

# 公告本

|      |            |
|------|------------|
| 申請日期 | 91年 3月 26日 |
| 案號   | 91105879   |
| 類別   | H01G 9/00  |

A4  
C4

591677

(以上各欄由本局填註)

## 發明專利說明書

|             |               |   |
|-------------|---------------|---|
| 一、發明<br>名稱  | 中文            | 離子性液體、蓄電裝置用電解質鹽、蓄電裝置用電解液、電雙層電容器及蓄電池   |
|             | 英文            |   |
| 二、發明<br>創作人 | 姓名            | (1) 佐藤貴哉<br>(2) 增田現<br>(3) 野津龍太郎  |
|             | 國籍            | (1) 日本                      (2) 日本                      (3) 日本                |
|             | 住、居所          | (1) 日本國千葉縣千葉市綠區大野台一一二一三<br>(2) 日本國千葉縣千葉市綠區大野台一一二一三<br>(3) 日本國千葉縣千葉市綠區大野台一一二一三 |
| 三、申請人       | 姓名<br>(名稱)    | (1) 日清紡績股份有限公司<br>日清紡績株式会社  |
|             | 國籍            | (1) 日本  |
|             | 住、居所<br>(事務所) | (1) 日本國東京都中央區日本橋人形町二丁目三番一一號   |
|             | 代表人<br>姓名     | (1) 指田禎一  |

經濟部智慧財產局員工

裝

訂

線

|      |               |
|------|---------------|
| 申請日期 | 91 年 3 月 26 日 |
| 案 號  | 91105879      |
| 類 別  |               |

A4  
C4

(以上各欄由本局填註)

# 發 明 專 利 說 明 書

## 新 型

|             |               |                         |
|-------------|---------------|-------------------------|
| 一、發明<br>名稱  | 中 文           |                         |
|             | 英 文           |                         |
| 二、發明人<br>創作 | 姓 名           | (4) 圓尾龍哉                |
|             | 國 籍           | (4) 日本                  |
|             | 住、居所          | (4) 日本國千葉縣千葉市綠區大野台一一二一三 |
| 三、申請人       | 姓 名<br>(名稱)   |                         |
|             | 國 籍           |                         |
|             | 住、居所<br>(事務所) |                         |
|             | 代 表 人<br>姓 名  |                         |

(由本局填寫)

|        |
|--------|
| 承辦人代碼： |
| 大類：    |
| IPC分類： |

A6  
B6

本案已向：

| 國(地區) | 申請專利, 申請日期: | 案號:         | , <input type="checkbox"/> 有 <input type="checkbox"/> 無主張優先權 |
|-------|-------------|-------------|--|
| 日本    | 2001年3月26日  | 2001-087221 | <input checked="" type="checkbox"/> 有主張優先權                   |
| 日本    | 2001年9月10日  | 2001-272834 | <input checked="" type="checkbox"/> 有主張優先權                   |

有關微生物已寄存於：, 寄存日期：, 寄存號碼：

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

裝

訂

線

經濟部智慧財產局員工消費合作社印製

## 五、發明說明( 1)

### 技術領域

本發明係有關離子性液體、蓄電裝置用電解質鹽、蓄電裝置用電解液、電雙層電容器及蓄電池。

### 背景技術

離子性化合物係通常已帶正電之陽離子及已帶負電之離子以靜電吸引而構成結晶。此離子性化合物係溶解於以水為首的多種液體，流動電氣之液體，亦即給予電解質溶液，例如於非水電解質電池、電容器，通常以溶解離子性化合物於有機溶劑內的電解液被使用著。

然而，於離子性化合物之中，以提高溫度並使熱運動活潑化至超越離子間之相互作用的程度，該物本身係成為液體，成為能通過電氣者，此種狀態之鹽通常係被稱作熔融鹽。

存在於此熔融鹽中的化學種，係全部帶有電荷之陽離子或陰離子，不存在中性的原子或分子。因此，在熔融鹽中，由於對水之還原力或氧化力過強，由電解質水溶液未能獲得的元素，亦即將鹼金屬、鋁、稱作稀土類元素之金屬、或氟等非金屬等予以電氣分解以單體之形式可得，此即成為熔融鹽之主要的工業用途。

再者，於上述熔融鹽之中，即使於室溫亦保持液體狀態，在極低溫亦為不固化者，此種在室溫以下保持液體狀態之熔融鹽尤其係被稱作室溫熔融鹽或離子性液體。構成離子性液體之陽離子或陰離子，為使其間之靜電相互作用

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 2 )

變小，任一者或二者係具有某種程度之大小的分子離子，同時減少電荷並使靜電相互作用減少的理由係一價。

對已採用上述離子性液體之電解引起的電析，或電解質對電池等的應用研究雖積極的進展著，但通常離子性液體係有吸濕性高且在空氣中之處理較困難的缺點，其應用不可說是足夠。

在此種狀況下，於1992年由Wilkes氏等人所報導的1-乙基-3-甲基咪唑鎰四氟硼酸鹽，係在空氣中亦可處理的劃時代離子性液體，以此為契機，組合側鏈之不同的多數烷基咪唑鎰陽離子及各種陰離子之離子性液體即成可予多數合成的，關於此等方面，有關其物性感應用之研究雖正予盛行著，但現狀下仍期待開發出可較簡便的製造，且容易處理的各種離子性液體。

另一方面，非水電解液系電雙層電容器，因其有可以大電流充放電之特徵，故被期待用作電氣汽車、補助電源等能量貯藏裝置。

向來的非水電解液系電雙層電容器，係由以活性碳等的碳質材料為主體之正、負極的分極性電極及非水電解液所構成的，然而非水系電解液之組成對電容器之耐電壓或靜電容量有大影響一事係為人所知的。

上述非水電解液係由電解質鹽及非水系有機溶劑所構成，關於此等電解質鹽及非水系有機溶劑之組合，至目前為止有多種正予檢討著。

例如，至於電解質鹽，以第四級銨鹽（日本特開昭

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明 ( 3 )

6 1 - 3 2 5 0 9 號公報、特開昭 6 3 - 1 7 3 3 1 2 號公報、特開平 1 0 - 5 5 7 1 7 號公報等)、或第四級鎘鹽(特開昭 6 2 - 2 5 2 9 2 7 號等)等,由對有機溶劑之溶解性及解離度、與電氣化學上安定領域需較廣得知係較常被使用著。另一方面,至於有機溶劑,以高介電常數在電氣化學的安定領域較寬廣、高沸點者係為人所期待的,通常以碳酸乙酸酯、碳酸二乙基酯、碳酸丙烯酯、碳酸丁烯酯,γ-丁內酯、乙腈、環丁砜(Sulfolane)等係較常被使用著。

然而,在目前所用的非水電解液系電雙層電容器,電解質鹽對通常所用的有機溶劑之電解質鹽(四級銨鹽、四級鎘鹽等)的溶解性不可說是足夠,其添加量有其界限。結果,非水電解液之離子傳導度變低,同時亦有電雙層電容器之靜電容量亦變低的問題存在。

又,由電解質鹽之溶解性需較低一事,由於低溫時電解質鹽較易結晶化,電雙層電容器之低溫特性亦有問題。

本發明係有鑑於此種事情而完成者,以提供可簡便且有效的製造的離子性液體,對非水電解液用有機溶劑之溶解性優越,同時具有低熔點之蓄電裝置用電解質鹽,及含有此電解質鹽之蓄電裝置用電解液,及採用此電解液所構成的低溫特性優越的電雙層電容器及蓄電池為目的。

本發明人等,為達成上述目的,經精心檢討的結果,於具有至少一個烷氧基烷基作為取代基四級銨鹽、四級鎘鹽片發現具有低熔點用作離子性液體優越的性質者。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

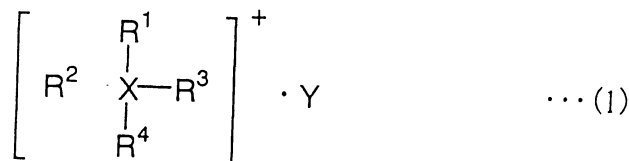
線

## 五、發明說明 ( 4 )

又具有烷氧基烷基作為取代基之四級銨鹽，四級鎘鹽，係對蓄電裝置所用的非水系有機溶劑之溶解性優越，而且具有低熔點，故採用此等的四級鹽製備電解液時，亦可較向來形成高濃度，且發現於低溫時的電解質鹽較難引起析出，同時採用此電解液予以製作的電雙層電容器係具有高靜電容量、低溫特性優越，以至完成本發明。

因此，本發明係

1. 以下述一般式 ( 1 ) 表示，熔點在 50 °C 以下為特徵之離子性液體，



[ 式內，R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> 係相互相同或不同的碳數 1 ~ 5 之烷基或 R' - O - (CH<sub>2</sub>)<sub>n</sub> - 表示的烷氧基烷基 (R' 表示甲基或乙基，n 為 1 ~ 4 之整數)，此等 R<sup>1</sup>，R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup> 及 R<sup>4</sup> 之任二個之基形成環亦可。惟 R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> 之中至少一種為前述烷氧基烷基。X 表示氮原子或磷原子，Y 表示一價的陰離子。 ]

2. 以熔點為 25 °C 以下為特徵之上述 1 記載的離子性液體。

3. 以前述 X 為氮原子為特徵之上述 1 或 2 記載的離子性液體。

4. 以前述 X 為氮原子、R' 為甲基、n 為 2 為特徵

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

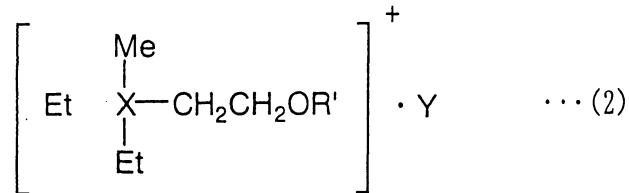
訂

線

## 五、發明說明 ( 5 )

之上述 3 記載的離子性液體。

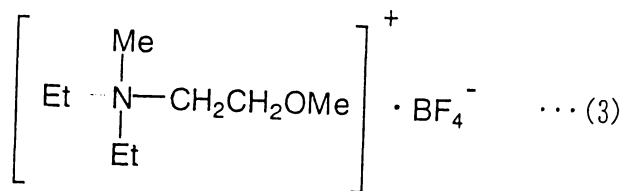
5 . 以下述一般式 ( 2 ) 表示為特徵之上述 1 或 2 記載的離子性液體。



[ 式內，R' 表示甲基或乙基，X 表示氮原子或磷原子，Y 表示一價陰離子，又 Me 表示甲基，Et 表示乙基。 ]

6 . 以前述 Y 為  $\text{BF}_4^-$ 、 $\text{PF}_6^-$ 、 $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3^-$  或  $\text{CF}_3\text{CO}_2^-$  為特徵之前述 1 至 5 之任一項記載的離子性液體。

7 . 以下述式 ( 3 ) 表示者為特徵之前述 5 記載的離子性液體，



[ 式內，M 係意指甲基，Et 意指乙基。 ]

8 . 一種以由下述一般式 ( 1 ) 表示的四級鹽而成為特徵之蓄電裝置用電解質鹽，

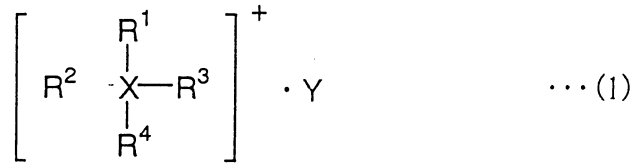
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 6 )

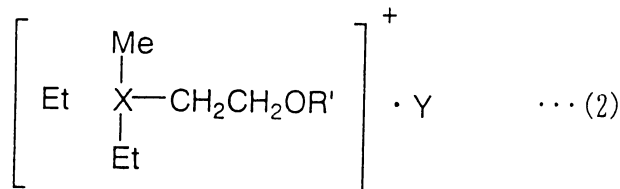


[ 式內， $R^1 \sim R^4$  係相互相同或不同的碳數 1 ~ 5 之烷基或  $R' - O - (CH_2)_n -$  表示的烷氧基烷基 ( $R'$  表示甲基或乙基， $n$  為 1 ~ 4 之整數)，此等  $R^1$ ， $R^2$ ， $R^3$  及  $R^4$  之任二個之基形成環亦可，惟  $R^1 \sim R^4$  之中至少一種為前述烷氧基烷基。X 表示氮原子或磷原子，Y 表示一價的陰離子。]

9 . 以由前述 X 為氮原子之四級銨鹽而成為特徵之上述 8 項記載的蓄電裝置用電解質鹽。

10 . 以由前述 X 為氮原子、 $R'$  為甲基、 $n$  為 2 之四級銨鹽而成為特徵之上述 9 項記載的蓄電裝置用電解質鹽。

11 . 以由以下述一般式 ( 2 ) 表示的四級鹽而成為特徵之上述 8 項記載之蓄電裝置用電解質鹽，

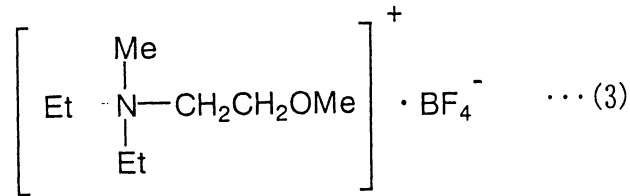


[ 式內， $R'$  表示甲基或乙基，X 表示氮原子或磷原子，Y 表示一價之陰離子。又 Me 意指甲基、Et 意指乙基。]

## 五、發明說明(7)

12. 以前述 Y 為  $\text{BF}_4^-$ 、 $\text{PF}_6^-$ 、 $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3^-$  或  $\text{CF}_3\text{CO}_2^-$  為特徵之上述 8 至 11 項之任一項記載之蓄電裝置用電解質鹽。

13. 以下述式(3)表示者為特徵之上述 11 項記載之蓄電裝置用電解質鹽，



(式內，Me 意指甲基、Et 意指乙基。)

14. 以熔點為  $25^\circ\text{C}$  以下為特徵之上述 8 至 13 項之任一項記載之蓄電裝置用電解液。

15. 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於僅由上述 1 至 7 項之任一項記載之離子性液體而成。

16. 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於僅由上述 14 項記載之蓄電裝置用電解質鹽而成。

17. 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於含有上述 1 至 7 項之任一項記載之離子性液體之至少一種與非水系有機溶劑而成。

18. 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於含有上述 8 至 13 項之任一項記載之蓄電裝置用電解質鹽之至少一種及非水系有機溶劑而成。

19. 以前述非水系有機溶劑為含有碳酸乙烯酯或碳

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明 ( 8 )

酸烯酯爲主成分之混合溶劑爲特徵之上述 1 7 或 1 8 項記載之蓄電裝置用電解液。

2 0 . 以前述非水系有機溶劑係由碳酸乙烯酯、碳酸丙烯酯、碳酸乙烯基酯、碳酸二甲基酯、碳酸乙基甲基酯及碳酸二乙基酯選出的一種或二種以上之混合溶劑爲特徵之上述 1 7 或 1 8 項記載之蓄電裝置用電解液。

2 1 . 一種電雙層電容器，其特徵在於含有一對的分極性電極、經予介在於此等分極性電極間的間隔件、與電解液之電雙層電容器，採用上述 1 5 至 2 0 項之任一項記載的蓄電裝置用電解液作爲前述電解液而成。

2 2 . 以前述分極性電極爲含有由樹脂而得的碳質材料爲主成分爲特徵之上述 2 1 項記載的電雙層電容器。

2 3 . 以前述樹脂係酚樹脂或聚羰二醯亞胺樹脂爲特徵之上述 2 2 項記載的電雙層電容器。

2 4 . 以前述碳質材料係酚樹脂或聚羰二醯亞胺樹脂經碳代後，進行賦活處理而成者爲特徵之上述 2 2 項記載的電雙層電容器。

2 5 . 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於由上述 1 5 或 1 6 項記載的蓄電裝置用電解液及常溫爲固態的離子導電性鹽而成。

2 6 . 以前述離子導電性鹽係鋰鹽爲特徵之上述 2 5 項記載的蓄電裝置用電解液。

2 7 . 以再含有非水系有機溶劑爲特徵之上述 2 5 或 2 6 項記載的蓄電裝置用電解液。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 9 )

28 . 一種蓄電池，其特徵在於含有正極及負極，經予介在於此等分極性電極間の間隔件，與電解液之蓄電池，採用上述 25 至 27 項之任一項的蓄電裝置用電解液作為前述電解液。

29 . 一種電雙層電容器，其特徵在於含有一對的分極性電極，經予介在於此等分極性電極間の間隔件，與電解液之電雙層電容器，採用上述 25 至 27 項之任一項記載的蓄電裝置用電解液作為前述電解液而成。

30 . 一種蓄電裝置，其特徵在於含有正極及負極，經介在於此等正負極の間隔件，與電解液之蓄電裝置，前述正極為活性碳且前述負極係可包藏，放出鋰之碳質材料，同時前述電解液為上述 25 至 27 項之任一項記載的蓄電裝置用電解液。

### 圖面之簡單說明

第 1 圖係表示化合物 ( 3 ) 之 N M R 光譜圖。

第 2 圖係表示化合物 ( 4 ) 之 N M R 光譜圖。

第 3 圖係表示化合物 ( 5 ) 之 N M R 光譜圖。

第 4 圖係表示化合物 ( 6 ) 之 N M R 光譜圖。

第 5 圖係表示化合物 ( 8 ) 之 N M R 光譜圖。

第 6 圖係表示化合物 ( 9 ) 之 N M R 光譜圖。

第 7 圖係表示化合物 ( 10 ) 之 N M R 光譜圖。

第 8 圖係表示化合物 ( 11 ) 之 N M R 光譜圖。

第 9 圖係表示實施例 8 及比較例 3 而得的電雙層電容

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

繪

## 五、發明說明 ( 10 )

器之初期充放電的放電容量之推移 ( 室溫 ) 圖。

第 1 0 圖係表示於實施例 8 及比較例 3 而得的電雙層電容器之放電性能的溫度相依性圖。

第 1 1 圖係表示於實施例 8 及比較例 3 而得的電雙層電容器之初期充電後的電壓經時變化 ( 室溫 ) 圖。

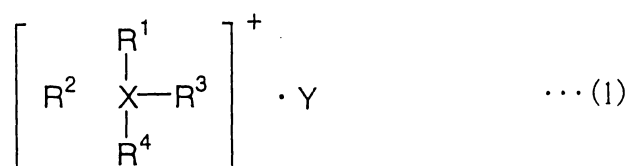
第 1 2 圖係表示於實施例 9 而得的二次電池之充放電特性圖。

實施發明而採的最佳形態

以下再詳細說明本發明。

[ 蓄電裝置用電解質鹽 ]

與本發明有關的蓄電裝置用電解質鹽，係由以下述一般式 ( 1 ) 表示的四級鹽而成者。



[ 式內， $R^1 \sim R^4$  係相互相同或不同的碳數 1 ~ 5 之烷基或  $R' - O - (CH_2)_n -$  表示的烷氧基烷基 ( $R'$  表示甲基或乙基， $n$  為 1 ~ 4 之整數)，此等  $R^1$ ， $R^2$ 、 $R^3$  及  $R^4$  之任二個之基形成環亦可。惟  $R^1 \sim R^4$  之中至少一種為前述烷氧基烷基。X 表示氮原子或磷原子，Y 表示一價的陰離子。 ]

### 五、發明說明 ( 11)

於本發明之蓄電裝置，係指化學、物理或物理化學性的儲存電氣之裝置，元件等，例如可舉出電雙層電容器、蓄電池、電容器等可充放電的裝置。

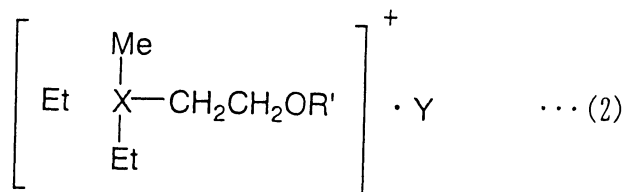
至於上述碳數 1 ~ 5 之烷基，可舉出甲基、乙基、丙基、2-丙基、丁基、戊基等。至於以

$R' - O - (CH_2)_n -$  表示的烷氧基烷基，可舉出甲氧基或乙氧基甲基、甲氧基或乙氧基或乙氧基乙基、甲氧基或乙氧基丙基、甲氧基或乙氧基丁基等。

又  $R^1$ 、 $R^2$ 、 $R^3$  及  $R^4$  之任二個之基形成之環的化合物，係於 X 採用氮原子時，可舉出具有氮雜環丙烷、氮環環丁烷、吡咯烷、六氫吡啶環等之四級銨鹽、另一方面，於 X 採用磷原子時，可舉出具有五亞甲磷環等的四級鎘鹽等。

尤其至於取代基，以至少具有一個上述  $R'$  為甲基、 $n$  為 2 之甲氧基甲基之四級銨鹽係較合適的。

又至於取代基，以具有甲基、二個乙基、及烷氧基乙基之下述一般式 ( 2 ) 表示的四級鹽亦可較合適使用。



[ 式內， $R'$  表示甲基或乙基、X 表示氮原子或磷原子、Y 表示一價陰離子、又 Me 表示甲基、Et 表示乙基。 ]

至於上述一般式 ( 1 )、( 2 ) 之一價陰離子 Y，並

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明 ( 12 )

未予特別限定者，雖可使用  $B F_4^-$ 、 $P F_6^-$ 、 $A s F_6^-$ 、 $S b F_6^-$ 、 $A l C l_4^-$ 、 $N b F_6^-$ 、 $H S O_4^-$ 、 $C l O_4^-$ 、 $C H_3 S O_3^-$ 、 $C F_3 S O_3^-$ 、 $C F_3 C O_2^-$ 、 $( C F_3 S O_2 )_2 N^-$ 、 $C l^-$ 、 $B r^-$ 、 $I^-$  等陰離子，惟若考慮非水系有機溶劑中的解離度、安定性及移動度等時，則以  $B F_4^-$ 、 $P F_6^-$ 、 $( C F_3 O_2 )_2 N^-$ 、 $C F_3 S O_3^-$  或  $C F_3 C O_2^-$  為尤其合適。

於本發明，以上述一般式 ( 1 )、( 2 ) 表示的四級鹽之中，至於較合適使用的四級銨鹽及四級銨鹽之具體例，可舉出以下的化合物 ( 3 ) ~ ( 11 ) ( M e 表示甲基，E t 表示乙基 )，尤其若考慮可得低溫特性等優越的蓄電裝置時，則較宜採用以下述式 ( 3 ) 或 ( 8 ) 表示的四級銨鹽。

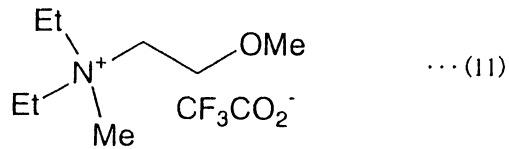
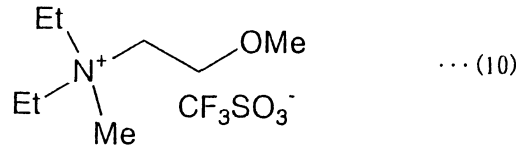
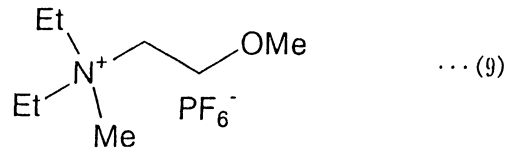
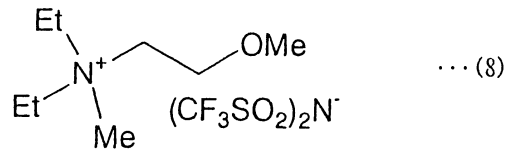
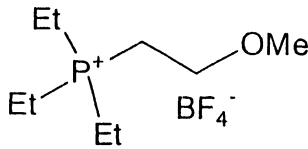
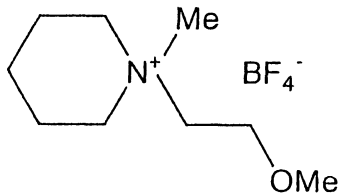
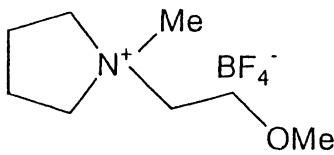
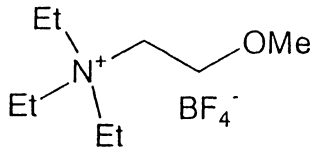
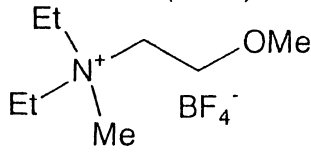
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 13 )



上述四級銨鹽之一般的合成法，係如下所述。首先混合三級胺類及鹵化烷基或硫酸二烷基酯等，視必要時以進行加熱製成鹵化四級銨鹽。且於採用鹵化烷氧基乙基、鹵化烷氧基甲基等反應性較低的化合物時，採用高壓釜等使在加壓下進行反應係較合適的。

將上述而得的鹵化四級銨鹽溶解於小等的水性特質中，使與發生硼氟化氫酸或四氟磷酸等必要的陰離子種的試劑反應，進行陰離子交換反應，可得本發明之四級銨鹽。

至於具體例，若舉出四級銨四氟硼酸鹽之合成法時，則使鹵化四級銨鹽溶解於水，加入氧化銀並進行鹽交換，成為四級銨氫氧化物鹽後，使硼氟化氫酸反應可得目的物。此方法在生成四級銨氫氧化物鹽之際，由鹽交換而生成的鹵化銀由於可容易去除，在合成純度較高的四級銨四氟

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 14 )

硼酸鹽時係較有效的。

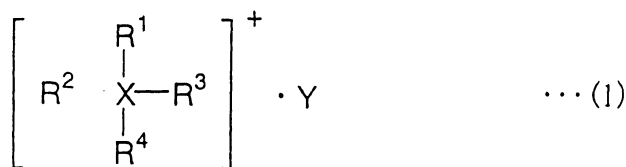
又，四級磷鹽，係與四級銨鹽同樣的，與三級磷類、與鹵化烷基或二烷基硫酸等混合，視必要時進行加熱，可一般的合成。

又於製造使陰離子變化成各種的四級磷鹽時，與四級銨鹽相同，將鹵化四級磷（氯化物、溴化物、碘化物）溶解於水性介質中，使與會發生必需的陰離子種之試劑反應，進行陰離子交換反應即可。

且，將使上述電解質鹽溶解於非水系有機溶劑內的電解液置於低溫時，若考慮該電解質鹽之較難析出一事時，則電解質鹽之熔點宜為在 25 °C 以下，較宜為在 15 °C 以下。熔點若較 25 °C 高的電解質鹽時，於低溫下在溶劑中析出，結果電解質鹽之離子導電係數降低，取出的電氣量降低的可能性變高。此時，熔點愈低愈佳，其下限值則未予特別限定。

〔離子性液體〕

與本發明有關的離子性液體，係以下述一般式 ( 1 ) 表示，熔點在 50 °C 以下，宜為 25 °C 以下為特徵。



〔式內，R<sup>1</sup> ~ R<sup>4</sup> 係相互相同或不同的碳數 1 ~ 5 之烷

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

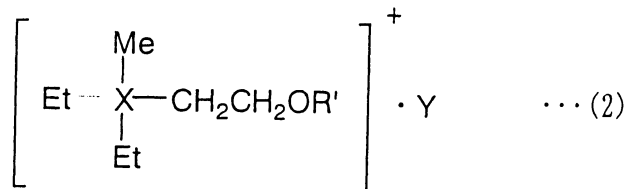
### 五、發明說明 ( 15 )

基或  $R' - O - (CH_2)_n -$  表示的烷氧基烷基 ( $R'$  表示甲基或乙基， $n$  為 1 ~ 4 之整數)，此等  $R^1$ ， $R^2$ 、 $R^3$  及  $R^4$  之任二個之基形成環亦可。惟  $R^1 \sim R^4$  之中至少一種為前述烷氧基烷基。X 表示氮原子或磷原子，Y 表示一價的陰離子。]

在此，至於碳數 1 ~ 5 之烷基， $R^1$ ， $R^2$ ， $R^3$  及  $R^4$  之任二個基形成環之化合物，與以上述電解質鹽說明的相同。

於此離子性液體之情形，亦以至少具有一個上述  $n'$  為甲基， $n$  為 2 之甲氧基甲基的四級銨鹽作為取代基係較合適的。

又至於取代基，以具有甲基，二個乙基及烷氧基乙基之下述一般式 ( 2 ) 表示的四級銨鹽亦可較合適使用。



{ 式內， $R'$  表示甲基或乙基，X 表示氮原子或磷原子，Y 表示一價之陰離子，又 Me 表示甲基，Et 表示乙基。 }

至於上述一般式 ( 1 )，( 2 ) 表示的離子性液體之一價陰離子 Y，係與以上述電解質鹽說明者相同。

至於具體的離子性液體，雖可舉出上式 ( 3 ) ~

( 11 ) 表示者，惟尤以式 ( 3 ) 或式 ( 8 ) 表示者較容

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 16 )

易處理，而且可得低溫特性優越的蓄電裝置，係較合適的。

且對於離子性液體之製造方法，係如以上述電解質鹽所述般。

本發明之離子性液體，係具有①蒸汽壓完全無，或極小、②不燃或耐燃、③具有離子導電性、④分解電壓亦較水高、⑤液體溫度領域亦較水寬廣、⑥可在大氣中處理、⑦具有較習用已知的有機系離子性液體寬廣的電位窗的各種優點。尤其採用離子性液體於蓄電裝置時，若電位窗較狹窄，則隨著充放電、電解質或電解液會受氧化分解，有還原分解之顧慮，咪唑鎘系離子性液體，由於電位窗較狹窄，未能使用於鋰離子蓄電池系，惟本發明之離子性液體如上述般由於電位窗較寬廣，亦可使用於鋰離子蓄電池方面。

因此，至於在室溫以下的溫度可使用的新電解質，可較合適用作金屬或合金之電析。電鍍用電解浴、各種電池或電容器等的能量貯藏用之電氣化學裝置用電解質。

又，在有機合成裡廣泛使用的苯、二氯甲烷、醚等的反應溶劑，雖係其幾乎係具有致癌性之揮發性物質，然而本發明之離子性液體，係揮發性較小，可重複利用的有機合成用反應溶劑亦可較合適採用，由而亦可對開拓出以降低環境負荷為目的之新合成製程之綠色化學 ( green chemistry ) 領域亦有貢獻者。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 17 )

### 〔 蓄電裝置用電解液 〕

與本發明有關的蓄電裝置用電解液；係採用①單獨使用上述離子性液體或低熔點之蓄電裝置用電解質鹽之電解液（亦即不使用非水系有機溶劑之電解液），②於①之電解液內已添加離子導電性鹽之電解液（此情形亦為不使用非水系有機溶劑之電解液）；③於②之電解液內再添加非水系有機溶劑之電解液，④含有上述離子性液體或蓄電裝置用電解質之至少一種及非水系有機溶劑之電解液之任一形態者。

在此，至於非水系有機溶劑，係可溶上述離子性液體或電解質鹽，若為以蓄電池、電雙層電容器等的蓄電裝置之動作電壓範圍安定者時，則未予特別限定，惟若為介電常數大，電氣化學的安定範圍者，同時使用溫度範圍寬廣且安全性優越者為宜。

具體而言，可舉出：二丁基醚，1，2-二甲氧基乙烷、1，2-乙氧基甲氧基乙烷、甲基二甘醇二甲醚、乙基二甘醇二甲醚、丁基二甘醇二甲醚、甘醇醚類（乙二醇單乙醚、乙基卡必醇、乙二醇單丁醚、丁基卡必醇類等）等的鏈狀醚類、四氫呋喃、2-甲基四氫呋喃、1，3-二氧基雜戊環、4，4-二甲基-1，3-二噁烷等的環式醚， $\nu$ -丁內酯、 $\nu$ -戊內酯、 $\delta$ -戊丙酯、3-甲基-1，3-噁唑烷-2-酮、3-乙基-1，3-噁唑烷-2-酮等丁內酯類、於電氣化學元件通常使用的溶劑之醯胺溶劑（N-甲基甲醯胺、N，N-二甲基甲醯胺、N

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 18 )

— 甲基乙醯胺、N—甲基吡咯烷酮等)、碳酸酯溶劑(碳酸二乙基酯、碳酸二甲基酯、碳酸乙基甲基酯、碳酸丙烯酯、碳酸乙烯酯、碳酸苯乙烯酯等)、咪唑imidazolizinone 溶劑(1,3-二甲基-2-咪唑imidazolizinone)等,由此等溶劑之中可單獨使用一種或亦可混合二種以上使用。

尤宜為採用由含有碳酸乙烯酯或碳酸丙烯酯為主成份之混合溶劑,或碳酸乙烯酯、碳酸丙烯酯、碳酸伸乙烯酯、碳酸二甲基酯、碳酸乙基甲基酯及碳酸二乙基酯選出的一種或二種以上的混合溶劑。

於上述電解液採用作蓄電裝置用電解液時,如先前①所示的情形,當然成為離子性液體100%,另一方面,②,③,④時,溶劑中之離子性液體,電解質鹽之濃度並未予特別限定,惟為0.1~5.0mol/L,宜為1.0~4.0mol/L。此等的濃度若未滿0.1mol/L時,則由於內部電阻增大而有損失增大的顧慮,另一方面若超過5.0mol/L時,則溶解度低且熔點較高的電解質鹽時,則低溫時會析出,有招致安定性降低等的不合適生成之顧慮。

惟,本發明之蓄電裝置用電解質鹽,係較通常所用的電解質鹽對非水系有機溶劑之溶解性優越,而且熔點在25℃以下者居多,即使較通常增濃電解質鹽濃度並使用時,在低溫時亦較難析出電解質鹽。

又如上述般,電解液內亦可再添加離子性導電性鹽。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

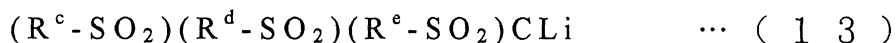
訂

線

## 五、發明說明 ( 19 )

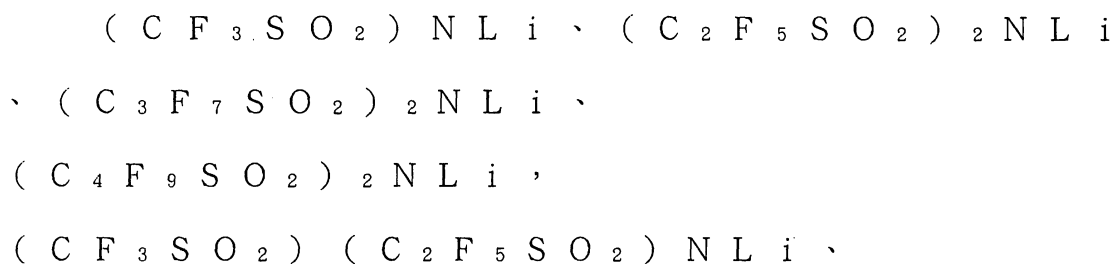
此時，至於離子導電性鹽，若為鋰二次電池，鋰離子蓄電池、電雙層電容器等可使用時即可，則未予特別限定，例如可採用鹼金屬鹽、第四級銨鹽等。

至於鹼金屬鹽，宜為鋰鹽、鈉鹽、鉀鹽。具體而言，可舉出：①四氟化硼酸鋰、六氟化磷酸鋰、過氯酸鋰、三氟甲烷磺酸鋰，下述一般式(12)表示的磺醯基醯亞胺之鋰鹽，以下述一般式(13)表示的甲基化磺醯基之鋰鹽醋酸鋰、三氟醋酸鋰、安息香鋰、對甲苯磺酸鋰、硝酸鋰、溴化鋰、碘化鋰、四苯基硼酸鋰等鋰鹽、②過氯酸鈉、碘化鈉、四氟化硼酸鈉、六氟化磷酸鈉、三氟甲烷磺酸銨、溴化鈉等鈉鹽、③碘化鉀、四氟化硼酸鉀、六氟化磷酸鉀、三氟甲烷磺酸鉀等鉀鹽。



[式(9)、(10)中， $R^a \sim R^e$ 係各自表示含有醚基1個或2個亦可的碳數1~4之全氟烷基。]

至於上述一般式(12)表示的磺醯基醯亞胺之鋰鹽，具體而言可舉出下式表示者等。



(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

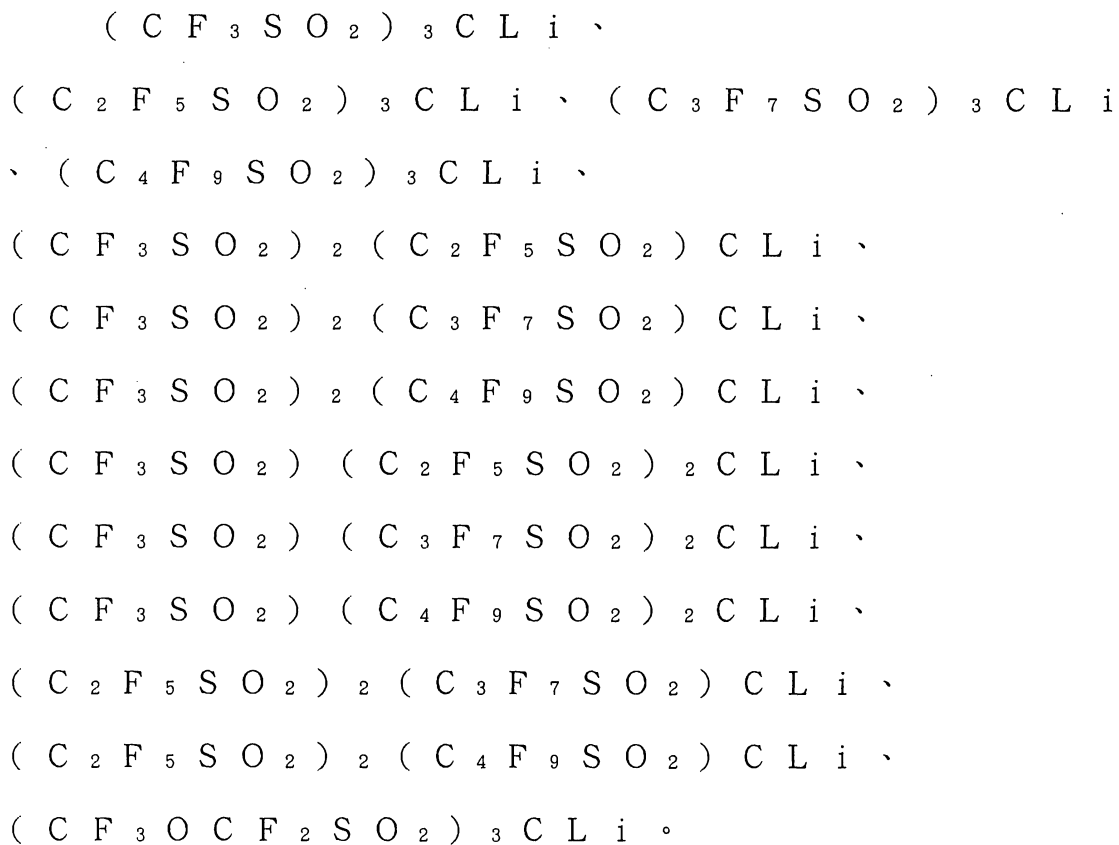
訂

結

## 五、發明說明 ( 20 )



至於以上述一般式 ( 1 3 ) 表示的甲基化磺醯基之鋰鹽，具體而言可舉出下述表示者等。



此等之中，四氟化硼酸鋰、六氟化磷酸鋰，上述一般式 ( 1 2 )，及上述一般式 ( 1 3 ) 表示的甲基化磺醯基之鋰鹽係表示尤其高的離子傳導度，且熱安定性亦優越的離子導電性鹽為宜。且此等離子導電性鹽係可使用單獨一種或組合二種以上使用。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 21 )

又，至於電雙層電容器所用的第四級銨鹽，例如可舉出：四甲基銨／六氟化磷酸鹽、四乙基銨／六氟化磷酸鹽、四丙基銨／六氟化磷酸鹽、甲基三乙基銨／六氟化磷酸鹽、四乙基銨／四氟化硼酸鹽、四乙基銨／過氯酸鹽等，或鏈狀脘類、環狀脘類（咪唑類、咪唑啉類、吡咪類、1, 5 - 二氮雜聯環〔4 . 3 . 0〕壬烯、5 ( D B N )、1, 8 - 二氮雜聯環〔5 . 4 . 1 0〕十一烯 - 7 ( D B U ) 等）、吡咯類、吡唑類、嘔唑類、噻唑類、嘔二唑類、噻二唑類、三唑類、吡啶類、吡啞類及三吡啞類、吡咯烷類、嗎啉類、六氫吡啶類、六氟吡啞類等四級鹽等。

且，電解液中的離子導電性鹽之濃度，通常 0 . 0 5 ~ 3 m o l / L，宜為 0 . 1 2 2 m o l / L。離子導電性鹽之濃度若過低時，則有未能獲得足夠的離子導電性之情形。另一方面，若過高時，則有電解液完全未能溶解的情形。

### 〔電雙層電容器〕

與本發明有關的電雙層電容器，係於含有一對的分極性電極及經予介在於此等分極性電極間之間隔件與電解液之電雙層電容器，採用上述蓄電裝置用電解液作為前述電解液者。

在此，至於上述分極性電極，係可採用將含有碳質材料及黏結劑聚合物而成的分極性電極組成物塗布於集電體

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 22 )

上而成者。

至於上述碳質材料，並未予特別限定，惟可舉出植物系之材料、殘渣、椰子殼、紙漿廢液、化石燃料系之焦炭、石油重質油、或將此等熱分解的焦炭、或石油系瀝青、已將煤溶瀝青抽絲的纖維、合成高分子、酚樹脂、呋喃樹脂、聚氯乙烯樹脂、聚偏二氯乙烯樹脂、聚醯亞胺樹脂、聚醯胺樹脂、聚羧二醯亞胺樹脂、液晶高分子、塑膠廢棄物、廢輪胎等為原料，將此等碳化者，再將此等賦活性並予製造的活性碳等。

此等之中，若考慮需防止由於原料之分散性或原料中的雜質引起的性能之降低時，則宜為含有以由樹脂而得的碳質材料為主成分者，尤其以採用將酚樹脂或聚羧二醯亞胺樹脂碳化後，賦活處理而得的碳質材料則較合適。

至於上述酚樹脂，並未予特別限定，可採用公知的各種酚樹脂，例如可採用可溶性酚醛樹脂、酚醛清漆樹脂、其他的特殊酚樹脂等。

另一方面，至於聚羧二醯亞胺樹脂，並未予特別限制，可採用以公知的各種方法製造的聚羧二醯亞胺樹脂（參閱美國專利第 2,949,666 號詳細說明書、日本特公昭 47-33297 號、J. Org. Chem. 20, 2063-2075 (1963) 等），例如由伴隨有機二異氰酸酯之脫二氧化碳之縮合反應製造的聚羧二醯亞胺樹脂。

且，至於上述賦活處理之方法，並未予特別限定，雖可採用蒸汽賦活，水蒸汽賦活法等各種方法，惟以採用

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 23 )

K O H 的藥品賦活而得之活性碳，與水蒸汽賦活品相比，容量較大的傾向，故較合適。

又，至於碳質材料之形狀，雖有破碎、造粒、顆粒、纖維、氈、織物、板片狀等各種形狀，惟不論何者均可使用於本發明。

再者，於上述碳質材料內亦可添加導電材。至於導電材，若為對碳質材料可賦與導電性者時即可，並未予特別限定，例如可舉出碳黑、廚房黑、乙炔黑、碳鬚晶、碳纖維、天然石墨、人造石墨、二氧化鈦、氧化鈮、鋁、鎳等的金屬纖維等，可單獨此等的一種或組合二種以上使用。此等之中，以碳黑之一種的廚房黑、乙炔黑較宜。

在此，導電材之平均粒徑，雖未予特別限定者，惟為  $10\text{ nm} \sim 10\text{ }\mu\text{ m}$ ，宜為  $10 \sim 100\text{ nm}$ ，較宜為  $20 \sim 40\text{ nm}$ ，尤宜為碳質材料之平均粒徑之  $1/5000 \sim 1/2$ ，尤宜為  $1/1000 \sim 1/10$ 。

又其添加量，雖未予特別限定者，惟若考慮靜電容量及賦與導電性效果等時，則對碳質材料  $100$  重量分為  $0.1 \sim 20$  重量分，宜為  $0.5 \sim 10$  重量分。

其次，至於上述黏結劑聚合物，若為可使用於各該用途之聚合物時即可，雖未予特別限定，惟例如宜為採用 ( I ) 不飽和聚胺酯化合物，( I I ) 具有有互穿性網目構造或半互穿網目構造之高分子材料、( I I I ) 含有以下述一般式 ( 1 4 ) 表示的單位之熱塑性樹脂 ( I V ) 氟系

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

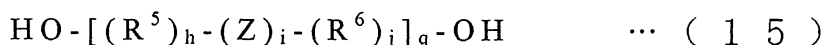
## 五、發明說明 ( 24 )

高分子材料等。上述黏結劑聚合物之中若採用 ( I ) ~ ( I I I ) 之高分子材料時，則因具有較高的接著性，故可使電極之物理強度提高。又 ( I V ) 之氟系高分子材料，係熱、電氣安定性優越者。



(式內，r 表示 3 ~ 5，s 表示 5 以上的整數。)

具體而言，至於上述 ( I ) 之不飽和聚胺酯化合物，宜為使 ( A ) 分子中具有至少一個之 ( 甲基 ) 丙烯醯基及羥基之不飽和醇，及 ( B ) 以下一般式 ( 1 5 ) 表示的多六醇化合物、( C ) 聚異氰酸酯化合物，視必要時及 ( D ) 鏈延長劑反應而成者。



[式內，R<sup>5</sup>及R<sup>6</sup>各自表示相同或不同的胺基、硝基、羰基或醚基亦可的碳數 1 ~ 10 之二價羥基，Z 表示 - C O O -，- O C O O -，- N R<sup>7</sup> C O - C R<sup>7</sup> 表示氫原子或碳數 1 ~ 4 之烷基]、- O - 或伸芳基，h、i、j 表示 0 或 1 ~ 10 之整數，q 表示 1 以上的整數。]

至於 ( A ) 成分之不飽和醇，若為分子中具有至少一個 ( 甲基 ) 丙烯醯基及羥基者時即可，則未予特別限定，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

結

## 五、發明說明 ( 25 )

例如可舉出：丙烯酸 2 - 羥乙酯、丙烯酸 2 - 羥丙酯、甲基丙烯酸 2 - 羥乙酯、甲基丙烯酸 2 - 羥丙酯、單丙烯酸二乙二醇酯、單甲基丙烯酸二乙二醇、單丙烯酸三乙二醇酯、單甲基丙烯酸三乙二醇酯等。

至於 ( B ) 成分之多元醇化合物，可採用聚乙二醇等聚醚多元醇、聚己內酯等的聚酯多元醇等，惟以上述一般式 ( 15 ) 表示者為尤宜。

上述式 ( 15 ) 中， $R^5$  及  $R^6$  係表示含有相同或不同的胺基、硝基、羰基或醚基亦可的碳數 1 ~ 10，宜為 1 ~ 6 之二價羥基，尤宜為表示伸烷基，例如可舉出亞甲基、伸乙基、三亞甲基、伸丙基、環氧乙烷基、環氧丙烷基等。

又，上述  $q$  為 1 以上，宜為 5 以上，較宜為 10 ~ 200 之數。

且，( B ) 成分之多元醇化合物之數量平均分子量，宜為 400 ~ 10,000，較宜為 1,000 ~ 5,000 之範圍。

至於 ( C ) 成分之聚異氰酸酯化合物，例如可舉出伸甲苯二異氰酸酯、4,4'-二苯基甲烷二異氰酸酯、對伸苯基二異氰酸酯、1,5-伸萘基二異氰酸酯、3,3'-二氨基-4,4'-二苯基甲烷二異氰酸酯、伸二甲苯二異氰酸酯等芳香族二異氰酸酯類；六亞甲二異氰酸酯、異佛爾酮二異氰酸酯、4,4'-二環己基甲烷二異氰酸酯、加氫化伸二甲苯基二異氰酸酯等脂肪族或脂環式二異氰

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 26 )

酸酯類等。

於上述不飽和聚胺酯化合物內，配合上述 ( A ) ~ ( C ) 成分以外，亦配合 ( D ) 鏈延長劑為宜，至於此種鏈延伸劑，可採用於合成熱塑性聚胺酯樹脂通常使用者。例如可舉出乙二醇、二乙二醇等二醇類；1, 3 - 丙二醇、1, 4 - 丁二醇等的脂肪族二醇；1, 4 - 雙 (  $\beta$  - 羥乙氧基 ) 苯、1, 4 - 環己烷二醇、伸二甲苯二醇等的芳香族二醇或脂環式二醇、胼、乙二胺、六亞甲二胺、伸二甲苯二胺、哌啶等的二胺；己二酸醯胼、間苯二甲酸胼等的胺基醇等，可單獨採用此等的一種或組合二種以上使用。

又，亦可採用使上述 ( B ) 成分之多二醇化合物及 ( C ) 成分之聚異氰酸酯化合物事先反應而得的胺酯預聚物。

上述各成分之使用量，對 ( A ) 成分 100 重量分，添加 ( B ) 成分 100 ~ 20,000 重量分，宜為 1,000 ~ 10,000 重量分，( C ) 成分 80 ~ 5,000 重量分，宜為 300 ~ 2,000 重量分，再者視必要時添加 ( D ) 成分 5 ~ 1,000 重量分，宜為 10,500 重量分。

所得的不飽和胺酯化合物之數量平均分子量，宜為 1,000 ~ 50,000，較宜為 3,000 ~ 30,000 之範圍。數量平均分子量若過小時，因硬化凝膠之交聯點間分子量變小，有用作黏結劑聚合物之可撓

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 27 )

性變成過低的情形。另一方面若過大時，因硬化前的電極組成物之黏度變大，有製作均勻的塗膜厚度之電極成為困難的情形。

至於具有上述 ( I I ) 之互穿網目構造或半互穿網目構造之高分子材料，可形成相互互穿網目構造或半互穿網目構造之二種以上的化合物 ( 聚合物、反應性單體等 ) 。

至於此二種上的化合物，可舉出 ( 甲 ) 組合具有 ( a ) 羥基烷基多糖類衍生物及 ( d ) 可交聯的官能基之化合物的高分子基質、 ( 乙 ) 組合具有 ( b ) 聚乙烯醇衍生物及 ( d ) 可交聯的官能基之化合物的高分子基質，或 ( 丙 ) 組合具有 ( c ) 聚糖醇衍生物及 ( d ) 可交聯的官能基之化合物的高分子基質等。

此時由提高物理強度等的點，宜為採用上述 ( I ) 之不飽和聚胺酯化合物作為具有 ( d ) 成分之可交聯的官能基之化合物的一部分或全部。

至於 ( a ) 成分之羥基烷基多糖類衍生物，可舉出①藉由使環氧乙烷反應至纖維素、澱粉、支鏈澱粉等天然產出的多糖類而得的羥乙基多糖類、②藉由使環氧丙烷反應至上述多糖類而得的羥丙基多糖類、③藉由使糖醇或 3 - 氯 - 1, 2 - 丙二醇反應至上述多糖類而得的二羥基丙基多糖類等，此等羥基烷基多糖類之羥基的一部分或全部係以已介經酯鍵結或醚鍵結之取代基封鎖者。

且，上述羥基烷基多糖類，係莫耳取代度為 2 ~ 3 0，宜為 2 ~ 2 0 者。莫耳取代度較 2 小時，溶解電解質鹽

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 28 )

類之能力過低並不適於使用。

至於羥烷基多糖類之羥基的一部分或全部係以已介經酯鍵結或醚鍵結之取代基封鎖者，可採用藉由分子鏈終端之OH基的10%以上為鹵原子、非取代或取代一價羥基、 $R^8CO-$ 基（ $R^8$ 係與上述相同）、胺基、烷胺基、 $H(O R^9)_m-$ 基（ $R^9$ 係碳數2~5之伸烷基、 $m$ 為1~100整數）及含磷原子之基選出的一種或二種以上的一價基予以封鎖的羥烷基多糖類衍生物。

至於上述非取代或取代的一價羥基，顯示出相同或不同的碳數1~10，宜為1~8之非取代或取代之一價羥基，例如可舉出以鹵原子、氰基、羥基、胺基等取代甲基、乙基、丙基、異丙基、第三丁基、戊基等烷基、苯基、甲苯基等芳香基、苄基等芳烷基、乙烯基等烯基、此等的基之氫原子之一部或全部者等，可單獨使用此等的一種或組合使用二種以上。

(b) 成分之聚乙烯醇衍生物，係具有具環氧伸烷基鏈之聚乙烯醇單位之高分子化合物的羥基（源自聚乙烯醇單位之殘存羥基，及源自含有經予導入的環氧伸烷基之羥基的合計）之一部分或全部經予取代者。

在此，具有聚乙烯醇單位之高分子化合物，係於分子中具有聚乙烯醇單位之數量平均聚合度20以上，宜為30以上，更宜為50以上之高分子化合物，上述聚乙烯醇單位中的羥基之一部分或全部為含有環氧伸烷之基所取代者。此時，數量平均聚合度之上限，若考慮處理性等時

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 29 )

，則在 2 0 0 0 以下，較宜為 5 0 0 以下，尤宜為 2 0 0 以下。

具有上述聚乙炔醇單位之高分子化合物，係滿足上述數量平均聚合度範圍，且分子中的聚乙炔醇單位之分率為 9 8 莫耳% 以上均聚物係最適合的，惟並非受此所限定者，滿足上述數量平均聚合度範圍，且聚乙炔醇分率宜為 6 0 莫耳% 以上，較宜為具有 7 0 莫耳% 以上之聚乙炔醇單位的高分子化合物，例如聚乙炔醇羥基之一部分經予甲醛化的聚乙炔基甲醛，聚乙炔醇之羥基之部分經予烷基化的改質聚乙炔醇，聚（伸乙基乙炔基醇）、部分皂化的聚醋酸乙炔酯，其他改質聚乙炔醇等。

此高分子化合物，係上述聚乙炔醇單位中的羥基之一部分或全部為以平均莫耳取代度 0 . 3 以上的環氧伸乙烷之含有基（且此環氧伸乙烷基係以其氫原子之部分為羥基所取代亦可）所取代者，宜為 3 0 莫耳%，較宜為以 5 0 莫耳% 以上所取代者。在此，平均莫耳取代度（M S），係可以正確的測定出饋入質量及反應生成物之質量。

（c）成分之聚糖醇衍生物，係具有以下式（16）表示的單位（以下稱 A 單位，R 具有以下式（17）表示的單位（以下稱 B 單位）分子鏈之各終端係利用分子端終端指定的取代基所封閉者。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 30 )



在此，上述聚糖醇係藉由使糖醇或 3 - 氯 - 1, 2 - 丙二醇聚合而得，惟一般係以糖醇為原料，採用鹼性觸媒或路易士酸觸媒進行聚合為宜。

上述聚糖醇係分子中合併 A, B 二個單位，具有二個以上，宜為 6 個以上，較宜為具有 10 個以上者。此時，上限雖未予特別限制，惟通常在 10, 000 個以下。此等各單位之合計數，係考慮必要的聚糖醇之流動性及黏性等並予適宜設計時即可。又分子中之 A 單位及 B 單位之比率，以莫耳比計 A : B = 1 / 9 ~ 9 / 1，宜為 3 / 7 ~ 7 / 3。且 A, B 單位之出現上無規則，任意的組合係有可能的。

再者，於上述聚糖醇之採用凝膠過濾色譜儀 ( G P C ) 的聚乙二醇換算之重量平均分子量 ( M w )，宜為 200 ~ 730, 000，較宜為 200 ~ 100, 000，更宜為 600 ~ 20, 000 者。又平均分子量比 ( M w / M n ) 為 1.1 ~ 20，較宜為 1.1 ~ 10。

至於分子鏈之終端為取代基所封鎖的聚糖醇，可採用分子鏈終端之 O H 基的 10 % 以上為鹵原子，非取代或取

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明 ( 31)

代一價烴基， $R^{10}CO-$ 基（ $R^{10}$ 為碳數1~10之非取代或取代一價烴基）、 $R^{10}_3Si-$ 基（ $R^{10}$ 係與上述相同）、胺基、烷基胺基、 $H(OR^{11})_u-$ 基（ $R^{11}$ 為碳數2~5之伸烷基， $u$ 為1~100之整數）及含有磷原子之基選出的1種或2種以上的一價基所封鎖的聚糖醇衍生物。

至於上述碳數1~10之非取代或取代的一價烴基，可採用與上述 $R^8$ 及 $R^9$ 相同者，尤宜為碳數1~8者。且取代基係採用於終端之OH基導入各種基之公知方法並予導入。

至於具有(d)成分之可交聯的官能基之化合物，係可採用①分子中具有環氧基之化合物，及與此環氧基可反應的二個以上的活性氫基之化合物，②分子中具有異氰酸酯基之化合物，及與此異氰酸酯基可反應的二個以上之活性氫基的化合物，③分子中具有反應性之雙鍵鍵結二個以上的化合物。

至於①分子中具有環氧基之化合物，宜為分子中具二個以上的環氧基之化合物，例如可採用山梨糖醇聚縮水甘油基醚、山梨糖醇酐聚縮水甘油基醚、聚丙三醇聚縮水甘油基醚、異戊四醇聚縮水甘油基醚、二丙三醇聚縮水甘油基醚、三縮水甘油基、參(2-羥基乙基)三異氰酸酯等。

於具有上述環氧基之化合物內，使具有二個以上的活性氫基之化合物，例如胺化合物、醇化合物、羧酸化合物

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 32 )

、酚化合物反應，可形成二維網目構造。具體而言，可舉出：聚乙二醇、聚丙二醇、乙二醇、丙二醇共聚物等的高分子多元醇、乙二醇、1, 2-丙二醇、1, 3-丙二醇、1, 3-丁二醇、1, 4-丁二醇、1, 5-戊二醇、2, 2-二甲基-1, 3-丙二醇、二乙二醇、二丙二醇、1, 4-環己烷二甲醇、1, 4-( $\beta$ 雙羥基乙氧基)苯、對-伸二甲苯基二醇、苯基二乙醇胺、甲基二乙醇胺、聚乙亞胺、其他的多官能胺、多官能羧酸等。

至於②分子中具有異氰酸酯基之化合物，例如可採用伸甲苯基二異氰酸酯、伸二甲苯基二異氰酸酯、伸萘基二異氰酸酯、二苯基甲烷二異氰酸酯、聯伸苯基二異氰酸酯、二苯基醚二異氰酸酯、甲苯胺二異氰酸酯、六亞甲二異氰酸酯、異氟爾酮二異氰酸酯等分子中具有二個以上的異氰酸酯基之化合物。

且，亦可使用使上述異氰酸酯化合物及多價多元醇化合物反應的異氰酸酯終端之多元醇化合物。

此時，異氰酸酯化合物之〔NCO〕與多元醇化合物之〔OH〕間之化學量論比為〔NCO〕／〔OH〕，具體而言為〔NCO〕：〔OH〕=1.03／1～10／1之範圍，宜為1.10／1～5／1之範圍。

又，以具有二個以上的活性氫基之胺化合物取代多元醇化合物使與異氰酸酯化合物反應亦可。至於胺化合物雖可使用具有一級、二級之胺基者，惟較宜為具有一級胺基之化合物。例如可舉出乙二胺、1, 6-二胺基己烷、1

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

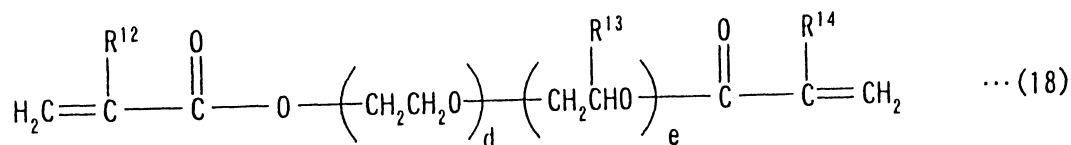
## 五、發明說明 ( 33 )

， 4 - 二胺基丁烷、六氫吡啶等二胺類、聚乙二胺等的多元胺類、N - 甲基二乙醇胺、胺基乙醇等胺基醇等。此等之中較宜者為官能基之反應性相等的二胺類。此時，異氰酸酯化合物之 [ N C O ] 及胺化合物之 [ N H <sub>2</sub> ] 或 [ N H ] 之心學量論比係 [ N C O ] > [ N H <sub>2</sub> ] + [ N H ] 。

在此等僅具有異氰酸酯基之化合物，由於未能形成三維網目構造，故於此等的化合物內有使與具有二個以上的活性氫之化合物，例如胺化合物、醇化合物、羧酸化合物、酚化合物反應的必要，由而，可形成三維網目構造。

且，至於具有二個以上的活性氫基化合物，可採用與述相同者。

至於具有上述 ③ 反應性雙鍵鍵結之化合物，雖未予特別限定，惟宜為採用上述 ( 1 ) 之不飽和聚胺酯化合物，或含有以下述一般式 ( 1 8 ) 表示的聚環氧伸烷基成分之二酯化合物等，以此等與含有以下述一般式 ( 1 9 ) 表示的聚環氧伸烷基成分之單酯化合物及三酯化合物予以組合使用較被推薦使用者。



( 惟式內，R<sup>12</sup>、R<sup>13</sup>、R<sup>14</sup>係表示氫原子或甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丙基、異丁基、第二丁基、

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

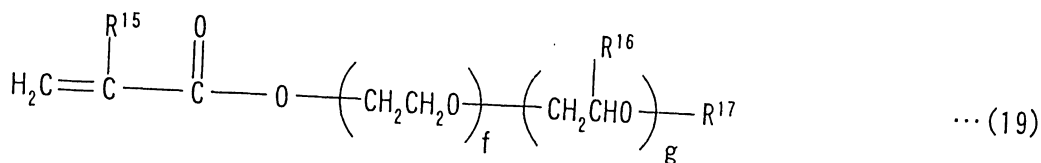
裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 34 )

第三丁基等碳數 1 ~ 6，尤其 1 ~ 4 之烷基，滿足  $d \geq 1$  且  $e \geq 0$  之條件者，或滿足  $D \geq 0$  且  $e \geq 1$  之條件者， $e + d$  為 100 以下，尤宜為 1 ~ 30。尤宜為  $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$  為甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基。)



(惟式內， $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$  係表示氫原子或甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基等碳數 1 ~ 6，尤其 1 ~ 4 之烷基，滿足  $f \geq 1$  且  $g \geq 0$  之條件者，或滿足  $f \geq 0$  且  $g \geq 1$  之條件者， $f + g$  為 100 以下，尤宜為 1 ~ 30。尤宜為  $R^{15}$ 、 $R^{16}$ 、 $R^{17}$  為甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、第三丁基。)

且，視必要時，例如於甲基丙烯酸縮水甘油基酯、丙烯酸縮水甘油基酯、甲基丙烯酸四氫呋喃呋喃基酯等丙烯酸或甲基丙烯酸酯、甲基丙烯酸醯基異氰酸酯、2-羥基甲基甲基丙烯酸、N，N-二甲基胺基乙基甲基丙烯酸等的分子中可添加具有一個丙烯酸基或甲基丙烯酸基之化合物。再者亦可添加 N-羥甲基丙烯酸醯胺、亞甲基雙丙烯酸醯胺、二丙酮丙烯酸醯胺等的丙烯酸醯胺化合物、乙基基嘮啶類、碳酸伸乙烯基酯等乙基基化合物等，或具有其他反應性

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 35 )

之雙鍵鍵結之化合物。

此情形亦為形成三維網目構造，於上述的分子中有添加具有二個以上的反應性雙鍵鍵結之化合物的必要。

藉由在電極組成物中加熱或照射電子射束、微波、高頻等或加熱混合物可對上述 ( 1 ) 之不飽和聚胺酯化合物或含有聚環氧基伸烷基成分之二酯化合物及含有聚環氧基伸烷基成分之單酯化合物，可形成三維網目構造。

此時於不飽和聚胺酯化合物或含有聚環氧基伸烷基成分之二酯化合物內，再添加含有單官能性單體之聚環氧基伸烷基成分之單酯化合物為宜。由添加此種單酯化合物，於三維網目上可導入聚環氧基伸烷基枝鏈。

且，不飽和聚胺酯化合物或含有聚環氧基伸烷基成分之二酯化合物，與含有聚環氧基伸烷基成分之單酯化合物間之組成比，並未予特別限定者。

於對此等含有 ( a ) ~ ( c )、( d ) 成分之黏結劑聚合物，藉由加熱或照射電子射束、微波、高頻等，使與具有 ( d ) 成分之可交聯的官能基之化合物反應 ( 聚合 ) 而得聚合物之三維網目構造內，形成上述 ( a ) ~ ( c ) 成分之聚合物分子鏈相互糾纏的半互穿性高分子網目構造者。

其次，至於上述 ( I I I ) 之黏結劑聚合物，宜為採用含有以下述一般式 ( 1 4 ) 表示的單位之熱塑性樹脂。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 36 )



(式內，r 表示 3 ~ 5，s 表示 5 以上之整數。)

至於此種熱塑性樹脂，宜為採用使 (E) 多元醇化合物，(F) 聚異氰酸酯化合物，及 (G) 鏈伸長劑反應而得的熱塑性聚胺酯系樹脂。

且於熱塑性聚胺酯系樹脂內，除具有胺酯鍵結之聚胺酯樹脂以外，亦含有具有胺酯鍵結及脲鍵結之聚胺酯脲樹脂。

至於 (E) 成分之多元醇化合物，宜為採用聚酯多元醇、聚酯聚醚多元醇、聚酯聚碳酸酯多元醇、聚己內酯多元醇、或此等的混合物。

此種 (E) 成分之多元醇化合物之數量平均分子量宜為 1,000 ~ 5,000，較宜為 1,500 ~

3,000。多元醇化合物之數量平均分子量若過少時，則所得的熱塑性聚胺酯系樹脂薄膜之耐熱性、抗拉伸長率等的物理特性有降低的情形。另一方面，若過去時，則合成時之黏度上升，有所得的熱塑性聚胺酯系樹脂之製造安性降低的情形，且在此所謂之多元醇化合物之數量平均分子量，不論何者意指均依 J I S K 1 5 7 7 測定的羥基價為準算出的數量平均分子量。

至於 (F) 成分之聚異氰酸酯化合物，例如可舉出伸

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

### 五、發明說明 ( 37 )

甲苯基二異氰酸酯、4,4'-二苯基甲烷二異氰酸酯、對-伸苯基二異氰酸酯、1,5-伸萘基二異氰酸酯、伸,二甲苯基二異氰酸酯等的芳香族二異氰酸酯類;六亞甲基二異氰酸酯、異佛爾酮二異氰酸酯、4,4'-二環己基甲烷二異氰酸酯、氫化伸二苯基二異氰酸酯等的脂肪族或脂環式二異氰酸酯。

至於(6)成分之鏈伸長劑,係採用於分子中具有二個異氰酸酯基及反應性之活性氫原子,且分子量在300以下的低分子量化合物為宜。

至於此種低分子量化合物,可使用公知的各種化合物,例如可舉出乙二醇、丙二醇、1,3-丙二醇等脂肪族二醇;1,4-雙( $\beta$ -羥基乙氧基)苯、1,4-環己烷二醇、雙( $\beta$ -羥基乙基)對苯二甲酸酯等的芳香族二醇或脂環式二醇;肼、乙二胺、六亞甲二胺、伸二甲苯基二胺等的二胺;己二酸醯肼私胺基醇等,可單獨使用此等之一種或組合使用二種以上。

且於上述熱塑性聚胺酯系樹脂,對(E)成分之多元醇化合物100重量分,添加(F)成分之聚異氰酸酯化合物5~200重量分,宜為20~100重量分,(G)成分之鏈伸長劑1~200重量分,宜為5~100重量分。

又,上述熱塑性樹脂,係由下式求出的膨潤率宜為150~800重量%之範圍,較宜為250~500重量%,更宜為250~400重量%。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 38 )

$$\text{膨潤率(\%)} = \frac{\text{在20°C於電解質溶液內浸漬24小時後的膨潤熱塑性樹脂之重量(g)}}{\text{在20°C於浸漬於電解質溶液前的熱塑性樹脂之重量(g)}} \times 100$$

其次，至於上述 ( I V ) 之黏結劑聚合物的氟系高分子材料，例如較宜採用聚偏二氟乙烯 ( P V D F )、偏二氟乙烯與六氟丙烯之共聚物 [ P C V D F - H F P ]、偏二氟乙烯及氯化三氟乙烯之共聚物 [ P ( V D F - C T F E ) ] 等。此等之中以偏二氟乙烯在 50 重量% 以上，以 70 重量% 以上 ( 上限值為 97 重量% 程度 ) 者為尤其合適。

此時，氟系聚合物之重量平均分子量，並未予特別限定，惟宜為 500,000 ~ 2,000,000，較宜為 500,000 ~ 1,500,000。重量平均分子量若過小時，則有物理強度顯著降低的情形。

上述分極性電極組成物，係將上述的碳質材料 ( 視必要時含有導電材 )，及黏結劑聚合物製備成溶液狀的黏結劑溶液及視必要時溶劑收容於混合容器內，予以濕式混合而可得。

且黏結劑聚合物之添加量，對碳質材料 100 重量分宜為 0.5 ~ 20 重量分，尤宜為 1 ~ 10 重量分。

藉由將如此而得的分極性電極組成物塗布於集電體上，成為可得分極性電極。至於構成集電體之正、負極，雖可任意選擇通常電雙層電容器所用者予以使用，惟至於正極集電體可使用鋁箔或氧化鋁為宜，另一方面，至於負極

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 39 )

集電體可使用以銅箔、鎳箔或表面鍍銅膜或鍍鎳膜予以形成的金屬箔為宜。

至於構成上述各集電體之箔的形狀，可採用較薄的箔狀，延展成平面之板片狀、孔洞經予形成的可沖壓的板片狀等。又至於箔之厚度，通常為 $1 \sim 200 \mu\text{m}$ 程度，惟若考慮炭質材料占電極全體之密度及電極之強度等時，則宜為 $8 \sim 100 \mu\text{m}$ ，尤宜為 $8 \sim 30 \mu\text{m}$ 。

且分極性電極係在熔融混練分極性電極組成物後，藉由擠壓、薄膜成形，亦可予成形。

至於上述間隔件，可使用通常被使用作電雙層電容器用之間隔件者。例如可使用①使間隔件基材浸漬於電解液而成者、②將分極性電極所用的聚合物黏結劑形成薄膜者、③將由上式求得的膨潤率在 $150 \sim 800$ 重量%之範圍的熱塑性樹脂予以成形後，浸漬於電解液內，使膨潤而的凝膠電解質膜而成者等。此時，可採用以上述蓄電裝置用電解液所述的各種電解液作為電解液。

至於上述①之間隔件基材，可使用通常被使用作電雙層電容器用之間隔件基材者。例如可使用聚烯烴非織物、PTFE多孔體薄膜、牛皮紙、嫘縈纖維、番麻纖維混抄板片、馬尼拉麻板片、玻璃纖維板片、纖維素系電解紙、由嫘縈纖維而成的抄紙、纖維素及玻璃纖維之混抄紙、或組合此等而構成多數層者等。

又至於間隔件，亦可使用②將分極性電極所用的聚合物黏結劑形成薄膜狀者，③將由上式求得的膨脹率在

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 40 )

150 ~ 800 重量 % 之範圍的熱塑性樹脂予以成形後，浸漬於電解液內，使膨潤而得的凝膠電解質膜而成者。

採用此等的間隔件時，電極用聚合物黏結劑（熱塑性樹脂）及組成係共同的，可一體化控制電極－間隔件間之界面，可再降低內部電阻。

本發明之電氣雙層電容器，係使由上述而得的，對分極性電極間經介在間隔件而成的電雙層電容器構造體層合、折疊或捲取，再形成硬幣型，將此收容於電池罐或層合組件等的電池容器內之後，填充電解液，若為電池罐時，則藉由裝罐，另一方面若為層合組件時，則藉由熱塑封緘，可進行組合。

本發明之之電雙層電容器，因係採用以上述一般式（1）表示的四級鉍鹽或四級磷鹽為電解質，故離子傳導度亦較習用者高，具有較高的靜電容量，同時，低溫特性優越且具有較廣的電位窗。而且，藉由使用上述的低阻抗之分極性電極，亦可賦與較高的功率密度及能量密度。

具有以上的特性之本發明之電雙層電容器，係可較合適使用於行動電路、筆記型個人電腦或攜帶用終端機等的記憶體備份電源用途、行動電話、攜帶用音響機器等的電源、個人電腦等的瞬間停電對策用電源、與太陽光發電、風力發電等組合而得的負載位準（load leveling）電源等各種水電流用之蓄電裝置。又以大電流可充放電的電雙層電容器，係較合適使用作電動汽車、電動工具等需要大電流之大電流蓄電裝置。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 4 )

〔蓄電池〕

與本發明有關的蓄電池，係於含有正極及負極，經予介在於此等正負極間之間隔件與電解液之蓄電池，採用已添加上述的離子導電性鹽之蓄電裝置用電解液（以「蓄電裝置手電解液」說明的②、③之電解液者。

在此，構成正極之正極活性物質，因應電極之用途、電池之種類等雖可予適宜選定，惟例如以設成鋰蓄電池或鋰離子蓄電池之正極時，可採用可吸附、脫附鋰離子之硫屬化合物或有鋰離子之硫屬化合物等。

至於可吸附、脫附此種鋰離子之硫屬化合物，例如可舉出  $F e S_2$ 、 $T i S_2$ 、 $M o S_2$ 、 $V_2 O_6$ 、 $V_6 O_{13}$ 、 $M n O_2$  等。

至於上述含有鋰離子之硫屬化合物，例如可舉出  $L i C o O_2$ 、 $L i M n O_2$ 、 $L i M n_2 O_4$ 、 $L i V_3 O_8$ 、 $L i M i O_2$ 、 $L i_x L i_y M_{1-y} O_2$ （惟 M 表示由 C o、M n、T i、C r、V、A l、S n、P b 及 Z n 選出的至少一種以上的金屬元素， $0.05 \leq x \leq 1.10$ ， $0.5 \leq y \leq 1.0$ ）等。

另一方面，至於上述構成負極之負極活性物質，雖因應電極之用途，電池之類等可予適當選定，然而以作成鋰蓄電池或鋰離子蓄電池之負極時，可使用能可逆的腎臟，放出由腎臟、放出鹼金屬、鹼合金、鋰離子之週期表 8、9、10、11、12、13、14 及 15 族之元素選出的至少一種氧化物、硫化物、氮化物或鋰離子之碳材

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 42 )

料。

此時，至於鹼金屬，可舉出  $Li$ 、 $Na$ 、 $K$  等，至於鹼金屬合金，例如可舉出：金屬  $Li$ 、 $Li-Al$ 、 $Li-Mg$ 、 $Li-Al-Ni$ 、 $Na$ 、 $Na-Hg$ 、 $Na-Zn$  等。

又至於由留藏放出鋰離子之週期表 8 ~ 15 族之元素選出的至少一種元素之氧化物，例如可舉出錫矽氧化物 ( $SnSiO_3$ )、鋰氧化鉍 ( $Li_3BiO_4$ )、鋰氧化鋅 ( $Li_2ZnO_2$ ) 等。

相同的至於硫化物，可舉出硫化鐵 ( $Li_xFeS_2$  ( $0 \leq x \leq 3$ ))，鋰硫化銅 ( $Li_xCuS$  ( $0 \leq x \leq 3$ )) 等。

相同的至於氮化物，可舉出鋰過渡金屬氮化物，具體而言可舉出  $Li_xM_yN$  ( $M = Co, Ni, Cu$ 、 $0 \leq x \leq 3$ 、 $0 \leq y \leq 0.5$ )、鋰鐵氮化物 ( $Li_3FeN_4$ ) 等。

再者，至於可可逆的留藏放出鋰離子之碳材料，可舉出石墨、碳黑、焦炭、玻璃狀碳、碳纖維或此等的燒結體等。

且，對構成正負極之黏結劑聚合物、間隔件、與以電雙層電容器說明者相同。又至於離子導電性鹽方面，可採用以蓄電裝置用電解液說明的導電性鹽。

以上的蓄電池，係將於正極及負極之間經予介在間隔件而成的電池構造件層合、折疊或捲取，再形成硬幣型，

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 43 )

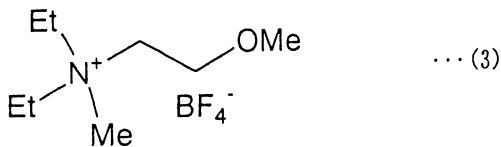
將此收容於電池罐或層合組件等的電池容器內之後，填充電解液，若為電池罐時，予以封罐、層合組件時，則藉由熱封緘可製得。

且，於電解液內，視必要時，添加（甲基）丙烯酸酯，含有環氧基化合物、熱固性胺酯等反應硬化性物質，亦可使反應硬化。

再者，採用電雙層電容器通常被使用的分極性電極作為正負極之任一極的極，至於相對的另一電極，對使用可插入。脫離通常鋰離子蓄電池使用的鋰離子之物質為活性物質之電極的混成型蓄電裝置亦可使用以上述電解液說明的②、③之電解液。

以下舉出合成例、實施例及比較例，較具體的說明本發明，惟本發明並非受下述實施例所限制者。

〔合成例 1〕化合物（3）之合成



混合二乙基胺（關東化學（股）製造）100 ml 及  
 氯化 2 - 甲氧基乙基（關東化學（股）製造）85 ml，  
 將所得的混合溶液放入壓力釜內，使在 100℃ 反應 24  
 小時。此時內壓為 1.3 kgf / cm<sup>2</sup>。24 小時後，  
 於已析出的結晶及反應液之混合物內加入已溶解氫氧化鉀  
 （片山化學工業（股）製造）56 g 的水溶液 200 ml

## 五、發明說明 ( 44 )

，以分液漏斗分液出分成二層之有機層。再者，加入二氯甲烷（和光純藥工業（股）製造）100 mL 並進行萃取操作二次。彙集已分液的有機層，以飽和食鹽水洗淨後，加入碳酸鉀（和光純藥工業（股））並乾燥、減壓過濾。用旋轉式蒸發器餾出所得的有機層之溶劑，對殘留分進行常壓蒸餾，而得沸點135℃附近的餾出18.9 g。利用<sup>1</sup>H-核磁共振光譜（以下稱作NMR）確認出此化合物為2-甲氧基乙基二乙基胺。

將所得的2-甲氧基乙基二乙基胺8.24 g 溶解於四氫呋喃（和光純藥工業（股）製造）10 mL 內，在冰冷下，加入碘化甲基（和光純藥工業（股）製造）4.0 mL。30分鐘後，取下冰浴，在室溫攪拌一晚。減壓餾出此反應溶液之溶劑，以乙醇（和光純藥工業（股）製造）-四氫呋喃系再結晶所得的固形分，而得2-甲氧基乙基二乙基甲基銨碘鹽16 g。

接著，將2-甲氧基乙基二乙基甲基銨碘鹽15.0 g 溶解於蒸餾水100 mL 內，加入氧化銀（關東化學（股）製）6.37 g，攪拌3小時。減壓過濾此反應混合物，去除沈澱物後，攪拌下，以各自少量的加入42%四氟硼酸（關東化學（股）製造）至反應液為pH 5~6附近為止。凍結乾燥此反應溶液，再者以真空泵充分餾去水，而得在室溫呈液體狀的化合物（3）12.39 g。

化合物（3）之NMR圖（溶劑：重氫仿）示於第1圖。

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

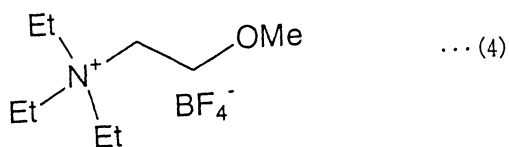
裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 45 )

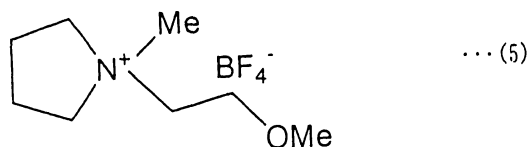
〔合成例 2〕化合物 ( 4 ) 之合成



除改變碘化甲基為碘化乙基外，餘以與合成例 1 相同的方法合成出以上式表示的化合物 ( 4 )。凍結乾燥後，由乙醇由結晶所得的白色結晶，而得純品。

化合物 ( 4 ) 之 N M R 圖 ( 溶劑：重氫仿 ) 示於第 2 圖。

〔合成例 3〕化合物 ( 5 ) 之合成



除採用吡咯烷取代二乙基胺，高壓釜之反應溫度為 90 °C 外，餘以與合成例 1 同法，合成上式表示的化合物 ( 5 )。目的物係在常溫 ( 25 ° ) 為液體。

化合物 ( 5 ) 之 N M R 圖 ( 溶劑；重氫仿 ) 示於第 3 圖。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

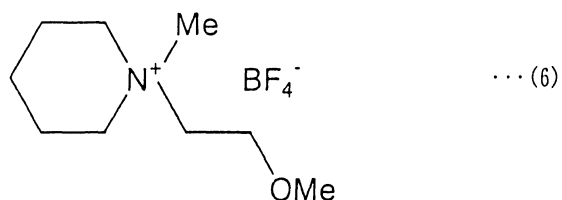
裝

訂

續

## 五、發明說明 ( 46 )

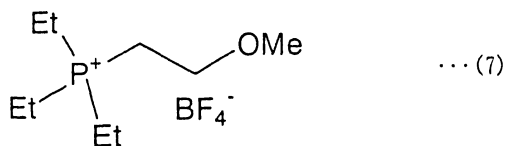
〔合成例 4〕化合物 ( 6 ) 之合成



除採用吡咯烷取代二乙基胺，高壓釜之反應溫度為 100℃ 外，餘以與合成例 1 同法，合成出上式表示的化合物 ( 6 )。目的物係在常溫 ( 25℃ ) 為液體。

化合物 ( 6 ) 之 N M R 圖 ( 溶劑：重氮仿 ) 示於第 4 圖。

〔合成例 5〕化合物 ( 7 ) 之合成



混合三乙基磷甲苯溶液 ( 含有三乙基磷約 20%、關東化學 ( 股 ) 製造 ) 200 ml、及氯化 2 - 甲氧基乙基 ( 關東化學 ( 股 ) 製造 ) 50 ml，在迴流下使反應 24 小時。其後餾出溶劑，再採用真空泵完全餾出溶劑及未反應試劑。用乙醇 - T H F 系再晶此殘留物，而得 45 g 之 2 - 甲氧基乙基三乙基磷氯化物鹽。

將所得的 2 - 甲氧基乙基三乙基磷氯化物鹽 20.0 g 溶解於蒸餾水 100 ml 內，加入氧化銀 ( 關東化學 (

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

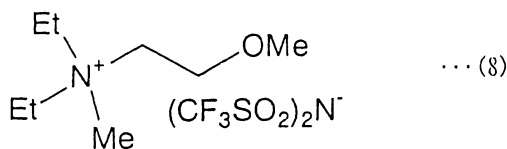
訂

線

### 五、發明說明 ( 47 )

股) 製造) 10.89 g 並攪拌 2 小時。藉由減壓過濾去除沈澱物後，攪拌下，各少量加入 42% 四氟硼酸 (關東化學 (股) 製造) 至反應液成 pH 5 ~ 6 附近。凍結乾燥此反應溶液，再以真空泵充分餾出水，而得在室溫 (25 °C) 液體狀的化合物 (7) 23.87 g。

[ 合成例 6 ] 化合物 (8) 之合成



將以與合成例 1 相同的方法而得的 2 - 甲氧基乙基二乙基甲基銨碘鹽 10.0 g 溶解於乙腈 (關東化學 (股) 製造) 50 ml 內於其中加入三氟甲烷酸鹽亞胺鋰 (Kishida 化學 (股) 製造) 9.5 g，此完全溶解後，再攪拌 15 分鐘。

減壓餾去乙腈，於殘留油內加入水，分液出已分離成 2 層之有機層，以水清洗 5 次，去除有機層中的雜質。

用真空泵使清洗後的有機層減壓，充分餾出水，而得在輕溫為液體狀的化合物 (8) 6.8 g。

化合物 (8) 之 NMR 圖 (溶劑：重氘仿) 示於第 5 圖。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

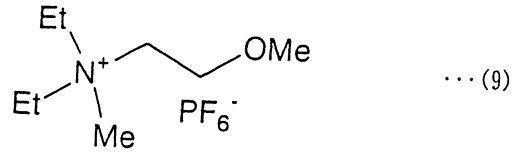
裝

訂

統

## 五、發明說明 ( 48 )

[ 合成例 7 ] 化合物 ( 9 ) 之合成

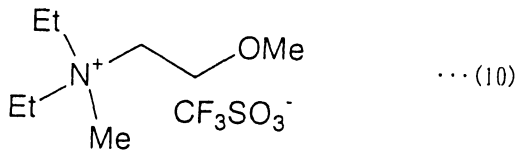


將以與合成例 1 相同的方法而得的 2 - 甲氧基乙基二乙基甲基銨碘鹽 10 . 0 g 溶解於乙腈 ( 關東化學 ( 股 ) 製造 ) 50 m L 內 , 於其中加入六氟磷酸銀 ( Aldrich 公司製造 ) 9 . 26 g , 攪拌 1 小時。

以 Celite 過濾反應液 , 去除反應液中之固體部分 , 餾出溶劑後 , 再使在真空中充分乾燥 , 而得在常溫 ( 25 °C ) 為液體之化合物 ( 9 ) 10 . 1 g 。

化合物 ( 9 ) 之 N M R 圖 ( 溶劑 : 重二甲基亞砷 ) 示於第 6 圖。

( 合成例 8 ) 化合物 ( 10 ) 之合成



除將六氟磷酸銀取代為三氟甲烷磺酸銀 ( Aldrich 公司製造 ) , 對 2 - 甲氧基乙基二乙基甲基銨鹽加入此等莫耳外 , 餘以與合成例 7 相同的方法 , 而得在常溫 ( 25 °C ) 為液體之化合物 ( 10 ) 。

( 請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁 )

裝

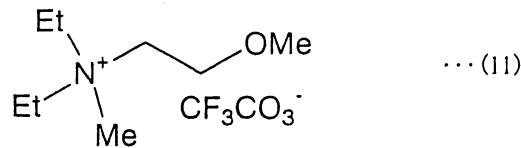
訂

線

## 五、發明說明 ( 49 )

化合物 ( 1 0 ) 之 N M R 圖 ( 溶劑 : 重二甲基亞砜 ) 示於第 7 圖。

[ 合成例 9 ] 化合物 ( 1 1 ) 之合成



除將溶劑由乙腈取代為氯仿 ( 和光純藥工業 ( 股 ) 製造 ) 外，六氟磷銀取代為三氟醋酸銀 ( Aldrich 公司製造 )，對 2 - 甲氧基乙基二乙基甲基銨碘鹽加入此等莫耳外，餘以與合成例 7 相同的方法，而得在常溫 ( 2 5 ° C ) 為液體之化合物。

化合物 ( 1 1 ) 之 N M R 圖 ( 溶劑 : 重二甲基亞砜 ) 示於第 8 圖。

[ 實施例 1 ~ 5 ] 電雙層電容器

以將合成例 1 ~ 5 而得的各電解質鹽各自經予溶解於碳酸丙烯酯 ( 以下稱作 P C ) 之 2 . 0 M 溶液為電解液，以下述步驟製作電雙層電容器。

首先，將由酚樹脂原料之鹼賦活物而成的活性碳 ( M S P - 2 0 ， 關西熱化學 ( 股 ) 製造 )、導電性碳、聚胺酯樹脂、N - 甲基吡咯烷酮 ( 以下稱 N M P ) 以活性碳 : 導電性碳 : 聚胺酯樹脂 : N M P = 4 1 . 9 : 3 . 7

( 請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁 )

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 50 )

: 2 . 2 : 5 2 . 2 之比率混合成糊狀，製備電雙層電容器之正負極的分極性電極組成物。利用刮刀塗布所得的糊狀之分極性電極組成物於鋁基板上至乾燥膜厚成 1 0 0  $\mu$  m，使在 8 0  $^{\circ}$ C 乾燥 4 小時後，壓延而得分極性電極。採用此分極性電極，使纖維素系間隔件介在於一對的分極性電極間並組合電池，注入上述各電解液而成電雙層電容器。

### [ 比較例 ]

採用一般普遍使用的四乙基銨四氟硼酸鹽（以下稱作 T E A ）作為非水系電雙層電容器用電解質鹽，使用此電解質鹽之 P C 飽和溶液（濃度約 1 . 5 M ）為電解液外，餘以與上述實施例同法製作電雙層電容器。

### [ 比較例 2 ]

除使用 T E A 溶解於 P C 成 1 M 溶液作為電解液外，餘以與上述實施例同法製作電雙層電容器。

### [ 靜電容量離子導電係數 ]

對上述各實施例及比較例而得的電雙層電容器，以下述條件進行電流密度充放電試驗，測定靜電容量，同時測定在 - 2 0  $^{\circ}$ C 之離子導電係數。

### [ 靜電容量測定條件 ]

（請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁）

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 5)

以電流密度  $1.59 \text{ mA/cm}^2$ 、 $2.0 \sim 2.5 \text{ V}$  之設定對各電雙層電容器進行充放電。以定電流充電，俟電壓達設定電壓後進行定電壓充電二小時以上後，以  $1.59 \text{ mA/cm}^2$  之電流密度進行放電，由電能之積算值算出靜電容量。結果示於表 1。

表 1

|       | 電解質鹽   | 電解質鹽<br>濃度<br>(M) | 靜電容量<br>(F/g) | 離子導電係數<br>( $-20^\circ\text{C}$ )<br>(mS/cm) |
|-------|--------|-------------------|---------------|--|
| 實施例 1 | 化合物(3) | 2.0               | 32.1          | 7.3  |
| 實施例 2 | 化合物(4) | 2.0               | 31.0          | 6.2  |
| 實施例 3 | 化合物(5) | 2.0               | 33.5          | 6.8  |
| 實施例 4 | 化合物(6) | 2.0               | 31.8          | 5.8  |
| 實施例 5 | 化合物(7) | 2.0               | 30.5          | 5.6  |
| 比較例 1 | TEA    | 飽和(1.5)           | 27.0          | -  |
| 比較例 2 | TEA    | 1.0               | 24.0          | 3.5  |

如表 1 所示，在採用本發明之電解質鹽或四級磷鹽為電解質鹽實施例 1 ~ 5，可知亦較各比較例表示出較高的靜電容量。

又，在實施例 1 ~ 5，儘管較各比較例亦在高濃度，亦不析出電解質鹽，可知較比較例 2 離子導電係數亦變高

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 52 )

，於低溫時可取出較大量的電氣量，係有用的。且在比較例 1 之電解液，電解質鹽析出使離子導電係數成爲不可測定的。

### [ 實施例 6 ] 電雙層電容器

將合成例 1 而得的電解質鹽溶於 P C 及碳酸乙烯酯 ( 以下稱 E C ) 之混合溶劑 ( P C : E C = 9 : 1 ) 內，使成濃度 2 . 0 M 之電解液後，製作二面塗布之分極性電極 ( 8 c m × 1 6 c m ) 二片，單面塗布之分極性電極 ( 8 c m × 1 6 c m ) 二片，熔 N i 標記接頭。

兩面塗布此等分極性電極並於二片的外側兩側單面塗布並組合各各一片至成正負極，以層合組合並試作電雙層電容器。對所得的電雙層電容器，進行充放電試驗，採用放電曲線並以能量換算法求取靜電容量時，爲 1 8 0 F 。

### [ 實施例 7 ] 電雙層電容器

#### ( 1 ) 活性碳之製造 ( 以聚羰二醯亞胺爲原料者 )

在四氫乙烯 5 0 0 重量分中使 2 , 4 - 伸甲基二異氰酸酯 / 2 , 6 - 伸甲苯基二異氰酸酯 ( 8 0 / 2 0 ) 之混合物 5 4 重量分與羰二醯亞胺觸媒 ( 1 - 苯基 - 3 - 甲基伸磷醯氧化物 ) 0 . 1 2 重量分，同時在 1 2 0 ° C 反應 4 小時，而得聚羰二醯亞胺溶液，藉由減壓餾去溶劑，而得粘性較高的液體狀聚羰二醯亞胺樹脂。

接著，在 3 0 0 ° C 處理所得的羰二醯亞胺樹脂 5 小時

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 53 )

並使完全固化後，在 800 °C 加熱 1 小時並使碳化。在 900 °C 對以每小時碳化物 1 重量分，以水 5 重量分之比例對此碳化物進行導入水之水蒸汽賦活處理 2 小時，而得目的之活性碳 6.2 重量分。

### ( 2 ) 電雙層電容器之製造

將合成例 1 而得的電解質鹽溶於 P C 內並使成濃度 2.0 M 之電解液，將供分極性電極用的活性碳取化成由 M S P - 20 以上述方法製作的活性碳外，餘以與實施例 6 相同的方法製作電雙層電容器。

對所得的電雙層電容器，進行充放電試驗，採用放電曲線並以能量換算法求取靜電容量時，為 178 F。

### ( 實施例 8 ) 電雙層電容器

採用活性碳 ( M S P - 20 ，關西熱化學 ( 股 ) 製造 ) 、導電材 ( Denkablack H S 100 ，電氣化學工業 ( 股 ) 製造 ) ，黏結劑 ( P V d F 900 ，吳羽化學 ( 股 ) 製造 ) ，將以配合比 ( 對活性碳 100 之配合比 ( 質量比 ) ) 為活性碳 : 導電劑 : 黏結劑 = 100 : 3 : 5 之填充物質及 N - 甲基 - 2 - 吡咯烷酮 ( N M P ) ( 一級品，片山化學工業 ( 股 ) 製造 ) ，以填充物質 : N M P = 100 : 212.5 ( 質量比 ) 之比率混合的淤漿，以寬度 90 mm 塗布於 A 1 / A 10 x 板片 ( 30 C B 、日本蓄電器工業 ( 股 ) 製造 ) ( 250 mm x 150 mm x

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 54 )

0 . 0 3 0 m m ) 後，乾燥 ( 8 0 ° C )、壓延 ( 填充密度約 0 . 7 g / c m <sup>3</sup> )，以裁切成 5 0 . 0 m m ( 內部，塗布部 4 0 . 0 m m ) × 2 0 m m 者作為電極。

此時，選擇正極為約 0 . 0 9 2 g，負極為約 0 . 0 9 6 g 之質量的電極，對正極熔接以寬度 3 . 0 m m 之 A l 帶，對負極熔接以寬度 3 . 0 m m 之 N i 帶。

對纖維素間隔件 ( 厚度 0 . 0 3 5 m m，F T 4 0 - 3 5，日本高度紙工業 ( 股 ) 製造 ) 介經已裁切成 5 4 . 0 × 2 2 . 0 m m 者二張，使如上述製作的正極二張，負極二張對向並予組合，以對上述 3 0 c B ( t = 3 0 μ m，5 0 . 0 m m × 2 0 . 0 m m ) 焊接以 A l 帶者為 A l / A l O<sub>x</sub> 參考電極並介經間隔件，而得電極群。

以合成例 6 而得的四級鹽 ( 離子性液體 ) 為電解液，對上述電極群之空間體積，注入此電解液 1 0 0 . 0 V o l % 後，在約 7 6 T o r r 減壓 3 0 分鐘，予以層合組合而得電雙層電容器。

### [ 比較例 3 ]

以 T E A ( 四乙基銨 ) - B F<sub>4</sub> 之 1 . 0 M 碳酸丙烯酯溶液 ( L I P A S T E - P / E A F I N，富山化學工業 ( 股 ) 製造 ) 為電解液，於以與上述實施例 8 同法而得的電極群內，與實施例 8 同法注入此電解液，而得電雙層電容器。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

裝

## 五、發明說明 ( 55 )

對上述實施例 8 及比較例 3 而得的電雙層電容器，進行以下的①～③之電氣試驗，評估初期容量、放電性能之度相依性、自行放電性能。

### ① 初期容量

進行下述循環三次。

充電：10 mA，2.5 V，1 mA 終止 (25 °C)

中止：1 小時 (25 °C)

放電：10 mA，0.0 V 終止 (25 °C)

### ② 溫度別放電性能

充電：10 mA，2.5 V，1 mA 終止 (X °C)

中止：6 小時 (X °C)

放電：10 mA，0.0 V 終止 (X °C)

X = -20.0、0.0、25.0、40.0、60.0

### ③ 自行放電性能

以下述條件、充電後靜置於 60 °C。

上述電氣試驗之結果示於第 9 ~ 11 圖。

如第 9 圖所示般，以實施例 8 而得的電雙層電容器，可知係可得與比較例約略同等的電氣量。

如第 10 圖所示般，以實施例 8 而得的電雙層電容器

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

裝

## 五、發明說明 ( 56 )

，可知雖於低溫側欲得放電容量一事後較難的，但是在高溫可得良好的放電容量。

如第 11 圖所示般，於自行放電性能，亦可知實施例 8 及比較例 3 而得的電雙層電容器係同等的。

如此，於採用僅以離子性液體為電解液時，可得與通常的有機電解液同等的性能之電雙層電容器，若考慮成本面、安全面時，則僅由離子性液體而成的電解液，可知能成為有用的蓄電裝置用電解液。

### [ 實施例 9 ] 蓄電池

#### ( 1 ) 電解液之製備

以於合成例 6 而得的四級鹽 ( 離子性液體 ) 70.8 重量分混合，溶解三氟磺酸醯亞胺鎂 29.2 重量分，製備電解液。

#### ( 2 ) 正極之製作

於正極活性物質之  $\text{LiCoO}_2$  91 重量分、導電劑之廚房黑 3 重量分與 N-甲基吡咯烷酮 90 重量分內攪拌、混合已溶解聚偏二氟乙烯 ( P V D F ) 10 重量分之溶液 60 重量分及 N-甲基-2-吡咯烷酮 15 重量分，製備糊狀之正極合劑。

利用刮刀將此正極合劑塗布於鋁箔上至成乾燥膜厚 100  $\mu\text{m}$  後，藉由在 80  $^{\circ}\text{C}$  乾燥 2 小時，並予壓延，製作  $\text{LiCoO}_2$  正極。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 五、發明說明 ( 57 )

### [ 3 ] 鋰蓄電池之製作

將上述而得的正極及負極之金屬鋰各自裁切成 1 2 中之大小挾持間隔件之聚烯烴多孔膜 ( E 2 5 M M S , 東燃 Tapilus ( 股 ) 製造 ) 於已切取的各正負極之間, 藉由使上述製備的電解液注液、浸漬, 製作硬幣型之鋰蓄電池。

### [ 實施例 1 0 ] 蓄電池

除採用混合、溶解合成例 1 而得的四級鹽 ( 離子性液體 ) 9 0 . 6 重量分及四氟硼酸鋰 9 . 4 重量分製作為電解液外, 餘以與實施例 9 同法製作硬幣型鋰蓄電池。

對上述實施例 9 , 1 0 而得的各蓄電池, 以充電時之上限電壓為 4 . 2 V , 放電時之終止電壓為 3 V , 以電流密度 0 . 0 2 5 m A / c m <sup>2</sup> 之電流, 充電時係藉由定電流低電壓充電, 放電時藉由定電流放電進行充放電試驗。

結果, 每單位之實施例 9 之蓄電池的 L i C o O <sub>2</sub> 之放電容量為 1 1 7 . 8 m A h / g , 每單位之實施例 1 0 之 L i C o O <sub>2</sub> 之放電容量為 1 1 5 . 4 m A h / g , 不論何者均顯示出用作鋰蓄電池之足夠的值。實施例 9 之蓄電池的充放電特性之示於第 1 2 圖。

如上述般, 若依本發明時, 因具有至少一個烷氧基烷基為取代基之四級銨鹽或四級鎘鹽而成的蓄電裝置用電解質鹽, 具有低熔點, 同時對非水系有機溶劑之溶解性優越。因此採用此等的四級鹽並製備蓄電裝置用電解液時, 較

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

裝

## 五、發明說明 ( 58 )

習用者亦可將電解液濃度設成高濃度，但因在低溫時無電解質鹽析出，故低溫特性優越，同時可提供具有較高的充放電容量、靜電容量之蓄電裝置（電雙層電容器、蓄電池、電容器等）。

又，本發明之離子性液體，係容易製造及處理，同時亦較向來為人所知的有機離子性液體具有廣寬的電位窗，可較合適用作在室溫以下的溫度可使用的新電解質，及金屬或合金之電析、電鍍用電解浴，各種電池或電容器等能量儲存用之電化學裝置用電解液。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

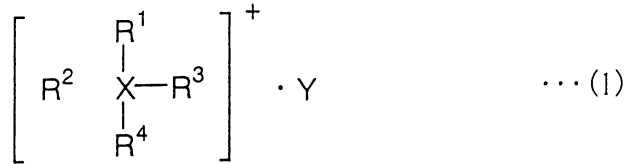
訂

裝

四、中文發明摘要(發明之名稱: )

離子性液體、蓄電裝置用電解質鹽、蓄電裝置用電解液、電雙層電容器及蓄電池

以採用以下述一般式(1)表示的四級鹽(或離子性液體)作為蓄電裝置用電解質鹽或蓄電裝置用電解液,可提供低溫特性優越的蓄電裝置。



[式內,  $R^1 \sim R^4$  係相互相同或不同的碳數 1 ~ 5 之烷基或  $R' - O - (CH_2)_n -$  表示的烷氧基烷基, 惟  $R^1 \sim R^4$  之中至少一種為前述烷氧基烷基。X 表示氮原子或磷原子, Y 表示一價的陰離子。]

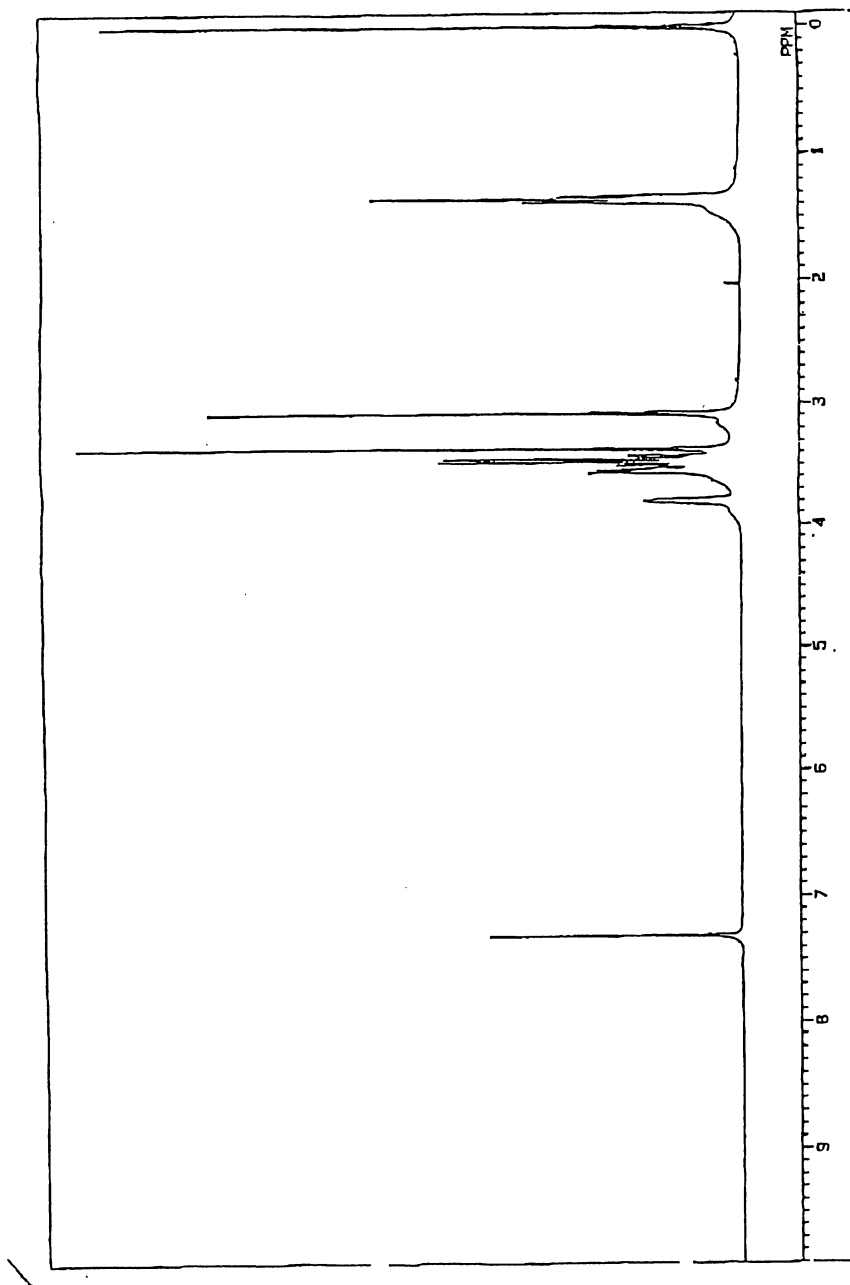
英文發明摘要(發明之名稱: )

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁各欄)

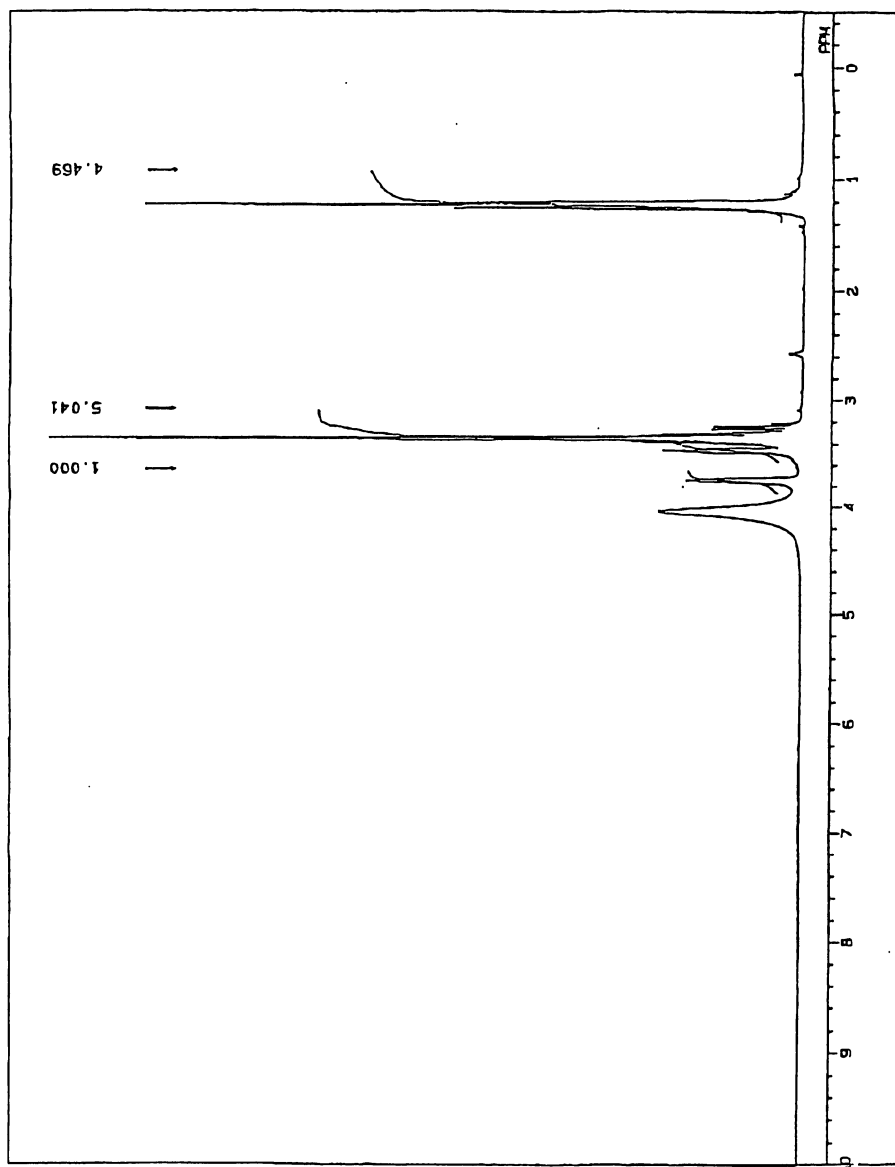
裝

訂

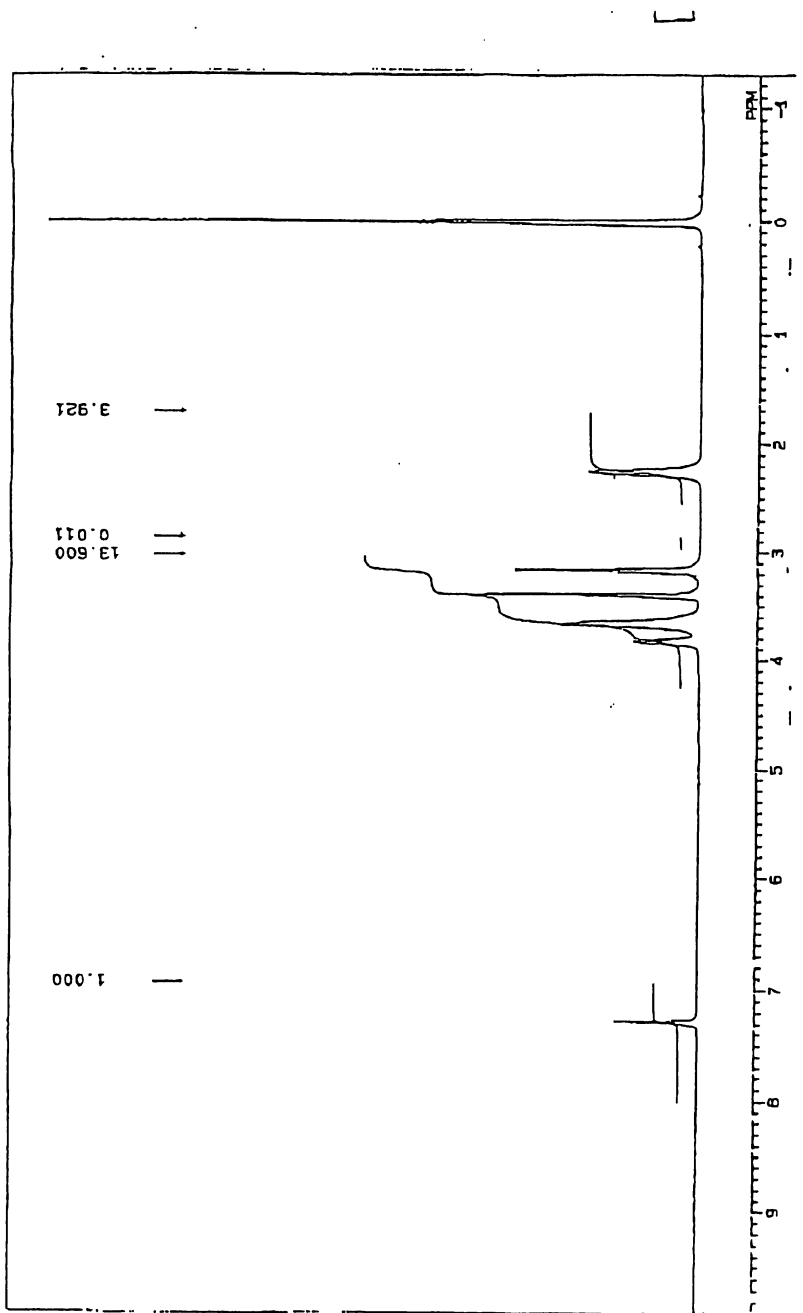
第 1 圖



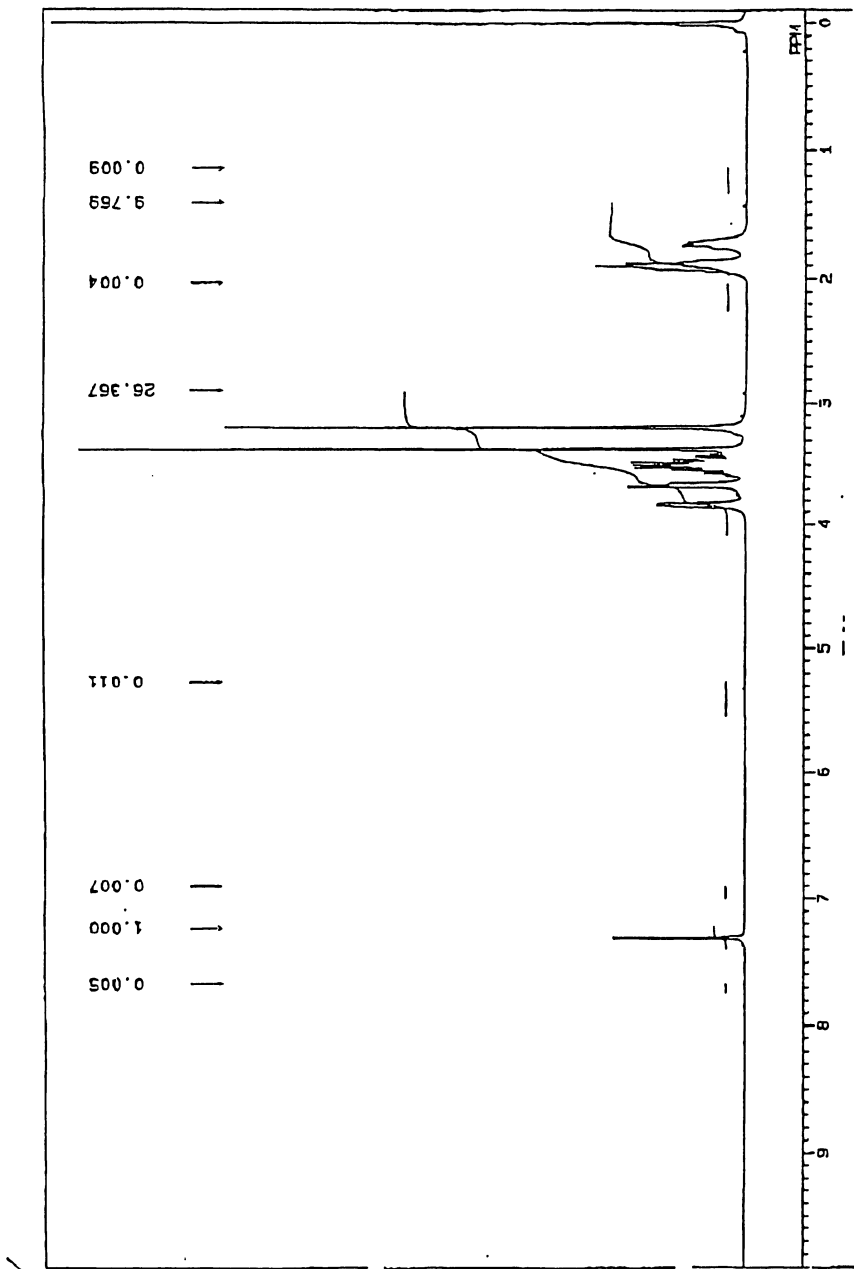
第 2 圖



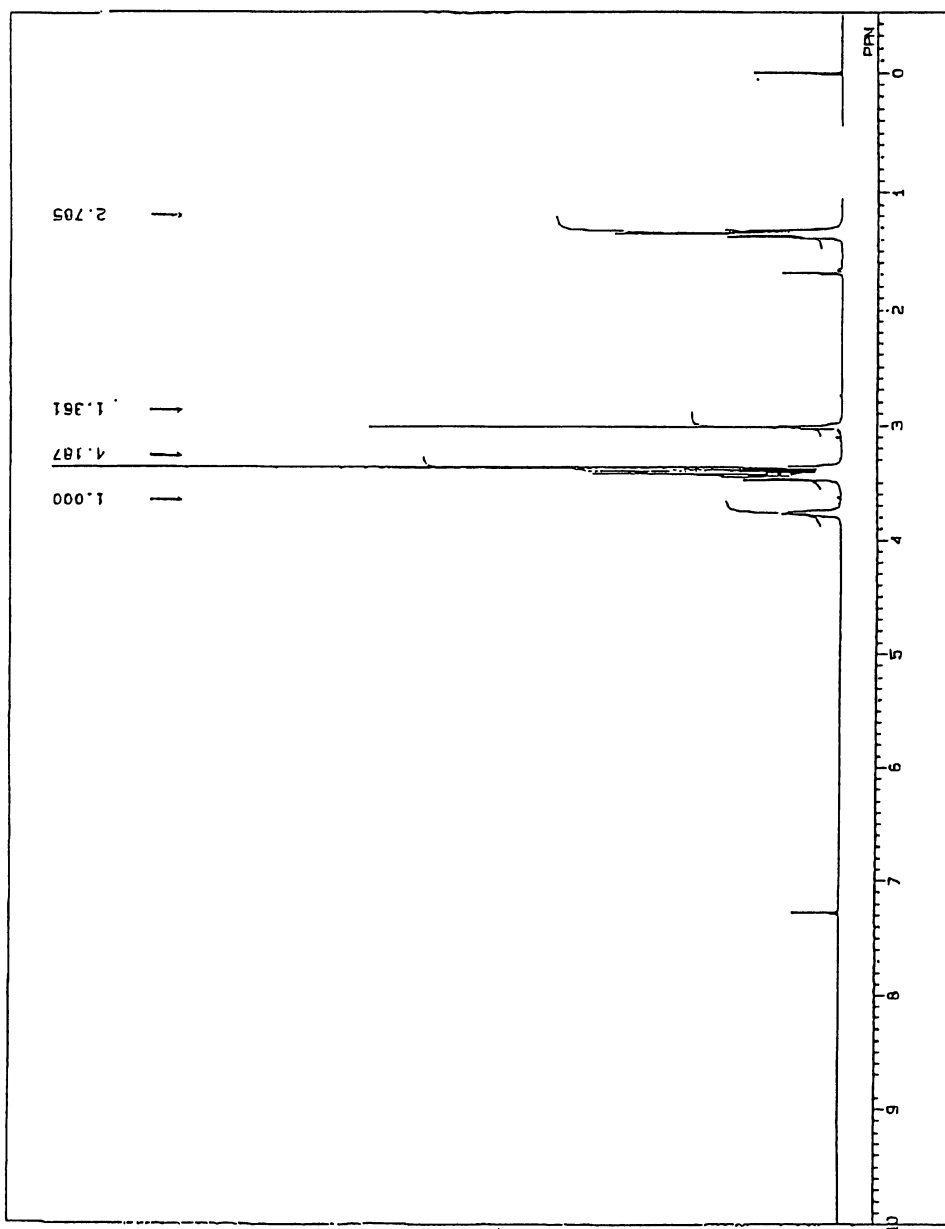
第 3 圖



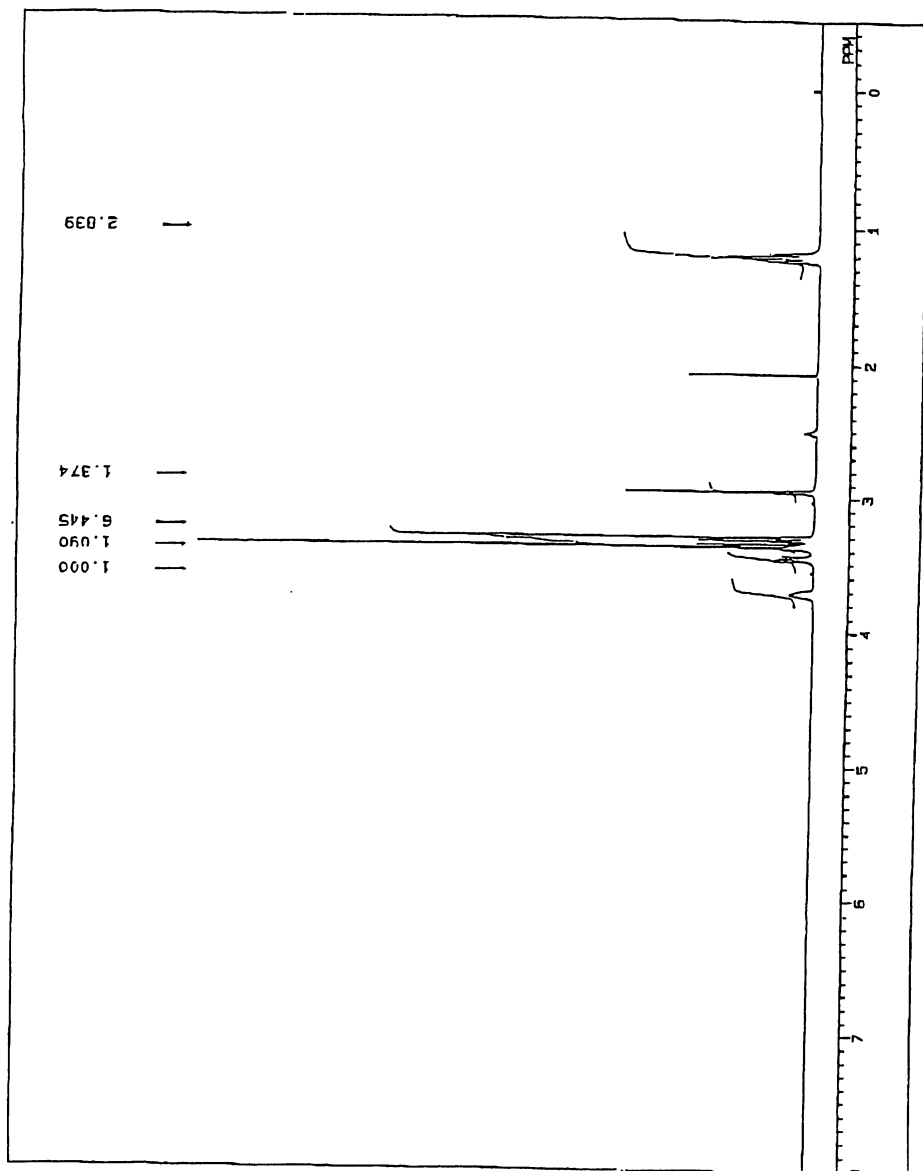
第 4 圖



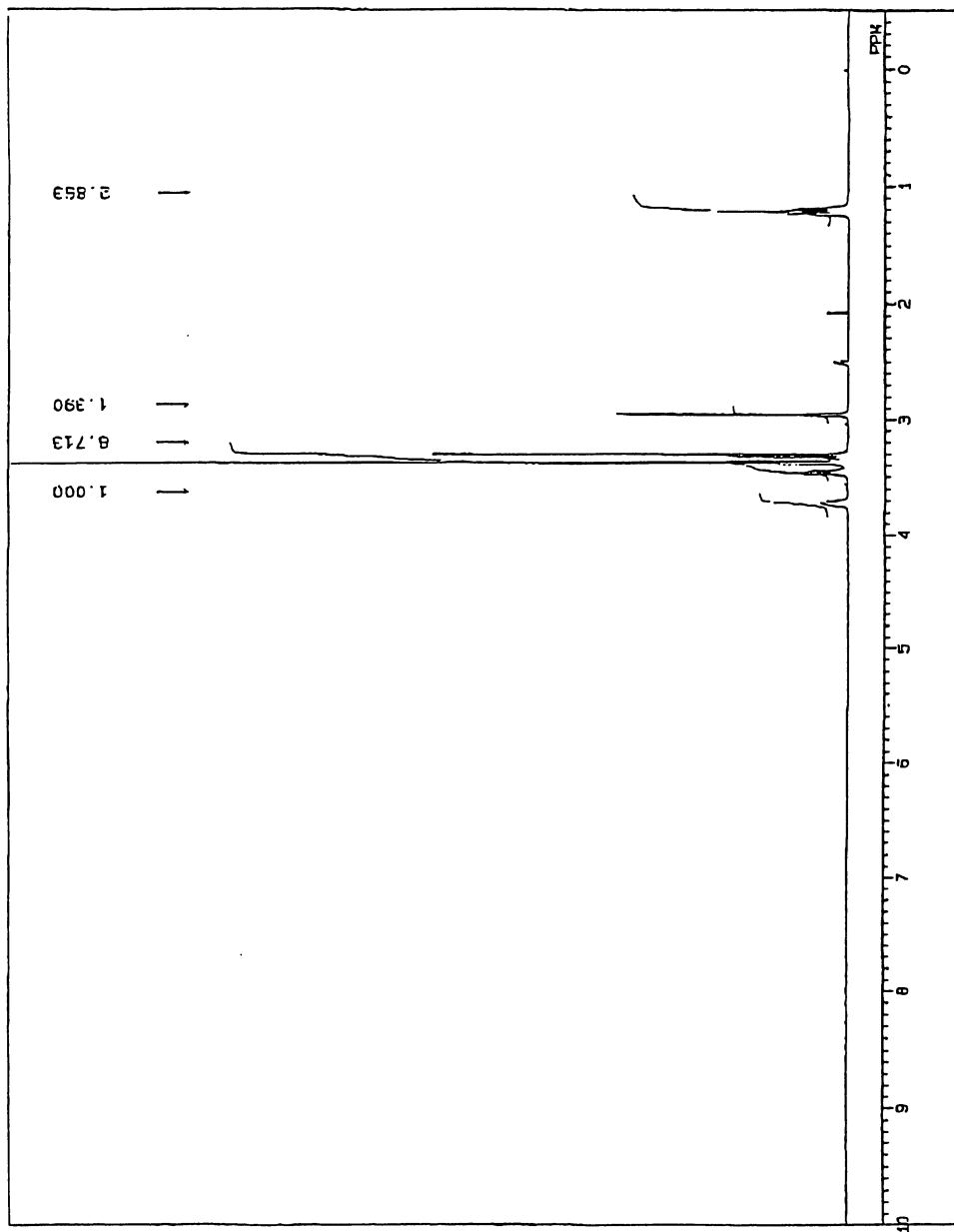
第 5 圖



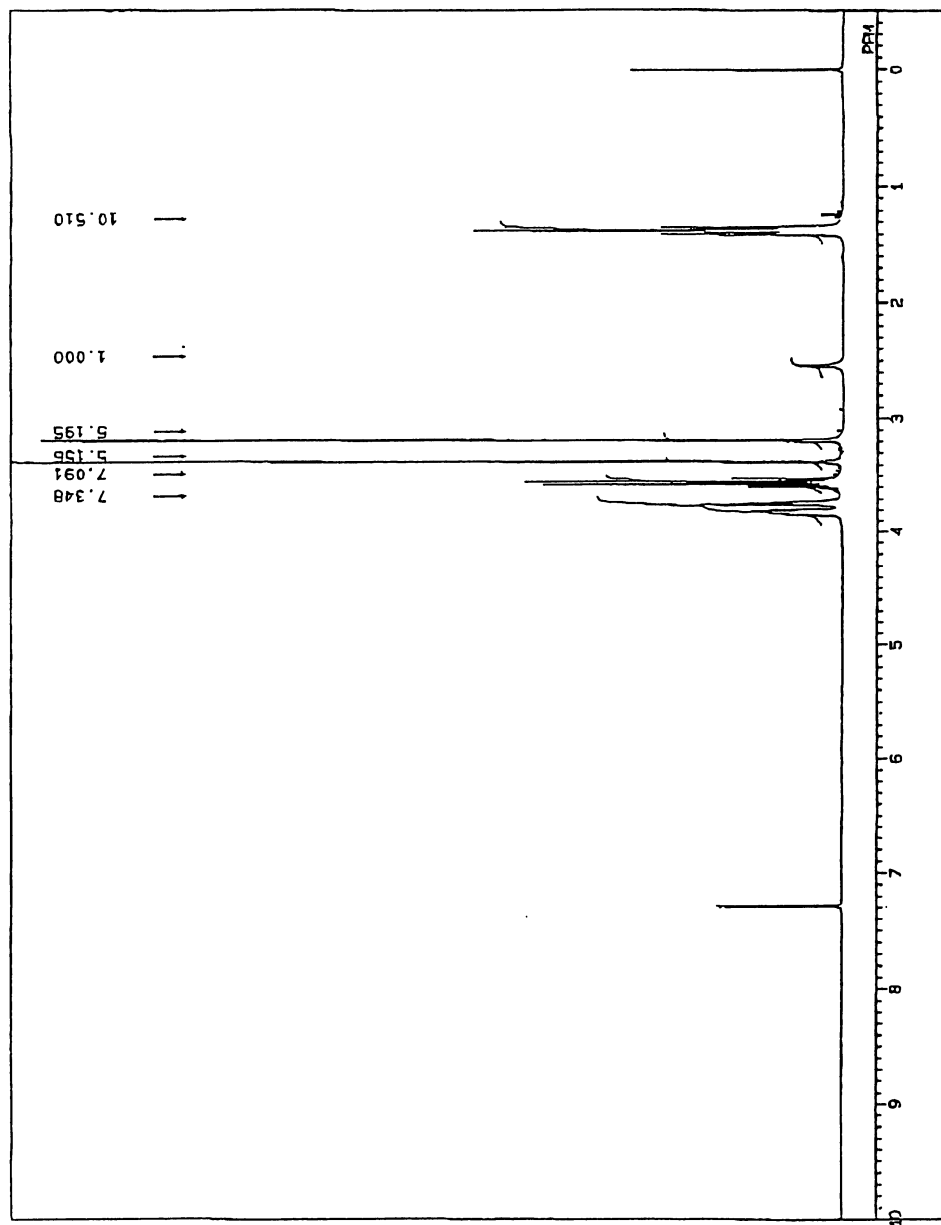
第 6 圖



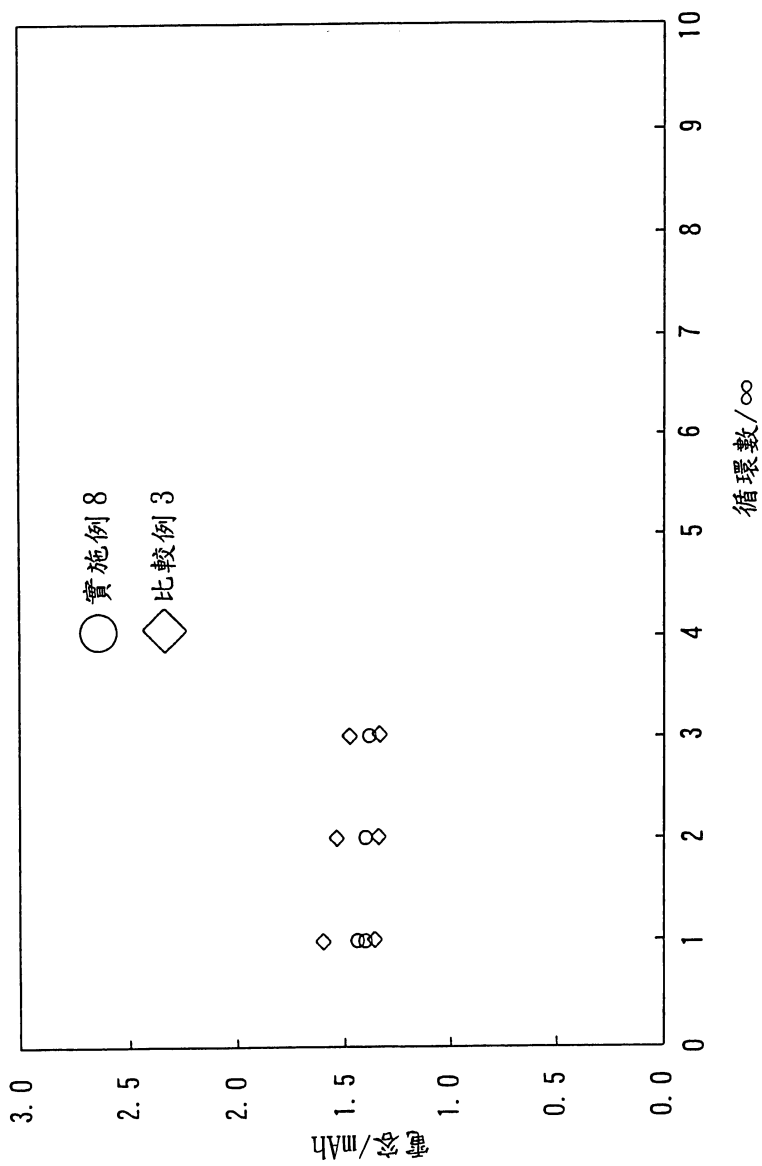
第 7 圖



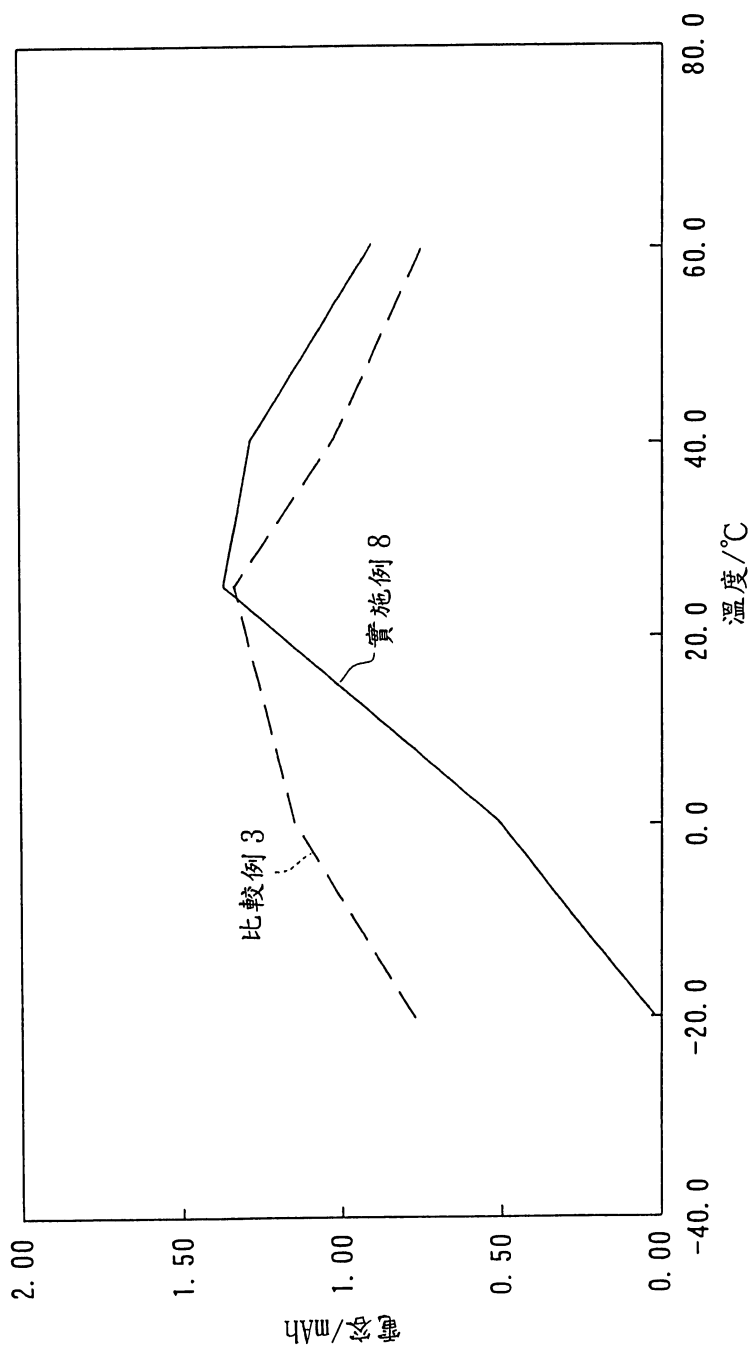
第 8 圖



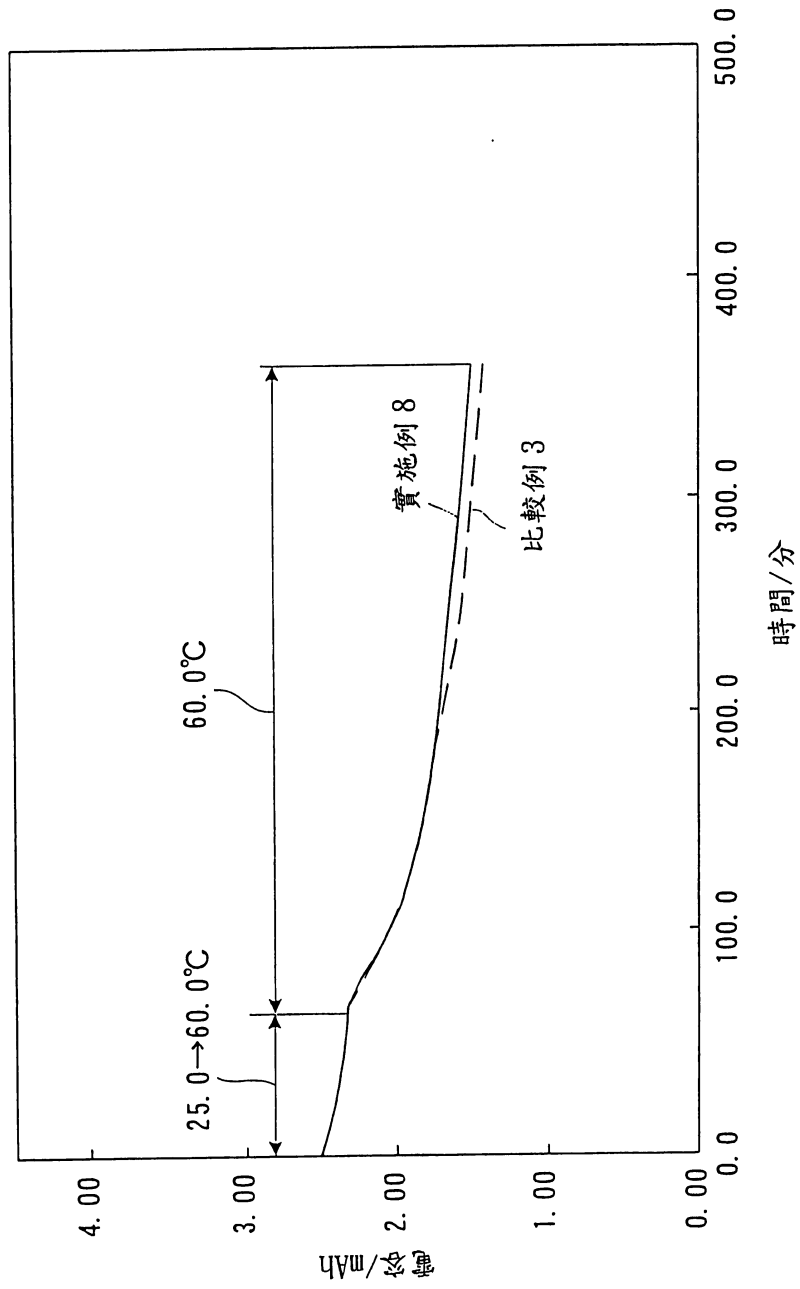
# 第 9 圖



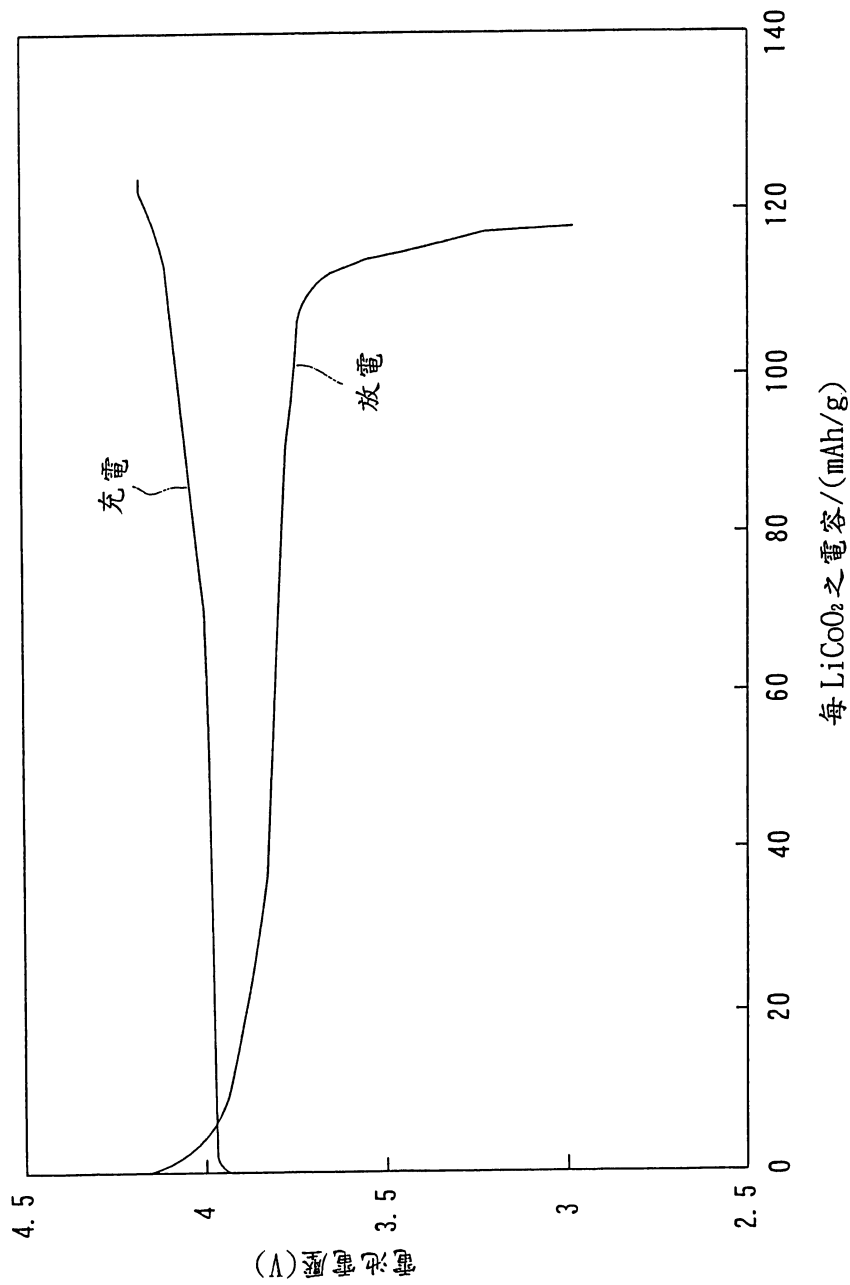
第 10 圖



第 11 圖



第 12 圖



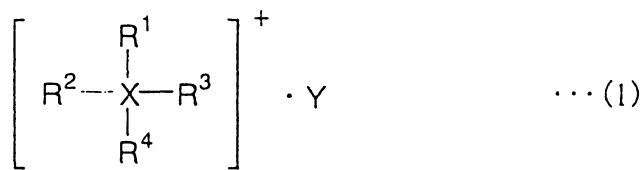
## 六、申請專利範圍

第91105879號專利申請案

中文申請專利範圍修正本

民國93年4月1日修正

1. 一種離子性液體，係以下述一般式(1)



(式內， $R^1 \sim R^4$ 係相互相同或不同的碳數1~5之烷基或 $R' - O - (CH_2)_n -$ 表示的烷氧基烷基( $R'$ 表示甲基或乙基， $n$ 為1~4之整數)，此等 $R^1$ ， $R^2$ 、 $R^3$ 及 $R^4$ 之任二個之基形成環亦可，惟 $R^1 \sim R^4$ 之中至少一種為前述烷氧基烷基； $X$ 表示氮原子或磷原子， $Y$ 表示一價的陰離子)

表示，且熔點為 $50^\circ\text{C}$ 以下者。

2. 如申請專利範圍第1項之離子性液體，係熔點在 $25^\circ\text{C}$ 以下。

3. 如申請專利範圍第1項或第2項之離子性液體，其中前述 $X$ 為氮原子。

4. 如申請專利範圍第3項之離子性液體，其中前述 $X$ 為氮原子、 $R'$ 為甲基， $n$ 為2。

5. 如申請專利範圍第1項或第2項之離子性液體，係以下式(2)

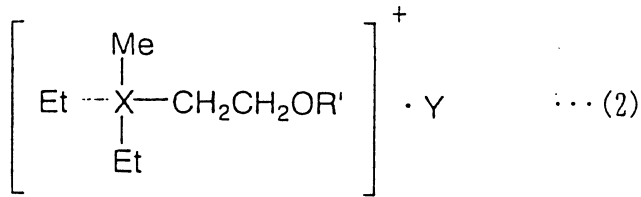
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

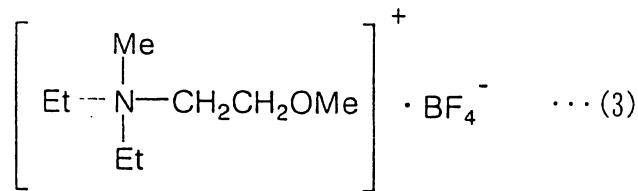
## 六、申請專利範圍



〔式內，R'表示甲基或乙基，X表示氮原子或磷原子，Y表示一價之陰離子，又Me表示甲基，Et表示乙基〕表示者。

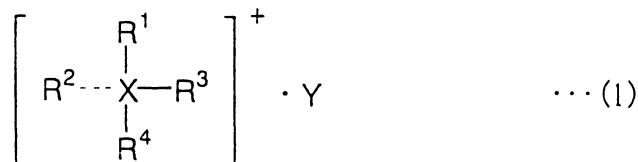
6. 如申請專利範圍第1或2項之離子性液體，其中前述Y為 $\text{BF}_4^-$ 、 $\text{PF}_6^-$ 、 $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3^-$ 或 $\text{CF}_3\text{CO}_2^-$ 。

7. 如申請專利範圍第5項之離子性液體，係以下式(3)



〔式內，M意指甲基，Et意指乙基〕表示。

8. 一種蓄電裝置用電解質鹽，其特徵在於由以下述一般式(1)



〔式內， $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ 係相互相同或不同的碳數1~5之烷基或 $\text{R}'-\text{O}-(\text{CH}_2)_n-$ 表示的烷氧基烷基(R'表示

## 六、申請專利範圍

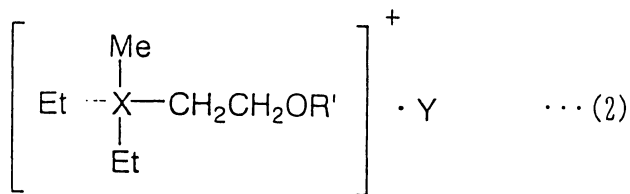
甲基或乙基， $n$  為 1 ~ 4 之整數)，此等  $R^1$ ， $R^2$ 、 $R^3$  及  $R^4$  之任二個之基亦可形成環；惟  $R^1 \sim R^4$  之中至少一種為前述烷氧基烷基， $X$  表示氮原子或磷原子， $Y$  表示一價的陰離子)

表示的四級鹽而成。

9 . 如申請專利範圍第 8 項之蓄電裝置用電解質鹽，其中前述  $X$  為由氮原子之四級銨鹽而成。

10 . 如申請專利範圍第 9 項之蓄電裝置用電解質鹽，其中前述  $X$  為氮原子， $R'$  為甲基， $n$  為 2 之四級銨鹽而成。

11 . 如申請專利範圍第 8 項之蓄電裝置用電解質鹽，係由以下述一般式 (2)



[ 式內， $R'$  表示甲基或乙基， $X$  表示氮原子或磷原子， $Y$  表示一價之陰離子，又  $Me$  意指甲基， $Et$  表示乙基 ] 表示的四級鹽所成。

12 . 如申請專利範圍第 8 至 11 項中任一項之蓄電裝置用電解質鹽，其中前述  $Y$  為  $\text{BF}_4^-$ 、 $\text{PF}_6^-$ 、

$(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3^-$  或  $\text{CF}_3\text{CO}_2^-$ 。

13 . 如申請專利範圍第 11 項之蓄電裝置用電解質鹽，係以下式 (3)

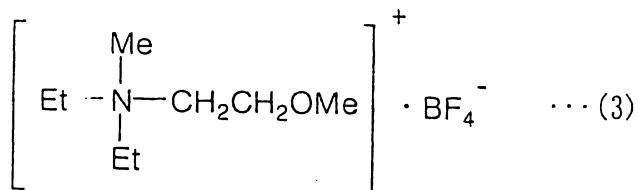
(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍



(式內，M e 意指甲基，E t 意指乙基)

表示。

1 4 . 如申請專利範圍第 8 ~ 1 1 及 1 3 項中任一項之蓄電裝置用電解質鹽，熔點係在 2 5 °C 以下。

1 5 . 如申請專利範圍第 1 2 項之蓄電裝置用電解質鹽，其中熔點係在 2 5 °C 以下。

1 6 . 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於僅由申請專利範圍第 1 至 7 項中任一項之離子性液體而成。

1 7 . 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於僅由申請專利範圍第 1 4 項之離子性液體而成。

1 8 . 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於含有申請專利範圍第 1 至 7 項中任一項之離子性液體之至少一種與非水系有機溶劑而成。

1 9 . 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於有申請專利範圍第 8 至 1 3 項中任一項之蓄電裝置用電解質鹽之至少一種及非水系有機溶劑而成。

2 0 . 如申請專利範圍第 1 8 或 1 9 項之蓄電裝置用電解液，其中前述非水系有機溶劑係含有碳酸乙烯酯或碳酸丙烯酯為主成分之混合溶劑。

2 1 . 如申請專利範圍第 1 8 或 1 9 項之蓄電裝置用電解液，其中前述非水系有機溶劑係由碳酸乙烯酯、碳酸

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍

丙烯酸酯、碳酸乙烯基酯、碳酸二甲基酯、碳酸乙基甲基酯及碳酸二乙基酯選出的一種或二種以上之混合溶劑。

2 2 . 一種電雙層電容器，其係於含有一對的分極性電極，夾雜於這些分極性電極間の間隔件及電解液之電雙層電容器，其特徵為採用申請專利範圍第 1 6 至 2 1 項中任一項之蓄電裝置用電解液作為電解液。

2 3 . 如申請專利範圍第 2 2 項之電雙層電容器，其中前述分極性電極為含有由樹脂而成的碳質材料為主成分。

2 4 . 如申請專利範圍第 2 3 項之電雙層電容器，其中前述樹脂係酚樹脂或聚羰二醯亞胺樹脂。

2 5 . 如申請專利範圍第 2 3 項之電雙層電容器，其中前述碳質材料係酚樹脂或聚羰二醯亞胺樹脂經碳化後，進行賦活處理而成者。

2 6 . 一種蓄電裝置用電解液，其特徵在於由申請專利範圍第 1 6 或 1 7 項之蓄電裝置用電解液及常溫為固態的離子導電性鹽而成。

2 7 . 如申請專利範圍第 2 6 項之蓄電裝置用電解液，其中前述離子導電性鹽係鋰鹽。

2 8 . 如申請專利範圍第 2 6 或第 2 7 項之蓄電裝置用電解液，係再含有非水系有機溶劑。

2 9 . 一種蓄電池，其係含有正極及負極，夾雜於這些分極性電極間の間隔件及電解液之蓄電池，其特徵為採用申請專利範圍第 2 6 ， 2 7 或 2 8 項之蓄電裝置用電解

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線

## 六、申請專利範圍

液作為前述電解液。

30 . 一種電雙層電容器，其係含有一對的分極性電極，夾雜於這些分極性電極間の間隔件及電解液之電雙層電容器，其特徵為採用申請專利範圍第26，27或28項之蓄電裝置用電解液作為前述電解液。

31 . 一種蓄電裝置，其係含有正極及負極，夾雜於這些正負極の間隔件及電解液之蓄電裝置，其特徵係前述正極為活性碳，且前述負極係可吸留、釋放鋰之碳質材料，同時前述電解液為如申請專利範圍第26，27或28項之蓄電裝置用電解液。

(請先閱讀背面之注意事項再填寫本頁)

裝

訂

線