，而且關於依此方式所製得的複合物件，例如在或作為鋰離子或其他電池、感應器、電致變色窗、顯示器、電容器和離子導電膜上的用途。

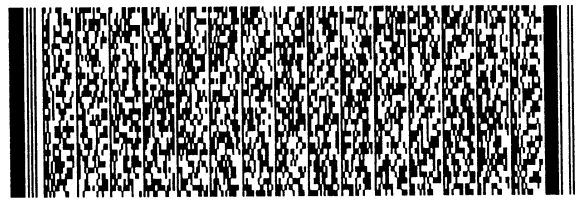
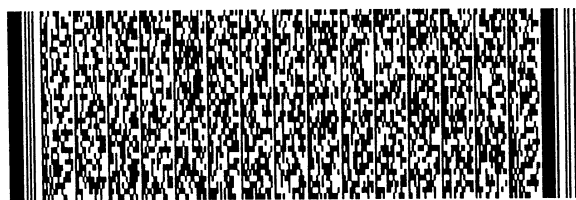
電化學，特別是充電式電池是一般，例如從"Ullmann的工業化學百科全書"，第5版，卷A3，VCH Verlagsgesellschaft mbH，Weinheim，1985年，343-397頁可得知物品。

在這些電池中，因為鋰電池和鋰離子電池具有高比能量儲存密度，故其是特別重要的，特別是作為二級電池。

此類電池的負極包含，特別如上面"Ullmann"的一節中所述的鋰化錳、鈷、鈳或鎳的混合氧化物，如以化學計量上最簡單的例子所描述的 LiMn_2O_4 、 LiCoO_2 、 LiV_2O_5 或 LiNiO_2 。

這些混合氧化物以自該晶格除去鋰離子的方式與一可讓鋰離子插入其晶格的化合物，例如石墨進行可逆反應，其中金屬離子如錳、鈷或鎳離子被氧化。此反應可被用在電化學電池中，藉由電解質將插入鋰離子的化合物，即正極物質與含鋰的混合氧化物即負極物質分開，使鋰離子經過該電解質從混合氧化物遷移至正極物質中(充電過程)而達到電流儲存的目的是。

適合可逆儲存鋰離子的化合物通常以黏著劑將其固定在收集器電極中。



五、發明說明 (2)

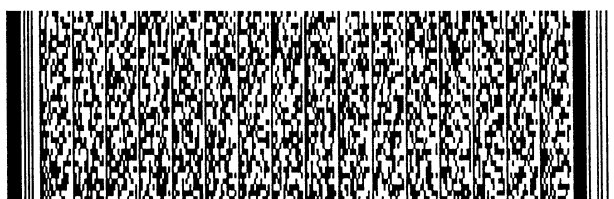
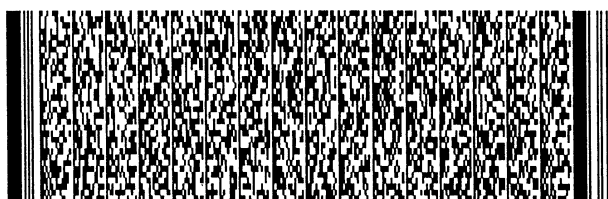
在該電池的充電過程中，電子流經一外加電壓源和鋰陽離子流過電解質流入正極物質中。電池使用期間，鋰陽離子流過該電解質，然而電子經過一工作電阻由正極物質流入負極物質。

為了避免電化學電池內發生短路，可隔絕電流但可讓鋰陽離子穿過的絕緣層被置於被置於兩電極間。這可能是一種所謂的固體電解質或一種慣用分離器。

如，例如US 5,540,741或US 5,478,668中所描述的，迄今此類適合裝在鋰離子電池之複合物件的製造實際上只能以慣用澆鑄技術，即先將一複合物件層以所需厚度澆鑄在基材上並乾燥之來進行。此第一層完全乾燥後，然後塗佈另一層複合物件，在使其乾燥等。接著，必須將其中所使用的塑化劑萃取出來，其為另一個工作步驟。

一種機械上安定之複合物件的製法被描述在本發明申請者的W0 99/19917中，其中該複合物件特別適合用於鋰離子電池中。根據本申請案，若希望進行電暈處理和接著例如以熱壓層方式使其彼此接觸，則先將複合物件各層澆鑄，例如在一臨時支撐薄膜上並乾燥之。再者，W0 98/44576和DE-A 197 13 046描述一種用於製造鋰離子電池模製物之壓擠方法，其包括混合和熔化擠壓混合物的步驟，藉此步驟可獲得複合物件各層。

本發明的主要目的是提供另一種製造適合鋰離子電池使用且機械上安定之複合物件的方法，該方法與先前技術上已知的方法較簡單。特別是額外的步驟如塑化劑的萃取和



五、發明說明 (3)

複雜的裝置在此類方法上是不需要的。

我們已發現此和其他目的可藉根據本發明方法達到的。因此，本發明關於一種製造複合物件的方法，其包括

A) 至少一基材薄膜層A和塗佈其上之

B) 至少一分離器層B，其包含一種含有混合物II之混合物I，該混合物II係由下列化合物所組成的

a) 從1至95重量%之固體III，較佳為基礎固體III，其主要粒徑係從5毫微米至20微米，和

b) 從5至99重量%之聚合物組成物IV，該組成物可由下列化合物聚合而獲得的

b1) 以組成物IV為基準，從5至100重量%之下列化合物之縮合產物V

α) 至少一種化合物VI，其可與羧酸或磺酸或其衍生物或其中兩種或多種化合物之混合物反應，與

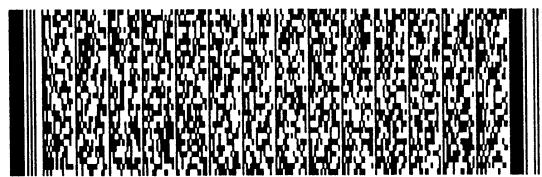
β) 每莫耳化合物VI中至少一莫耳羧酸或磺酸VII或其衍生物或其中兩種或多種化合物之混合物，其具有至少一個可與自由基聚合的官能基，

和

b2) 以組成物IV為基準，從0至95重量%之其他化合物VIII，該化合物的平均分子量(數目)至少為5000而且在其主或側鏈上具有聚醚部份，

其中混合物II在混合物I中所佔的重量比例為從1至100重量%，

或



五、發明說明 (4)

一種氯乙烯、丙烯腈、氟化亞乙烯、氯乙烯與氟化亞乙烯、氯乙烯與丙烯腈、氟化亞乙烯與六氟丙烯、氟化亞乙烯與六氟丙烯和選自包含氯乙烯、四氯乙烯和三氯乙烯之一員的聚合物或共聚物，

而且該層不包含任何可傳導電子、電化學活性化合物，和

C) 至少一負極層C，其包含一種可傳導電子、電化學活性化合物，該化合物可在充電過程中釋放出鋰離子，或

D) 至少一正極層D，其包含一種可傳導電子、電化學活性化合物，該化合物可在充電過程中接受鋰離子，或

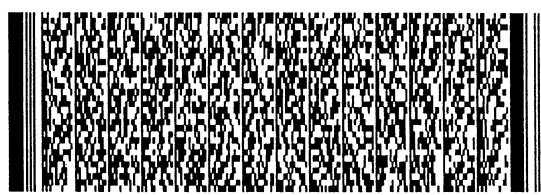
至少一負極層C和至少一正極層D，

其中藉由濕壓濕塗層法使至少一分離器層B和至少一負極層C或至少一正極層D，或至少一負極層C和至少一正極層D彼此接觸。

首先將根據本發明所產生的複合物件各層詳細描述於下，接著討論根據本發明方法之加工步驟。

基材薄膜A

原則上，基材薄膜A可為任何具有足夠機械安定度以作為複合物件其他各層之基材的薄膜。特別提及下列化合物：以聚醯胺或聚酯為基材的臨時支撐薄膜，例如尼龍或PET；塗有塑膠的紙張；聚烯烴薄膜；玻璃基材，特別是塗有ITO的玻璃基材；電池中所使用以微孔聚乙烯為基材的薄膜，一般作為慣用分離器，並提供具有所謂斷電機制的電池，其中該斷電機制係由於其熔化行為。此類薄膜被



五、發明說明 (5)

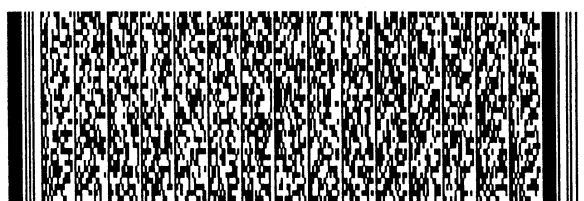
特別描述於EP-A 0 715 364、EP-A 0 798 791和DE-A 198 50 826。但是，最好他們是包含至少一種金屬的薄膜。此包括塗有金屬或經金屬蒸鍍之基材薄膜或金屬箔片本身，其中一般被用作收集器電極的金屬箔片因此是後者中較佳的。分別提及特佳具體實例是Cu箔片作為收集器負極和Al箔片作為收集器正極。這些箔片的層厚是從5至1000微米，較佳為從5至100微米，特佳係從5至30微米。

分離器層B

"固體III"一詞涵蓋所有在一般條件下是固體而且在電池操作方面，在電池，特別是鋰離子電池充電過程中的一般條件下不會接受或釋放電子的化合物。

此層所使用的固體III主要是一種無機固體，較佳為一種無機基礎固體，其係選自包含週期表主族I、II、III或IV或副族IV元素之氧化物、混合氧化物、矽酸鹽、硫酸鹽、碳酸鹽、磷酸鹽、氮化物、醯胺、亞胺和碳化物，一種選自包含聚乙烯、聚丙烯、聚苯乙烯、聚四氟乙烯、聚氯化亞乙烯、聚醯胺和聚亞胺之聚合物；一種包含此類聚合物之固體分散液；和其中兩種或多種化合物的混合物。

以實例方式特別提及下列化合物：氧化物，例如氧化鈣、二氧化矽、氧化鋁、氧化鎂或氧化鈦，混合氧化物，例如元素矽、鈣、鋁、鎂或鈦的混合氧化物，矽酸鹽，例如梯形矽酸鹽、鏈狀矽酸鹽、板狀矽酸鹽和組織矽酸鹽，較佳係矽灰石，特別是疏水性矽灰石，硫酸鹽，例如鹼金

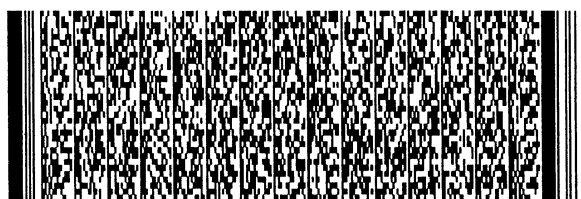


五、發明說明 (6)

酸鹽；例如碳酸鈣、碳酸鎂或碳酸鋇或碳酸鋰、碳酸鉀或碳酸鈉；磷酸鹽，例如磷灰石；氮化物；醯胺；亞胺；碳化物；聚合物，例如聚乙烯、聚丙烯、聚苯乙烯、聚四氟乙烯、聚氟化亞乙烯、聚醯胺或聚亞胺；或其他熱塑性材料、熱固性材料或微粒凝膠、固體分散液，特別是這些包含上述聚合物之化合物和兩種或多種該固體之混合物。

再者，根據本發明所使用的固體III可為一種可傳導Li離子的無機固體，較佳為一種可傳導Li離子的無機基礎固體。

在此可能提及下列化合物：硼酸鋰，例如 $\text{Li}_4\text{B}_6\text{O}_{11} \cdot x\text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Li}_3(\text{BO}_2)_3$ 、 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7 \cdot x\text{H}_2\text{O}$ 、 LiBO_2 ，其中x可為一個從0至20之數目；鋁酸鋰，例如 $\text{Li}_2\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、 $\text{Li}_2\text{Al}_2\text{O}_4$ 、 LiAlO_2 ；矽酸鋁鋰，例如含鋰的沸石、長石、似長石，葉矽酸鹽和鏈矽酸鹽，特別是 $\text{LiAlSi}_2\text{O}_6$ （鋰輝石）、 $\text{LiAlSi}_4\text{O}_{10}$ （皮土酸鹽）、 LiAlSiO_4 （鋰霞石）、雲母，例如 $\text{K}[\text{Li}, \text{Al}]_3[\text{AlSi}]_4\text{O}_{10}(\text{F}-\text{OH})_2$ 、 $\text{K}[\text{Li}, \text{Al}, \text{Fe}]_3[\text{AlSi}]_4\text{O}_{10}(\text{F}-\text{OH})_2$ ；鋰沸石，特別是這些纖維、薄板或管狀形式的鋰沸石，特別是這些具有通式 $\text{Li}_{2/z}\text{O} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot x\text{SiO}_2 \cdot y\text{H}_2\text{O}$ 的鋰沸石，其中z相當於價數，x是從約1.8至約12和y是從0至約8；碳化鋰，例如 Li_2C_2 或 Li_4C ； Li_3N ；鋰氧化物和混合氧化物，例如 LiAlO_2 、 Li_2MnO_3 、 Li_2O 、 Li_2O_2 、 Li_2MnO_4 、 Li_2TiO_3 ； Li_2NH ； Li_2NH_2 ；鋰磷酸鹽，例如 Li_3PO_4 、 LiPO_3 、 LiAlFPO_4 、 $\text{LiAl}(\text{OH})\text{PO}_4$ 、 LiFePO_4 、 LiMnPO_4 ； Li_2CO_3 ；梯形、鏈狀、



五、發明說明 (7)

板狀和組織形態之矽酸鹽，例如 Li_2SiO_3 、 Li_2SiO_4 和 Li_6Si_2 ；鋰硫酸鹽，例如 Li_2SO_4 、 LiHSO_4 、 LiKSO_4 ；在討論負極層中提及的Li化合物，若被用作固體III，則排除導電黑的存在；和一種或多種上述可傳導Li離子之固體混合物。

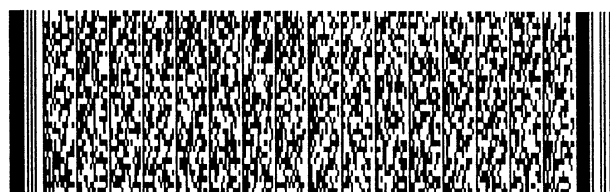
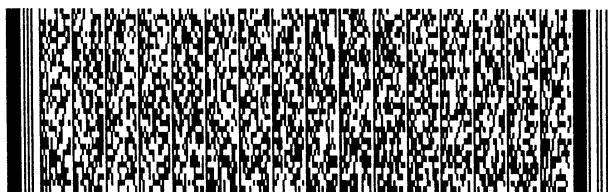
在此特別適合的是基礎固體。對於本發明目的，採用基礎固體一詞意指這些含有液體、含水稀釋劑之混合物的pH值比這稀釋劑高，其中該稀釋劑本身的最大pH為7。

該固體最好是實質上不溶於用作電解質之液體中而且在電池媒介中應為電化學惰性。

特別適合的固體是這些主要粒徑為從5毫微米至20微米，特別為從0.01至10微米，特別是從0.1至5微米的固體，其中所陳述的粒徑是由電子顯微鏡所測得的。色素的熔點最好高於電化學電池之一般操作溫度，已證明高於 120°C 的熔點，特別是高於 150°C 是特別適合的。

在此固體的外形可能對稱，即高：寬：長尺寸比例接近1而且可呈圓球狀、顆粒狀、近圓形結構形狀，但也可為任何目標多面體形狀，例如立方形、正四面體、六面體、八面體或雙錐體，或者可能是扭曲狀或不對稱，即高：寬：長尺寸比例(方位比)不等於1而且可為例如針、不對稱正四面體、不對稱雙錐體、不對稱六面體或八面體、小片狀、碟狀或纖維結構等形狀。若該固體是呈不規則粒狀，上述主要粒徑的上限相當於各例中的最短軸。

可與羧酸或磺酸VII或其衍生物或其中兩種或多種化合



五、發明說明 (8)

物之混合物反應的化合物VI基本上可為任一種可滿足此標準的化合物。

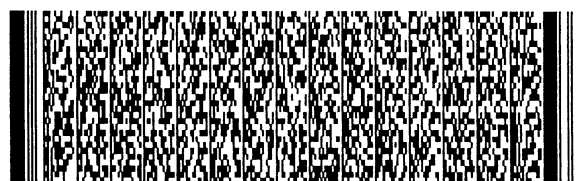
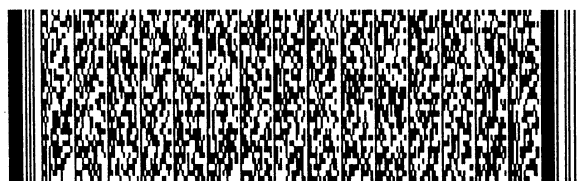
化合物VI最好是選自包含主鏈上只包含碳原子的單羥和多羥醇；除了至少兩個碳原子之外，主鏈上含有至少一個選自包含氧、磷和氮之原子的單羥或多羥醇；含矽化合物；含有至少一個一級胺基的胺類；含有至少一個二級胺基的胺類；胺醇；含有一個或多個硫醇基的硫醇；含有至少一個硫醇基和至少一個羥基的化合物；和其中兩種或多種化合物的混合物。

這些化合物之中，較佳為含有兩個或多個可與羧酸或磺酸反應之官能基的化合物VI。

若使用含有胺基以作為官能基之化合物VI，最好使用這些含有二級胺基的化合物，因此縮合之後，混合物Ia中無游離NH基或只有少量游離NH基存在。

可能詳細提及之較佳化合物是下列化合物：

主鏈上只包含碳原子而且具有1至20，較佳為2至20，特別是2至10個醇OH基之單羥和多羥醇，特別是二羥、三羥和四羥醇，較佳為具有2至20個碳原子，例如乙二醇、1,2-和1,3-丙烯二醇、1,2-和1,3-丁烯二醇、1,4-丁烯二醇、1,4-丁炔二醇、1,6-己烷二醇、新戊二醇、1,2-十二碳烷二醇、甘油、三羥甲基丙烷、異戊四醇和糖醇類、氫醌、酚醛清漆、雙酚A，但從上面定義可證明也可使用單羥醇，例如甲醇、乙醇、丙醇、正-、第二-或第三-丁醇；而且也可使用聚羥烯烴，較佳為這些具有兩個末端羥

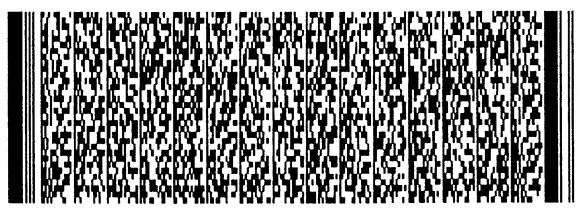


五、發明說明 (9)

基之化合物，例如 α ， ω -二羥基丁二烯；聚酯多元醇，如例如 Ullmann's Enzyklopädie der technischen Chemie [Ullmann 的工業化學百科全書]，第四版，第19卷，62-65 頁中所揭示的，其可藉，例如二羥醇與多鹼性，最好是二鹼聚羧酸反應而獲得；主鏈上除了至少兩個碳原子之外還包含至少一個氧原子之單羥和多羥醇，較佳為聚醚醇，例如伸烷基環氧化物，較佳為氧化異丁烯、氧化丙烯、氧化乙烯、1,2-環氧基丁烷、1,2-環氧基戊烷、1,2-環氧基己烷、四氫呋喃、氧化苯乙烯，其中也可使用末基經改質的聚醚醇，例如經 NH_2 末基改質的聚醚醇；這些醇類的(數目)分子量最好是從100至5000，較佳為從200至1000，特別是從300至800；此類化合物為過去已知的，而且可以商標名 Pluriol® 或 Pluronic® (BASF Aktiengesellschaft) 自商業取得的；在此可使用上面所定義部份或所有碳原子被矽取代的醇類，特別是如，例如在 EP-B 581 296 和 EP-A 525 728 所描述的聚矽氧烷或氧化烯-矽氧烷共聚物或聚醚醇和聚矽氧烷之混合物，相同地在此應用上面對這些醇類之分子量所作的說明；

如上所定義之醇類，特別是部份或所有氧原子被硫原子取代的醇類，相同地在此應用上面對這些醇類之分子量所作的說明；

主鏈上除了至少兩個碳原子之外還包含至少一個磷原子或至少一個氮原子的單羥和多羥醇，例如二乙醇胺和三乙醇胺；衍生自通式 $\text{HO}-(\text{CH}_2)_z-\text{COOH}$ 之化合物的內酯，其中 z



五、發明說明 (10)

是一個從1至20的數目，例如 ϵ -己內酯、 β -丙內酯、 γ -丁內酯或甲基- ϵ -己內酯；

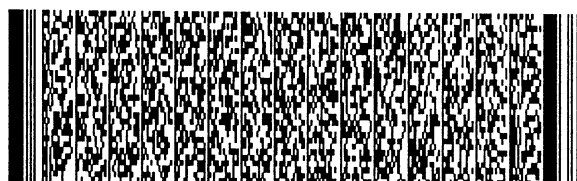
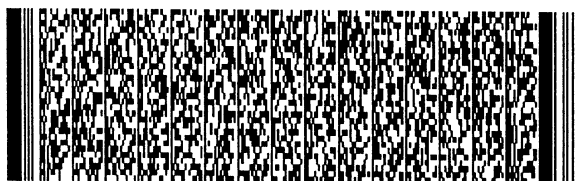
含矽化合物，例如二-和三氯矽烷、苯基三氯矽烷、二苯基二氯矽烷和二甲基乙烯基氯矽烷；矽烷醇，例如三甲基矽烷醇；

包含至少一個一級和/或二級胺基的胺類，例如丁胺、2-乙基己基胺、伸乙基二胺、六亞甲基二胺、二伸乙基三胺、四伸乙基戊胺、五伸乙基己胺、苯胺和伸苯基二胺；聚醚二胺，例如4,7-二氧基癸烷-1,10-二胺和4,11-二氧基十四碳烷-1,14-二胺；含有一個或多個硫醇基之硫醇，例如脂族硫醇，如甲烷硫醇、乙烷硫醇、環己烷硫醇和十二碳烷硫醇；芳族硫醇，例如苯硫酚、4-氯苯硫酚和2-氫硫基苯胺；

含有至少一個硫醇基和至少一個羥基的化合物，例如4-羥基苯硫酚和定義如上之多羥醇的單硫衍生物；胺基醇，例如乙醇胺、N-甲基-乙醇胺、N-乙基乙醇胺、N-丁基乙醇胺、2-胺基-1-丙醇和2-胺基-1-苯基乙醇，含有超過兩個以脂族方式鍵結之羥基的聚胺基多元醇，例如參(羥基甲基)甲基胺、葡胺和N,N'-雙(2-羥基乙基)伸乙基二胺。

也可能使用兩種或多種上述化合物VI之混合物。

上述化合物VI根據本發明與含有至少一個可進行自由基聚合的官能基之羧酸或磺酸VII，或與衍生物或其中兩種或多種化合物之混合物進行縮合，其中至少一個，較佳為所有化合物VI中的自由可縮合基與化合物VII縮合。



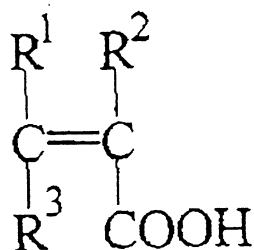
五、發明說明 (11)

為了本發明目的，羧酸或磺酸VII基本上可為任何含有至少一個可進行自由基聚合之官能基的羧酸或磺酸和其衍生物。在此所用"衍生物"一詞環蓋衍生自酸官能基已被改質之羧酸或磺酸的化合物，例如酯、酸鹵化物和酸酐，以及衍生自羧酸或磺酸之碳骨架已被改質之羧酸或磺酸的化合物，例如鹵基羧酸或鹵基磺酸。

特別提及下列化合物以作為化合物VII：

α ， β -不飽和羧酸或 β ， γ -不飽和羧酸。

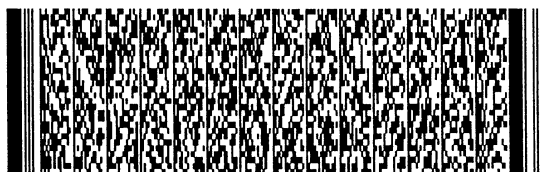
特別適合 α ， β -不飽和羧酸的是這些下式化合物



其中 R^1 、 R^2 和 R^3 是氫或 C_1 -至 C_4 -烷基，因此以這些丙烯酸和甲基丙烯酸為佳；也高度適合的是肉桂酸、順式丁烯二酸、反式丁烯二酸、衣康酸和對-乙烯基苯甲酸及其衍生物，例如酸酐，例如順式丁烯二酸酐和衣康酸酐；

鹵化物，特別是氯化物，例如丙烯鹽基和甲基丙烯鹽基氯化物；

酯類，例如烷基上具有高達20個碳原子之(環)烷基(甲基)丙烯酸酯，例如甲基、乙基、丙基、丁基、己基、2-乙基己基、硬脂鹽基、月桂基、環己基、苯甲基、三氟甲基、六氟丙基和四氟丙基(甲基)丙烯酸酯、聚丙二醇單



五、發明說明 (12)

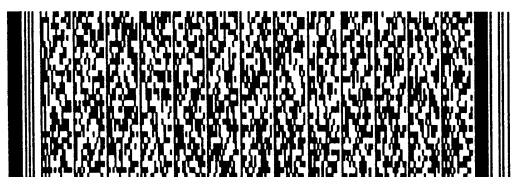
(甲基)丙烯酸酯、聚乙二醇單(甲基)丙烯酸酯、多羥醇的聚(甲基)丙烯酸酯，例如二(甲基)丙烯酸甘油酯、三羥甲基丙烷二(甲基)丙烯酸酯、異戊四醇二-或三(甲基)丙烯酸酯、二乙二醇雙(單-(2-丙烯氧基)乙基)碳酸酯、本身因此包含一個可進行自由基聚合之基團之醇類的聚(甲基)丙烯酸酯，例如(甲基)丙烯酸與乙烯基和/或烯丙基醇的酯類；

其他脂族或芳族羧酸之乙烯基酯，例如醋酸乙烯酯、丙酸乙烯酯、丁酸乙烯酯、己酸乙烯酯、辛酸乙烯酯、癸酸乙烯酯、硬脂酸乙烯酯、棕櫚酸乙烯酯、巴豆酸乙烯酯、己二酸二乙烯酯、癸二酸二乙烯酯、2-乙基己酸乙烯酯和三氟醋酸乙烯酯；

其他脂族或芳族羧酸的烯丙基酯，例如醋酸烯丙基酯、丙酸烯丙基酯、丁酸烯丙基酯、己酸烯丙基酯、辛酸烯丙基酯、癸酸烯丙基酯、硬脂酸烯丙基酯、棕櫚酸烯丙基酯、巴豆酸烯丙基酯、水楊酸烯丙基酯、乳酸烯丙基酯、草酸二烯丙基酯、丙二酸二烯丙基酯、琥珀酸二烯丙基酯、谷氨酸二烯丙基酯、己二酸二烯丙基酯、庚二酸二烯丙基酯、辛那三羧酸鹽二烯丙基酯、三氟醋酸烯丙基酯、全氟丁酸烯丙基酯和全氟辛酸烯丙基酯；

β , γ -不飽和羧酸和其衍生物，例如乙烯基醋酸、2-甲基乙烯基醋酸、3-丁烯酸異丁酯、3-丁烯酸烯丙基酯、2-羥基-3-丁烯酸烯丙基酯和二乙烯酮；

磺酸，例如乙烯基磺酸、烯丙基-和甲代烯丙基磺酸和



五、發明說明 (13)

其酯類和鹵化物，苯磺酸乙烯酯和4-乙烯基苯氯磺醯。

也可能使用兩種或多種上述羧酸和/或磺酸之混合物。

在一個具體實例中，因此分離器層B最好包含一種含有混合物II之混合物I，該混合物II係由下列化合物所組成的

a) 從1至95重量%之固體III，較佳為基礎固體III，其主要粒徑係從5毫微米至20微米，和

b) 從5至99重量%之聚合物組成物IV，該組成物可由下列化合物聚合而獲得的

b1) 以組成物IV為基準，從5至100重量%之下列化合物之縮合產物V

α) 一種多羥醇VI，其主鏈上含有碳和氧原子，
與

β) 每莫耳多羥醇VI中至少一莫耳 α ， β -不飽和羧酸VII，
和

b2) 以組成物IV為基準，從0至95重量%之其他化合物VIII，該化合物的平均分子量(數目)至少為5000而且在其主或側鏈上具有聚醚部份，

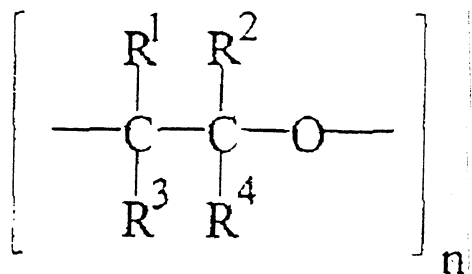
其中混合物II在混合物I中所佔的重量比例為從1至100重量%。

適合的化合物VIII主要是平均分子量(數目)為至少5000，較佳為從5000至20,000,000，特別是從100,000至6,000,000之化合物，其能溶劑化鋰離子和作為黏合劑。



五、發明說明 (14)

適合的化合物VIII是，例如，含有至少30重量%下列結構單位之聚醚和共聚物，以化合物VIII的總重量為基準：



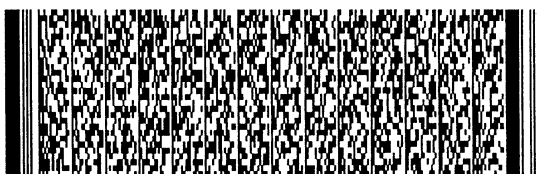
其中R¹、R²、R³和R⁴可為芳基、烷基，最好為甲基或氫，其可相同或不同而且可含有雜原子，如氧、氮、硫或矽。

此類化合物是描述於，例如：M. B. Armand等人，固體中快速離子傳送，Elsevier，紐約，1979年，131-136頁或在FR-A 7832976。

該化合物VIII也可由兩種或多種此類化合物之混合物所組成。

根據本發明，混合物II應由從1至95重量%，較佳為從25至90重量%，特別是從30至70重量%之固體III和從5至99重量%，較佳為從10至75重量%，特別是從30至70重量%之聚合物組成物IV所構成的，其中聚合物組成物IV中的化合物VIII最好具有從5,000至100,000,000，較佳為從50,000至8,000,000之平均分子量(數目)。該聚合物組成物IV可藉從基於聚合物組成物IV之5至100重量%，較佳為從30至70重量%之化合物V和從基於聚合物組成物IV之0至95重量%，特別是從30至70重量%之化合物V反應而獲得。

為了製備根據本發明所使用的混合物，以根據本發明所



五、發明說明 (15)

用的混合物為基準，其應包含一種根據本發明用量為從1至100重量%，較佳為從35至100重量%，特別是從30至70重量%之混合物，可製得一種固體III、縮合產物V，若需要使用的化合物VIII和慣用添加劑，例如塑化劑，較佳為含有聚氧化乙烯或聚氧化丙烯之塑化劑的混合物。

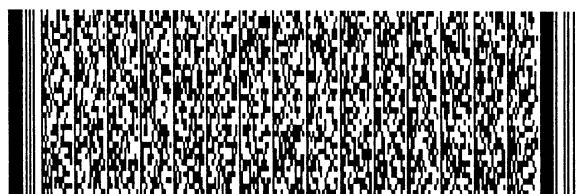
在另一個具體實例中，例如敘述於美國專利第5,540,741及5,478,668號中，分離器層B包含氯乙烯、丙烯腈、氟化亞乙烯、氯乙烯與氟化亞乙烯、氯乙烯與丙烯腈、氟化亞乙烯與六氟丙烯、氟化亞乙烯與六氟丙烯和選自包含氯乙烯、四氟乙烯和三氟乙烯之一員的聚合物和共聚物，將此相關揭示內容整個併入本申請案文章中。這些化合物中，較佳為氟化亞乙烯(1,1-二氟乙烯)與六氟丙烯之共聚物，另外最好是氟化亞乙烯與六氟丙烯之不規則共聚物，其中氟化亞乙烯的重量比例是從75至92%，六氟丙烯的重量比例是從8至25%。

這些聚合物以及縮合產物V係以熟諳此技者所熟知的慣用方式，最好是以自由基的方式進行聚合，其中上述相關化合物VIII係應用所獲得的相關分子量。

分離器層B的厚度一般是從5至100微米，特別是從10至50微米。

正極層C和負極層D

在這些層C和D中的聚合物黏合劑可為任一已知聚合物，其在電池操作條件下是電化學、機械和熱力安定的而且具有一種適當的黏合作用。層C和D中所使用的聚合物黏合劑



五、發明說明 (16)

可能彼此相同或不同。

特別提及下列化合物：

1) 上面所定義之混合物I聚合可獲得的均聚物、嵌段聚合物或共聚物IV，

2) 由下列化合物所製得的均聚物、嵌段聚合物和共聚物

含有鹵素的烯烴化合物，如氯乙烯、氟乙烯、氟化亞乙烯、氯代亞乙烯、六氟丙烯、三氟丙烯、1,2-二氯乙烯、1,2-二氟乙烯和四氟乙烯。

其中，較佳氟化亞乙烯和六氟丙烯的不規則共聚物，特別是這些六氟丙烯含量為從8至25重量%和氟化亞乙烯含量為從75至92重量%之不規則共聚物，各例中係以共聚物之總重量為基準。

3) 而且，也可使用如，例如在實例中所列的慣用壓層負極和正極。

負極層C包含一種負極慣用的可傳導電子、電化學活性化合物(負極化合物)，該化合物在充電過程中可接受電子，較佳為一種鋰化合物。特別提及下列化合物：

LiCoO_2 、 LiNiO_2 、 $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{O}_2$ 、 $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Al}_z\text{O}_2$ ，以 $0 < x, y, z \leq 1$ ， Li_xMnO_2 ($0 < x \leq 1$)、 $\text{Li}_x\text{Mn}_2\text{O}_4$ ($0 < x \leq 2$)、 Li_xMoO_2 ($0 < x \leq 2$)、 Li_xMnO_3 ($0 < x \leq 1$)、 Li_xMnO_2 ($0 < x \leq 2$)、 $\text{Li}_x\text{Mn}_2\text{O}_4$ ($0 < x \leq 2$)、 $\text{Li}_x\text{V}_2\text{O}_4$ ($0 < x \leq 2.5$)、 $\text{Li}_x\text{V}_2\text{O}_3$ ($0 < x \leq 3.5$)、 Li_xVO_2 ($0 < x \leq 1$)、 Li_xWO_2 ($0 < x \leq 1$)、 Li_xWO_3 ($0 < x \leq 1$)、 Li_xTiO_2 ($0 < x \leq 1$)、 $\text{Li}_x\text{Ti}_2\text{O}_4$ ($0 < x \leq 2$)、 Li_xRuO_2 ($0 < x \leq 1$)、 $\text{Li}_x\text{Fe}_2\text{O}_3$ ($0 < x \leq$



五、發明說明 (17)

2) 、 $\text{Li}_x\text{Fe}_3\text{O}_4$ ($0 < x \leq 2$) 、 $\text{Li}_x\text{Cr}_2\text{O}_3$ ($0 < x \leq 3$) 、 $\text{Li}_x\text{Cr}_3\text{O}_4$ ($0 < x \leq 3.8$) 、 $\text{Li}_x\text{V}_3\text{S}_5$ ($0 < x \leq 1.8$) 、 $\text{Li}_x\text{Ta}_2\text{S}_2$ ($0 < x \leq 1$) 、 Li_xFeS ($0 < x \leq 1$) 、 Li_xFeS_2 ($0 < x \leq 1$) 、 Li_xNbS_2 ($0 < x \leq 2.4$) 、
 Li_xMoS_2 ($0 < x \leq 3$) 、 Li_xTiS_2 ($0 < x \leq 2$) 、 Li_xZrS_2 ($0 < x \leq 2$) 、
 Li_xNbSe_2 ($0 < x \leq 3$) 、 Li_xVSe_2 ($0 < x \leq 1$) 、 Li_xNiPS_2 ($0 < x \leq 1.5$) 和 Li_xFePS_2 ($0 < x \leq 1.5$) 。

正極層D包含一種由先前技術已知可傳導電子、電化學活性化合物(正極化合物)，該化合物在充電過程中能釋放出電子，較佳為一種鋰化合物。特別提及下列化合物：

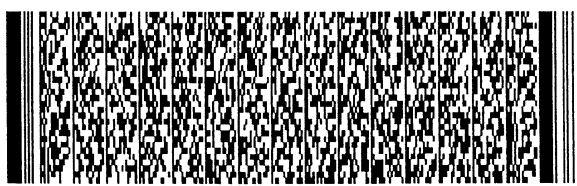
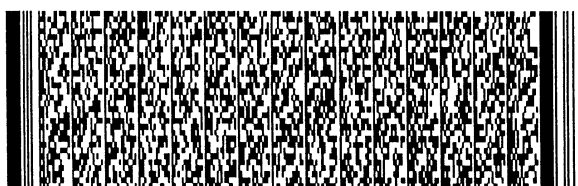
鋰、含鋰之金屬合金、微米化碳黑、天然和人造石墨、人造石墨化煤屑和碳纖維氧化物，如氧化鈦、氧化鋅、氧化錫、氧化鉬和氧化鎢以及碳酸鹽如碳酸鈦、碳酸鉬和碳酸鋅。

而且，正極層D包含高達30重量%之導電黑和若有必要所使用的慣用添加劑，以構成其之物質(聚合物黏合劑加上正極化合物)總重量為基準。負極層C包含從0.1至20重量%之導電黑，以構成其之物質(聚合物黏合劑加上負極化合物)總重量為基準。

助黏層E

基本上助黏層E可為任何可使至少一層如上所定義之第一層和至少一層如上所定義之第二層彼此結合的物質，例如熱熔黏合劑、熱密封黏合劑、接觸黏合劑、對壓力敏感的黏合劑、對壓力敏感的乳液黏合劑和環氧基黏合劑。

其他關於根據本發明可用於助黏層之物質的細節揭示於



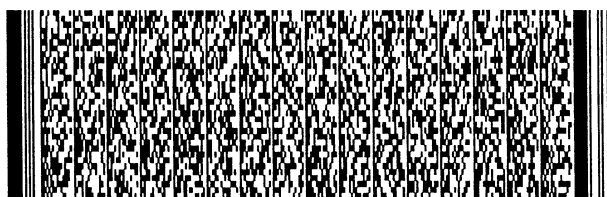
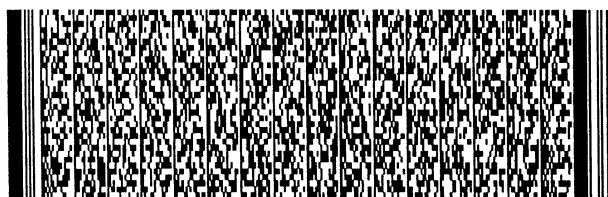
五、發明說明 (18)

標題為 "Kleben und Klebstoffe" [黏性和黏合劑] (Chemie in unserer Zeit, 4 號(1980)) 的文章、Ullmann, Enzyklopadie der technischen Chemie [工業化學百科全書], 第4版(1977), 第14卷, 227-268 頁和 PCT/EP98/06394 其中所引用的參考文獻中, 將關於其中所描述具有黏合性質之物質併入本申請案的文章中。

如引言中已陳述的, 根據本發明方法包括將在此所定義的各層以所謂的濕壓濕塗佈方法使其彼此接觸。此種方法的原理描述於 EP-B 0 520 155, 特別是在第34頁, 將其全部併入本申請案的文章中。在濕壓濕塗佈方法中, 以高效率將所需層塗佈在另一層上。在此 "濕壓濕" 意指將, 例如正極層 D 塗佈在, 例如收集器正極上之後, 在正極層完全乾燥之前的時間點塗上分離器 B。

在此利用慣用塗佈裝置, 例如一個輥式塗佈器、開刀塗佈器或擠壓塗佈器。而且, 實際上利用一個具有兩個擠壓塗佈器出口之單塗佈頭也可同時塗佈兩層, 其中擠壓塗佈器具有一個輔助輥。此裝置相同地詳細描述於 EP-B 0 520 155 所指論點上所引述的參考文獻中。

為了防止固體或負極和正極中各別存在的負極和正極化合物聚結, 最好在塗佈裝置或塗佈頭內讓欲塗佈的組成物接受剪切力。在本申請案的文章中, "濕狀態" 一詞意指以手接觸所塗佈的組成物時, 仍覺得黏或會黏手。在此所謂的 "濕狀態" 下, 所塗佈的組成物一般仍含有從5至10%之塗佈前加入其中的溶劑。



五、發明說明 (19)

本發明特別關於一種製造具有下列結構之複合物件的方法：

收集器負極

一負極層C，

一分離器層B，

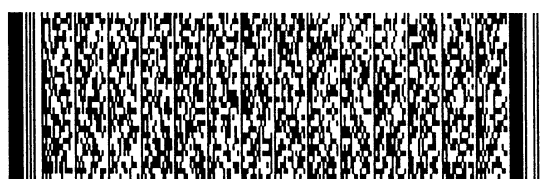
一正極層D，和

收集器正極。

在另一個本發明具體實例中，分離器層B、負極層C和正極層D各包含上面所定義共聚物，該共聚物所含的六氟丙烯量為從8至25重量%，以該共聚物之總重量為基準。

根據本發明之複合物件可另外包含一種塑化劑。此類適合的塑化劑是描述於W0 99/19917和W0 99/18625。

所用的塑化劑最好是二甲基碳酸酯、二乙基碳酸酯、二丙基碳酸酯、二異丙基碳酸酯、二丁基碳酸酯、碳酸乙烯酯和碳酸丙烯酯；醚，例如二丁基醚、二第三丁基醚、二苯基醚、二己基醚、二庚基醚、二辛基醚、二壬基醚、二癸基醚、二-十二碳烷基醚、乙二醇二甲基醚、乙二醇二乙基醚、1-第三丁氧基-2-甲氧基乙烷、1-第三丁氧基-2-乙氧基乙烷、1,2-二甲氧基丙烷、2-甲氧基乙基醚和2-乙氧基乙基醚；寡氧化烯醚，例如二乙二醇二丁基醚、二甲二醇第三丁基甲基醚、三乙二醇二甲基醚、四乙二醇二甲基醚、 γ -丁內酯和二甲基甲醯胺；通式為 C_nH_{2n+2} 之烴類，其中 $7 < n < 50$ ；有機磷化合物，特別是磷酸酯和磷酸酯，例如三甲基磷酸酯、三乙基磷酸酯、三丙基磷酸酯、三丁基

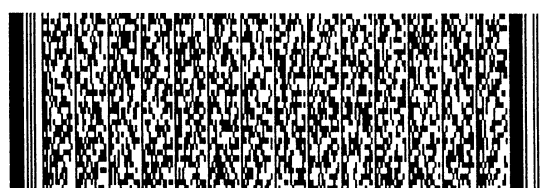


五、發明說明 (20)

磷酸酯、三異丁基磷酸酯、三苯基磷酸酯、三己基磷酸酯、三辛基磷酸酯、參(2-乙基己基)磷酸酯、三癸基磷酸酯、二乙基-正-丁基磷酸酯、參(丁氧基乙基)磷酸酯、參(2-甲氧基乙基)磷酸酯、參(四氫呋喃基)磷酸酯、參(1H, 1H, 5H-八氟苯基)磷酸酯、參(1H, 1H-三氟乙基)磷酸酯、參(2-(二乙基胺基)乙基)磷酸酯、二乙基乙基膦酸酯、二丙基丙基膦酸酯、二丁基丁基膦酸酯、二己基己基膦酸酯、二辛基辛基膦酸酯、乙基二甲基亞磷羧基醋酸酯、甲基二乙基亞磷羧基醋酸酯、三乙基亞磷羧基醋酸酯、二甲基2-羥基丙基膦酸酯、二乙基2-羥基丙基膦酸酯、二丙基2-羥基丙基膦酸酯、乙基二乙氧基膦基甲酸酯、三甲基亞磷羧基醋酸酯、三乙基亞磷羧基醋酸酯、三丙基亞磷羧基醋酸酯和三丁基亞磷羧基醋酸酯。較佳為三烷基磷酸酯和碳酸酯。

塑化劑在各層中所佔的比例是從0至200重量%，較佳係從0至100重量%，最佳為從0至70重量%，以其中所存在的混合物或構成該層的物質(聚合物黏合劑加上負和正極物質)為基準。

可將各層所用的起始物溶於或分散在一種無機，或最好是一種有機液體稀釋劑中，其中所得溶液最好應具有從100至50,000 mPas之黏度，而且若有必要，可以過去已知方式，如噴霧塗佈、傾倒、浸漬、旋轉塗佈、輥式塗佈、印刷字印刷、凹板印刷、平板印刷或篩網印刷，或者以擠壓，即使其成似薄板結構狀，接著將其塗佈在一種載體材



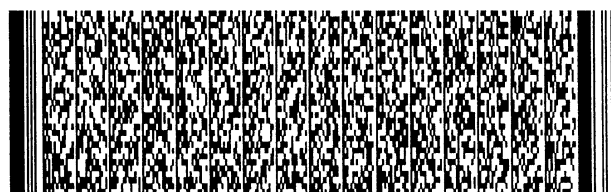
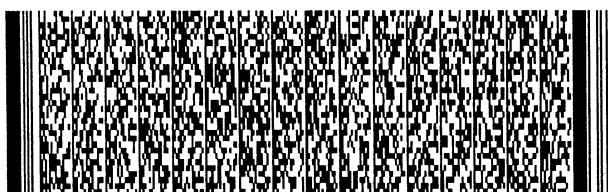
五、發明說明 (21)

料上。可以一般方式，例如藉除去稀釋劑和熟化該混合物進行進一步加工。

適合的有機稀釋劑是脂族醚類，特別是四氫呋喃和二噁烷，烴類，特別是烴混合物，如汽油、甲苯和二甲苯，脂族酯類，特別是醋酸乙酯和醋酸丁酯，和酮類，特別是丙酮、乙基甲基酮和環己酮。也可使用此類稀釋劑之混合物。

薄膜形成後，可除去揮發性成份，如溶劑或塑化劑。

若希望該層交聯，可以過去已知方式來進行，例如利用離子或離子化輻射、電子束照射之，較佳係以介於20和2000 仟伏特之加速電壓和介於5和50 Mrad之輻射劑量的UV或可見光照射之，最好在起始物中加入一種發劑，如苯甲基二甲基縮酮或1,3,5-三甲基苯甲醯基三苯基膦化氧，並且一般在如氮氣或氬氣之惰性氣體下進行交聯0.5至15分鐘，其中該引發劑係以一慣用方式加入而且其最大用量為1重量%，以欲交聯成份為基準；利用熱自由基聚合方式來進行，最好在高於60℃的溫度下進行之，在此例中，最好將一種引發劑如偶氮基雙異丁腈加入起始物中，一般該引發劑的最大添加量為5重量%，較佳為從0.05至1重量%，以欲交聯成份為基準；利用電化學誘導聚合作用；或利用離子聚合作用，例如利用酸催化陽離子聚合作用，其中適合的催化劑主要是酸類，較佳為路易士酸，如 BF_3 ，特別是 LiBF_4 或 LiPF_6 。最好將含有鋰離子的催化劑如 LiBF_4 或 LiPF_6 保留在固體電解質或分離器中作為導電鹽。



五、發明說明 (22)

而且，在此所描述之各層包含一種含鋰陽離子且可解離的化合物，一種所謂的導電鹽，若有需要含包含其他添加劑如，特別是有機溶劑，一種所謂的電解質。

在製造各層期間將部份或所有這些物質與混合物摻混在一起，或者製得薄層後將其送入該層中。

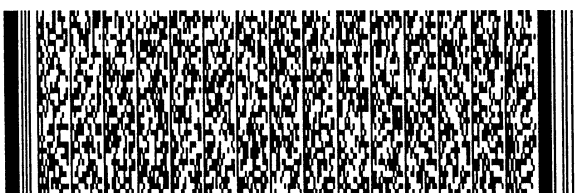
可使用的導電鹽是一般已知導電鹽，例如，EP-A 0 096 629中所描述的。根據本發明所使用之較佳導電鹽是 LiPF_6 、 LiBF_4 、 LiClO_4 、 LiAsF_6 、 LiCF_3SO_3 、 $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{C}_n\text{F}_{2n+1})_2$ 、 $\text{LiC}[(\text{C}_n\text{F}_{2n+1})\text{SO}_2]_3$ 、 $\text{Li}(\text{C}_n\text{F}_{2n+1})\text{SO}_3$ ，其中n在各例中是從2至20， $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{F})_2$ 、 LiAlCl_4 、 LiSiF_6 、 LiSbF_6 ，或其中兩種或多種導電鹽之混合物，其中所使用的導電鹽最好是 LiBF_4 或 LiPF_6 。

這些導電鹽的使用量是從0.1至50重量%，較佳為從0.1至20重量%，特別是從1至10重量%，在各例中以形成薄層材料為基準。

形成根據本發明之複合物件的薄層一般具有從5至500微米，較佳係從10至500微米，最佳為從10至200微米之厚度。該複合物件，較佳為薄膜形式之複合物件的總厚度一般為從15至1500微米，特別是從50至500微米。

而且本發明關於如上所定義之複合物件用於製造電化學電池、感應器、電致變色窗、顯示器、電容器或離子導電膜上的用途。

而且其關於一種含有根據本發明複合物件或兩種或多種該複合物件之混合物的電致變色電池。



五、發明說明 (23)

在此適合的有機電解質是上面"塑化劑"中所討論的化合物，最好是慣用有機電解質，較佳為酯類，如碳酸乙烯酯、碳酸丙烯酯、二甲基碳酸酯和二乙基碳酸酯，或這些化合物的混合物。

此類複合元素與電解質和導電鹽的填充可在薄層合併之前或最好在薄層合併，若有必要，可在與適合的收集器電極，例如金屬箔片接觸之後，甚至在複合元素送入電池外殼之後進行，當使用根據本發明混合物時，特別因上面所定義之固體存在各層中，其中該層特殊微孔結構可接受電解質和導電鹽並排出孔中的空氣。視所使用的電解質而定，該填充可在從0℃至近100℃的溫度進行。填充電解質和導電鹽最好是在複合物件已被導入電池外殼之後才進行。

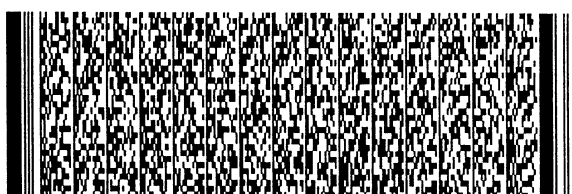
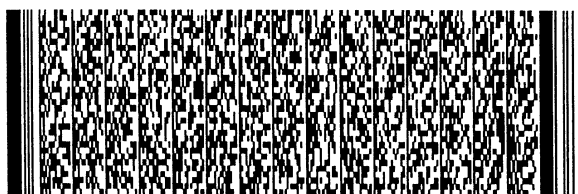
根據本發明電化學電池特別可用於作為馬達電池、攜帶式電池、扁平電池、車上電池、靜態應用所用的電池、電牽引或聚合物電池所用的電池。

與先前製造此類複合物件或固體電解質/分離器的方法比較，在此申請範圍中所宣稱的方法特別具有下列優點：

- 在此所使用的濕壓濕塗佈方法中，陸續或甚至同時地立刻塗佈各層；因此這是一種製造此類複合物件之極有效的方法。

- 因問題中之各層已被塗佈在機械上安定基材膜上的事實，因此各層本身不需要是機械上安定的。

- 為了獲得一種機械上安定的複合物件，在本發明中不



五、發明說明 (24)

需要進行一個壓層步驟。

- 可利用慣用塗佈裝置進行根據本發明方法。

- 特別在使用明白提及當作塑化劑之三烷基磷酸酯和碳酸酯，而且其在各層或複合物件的製造之後，不需要進行一個萃取步驟。

實例

實例1

將一種由下列化合物所組成的懸浮液

35 克 之Kynarflex®2801

50 克 之矽灰石Tremin®800 EST

15 克 之參(2-乙基己基)磷酸酯

200 克 之甲苯

塗佈在仍未完全乾之由銅箔(15微米)所構成的電極上，
該銅箔已塗有下列化合物所構成的懸浮液

200 克 之MCMB石墨

10 克 之導電黑

6 克 之PVDF

250 克 之NMP

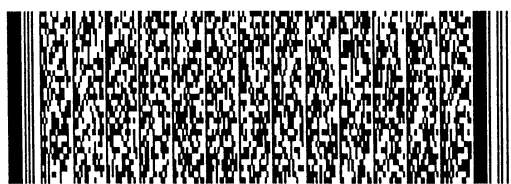
接著在高溫下(從約50至150℃)和低壓下乾燥該電極。

實例2

首先，利用兩個雙螺旋擠壓單元和冷卻輥單元，將一種由下列化合物所組成的電極

5600 克 之MCMB石墨(Osaka氣體)

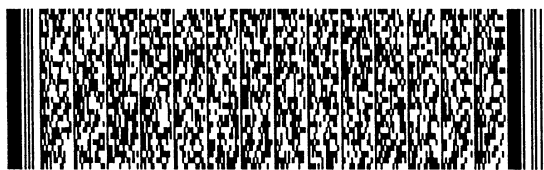
1500 克 之Kynar® 2801 (Elf Atochem)



五、發明說明 (25)

400 克 之導電黑超級® P (MMM 碳)
5000 克 之碳酸丙烯酯
和一種由下列化合物所構成的分離器
3000 克 之Kynar® 2801
2000 克 之Aerosil® 8200 (Degussa)
5000 克 之碳酸丙烯酯

其後立刻共擠壓成一種銅箔片(15微米)。擠壓器和扁平薄膜模的內部溫度是從約130至150℃。由銅箔片、電極和分離器所構成的高黏性複合材料具有從250至300微米之薄膜厚度。



四、中文發明摘要 (發明之名稱：製造適合於鋰離子電池中使用之複合物件之濕壓濕塗佈方法)

本發明關於一種製造複合物件的方法，其中該複合物件包含：

- A) 至少一基材薄膜A和塗佈其上之
- B) 至少一分離器層B，其包含從1至95重量%之固體而且包含可傳導電子、電化學活性化合物，和
- C) 至少一負極層C或
- D) 至少一正極層D，或至少一負極層C和至少一正極層D，

其中藉由濕壓濕塗層法使至少一分離器層B和至少一負極層C或至少一正極層D，或至少一負極層C和至少一正極層D彼此接觸。

英文發明摘要 (發明之名稱：WET-ON-WET COATING PROCESS FOR THE PRODUCTION OF COMPOSITE ARTICLES WHICH ARE SUITABLE FOR USE IN LITHIUM ION BATTERIES)

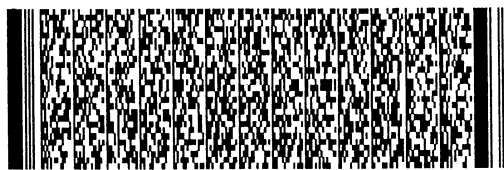
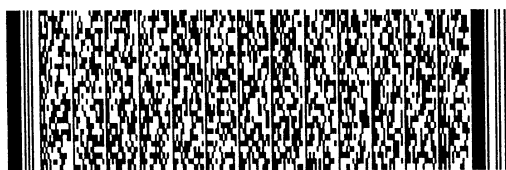
The invention relates to a process for production of a composite article comprising:

A) at least one substrate film A and, applied thereto,

B) at least one separator layer B which comprises from 1 to 95% by weight of a solid and comprises no electron-conducting, electrochemically active compound, and

C) at least one negative-electrode layer C or

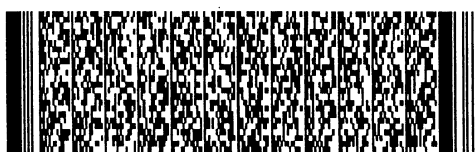
D) at least one positive-electrode layer D, or



四、中文發明摘要 (發明之名稱：製造適合於鋰離子電池中使用之複合物件之濕壓濕塗佈方法)

英文發明摘要 (發明之名稱：WET-ON-WET COATING PROCESS FOR THE PRODUCTION OF COMPOSITE ARTICLES WHICH ARE SUITABLE FOR USE IN LITHIUM ION BATTERIES)

at least one negative-electrode layer C and at least one positive electrode layer D, wherein the at least one separator layer B and the at least one negative-electrode layer C or the at least one positive-electrode layer D or the at least one negative-electrode layer C and the at least one positive-electrode layer D are brought into contact with one another by a wet-on-wet coating process.



六、申請專利範圍

1. 一種製造複合物件的方法，其包括

A) 至少一基材薄膜層A和塗佈其上之

B) 至少一分離器層B，其包含一種含有混合物II之混合物I，該混合物II係由下列化合物所組成的

a) 從1至95重量%之固體III，較佳為基礎固體III，其主要粒徑係從5毫微米至20微米，和

b) 從5至99重量%之聚合物組成物IV，該組成物可由下列化合物聚合而獲得的

b1) 以組成物IV為基準，從5至100重量%之下列化合物之縮合產物V

α) 至少一種化合物VI，其可與羧酸或磺酸或其衍生物或其中兩種或多種化合物之混合物反應，與

β) 每莫耳化合物VI中至少一莫耳羧酸或磺酸VII或其衍生物或其中兩種或多種化合物之混合物，其具有至少一個可與自由基聚合的官能基，

和

b2) 以組成物IV為基準，從0至95重量%之其他化合物VIII，該化合物的平均分子量(數目)至少為5000而且在主或側鏈上具有聚醚部份，

其中混合物II在混合物I中所佔的重量比例為從1至100重量%，

或

一種氯乙烯、丙烯腈、氟化亞乙烯、氯乙烯與氟化亞乙烯、氯乙烯與丙烯腈、氟化亞乙烯與六氟丙烯、氟化亞乙



六、申請專利範圍

烯與六氟丙烯和選自包含氟乙烯、四氟乙烯和三氟乙烯之一員的聚合物或共聚物，

而且該層不包含任何可傳導電子、電化學活性化合物，和

C) 至少一負極層C，其包含一種可傳導電子、電化學活性化合物，該化合物可在充電過程中釋放出鋰離子，或

D) 至少一正極層D，其包含一種可傳導電子、電化學活性化合物，該化合物可在充電過程中接受鋰離子，或

至少一負極層C和至少一正極層D，

其中藉由濕壓濕塗層法使至少一分離器層B和至少一負極層C或至少一正極層D，或至少一負極層C和至少一正極層D彼此接觸。

2. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該複合物件另外包含至少一種助黏層E。

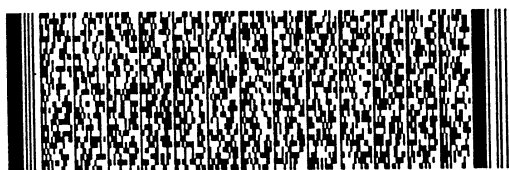
3. 根據申請專利範圍第1或2項之方法，其中至少一基材薄膜層A是一種薄膜形式之收集器電極。

4. 根據申請專利範圍第1或2項之方法，其中至少一分離器層B包含一種氟化亞乙烯與六氟丙烯之不規則共聚物，其中六氟丙烯的重量比例是從8至25%，以該共聚物的總重量為基準。

5. 根據申請專利範圍第1項之方法，其中該複合物件具有下列結構：

收集器負極

一負極層C，



六、申請專利範圍

- 一 分離器層B，
- 一 正極層D，和
- 收集器正極。

6. 根據申請專利範圍第5項之方法，其中分離器層B、負極層C和正極層D各包含一種氟化亞乙烯與六氟丙烯之不規則共聚物，該共聚物所含的六氟丙烯量為從8至25重量%，以該共聚物之總重量為基準。

7. 根據申請專利範圍第1或2項之方法，其中所製得的複合物件係用於製備電化學電池、感應器、電致變色窗、顯示器、電容器或離子導電膜。

8. 根據申請專利範圍第1或2項之方法，其中所製造之複合物件係用來製造電化學電池。

9. 根據申請專利範圍第8項之方法，其中電化學電池係用作為馬達電池、攜帶式電池、扁平電池、車上電池、靜態應用所用的電池、電牽引或聚合物電池所用電池。

