(19)日本国特許庁(JP)　(12)公表特許公報(A)　(11)公表番号
特表2025-516949
(P2025-516949A)
(43)公表日　令和7年5月30日(2025.5.30)

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
H01M	*50/426(2021.01)*	H01M	50/426	5E078
H01M	*10/052(2010.01)*	H01M	10/052	5H021
H01M	*10/0569(2010.01)*	H01M	10/0569	5H029
H01M	*50/42 (2021.01)*	H01M	50/42	
H01M	*50/434(2021.01)*	H01M	50/434	

審査請求　未請求　予備審査請求　未請求　（全33頁）　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2024-569303(P2024-569303)
(86)(22)出願日　令和5年5月23日(2023.5.23)
(85)翻訳文提出日　令和7年1月21日(2025.1.21)
(86)国際出願番号　PCT/FR2023/050727
(87)国際公開番号　WO2023/227846
(87)国際公開日　令和5年11月30日(2023.11.30)
(31)優先権主張番号　2204963
(32)優先日　令和4年5月24日(2022.5.24)
(33)優先権主張国・地域又は機関
フランス(FR)
(81)指定国・地域　AP(BW,CV,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(AL,AT,BE,BG,CH,CY,CZ,DE,DK,EE,ES,FI,FR,GB,GR,HR,HU,IE,IS,IT,LT,LU,LV
最終頁に続く

(71)出願人　505005522
アルケマ フランス
フランス国 コロンブ、９２７００ リュ、デスティエンヌ、ドルブ、４２０
(74)代理人　110001173
弁理士法人川口國際特許事務所
(72)発明者　ビション，マリー
フランス国、６９４９１・ピエール－ベニット・セデックス、リュ・アンリ・モワサン、セ・エス・４２０６３、アルケマ・フランス－セ・エール・エール・アボーム
(72)発明者　フランソワ
フランス国、６９４９１・ピエール－ベニット・セデックス、リュ・アンリ・モワサン、セ・エス・４２０６３、アルケ
最終頁に続く

(54)【発明の名称】　ＰＶＤＦを含有するセパレータと、高粘度又は高極性の電解質組成物とを含む電気化学デバイス

(57)【要約】
本発明は、セパレータ及び電解質組成物を含む電気化学デバイスであって、前記セパレータは、フッ化ビニリデンのモノマー単位と、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－ＮＨＣ（CH_3）$_2$ＣＨ$_2$Ｃ（Ｏ）ＣＨ$_3$、又はＯＲ’（Ｒ’は、Ｈ及び１個以上の－ＯＨ基で置換されていてもよいC_6～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位とを含むポリマー樹脂を含む少なくとも１つのコーティングを含み、前記電解質組成物は、溶媒及びリチウム塩を含み、該電解質組成物は、２０℃及び２０s^{-1}の剪断で測定して２ｃＰを超える粘度を有するか、又は、該溶媒は、２５℃で２デバイを超える双極子モーメントを有するデバイスに関する。

【特許請求の範囲】
【請求項１】
セパレータ及び電解質組成物を含む電気化学デバイスであって、
ｉ） 前記セパレータは、フッ化ビニリデンのモノマー単位と、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－NHC（CH_3）$_2CH_2C(O)CH_3$、又はOR’（ただし、R’は、H及び１個以上の－OH基で置換されていてもよいC_1～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位とを含むポリマー樹脂を含む少なくとも１つのコーティングを含み、
ｉｉ） 前記電解質組成物は、溶媒及びリチウム塩を含み、電解質組成物は、２０℃及び$20s^{-1}$の剪断で測定して２ｃＰを超える粘度を有するか、又は、溶媒は、２５℃で２デバイを超える双極子モーメントを有する
ことを特徴とする、電気化学デバイス。
【請求項２】
前記電解質組成物が、２０℃及び$20s^{-1}$の剪断で測定して、５ｃＰを超える、好ましくは１０ｃＰを超える、特に１５ｃＰを超える粘度を有することを特徴とする、請求項１に記載の電気化学デバイス。
【請求項３】
前記溶媒が、２５℃で、２．５デバイを超える、好ましくは３．０デバイを超える、より優先的には３．５デバイを超える、特に４．０デバイを超える双極子モーメントを有することを特徴とする、請求項1に記載の電気化学デバイス。
【請求項４】
前記ポリマー樹脂が、フッ化ビニリデンのモノマー単位と式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$のモノマー単位を含むコポリマーであるか、又は、前記ポリマー樹脂が、フッ化ビニリデンのモノマー単位を含むフルオロポリマーと、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－NHC（CH_3）$_2CH_2C(O)CH_3$、又はOR’（ただし、R’は、H及び１個以上の－OH基で置換されていてもよいC_1～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位を含むアクリルポリマーとの混合物であることを特徴とする、請求項１～３のいずれか一項に記載の電気化学デバイス。
【請求項５】
前記ポリマー樹脂が、フッ化ビニリデンのモノマー単位を含むフルオロポリマーと、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－NHC（CH_3）$_2CH_2C(O)CH_3$、又はOR’（ただし、R’は、H及び１個以上の－OH基で置換されていてもよいC_1～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位を含むアクリルポリマーとの混合物であり、、前記フルオロポリマーが、ポリフッ化ビニリデンホモポリマー、及びフッ化ビニリデンと、フッ化ビニリデンと相溶性のある少なくとも１種のコモノマーとをベースとするコポリマーの群から選択されることを特徴とする、請求項１～４のいずれか一項に記載の電気化学デバイス。
【請求項６】
前記コモノマーが、フッ化ビニル、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、トリフルオロプロペン、テトラフルオロプロペン、ヘキサフルオロイソブチレン、ペルフルオロブチルエチレン、ペンタフルオロプロペン、ペルフルオロアルキルビニルエーテル、ブロモトリフルオロエチレン、クロロフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン、クロロトリフルオロプロペン及びエチレンからなる群から選択されることを特徴と

する、請求項１～５のいずれか一項に記載の電気化学デバイス。
【請求項７】
前記フルオロポリマーが、ポリフッ化ビニリデンヘキサフルオロプロピレンコポリマーであって、該コポリマーの重量に対して２重量％～２５重量％、好ましくは４重量％～１５重量％のヘキサフルオロプロピレンモノマー単位の重量パーセントを有するポリフッ化ビニリデンヘキサフルオロプロピレンコポリマーであることを特徴とする、請求項５又は請求項６に記載の電気化学デバイス。
【請求項８】
前記フルオロポリマーが、以下の官能基、すなわち、カルボン酸、カルボン酸無水物、カルボン酸エステル、エポキシ基、アミド、ヒドロキシル、カルボニル、メルカプト、スルフィド、オキサゾリン、フェノール、エステル、エーテル、シロキサン、スルホン酸、硫酸、リン酸又はホスホン酸の少なくとも１つを有するモノマー単位を含むことを特徴とする、請求項５～７のいずれか一項に記載の電気化学デバイス。
【請求項９】
前記アクリルポリマーが、メチルアクリレート、エチルアクリレート、プロピルアクリレート、ｎ－ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、ｔ－ブチルアクリレート、ｎ－ドデシルアクリレート、アミルアクリレート、イソアミルアクリレート、ヘキシルアクリレート、２－エチルヘキシルアクリレート、ジアセトンアクリルアミド、ラウリルアクリレート、ｎ－オクチルアクリレート、ヒドロキシブチルアクリレート、ヒドロキシプロピルメタクリレート、メチルアクリル酸、メチルメタクリレート、ウレイドメタクリレート及びそれらの組み合わせからなる群から選択されるモノマーを含有することを特徴とする、請求項５～８のいずれか一項に記載の電気化学デバイス。
【請求項１０】
前記コーティングが、$BaTiO_3$、$Pb(Zr,Ti)O_3$、$Pb_{1-x}La_xZr_yO_3$（$0<x<1$、$0<y<1$）、$PBMg_3Nb_{2/3})_3$、$PbTiO_3$、ハフニア（$HfO(HfO_2)$）、$SrTiO_3$、SnO_2、CeO_2、MgO、NiO、CaO、ZnO、Y_2O_3、ベーマイト（y－AlO（OH））、Al_2O_3、TiO_2、SiC、ZrO_2、ホウ素ケイ酸塩、$BaSO_4$、ナノクレイ、又はそれらの混合物からなる群から選択される無機粒子を含むことを特徴とする、請求項１～９のいずれか一項に記載の電気化学デバイス。
【請求項１１】
Ｌｉイオン電池、キャパシタ、電気二重層キャパシタ、及び燃料電池用の膜電極接合体（ＭＥＡ）からなる群から選択され、好ましくはＬｉイオン電池であることを特徴とする、請求項１～１０のいずれか一項に記載のデバイス。
【請求項１２】
Ｌｉイオン二次電池であり、アノード及びカソードも含むことを特徴とする、請求項１～１１のいずれか一項に記載のデバイス。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、一般に、Ｌｉイオンタイプの充電式蓄電池における電気エネルギーの貯蔵の分野に関する。より具体的には、本発明は、高粘度又は高極性の電解質に特に適合させたセパレータを含む電気化学デバイスに関する。
【背景技術】
【０００２】
電気化学デバイス用のセパレータの市場は、乾式又は湿式プロセスを使用する押出及び／又は延伸によって製造されるポリオレフィン（例えば、Ｃｅｌｇａｒｄ（登録商標）又はＨｉｐｏｒｅ（登録商標））の使用によって支配されている。セパレータは、同時に、薄い厚さ、充分な機械的強度及び耐熱性、それらが曝される電圧に対する良好な電気化学的耐性、電解質に対する最適な親和性を有しなければならず、より一般的には、優れたイ

オン伝導性を可能にしなければならない。ポリオレフィンの最も有利な代替物の中で、標準電解質に対してより良好な親和性を示すポリマー、例えばポリ（メチルメタクリレート）（ＰＭＭＡ）、ポリ（フッ化ビニリデン）（ＰＶＤＦ）及びポリ（フッ化ビニリデン－ｃｏ－ヘキサフルオロプロペン）（Ｐ（ＶＤＦ－ｃｏ－ＨＦＰ））が、システムの内部抵抗を低減するために提案されてきた。別の選択肢は、ポリオレフィンセパレータの１つ又は２つの面にコーティングを堆積させることにある。電気化学デバイスに使用される電解質の存在下では、セパレータは、前記デバイスの良好な効率を可能にするために良好な湿潤性を有していなければならない。しかし、ポリプロピレン又はポリエチレンなどのポリオレフィンをベースとするセパレータは、高粘度電解質の存在下又は高極性電解質の存在下で低い湿潤性を有する。そのため、電気化学デバイスは、その初期性能（セルの構築及びその生産性に対する悪影響）を達成するために、長い誘導期間によって不利になり、次いで、より一般的には、充電及び放電の両方に関して不良な性能を示す。

【０００３】

ポリ（フッ化ビニリデン）（ＰＶＤＦ）及びその誘導体は、それらの電気化学的安定性、及びイオンの解離、したがって導電性を促進するそれらの高い誘電率に関して、ポリオレフィンセパレータコーティングとしての利点を示す。フッ化ビニリデン（ＶＤＦ）及びヘキサフルオロプロピレン（ＨＦＰ）のＰ（ＶＤＦ－ｃｏ－ＨＦＰ）コポリマーの結晶化度は、ＰＶＤＦの結晶化度よりも低い。このため、これらのＰ（ＶＤＦ－ｃｏ－ＨＦＰ）コポリマーの利点は、それらが導電性を促進することである。

【０００４】

文献ＥＰ２，５２８，１４１号には、多孔質基材、接着層及び極性電解質を含む二次電池用セパレータが記載されている。極性電解質存在下でのこのセパレータの湿潤性は充分ではないことが分かった。

【０００５】

したがって、実施が容易であり、高粘度電解質又は高極性電解質に対する良好な湿潤性を示しながら、乾燥接着性、湿潤状態での接着性、イオン伝導性及び熱安定性の間の良好な妥協点を示す、セパレータのための新規コーティングを開発することが依然として必要とされている。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００６】

【特許文献１】欧州特許出願公開第２５２８１４１号明細書

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００７】

したがって、本発明の目的は、先行技術の欠点の少なくとも１つを克服すること、すなわち、高粘度電解質又は高極性電解質に対する湿潤性を促進することができるセパレータ用のポリマーコーティングを提案することである。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

本発明は、以下を特徴とする、セパレータ及び電解質組成物を含む電気化学デバイスであって、

ｉ）　前記セパレータは、フッ化ビニリデンのモノマー単位と、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、Ｈ及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Ｒは、$-NHC(CH_3)_2CH_2C(O)CH_3$、又はOR'（ただし、Ｒ’は、Ｈ及び１個以上の－ＯＨ基で置換されていてもよいC_1～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位とを含むポリマー樹脂を含む少なくとも１つのコーティングを含み、

ｉｉ）　前記電解質組成物は、溶媒とリチウム塩とを含み、該電解質組成物は、２０℃及

び２０ｓ$^{-1}$の剪断で測定して２ｃＰを超える粘度を有するか、又は、該溶媒は、２５℃で２デバイを超える双極子モーメントを有する
ことを特徴とする、電気化学デバイスを提供する。

【０００９】

フルオロ－アクリルポリマー樹脂をベースとする特定のコーティングの使用は、使用される電解質組成物が高い粘度又は高い極性を有する場合に効率的かつ効果的な電気化学デバイスを使用することを可能にする。これらの性能は、特に湿潤性に関して、高度に求められている。実際、観察された良好な湿潤性は、セパレータ内、ひいてはリチウムイオン電池内での粘性又は高極性の電解質の均一な分布を達成するために必要な時間を短縮することを可能にする。また、湿潤性が向上することにより、電池充填率を高めることができる。セパレータがアクリレート又はアクリル成分を含まないポリオレフィン又はフルオロポリマーをベースとする場合、粘性又は高極性の電解質組成物のこの均一な分布は観察されないか、又は達成するのが困難である。

【００１０】

好ましい実施形態によれば、前記電解質組成物は、２０℃及び２０ｓ$^{-1}$の剪断で測定して、５ｃＰを超える、好ましくは１０ｃＰを超える、特に１５ｃＰを超える粘度を有する。

【００１１】

好ましい実施形態によれば、前記電解質組成物は、２０℃及び２０ｓ$^{-1}$の剪断で測定して１０００ｃＰ未満の粘度を有する。

【００１２】

好ましい実施形態によれば、前記溶媒は、２５℃で２．５デバイを超える、好ましくは３．０デバイを超える、より優先的には３．５デバイを超える、特に４．０デバイを超える双極子モーメントを有する。

【００１３】

好ましい実施形態によれば、前記ポリマー樹脂は、フッ化ビニリデンのモノマー単位と式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$のモノマー単位とを含むコポリマーであるか、又は、前記ポリマー樹脂は、フッ化ビニリデンのモノマー単位を含むフルオロポリマーと、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－ＮＨＣ（CH_3）$_2$ＣＨ$_2$Ｃ（Ｏ）ＣＨ$_3$、又はＯＲ’（ただし、Ｒ’は、Ｈ及び１個以上の－ＯＨ基で置換されていてもよいC_1～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位を含むアクリルポリマーとの混合物である。

【００１４】

好ましい実施形態によれば、前記ポリマー樹脂は、フッ化ビニリデンのモノマー単位を含むフルオロポリマーと、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－ＮＨＣ（CH_3）$_2$ＣＨ$_2$Ｃ（Ｏ）ＣＨ$_3$、又はＯＲ’（ただし、Ｒ’は、Ｈ及び１個以上の－ＯＨ基で置換されていてもよいC_1～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位を含むアクリルポリマーとの混合物であり、前記フルオロポリマーは、ポリフッ化ビニリデンホモポリマー、及びポリフッ化ビニリデンと、フッ化ビニリデンと相溶性のある少なくとも１種のコモノマーをベースとするコポリマーの群から選択される。

【００１５】

好ましい実施形態によれば、前記コモノマーは、フッ化ビニル、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、トリフルオロプロペン、テトラフルオロプロペン、ヘキサフルオロイソブチレン、ペルフルオロブチルエチレン、ペンタフルオロプロペン、ペルフルオロアルキルビニルエーテル、ブロモトリフルオロエチレン、クロロフルオロエチレ

ン、クロロトリフルオロエチレン、クロロトリフルオロプロペン及びエチレンから選択される。

【００１６】

好ましい実施形態によれば、前記フルオロポリマーは、コポリマーの重量に対して２重量％～２５重量％、好ましくは４重量％～１５重量％のヘキサフルオロプロピレンモノマー単位の重量パーセントを有するポリフッ化ビニリデン－ヘキサフルオロプロピレンコポリマーである。

【００１７】

好ましい実施形態によれば、前記フルオロポリマーは、以下の官能基、すなわち、カルボン酸、カルボン酸無水物、カルボン酸エステル、エポキシ基、アミド、ヒドロキシル、カルボニル、メルカプト、スルフィド、オキサゾリン、フェノール、エステル、エーテル、シロキサン、スルホン酸、硫酸、リン酸又はホスホン酸の少なくとも１つを有するモノマー単位を含む。

【００１８】

好ましい実施形態によれば、前記アクリルポリマーは、メチルアクリレート、エチルアクリレート、プロピルアクリレート、ｎ－ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、ｔ－ブチルアクリレート、ｎ－ドデシルアクリレート、アミルアクリレート、イソアミルアクリレート、ヘキシルアクリレート、２－エチルヘキシルアクリレート、ジアセトンアクリルアミド、ラウリルアクリレート、ｎ－オクチルアクリレート、ヒドロキシブチルアクリレート、ヒドロキシプロピルメタクリレート、メチルアクリル酸、メチルメタクリレート、ウレイドメタクリレート及びそれらの組み合わせからなる群から選択されるモノマーを含有する。

【００１９】

好ましい実施形態では、前記コーティングは、$BaTiO_3$、$Pb(Zr,Ti)O_3$、$Pb_{1-x}La_xZr_yO_3$（$0<x<1$、$0<y<1$）、$PBMg_3Nb_{2/3})_3$、$PbTiO_3$、ハフニア（$HfO(HfO_2)$）、$SrTiO_3$、SnO_2、CeO_2、MgO、NiO、CaO、ZnO、Y_2O_3、ベーマイト（γ－AlO（OH））、Al_2O_3、TiO_2、SiC、ZrO_2、ホウ素ケイ酸塩、$BaSO_4$、ナノクレイ、又はそれらの混合物からなる群から選択される無機粒子を含む。

【００２０】

好ましい実施形態では、前記デバイスは、Ｌｉイオン電池、キャパシタ、電気二重層キャパシタ、及び燃料電池用の膜電極接合体（ＭＥＡ）からなる群から選択され、好ましくはＬｉイオン電池である。

【００２１】

好ましい実施形態によれば、前記デバイスはＬｉイオン二次電池であり、アノード及びカソードも含む。

【発明を実施するための形態】

【００２２】

本発明は、電気化学デバイスに関する。前記電気化学デバイスは、特に、以下により詳細に記載されるセパレータ及び電解質組成物を含む。これら２つの成分に加えて、前記電気化学デバイスは、アノード及びカソードを含む。本発明による前記セパレータは、電気化学デバイスのアノードとカソードとの間に配置される。好ましくは、電気化学デバイスは、Ｌｉイオン電池、キャパシタ、電気二重層キャパシタ、及び燃料電池用の膜電極接合体（ＭＥＡ）からなる群から選択される。好ましくは、前記電気化学デバイスはＬｉイオン二次電池である。

【００２３】

＜セパレータ＞

本発明は、少なくとも１つのコーティングを含むセパレータを含む電気化学デバイスに関する。前記コーティングは、フッ化ビニリデンのモノマー単位及び式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～

C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－NHC（CH_3）$_2CH_2C$（O）CH_3、又はOR’（ただし、R’は、H及び1個以上の－OH基で置換されていてもよい$_1C$～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも1個の窒素原子を含む5員又は6員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位を含むポリマー樹脂を含有する。したがって、前記ポリマー樹脂は、フッ素含有部分及びアクリル部分を含む。前記樹脂は、フルオロポリマーとアクリルポリマーとの混合物の形態であってもよく、フッ素化モノマー単位とアクリルモノマー単位とのコポリマーの形態であってもよい。

【００２４】

好ましくは、前記ポリマー樹脂は、セパレータコーティング中に非架橋形態で存在する。前記ポリマー樹脂は、直鎖状であっても分枝状であってもよい。

【００２５】

様々な実施態様によれば、前記コーティングは、適切な場合には組み合わされる以下の特徴を含む。示される含有率は、別段の指示がない限り、重量によって表される。示された全ての範囲について、別段の指示がない限り、限界値が含まれる。

【００２６】

好ましい実施形態によれば、前記ポリマー樹脂は、フッ化ビニリデンのモノマー単位と式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$のモノマー単位とを含むコポリマーである。前記コポリマーを以下により詳細に説明する。

【００２７】

別の実施形態によれば、前記ポリマー樹脂は、フッ化ビニリデンのモノマー単位を含むフルオロポリマーと、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－NHC（CH_3）$_2CH_2C$（O）CH_3、又はOR’（ただし、R’は、H及び1個以上の－OH基で置換されていてもよいC_1～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも1個の窒素原子を含む5員又は6員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位を含むアクリルポリマーとの混合物である。以下、フルオロポリマー及びアクリルポリマーについて説明する。

【００２８】

ｉ）　フルオロポリマー

前記フルオロポリマーは、二フッ化ビニリデンモノマーをベースとし、一般に略語ＰＶＤＦと称される。

【００２９】

一実施形態によれば、フルオロポリマーはホモポリマーポリ（フッ化ビニリデン）である。

【００３０】

別の実施形態によれば、フルオロポリマーは、二フッ化ビニリデン及び二フッ化ビニリデンに相溶性の少なくとも1つのコモノマーのコポリマーである。二フッ化ビニリデンに相溶性のコモノマーは、ハロゲン化（フッ素化、塩素化又は臭素化）されていてもハロゲン化されていなくてもよい。適切なフッ素化コモノマーの例は、フッ化ビニル、テトラフルオロエチレン、ヘキサフルオロプロピレン、トリフルオロプロペン、特に３，３，３－トリフルオロプロペン、テトラフルオロプロペン、特に２，３，３，３－テトラフルオロプロペン又は１，３，３，３－テトラフルオロプロペン、ヘキサフルオロイソブチレン、ペルフルオロブチルエチレン、ペンタフルオロプロペン、特に１，１，３，３，３－ペンタフルオロプロペン又は１，２，３，３，３－ペンタフルオロプロペン、ペルフルオロアルキルビニルエーテル、特に一般式Ｒｆ－Ｏ－ＣＦ＝ＣＦ$_2$（式中、Ｒｆはアルキル基、好ましくはC_1～C_4アルキル基（好ましい例はペルフルオロプロピルビニルエーテル及びペルフルオロメチルビニルエーテルである））である。

【００３１】

フッ素化コモノマーは、塩素原子又は臭素原子を含むことができる。これは、特にブロ

モトリフルオロエチレン、クロロフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン及びクロロトリフルオロプロペンから選択することができる。クロロフルオロエチレンは、１－クロロ－１－フルオロエチレン又は１－クロロ－２－フルオロエチレンのいずれかを表すことができる。１－クロロ－１－フルオロエチレン異性体が好ましい。クロロトリフルオロプロペンは好ましくは１－クロロ－３，３，３－トリフルオロプロペン又は２－クロロ－３，３，３－トリフルオロプロペンである。

【００３２】

ＶＤＦコポリマーはまた、非ハロゲン化モノマー、例えばエチレン、及び／又はアクリル若しくはメタクリルコモノマーを含むことができる。

【００３３】

フルオロポリマーは、好ましくは少なくとも５０モル％の二フッ化ビニリデンを含有する。

【００３４】

一実施形態によれば、フルオロポリマーは、フッ化ビニリデン（ＶＤＦ）とヘキサフルオロプロピレン（ＨＦＰ）とのコポリマー（Ｐ（ＶＤＦ－ＨＦＰ））であり、ヘキサフルオロプロピレンモノマー単位の重量パーセントが、コポリマーの重量に対して２重量％～３０重量％、有利には２重量％～２５重量％、好ましくは２重量％～２０重量％、好ましくは４重量％～１５重量％である。

【００３５】

一実施形態によれば、フルオロポリマーは、フッ化ビニリデンとテトラフルオロエチレン（ＴＦＥ）とのコポリマーである。

【００３６】

一実施形態によれば、フルオロポリマーは、フッ化ビニリデンとクロロトリフルオロエチレン（ＣＴＦＥ）とのコポリマーである。

【００３７】

一実施形態によれば、フルオロポリマーはＶＤＦ－ＴＦＥ－ＨＦＰターポリマーである。一実施形態によれば、フルオロポリマーはＶＤＦ－ＴｒＦＥ－ＴＦＥターポリマー（ＴｒＦＥはトリフルオロエチレンである）。これらのターポリマーにおいて、ＶＤＦの含有率は少なくとも１０重量％であり、コモノマーは様々な割合で存在する。

【００３８】

一実施形態によれば、フルオロポリマーは、以下の官能基、すなわち、カルボン酸、カルボン酸無水物、カルボン酸エステル、エポキシ基（グリシジルなど）、アミド、ヒドロキシル、カルボニル、メルカプト、スルフィド、オキサゾリン、フェノール、エステル、エーテル、シロキサン、スルホン酸、硫酸、リン酸又はホスホン酸の少なくとも１つを有するモノマー単位を含む。官能基は、当業者に周知の技術に従って、フッ素化モノマーと、前記官能基の少なくとも１つ及びフッ素化モノマーと共重合することができるビニル官能基を有するモノマーとのグラフト化又は共重合であり得る化学反応によって導入される。

【００３９】

一実施形態によれば、官能基は、アクリル酸、メタクリル酸、ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート及びヒドロキシエチルヘキシル（メタ）アクリレートから選択される（メタ）アクリル酸型の基であるカルボン酸官能基を有する。

【００４０】

一実施形態によれば、カルボン酸官能基を有する単位は、酸素、硫黄、窒素及びリンから選択されるヘテロ原子をさらに含む。

【００４１】

一実施形態によれば、官能基は、合成プロセス中に使用される移動剤を介して導入される。移動剤は、２００００ｇ／ｍｏｌ以下のモル質量を有し、以下の基、すなわち、カルボン酸、カルボン酸無水物、カルボン酸エステル、エポキシ（グリシジルなど）、アミド

、ヒドロキシル、カルボニル、メルカプト、スルフィド、オキサゾリン、フェノール、エステル、エーテル、シロキサン、スルホン酸、硫酸、リン酸又はホスホン酸から選択される官能基を有するポリマーである。このタイプの移動剤の例は、アクリル酸オリゴマーである。

【００４２】

前記フルオロポリマーの官能基の含有率は、少なくとも０．０１モル％、好ましくは少なくとも０．１モル％、及び最大で１５モル％、好ましくは最大で１０モル％である。

【００４３】

より具体的には、官能基を有する移動剤は、前記フルオロポリマーの鎖末端に組み込まれる。したがって、前記フルオロポリマーは、前記移動剤からなる末端基を含むことができる。特に、移動剤は、２００００ｇ／ｍｏｌ以下のモル質量を有し、カルボン酸又はカルボン酸エステルからなる群から選択される官能基を有するポリマーである。

【００４４】

フルオロポリマーは、高分子量を有することが好ましい。ここで使用する用語「高分子量」は、ＡＳＴＭ　Ｄ－３８３５法に従って、２３２℃及び１００ｓ$^{-1}$で測定して、１００Ｐａ．ｓを超える、好ましくは５００Ｐａ．ｓを超える、より好ましくは１０００Ｐａ．ｓを超える溶融粘度を有するフルオロポリマーを意味すると理解される。

【００４５】

一実施形態によれば、官能基を有するフルオロポリマーは、その官能基の自己縮合によって、又は触媒及び／若しくは架橋剤、例えばメラミン樹脂、エポキシ樹脂など、並びに低分子量の知られた架橋剤、例えばジイソシアネート又は高級ポリイソシアネート、ポリアジリジン、ポリカルボジイミド、ポリオキサゾリン、ジアルデヒド、例えばグリオキサール、アセトアセテート、マロネート、アセタール、チオール及び二官能性及び三官能性であるアクリレート、脂環式エポキシ分子、有機シラン、例えばエポキシシラン及びアミノシラン、カルバメート、ジアミン及びトリアミン、無機キレート剤、例えばある特定の亜鉛及びジルコニウム塩、チタン、グリコリル（ｇｌｙｃｏｕｒｉｌ）及び他のアミノプラストとの反応によって架橋することができる。ある特定の場合において、界面活性剤、開始剤、シード粒子などの他の重合成分に由来する官能基が、架橋反応に関与し得る。２つ以上の官能基が架橋プロセスに関与する場合、相補的反応性基の対は、例えば、ヒドロキシル－イソシアネート、酸－エポキシ、アミン－エポキシ、ヒドロキシル－メラミン、アセトアセテート－酸である。重合後に架橋反応に関与し得る官能基を含有しないアクリレート及び／又はメタクリレートモノマーは、好ましくはモノマーの混合物全体の７０重量％以上を占めるべきであり、より好ましくは９０重量％超を占めるべきである。一実施形態によれば、フルオロポリマーは、イソシアネート、ジアミン、アジピン酸、ジヒドラジド及びそれらの組み合わせからなる群から選択される架橋剤を含む。

【００４６】

いくつかの実施形態によれば、ＰＶＤＦホモポリマー及びＶＤＦコポリマーは、バイオベースのＶＤＦから構成される。用語「バイオベース」は、「バイオマス由来」を意味する。これにより、セパレータのエコロジカルフットプリントを向上させることができる。バイオベースのＶＤＦは、規格ＮＦ　ＥＮ　１６６４０に従って^{14}Ｃの含有率によって決定されるように、少なくとも１原子％の再生可能炭素、すなわち、生体材料又はバイオマスに由来する天然起源の炭素の含有率によって特徴付けることができる。用語「再生可能炭素」は、以下に示すように、炭素が天然起源であり、生体材料（又はバイオマス）に由来することを示す。いくつかの実施形態によれば、ＶＤＦのバイオカーボン有率量は、５％を超え、好ましくは１０％を超え、好ましくは２５％を超え、好ましくは３３％以上、好ましくは５０％を超え、好ましくは６６％以上、好ましくは７５％を超え、好ましくは９０％を超え、好ましくは９５％を超え、好ましくは９８％を超え、好ましくは９９％を超え得、有利には１００％に等しい。

【００４７】

本発明において用いられるホモポリマーフルオロポリマー及びＶＤＦコポリマーは、乳

化重合又は懸濁重合などの知られた重合方法によって得ることができる。
【００４８】
一実施形態によれば、それらは、フッ素化界面活性剤の非存在下で乳化重合プロセスによって調製される。
【００４９】
ＰＶＤＦの重合は、一般に１０重量％～６０重量％、好ましくは１０重量％～５０重量％の固形分を有し、１マイクロメートル未満、好ましくは１０００ｎｍ未満、好ましくは８００ｎｍ未満、より好ましくは６００ｎｍ未満の重量平均粒径を有するラテックスをもたらす。粒子の重量平均径は一般に少なくとも２０ｎｍ、好ましくは少なくとも５０ｎｍであり、有利には平均サイズは１００～４００ｎｍの範囲内である。ポリマー粒子は凝集体を形成することができ、その重量平均サイズは１～３０マイクロメートル、好ましくは２～２０マイクロメートルである。凝集体は、配合化及び基材への塗布中に別個の粒子に分解することができる。
【００５０】
ｉｉ）　アクリルポリマー
上述のように、前記アクリルポリマーは、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－ＮＨＣ（CH_3）$_2CH_2C$（Ｏ）CH_3、又はＯＲ’（ただし、Ｒ’は、Ｈ及び１個以上の－ＯＨ基で置換されていてもよいC$_1$～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のモノマー単位を含む。前記複素環は、飽和又は不飽和又は芳香族であり得る。前記複素環は、単環式又は二環式であり得る。前記複素環は、ピロール環、ピロリジン環、ピリジン環、ピペリジン環、ピリミジン環、ピラジン環、１，４－ジヒドロピリジン環、インドール環、オキシインドール環、イサチン環、キノリン環、イソキノリン環、キナゾリン環、イミダゾリン環、ピラゾリジン環、２－ピロリドン環、δ－ラクタム環、スクシンイミド環、２－イミダゾリジノン環又は４－イミダゾリジノン環であり得る。前記複素環は、１つ以上のC_1～C_5アルキル基で置換されていてもよい。上述のように、C_1～C_{18}アルキルは、前記複素環で置換されていてもよい。複素環は、窒素原子又は複素環を形成する任意の他の原子を介して鎖に結合することができる。好ましくは、複素環は２－ピロリドン、δ－ラクタム、スクシンイミド、２－イミダゾリジノン又は４－イミダゾリジノンである。
【００５１】
好ましくは、前記アクリルポリマーは、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、H及びC_1～C_5アルキルからなる群から選択され、Rは、－ＮＨＣ（CH_3）$_2CH_2C$（Ｏ）CH_3、又はＯＲ’（ただし、Ｒ’は、Ｈ及び１個以上の－ＯＨ基で置換されていてもよいC$_1$～C_{18}アルキル、又はその環状鎖中に少なくとも１個の窒素原子を含む５員又は６員複素環からなる群から選択される）からなる群から選択される）のアルキルアクリレートモノマー単位に基づく。好ましくは、複素環は上で定義した通りであり、特に、複素環は２－ピロリドン、δ－ラクタム、スクシンイミド、２－イミダゾリジノン又は４－イミダゾリジノンである。
【００５２】
一実施形態によれば、置換基Ｒ’は、Ｈ、メチル、エチル、プロピル、ｎ－ブチル、イソブチル、ｔ－ブチル、ｎ－ドデシル、アミル、イソアミル、ヘキシル、２－エチルヘキシル、ラウリル、ｎ－オクチル、ヒドロキシブチル、ヒドロキシプロピル、ウレイド、ヒドロキシエチル、ヒドロキシプロピル、ヒドロキシブチル基で置換されたエチルからなる群から選択される。
【００５３】
特に、前記アクリルポリマーは、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$（式中、置換基R^1及びR^2はＨであり、R^3は、Ｈ又はCH_3であり、Ｒは－ＯＲ’であり、Ｒ’はＨ、メチル、エチル、プロピル、ｎ－ブチル、イソブチル、ｔ－ブチル、ヒドロキシプロピル

、ヒドロキシブチル、２－ピロリドン、δラクタム、スクシンイミド、２－イミダゾリジノン又は４－イミダゾリジノンからなる群から選択される）のアルキルアクリレートモノマーに基づく。

【００５４】

したがって、アルキルアクリレートは、メチルアクリレート、エチルアクリレート、プロピルアクリレート、ｎ－ブチルアクリレート、イソブチルアクリレート、ｔ－ブチルアクリレート、ｎ－ドデシルアクリレート、アミルアクリレート、イソアミルアクリレート、ヘキシルアクリレート、２－エチルヘキシルアクリレート、ジアセトンアクリルアミド、ラウリルアクリレート、ｎ－オクチルアクリレート、ヒドロキシプロピルメタクリレート、ヒドロキシブチルアクリレート、メタクリル酸、メチルメタクリレート、ウレイドメタクリレートであってもよい。これらの中でも、１～８個の炭素原子を有するアルキル基を含むアルキルアクリレートが好ましく、１～５個の炭素原子を有するアルキル基を含むアルキルアクリレートがより好ましい。これらの化合物は単独で又は２種以上の混合物として用いることができる。

【００５５】

ここで、用語「アクリレート」は、アクリレート及びメタクリレートを含む。

【００５６】

アルキルアクリレート及びアルキルメタクリレートと共重合可能な任意のエチレン性不飽和化合物は、以下を含む。

－　（Ａ）官能基を含むアルケニル化合物、

－　（Ｂ）官能基を有さないアルケニル化合物。

【００５７】

官能基を含むアルケニル化合物（Ａ）としては、例えば、α，β－不飽和カルボン酸、例えば、アクリル酸、メタクリル酸、フマル酸、クロトン酸、イタコン酸、ビニルエステル化合物、例えば、酢酸ビニル、ネオデカン酸ビニル、アミド化合物、例えばアクリルアミド、メタクリルアミド、Ｎ－メチルアクリルアミド、Ｎ－メチルメタクリルアミド、Ｎ－メチロールアクリルアミド、Ｎ－メチロールメタクリルアミド、Ｎ－アルキルアクリルアミド、Ｎ－アルキルメタクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジアルキルアクリルアミド、Ｎ，Ｎ－ジアルキルメタクリルアミド、ジアセトンアクリルアミド、アクリル酸エステル、例えば、２－ヒドロキシエチルアクリレート、Ｎ－ジアルキルアミノエチルアクリレート、グリシジルアクリレート、ｎ－ドデシルアクリレート、フルオロアルキルアクリレート、メタクリル酸エステル、例えば、ジアルキルアミノエチルメタクリレート、フルオロアルキルメタクリレート、２－ヒドロキシエチルメタクリレート、ｎ－オクチルメタクリレート、ｔ－ブチルメタクリレート、グリシジルメタクリレート、エチレングリコールジメタクリレート、無水マレイン酸、アルケニルグリシジルエーテル化合物、例えばアリルグリシジルエーテルが挙げられる。これらの中でも、アクリル酸、メタクリル酸、イタコン酸、フマル酸、Ｎ－メチロールアクリルアミド、Ｎ－メチロールメタクリルアミド、ジアセトンアクリルアミド、２－ヒドロキシエチルアクリレート、２－ヒドロキシエチルメタクリレート及びアリルグリシジルエーテルが好ましい。これらの化合物は単独で又は２種以上の混合物として用いることができる。

【００５８】

官能基を有さないアルケニル化合物（Ｂ）としては、例えば、共役ジエン、例えば、１，３－ブタジエン、イソプレンなど、ジビニル炭化水素化合物、例えば、ジビニルベンゼンなど、及びアルケニルシアン化物、例えば、アクリロニトリル、メタクリロニトリルなどが挙げられる。これらの中でも、１，３－ブタジエン及びアクリロニトリルが好ましい。これらの化合物は単独で又は２種以上の混合物として用いることができる。

【００５９】

官能性アルケニル化合物（Ａ）は、モノマー混合物の重量に対して５０重量％未満の割合で使用され、官能基を有さないアルケニル化合物（Ｂ）は、モノマー混合物の重量に対して３０重量％未満の割合で使用されることが好ましい。

【００６０】
本発明に用いられるアクリルポリマーは、アルキルアクリレートモノマーを乳化重合又は懸濁重合などの知られた重合方法により重合することにより得ることができる。
【００６１】
ｉｉｉ）　フルオロポリマーとアクリルポリマーとの混合物
前記ポリマー樹脂は、様々なプロセスによって調製することができる。
【００６２】
第１の実施形態によれば、フルオロポリマー及びアクリルポリマーは、互いに独立して、乳化重合又は懸濁重合などの知られた重合方法によって得られる。次いで、２つのポリマーを、水性配合物の調製中に粉末又はラテックスの状態で、又はセパレータの使用を意図した有機溶媒の存在下で混合する。
【００６３】
あるいは、別の好ましい実施形態によれば、ポリマー樹脂は、前記フルオロポリマーのラテックスをシードとして使用して、アクリレート／メタクリレートモノマーの乳化重合によって合成され、それによって、フルオロポリマーの少なくとも一部とアクリルポリマーの少なくとも一部とが密接に混合されたフルオロ－アクリルポリマー組成物を得る。
【００６４】
フルオロ－アクリルポリマー樹脂は、上で定義したフッ化ビニリデンポリマーの粒子１００重量部の存在下、水性媒体中で、５～１００、好ましくは５～９５重量部の、アルキル基が１～１８個の炭素原子を有するアルキルアクリレート及びアルキル基が１～１８個の炭素原子を有するアルキルメタクリレートからなる群から選択される少なくとも１つのモノマーと、任意選択でアルキルアクリレート及びアルキルメタクリレートと共重合可能なエチレン性不飽和化合物とを有するモノマーの混合物の乳化重合によって得られる水性分散液である。ＰＶＤＦ粒子は、アクリルモノマーの重合のためのシードとして機能する。ＰＶＤＦ粒子は、水性媒体中に粒子の形態で分散している限り、任意の状態で重合系に添加され得る。フッ化ビニリデンポリマーは一般に水性分散液として製造されるため、製造されたもののような水性分散液をシード粒子として使用することは実用的である。フッ化ビニリデン粒子の粒径は０．０４～２．９マイクロメートルであることが好ましい。好ましい実施形態では、ポリマー粒子の直径は、好ましくは５０ｎｍ～７００ｎｍである。
【００６５】
重合の生成物はラテックスであり、これは、通常、重合プロセスの固体副生成物を濾過除去した後に、この形態で使用することができる。ラテックスの形態で使用するために、ラテックスは、（適切な場合）重合中に存在する界面活性剤と同一であっても異なっていてもよい界面活性剤の添加によって安定化されてもよい。この後に添加される界面活性剤は、例えば、イオン性界面活性剤であっても非イオン性界面活性剤であってもよい。
【００６６】
シードとして使用されるＰＶＤＦ粒子は、組成（例えば、ＨＦＰコモノマーの含有率）及び／又は分子量に関して、均質又は不均質の性質、又はコアと粒子の表面との間の勾配を有し得る。
【００６７】
フルオロ－アクリルポリマー樹脂では、ＰＶＤＦ／アクリルポリマーの質量比は、９５／５～５／９５、好ましくは７５／２５～２５／７５、有利には６０／４０～４０／６０で変動する。
【００６８】
フルオロ－アクリルポリマー樹脂では、粒子の平均直径は、０．０５～３μｍ、好ましくは０．０５～１μｍ、より優先的には０．１～１μｍである。この実施形態では、フルオロ－アクリルポリマー樹脂は、粒子の少なくとも一部におけるフルオロポリマー鎖とアクリルポリマー鎖との密接な混合によって特徴付けられる。
【００６９】
ｉｖ）　ＶＤＦ／ＡＡコポリマー

あるいは、前記ポリマー樹脂は、フッ化ビニリデンモノマー単位と式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$のモノマー単位（Ａ）とを含むコポリマーであり得、式中、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、Ｈ及びC_1～C_3アルキルからなる群から選択され、Ｒは、Ｈ及び少なくとも１つの－ＯＨ基で置換されていてもよいC_1～C_5アルキルからなる群から選択される。

【００７０】

好ましくは、モノマー単位Ａは、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$のものであって、置換基R^1、R^2及びR^3は、互いに独立して、Ｈ及びCH_3からなる群から選択され、Ｒは、Ｈ、ヒドロキシプロピル及びヒドロキシエチル又はそれらの混合物からなる群から選択される。用語ヒドロキシプロピルは、$-CH_2CH(OH)CH_3$に相当する。用語ヒドロキシエチルは、$-CH(CH_3)CH_2OH$に対応する。

【００７１】

好ましくは、式$R^1R^2C=C(R^3)C(O)R$のモノマー単位Ａは、主にフッ化ビニリデンモノマー単位によって形成されるポリマー鎖に沿って分布する。この実施形態では、前記ポリマー樹脂は、少なくとも０．０１モル％、有利には少なくとも０．０２モル％、好ましくは少なくとも０．０３モル％、特に０．０４モル％のモノマー単位Ａを含む。好ましくは、前記ポリマー樹脂は、最大で５モル％、有利には最大で４モル％、好ましくは最大で２モル％、特に最大で１モル％、より詳細には最大で０．７５モル％のモノマー単位Ａを含む。

【００７２】

この実施形態では、前記ポリマー樹脂はまた、フッ化ビニリデンモノマー単位及びモノマー単位Ａに加えて、１つ以上のフッ素化コモノマーＢに由来するモノマー単位を含んでもよい。前記コモノマーＢは、好ましくは少なくとも１個のフッ素原子を含むエチレン性不飽和コモノマーである。コモノマーＢの非限定的な例としては、C_2～C_8ペルフルオロオレフィン、例えば、テトラフルオロエチレン、式$CH_2=CHR^1$（式中、R^1はC_2～C_6ペルフルオロアルキルである）のペルフルオロアルキルエチレン、クロロ－又はブロモ－又はヨード－C_2～C_6フルオロオレフィン、例えば、クロロトリフルオロエチレン、式$CF_2=CFOR^2$（式中、R^2は、C_1～C_6ペルフルオロアルキル、C_1～C_{12}アルコキシ、C_1～C_{12}ペルフルオロアルコキシである）のペルフルオロアルキルビニルエーテル、式$CF_2=CFOCF_2OR^3$（式中、R^3は、C_1～C_6ペルフルオロアルキル又はC_1～C_6ペルフルオロアルコキシである）のペルフルオロアルキルビニルエーテル、式$CF_2=CFOR^4$（式中、R^4はC_1～C_{12}アルキル、C_1～C_{12}ペルフルオロアルキル、C_1～C_{12}ペルフルオロエーテルであり、R^4はカルボン酸基若しくはスルホン酸基又はその塩を有する）のペルフルオロアルキルビニルエーテルが挙げられる。

【００７３】

ｖ）　無機粒子及び任意の添加剤

本発明によるセパレータ用コーティングは、前記ポリマー樹脂に加えて、コーティング中に微小孔（無機粒子間の隙間）を形成する無機粒子を含有することができる。また、無機粒子を添加することにより、耐熱性及び湿潤性の向上にも寄与することができる。一実施形態によれば、前記コーティングは、コーティングの重量に対して５０重量％～９９重量％の無機粒子を含む。これらの無機粒子は、電気化学的に安定でなければならない（使用される電圧の範囲内で酸化及び／又は還元を受けない）。また、粉末状無機材料は高いイオン伝導性を有するものが好ましい。低密度材料は、製造される電池の重量を減少させることができるので、高密度の材料よりも好ましい。誘電率は５以上が好ましい。一実施形態によれば、前記無機粒子は、$BaTiO_3$、$Pb(Zr,Ti)O_3$、$Pb_{1-x}La_xZr_yO_3$（$0<x<1$、$0<y<1$）、$PBMg_3Nb_{2/3})_3$、$PbTiO_3$、ハフニア（$HfO(HfO_2)$）、$SrTiO_3$、SnO_2、CeO_2、MgO、NiO、CaO、ZnO、Y_2O_3、ベーマイト（ｙ－ＡｌＯ（ＯＨ））、Al_2O_3、TiO_2、ＳｉＣ、ZrO_2、ホウ素ケイ酸塩、$BaSO_4$、ナノクレイ、又はそれらの混合物

からなる群から選択される。この場合、無機粒子に対するポリマーの固形分の割合は、無機粒子６０～９９．５重量部に対して、前記ポリマー樹脂の固形分０．５～４０重量部である。有利には、無機粒子に対するポリマーの固形分の比は、無機粒子の６５～９９．５重量部当たり０．５～３５である。好ましくは、無機粒子に対するポリマーの固形分の割合は、無機粒子７０～９９．５重量部に対して０．５～３０である。

【００７４】

本発明のセパレータ用のコーティングは、任意選択で、ポリマーに基づいて０～１５重量％、好ましくは０．１～１０重量％の、増粘剤、ｐＨ調整剤、沈降防止剤、界面活性剤、発泡剤、充填剤、消泡剤及び逃散性又は非逃散性接着促進剤から選択される添加剤を含んでもよい。

【００７５】

本発明による前記セパレータは、多孔性支持体の片面又は両面上に任意に配置された、上述のコーティングを含む。この場合、コーティングは、少なくとも片面に単層又は多層の形態でセパレータの支持体をコーティングするために使用される。本発明のコーティングでコーティングされる支持体の選択は、それが細孔を有する多孔質基材である限り、特に限定されない。前記支持体は、単層又はいくつかの別個の層を含んでもよい。支持体がいくつかの層を含む場合、本発明に記載のコーティングは、支持体の外面、すなわち最初に電解質組成物と接触する面に配置される。有利には、本発明によるコーティングの支持体への塗布は、水性経路又は溶媒経路を介して行われる。多孔質基材は、膜又は繊維織物の形態を取ることができる。多孔質基材が繊維状である場合、多孔質基材は、多孔質ウェブを形成する不織布ウェブ、例えば直接紡糸又はメルトブロー（スパンボンド又はメルトブロウンタイプの）又はエレクトロスピニングによって得られるウェブであり得る。本発明で支持体として使用される多孔質基材の例は、限定されないが、ポリオレフィン、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリエステル、ポリアセタール、ポリアミド、ポリカーボネート、ポリイミド、ポリエーテルエーテルケトン、ポリエーテルスルホン、ポリ（フェニレンオキシド）、ポリ（フェニレンスルフィド）、ポリエチレンナフタレート又はそれらの混合物を含む。しかし、耐熱性の他のエンジニアリングプラスチックを特に制限なく使用することができる。天然又は合成材料で作られた不織布材料も、セパレータの基材として使用することができる。多孔質基材は、通常１～５０μｍの厚さを有し、典型的には押し出し延伸（湿式又は乾式）により得られる膜又はキャスト不織布である。多孔質基材は、好ましくは５％～９５％の間の気孔率を有する。細孔の平均サイズ（直径）は、好ましくは０．００１～５０μｍの間、より好ましくは０．０１～１０μｍの間である。

【００７６】

別の実施形態によれば、前記セパレータは多孔質支持体を含まない。この場合、前記セパレータは、前記ポリマー樹脂を含む本発明によるコーティングからなる。前記コーティングは、前記電気化学デバイスのカソード又はアノード上に直接堆積される。多孔質支持体が存在しないことにより、電気化学デバイスの製造コスト及び電気化学デバイスの寸法を制限することが可能になる。この場合、前記コーティングは多孔質支持体に取って代わる。この実施形態では、前記ポリマー樹脂は、好ましくは５～９５％の気孔率を有する。前記ポリマー樹脂の細孔の平均サイズは、好ましくは０．００１～５０μｍの間、より好ましくは０．０１～１０μｍの間である。

【００７７】

別の代替実施形態によれば、前記セパレータは多孔質支持体を含まず、前記セパレータはゲルの形態である。前記セパレータは、本願に記載された通りである。前記セパレータは、溶媒キャスト又は押出などの通常の技術によってゲルに形成される。

【００７８】

本発明のセパレータ用のコーティングは、セパレータのコーティング用途の特性、すなわち、良好な乾燥接着及び湿潤状態での接着、良好な保存完全性及び適度な膨潤を特徴とする電解質溶媒に対する良好な耐性、並びに良好なガーレー透気度の優れた妥協点を示す

。本発明のセパレータ用のコーティングはまた、以下の実施例で説明するように、電解質組成物が高い粘度又は高い極性を有する場合、セパレータの湿潤性を改善することを可能にする。

【００７９】

＜電解質組成物＞

本発明によれば、前記電気化学デバイスは電解質組成物を含む。電解質組成物は、セパレータに含浸し、デバイス内のリチウムイオンの含浸を可能にする。上述のように、電解質組成物は、溶媒及びリチウム塩を含む。溶媒は、以下で言及される溶媒のうちの１つ又はそれらの混合物であり得る。第１の実施形態によれば、電解質組成物に使用される前記溶媒は高い極性を有する。用語「極性」は、電解質組成物に使用される溶媒の２５℃における双極子モーメントを指す。別の実施形態では、電解質組成物は高い粘度を有する。粘度は、Ｂｒｏｏｋｆｉｅｌｄ　Ｍｅｔｅｋ　ＤＶ２Ｔ粘度計を用いて２０℃及び２０ｓ$^{-1}$の剪断で測定される。

【００８０】

好ましくは、前記電解質組成物は、上述の方法に従って測定された２．０ｃＰを超える粘度を有する。

【００８１】

好ましい実施形態では、前記電解質組成物はまた、３ｃＰを超える、４ｃＰを超える、５ｃＰを超える、６ｃＰを超える、７ｃＰを超える、８ｃＰを超える、９ｃＰを超える、１０ｃＰを超える、１１ｃＰを超える、１２ｃＰを超える、１３ｃＰを超える、１４ｃＰを超える、１５ｃＰを超える、１６ｃＰを超える、１７ｃＰを超える、１８ｃＰを超える、１９ｃＰを超える、２０ｃＰを超える、２１ｃＰを超える、２２ｃＰを超える、２３ｃＰを超える、２４ｃＰを超える、２５ｃＰを超える、２６ｃＰを超える、２７ｃＰを超える、２８ｃＰを超える、２９ｃＰを超える又は３０ｃＰを超える粘度を有してもよい。

【００８２】

好ましい実施形態によれば、前記電解質組成物はまた、２ｃＰ～６００ｃＰの間、有利には５～５００ｃＰの間、好ましくは１０～４５０ｃＰの間、より優先的には１５～４００ｃＰの間、特に２０～３５０ｃＰの間、より具体的には２５～３００ｃＰの間、好ましくは２５～２５０ｃＰの間、有利には３０～２００ｃＰの間の粘度を有してもよい。

【００８３】

リチウム塩は、電解質組成物中に非常に様々な濃度で存在し得る。高濃度のリチウム塩は、電解質組成物の高い粘度を促進する。例えば、リチウム塩は、電解質組成物中に０．０１～２０ｍｏｌ．ｌ$^{-1}$の間、有利には０．０１～１５ｍｏｌ．ｌ$^{-1}$の間、好ましくは０．０１～１０ｍｏｌ．ｌ$^{-1}$の間の濃度で存在し得る。前記電解質組成物中の高濃度のリチウム塩は、容量の点で電気化学デバイスの性能を促進するものである。

【００８４】

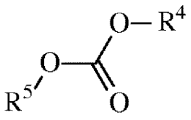
好ましくは、前記電解質組成物は、上述の方法に従って測定された１０００ｃＰ未満、有利には９００ｃＰ未満、好ましくは８００ｃＰ未満、より優先的には７００ｃＰ未満、特に６００ｃＰ未満の粘度を有する。

【００８５】

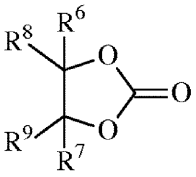
例えば、前記溶媒は、式（Ｉａ）、（Ｉｂ）、（Ｉｃ）、（Ｉｄ）、（Ｉｅ）、（Ｉｆ）、（Ｉｇ）、（Ｉｈ）、（Ｉｉ）、（Ｉｊ）、（Ｉｋ）、（Ｉｌ）、（Ｉｍ）、（Ｉｎ）、（Ｉｏ）、（Ｉｐ）、（Ｉｑ）、（Ｉｒ）、（Ｉｓ）、（Ｉｔ）、（Ｉｕ）、（Ｉｖ）、（Ｉｗ）、（Ｉｘ）、（Ｉｙ）又は（Ｉｚ）のものであり得る。

【００８６】

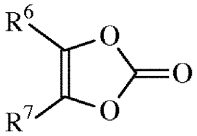
【化１】



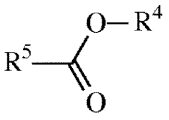
(Ia)



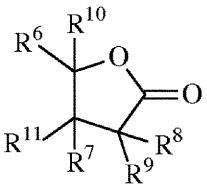
(Ib)



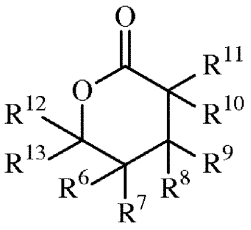
(Ic)



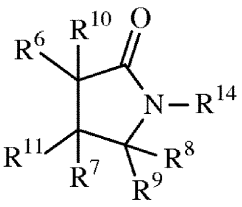
(Id)



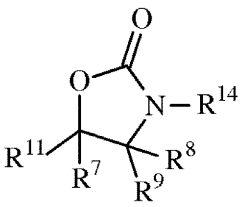
(Ie)



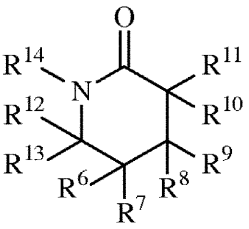
(If)



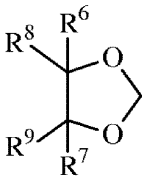
(Ig)



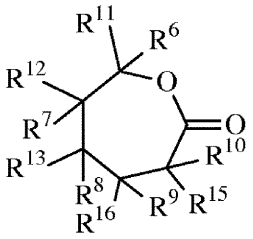
(Ih)



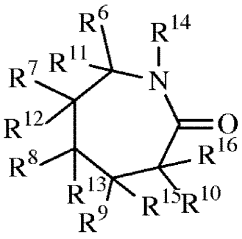
(Ii)



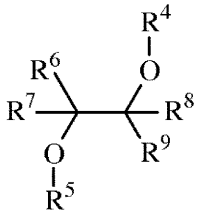
(Ij)



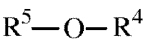
(Ik)



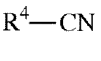
(Il)



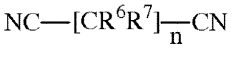
(Im)



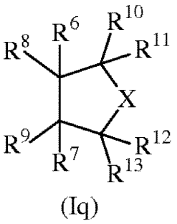
(In)



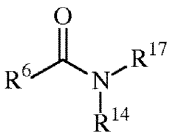
(Io)



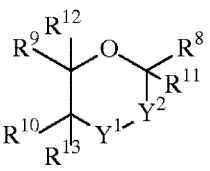
(Ip)



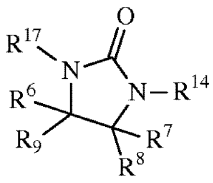
(Iq)



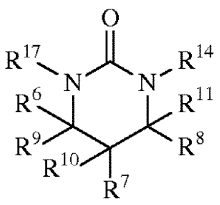
(Ir)



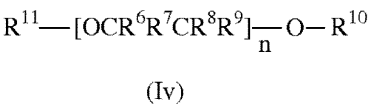
(Is)



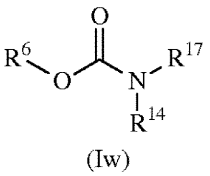
(It)



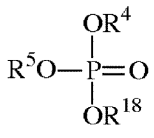
(Iu)



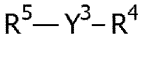
(Iv)



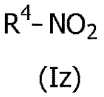
(Iw)



(Ix)



(Iy)



(Iz)

式中、R^4、R^5及びR^{18}は、互いに独立して、C_1～C_{10}アルキル、C_2～C_5アルケニル、C_1～C_{10}ペルフルオロアルキル及びC_6アリールからなる群から選択され、

R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}、R^{13}、R^{15}及びR^{16}は、互いに独立して、H、C_1～C_{10}アルキル、C_2～C_5アルケニル、C_1～C_{10}ペルフルオロアルキル及びC_6アリールからなる群から選択され、
nは１～１０、好ましくは１～５の整数であり、
XはO又はSO_2であり、
Y^1及びY^2は、Y^1及びY^2が同時にOではないことを条件として、O又はCR^6R^7から選択され、R^6及びR^7は上に定義された通りであり、
Y^3はSO_2又はS＝Oであり、
R^{14}及びR^{17}は、互いに独立して、H、C_1～C_5アルキル、C_2～C_5アルケニル、及びC_6アリールからなる群から選択される。

【００８７】

本願では、上記の溶媒式に関連して記載されたアルキル置換基及びアルケニル置換基は、１つ以上のフッ素原子、C_1～C_5アルコキシ基、C_1～C_{10}ペルフルオロアルキル基、フェニル基、又はCN、OH、NO_2若しくはSO_2官能基で置換されていてもよい。本願において、上記の溶媒式に関連して記載されたC_6アリール置換基は、１個以上のフッ素原子、C_1～C_{10}アルキル基、C_1～C_5アルコキシ基又はC_1～C_{10}ペルフルオロアルキル基で置換されていてもよい。

【００８８】

前記溶媒は、例えば、限定されないが、１８－クラウン－６エーテル、１５－クラウン－５エーテル、１２－クラウン－４エーテル、ジベンゾ－１８－クラウン－６エーテル、ジベンゾ－２４－クラウン－８エーテル、ジシクロヘキサノ－１８－クラウン－６エーテル、ジベンゾ－１２－クラウン－４エーテルなどのクラウンエーテルであってもよい。

【００８９】

より優先的には、前記溶媒は、式（Ｉａ）、（Ｉｂ）、（Ｉｃ）、（Ｉｄ）、（Ｉｅ）、（Ｉｆ）、（Ｉｇ）、（Ｉｈ）、（Ｉｉ）、（Ｉｊ）、（Ｉｋ）、（Ｉｌ）、（Ｉｍ）、（Ｉｎ）、（Ｉｏ）、（Ｉｐ）、（Ｉｑ）、（Ｉｒ）、（Ｉｓ）、（Ｉｔ）、（Ｉｕ）、（Ｉｖ）、（Ｉｗ）、（Ｉｘ）、（Ｉｙ）又は（Ｉｚ）のものであって、
R^4、R^5及びR^{18}は、互いに独立して、C_1～C_5アルキル、C_2～C_3アルケニル、C_1～C_5ペルフルオロアルキル及びC_6アリールからなる群から選択され、
R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}、R^{13}、R^{15}及びR^{16}は、互いに独立して、H、C_1～C_5アルキル、C_2～C_3アルケニル、C_1～C_5ペルフルオロアルキル及びC_6アリールからなる群から選択され、
nは１～１０、好ましくは１～５の整数であり、
XはO又はSO_2であり、
Y^1及びY^2は、Y^1及びY^2が同時にOではないことを条件として、O又はCR^6R^7から選択され、R^6及びR^7は上に定義された通りであり、
Y^3はSO_2又はS＝Oであり、
R^{14}及びR^{17}は、互いに独立して、H、C_1～C_5アルキル、C_2～C_3アルケニル、及びC_6アリールからなる群から選択されるものである。

【００９０】

特に、前記溶媒は、式（Ｉａ）、（Ｉｂ）、（Ｉｃ）、（Ｉｄ）、（Ｉｅ）、（Ｉｆ）、（Ｉｇ）、（Ｉｈ）、（Ｉｉ）、（Ｉｊ）、（Ｉｋ）、（Ｉｌ）、（Ｉｍ）、（Ｉｎ）、（Ｉｏ）、（Ｉｐ）、（Ｉｑ）、（Ｉｒ）、（Ｉｓ）、（Ｉｔ）、（Ｉｕ）、（Ｉｖ）、（Ｉｗ）、（Ｉｘ）、（Ｉｙ）又は（Ｉｚ）のものであって、
R^4、R^5及びR^{18}は、互いに独立して、C_1～C_3アルキル、C_2～C_3アルケニル、C_1～C_3ペルフルオロアルキル及びC_6アリールからなる群から選択され、
R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}、R^{13}、R^{15}及びR^{16}は、互いに独立して、H、C_1～C_3アルキル、C_2～C_3アルケニル、C_1～C_3ペルフルオロアルキル及びC_6アリールからなる群から選択され、
nは１～１０、好ましくは１～５の整数であり、

ＸはＯ又はＳＯ$_2$であり、
Ｙ^{1}及びＹ^{2}は、Ｙ^{1}及びＹ^{2}が同時にＯではないことを条件として、Ｏ又はＣＲ^{6}Ｒ^{7}から選択され、Ｒ^{6}及びＲ^{7}は上に定義された通りであり、
Ｙ^{3}はＳＯ$_2$又はＳ＝Ｏであり、
Ｒ^{14}及びＲ^{17}は、互いに独立して、Ｈ、Ｃ$_1$～Ｃ$_3$アルキル、Ｃ$_2$～Ｃ$_3$アルケニル、及びＣ$_6$アリールからなる群から選択されるものである。

【００９１】

より具体的には、前記溶媒は、Ｒ^{4}及びＲ^{5}が、互いに独立して、ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨＦ$_2$、Ｃ$_2$Ｈ$_5$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＨＦＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＦ$_2$ＣＨＦ$_2$、ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ（ＣＦ$_3$）$_2$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$、（ＣＨ$_3$）$_2$ＣＨＣＨ$_2$、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ（ＣＨ$_3$）、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$及びＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$からなる群から選択され、好ましくはＲ^{4}が、ＣＨ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$又はＣＨ$_2$ＣＨ$_3$であり、Ｒ^{5}が、ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨＦ$_2$、Ｃ$_2$Ｈ$_5$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＨＦＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＦ$_2$ＣＨＦ$_2$、ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ（ＣＦ$_3$）$_2$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$及びＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$からなる群から選択される式（Ｉａ）のものであり得る。

【００９２】

より具体的には、前記溶媒は、Ｒ^6、Ｒ^7、Ｒ^{8}及びＲ^{9}が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ（ＣＦ$_3$）$_2$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$、（ＣＨ$_3$）$_2$ＣＨＣＨ$_2$、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ（ＣＨ$_3$）、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$及びＣＨ＝ＣＨ$_2$からなる群から選択され、好ましくはＲ^6、Ｒ^{7}及びＲ^{8}が、Ｈ、ＣＨ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$又はＣＨ$_2$ＣＨ$_3$であり、Ｒ^{9}が、Ｈ、Ｆ、ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ（ＣＦ$_3$）$_2$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$及びＣＨ＝ＣＨ$_2$からなる群から選択される式（Ｉｂ）のものであり得る。

【００９３】

より具体的には、前記溶媒は、Ｒ^{6}及びＲ^{7}が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ（ＣＦ$_3$）$_2$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$、（ＣＨ$_3$）$_2$ＣＨＣＨ$_2$、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ（ＣＨ$_3$）、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$及びＣＨ＝ＣＨ$_2$からなる群から選択され、好ましくはＲ^{6}が、Ｈ、ＣＨ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$又はＣＨ$_2$ＣＨ$_3$であり、Ｒ^{7}が、Ｈ、Ｆ、ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ（ＣＦ$_3$）$_2$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$及びＣＨ＝ＣＨ$_2$からなる群から選択される式（Ｉｃ）のものであり得る。

【００９４】

より具体的には、前記溶媒は、Ｒ^{4}及びＲ^{5}が、互いに独立して、ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ$_2$ＯＣＨ$_3$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）ＣＨ$_2$ＯＣＨ$_3$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$、ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、ＣＨ（ＣＦ$_3$）$_2$、ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_2$ＣＦ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$、（ＣＨ$_3$）$_2$ＣＨＣＨ$_2$、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ（ＣＨ$_3$）、ＣＨ$_3$ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$、ＣＨ（ＣＨ$_3$）$_2$、ＣＨＦＣＨ$_3$及びＣＨ$_2$ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$からなる群から選択され、好ましくはＲ^{4}が、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_3$、Ｃ$_6$Ｈ$_5$、又はＣＨ$_2$ＣＨ$_3$からなる群から選択され、Ｒ^{5}が、ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_3$、ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨＦ$_2$、ＣＨ$_2$ＣＨ$_2$Ｆ、ＣＨ$_2$Ｃ

Ｆ３、ＣＨ２ＯＣＨ３、ＣＨ（ＣＨ３）ＣＨ２ＯＣＨ３、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨ（ＣＦ３）２、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨＦＣＨ３、及びＣＨ２ＣＨ２ＣＨ３からなる群から選択されるの式（Ｉｄ）のものであり得る。

【００９５】

より具体的には、前記溶媒は、Ｒ６、Ｒ７、Ｒ８、Ｒ９、Ｒ１０及びＲ１１が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ３、ＣＨ２Ｆ、ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＨ２Ｆ、ＣＨ２ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＦ３、ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨ（ＣＦ３）２、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、Ｃ６Ｈ５、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ２ＣＨ２、（ＣＨ３）２ＣＨＣＨ２、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ（ＣＨ３）、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ２、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２からなる群から選択され、好ましくはＲ６、Ｒ７及びＲ８が、Ｈ、ＣＨ３、Ｃ６Ｈ５又はＣＨ２ＣＨ３であり、Ｒ９、Ｒ１０及びＲ１１が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ３、ＣＨ２Ｆ、ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＨ２Ｆ、ＣＨ２ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＦ３、ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨ（ＣＦ３）２、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、Ｃ６Ｈ５、ＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２からなる群から選択される式（Ｉｅ）のものであり得る。

【００９６】

より具体的には、前記溶媒は、Ｒ６、Ｒ７、Ｒ８、Ｒ９、Ｒ１０、Ｒ１１、Ｒ１２及びＲ１３が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ３、ＣＨ２Ｆ、ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＨ２Ｆ、ＣＨ２ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＦ３、ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨ（ＣＦ３）２、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、Ｃ６Ｈ５、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ２ＣＨ２、（ＣＨ３）２ＣＨＣＨ２、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ（ＣＨ３）、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ２、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２からなる群から選択され、好ましくはＲ６、Ｒ８、Ｒ１０及びＲ１２が、Ｈ、ＣＨ３、Ｃ６Ｈ５又はＣＨ２ＣＨ３であり、Ｒ７、Ｒ９、Ｒ１１及びＲ１３が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ３、ＣＨ２Ｆ、ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＨ２Ｆ、ＣＨ２ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＦ３、ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨ（ＣＦ３）２、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、Ｃ６Ｈ５、ＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２からなる群から選択される式（Ｉｆ）のものであり得る。

【００９７】

より具体的には、前記溶媒は、Ｒ６、Ｒ７、Ｒ８、Ｒ９、Ｒ１０及びＲ１１が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ３、ＣＨ２Ｆ、ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＨ２Ｆ、ＣＨ２ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＦ３、ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨ（ＣＦ３）２、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、Ｃ６Ｈ５、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ２ＣＨ２、（ＣＨ３）２ＣＨＣＨ２、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ（ＣＨ３）、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ２、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２からなる群から選択され、Ｒ１４が、Ｈ、ＣＨ３、Ｃ６Ｈ５、ＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２であり、好ましくはＲ６、Ｒ７及びＲ８が、Ｈ、ＣＨ３、Ｃ６Ｈ５又はＣＨ２ＣＨ３であり、Ｒ９、Ｒ１０及びＲ１１が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ３、ＣＨ２Ｆ、ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＨ２Ｆ、ＣＨ２ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＦ３、ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨ（ＣＦ３）２、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、Ｃ６Ｈ５、ＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２からなる群から選択され、Ｒ１４が、Ｈ、ＣＨ３、Ｃ６Ｈ５又はＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２である式（Ｉｇ）のものであり得る。

【００９８】

より具体的には、前記溶媒は、Ｒ７、Ｒ８、Ｒ９及びＲ１１が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ３、ＣＨ２Ｆ、ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＨ２Ｆ、ＣＨ２ＣＨＦ２、ＣＨ２ＣＦ３、ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ３、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、ＣＨ（ＣＦ３）２、ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ２ＣＦ３、Ｃ６Ｈ５、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ２ＣＨ２、（ＣＨ３）２ＣＨＣＨ２、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ（ＣＨ３）、ＣＨ３ＣＨ２ＣＨ２、ＣＨ（ＣＨ３）２、ＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２からなる群から選択され、Ｒ１４が、Ｈ、ＣＨ３、Ｃ６Ｈ５又はＣＨ２ＣＨ３及びＣＨ＝ＣＨ２であり、好ましくはＲ６、Ｒ７及びＲ８が、Ｈ、ＣＨ３、Ｃ６Ｈ５又はＣＨ２ＣＨ３であり、Ｒ９及びＲ１１が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、ＣＨ３、ＣＨ２Ｆ、ＣＨＦ２

、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、R^{14}が、H、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3及び$CH=CH_2$である式（Ｉｈ）のものであり得る。

【００９９】

より具体的には、前記溶媒は、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}及びR^{13}が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、R^{14}が、H、CH_3、C_6H_5、又はCH_2CH_3及び$CH=CH_2$であり、好ましくはR^6、R^8、R^{10}及びR^{12}が、H、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3であり、R^7、R^9、R^{11}及びR^{13}が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、R^{14}が、H、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3及び$CH=CH_2$である式（Ｉｉ）のものであり得る。

【０１００】

より具体的には、前記溶媒は、R^6、R^7、R^8及びR^9が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、好ましくはR^6、R^7及びR^8が、H、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3であり、R^9が、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択される式（Ｉｊ）のものであり得る。

【０１０１】

より具体的には、前記溶媒は、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}、R^{13}、R^{15}及びR^{16}が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、好ましくはR^6、R^7、R^8、R^9及びR^{10}が、H、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3であり、R^{11}、R^{12}、R^{13}、R^{15}及びR^{16}が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択される式（Ｉｋ）のものであり得る。

【０１０２】

より具体的には、前記溶媒は、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}、R^{13}、R^{15}及びR^{16}が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、R^{14}が、H、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3及び$CH=CH_2$であり、好ましくはR^6、R^7、R^8、R^9及びR^{10}が、H、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3であり、R^{11}、R

R^{12}、R^{13}、R^{15}及びR^{16}が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、R^{14}が、H、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3及び$CH=CH_2$である式（Ｉｌ）のものであり得る。

【０１０３】

より具体的には、前記溶媒は、R^4及びR^5が、互いに独立して、CH_3、CH_2CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CH_2OCH_3、$CH(CH_3)CH_2OCH_3$、$CH(CH_3)_2$、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CHFCH_3$及び$CH_2CH_2CH_3$からなる群から選択され、好ましくはR^4が、CH_3、CH_2CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CH_2OCH_3、$CH(CH_3)CH_2OCH_3$、$CH(CH_3)_2$、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CHFCH_3$及び$CH_2CH_2CH_3$からなる群から選択され、R^5が、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CH_2OCH_3、$CH(CH_3)CH_2OCH_3$、$CH(CH_3)_2$、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、C_6H_5、$CF_2CF_2CF_2CF_3$及び$CHFCH_3$からなる群から選択され、R^6、R^7、R^8及びR^9が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択される式（Ｉｍ）のものであり得る。

【０１０４】

より具体的には、前記溶媒は、R^4及びR^5が互いに独立して、CH_3、CH_2CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、$CH(CH_3)_2$、CF_3CH_2、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CHFCH_3$及び$CH_2CH_2CH_3$からなる群から選択され、好ましくはR^4が、CH_3、CH_2CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、$CH(CH_3)_2$、CF_3CH_2、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CHFCH_3$及び$CH_2CH_2CH_3$からなる群から選択され、R^5が、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CF_3CH_2、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、C_6H_5、$CF_2CF_2CF_2CF_3$及び$CHFCH_3$からなる群から選択される式（Ｉｎ）のものであり得る。

【０１０５】

より具体的には、前記溶媒は、R^4が、CH_3、CH_2CH_3、$CH_3OCH_2CH_2$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、C_6H_5、$CF_3-C_6H_4$、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、$CH(CH_3)_2$、CF_3CH_2、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、$CHFCH_3$及び$CH_2CH_2CH_3$からなる群から選択される式（Ｉｏ）のものであってもよい。

【０１０６】

より具体的には、前記溶媒は、R^6及びR^7が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、好ましくはR^6及びR^7が、互いに独立して、H、F、CH_3、CH_2F、CF_3、C

F_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、C_6H_5、CH_2CH_3、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、ｎが、１～１０、好ましくは１～５の整数である式（Ｉｐ）のものであり得る。

【０１０７】

より具体的には、前記溶媒は、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}及びR^{13}が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、ＸがＯ又はSO_2であり、好ましくはR^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}及びR^{13}が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、C_6H_5、CH_2CH_3、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、ＸがＯ又はSO_2である式（Ｉｑ）のものであり得る。

【０１０８】

より具体的には、前記溶媒は、R^6が、Ｈ、Ｆ、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、R^{14}及びR^{17}が、互いに独立して、Ｈ、CH_3、C_6H_5、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、好ましくはR^6が、Ｈ、Ｆ、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、CH_2CH_3及び$CH=CH$であり、R^{14}及びR^{17}が、互いに独立して、Ｈ、CH_3、C_6H_5、又はCH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択される式（Ｉｒ）のものであり得る。

【０１０９】

より具体的には、前記溶媒は、R^8、R^9、R^{10}、R^{11}、R^{12}及びR^{13}が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、好ましくはR^8、R^{10}及びR^{12}が、Ｈ、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3であり、R^9、R^{11}及びR^{13}が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、Y^1及びY^2がＯ又はCR^6R^7から選択され、ただし、Y^1及びY^2は同時にＯではなく、R^6及びR^7が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C_6H_5、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CH_3CH_2CH_2$、$CH(CH_3)_2$、CH_2CH_3及び$CH=CH_2$からなる群から選択され、好ましくは、Ｈ、CH_3、C_6H_5又はCH_2CH_3である式（Ｉｓ）のものであり得る。

【０１１０】

より具体的には、前記溶媒は、R^6、R^7、R^8及びR^9が、互いに独立して、Ｈ、Ｆ、CH_3、CH_2F、CHF_2、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$、C

$_6$H$_5$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_3$CH$_2$CH$_2$CH$_2$、（CH$_3$）$_2$CHCH$_2$、CH$_3$CH$_2$CH（CH$_3$）、CH$_3$CH$_2$CH$_2$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、R^{14}及びR^{17}が、互いに独立して、H、CH$_3$、C$_6$H$_5$、又はCH$_2$CH$_3$、CH＝CH$_2$からなる群から選択され、好ましくは、R^{6}及びR^{8}が、互いに独立して、H、CH$_3$、C$_6$H$_5$、又はCH$_2$CH$_3$であり、R^7、R^{9}が、互いに独立して、H、F、CH$_3$、CH$_2$F、CHF$_2$、CH$_2$CH$_2$F、CH$_2$CHF$_2$、CH$_2$CF$_3$、CF$_3$、CF$_2$CF$_3$、CF$_2$CF$_2$CF$_3$、CH（CF$_3$）$_2$、CF$_2$CF$_2$CF$_2$CF$_3$、C$_6$H$_5$、CH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、R^{14}及びR^{17}が、互いに独立して、H、CH$_3$、C$_6$H$_5$又はCH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択される式（Ｉｔ）のものであり得る。

【０１１１】

より具体的には、前記溶媒は、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}が、互いに独立して、H、F、CH$_3$、CH$_2$F、CHF$_2$、CH$_2$CH$_2$F、CH$_2$CHF$_2$、CH$_2$CF$_3$、CF$_3$、CF$_2$CF$_3$、CF$_2$CF$_2$CF$_3$、CH（CF$_3$）$_2$、CF$_2$CF$_2$CF$_2$CF$_3$、C$_6$H$_5$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_3$CH$_2$CH$_2$CH$_2$、（CH$_3$）$_2$CHCH$_2$、CH$_3$CH$_2$CH（CH$_3$）、CH$_3$CH$_2$CH$_2$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、R^{14}及びR^{17}が、互いに独立して、H、CH$_3$、C$_6$H$_5$又はCH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、好ましくはR^6、R^{8}及びR^{10}が、互いに独立して、H、CH$_3$、C$_6$H$_5$、又はCH$_2$CH$_3$であり、R^7、R^9、R^{11}が、互いに独立して、H、F、CH$_3$、CH$_2$F、CHF$_2$、CH$_2$CH$_2$F、CH$_2$CHF$_2$、CH$_2$CF$_3$、CF$_3$、CF$_2$CF$_3$、CF$_2$CF$_2$CF$_3$、CH（CF$_3$）$_2$、CF$_2$CF$_2$CF$_2$CF$_3$、C$_6$H$_5$、CH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、R^{14}及びR^{17}が、互いに独立して、H、CH$_3$、C$_6$H$_5$又はCH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択される式（Ｉｕ）のものであり得る。

【０１１２】

より具体的には、前記溶媒は、R^6、R^7、R^8、R^9、R^{10}及びR^{11}が、互いに独立して、H、F、CH$_3$、CH$_2$F、CHF$_2$、CH$_2$CH$_2$F、CH$_2$CHF$_2$、CH$_2$CF$_3$、CF$_3$、CF$_2$CF$_3$、CF$_2$CF$_2$CF$_3$、CH（CF$_3$）$_2$、CF$_2$CF$_2$CF$_2$CF$_3$、C$_6$H$_5$、CH$_2$CH$_3$、CH$_3$CH$_2$CH$_2$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_3$CH$_2$CH$_2$CH$_2$、（CH$_3$）$_2$CHCH$_2$、CH$_3$CH$_2$CH（CH$_3$）及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、好ましくはR^6、R^7、R^{8}及びR^{9}が、互いに独立して、H、F、CH$_3$、CH$_2$CF$_3$、CF$_3$、CF$_2$CF$_3$、CF$_2$CF$_2$CF$_3$、CH（CF$_3$）$_2$、C$_6$H$_5$、CH$_2$CH$_3$、CH$_3$CH$_2$CH$_2$、CH（CH$_3$）$_2$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、nが、１～１０、好ましくは１～５の整数である式（Ｉｖ）のものであり得る。

【０１１３】

より具体的には、前記溶媒は、R^{6}が、H、F、CH$_3$、CH$_2$F、CHF$_2$、CH$_2$CH$_2$F、CH$_2$CHF$_2$、CH$_2$CF$_3$、CF$_3$、CF$_2$CF$_3$、CF$_2$CF$_2$CF$_3$、CH（CF$_3$）$_2$、CF$_2$CF$_2$CF$_2$CF$_3$、C$_6$H$_5$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_3$CH$_2$CH$_2$CH$_2$、（CH$_3$）$_2$CHCH$_2$、CH$_3$CH$_2$CH（CH$_3$）、CH$_3$CH$_2$CH$_2$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、R^{14}及びR^{17}が、互いに独立して、H、CH$_3$、C$_6$H$_5$、CH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択され、好ましくはR^{6}が、H、F、CH$_3$、CH$_2$F、CHF$_2$、CH$_2$CH$_2$F、CH$_2$CHF$_2$、CH$_2$CF$_3$、CF$_3$、CF$_2$CF$_3$、CF$_2$CF$_2$CF$_3$、CH（CF$_3$）$_2$、C$_6$H$_5$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_3$CH$_2$CH$_2$、CH（CH$_3$）$_2$、CH$_2$CH$_3$及びCH＝CHであり、R^{14}及びR^{17}が、互いに独立して、H、CH$_3$、C$_6$H$_5$又はCH$_2$CH$_3$及びCH＝CH$_2$からなる群から選択される式（Ｉｗ）のものであり得る。

【０１１４】

より具体的には、前記溶媒は、R^4、R^5及びR^{18}が、互いに独立して、CH_3、CH_2F、CHF_2、C_2H_5、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、$CH_2CH_2CH_3$、$CH_2CH_2CH_2F$、CH_2CHFCH_3、$CH_2CH_2CF_3$、$CH_2CF_2CHF_2$、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$及び$CH(CH_3)_2$からなる群から選択される式（Ｉｘ）のものであり得る。

【０１１５】

より具体的には、前記溶媒は、R^4及びR^5が、互いに独立して、CH_3、CH_2F、CHF_2、C_2H_5、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、$CH_2CH_2CH_3$、$CH_2CH_2CH_2F$、CH_2CHFCH_3、$CH_2CH_2CF_3$、$CH_2CF_2CHF_2$、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$及び$CH(CH_3)_2$からなる群から選択され、Y^3が、SO_2又はＳ＝Ｏである式（Ｉｙ）のものであり得る。

【０１１６】

より具体的には、前記溶媒は、R^4が、CH_3、CH_2F、CHF_2、C_2H_5、CH_2CH_2F、CH_2CHF_2、CH_2CF_3、$CH_2CH_2CH_3$、$CH_2CH_2CH_2F$、CH_2CHFCH_3、$CH_2CH_2CF_3$、$CH_2CF_2CHF_2$、CF_3、CF_2CF_3、$CF_2CF_2CF_3$、$CH(CF_3)_2$、C_6H_5、$CH(CH_3)_2$、$CH_3CH_2CH_2CH_2$、$(CH_3)_2CHCH_2$、$CH_3CH_2CH(CH_3)$、$CF_2CF_2CF_2CF_3$及び$CH(CH_3)_2$からなる群から選択される式（Ｉｚ）のものであり得る。

【０１１７】

非限定的な様式では、前記溶媒は、例えば、プロピレンカーボネート、エチレンカーボネート、ブチレンカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジメトキシエタン、γ－ブチロラクトン、３－フルオロ－γ－ブチロラクトン、δ－バレロラクトン、γ－バレロラクトン、ε－カプロラクトン、γ－カプロラクトン、ブチロラクタム、バレロラクタム、Ｎ－メチル－ブチロラクタム、Ｎ－メチル－バレロラクタム、フルオロエチレンカーボネート、フルオロプロピレンカーボネート、モノフルオロメチルメチルカーボネート、メチル－２，２，２－トリフルオロエチルカーボネート、トリフルオロエチルエチルカーボネート、ビス（２，２，２－トリフルオロエチルカーボネート）、プロピル－２，２，２－トリフルオロエチルカーボネート、メチルノナフルオロブチルエーテル、ヘキサフルオロイソプロピルメチルエーテル、ビス（２，２，２－トリフルオロエチル）エーテル、メチルノナフルオロブチルエーテル、エチルノナフルオロブチルエーテル、メチルイソプロピルカーボネート、エチルイソプロピルカーボネート、プロピルエチルカーボネート、メチルプロピルカーボネート、１－フルオロプロピルメチルカーボネート、２－フルオロプロピルメチルカーボネート、１，１，１－トリフルオロプロピルメチルカーボネート、１，１，１，２，２－ペンタフルオロプロピルメチルカーボネート、１，１，２，２－テトラフルオロプロピルメチルカーボネート、１，１，１－トリフルオロエチルメチルカーボネート、１，１－ジフルオロエチルメチルカーボネート、１－フルオロエチルメチルカーボネート、エチルメチルカーボネート、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、メチルフルオロメチルカーボネート、１－フルオロエチルエチルカーボネート、１，１－ジフルオロエチルエチルカーボネート、１，１，１－トリフルオロエチルエチルカーボネート、ビニルエチレンカーボネート、ビニレンカーボネート、エチルエタノエート、エチル１－フルオロエタノエート、エチル１，１－ジフルオロエタノエート、１－フルオロエチルエタノエート、メチルエタノエート、１－メトキシイソプロピルエタノエート、１－フルオロエチルプロパノエート、エチル２－フルオロプロパノエート、メチルブタノエート、エチルブタノエート、メチルメトキシエタノエート、Ｎ－メチル－２－オキサゾリジノン、エチレングリコールジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、２－メチルテトラヒドロフラン、２，６－ジメチルテトラヒドロフラン、テトラヒドロピラ

ン、トリエチレングリコールジメチルエーテル、テトラエチレングリコールジメチルエーテル、１，４－ジオキサン、１，３－ジオキソラン、ジメチルカーボネート、エチルメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、ジフェニルカーボネート、メチルフェニルカーボネート、エチレン２，３－ジメチルカーボネート、ビニレンカーボネート、エチレン２－ビニルカーボネート、メチルベンゾエート、エチルベンゾエート、５－バレロラクトン、トリメチルホスフェート、エチルジメチルホスフェート、ジエチルメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、アセトニトリル、プロピオニトリル、メトキシプロピオニトリル、グルタロニトリル、アジポニトリル、２－メチルグルタロニトリル、バレロニトリル、ブチロニトリル、イソブチロニトリル、Ｎ－メチルホルムアミド、Ｎ－エチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド、Ｎ－メチルピロリジノン、Ｎ－メチルピロリドン、Ｎ－ビニルピロリドン、ジメチルスルホン、エチルメチルスルホン、ジエチルスルホン、スルホラン、３－メチルスルホラン、２，４－ジメチルスルホラン、エチレングリコール、プロピレングリコール、エチレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル、ジメチルスルホキシド、メチルエチルスルホキシド、ジエチルスルホキシド、ベンゾニトリル、トルニトリル、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン、１，３－ジメチル－３，４，５，６－テトラヒドロ－２（１，Ｈ）－ピリミジノン、３－メチル－２－オキサゾリジノン、ニトロメタン、ニトロエタン、ニトロプロパン、ニトロブタンからなる群から選択される。これらの溶媒は単独で用いてもよく、組み合わせて用いてもよい。

【０１１８】

あるいは、前記溶媒はイオン性液体であってもよい。好ましくは、イオン性液体は、式（カチオン）ＦＳＩ又は（カチオン）ＴＦＳＩ（式中、ＦＳＩはビス（フルオロスルホニル）イミドであり、ＴＦＳＩはビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミドである）のものである。好ましくは、カチオンはアンモニウム、イミダゾリウム、ピロリジニウム、ピペリジニウム、ホスホニウム、スルホニウム又はオキソニウム型のものである。非限定的な様式では、（１－エチル－３－メチルイミダゾリウムビス（フルオロスルホニル）イミド）、（１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムビス（フルオロスルホニル）イミド）、（１－ブチル－１－メチルピロリジニウムビス（フルオロスルホニル）イミド）、（１－プロピル－３－メチルピロリジニウムビス（フルオロスルホニル）イミド）、（１－ブチル－１－メチルピペリジニウムビス（フルオロスルホニル）イミド）、（１－メチル－１－プロピルピペリジニウムビス（フルオロスルホニル）イミド）、（メチル（トリ－ｎ－ブチル）ホスホニウムビス（フルオロスルホニル）イミド）、（メチル（トリ－ｎ－エチル））ホスホリウムビス（フルオロスルホイル）イミド）、（１－エチル－３－メチルイミダゾリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド）、（１－ブチル－３－メチルイミダゾリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド）、（１－ブチル－１－メチルピロリジニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド）、（１－プロピル－３－メチルピロリジニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド）、（１－ブチル－１－メチルピペリジニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド）、（１－メチル－１－プロピルピペリジニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド）、（メチル（トリ－ｎ－ブチル）ホスホニウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド）（メチル（トリ－ｎ－エチル）ホスホリウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド）を挙げることができる。

【０１１９】

あるいは、本電解質組成物に使用される前記溶媒は、２５℃で２デバイを超える双極子モーメントを有する。好ましくは、前記溶媒は、２５℃で２．５デバイを超える、好ましくは３．０デバイを超える、より優先的には３．５デバイを超える、特に４．０デバイを超える双極子モーメントを有する。

【０１２０】

例えば、非限定的な様式では、前記電解質は、プロピレンカーボネート、１－フルオロエチルメチルカーボネート、１－フルオロエチルエチルカーボネート、１，１－ジフルオ

ロエチルメチルカーボネート、１，１－ジフルオロエチルエチルカーボネート、１，１，１－トリフルオロエチルメチルカーボネート、１，１，１－トリフルオロエチルエチルカーボネート、ペルフルオロエチルメチルカーボネート、ペルフルオロエチルエチルカーボネート、プロピルメチルカーボネート、プロピルエチルカーボネート、ジメトキシメタン、エチレンカーボネート、イソプロピルメチルカーボネート、イソプロピルエチルカーボネート、フルオロエチレンカーボネート、ビニリデンカーボネート、ブチレンカーボネート、ビニルエチレンカーボネート、フルオロプロピレンカーボネート、フルオロ－γ－ブチロラクトン、δ－バレロラクトン、γ－ブチロラクトン、フルオロプロピルメチルカーボネート、２－フルオロプロピルメチルカーボネート、１，１，１－トリフルオロプロピルメチルカーボネート、１，１，２，２－テトラフルオロプロピルメチルカーボネート、１，１，１，２，２－ペンタフルオロプロピルメチルカーボネート、フルオロプロピルエチルカーボネート、２－フルオロプロピルエチルカーボネート、１，１，１－トリフルオロプロピルエチルカーボネート、１，１，２，２－テトラフルオロプロピルエチルカーボネート、１，１，１，２，２－ペンタフルオロプロピルエチルカーボネート、ニトロメタン、１８－クラウン－６エーテル、１５－クラウン－５エーテル、１２－クラウン－４エーテル、ジベンゾ－１８－クラウン－６エーテル、ジベンゾ－２４－クラウン－８エーテル、ジシクロヘキサノ－１８－クラウン－６エーテル、ジベンゾ－１２－クラウン－４エーテル、ニトロメタン、ニトロエタン、ニトロプロパン、ニトロブタン、トリメチルホスフェート、エチルジメチルホスフェート、ジエチルメチルホスフェート、トリエチルホスフェート、アセトニトリル、プロピオニトリル、メトキシプロピオニトリル、グルタロニトリル、アジポニトリル、２－メチルグルタロニトリル、バレロニトリル、ブチロニトリル、イソブチロニトリル、Ｎ－メチルホルムアミド、Ｎ－エチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルアセトアミド、Ｎ－メチルピロリジノン、Ｎ－メチルピロリドン、Ｎ－ビニルピロリドン、ジメチルスルホン、エチルメチルスルホン、ジエチルスルホン、スルホラン、３－メチルスルホラン、２，４－ジメチルスルホラン、ジメチルスルホキシド、メチルエチルスルホキシド、ジエチルスルホキシド、ベンゾニトリル、トルニトリル、１，３－ジメチル－２－イミダゾリジノン、３－メチル－２－オキサゾリジノンからなる群から選択されてもよい。

【０１２１】

上述のように、前記電解質組成物は、リチウム塩も含む。例えば、リチウム塩は、$LiPF_6$、$LiOSO_2CF_3$、$LIN(SO_2CF_3)_2$、$LIN(SO_2F)_2$、$LiBF_4$、$LiClO_4$、リチウム２－トリフルオロメチル－４，５－ジシアノイミダゾレート、リチウムジフルオロホスフェート（$LiPO_2F_2$）、リチウムビス(オキサラト)ボレート（$LiB(C_2O_4)_2$）、リチウムジフルオロ(オキサラト)ボレート（$LiF_2B(C_2O_4)_2$）又は$LiNO_3$であり得る。

【実施例】

【０１２２】

以下の実施例は、本発明の範囲を非限定的な様式で例示する。本発明による実施例及び以下に記載される比較例は、同じプロトコルに従って実施した。

【０１２３】

ラテックスの調製

３つの異なるラテックスを、それらの主な特徴、すなわち、Ｐ（ＶＤＦ－ＨＦＰ）コポリマー中のＨＦＰ含有率、ＰＶＤＦ／アクリル比、固形分と共に以下の表１に示す。試験３及び４に使用したポリマー樹脂は、本発明によるものである。本発明によるポリマー樹脂を、ＷＯ２００７／０１８７８３号に記載されたプロトコルに従う乳化重合プロセスによって、対応するフルオロ－アクリルポリマー組成物を合成するためのシードとして使用したＰ（ＶＤＦ－ＨＦＰ）コポリマーラテックスから調製した。

【０１２４】

ＰＶＤＦ／アクリルポリマーブレンドの調製：　Ｐ（ＶＤＦ－ＨＦＰ）コポリマーラテックス及び試験4のポリマー樹脂のアクリル部分と同様の組成を有するアクリルラテック

スを、上記のように乳化重合プロセスによって互いに独立して調製する。次いで、２つのラテックスを７０／３０の比で混合する。

【０１２５】

コーティング組成物の調製

試験２～４のそれぞれについて、ラテックス単独の初期固形分とは無関係に２５．４％に近い同じ固形分を得るために、示したラテックスを増粘剤（３．５％の水溶液中のＣＭＣ２５０ｋ）及び必要に応じて脱塩水の形態の残りに加える。Ｔｈｉｎｋｙミキサー内で２００ｒｐｍ／１０分で中程度の剪断下で混合を行う。次いで、他の添加剤－湿潤剤（ＢＹＫ　３４９）、接着促進剤（ＢＹＫ　ＬＰＣ－２２３４６、既に５０％溶液中に供給されている）を、ラテックス中にアクリルをまだ含有していない組成物（＝試験２）にのみ添加し、次いで、２００ｒｐｍ／１０分で再度混合を行う。

【０１２６】

コーティングの塗布

各コーティング組成物を、６μｍ（湿潤厚さ）を堆積させるスパイラルバーを備えたコーターを用いて、約２５ｍｍ／秒の速度で多孔質ＰＥセパレータ（Ｇｅｌｏｎ、厚さ１２ミクロン）に塗布し、次いで周囲温度で２４時間乾燥させる。

【０１２７】

【表１】

[表 1]

		試験 1	試験 2	試験 3	試験 4
ラテックス	PVDF 中の HFP の重量%	−	4.5	23	6.5
	PVDF/アクリル（重量）	−	100/0	50/50	70/30
	固形分（重量%）	−	30	46	34
コーティング組成物	水	=	0	29	10.2
	増粘剤	−	11.6	11.6	11.6
	ラテックス	−	83.4	54.4	73.2
	合計	−	95	95	95
	固形分（重量%）	−	25.4	25.4	25.3
	湿潤剤	−	0.5	0.5	0.5
	接着促進剤	−	4.5	0	0

【０１２８】

湿潤性試験

２ｍｌの電解質組成物の液滴をセパレータ上に堆積させる。目視検査により、良好な湿潤性が観察されるかどうか、すなわち電解質組成物がセパレータに含浸するかどうか、又は反対に湿潤性が観察されないかどうか、すなわち電解質組成物の液滴がセパレータに含浸しないかどうかを確認することが可能になる。全ての試料について３０分後に目視検査を行う。非常に良好な湿潤性はスコア２であり、良好な湿潤性はスコア１であり、湿潤性の欠如はスコア０である。

【０１２９】

電解質組成物を、問題の溶媒及びリチウム塩を、所望の濃度を達成するように計算された量で混合することによって調製する。以下の実施例では、リチウム塩濃度は、考慮され

る２つの溶媒、すなわちプロピレンカーボネート（ＰＣ）及びジエチルカーボネート（ＤＥＣ）に対して４ｍｏｌ．ｌ$^{-1}$である。

【０１３０】

試験１を、コーティングなしで、ポリエチレン支持体のみで作られたセパレータの存在下で実施する。試験２を、アクリル部分を含まないＰＶＤＦフィルムでコーティングしたポリエチレン支持体を含むセパレータの存在下で実施する。試験３及び試験４を、フルオロ－アクリルポリマーラテックス（上で示したエマルジョンによって調製する）でコーティングしたポリエチレン支持体を含むセパレータの存在下で実施する。結果を以下の表２に示す。

【０１３１】

【表２】

[表 2]

電解質組成物	η (cP)	μ	試験 1	試験 2	試験 3	試験 4
PC 中の 4M LiFSI	120	4.9 D	0	0	1	2
DEC 中の 4M LiFSI	38	1.07 D	0	-	1	2

μ: デバイで表された双極子モーメント; η: 20° C 及び 20s^{-1} の剪断で Brookfield Metek DV2T 粘度計を用いて測定された粘度; PC: プロピレンカーボネート; DEC: ジエチルカーボネート。

【０１３２】

以上の結果から示されるように、本発明によるポリマー樹脂（試験３及び試験４）は、アクリル成分を含まないポリマー樹脂よりもセパレータに含浸しやすい。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/FR2023/050727

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M 10/0525(2010.01)i; ***H01M 10/056***(2010.01)i; ***H01M 50/42***(2021.01)i; ***H01M 50/426***(2021.01)i; ***H01M 50/431***(2021.01)i; ***H01M 50/446***(2021.01)i; ***H01M 50/449***(2021.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01M

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2020024880 A (NISSAN MOTOR) 13 February 2020 (2020-02-13) paragraphs [0084] - [0087], [0089] - [0092], [0095], [0098], [0099]; claims 1-3,6,7; examples	1-12
Y	EP 3991239 A1 (ARKEMA INC [US]) 04 May 2022 (2022-05-04) examples	1-12

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
30 August 2023	**06 September 2023**
Name and mailing address of the ISA/EP **European Patent Office** **p.b. 5818, Patentlaan 2, 2280 HV Rijswijk** **Netherlands** Telephone No. **(+31-70)340-2040** Facsimile No. **(+31-70)340-3016**	Authorized officer **Duval, Monica** Telephone No.

Form PCT/ISA/210 (second sheet) (January 2015)

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/FR2023/050727

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2020024880 A	13 February 2020	JP 7040353 B2	23 March 2022
		JP 2020024880 A	13 February 2020
EP 3991239 A1	04 May 2022	CN 114402482 A	26 April 2022
		EP 3991239 A1	04 May 2022
		JP 2022539128 A	07 September 2022
		KR 20220024179 A	03 March 2022
		TW 202109941 A	01 March 2021
		US 2022311091 A1	29 September 2022
		WO 2020263804 A1	30 December 2020

Form PCT/ISA/210 (patent family annex) (January 2015)

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°
PCT/FR2023/050727

A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE
INV. H01M10/0525 H01M10/056 H01M50/42 H01M50/426 H01M50/431
H01M50/446 H01M50/449
ADD.
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB

B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE

Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement)
H01M

Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche

Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés)
EPO-Internal, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS

Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
Y	JP 2020 024880 A (NISSAN MOTOR) 13 février 2020 (2020-02-13) alinéas [0084] - [0087], [0089] - [0092], [0095], [0098], [0099]; revendications 1-3,6,7; exemples	1-12
Y	EP 3 991 239 A1 (ARKEMA INC [US]) 4 mai 2022 (2022-05-04) exemples	1-12

☐ Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents

☒ Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe

* Catégories spéciales de documents cités:

"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent
"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date
"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)
"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens
"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée
"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention
"X" document particulièrement pertinent;; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément
"Y" document particulièrement pertinent;; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier
"&" document qui fait partie de la même famille de brevets

Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée	Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale
30 août 2023	06/09/2023

Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale	Fonctionnaire autorisé
Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016	Duval, Monica

Formulaire PCT/ISA/210 (deuxième feuille) (avril 2005)

RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale n°
PCT/FR2023/050727

Document brevet cité au rapport de recherche	Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
JP 2020024880 A	13-02-2020	JP 7040353 B2	23-03-2022
		JP 2020024880 A	13-02-2020
EP 3991239 A1	04-05-2022	CN 114402482 A	26-04-2022
		EP 3991239 A1	04-05-2022
		JP 2022539128 A	07-09-2022
		KR 20220024179 A	03-03-2022
		TW 202109941 A	01-03-2021
		US 2022311091 A1	29-09-2022
		WO 2020263804 A1	30-12-2020

Formulaire PCT/ISA/210 (annexe familles de brevets) (avril 2005)

フロントページの続き

(51)国際特許分類		FI		テーマコード（参考）
H01M	*50/451 (2021.01)*	H01M	50/451	
H01M	*50/446 (2021.01)*	H01M	50/446	
H01G	*11/58 (2013.01)*	H01G	11/58	
H01G	*11/60 (2013.01)*	H01G	11/60	

,MC,ME,MK,MT,NL,NO,PL,PT,RO,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),AE,AG,AL,AM,AO,AT,AU,AZ,BA,BB,BG,BH,BN,BR,BW,BY,BZ,CA,CH,CL,CN,CO,CR,CU,CV,CZ,DE,DJ,DK,DM,DO,DZ,EC,EE,EG,ES,FI,GB,GD,GE,GH,GM,GT,HN,HR,HU,ID,IL,IN,IQ,IR,IS,IT,JM,JO,JP,KE,KG,KH,KN,KP,KR,KW,KZ,LA,LC,LK,LR,LS,LU,LY,MA,MD,MG,MK,MN,MU,MW,MX,MY,MZ,NA,NG,NI,NO,NZ,OM,PA,PE,PG,PH,PL,PT,QA,RO,RS,RU,RW,SA,SC,SC,SD,SE,SG,SK,SL,ST,SV,SY,TH,TJ,TM,TN,TR,TT,TZ,UA,UG,US,UZ,VC,VN,WS,ZA,ZM,ZW

マ・フランス－セ・エール・エール・ア

(72)発明者 フザール－エア，マリー

フランス国、９２７０５・コロンブ・セデックス、リュ・デスティエンヌ・ドルブ・４２０、アルケマ・フランス

Ｆターム（参考） 5E078 DA02 DA03

5H021 CC03 CC04 EE03 EE06 EE10 EE15 EE21 HH00 HH01

5H029 AJ14 AM03 AM05 AM07 DJ04 EJ12 HJ00 HJ01 HJ02 HJ10