

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2025年1月2日(02.01.2025)



(10) 国際公開番号

WO 2025/005015 A1

(51) 国際特許分類:
C08L 71/12 (2006.01) *H01G 11/56* (2013.01)
C08K 3/105 (2018.01) *H01M 10/0562* (2010.01)
H01B 1/06 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2024/022651

(22) 国際出願日: 2024年6月21日(21.06.2024)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2023-107173 2023年6月29日(29.06.2023) JP

(71) 出願人: 東亜合成株式会社 (TOAGOSEI CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1058419 東京都港区西新橋一丁目14番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 青山 悟 (AOYAMA, Satoru); 〒1058419 東京都港区西新橋一丁目14番1号 東亜合成株式会社内 Tokyo (JP). 仲野 朋子 (NAKANO, Tomoko); 〒1058419 東京都港区西新橋一丁目14番1号 東亜合成株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 山田 強 (YAMADA, Tsuyoshi); 〒4500002 愛知県名古屋市中村区名駅三丁目13番24号 第一はせ川ビル6階 あいぎ特許事務所 Aichi (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): 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, 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.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: COMPOSITION AND METHOD FOR PRODUCING SAME, DRIED PRODUCT AND METHOD FOR PRODUCING SAME, SOLID ELECTROLYTE, AND POWER STORAGE DEVICE

(54) 発明の名称: 組成物及びその製造方法、乾燥体及びその製造方法、固体電解質、並びに蓄電デバイス

(57) Abstract: In the present invention, a composition contains: a charge transfer complex formed from an electron-donating compound and an electron-receiving compound; and a non-aqueous solvent. The electron-donating compound has a phenylene oxide structure. The relative dielectric constant of the non-aqueous solvent is more than 2.0 and less than 40.

(57) 要約: 電子供与性化合物と電子受容性化合物とにより形成されてなる電荷移動錯体と、非水溶媒と、を含み、電子供与性化合物がフェニレンオキシド構造を有し、当該非水溶媒の比誘電率が2.0超40未満である組成物とする。



WO 2025/005015 A1

明 細 書

発明の名称：

組成物及びその製造方法、乾燥体及びその製造方法、固体電解質、並びに蓄電デバイス

技術分野

[0001] [関連出願の相互参照]

本出願は、2023年6月29日に出願された日本特許出願番号2023-107173号に基づく優先権を主張し、その全体が参照により本明細書に組み込まれる。

本開示は、組成物及びその製造方法、乾燥体及びその製造方法、固体電解質、並びに蓄電デバイスに関する。

背景技術

[0002] 蓄電デバイスとしては、ニッケル水素二次電池やリチウムイオン二次電池等の各種二次電池や、電気二重層キャパシタ等といった様々なデバイスが実用化されている。中でも、リチウムイオン二次電池は、高いエネルギー密度や電池容量を有する点において広範な用途で利用されている。また近年では、レアメタルであるリチウムに替わる元素を使用するポストリチウムイオン二次電池として、ナトリウムイオン二次電池やカリウムイオン二次電池、マグネシウムイオン二次電池等が注目を集めている。

[0003] 蓄電デバイスとして広く用いられているリチウムイオン二次電池は、負極、正極及び電解質を有し、電解質を介して両極間でリチウムイオンを移動させることによって充放電を行う二次電池である。電解質としては、従来、有機電解液が主に用いられてきている。これに対し、近年、電解液の液漏れや、過充電・過放電による電池内部での短絡の懸念を払拭する技術として、有機電解液に代えて、無機材料や有機材料を用いた固体又はゲル状の電解質が提案されている。

[0004] 固体電解質としては、室温でガラス状態にあるポリフェニレンスルフィド

を酸化剤でドーピングして得られる電荷移動錯体と、イオン伝導のキャリアとなり得るイオン源を有する化合物（イオン化合物）との複合体が開発されている（例えば、特許文献 1 参照）。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：米国特許出願公開第 2 0 1 7 / 0 0 0 5 3 5 6 号明細書

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明者らが検討したところ、特許文献 1 に開示されている固体電解質は、室温において比較的高いイオン伝導性を示すものの、同一の固体電解質のイオン伝導度を同一条件で複数回測定した場合の測定値のばらつき（以下では、「イオン伝導度のばらつき」ともいう。）が大きいことが分かった。固体電解質においてイオン伝導度のばらつきが大きい場合、その固体電解質を用いて製造された二次電池は電池性能が安定せず、品質保証の点で劣ることが懸念される。

[0007] 本開示はこのような事情に鑑みてなされたものであり、室温において高いイオン伝導性を示し、かつイオン伝導度のばらつきが小さい固体電解質を提供することを主たる目的とする。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意検討した結果、フェニレンオキシド構造を有する電子供与性化合物と電子受容性化合物と特定の溶媒を用いることによって形成された電荷移動錯体により、室温において高いイオン伝導性を示し、かつイオン伝導度のばらつきが小さい固体電解質が得られることを見出した。本開示によれば、以下の組成物及びその製造方法、乾燥体及びその製造方法、固体電解質、並びに蓄電デバイスが提供される。

[0009] 〔1〕 電子供与性化合物と電子受容性化合物とにより形成されてなる電荷移動錯体と、非水溶媒と、を含み、前記電子供与性化合物は、フェニレンオ

キシド構造を有し、前記非水溶媒の比誘電率が2.0超4.0未満である、組成物。

[0010] [2] 固体電解質用である、上記〔1〕に記載の組成物。

[3] JIS K 0071-2に準拠して測定されるガードナー色数が1.3以上である、上記〔1〕又は〔2〕に記載の組成物。

[4] 前記非水溶媒の比誘電率が3.5以下である、上記〔1〕～〔3〕のいずれかに記載の組成物。

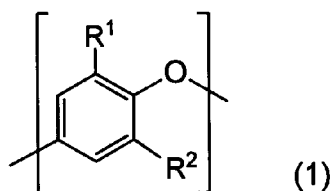
[5] 前記非水溶媒は、酸素原子及び／又は芳香環構造を有する化合物である、上記〔1〕～〔4〕のいずれかに記載の組成物。

[6] 前記非水溶媒は、鎖状ケトン、鎖状エーテル、環状エーテル、鎖状カルボン酸エステル、鎖状炭酸エステル、芳香族炭化水素及びラクタムからなる群より選択される少なくとも1種である、上記〔1〕～〔5〕のいずれかに記載の組成物。

[0011] [7] 前記電子供与性化合物のモル量（ただし、前記電子供与性化合物が重合体の場合には単量体換算）に対する、前記電子受容性化合物のモル量の比率が0.1以上1.0以下である、上記〔1〕～〔6〕のいずれかに記載の組成物。

[8] 前記電子供与性化合物は、下記式（1）で表される繰り返し単位を有する重合体である、上記〔1〕～〔7〕のいずれかに記載の組成物。

[化1]



（式（1）中、R¹及びR²は、同一又は異なって、水素原子又はアルキル基である。）

[9] 前記電子受容性化合物が、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノ-p-ベンゾキノン（DDQ）、2,3,5,6-テトラクロロ-1,4-ベンゾキノン（クロラニル）、7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン（

TCNQ)、*o*-ベンゾキノン、*m*-ベンゾキノン及び*p*-ベンゾキノンからなる群より選択される少なくとも1種を含む、上記〔1〕～〔8〕のいずれかに記載の組成物。

[0012] 〔10〕 更に、アルカリ金属含有化合物を含む、上記〔1〕～〔9〕のいずれかに記載の組成物。

〔11〕 前記アルカリ金属含有化合物がアルカリ金属塩を含む、上記〔10〕に記載の組成物。

〔12〕 前記アルカリ金属含有化合物がリチウム含有化合物を含む、上記〔10〕又は〔11〕に記載の組成物。

〔13〕 上記〔1〕～〔9〕のいずれかに記載の組成物の乾燥体。

[0013] 〔14〕 上記〔13〕に記載の乾燥体を、比誘電率が2.0超4.0未満である非水溶媒に溶解した溶液のJIS K 0071-2に準拠して測定されるガードナー色数が13以上である、乾燥体。

〔15〕 上記〔13〕に記載の乾燥体と、アルカリ金属含有化合物とを含む、組成物。

〔16〕 上記〔1〕～〔9〕のいずれかに記載の組成物の製造方法であって、前記電子供与性化合物を第1の溶媒に溶解した溶液である第1溶液と、前記電子受容性化合物を第2の溶媒に溶解した溶液である第2溶液とを混合する工程を含み、前記第1の溶媒及び前記第2の溶媒は、同一又は異なって、比誘電率が2.0超4.0未満の非水溶媒である、組成物の製造方法。

〔17〕 上記〔13〕に記載の乾燥体の製造方法であって、前記電子供与性化合物を第1の溶媒に溶解した溶液である第1溶液と、前記電子受容性化合物を第2の溶媒に溶解した溶液である第2溶液とを混合する工程と、前記第1溶液と前記第2溶液との混合液から前記非水溶媒を除去する工程と、を含み、前記第1の溶媒及び前記第2の溶媒は、同一又は異なって、比誘電率が2.0超4.0未満の非水溶媒である、乾燥体の製造方法。

[0014] 〔18〕 上記〔10〕又は〔15〕に記載の組成物を用いて形成された、固体電解質。

〔１９〕 上記〔１８〕に記載の固体電解質を備える、蓄電デバイス。

発明の効果

[0015] 本開示によれば、室温において高いイオン伝導性を示し、かつイオン伝導度のばらつきが小さい固体電解質を得ることができる。このような本開示の固体電解質を二次電池やキャパシタ等の蓄電デバイスの電解質として用いることにより、電解質の固体化による安全性確保と、電池性能とを兼ね備える蓄電デバイスを得ることができる。

発明を実施するための形態

[0016] 以下、本開示について詳しく説明する。

[0017] 《組成物》

本開示の組成物（以下、「本組成物」ともいう。）の一つの形態は、（Ａ）成分である電荷移動錯体と、（Ｂ）成分である非水溶媒とを含む電荷移動錯体溶液である。本組成物に含まれる（Ａ）成分は、フェニレンオキシド構造を有する電子供与性化合物と、電子受容性化合物とにより形成されてなる電荷移動錯体である。また、（Ｂ）成分は、比誘電率が２．０超４０未満の非水溶媒である。このような（Ａ）成分及び（Ｂ）成分を含む本組成物を用いることにより、イオン伝導性に優れた固体電解質を得ることができる。すなわち、本組成物は固体電解質用として好適である。なお、以下では便宜上、（Ａ）成分（電荷移動錯体）と（Ｂ）成分（非水溶媒）とを含む溶液状態の本組成物を単に「電荷移動錯体溶液」又は「本錯体溶液」とも称する。

[0018] 電荷移動錯体は、各錯体に特有の強い吸収を持つことにより濃色を呈する。したがって、電子供与性化合物と電子受容性化合物とにより電荷移動錯体が形成された場合には、錯体形成が色の変化として現れる。このため、本組成物の色試験を行うことにより、本錯体溶液における錯体形成度を評価することができる。例えば、ガードナー色数による色試験の場合、ガードナー色数の値が大きいほど、その電荷移動錯体溶液の錯体形成度が高いといえる。

[0019] 具体的には、本錯体溶液は、ＪＩＳ Ｋ ００７１－２に準拠して測定されるガードナー色数が１３以上であることが好ましい。本組成物のガードナ

一色数が13以上である場合、本錯体溶液中における（A）成分の錯体形成度が十分に高く、本錯体溶液を用いて得られる固体電解質のイオン伝導性をより高めることができる。こうした観点から、本錯体溶液のガードナー色数は、14以上がより好ましく、15以上が更に好ましく、18以上がより更に好ましい。なお、本明細書において、電荷移動錯体溶液のガードナー色数は、電子供与性化合物と電子受容性化合物との合計量が、電荷移動錯体溶液の全量に対して20質量%である溶液について測定される値である。ガードナー色数の測定方法は、後述する実施例に記載の方法に従う。

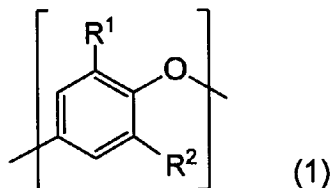
[0020] <（A）成分：電荷移動錯体>

・電子供与性化合物

（A）成分を構成する電子供与性化合物は、フェニレンオキシド構造を有する。フェニレンオキシド構造を有する分子（以下、「フェニレンオキシド」ともいう。）は、一般式： $-(C_6R_4-O)_n-$ で示される構造（ただし、Rは、同一又は異なって、水素原子又はアルキル基であり、nは1以上の整数である。）を有する。Rがアルキル基である場合、当該アルキル基の炭素数は1又は2が好ましく、1がより好ましい。nは、例えば1～600である。

[0021] フェニレンオキシドの具体例としては、上記一般式中のnが1の場合として、2,6-ジメチル-1,4-フェニレンオキシド、2,5-ジメチル-1,4-フェニレンオキシド等が挙げられる。また、nが2以上の場合（以下、「ポリフェニレンオキシド」ともいう。）としては、一般式： $-(C_6R_4-O)_n-$ で示される構造を繰り返し単位として有する重合体が挙げられる。電子供与性化合物は、固体電解質のイオン伝導性を高くでき、また機械的強度や耐久性、耐熱性に優れた固体電解質を得ることができる点において、これらのうち、ポリフェニレンオキシドが好ましく、下記式（1）で表される繰り返し単位を有する重合体が特に好ましい。

[化2]



(式(1)中、 R^1 及び R^2 は、同一又は異なって、水素原子又はアルキル基である。)

[0022] 電子供与性化合物が上記式(1)で表される繰り返し単位を有するポリフェニレンオキシドである場合、ポリフェニレンオキシドの電子供与性を高め、電子受容性化合物との錯体形成を促進する観点から、上記式(1)中の R^1 及び R^2 はアルキル基であることが好ましい。また、上記式(1)中の R^1 及び R^2 は、材料の入手容易性の観点から、メチル基又はエチル基であることが好ましく、メチル基であることがより好ましい。

[0023] ポリフェニレンオキシドの数平均分子量は、例えば500～30,000であり、500～20,000であることが好ましく、1,000～20,000であることがより好ましく、1,000～15,000であることが更に好ましく、1,000～10,000であることがより更に好ましい。なお、ポリフェニレンオキシドは、例えばSABC社等から市販品として入手可能である。電子供与性化合物としては1種を単独で使用してもよく、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0024] ・電子受容性化合物

電子受容性化合物は、上記の電子供与性化合物と電荷移動錯体を形成可能であればよい。電子受容性化合物の具体例としては、キノン類、シアン類、酸素、オゾン、ヨウ素、三酸化硫黄、遷移金属酸化物(例えば二酸化マンガ)等が挙げられる。これらのうち、キノン類の具体例としては、2,3,5,6-テトラクロロ-1,4-ベンゾキノ(クロラニル)、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノ-p-ベンゾキノ(DDQ)、o-ベンゾキノ、m-ベンゾキノ、p-ベンゾキノ等が挙げられる。シアン類としては、7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン(TCNQ)、テトラシア

ノエチレン（TCNE）等が挙げられる。なお、電子受容性化合物としては1種を単独で使用してもよく、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0025] フェニレンオキシドと電荷移動錯体を形成しやすく、イオン伝導性が高い固体電解質を得ることができる点において、電子受容性化合物は上記の中でも、キノン類及びシアン類からなる群より選ばれる少なくとも1種を含むことが好ましい。これらの中でも特に、2, 3, 5, 6-テトラクロロ-1, 4-ベンゾキノン（クロラニル）、2, 3-ジクロロ-5, 6-ジシアノ-p-ベンゾキノン（DDQ）、7, 7, 8, 8-テトラシアノキノジメタン（TCNQ）、o-ベンゾキノン、m-ベンゾキノン及びp-ベンゾキノンからなる群より選択される少なくとも1種を含むことが好ましい。

[0026] （A）成分において、電子供与性化合物のモル量（ただし、電子供与性化合物が重合体の場合には単量体換算）に対する、電子受容性化合物のモル量の比率（以下、「〔電子受容性化合物のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量〕」ともいう。）は、0.1以上1.0以下であることが好ましい。〔電子受容性化合物のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量〕を上記範囲とすることにより、イオン伝導性により優れた固体電解質を得ることができる。こうした観点から、〔電子受容性化合物のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量〕は、0.15以上であることがより好ましく、0.2以上であることが更に好ましく、0.25以上であることがより更に好ましい。〔電子受容性化合物のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量〕の上限については、0.9以下がより好ましく、0.8以下が更に好ましく、0.7以下がより更に好ましい。

[0027] <（B）成分：非水溶媒>

本錯体溶液に含まれる非水溶媒の比誘電率（ ϵ_r ）は2.0超4.0未満である。非水溶媒の比誘電率が2.0以下又は4.0以上であると、（A）成分の錯体形成度が低く、固体電解質を製造した場合にイオン伝導性に劣る。（A）成分の錯体形成度を高くし、イオン伝導性が高い固体電解質を得る観点から、非水溶媒の誘電率は、3.5以下が好ましく、3.0以下がより好ましく、

20以下が更に好ましい。非水溶媒の誘電率の下限については、3以上が好ましく、5以上がより好ましい。

[0028] ここで、本明細書において、非水溶媒の比誘電率は、「化学便覧 基礎編」改訂5版、日本化学会編（丸善株式会社）に記載された値を用いる。なお、非水溶媒としては1種を単独で使用してもよく、2種以上を組み合わせで使用してもよい。非水溶媒として2種以上を組み合わせた混合溶媒を使用する場合、当該混合溶媒の比誘電率（ $\epsilon_{r\text{mix}}$ ）は、下記数式（1）に示すWienerの限界式により算出した値である。

$$\epsilon_{r\text{mix}} = \epsilon_{r2} + (\epsilon_{r1} - \epsilon_{r2}) \Phi_1 \quad (1)$$

数式（1）において、

$\epsilon_{r\text{mix}}$ ：混合溶媒の比誘電率

ϵ_{r1} ：溶媒1の比誘電率

ϵ_{r2} ：溶媒2の比誘電率

Φ_1 ：溶媒1の体積率

[0029] （B）成分として用いる非水溶媒は、比誘電率が2.0超40未満である限り特に限定されない。非水溶媒の具体例としては、炭化水素、アルコール化合物、エーテル化合物、ケトン化合物、エステル化合物、アミド化合物、及びニトリル化合物からなる群より選択される少なくとも1種の化合物であり、かつ比誘電率が2.0超40未満である化合物が挙げられる。

[0030] これらの具体例としては、炭化水素として、シクロヘキサン、トルエン等が挙げられる。アルコール化合物として、メタノール、エタノール、1-プロパノール、2-プロパノール、1-ブタノール、2-ブタノール、イソブチルアルコール、イソペンチルアルコール、シクロヘキサノール、エチレングリコール、プロピレングリコール、2-メトキシエタノール、2-エトキシエタノール、ジエチレングリコール、トリエチレングリコール等が挙げられる。

[0031] エーテル化合物として、ジエチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、テトラヒドロフラン、テトラヒドロピラン、1,4-ジオキサン、アニソール

、1,2-ジメトキシエタン等が挙げられる。ケトン化合物として、アセトン、2-ブタノン、シクロヘキサノン等が挙げられる。

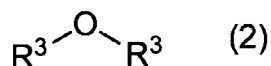
[0032] エステル化合物として、酢酸エチル、酢酸ブチル、 γ -ブチロラクトン等が挙げられる。アミド化合物として、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、N-メチル-2-ピロリドン、ヘキサメチルリン酸トリアミド等が挙げられる。ニトリル化合物として、アセトニトリル、プロピオニトリル、ベンゾニトリル等が挙げられる。

[0033] イオン伝導性が高い固体電解質を得ることができる点で、非水溶媒は、酸素原子及び/又は芳香環構造を有し、かつ比誘電率が2.0超40未満である化合物が好ましく、これらの中でも、比誘電率が35以下である化合物がより好ましく、比誘電率が30以下である化合物が更に好ましい。

[0034] 非水溶媒は、ケトン化合物、エーテル化合物、エステル化合物、アミド化合物、及び炭化水素からなる群より選択される少なくとも1種であることが好ましく、イオン伝導性が高く、かつイオン伝導度のばらつきが小さい固体電解質を得ることができる点において、鎖状ケトン、鎖状エーテル、環状エーテル、鎖状カルボン酸エステル、鎖状炭酸エステル、芳香族炭化水素、環状エステル及び環状アミドからなる群より選択される少なくとも1種の化合物であることがより好ましい。

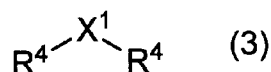
[0035] 非水溶媒は中でも、下記式(2)で表される化合物、下記式(3)で表される化合物、下記式(4)で表される化合物、及び下記式(5)で表される化合物からなる群より選択される少なくとも1種であって、かつ比誘電率が2.0超40未満である化合物が好ましい。

[化3]



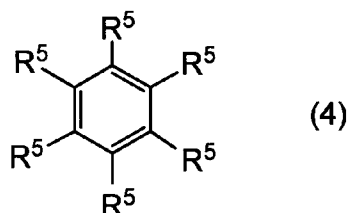
(式(2)中、 R^3 は、同一又は異なって、アルキル基であるか、又は2つの R^3 が結合してなる環状構造を表す。)

[化4]



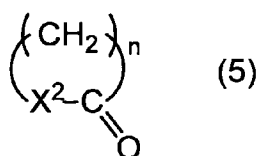
(式(3)中、 X^1 は、 $-CO-$ 、 $-CO-O-$ 、又は $-O-CO-O-$ を表す。 R^4 は、同一又は異なって、アルキル基である。)

[化5]



(式(4)中、 R^5 は、同一又は異なって、水素原子又はアルキル基である。)

[化6]



(式(5)中、 X^2 は、 $-NR^6-$ 又は $-O-$ である。 R^6 は、水素原子又はアルキル基である。 n は2～4である。)

[0036] 上記式(2)～(5)で表される化合物において、 R^3 、 R^4 、 R^5 及び R^6 がアルキル基である場合、当該アルキル基としては、メチル基、エチル基、1-プロピル基、2-プロピル基、 n -ブチル基、*sec*-ブチル基、イソブチル基、*tert*-ブチル基等が挙げられる。

[0037] 非水溶媒の沸点は特に限定されるものではないが、製造過程等において非水溶媒の揮発を抑制する観点から、50℃以上が好ましい。また、非水溶媒の沸点は、本錯体溶液の脱溶媒を簡便な操作（例えば、できるだけ低温の加熱）により実施可能にする観点から、200℃以下が好ましく、180℃以下がより好ましく、150℃以下が更に好ましい。なお、沸点は大気圧下の値を示す。

[0038] 本錯体溶液における非水溶媒の含有量は、室温のイオン伝導性が高く、かつイオン伝導度のばらつきが小さい固体電解質を得ることができる点において、電荷移動錯体溶液の全量に対して、40質量%以上が好ましく、45質

量%以上がより好ましく、50質量%以上が更に好ましい。また、非水溶媒の含有量は、電荷移動錯体溶液の全量に対して、99質量%以下が好ましく、90質量%以下がより好ましい。

[0039] <他の成分>

本錯体溶液は、本開示の効果を損なわない範囲において、上記の(A)成分及び(B)成分とは異なる成分(以下、「他の成分」ともいう。)を更に含んでいてもよい。他の成分としては、(B)成分とは異なる非水溶媒、水、結合剤等が挙げられる。本組成物が他の成分として(B)成分とは異なる非水溶媒及び/又は水を含む場合、(B)成分とは異なる非水溶媒及び/又は水の合計の含有割合は、(B)成分の質量に対して、例えば0.5質量%以下であり、好ましくは0.1質量%以下である。

[0040] <電荷移動錯体溶液の製造方法>

本錯体溶液は、電子供与性化合物であるフェニレンオキシドを第1の溶媒に溶解した溶液である第1溶液と、フェニレンオキシドと電荷移動錯体を形成可能な化合物である電子受容性化合物を第2の溶媒に溶解した溶液である第2溶液とを混合する工程を含む方法(以下、「本製造方法」ともいう)により製造することができる。

[0041] 第1の溶媒及び第2の溶媒は、フェニレンオキシドと電子受容性化合物との錯体形成度を高める観点から、比誘電率が2.0超40未満の非水溶媒であることが好ましい。比誘電率が2.0超40未満の非水溶媒としては、上述する(B)成分が挙げられる。第1の溶媒と第2の溶媒は同一であってもよく、異なってもよい。錯体形成度の低下の抑制や操作の簡便性を考慮すると、第1の溶媒と第2の溶媒とは同一であるか、又は第1の溶媒と第2の溶媒とが異なる場合には互いに相溶することが好ましい。

[0042] 第1溶液における電子供与性化合物の含有割合、及び第2溶液における電子受容性化合物の含有割合はそれぞれ、例えば0.05~60質量%である。溶液から溶媒を除去する場合に溶媒を効率よく除去する観点から、第1溶液における電子供与性化合物の含有割合、及び第2溶液における電子受容性

化合物の含有割合はそれぞれ、好ましくは1質量%以上であり、より好ましくは10質量%以上である。また、含有割合の上限については、電子供与性化合物と電子受容性化合物とが均一に混合した混合液を得る観点から、55質量%以下が好ましく、50質量%以下がより好ましい。

[0043] 第1溶液と第2溶液とを混合する方法は特段の制約はなく、適宜の方法を用いて行うことができる。例えば、第1溶液及び第2溶液の一方に対し他方を添加してもよいし、所定の容器内に第1溶液と第2溶液とを同時に添加してもよい。第1溶液及び第2溶液の添加は、一括して行ってもよく、分割して行ってもよい。また、第1溶液と第2溶液とを均一に混合すること等を目的として、第1溶液と第2溶液との混合液に対して攪拌等の処理を適宜行ってもよい。

[0044] 第1溶液と第2溶液とを混合する際に、電子供与性化合物のモル量（ただし、電子供与性化合物が重合体の場合には単量体換算）に対する、電子受容性化合物のモル量の比率（〔電子受容性化合物のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量〕）が0.1以上1.0以下となるように、第1溶液及び第2溶液の濃度や量を調整して混合することが好ましい。〔電子受容性化合物のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量〕は、0.15以上であることがより好ましく、0.2以上であることが更に好ましく、0.25以上であることがより更に好ましい。〔電子受容性化合物のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量〕の上限については、0.9以下がより好ましく、0.8以下が更に好ましく、0.7以下がより更に好ましい。

[0045] なお、第1溶液と第2溶液との混合液に含まれる電子供与性化合物及び電子受容性化合物の全てが電荷移動錯体を形成している必要はなく、本錯体溶液中に電子供与性化合物及び／又は電子受容性化合物が含まれていてもよい。ただし、高いイオン伝導性を示すとともにイオン伝導度のばらつきが小さい固体電解質を得る観点からすると、電荷移動錯体溶液中に含まれる電子供与性化合物及び／又は電子受容性化合物の量は極力少ない、すなわち、電子供与性化合物及び電子受容性化合物を原料に用いて得られる電荷移動錯体の

錯体形成度が高いことが好ましい。

[0046] 第1溶液と第2溶液との混合液が含んでいてもよい（B）成分以外の成分の具体例及び含有割合は、本錯体溶液が含んでいてもよい他の成分の説明が適用される。

[0047] 本製造方法によれば、電子供与性化合物と電子受容性化合物とを溶液状態で混合するため、ドライブレンドと比較して電子供与性化合物と電子受容性化合物とを均一に混合することができる。そのため、本錯体溶液を用いて得られる固体電解質は組成が均一であり、これにより、室温でのイオン伝導性を高めつつ、イオン伝導度のばらつきを小さくすることができたものと考えられる。また、電子供与性化合物であるフェニレンオキシドと電子受容性化合物との電荷移動錯体の形成に際し、溶媒として（B）成分を用いることにより電荷移動錯体の錯体形成度を高くでき、これにより、室温におけるイオン伝導性の高い固体電解質を得ることができたものと考えられる。

[0048] ≪乾燥体≫

本錯体溶液の乾燥体（以下、「本乾燥体」ともいう。）は、上述した電荷移動錯体溶液から溶媒を除去したものである。

[0049] <乾燥体の製造方法>

本乾燥体は、上述する本組成物の製造方法における第1溶液と第2溶液との混合液から非水溶媒を除去する工程を含む方法により得られる。

[0050] 第1溶液と第2溶液との混合液から溶媒を除去する方法については特段の制約はなく、公知の脱溶媒方法を適宜採用することにより行うことができる。例えば、加温処理により脱溶媒を行ってもよく、自然乾燥や送風処理、凍結乾燥処理等の1種又は2種以上を適宜組み合わせて脱溶媒を行ってもよい。加温により非水溶媒を除去する場合、加熱温度は非水溶媒の種類に応じて適宜設定され得るが、例えば80～150℃未満とすることができる。加熱時間は、例えば30分～2時間である。また、脱溶媒処理は大気圧下で行ってもよく、減圧下で行ってもよい。なお、第1の溶媒及び／又は第2の溶媒として沸点が150℃以上の非水溶媒を用いる場合には、減圧下、かつ加熱

温度を150℃未満とする条件で脱溶媒処理を実施するとよい。

[0051] なお、本明細書において「乾燥」とは、非水溶媒が完全に除去された状態のほか、乾燥過程において非水溶媒が残存している状態を含む意味である。乾燥処理により得られる乾燥体の非水溶媒含有割合は、例えば10質量%以下であり、好ましくは5質量%以下である。

[0052] <乾燥体の特性>

上記のようにして得られた乾燥体を比誘電率が2.0超40未満である非水溶媒に溶解した溶液につき、JIS K 0071-2に準拠して測定されるガードナー色数が13以上であることが好ましく、14以上がより好ましく、15以上が更に好ましく、18以上がより更に好ましい。本乾燥体を上記の非水溶媒に溶解した溶液（以下、「本乾燥体溶液」ともいう。）のガードナー色数が上記範囲であると、本乾燥体における（A）成分の錯体形成度が十分に高く、本乾燥体を用いて得られる固体電解質のイオン伝導性をより高めることができる。なお、本明細書において、本乾燥体溶液のガードナー色数は、本乾燥体の含有量が、本乾燥体溶液の全量に対して20質量%である溶液について測定される値である。ガードナー色数の測定方法は、後述する実施例に記載の方法に従う。比誘電率が2.0超40未満である非水溶媒としては、上述する（B）成分として説明した化合物が挙げられる。

[0053] <<電解質形成用組成物>>

本組成物の他の一つの形態は、上述した本開示の電荷移動錯体溶液又はその乾燥体と、アルカリ金属含有化合物とを含む組成物（以下、「電解質形成用組成物」ともいう。）である。電解質形成用組成物によれば、室温において高いイオン伝導性を示すとともに、イオン伝導度のばらつきが小さい固体電解質を得ることができる。

[0054] <（C）成分：アルカリ金属含有化合物>

アルカリ金属含有化合物は、アルカリ金属イオンを生じる化合物であればよく、特に限定されない。アルカリ金属含有化合物の具体例としては、リチウム含有化合物、ナトリウム含有化合物、カリウム含有化合物等が挙げられ

る。これらのうち、固体電解質のイオン伝導性をより良好にできる点において、リチウム含有化合物又はナトリウム含有化合物が好ましく、リチウム含有化合物がより好ましい。

[0055] アルカリ金属含有化合物としては、アルカリ金属の酸化物、アルカリ金属の水酸化物、アルカリ金属塩等が挙げられる。これらの具体例としては、アルカリ金属の酸化物として、酸化リチウム、酸化ナトリウム、酸化カリウム等が挙げられる。アルカリ金属の水酸化物としては、水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等が挙げられる。アルカリ金属塩としては、例えば、 Li_2CO_3 、 LiBr 、 LiCl 、 LiI 、 LiSCN 、 LiBF_4 、 LiAsF_6 、 LiClO_4 、 CH_3COOLi 、 CF_3COOLi 、 LiCF_3SO_3 、 LiPF_6 、 $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、リチウムビス（フルオロスルホニル）イミド（ $\text{Li}^+(\text{FSO}_2)_2\text{N}^-$ ）、リチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド（ $\text{Li}^+(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ ）、リチウム（フルオロスルホニル）（トリフルオロメタンスルホニル）イミド等のリチウム塩；これらのリチウム塩のアニオンと、リチウム以外のアルカリ金属（例えば、ナトリウムやカリウム等）との塩が挙げられる。

[0056] イオン伝導度のばらつきが小さい固体電解質を得ることができる点において、アルカリ金属含有化合物は、上記のうち、アルカリ金属塩が好ましく、リチウム塩又はナトリウム塩がより好ましく、リチウム塩が更に好ましい。また、イオンの解離性が高い点において、リチウム塩の中でも特に、リチウムビス（フルオロスルホニル）イミド、リチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド又はリチウム（フルオロスルホニル）（トリフルオロメタンスルホニル）イミドが好ましい。

[0057] 電解質形成用組成物において、アルカリ金属含有化合物の配合量は、（A）成分の供給成分である電子供与性化合物（ただし、電子供与性化合物が重合体の場合には単量体換算）と電子受容性化合物との合計のモル量に対するアルカリ金属含有化合物の比率（ $\left[\left(\text{C} \right) \text{成分のモル量} \right] / \left[\text{電子供与性化合物のモル量} + \text{電子受容性化合物のモル量} \right]$ ）が、0.03以上1.0以下

となる量とすることが好ましい。〔(C)成分のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量＋電子受容性化合物のモル量〕が上記範囲であることにより、より良好なイオン伝導性を示す固体電解質を得ることができる。このような観点から、〔(C)成分のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量＋電子受容性化合物のモル量〕は、0.05以上であることがより好ましく、0.1以上であることが更に好ましく、0.2以上であることがより更に好ましく、0.3以上であることが一層好ましい。〔(C)成分のモル量〕／〔電子供与性化合物のモル量＋電子受容性化合物のモル量〕の上限については、0.9以下であることがより好ましく、0.8以下であることが更に好ましく、0.7以下であることがより更に好ましく、0.6以下であることが一層好ましい。なお、アルカリ金属含有化合物としては、1種を単独で使用してもよく、2種以上を組み合わせ使用してもよい。

[0058] 電解質形成用組成物は、本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分とを混合することにより得られる。本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分とを混合する際の(C)成分は、固体、熔融液、及び(C)成分を溶媒に溶解させた溶液のいずれの状態であってもよい。(C)成分を溶解する溶媒としては、上述する(B)成分として例示した非水溶媒が挙げられる。

[0059] 本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分とを混合する方法は特段の制約はなく、適宜の方法を用いて行うことができる。例えば、本錯体溶液又はその乾燥体に対し、(C)成分を添加してもよいし、所定の容器内に本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分とを同時に添加してもよい。本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分の添加は、一括して行ってもよく、分割して行ってもよい。また、本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分とを均一に混合すること等を目的として、本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分との混合物に対して攪拌等の処理を適宜行ってもよい。

[0060] 本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分との混合は乾式でもよく湿式でもよい。また、本錯体溶液又はその乾燥体と(C)成分とを混合する際に加熱を行ってもよい。また例えば、本錯体溶液の乾燥体と(C)成分とを混合す

る際に、加熱処理と共に粉砕処理を行うことにより、電解質形成用組成物を得てもよい。本錯体溶液の乾燥体と（Ｃ）成分とを粉砕及び加熱する場合、本錯体溶液の乾燥体と（Ｃ）成分とを粉砕した後に加熱処理を行ってもよいし、本錯体溶液の乾燥体と（Ｃ）成分とを加熱した後に粉砕処理を行ってもよい。本錯体溶液の乾燥体と（Ｃ）成分を粉砕する方法は特に限定されないが、ボールミルやビーズミル、ブレンダー等の粉砕機を用いて行うことが好ましい。なお、電解質形成用組成物を得るための粉砕処理は、１回のみ行ってもよいし、複数回行ってもよい。本錯体溶液の乾燥体と（Ｃ）成分を加熱する際の温度は、通常１００～３００℃であり、１００～２５０℃が好ましい。加熱時間は、例えば５～３０分である。

[0061] ≪固体電解質≫

本開示の固体電解質（以下、「本固体電解質」ともいう。）は、本錯体溶液又はその乾燥体と（Ｃ）成分とを含有する組成物により形成された固体電解質である。

[0062] ＜固体電解質の製造方法＞

本固体電解質を製造する方法は特に限定されない。本固体電解質を製造する方法の好ましい一態様としては、以下の方法が挙げられる。

[0063] 本錯体溶液と（Ｃ）成分とを含有する組成物を用いて本固体電解質を製造する場合、まず、当該組成物を容器に入れ、加熱処理等を行うことにより溶媒を除去する。これにより、所望の形状の固形物を得る。また、本錯体溶液の乾燥体と（Ｃ）成分とを含有する組成物を用いて本固体電解質を製造する場合には、当該組成物を所望の形状に成形する。本組成物の成形方法は特に限定されず、押出成形や射出成形、加圧成形、鋳込み成形、モールドキャスト成形、テープ成形等の公知の方法を採用することができる。これらのうち、本組成物の加圧成形により成形体を得ることが好ましい。成形体の形状は特に限定されず、適用する蓄電デバイスの形状に応じて適宜設定され得る。成形体の形状は、例えば矩形状、円形状である。

[0064] 続いて、上記の固形物又は成形体を、アルカリ金属含有化合物の融点以上

の温度で加熱することが好ましい。この加熱処理（アニール処理）により残留応力を緩和することにより、固体電解質の寸法精度の安定化や、歪み等の変形及び割れの抑制を図ることができる。アニール処理時の温度は、アルカリ金属含有化合物の融点よりも高い温度とすることが好ましい。アニール処理の時間は、例えば1～24時間であり、好ましくは2～24時間である。

[0065] 加熱後は、固体電解質を急速に冷却する（例えば、固体電解質を低温（例えば25℃以下）の恒温槽に2時間程度又はそれよりも短い時間入れる）ことにより固体電解質の温度を低下させてもよいし、固体電解質を徐々に冷却する（例えば、3～48時間かけてゆっくりと室温まで下げる）ことにより固体電解質の温度を低下させてもよい。アルカリ金属含有化合物の結晶化を抑制する観点から、前者（急速冷却）により固体電解質の温度を低下させることが好ましい。急速冷却により固体電解質の温度を低下させる際、固体電解質を恒温槽に入れて冷却する場合には、恒温槽の温度を0℃以下とすることが好ましく、-15℃以下とすることがより好ましい。

[0066] <固体電解質の特性>

本固体電解質は、室温において高いイオン伝導性を示す。具体的には、厚み300μm程度（より具体的には300±30μm）の固体電解質につき、交流インピーダンス法を用いて25℃で測定されるイオン伝導度が、 $3 \times 10^{-7} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 以上であることが好ましい。優れた性能の蓄電デバイスを得る観点から、同条件におけるイオン伝導度は、 $5 \times 10^{-7} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 以上であることがより好ましく、 $8 \times 10^{-7} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 以上であることが更に好ましい。イオン伝導度の測定方法の詳細は、後述する実施例に記載の方法に従う。本明細書において、イオン伝導度のばらつきとは、同一の固体電解質のイオン伝導度を同一条件で複数回測定した場合に、測定値が測定回の間で一致せず不規則に分布することを指す。

[0067] 本固体電解質は、室温において高いイオン伝導性を示しながら、イオン伝導度のばらつきが小さい。このため、本固体電解質を蓄電デバイスの電解質として用いることにより、安定した品質の蓄電デバイスを得ることができる。

。

[0068] 《蓄電デバイス》

本開示の蓄電デバイス（以下、「本デバイス」ともいう。）は本固体電解質を備える。本デバイスとしては、二次電池、キャパシタ等が挙げられる。本デバイスが二次電池である場合、その一態様は全固体電池であり、イオン伝導性に優れる点でリチウムイオン二次電池が好ましい。

[0069] 本デバイスの一態様である全固体リチウムイオン二次電池について説明する。リチウムイオン二次電池は、正極及び負極からなる電極と、固体電解質とを備える積層体であり、固体電解質と電極とが接するように正極と負極との間に固体電解質が配置されている。正極及び負極を構成する材料は特に限定されず、リチウムイオン二次電池の電極材料として公知の材料から適宜選択して使用することができる。例えば、正極集電体としては、アルミニウム、ステンレス鋼等の金属箔を用いることができる。負極集電体としては、銅箔やリチウム箔等の金属箔を用いることができる。

[0070] 本開示のリチウムイオン二次電池において、固体電解質は、上述した（A）成分及び（C）成分を含む。固体電解質の厚みは特に限定されず、二次電池の用途等に応じて適宜設定できる。固体電解質の厚みは、例えば5～500 μm である。

[0071] リチウムイオン二次電池を製造する方法は特に限定されず、電池構造等に応じて公知の方法を適宜採用することができる。例えば、本組成物の成形体をアニール処理して得られた固体電解質を正極と負極で挟み込むことにより、正極、固体電解質及び負極を備える積層体を製造してもよい。あるいは、本組成物を正極と負極で挟み込むようにして容器内に収容し、その収容体に対しアニール処理を施すことにより、正極、固体電解質及び負極を備える積層体を製造してもよい。正極、固体電解質及び負極を備える積層体は、通常、ケースに収容されて二次電池として使用される。

[0072] なお、本デバイスは、イオン伝導のキャリアがリチウムイオンである上記構成に限らず、例えば、ナトリウムイオン等の他のイオンをキャリアとする

二次電池であってもよい。また、本デバイスはキャパシタであってもよい。キャパシタの一態様としては、陽極体と陰極体と固体電解質とを備え、固体電解質と電極とが接するように陽極体と陰極体との間に固体電解質が配置された構成が挙げられる。

[0073] 本固体電解質を備える蓄電デバイスは種々の用途に適用することができる。具体的には、例えば、携帯電話機やパソコン、スマートフォン、ゲーム機器、ウェアラブル端末等の各種モバイル機器；電気自動車やハイブリッド車、ロボット、ドローン等の各種移動体；デジタルカメラ、ビデオカメラ、音楽プレーヤー、電動工具、家電製品等の各種電気・電子機器；等における動力源として使用することができる。

実施例

[0074] 以下、実施例に基づいて本開示を具体的に説明する。なお、本開示はこれらの実施例により限定されるものではない。以下において「部」及び「％」は、特に断らない限り、それぞれ「質量部」、「質量％」を意味する。

[0075] [実施例 1]

(電荷移動錯体溶液の製造)

ポリ(2, 6-ジメチル-1, 4-フェニレンオキシド) (SABIC社製 SA90、以下、「SA90」ともいう。)(100mg)を20質量％となるよう2-ブタノン(以下、「MEK」ともいう。)に加えた。

2, 3-ジクロロ-5, 6-ジシアノー-p-ベンゾキノン(以下、「DDQ」ともいう。)(47mg)を20質量％となるようMEKに加えた。

得られた、SA90のMEK混合溶液とDDQのMEK混合溶液とを混合し、固体電解質用の組成物として電荷移動錯体溶液DE-1を得た。

[0076] (電荷移動錯体溶液のガードナー色数の測定)

JIS K 0071-2:1998に従い、電荷移動錯体溶液とガードナー色数標準液とを目視によって比較することにより、電荷移動錯体溶液の錯体形成度を評価した。その結果、電荷移動錯体溶液DE-1のガードナー色数は「18+」であった。

ここで、ガードナー色数は、電荷移動錯体溶液を試料とし、この試料とガードナー色数標準液の色が一致した場合のガードナー色数標準液の番号を測定値とした。なお、試料の色がガードナー色数標準液と一致しない場合は、試料に最も近似したガードナー色数を決定し、その決定した色数番号よりも明るい場合を“-”、決定した色数番号よりも暗い場合を“+”と表記することとした。

一般に、電荷移動錯体は、電荷移動吸収帯と呼称される特有の強い吸収を持ち、濃色を呈す。そのため、電荷移動錯体溶液は、その溶液のガードナー色数の値が大きいほど錯体形成度が高いことを意味する。

[0077] (電解質形成用組成物の製造)

続いて、上記で得られた電荷移動錯体溶液に、リチウム（フルオロスルホンル）（トリフルオロメタンスルホンル）イミド（富士フイルム和光純薬社製；商品名（フルオロスルホンル）（トリフルオロメタンスルホンル）イミド＝リチウム以下、「L i F T F S l」ともいう。）（63mg）の20質量％MEK溶液を加え、固体電解質形成用の組成物として、20質量％の電解質形成用組成物CE-1を得た。

[0078] (固体電解質の製造)

電解質形成用組成物CE-1を全固体電池評価セル（宝泉社製 K P - S o l i d C e l l）3セットに各240mg充填し、100℃で1時間乾燥させた後、20N・mのトルクで封止した。乾燥後の電解質形成用組成物CE-1を挟む円盤にはSKD鋼製（直径1cm）を使用した。

上記評価セルを、110℃に設定されたホットプレート上で10時間加熱（アニール）した。その後、25℃で2時間冷却し、固体電解質SE-1とした。

[0079] (イオン伝導度の測定)

測定には、電極間に交流（印加電圧は100mV）を印加して抵抗成分を測定する交流インピーダンス法を用いて、得られたコール・コールプロットの実数インピーダンス切片よりイオン伝導度を算出した。

なお、測定にはインピーダンス・アナライザ（バイオロジック社製 SP-300）を用い、25℃で測定した。

以上の操作全てについて、露点-60℃のドライルームで行った。

下記数式（2）によりイオン伝導度（ σ ）を求めた結果、 $5 \times 10^{-5} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 、 $1 \times 10^{-5} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 、 $5 \times 10^{-5} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ であった。なお、表1中のイオン伝導度（ σ ）は、3回の測定結果の最高値である。

$$\sigma = H / (R \times S) \quad (2)$$

（数式（2）中、 σ はイオン伝導度（単位： $\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$ ）、 R は抵抗（単位： Ω ）、 S は固体電解質膜の測定時の断面積（単位： cm^2 ）、 H は電極間距離（単位： cm ）を示す。）

[0080] 上記イオン伝導度の3回の測定結果から下記数式（3）により求めた値を、以下の基準に基づいて評価した結果、「A」と判断された。なお、以下のA及びBは、イオン伝導度のばらつきが小さく許容できる範囲であり、Cは、イオン伝導度のばらつきが許容できない程度に大きいことを意味する。

$$s = \sigma (\text{MAX}) / \sigma (\text{MIN}) \quad (3)$$

（数式（3）中、 $\sigma (\text{MAX})$ はイオン伝導度（単位： $\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$ ）の測定値の最大値、 $\sigma (\text{MIN})$ は当該測定値の最小値を示す。）

A： s が100未満

B： s が100以上1,000未満

C： s が1,000以上

[0081] 固体電解質SE-1の評価結果を表1に示す。なお、表1中、「モル比（電子受容性化合物）／（電子供与性化合物）」は、電子供与性化合物のモル量（単量体換算）に対する電子受容性化合物のモル量の比を表す。「モル比（C）／〔（電子供与性化合物）＋（電子受容性化合物）〕」は、電子受容性化合物のモル量（単量体換算）と電子供与性化合物のモル量の合計量に対する（C）成分のモル量の比を表す。

[0082] [実施例2～10及び比較例1, 2]

原料の種類、仕込み量を表1に記載した通り変更した以外は、実施例1と

同様の操作を行い、電荷移動錯体溶液DE-2～DE-12、電解質形成用組成物CE-2～CE-12及び固体電解質SE-2～SE-12を得た。実施例1と同様の操作により、電荷移動錯体溶液DE-2～DE-12のガードナー色数、固体電解質SE-2～SE-12のイオン伝導度及びそのばらつきを測定した。結果を表1に示す。

[0083]

[表1]

実施例・比較例No.																						
固体電解質名																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例 3																						
実施例 4																						
実施例 5																						
実施例 6																						
実施例 7																						
実施例 8																						
実施例 9																						
実施例 10																						
比較例 1																						
比較例 2																						
実施例 1																						
実施例 2																						
実施例																						

[0084] 表 1 において用いた化合物の詳細を以下に示す。なお、表 1 記載の非水溶媒（（B）成分）の比誘電率は、「改訂 5 版 化学便覧 基礎編 I」日本化学会編（丸善株式会社）に記載の値を引用した。

・ S A 9 0 : 末端水酸基のポリ（2，6－ジメチル－1，4－フェニレンオキシド）〔S A B I C 社製、式（1）中の R¹ 及び R² はいずれもメチル基、数平均分子量 1，600〕

・ S A 9 0 0 0 : 末端メタクリロイル基のポリ（2，6－ジメチル－1，4－フェニレンオキシド）〔S A B I C 社製、式（1）中の R¹ 及び R² はいずれもメチル基、数平均分子量 2，300〕

・ D D Q : 2，3－ジクロロ－5，6－ジシアノ－p－ベンゾキノン〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ クロラニル : 2，3，5，6－テトラクロロ－1，4－ベンゾキノン〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ T C N Q : 7，7，8，8－テトラシアノキノジメタン〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ B Q : p－ベンゾキノン〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ L i F T F S I : リチウム（フルオロスルホニル）（トリフルオロメタンスルホニル）イミド〔富士フィルム和光純薬社製、商品名（フルオロスルホニル）（トリフルオロメタンスルホニル）イミド＝リチウム〕

・ L i T F S I : リチウムビス（トリフルオロメタンスルホニル）イミド〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ L i F S I : リチウムビス（フルオロスルホニル）イミド〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ N a F S I : ビス（フルオロスルホニル）イミドナトリウム〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ M E K : 2－ブタノン〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ T H F : テトラヒドロフラン〔富士フィルム和光純薬社製〕

・ N M P : N－メチル－2－ピロリドン〔富士フィルム和光純薬社製〕

- ・DMF：ジメチルホルムアミド〔富士フィルム和光純薬社製〕
- ・DMSO：ジメチルスルホキシド〔富士フィルム和光純薬社製〕

[0085] [実施例 1 1]

実施例 1 で得られた電荷移動錯体溶液 DE-1 を 100℃で 1 時間加熱して MEK を除去し、乾燥体を得た。

ここで、上記で得られた乾燥体を、20 質量%となるよう MEK に溶解した溶液の JIS K 0071-2:1998 に準拠して測定されるガードナー色数は「18+」であった。

上記乾燥体 (147 mg) と LiFTFSI (63 mg) を、ボールミル (FRITSCHE 社製ミニミル PULVERISETTE 23; 以下、単に「ボールミル」ともいう。) を用いて周波数 40 Hz で 60 分間粉砕した後、150℃に設定されたホットプレートで 10 分間加熱し、LiFTFSI を溶融させた。冷却後、ボールミルを用いて 40 Hz で 60 分間粉砕し、固体電解質粉末 (これを電解質形成用組成物 CE-13 とする) を得た。

さらに、電解質形成用組成物 CE-13 を全固体電池評価セル (宝泉社製 KP-SolidCell) 3 セットに各 30 mg 充填し、20 N・m のトルクで封止した。電解質形成用組成物 CE-13 を挟む円盤には SKD 鋼製 (直径 1 cm) を使用した。

上記評価セルを、110℃に設定されたホットプレート上で 10 時間加熱 (アニール) した。その後、25℃で 2 時間冷却し、固体電解質 SE-13 とした。

実施例 1 と同様の操作により、固体電解質 SE-13 のイオン伝導度を測定した結果、イオン伝導度は $4 \times 10^{-5} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$ (3 回の測定結果の最高値) であり、またイオン伝導度のばらつきは「A」と判断された。

[0086] [評価結果]

実施例 1 ~ 11 の結果から明らかなように、本開示の組成物は、錯体形成度が高く、当該組成物により得られる固体電解質は、室温においても高いイオン伝導性を示し、かつ、その値のばらつきは小さかった。

[0087] これらの中でも、非水溶媒の比誘電率に着目すると、実施例 1～5、11 と実施例 6 を比較した場合、比誘電率が 35 以下であると（実施例 1～5、11）、より良好なイオン伝導性を示した。

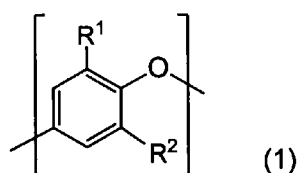
[0088] 以上の結果から、フェニレンオキシド構造を有する電子供与性化合物と電子受容性化合物とにより形成されてなる電荷移動錯体と、非水溶媒を含み、当該非水溶媒の比誘電率が 2.0 超 40 未満である本開示の組成物により得られる固体電解質は、室温において高いイオン伝導性を示し、かつ、イオン伝導度のばらつきが小さいことが明らかとなった。

[0089] 本発明は、上記の実施の形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲において、様々な変形例や均等範囲内の変形をも包含する。したがって、上記教示に照らして様々な組み合わせや形態、更には、それらに一要素のみ、それ以上、あるいはそれ以下を含む他の組み合わせや形態をも、本発明の範疇や思想範囲に入るものと理解されるべきである。

請求の範囲

- [請求項1] 電子供与性化合物と電子受容性化合物とにより形成されてなる電荷移動錯体と、
非水溶媒と、
を含み、
前記電子供与性化合物はフェニレンオキシド構造を有し、
前記非水溶媒の比誘電率が2.0超4.0未満である、組成物。
- [請求項2] 固体電解質用である、請求項1に記載の組成物。
- [請求項3] J I S K 0071-2に準拠して測定されるガードナー色数が13以上である、請求項1に記載の組成物。
- [請求項4] 前記非水溶媒の比誘電率が3.5以下である、請求項1に記載の組成物。
- [請求項5] 前記非水溶媒は、酸素原子及び／又は芳香環構造を有する化合物である、請求項1に記載の組成物。
- [請求項6] 前記非水溶媒は、鎖状ケトン、鎖状エーテル、環状エーテル、鎖状カルボン酸エステル、鎖状炭酸エステル、芳香族炭化水素及びラクタムからなる群より選択される少なくとも1種である、請求項1に記載の組成物。
- [請求項7] 前記電子供与性化合物のモル量（ただし、前記電子供与性化合物が重合体の場合には単量体換算）に対する、前記電子受容性化合物のモル量の比率が0.1以上1.0以下である、請求項1に記載の組成物。
- [請求項8] 前記電子供与性化合物は、下記式（1）で表される繰り返し単位を有する重合体である、請求項1に記載の組成物。

[化1]



(式(1)中、 R^1 及び R^2 は、同一又は異なって、水素原子又はアルキル基である。)

- [請求項9] 前記電子受容性化合物が、2,3-ジクロロ-5,6-ジシアノ-p-ベンゾキノン(DDQ)、2,3,5,6-テトラクロロ-1,4-ベンゾキノン(クロラニル)、7,7,8,8-テトラシアノキノジメタン(TCNQ)、o-ベンゾキノン、m-ベンゾキノン及びp-ベンゾキノンからなる群より選択される少なくとも1種を含む、請求項1に記載の組成物。
- [請求項10] 更に、アルカリ金属含有化合物を含む、請求項1～9のいずれか一項に記載の組成物。
- [請求項11] 前記アルカリ金属含有化合物がアルカリ金属塩を含む、請求項10に記載の組成物。
- [請求項12] 前記アルカリ金属含有化合物がリチウム含有化合物を含む、請求項10に記載の組成物。
- [請求項13] 請求項1～9のいずれか一項に記載の組成物の乾燥体。
- [請求項14] 請求項13に記載の乾燥体を、比誘電率が2.0超4.0未満である非水溶媒に溶解した溶液のJIS K 0071-2に準拠して測定されるガードナー色数が13以上である、乾燥体。
- [請求項15] 請求項13に記載の乾燥体と、アルカリ金属含有化合物とを含む、組成物。
- [請求項16] 請求項1～9のいずれか一項に記載の組成物の製造方法であって、
前記電子供与性化合物を第1の溶媒に溶解した溶液である第1溶液と、前記電子受容性化合物を第2の溶媒に溶解した溶液である第2溶液とを混合する工程を含み、
前記第1の溶媒及び前記第2の溶媒は、同一又は異なって、比誘電率が2.0超4.0未満の非水溶媒である、組成物の製造方法。
- [請求項17] 請求項13に記載の乾燥体の製造方法であって、
前記電子供与性化合物を第1の溶媒に溶解した溶液である第1溶液

と、前記電子受容性化合物を第2の溶媒に溶解した溶液である第2溶液とを混合する工程と、

前記第1溶液と前記第2溶液との混合液から前記非水溶媒を除去する工程と、

を含み、

前記第1の溶媒及び前記第2の溶媒は、同一又は異なって、比誘電率が2.0超4.0未満の非水溶媒である、乾燥体の製造方法。

[請求項18] 請求項10に記載の組成物を用いて形成された、固体電解質。

[請求項19] 請求項15に記載の組成物を用いて形成された、固体電解質。

[請求項20] 請求項18に記載の固体電解質を備える、蓄電デバイス。

[請求項21] 請求項19に記載の固体電解質を備える、蓄電デバイス。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2024/022651

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER <i>C08L 71/12</i> (2006.01)i; <i>C08K 3/105</i> (2018.01)i; <i>H01B 1/06</i> (2006.01)i; <i>H01G 11/56</i> (2013.01)i; <i>H01M 10/0562</i> (2010.01)i FI: C08L71/12; H01B1/06 A; H01M10/0562; C08K3/105; H01G11/56 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) C08L71/12; C08K3/105; H01B1/06; H01G11/56; H01M10/0562 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2024 Registered utility model specifications of Japan 1996-2024 Published registered utility model applications of Japan 1994-2024 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) CAPLUS/REGISTRY (STN)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2021/065904 A1 (SEKISUI CHEMICAL CO., LTD.) 08 April 2021 (2021-04-08) claims, paragraph [0020], examples	1-15, 18-21
X	US 2014/0243487 A1 (MXPOLYMERS B.V.) 28 August 2014 (2014-08-28) claims, examples	1-7, 9, 13-14, 16-17
P, A	WO 2024/048746 A1 (TOAGOSEI CO., LTD.) 07 March 2024 (2024-03-07) claims, paragraphs [0020], [0034], examples	1-21
☐ 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 “D” document cited by the applicant in the international application “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 01 August 2024		Date of mailing of the international search report 13 August 2024
Name and mailing address of the ISA/JP Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan		Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/022651

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2021/065904	A1	08 April 2021	(Family: none)	
US	2014/0243487	A1	28 August 2014	WO 2013/055209	A1
				EP 2766410	A1
WO	2024/048746	A1	07 March 2024	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

C08L 71/12(2006.01)i; C08K 3/105(2018.01)i; H01B 1/06(2006.01)i; H01G 11/56(2013.01)i;
H01M 10/0562(2010.01)i
FI: C08L71/12; H01B1/06 A; H01M10/0562; C08K3/105; H01G11/56

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

C08L71/12; C08K3/105; H01B1/06; H01G11/56; H01M10/0562

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年
日本国公開実用新案公報 1971-2024年
日本国実用新案登録公報 1996-2024年
日本国登録実用新案公報 1994-2024年

国際調査で利用した電子データベース（データベースの名称、調査に利用した用語）

CAlus/REGISTRY (STN)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	WO 2021/065904 A1（積水化学工業株式会社）08.04.2021（2021-04-08） 請求の範囲，段落[0020]，実施例	1-15, 18-21
X	US 2014/0243487 A1（MXPOLYMERS B.V.）28.08.2014（2014-08-28） 請求の範囲，実施例	1-7, 9, 13-14, 16-17
P, A	WO 2024/048746 A1（東亜合成株式会社）07.03.2024（2024-03-07） 請求の範囲，段落[0020]，[0034]，実施例	1-21

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☒ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般の技術水準を示すもの
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 01.08.2024

国際調査報告の発送日 13.08.2024

名称及びあて先

日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

権限のある職員（特許庁審査官）

佐藤 貴浩 4W 5811

電話番号 03-3581-1101 内線 3495

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2024/022651

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO	2021/065904	A1	08.04.2021	(ファミリーなし)	
US	2014/0243487	A1	28.08.2014	WO	2013/055209 A1
				EP	2766410 A1
WO	2024/048746	A1	07.03.2024	(ファミリーなし)	