

發明專利說明書

(本說明書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※ 申請案號：93132967

※ 申請日期：93.10.29

※IPC 分類：C07C217/08
C07C217/08

一、發明名稱：(中文/英文)

四級銨鹽、電解質、電解液及電化學裝置

二、申請人：(共 2 人)

姓名或名稱：(中文/英文)

1. 大塚化學股份有限公司 / OTSUKA CHEMICAL CO., LTD.
2. 史特拉化學股份有限公司 / STELLA CHEMIFA CORPORATION

代表人：(中文/英文)

1. 森明平 / MORI, AKIHEI
2. 高野順 / TAKANO, JUN

住居所或營業所地址：(中文/英文)

1. 日本國大阪府大阪市中央區大手通 3 丁目 2 番 27 號
2-27, OTEDORI 3-CHOME, CHUO-KU, OSAKA-SHI, OSAKA-FU, JAPAN
2. 日本國大阪府大阪市中央區淡路町 3 丁目 6 番 3 號
6-3, AWAJIMACHI 3-CHOME, CHUO-KU, OSAKA-SHI, OSAKA-FU, JAPAN

國 籍：(中文/英文)

日本 / JAPAN

三、發明人：(共 5 人)

姓 名：(中文/英文)

1. 鍋島亮浩 / NABESHIMA, AKIHIRO
2. 德田弘晃 / TOKUDA, HIROAKI
3. 西田哲郎 / NISHIDA, TETSUO
4. 富崎惠 / TOMISAKI, MEGUMI
5. 平野一孝 / HIRANO, KAZUTAKA

國 籍：(中文/英文)

日本 / JAPAN

四、聲明事項：

☐ 主張專利法第二十二條第二項 ☐ 第一款或 ☐ 第二款規定之事實，其事實發生日期為： 年 月 日。

☒ 申請前已向下列國家（地區）申請專利：

【格式請依：受理國家（地區）、申請日、申請案號 順序註記】

☒ 有主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

1. 日本； 2003.10.31； 特願 2003-372159

☐ 無主張專利法第二十七條第一項國際優先權：

☐ 主張專利法第二十九條第一項國內優先權：

【格式請依：申請日、申請案號 順序註記】

☐ 主張專利法第三十條生物材料：

☐ 須寄存生物材料者：

國內生物材料 【格式請依：寄存機構、日期、號碼 順序註記】

國外生物材料 【格式請依：寄存國家、機構、日期、號碼 順序註記】

☐ 不須寄存生物材料者：

所屬技術領域中具有通常知識者易於獲得時，不須寄存。

九、發明說明：

【發明所屬之技術領域】

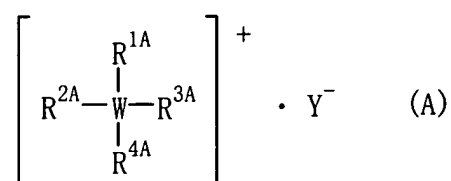
技術領域

本發明係關於四級銨鹽、電解質、電解液及電化學裝置。

【先前技術】

背景技術

近年來正開發一種使熔點保持於常溫以下之鹽(常溫熔融鹽)。舉例言之，此種常溫熔融鹽已知有以通式(A)所示之脂肪族銨鹽(WO 02/076924 A1)；



式中， R^{1A} 、 R^{2A} 、 R^{3A} 及 R^{4A} 為相同或相異之碳原子數1~5之烷基或 $R'-O-(CH_2)_n$ -(R' 為甲基或乙基， n 為1~4之整數)所示知烷氧烷基；該等 R^{1A} 、 R^{2A} 、 R^{3A} 及 R^{4A} 中之任2個基亦可形成環，但， $R^{1A} \sim R^{4A}$ 中之至少一者為前述烷氧烷基； W 為氮原子或磷原子， Y 為一價之陰離子。

WO 02/076924 A1所揭示之脂肪族銨鹽具有對非水系有機溶劑之溶解性佳且於低溫時不易發生鹽之析出等性質。

然而，使該脂肪族銨鹽溶解於非水系有機溶劑之溶液雖可滿足某種程度上之導電性，脂肪族銨鹽本身之導電性

甚低，而無法到達令人滿意的水準。此外，該脂肪族銨鹽因黏度較高而缺乏流動性，因此，不適合用於使用多孔性電極(要求滲透性)之電性裝置的電解液

【發明內容】

5 發明揭示

發明欲解決之課題

本發明之課題在於提供一種四級銨鹽，其具有10°C以下之熔點並具有高導電性，且對非水系有機溶劑之溶解性優異。

10 解決課題之手段

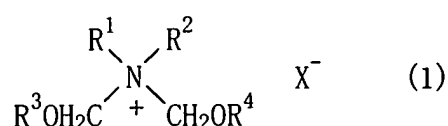
本案發明人為開發出可解決前述課題之四級銨鹽而不斷反覆精心研究。結果，發現到前述專利文獻完全未有具體記載或暗示之下述通式(1)所示特定之四級銨鹽具有10°C以下之低熔點，其對非水系有機溶劑之溶解性優異，且具有特別高的導電性而可適宜作電解質使用。本發明係基於

前述見解而得以完成者。

本發明可提供如下所示之四級銨鹽、電解質、電解液及電化學裝置。

1. 一種四級銨鹽，係以通式(1)表示者；

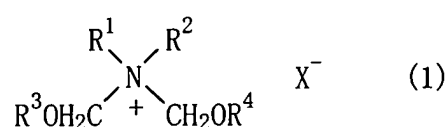
20



式中、 R^1 及 R^2 為相同或相異之 C_{1-4} 烷基，且 R^1 及 R^2

亦可與其等將結合之氮原子相互結合而共同形成飽和雜環； R^3 及 R^4 為相同或相異之甲基或乙基； X^- 為陰離子。

2. 如前述1之四級銨鹽，其中 R^1 及 R^2 與將結合之氮原子相互結合而共同形成之飽和雜環為3~5員之飽和雜環。
- 5 3. 如前述2之四級銨鹽，其中 R^1 及 R^2 與將結合之氮原子相互結合而共同形成之飽和雜環為吡咯啉環。
4. 如前述1之四級銨鹽，其中 R^1 及 R^2 均為甲基。
5. 如前述1至4中任一之四級銨鹽，其中 X^- 為 BF_4^- 、 $AlCl_4^-$ 、 $Al_2Cl_7^-$ 、 PF_6^- 、 AsF_6^- 、 $N(CF_3SO_2)_2^-$ 、 $N(CF_3CF_2SO_2)_2^-$ 、
10 $C(CF_3SO_2)_3^-$ 、 $N(CF_3SO_2)(CF_3CO)^-$ 、 $CF_3SO_3^-$ 、 $CH_3SO_3^-$ 、 $CH_3CO_2^-$ 、 CF_3COO^- 、 NO_3^- 、 $C_6H_5COO^-$ 或 $C_6H_5SO_3^-$ 、 $CF_3BF_3^-$ 、 $C_2F_5BF_3^-$ 或者為 I^- 。
6. 如前述5之四級銨鹽，其中 X^- 為 BF_4^- 或 $N(CF_3SO_2)_2^-$ 。
7. 一種由四級銨鹽構成之電解質，該四級銨鹽係以通式(1)
15 表示者；



式中， R^1 及 R^2 為相同或相異之 C_{1-4} 烷基；且 R^1 及 R^2 亦可與該等將結合之氮原子相互結合而共同形成飽和雜環。 R^3 及 R^4 為相同或相異之甲基或乙基； X^- 為陰離子。

- 20 8. 如前述7之電解質，其係由四級銨鹽所構成者；其中 R^1 及 R^2 與其等將結合之氮原子相互結合而共同形成之飽和雜環為3~5員之飽和雜環。
9. 如前述8之電解質，其係由四級銨鹽所構成者；其中 R^1

及 R^2 與將結合之氮原子相互結合而共同形成之飽和雜環為吡咯啉環。

10. 如前述7之電解質，其係由四級銨鹽所構成者；其中 R^1 及 R^2 均為甲基。
- 5 11. 如前述7至10中之任一電解質，其係由四級銨鹽所構成者；其中， X^- 為 BF_4^- 、 $AlCl_4^-$ 、 $Al_2Cl_7^-$ 、 PF_6^- 、 AsF_6^- 、 $N(CF_3SO_2)_2^-$ 、 $N(CF_3CF_2SO_2)_2^-$ 、 $C(CF_3SO_2)_3^-$ 、 $N(CF_3SO_2)(CF_3CO)^-$ 、 $CF_3SO_3^-$ 、 $CH_3SO_3^-$ 、 $CH_3CO_2^-$ 、 CF_3COO^- 、 NO_3^- 、 $C_6H_5COO^-$ 或 $C_6H_5SO_3^-$ 、 $CF_3BF_3^-$ 、
10 $C_2F_5BF_3^-$ 或者 I^- 。
12. 如前述11之電解質，其係由四級銨鹽所構成者；其中 X^- 為 BF_4^- 或 $N(CF_3SO_2)_2^-$ 。
13. 一種電解液，係含有前述7~12中任一者之1種或2種以上的電解質者。
- 15 14. 如前述13之電解液，其係含有前述7~12中任一之至少一種電解質以及有機溶劑。
15. 如前述14之電解液，其中該有機溶劑係選自於由環狀碳酸酯、鏈狀碳酸酯、腈化合物及砜化合物所構成群中之至少一種。
- 20 16. 如前述15之電解液，其中該有機溶劑係選自於由碳酸丙烯酯、碳酸乙烯酯、乙基甲基碳酸酯及碳酸二甲酯所構成群中之至少一種。
17. 一種電化學裝置，係含有前述13之電解液者。
18. 如前述17之電化學裝置，其係雙重電解電容或二次電

池。

四級銨鹽

本發明說明書中，以 R^1 及 R^2 表示之 C_{1-4} 烷基可列舉如
 甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、二級丁基及三級
 5 丁基等。較佳之 C_{1-4} 烷基為甲基。

R^1 及 R^2 與將與其等結合之氮原子相互結合而共同形成
 之飽和雜環可列舉如3~5員之飽和雜環。較佳之飽和雜環為
 吡咯啉環。

具體之四級銨陽離子可列舉如雙(甲氧基甲基)二甲基
 10 銨陽離子、N, N-(二甲氧基甲基)-N-乙基-N-甲基銨陽離
 子、N, N-(二甲氧基甲基)-N-丙基-N-甲基銨陽離子、N,
 N-(二甲氧基甲基)-N-丁基-N-甲基銨陽離子、雙(甲氧基甲
 基)二乙基銨陽離子、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)-N,
 N-二甲基銨陽離子、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)-N-乙
 15 基-N-甲基銨陽離子、雙(乙氧基甲基)二甲基銨陽離子、N,
 N-(二乙氧基甲基)-N-乙基-N-甲基銨陽離子、雙(甲氧基甲
 基)吡咯烷鎗陽離子、雙(乙氧基甲基)吡咯烷鎗陽離子、
 N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗陽離子、雙(甲氧
 基甲基)氮雜環丙烷鎗陽離子、雙(乙氧基甲基)氮雜環丙烷
 鎗陽離子、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)氮雜環丙烷鎗
 20 陽離子、雙(甲氧基甲基)氮雜環丁烷鎗陽離子、雙(乙氧基
 甲基)氮雜環丁烷鎗陽離子及N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲
 基)氮雜環丁烷鎗陽離子等。

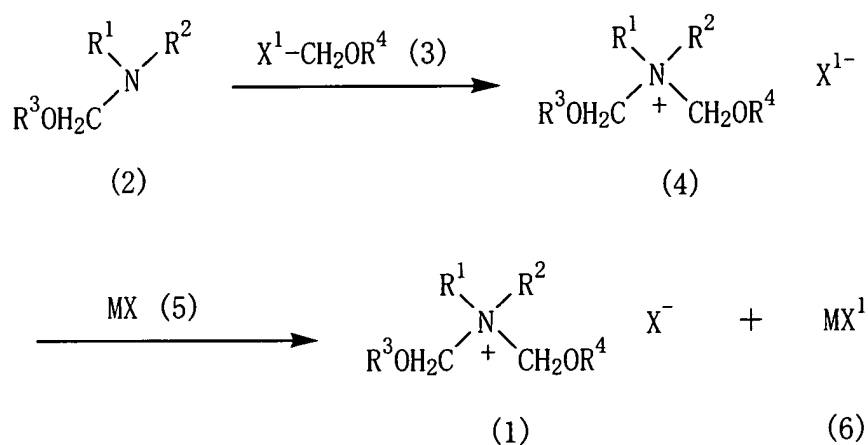
以 X^- 表示之陰離子可列舉如 BF_4^- 、 $AlCl_4^-$ 、 $Al_2Cl_7^-$ 、

PF_6^- 、 AsF_6^- 、 $\text{N}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2^-$ 、 $\text{N}(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2^-$ 、 $\text{C}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3^-$ 、 $\text{N}(\text{CF}_3\text{SO}_2)(\text{CF}_3\text{CO})^-$ 、 CF_3SO_3^- 、 CH_3SO_3^- 、 CH_3CO_2^- 、 CF_3COO^- 、 NO_3^- 、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{SO}_3^-$ 、 CF_3BF_3^- 、 $\text{C}_2\text{F}_5\text{BF}_3^-$ 及 I^- 等。較佳之陰離子為 BF_4^- 及 $\text{N}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2^-$ 。

- 5 較佳之四級銨鹽可列舉如雙(甲氧基甲基)二甲基銨四氟硼酸鹽、N, N-(二甲氧基甲基)-N-乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽、N, N-(二甲氧基甲基)-N-丙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽、N, N-(二甲氧基甲基)-N-丁基-N-甲基銨四氟硼酸鹽、雙(甲氧基甲基)二乙基銨四氟硼酸鹽、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)-N, N-二甲基銨四氟硼酸鹽、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)-N-乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽、雙(乙氧基甲基)二甲基銨四氟硼酸鹽、N, N-(二乙氧基甲基)-N-乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽、雙(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽、雙(乙氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽、雙(甲氧基甲基)氮雜環丙烷鎗四氟硼酸鹽、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)氮雜環丙烷鎗四氟硼酸鹽、雙(甲氧基甲基)氮雜環丁烷鎗四氟硼酸鹽、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)氮雜環丁烷鎗四氟硼酸鹽、雙(甲氧基甲基)二甲基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺、N, N-(二甲氧基甲基)-N-乙基-N-甲基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺、N, N-(二甲氧基甲基)-N-丙基-N-甲基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺、N, N-(二甲氧基甲基)-N-丁基-N-甲基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺、雙(甲氧基甲基)二乙基銨甲磺醯基醯亞胺、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)-N, N-二甲
- 10
- 15
- 20

基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)-N-乙基-N-甲基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺、雙(乙氧基甲基)二甲基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺、N, N-(二乙氧基甲基)-N-乙基-N-甲基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺、雙(甲氧基甲基)吡咯烷鎘雙三氟甲磺醯基醯亞胺、雙(乙氧基甲基)吡咯烷鎘雙三氟甲磺醯基醯亞胺、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎘雙三氟甲磺醯基醯亞胺、雙(甲氧基甲基)氮雜環丙烷鎘雙三氟甲磺醯基醯亞胺、N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)氮雜環丙烷鎘雙三氟甲磺醯基醯亞胺、雙(甲氧基甲基)氮雜環丁烷鎘雙三氟甲磺醯基醯亞胺、以及N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)氮雜環丁烷鎘雙三氟甲磺醯基醯亞胺等。

本發明之四級銨鹽可以各種方法加以製造。茲使用下述反應式說明其代表方法。



[式中， R^1 、 R^2 、 R^3 、 R^4 及 X^1 係與前述者相同。 X^1 為鹵素原子。 M 為氫原子或金屬原子。]

可使通式(2)所示叔胺與通式(3)所示化合物反應，藉此製出通式(4)所示四級銨鹽，再藉著通式(4)所示四級銨鹽與

通式(5)之鹽交換反應，而製得通式(1)之四級銨鹽。

於通式(5)中，M包含H或Na、K、Li等鹼金屬原子、Ca、Mg、Ba等鹼土族金屬原子以及Ag等金屬原子。

作出發原料使用之通式(2)所示叔胺及通式(3)所示化合物均為習知物質。

通式(2)之叔胺可依習知方法而合成出。舉例言之，此種方法已揭示於 C.M.McLeod und G.M.Robinson, J.Chem.Soc., 119, 1470(1921), G.M.Robinson und R.Robinson, J.Chem.Soc., 123, 532(1923), Stewart, T.D.;Bradly, W.E.J.Am.Chem.Soc., 1932, 54, 4172-4183等。

一般而言，通式(2)所示叔胺係使用仲胺、甲醛、醇類及碳酸鹼金屬鹽為原料而合成出者。

該等原料中，相對於仲胺1莫耳，係使用10~38重量% 甲醛水溶液或對甲醛0.5~3莫耳(宜為0.6~1.5莫耳)、醇類0.5~7莫耳(宜2~5莫耳)及碳酸鹼金屬鹽0.2~3莫耳(宜0.4~1莫耳)。

反應溫度於係使用甲醛水溶液時為-5~25℃，使用對甲醛時則以60~100℃為適當。反應一般於數小時~24小時程度結束。

通式(2)所示叔胺可藉慣用之離析手段，如粹取及精餾等，而輕易地由反應混合物離析出。

舉例言之，通式(3)所示化合物包含氯甲基甲基醚、溴甲基甲基醚、碘甲基甲基醚、氯甲基乙基醚、溴甲基乙基醚及碘甲基乙基醚等。

通式(2)所示叔胺與通式(3)所示化合物間之反應可於無溶劑下或於適當溶劑中進行。

所用溶劑僅需為可溶解通式(2)所示叔胺及通式(3)所示化合物，且不對反應造成不良影響之溶劑即可，可廣泛使用習知者。此種溶劑可列舉如苯、甲苯及二甲苯等芳香族烴；二氯甲烷、氯仿及四氯化碳等鹵化烴；甲醇、乙醇、異丙醇、正丁醇及三級丁醇等低級醇；丙酮、甲基乙基酮等酮類；二乙基醚及二異丙基醚等醚類；正己烷及正庚烷等脂肪族烴；以及環己烷等脂環狀烴等。於該等之中，以
 5 甲苯等芳香族烴、二氯甲烷等鹵化烴及丙酮等酮類為宜。
 10 前述溶劑可1種單獨使用或混合2種以上使用。因該等溶劑為無水溶劑而較理想。

通式(3)所示化合物相對於叔胺(2)1莫耳通常係使用0.3~5莫耳，且宜為0.6~1.2莫耳。該反應通常係於-10~25℃
 15 中進行，一般而言，於數小時~24小時程度即告結束。

前述反應所得通式(4)所示四級銨鹽與通式(5)之化合物間之反應係藉一般之鹽交換反應進行者。

作原料使用之通式(5)所示化合物為習知化合物，舉例言之可列舉如 $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{H}$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{Li}$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{Na}$ 、 $\text{CF}_3\text{SO}_3\text{K}$ 、
 20 $\text{HN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{NaN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、
 $\text{KN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{HN}(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2$ 、
 $\text{NaN}(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{KN}(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2$ 、 $\text{HC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、
 $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、 $\text{NaC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、 $\text{KC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、
 $\text{HN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)(\text{CF}_3\text{CO})$ 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)(\text{CF}_3\text{CO})$ 、

$\text{NaN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)(\text{CF}_3\text{CO})$ 、 $\text{KN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)(\text{CF}_3\text{CO})$ 、 HBF_4 、 LiBF_4 、 NaBF_4 、 KBF_4 、 AgBF_4 、 HPF_6 、 LiPF_6 、 NaPF_6 、 KPF_6 、 AgPF_6 、 $\text{CF}_3\text{CO}_2\text{H}$ 、 $\text{CF}_3\text{CO}_2\text{Li}$ 、 $\text{CF}_3\text{CO}_2\text{Na}$ 、 $\text{CF}_3\text{CO}_2\text{K}$ 、 $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{H}$ 、 $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{Li}$ 、 $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{Na}$ 及 $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{K}$ 等。

- 5 此種鹽交換反應係於適當溶劑中進行。所用溶劑僅需為可溶解通式(4)所示四級銨鹽及通式(5)所示化合物，且不對反應帶來不良影響者即可，可廣泛使用習知溶劑。此種溶劑可列舉如水；二氯甲烷、氯仿及四氯化碳等鹵化烴；
- 10 甲醇、乙醇、異丙醇、正丁醇及三級丁醇等低級醇；丙酮及甲基乙基酮等酮類；乙酸乙酯及乙酸丁酯等酯類；以及二甲基亞砜、二甲基甲醯胺等非質子性極性溶劑。該等之中，以甲醇等低級醇類以及氯仿等鹵化烴及水為宜。該等溶劑可單獨使用1種或混合2種以上使用。

- 亦可使用離子交換樹脂進行鹽交換。離子交換樹脂通常係使用陰離子交換樹脂。
- 15

- 可使該樹脂中之陰離子預先與目的陰離子交換，再使溶解有通式(4)之溶液通過該樹脂之中而達成鹽交換。於此，使用之溶劑僅需可使通式(4)溶解，且不對鹽交換反應帶來不良影響者即可，可廣泛使用習知者。一般而言，此
- 20 種溶劑通常為水及醇類等。

通式(4)所示四級銨鹽與通式(5)所示化合物之使用比例通常係相對於前者1莫耳使後者為0.5~5莫耳，且宜為0.9~1.2莫耳。因該反應通常進行甚快，故舉例而言僅需使兩者溶於溶劑而成之溶液溫度維持在室溫左右即可。一般

而言，鹽交換反應係於10分~2小時程度下完成。

前述各反應所得之目的化合物可藉一般之分離手法，如濃縮、洗淨、有機溶劑粹取、色層分析法及再結晶等慣用之離析及純化手段而輕易地自反應混合物離析或純化出。

若具體顯示由通式(4)所示四級銨鹽製出X為 BF_4 之通式(1)所示四級銨鹽時的反應條件，則可使通式(4)所示四級銨鹽溶解於前述低級醇中，再將預定量之硼氟化氫或硼氟化銀等之氟化硼鹽添加至該溶液，以室溫左右反應30分鐘程度。再餾除反應產生之鹵化氫，或濾出鹵化銀等之鹵鹽後，使濾液作減壓濃縮並加以乾燥，而離析出目的化合物。此外，餾除鹵化氫則可應用習知方法，如以 N_2 泡沫法進行餾除或藉減壓進行餾除等。

若具體表示從通式(4)所示四級銨鹽製出X為 $\text{N}(\text{SO}_2\text{CF}_3)_2$ 之通式(1)所示四級銨鹽時的反應條件，則使通式(4)所示四級銨溶解於水中，並於該溶液中添加預定量之雙三氟甲硫鹽亞胺之鹼金屬鹽(雙三氟甲硫鹽亞胺之鋰鹽、鈉鹽、鉀鹽等)，以 $0\sim 25^\circ\text{C}$ 反應30分鐘。再以適當溶劑(如二氯甲烷、氯仿、乙酸乙酯等)粹取產生之目的物，並以水洗淨粹取液後，進行減壓濃縮及乾燥，而可離析出目的化合物。

電解質及電解液

本發明之四級銨鹽係一於常溫下顯示為液狀之常溫熔融鹽，對非水系有機溶劑之溶解性優異，並具有甚高之導

電性。因此，本發明之四級銨鹽可適宜作為電解質使用。

於本發明中，可將本發明之第四級銨鹽所構成之電解質直接用作電解液。此外，可將本發明之四級銨鹽所構成之電解質與適當溶劑混合使用。

- 5 於此，溶劑可列舉如環狀碳酸酯、鏈狀碳酸酯、磷酸酯、環狀醚、鏈狀醚、內酯化合物、鏈狀酯、腈化合物、醯胺化合物及砜化合物等。且該等溶劑可混合1種或2種以上使用。

- 10 具體來說，環狀碳酸酯可列舉如碳酸乙烯酯、碳酸丙烯酯及碳酸丁烯酯等。

鏈狀碳酸酯可具體列舉如碳酸二甲酯、乙基甲基碳酸酯及碳酸二乙酯等。

磷酸酯可具體列舉如磷酸三甲酯、磷酸三乙酯、磷酸乙基二甲酯及磷酸二乙基甲酯等。

- 15 環狀醚可具體列舉如四氫呋喃及2-甲基四氫呋喃等。

鏈狀醚可具體列舉如二甲氧基乙烷等。

內酯化合物可具體列舉如 γ -丁內酯等。

鏈狀酯可具體列舉如丙酸甲酯、乙酸甲酯、乙酸乙酯及甲酸甲酯等。

- 20 腈化合物可具體列舉如乙腈等。

醯胺化合物可具體列舉如二甲基甲醯胺等。

砜化合物可具體列舉如環丁砜及甲基環丁砜等。

將本發明之四級銨鹽所構成之電解質與前述溶劑混合使用時，電解質濃度宜為0.1M以上，且更宜為0.5M以上，

尤宜為1M以上。

本發明之電解質更可與習知之電解質混合使用。

與本發明之電解質混合使用之習知電解質可例示如鹼金屬鹽、四級銨鹽及四級鏽鹽等。

- 5 鹼金屬鹽可列舉如鋰鹽、鈉鹽及鉀鹽等。鋰鹽更可具體例示如六氟磷酸鋰、硼氟化鋰、過氯酸鋰、三氟甲磺酸鋰、硫鹽亞胺鋰及磺鹽基甲基化鋰等。鈉鹽可更具體列示如六氟化磷酸鈉、硼氟化鈉、過氯酸鈉、三氟甲磺酸鈉、硫鹽亞胺鈉及磺鹽基甲基化鈉等。鉀鹽可更具體列示六氟
- 10 化磷酸鉀、硼氟化鉀、過氯酸鉀、三氟磺酸鉀、硫鹽亞胺鉀及磺鹽基甲基化鉀等。

- 四級銨鹽可列舉如四烷基銨鹽、咪唑鎗鹽、吡唑鎗鹽、吡啶鎗鹽、三唑鎗鹽及嗒吡鎗鹽等。四烷基銨鹽可更具體列示如四乙基銨四氟硼酸鹽、四甲基銨四氟硼酸鹽、四丙
- 15 基銨四氟硼酸鹽、四丁基銨四氟硼酸鹽、三乙基甲基銨四氟硼酸鹽、三甲基乙基銨四氟硼酸鹽、二甲基二乙基銨四氟硼酸鹽、三甲基丙基銨四氟硼酸鹽、三甲基丁基銨四氟硼酸鹽、二甲基乙基丙基銨四氟硼酸鹽、甲基乙基丙基丁
- 20 基銨四氟硼酸鹽、N, N-二甲基吡咯烷鎗四氟硼酸鹽、N-乙基-N-甲基吡咯烷鎗四氟硼酸鹽、N-甲基-N-丙基吡咯烷鎗四氟硼酸鹽、N, N-二乙基-N-丙基吡咯烷鎗四氟硼酸鹽、N, N-二甲基哌啶鎗四氟硼酸鹽、N-甲基-N-乙基哌啶鎗四氟硼酸鹽、N-甲基-N-丙基哌啶鎗四氟硼酸鹽、N-乙基-N-丙基哌啶鎗四氟硼酸鹽、N, N-二甲基嗎福啉鎗四氟硼酸鹽、N-甲

基-N-乙基嗎福啉鎗四氟硼酸鹽、N-甲基-N-丙基嗎福啉鎗四氟硼酸鹽及N-乙基-N-丙基嗎福啉鎗四氟硼酸鹽等。咪唑鎗鹽可更具體列示如1,3-二甲基咪唑鎗四氟硼酸鹽、1-乙基-3-甲基咪唑鎗四氟硼酸鹽、1,3-二乙基咪唑鎗四氟硼酸鹽、1,2-二甲基-3-乙基咪唑鎗四氟硼酸鹽及1,2-二甲基-3-丙基咪唑鎗四氟硼酸鹽等。吡唑鎗鹽可更具體列示如1,2-二甲基吡唑鎗四氟硼酸鹽、1-甲基-2-乙基吡唑鎗四氟硼酸鹽、1-丙基-2-甲基吡唑鎗四氟硼酸鹽及1-甲基-2-丁基吡唑鎗四氟硼酸鹽等。吡啶鎗鹽可更具體列示如N-甲基吡啶鎗四氟硼酸鹽、N-乙基吡啶鎗四氟硼酸鹽、N-丙基吡啶鎗四氟硼酸鹽及N-丁基吡啶鎗四氟硼酸鹽等。三唑鎗鹽可更具體列示如1-甲基三唑鎗四氟硼酸鹽、1-乙基三唑鎗四氟硼酸鹽、1-丙基三唑鎗四氟硼酸鹽及1-丁基三唑鎗四氟硼酸鹽等。嗒吡鎗鹽可更具體列示如1-甲基嗒吡鎗四氟硼酸鹽、1-乙基嗒吡鎗四氟硼酸鹽、1-丙基嗒吡鎗四氟硼酸鹽及1-丁基嗒吡鎗四氟硼酸鹽等。

四級磷鹽可例舉如四乙基磷四氟硼酸鹽、四甲基磷四氟硼酸鹽、四丙基磷四氟硼酸鹽、四丁基磷四氟硼酸鹽、三乙基甲基磷四氟硼酸鹽、三甲基乙基磷四氟硼酸鹽、二甲基二乙基磷四氟硼酸鹽、三甲基丙基磷四氟硼酸鹽、三甲基丁基磷四氟硼酸鹽、二甲基乙基丙基磷四氟硼酸鹽及甲基乙基丙基丁基磷四氟硼酸鹽等。

本發明中，該等習知之電解質可單獨使用1種或混合2種以上使用。

電化學裝置

電化學裝置可舉例如雙重電解電容及二次電池等。本發明之電解質或電解液可與習知之雙重電解電容及二次電池所用電解質或電解液作相同使用。

- 5 本發明之四級銨鹽及使該鹽溶解於有機溶劑中而成之溶液可作電化學裝置用電解液使用。

使於有機溶劑中溶有四級銨鹽之溶液作電化學裝置用電解液加以使用時，電解質濃度宜於0.1M以上，且較於0.5M以上，而特別宜於1M以上。電解質濃度於未滿0.1M時導電
10 性降低，將使電化學裝置之性能降低。而關於電解質濃度之上限，就常溫下為液體之四級銨鹽而言係與有機溶劑分離之濃度，若不與有機溶劑分離時則為100%。此外，就常溫下呈固體之四級銨鹽而言，則以該鹽於有機溶劑中呈飽和之濃度為上限。

- 15 可使用本發明之四級銨鹽調製電化學裝置用電解液。本發明所得電解液可使用在藉著物理作用或化學作用而可蓄積電能之電化學裝置，如，可適用於雙重電解電容及鋰電池。

茲將使用本發明四級銨鹽之雙重電解電容用電解液
20 的調製方法說明於下。本發明之四級銨鹽於係液體時可將本身直接作電解液使用，或將該鹽與適當之有機溶劑混合加以使用。於調製雙重電解電容用電解液時，因水分將對雙重電解電容之性能帶來不良影響，故宜於不混入空氣之環境，如於氫氣、氮氣等惰性氛圍之球形箱(glovebox)內進

行調製作業。作業環境之水分可藉露點計加以管理。且宜將作業環境設定成露點係於 -60°C 以下。露點於 -60°C 以上時，若作業時間延長，電解液將吸收氛圍中之水分而使電解液中之水分增加，並不理想。電解液中之水分可藉卡氏

5 水份測定儀(Karl Fischer Moisture Titrator)測定之。

將於有機溶劑中溶有本發明之四級銨鹽之溶液作電化學裝置用電解液使用時，如前所述，由電解液導電性之觀點看來，電解質濃度宜於 0.1M 以上，更宜於 0.5M 以上，且尤宜於 1M 以上。於不發生電解質之析出及分離的前提下，

10 電解質濃度之上限不受限制。

於此，有機溶劑可使用前述之各種溶劑，但因溶劑之種類將導致介電率、黏性及熔點等物性不同，所用有機溶劑之種類宜因應本發明之四級銨鹽種類而決定其等之混合比例。舉例言之，於電解液係由N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基
15 甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽與碳酸丙烯酯構成時，電解液中N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽之比例宜為 $10\sim 80$ 重量%，且較宜為 $15\sim 70$ 重量%，而宜為 $20\sim 60$ 重量%。而於電解液係N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽與碳酸二甲酯所構成時，電解液中之N-(乙
20 氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽之比例宜為 $20\sim 90$ 重量%，且更宜為 $30\sim 80$ 重量%。電解液係由N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽與乙基甲基碳酸酯所構成時，電解液中N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽之比例宜為 $30\sim 90$ 重量%，且更宜為

40~80重量%。此外，已可混合2種以上之有機溶劑加以使用，使用碳酸二甲酯與乙基甲基碳酸酯之混合溶劑(混合比為1:1)時，電解液中N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽之比例宜為30~80重量%。

- 5 本發明之四級銨鹽亦可使用於鋰電池用電解液。與調製雙重電解電容用電解液時相同，水分將對鋰電池特性造成不良影響，因此，進行調製作業之作業環境係宜於露點受到管理之球形箱內。

- 10 本發明之四級銨鹽於本身即為液體時可使鋰鹽溶解於四級銨鹽中而製得電解液。此外，可使本發明之四級銨鹽與適當之有機溶劑混合，再使鋰鹽溶解於該混合物中而製得電解液。

鋰鹽可使用上述之各種鹽。於不發生鋰鹽析出之前提下，其種類並未特別受到限制。

- 15 鋰鹽濃度通常於0.1M以上且2.0M以下，宜於0.15M以上且1.5M以下，更宜於0.2M以上且1.2M以下，而尤宜於0.3M以上且1.0M以下。若鋰鹽濃度未滿0.1M，則於充放電速率較大時電極附近將發生鋰離子之缺乏，而產生充放電特性降低之傾向。此外，鋰離子濃度若超過2.0M則電解液
20 黏度提高，而產生導電性降低之傾向。

於本發明中，形成本發明之四級銨鹽及鋰鹽的陰離子之中，宜有任一者包含 BF_4^- 。其理由尚未確定，但可做如下推測，即：於含四氟硼酸鹽時，作正極集電體使用之鋁表面將形成鈍態皮膜，可能係因此而可抑制鋁之溶出。 BF_4^-

之含量離子數宜調製成佔電解液中全陰離子數之0.5%以上，且更宜調製成佔0.8%以上。而上限濃度為： BF_4^- 之含量離子數佔電解液中全陰離子數之100%。

此外，電解液亦可稀釋於有機溶劑中再使用。可使用
5 之有機溶可例舉如環狀碳酸酯、鏈狀碳酸酯、環狀醚、鏈狀醚、腈化合物及碲化合物等。

環狀碳酸酯之具體例可列舉如碳酸乙烯酯及碳酸丙烯酯等。鏈狀碳酸酯之具體例可列舉如碳酸二甲酯及乙基甲基碳酸酯等。環狀醚之具體例可列舉如四氫呋喃及六氫吡喃等。鏈狀醚之具體例可列舉如1, 2-二甲氧基乙烷等。腈
10 化合物之具體例可列舉如乙腈等。碲化合物之具體例可列舉如環丁碲等。

該等有機溶劑亦可混合使用。組合例可列舉如碳酸乙烯酯與碳酸二甲酯、碳酸乙烯酯與乙基甲基碳酸酯、碳酸
15 乙烯酯與碳酸丙烯酯、碳酸乙烯酯與四氫呋喃等。

本發明所使用之電解液宜含有特定之有機添加劑。

特定之有機添加劑可例舉如碳酸乙烯酯、碳酸亞乙烯酯、碳酸丁烯酯、三硫代碳酸乙烯酯、三硫代碳酸亞乙烯酯及硫化乙烯等。該等之中係以碳酸乙烯酯及碳酸亞乙烯
20 酯為佳。該等有機添加劑可單獨使用1種或混合2種以上使用。

藉含有前述特定之有機添加劑，鋰電池負極表面將形成已知係SEI(Solid Electrolyte Interface)的鋰離子選擇性穿透膜，而可抑制用以形成常溫熔融鹽之銨陽離子的分解及

插入負極材料，結果可賦予鋰電池安定之充放電特性。

前述有機添加劑之中，亦包含同時具有作稀釋劑用之機能的物質。

該等有機添加劑之含量於相對全電解液重量時，有機
5 添加劑之比例宜於1重量%以上且40重量%以下，更宜於1
重量%以上且30重量%以下，尤宜於1重量%以上且20重量%
以下，而最宜於1重量%以上且10重量%以下。有機添加劑
之含量於1重量%以下時，負極表面無法形成充分之皮膜，
而無法抑制用以形成常溫熔融鹽之銨陽離子的分解及插入
10 負極材料。

可使用前述製得之本發明電解液而適宜地製作出雙重
電解電容。該雙重電解電容之一例可例示如第1圖所示者。
雙重電解電容之形狀並不限定於第1圖之鈕型(coin)，而亦
可係於罐體中層積電極並加以收納而成之層積型、捲繞並
15 收納而成之捲繞型或於鋁層積體填料而成之層積體型。以
下，以鈕型雙重電解電容之結構為例，針對其結構加以說
明。

第1圖係用以顯示鈕型雙重電解電容之截面者。電極
1、2係隔著隔離件3而相對配置，並收納於容器體4、5中。
20 電極係由活性碳等碳材料所構成之分極性電極部分與集電
體部分所構成。容器體4、5僅需為不因電解液而腐蝕者即
可，舉例言之可由不鏽鋼或鋁等所構成。容器體4、5係藉
絕緣性之墊片6而電性絕緣，同時並將金屬製罐體內部密
封，以使來自罐體外部之水分及空氣不致侵入。電極1之集

電體與容器體4以及電極2之集電體與金屬製之間隔件7係各自藉著金屬製之彈簧8的存在而於適度壓力下呈接觸，而保持電性接觸。為使導電性提高，亦可使用碳糊等導電性糊將集電體接著。

- 5 分極性電極材料宜為比表面積大且導電性高之材料，且須於欲使用之施加電壓範圍內對電解液呈電化性安定。此種材料可例舉如碳材料、金屬氧化物材料及導電性高分子材料等。若考慮成本，則分極性電極材料宜為碳材料。

- 10 碳材料宜為活性碳材料，具體來說，可列舉如鋸屑活性碳、椰殼活性碳、瀝青焦炭系活性碳、苯酚樹脂系活性碳、聚丙烯腈系活性碳及纖維素系活性碳等，但並不限於該等。

金屬氧化物系材料可例舉如氧化鈦、氧化錳及氧化鈷等，但並不受限於該等。

- 15 導電性高分子材料可例舉如聚腈、聚吡咯膜、聚噻吩膜及聚(3, 4-乙烯二氧基噻吩)膜等，但並不受限於該等。

- 20 可將前述分極性電極材料與黏合劑共同加壓成型製得電極；或將前述分極性電極材料與黏合劑一起混合於吡咯烷酮等有機溶劑中，將製成糊狀者塗佈於鋁箔等集電體後再進行乾燥而製得電極。

隔離件宜為電子絕緣性高、對電解液之沾濕性良好且離子穿透性甚高者，此外，亦須於施加電壓範圍內呈電化學安定。隔離件之材質並未特別限制，但可適宜使用由人造絲、馬尼拉麻等構成之抄紙；聚烯烴系多孔質膜；聚乙

烯不織布；以及聚丙烯不織布等。

可使用前述製得之本發明電解液而適宜地製出鋰二次電池。本發明之鋰二次電池之形狀可列舉如鈕型、圓筒型、角型以及層積體等，但並不限於該等。本發明之鋰二次電池可以第2圖所示鈕型電池為例。

以下，以第2圖為準說明鋰二次電池。

於以正極罐14與負極罐15形成之內部空間中，收納有一由正極罐14側起依序層積正極11、隔離件13、負極12、間隔件17而成之層積體。負極罐15與間隔件17之間挾有彈簧18，而可將正極11與負極12適度地壓著固定。、正極11、隔離件13及負極12之間浸有電解液。係於正極罐14與負極罐15之間挾有墊片16的狀態下，使正極罐14及負極罐15互嵌(crimp)而使兩者結合，並使前述層積體呈密閉狀態。

正極活性物質可例舉如 LiCoO_2 、 LiNiO_2 、 $\text{LiNi}_{1-x}\text{Co}_x\text{O}_2$ 、 $\text{LiNi}_{1-y-z}\text{Co}_y\text{Mn}_z\text{O}_2$ 、 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_2$ 、 LiMnO_2 、 LiMn_2O_4 及 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ 等鋰與遷移金屬的複合氧化物； TiO_2 、 V_2O_5 等氧化物； TiS_2 、 FeS 等硫化物等，但由電池容量及能源密度之觀點看來，宜為鋰與遷移金屬之複合氧化物。

於前述內容中， $1 > x > 0$ 、 $1 > y > 0$ 、 $1 > z > 0$ 且 $y + z < 1$ 。

可將該等正極活性物質與習知之導電助劑及黏合劑等一起加壓成型而製得正極；或將正極活性物質與習知之導電助劑及黏合劑等一起混合至吡咯烷酮等有機溶劑中，將

製成糊狀者塗佈於鋁箔等集電體後再進行乾燥而製得正極。

負極活性物質可使用鋰金屬、鋰金屬與其他金屬之合金以及鋰離子可插入、脫離之材料。鋰金屬與其他金屬之合金可列舉如Li-Al、Li-Sn、Li-Zn及Li-Si等。鋰離子可插入、脫離之材料可列舉如將樹脂及瀝青等焙燒而成之碳材料、於該等碳材料中添加硼化合物而成之碳材料以及天然石墨等。該等負極活性物質可使用單獨1種，亦可混合2種以上使用。

10 可將該等負極活性物質與習知之導電助劑及黏合劑等一起加壓成型而製得負極；或將負極活性物質與習知之導電助劑及黏合劑等一起混合至吡咯烷酮等有機溶劑中，將製成糊狀者塗佈於鋁箔等集電體後再進行乾燥而製得負極。

15 隔離件僅需為電解液易於通過、為絕緣體且化學性質安定之材質即可，並無特殊限制。

本發明之四級銨鹽及含有其之電解液係導電性高且對有機溶劑之溶解性亦高，而適宜作為電化學裝置之電解液。

電化學裝置可例示如雙重電解電容、二次電池、色素增感型太陽電池、電致變色元件以及電容器等，但並不限於該等。特別適宜之電化學裝置則為雙重電解電容及二次電池。

發明之效果

本發明之四級銨鹽因熔點係於10°C以下，於室溫(25°C)

下可維持本身液狀形態。此外，本發明之四級銨鹽對有機溶劑之溶解性特別優異，並具有高導電性。

室溫(25℃)下係顯示本身液狀之本發明四級銨鹽可直接作電解液使用。該電解液即使於低溫下使用亦無電解質析出，可表現安定之導電性。此外，因該四級銨鹽可直接作電解液使用，而可使電解液之離子濃度提高，進而表現出高導電性。

對有機溶劑之溶解性優異之本發明四級銨鹽於將其溶於有機溶劑以作電解液時，即使於低溫時使用，亦不致由電解液中析出本發明之四級銨鹽，而無電解液導電性降低之虞。

本發明之四級銨鹽因低黏度而流動性甚佳，因此，亦適宜用作為要求浸透性而使用多孔性電極的電性裝置之電解液。

15 圖式簡單說明

第1圖為一截面圖，係用以顯示本發明實施例10所製成之雙重電解電容之部分截面者。

第2圖為一截面圖，係用以顯示本發明實施例12所製成之鋰二次電池之部分截面者。

20 第3圖為一圖表，係用以顯示本發明之實施例6、實施例7及比較例3所製得之各種濃度之混合溶液的導電度者。

【實施方式】

本發明之最佳實施形態

茲列舉實施例於下以便更詳盡地說明本發明，但本發

明之範圍並不限定於該等實施例。

實施例1

雙(甲氧基甲基)二甲基銨四氟硼酸鹽之合成

將二甲基甲氧基甲基胺30.0g溶解於120g甲苯中，進行
 5 氯取代。於5°C下費一小時將氯甲基甲基醚(試劑：東京化成製)16.3g滴定至前述溶液中。再於5°C下攪拌該溶液10小時，使反應結束。取分離成2層中之下層分液，使用150g甲苯反覆洗淨3次，更使用150g之甲基乙基酮反覆洗淨3次後，減壓乾燥而製得25.0g之二甲基二甲氧基甲基銨氯化物
 10 (無色液體)。

其次，將所得二甲基二甲氧基甲基銨氯化物溶解於甲醇50g中，並添加30% HBF_4 之甲醇溶液45.3g。於減壓下除去氯化氫及過剩之 HBF_4 ，而製得標記目的物(無色液體)31.9g。

15 $^1\text{H-NMR}(\text{d-CH}_3\text{OH}) \delta \text{ ppm} :$

2.98(s, 6H), 3.65(s, 6H), 4.59(s, 4H)。

使用理學社製之示差熱分析計(RIGAKU、DSC8230B)，測定前述製得之四級銨鹽(雙(甲氧基甲基)二甲基銨四氟硼酸鹽)之熔點。具體言之，令樣本重量為
 20 20mg，以液體氮急速冷卻至-150°C後，以5°C/分之比例昇溫。熔點係由基線(base line)接線與峰值梯度之接線的交點求得。實施例1所得四級銨鹽之熔點為4°C。

實施例2

雙(甲氧基甲基)吡咯烷鎗雙三氟甲磺醯基鎗亞胺之合成

將甲氧基甲基吡咯啉30.0g及雙三氟甲磺醯基醯亞胺
 鋰89.9g溶解於300g二氯甲烷溶解中，進行氮取代。於5℃
 下費一小時將氯甲基甲基醚(試劑：東京化成製)21.0g滴定
 至前述溶液中。使該溶液之溫度徐徐昇溫，並於室溫下攪
 5 拌4小時使反應結束。於反應液中添加水200ml，取出下層
 分液。再用50ml之水將所得有機層反覆洗淨10次。將有機
 層濃縮並減壓乾燥，而製得標記目的物(無色液體)97.6g。

$^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3) \delta \text{ ppm} :$

2.17(m, 4H), 3.47(m, 4H), 3.60(s, 6H), 4.53(s, 4H)。

10 以與實施例1相同之方法測定前述製得之四級銨鹽(雙
 (甲氧基甲基)吡咯烷鎧雙三氟甲磺醯基醯亞胺)之熔點。無
 法明確求得實施例2製得之四級銨鹽熔點。玻璃轉移溫度
 (Tg)為-90℃。

比較例1

15 依WO 02/076924A1合成出N-(甲氧基乙基)-N-甲基吡
 咯烷鎧四氟硼酸鹽。

即，於高壓釜中加入吡咯啉68.77g及2-甲氧基乙基氯化
 物88.02g，於90℃下進行24小時反應。反應結束後，加入
 溶解有氫氧化鉀56g之水溶液200ml，並分離抽提有機層。

20 以二氯甲烷100ml抽提水層(反覆進行2次：合計200ml)並以
 飽和食鹽水洗淨。使有機層於無水碳酸鉀上乾燥。過濾有
 機層，並減壓餾除二氯甲烷後，蒸餾處理殘渣，而離析出
 N-(甲氧基乙基)吡咯啉24.02g。

將所得N-(甲氧基乙基)吡咯啉10.00g溶解於四氫呋喃

12ml，並於0°C下加入甲基碘11.22g。使其緩緩昇溫，於室溫下進行24小時反應。反應結束後，減壓餾除四氫呋喃，並以四氫呋喃/乙醇系之混合溶劑使殘渣再結晶，而製得N-(甲氧基乙基)-N-甲基吡咯烷鎗碘化物17.22g。

- 5 將N-(甲氧基乙基)-N-甲基吡咯烷鎗碘化物10.00溶解於超純水67ml，再加入氧化銀4.27g攪拌3小時。於過濾反應液以完全除去沉澱物後，緩緩地逐步少量添加42%四氟硼酸至pH為5~6為止。使反應溶液凍結乾燥後更減壓乾燥之，而製得目的物之N-(甲氧基乙基)-N-甲基吡咯烷鎗四氟
10 硼酸鹽8.26g。

以與實施例1相同之方法測定前述製得之N-(甲氧基乙基)-N-甲基吡咯烷鎗四氟硼酸鹽的熔點。熔點為15°C。

比較例2

- 依 WO 02/076924A1(專利文獻1)合成N-(甲氧基乙
15 基)-N,N-二乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽。

- 於高壓釜中加入二乙基胺35.35g及2-甲氧基乙基氯化物43.99g，以100°C反應24小時。反應結束後，加入溶有氫
氧化鉀56g之水溶液100ml，再分離抽提出有機層。以二氯
甲烷50ml抽提水層(反覆進行2次：合計100ml)，再以飽和
20 食鹽水洗淨。使有機層於無水碳酸鉀上乾燥。過濾有機層再減壓餾除二氯甲烷後，蒸餾處理殘渣，而製得2-甲氧基
乙基二乙基胺9.20g。

將N-(甲氧基乙基)-N,N-二乙基-N-甲基銨9.20g溶解於四氫呋喃11ml中，於0°C下加入甲基碘10.18g。使其緩緩昇

溫，於室溫下進行24小時反應。反應結束後減壓餾除四氫呋喃，並以、四氫呋喃/乙醇系之混合溶劑使殘渣再結晶，而製得N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基-N-甲基銨碘化物17.52g。

- 5 將N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基-N-甲基銨碘化物10.00g溶解於超純水67ml中，再加入氧化銀4.25g攪拌3小時。過濾反應液而完全除去沉澱物後，緩緩地逐步少量添加42%四氟硼酸至pH為5~6為止。使反應溶液凍結乾燥後更減壓乾燥之，而製得目的物之N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基
- 10 -N-甲基銨四氟硼酸鹽8.20g。

以與實施例1相同之方法測定前述製得之N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽之熔點。熔點為8°C。

實施例3

雙(甲氧基甲基)二甲基銨雙三氟甲磺醯基醯亞胺之合成

- 15 於N-(甲氧基甲基)-N, N-二甲基胺108.7g中添加鋰雙三氟甲磺醯基醯亞胺(試劑：ALDRICH製)31.4g，並冷卻至5°C。再將氯甲基甲基醚(試劑：東京化成製)7.8g滴定至前述溶液中。令反應溫度於10°C以下。滴定結束後緩緩升溫，以室溫反應16小時。反應結束後濃縮，並以真空泵乾燥。
- 20 以二氯甲烷500g/水500g進行抽提。再以300g水洗淨有機層4次並濃縮後，減壓乾燥而製得目的物30.2g。

$^1\text{H-NMR}(\text{d-CH}_3\text{OH}) \delta \text{ ppm} :$

2.98(s, 6H), 3.65(s, 6H), 4.59(s, 4H)。

以與實施例1相同之方法測定前述製得之雙(甲氧基甲

基)二甲基銨雙三氟甲磺酸鹽基鹽亞胺之熔點。

合成例1

N-乙氧基甲基吡咯啉之合成

- 準備對甲醛(試劑：MERK社製)101.2g、碳酸鉀(試劑：和光純藥製)234.0g及乙醇(試劑：和光純藥製)971.3g，以10℃以下滴定吡咯啉(試劑：東京化成工業製)300.0g。滴定需時2小時。滴定結束後，使混合物於回流下反應7小時。餾除乙醇，將殘渣減壓蒸餾(70mmHg)，而製得148.4g之乙氧基甲基吡咯啉。

10 $^1\text{H-NMR}(\text{CDCl}_3)$ δ ppm :

1.17(t 3H), 1.75(m 4H), 2.73(m 4H), 3.49(q 2H), 4.16(s 2H)。

合成例2

N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗過氯酸鹽之合成

- 於合成例1中製得之N-乙氧基甲基吡咯啉147.9g中添加過氯酸鈉(試劑：和光純藥製)59.18g，並冷卻至5℃。再費一小時將氯甲基甲基醚(試劑：東京化成製)36.93g滴定於前述溶液中。令反應溫度於10℃以下。滴定結束後，使反應混合物緩緩昇溫，於室溫下反應12小時。於反應結束後，過濾並以乙醇100ml洗淨。濃縮後，以二氯甲烷/水抽提。以少量水洗淨有機層3次並將其濃縮。使濃縮物溶解於乙醇中溶解，於-50℃下再結晶。再結晶係反覆進行5次。使所得結晶減壓乾燥，而製得目的物83.0g。

$^1\text{H-NMR}(\text{d-CH}_3\text{OH})$ δ ppm :

1.28(t 3H), 2.16(m 4H), 3.49(m 4H), 3.62(s 3H), 3.84(q 2H),

4.61(s 2H), 4.66(s 2H)。

實施例4

N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽之合成

- 5 將合成例2製得之N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗過氯酸鹽30.0g溶解於甲基醇250ml中，並通過離子交換樹脂(使三菱化學製DIAION WA30之陰離子與四氟硼酸鹽交換)500ml。陰離子交換之確認係以離子色層儀(TOSOH CM-8020)進行。確認陰離子交換後，將甲基醇溶
- 10 液濃縮，並減壓乾燥後製得目的物26.1g。

$^1\text{H-NMR}(\text{d-CH}_3\text{OH}) \delta \text{ ppm} :$

1.28(t 3H), 2.15(m 4H), 3.48(m 4H), 3.62(s 3H), 3.84(q 2H), 4.60(s 2H), 4.65(s 2H)。

- 以與實施例1相同之方法測定前述製得之N-(乙氧基甲
- 15 基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽之熔點。

實施例5

N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗雙三氟甲磺醯基醯亞胺之合成

- 於合成例1製造之N-乙氧基甲基吡咯啉50.0g中添加鋰
- 20 雙三氟甲磺醯基醯亞胺(試藥：ALDRICH製)48.9g，再冷卻至5°C。費一小時將氯甲基甲基醚(試劑：東京化成製)12.5g滴定至前述溶液中。令反應溫度於10°C以下。滴定結束後，使反應混合物緩緩昇溫，於室溫下反應5小時。於反應結束後，濃縮反應混合物並以真空泵使其乾燥，再以二氯甲烷

1300g/水1000g抽提。以1000g水洗淨有機層4次，再濃縮、減壓乾燥，而製得目的物65.9g。

$^1\text{H-NMR}(\text{d-CH}_3\text{OH}) \delta \text{ ppm} :$

1.28(t 3H), 2.15(m 4H), 3.46(m 4H), 3.62(s 3H), 3.83(q 2H),
5 4.59(s 2H), 4.64(s 2H)。

以與實施例1相同之方法測定前述製得之N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗雙三氟甲磺醯基醯亞胺之熔點。

試驗例1

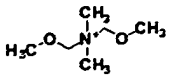
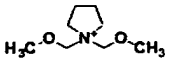
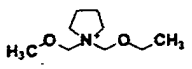
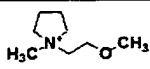
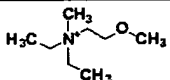
10 針對實施例1~5、比較例1及比較例2所得四級銨鹽測定導電性。

導電性之測定係使用Radiometer社製之導電性測定儀。測定電池則使用Radiometer社製之CDC641T並於25℃下進行。

15 此外，測定實施例1~5、比較例1及比較例2所得四級銨鹽之黏度。黏度測定係使用振動式製黏度計(VM-1G CBC馬特利阿爾茲株式會社製)，並於25℃下進行。

茲將該等結果示於表1。

表 1

	四級銨鹽	陰離子	熔點 (℃)	導電性 (mS/cm)	黏度 (mPa·s)
實施例1		BF ₄ ⁻	4	6.2	96
實施例3		TFSI ⁻	8	4.8	56
實施例2		TFSI ⁻	-90(Tg)	5.4	54
實施例4		BF ₄ ⁻	-11	5.8	74
實施例5		TFSI ⁻	-90(Tg)	4.9	40
比較例1		BF ₄ ⁻	15	2.8	258
比較例2		BF ₄ ⁻	8	1.2	645

實施例6

將實施例4製造之N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽與碳酸丙烯酯(PC)(試劑：KISHIDA化學株式會社製、鋰電池級)等在露點-60℃以下之氮氛圍乾燥箱內混合成各種濃度。以卡氏水份測定儀(平沼產業株式會社製，平沼微量水分測定裝置AQ-7)測定混合後之溶液水分，確認其等係於30ppm以下。混合溶液中之N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽之濃度係如表2所示。

將各種濃度之混合混合溶液於乾燥箱內逐次以4ml之量移至附有螺旋栓之玻璃容器中，再取出至乾燥箱外。將裝有各種溶液之玻璃容器浸漬到恒溫槽中，並各保持於25

°C 下 5 小時。

實施例 7

將實施例 1 製造之雙(甲氧基甲基)二甲基銨四氟硼酸鹽與碳酸丙烯酯(PC)(試藥：KISHIDA 化學株式會社製，鋰電池級)置於露點為 -60°C 以下之氮氬圍乾燥箱內混合成各種濃度。以卡氏水份測定儀(平沼產業株式會社製，平沼微量水分測定裝置 AQ-7)測定混合後之溶液水分，確認其等係於 30ppm 以下。混合溶液中之雙(甲氧基甲基)二甲基銨四氟硼酸鹽濃度係如表 3 所示。

10 將各種濃度之混合混合溶液於乾燥箱內逐次以 4ml 之量移至附有螺旋栓之玻璃容器中，再取出至乾燥箱外。將裝有各種溶液之玻璃容器浸漬到恒溫槽中，並各保持於 25°C 下 5 小時。

比較例 3

15 將比較例 2 製造之 N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽與碳酸丙烯酯(PC)(KISHIDA 化學株式會社製，鋰電池級)置於露點為 -60°C 以下之氮氬圍乾燥箱內混合成各種濃度。以卡氏水份測定儀(平沼產業株式會社製，平沼微量水分測定裝置 AQ-7)測定混合後之溶液水分，確認
20 其等係於 30ppm 以下。混合溶液中之 N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽之濃度係如表 4 所示。

將各種濃度之混合混合溶液於乾燥箱內逐次以 4ml 之量移至附有螺旋栓之玻璃容器中，再取出至乾燥箱外。將裝有各種溶液之玻璃容器浸漬到恒溫槽中，並各保持於 25

℃下5小時。

< 導電性測定 >

觀察各種溶液之混合狀態後，再次由乾燥箱內取出各種溶液，並測定導電性。導電性之測定係使用導電率計 (CDM210 Radiometer 社製)。測定電池係使用 XE-100(Radiometer社製)。結果係示於表2、表3、表4及第3圖。

表 2

N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基)吡咯啶鎢四氟硼酸鹽 濃度(M)	導電性 (mS/cm)
0.5	8.1
1	12.4
1.5	14.1
2	14.6
2.5	13.3
3	12.4

表 3

雙(甲氧基甲基)二甲基銨四氟硼酸鹽 濃度(M)	導電性 (mS/cm)
0.5	8.8
1	12.7
1.5	13.9
2	14.3
2.5	13.6
3	11.9

表 4

N-(甲氧基乙基)-N-二乙 基-N-甲基銨四氟硼酸 鹽 濃度(M)	導電性 (mS/cm)
0.6	8.5
1.1	11.8
1.7	12.6
2.2	12.0
2.8	10.4
3.3	8.5

實施例 8

將實施例 4 製造之 N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎰四氟硼酸鹽與乙基甲基碳酸酯 (EMC)(試劑：
5 KISHIDA 化學株式會社製，鋰電池級)置於露點為 -60℃ 以下之氮氛圍乾燥箱內混合成各種濃度。以卡氏水份測定儀(平沼產業株式會社製，平沼微量水分測定裝置 AQ-7)測定混合後之溶液水分，確認其等係於 30ppm 以下。混合溶液中之 N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎰四氟硼酸鹽濃度

10 係如表 5 所示。

將各種濃度之混合混合溶液於乾燥箱內逐次以 4ml 之量移至附有螺旋栓之玻璃容器中，再取出至乾燥箱外。將裝有各種溶液之玻璃容器浸漬到恒溫槽中，並各保持於 25℃ 下 5 小時。

15 比較例 4

將比較例 2 製造之 N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽與乙基甲基碳酸酯 (EMC)(試劑：KISHIDA 化學株式會社製，鋰電池級)置於露點為 -60℃ 以下之氮氛圍乾燥箱內混合成各種濃度。以卡氏水份測定儀(平沼產業株

式會社製，平沼微量水分測定裝置AQ-7)測定混合後之溶液水分，確認其等係於30ppm以下。混合溶液中之N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基-N-甲基銨四氟硼酸鹽濃度係如表6所示。

5 比較例5

將比較例1製造之N-(甲氧基乙基)-N-甲基吡咯烷鎧四氟硼酸鹽與乙基甲基碳酸酯(EMC)(試劑：KISHIDA化學株式會社製，鋰電池級)置於露點為-60℃以下之氮氬圍乾燥箱內混合成各種濃度。以卡氏水份測定儀(平沼產業株式會社製，平沼微量水分測定裝置AQ-7)測定混合後之溶液水分，
10 確認其等係於30ppm以下。混合溶液中之N-(甲氧基乙基)-N-甲基吡咯烷鎧四氟硼酸鹽濃度係如表7所示。

將各種濃度之混合混合溶液於乾燥箱內逐次以4ml之量移至附有螺旋栓之玻璃容器中，再取出至乾燥箱外。將
15 裝有各種溶液之玻璃容器浸漬到恒溫槽中，並各保持於25℃下5小時。

<導電性測定>

觀察各種溶液之混合狀態，並與前述相同地針對未分離之溶液狀態混合物作到導電性測定。結果係示於表5~7。

表 5

N-(乙氧基乙基)-N-(甲 氧基甲基)吡咯啶鎧四 氟硼酸鹽 濃度(M)	導電性 (mS/cm)
20	—
40	7.6
60	10.6
80	9.0
100	5.8

—：二層分離狀態

表 6

N-(乙氧基乙基)-N, N- 二乙基-N-甲基鎧四氟 硼酸鹽 濃度(M)	導電性 (mS/cm)
20	—
40	—
60	8.1
80	4.7
100	1.2

表 7

N-(甲氧基乙基)-N-甲基 吡咯啶鎧四氟硼酸鹽 濃度(w%)	導電性 (mS/cm)
20	—
40	—
60	—
80	6.6
100	2.8

5 實施例9

於實施例5所得N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯
烷鎧雙(三氟甲磺醯基)醯亞胺中混合鋰雙(三氟甲磺醯基)
醯亞胺(LiTFSI)至0.5M或1.0M濃度，並於露點為-60℃以下
之氮氛圍乾燥箱內混合。以卡氏水份測定儀(平沼產業株式
10 會社製，平沼微量水分測定裝置AQ-7)測定混合後之溶液水

分，確認係於30ppm以下。

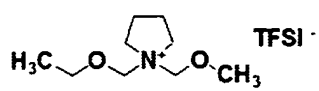
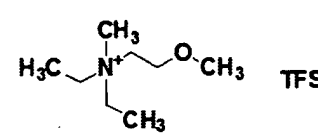
比較例6

將N-(甲氧基乙基)-N, N-二乙基-N-甲基銨雙(三氟甲磺
醯基)鹽亞胺(試劑：關東化學社製，材料研究用)減壓乾燥
5 後(水分量20ppm以下)，添加鋰雙(三氟甲磺醯基)鹽亞胺
(LiTFSI)至0.5M或1.0M之濃度，並於露點為-60℃以下之氮
氛圍乾燥箱內混合。以卡氏水份測定儀(平沼產業株式會社
製，平沼微量水分測定裝置AQ-7)測定混合後之溶液水分，
確認係於30ppm以下。

10 <導電性測定>

觀察各種溶液之混合狀態後，再次由乾燥箱內取出溶
液，並與前述者相同地測定導電性。結果示於表8。

表 8

				
LiTFSI	0.5M	1.0M	0.5M	1.0M
導電性 (mS/cm)	3.0	1.1	1.3	0.6
黏度 (mPa·s)	86	235	220	590

15 實施例10(雙重電解電容之製作)

使用實施例6製造之混合溶液(電解液)中N-(乙氧基甲
基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎗四氟硼酸鹽濃度2M的混合
溶，製作下述之雙重電解電容。

將以活性碳為主成分之電導性物質、結合劑、N-甲基

吡咯烷酮一起混合攪拌而製得之糊以150 μ m厚度塗佈於鋁箔後，使其乾燥獲得片狀電極，再將其切成圓板狀即為電極1及電極2。

容器體4、容器體5、間隔件7、彈簧8均為不鏽鋼製，
5 而隔離件3為聚丙烯不織布。

雙重電解電容之組裝係於充滿氫氣之球形箱內進行。將電極1、電極2、容器體4、容器體5、彈簧8及間隔件7以120 $^{\circ}$ C加熱下真空乾燥24小時後，置入球形箱內。將電極1、電極2及隔離件3浸漬於實施例6所得混合溶液(雙重電解電
10 容用電解液)中。如第1圖所示結構般，於容器體4上依序載置電極1、隔離件3、電極2、間隔件7及彈簧8，再插入墊片6，並於該等之上載乘容器體5。使容器體4之開口部分向內方折曲後再封口，而製作出雙重電解電容。

將前述製作之鈕型雙重電解電容安裝於專用之固定器
15 後，使雙重電解電容開始充放電。以電流密度為2.0mA之固定電流進行充電，於電壓達2.5V時切換為定電壓充電。以2.5V維持120分後，進行2.0mA之固定電流放電，於電壓達0V時切換為低電壓放電，以0V維持120分鐘，藉此調查充放電特性。結果，實施例10製作出之本發明雙重電解電容
20 顯示了良好之充放電特性。

實施例11(鋰二次電池電解液之調製)

使用實施例5製造之N-(乙氧基甲基)-N-(甲氧基甲基)吡咯烷鎘雙(三氟甲磺基)鹽亞胺5wt%及作鋰鹽之鋰雙三氟甲磺基鹽亞胺(LiTFSI)0.5M，並以碳酸亞乙烯酯

(VC)5wt%作非水溶劑，其餘部分則使用碳酸乙烯酯(EC)/乙基甲基碳酸酯(EMC)=1/3(V/V)，調製出非水電解液。

實施例12(鋰二次電池之製作)

製作第2圖所示之鈕型非水電解液鋰二次電池。於第2
5 圖中、11為正極、12為負極、13為多孔質隔離件、14為正極罐、15為負極罐、16為墊片、17為間隔件、18為彈簧。

以如下順序製作出第2圖所示非水電解液鋰二次電池。
負極12之製作：

以9：1之重量比混合天然石墨與黏合劑之聚偏氟乙烯
10 (PVdF)，於其中加入N-甲基吡咯烷酮而製得糊。使用電極塗佈用塗佈機將該糊平均塗佈於厚度22 μ m之銅箔上。將其以120 $^{\circ}$ C作8小時真空乾燥，再以電極沖切機製得直徑16mm之負極12。

正極11之製作：

15 將LiCoO₂粉末與導電助劑之乙炔碳黑與黏合劑之PVdF以90：5：5之重量比混合，並於該混合物中添加N-甲基吡咯烷酮而取得糊。將該糊以120 $^{\circ}$ C作8小時真空乾燥，再以電極沖切機製得直徑16mm之正極11。

將正極11載於正極罐14之底面，於其上載置多孔質隔
20 離件13後，注入實施例11調製之非水電解液，再插入墊片16。其後，於隔離件13上依序載置負極12、間隔件17、彈簧18及負極罐15，並使用鈕形電池嵌合機(coin crimper machine)，使正極罐14之開口部分向內方折曲而封口，製出非水電解液鋰二次電池。

(VC)5wt%作非水溶劑，其餘部分則使用碳酸乙烯酯(EC)/乙基甲基碳酸酯(EMC)=1/3(V/V)，調製出非水電解液。

實施例12(鋰二次電池之製作)

製作第2圖所示之鈕型非水電解液鋰二次電池。於第2
5 圖中、11為正極、12為負極、13為多孔質隔離件、14為正極罐、15為負極罐、16為墊片、17為間隔件、18為彈簧。

以如下順序製作出第2圖所示非水電解液鋰二次電池。
負極12之製作：

以9：1之重量比混合天然石墨與黏合劑之聚偏氟乙烯
10 (PVdF)，於其中加入N-甲基吡咯烷酮而製得糊。使用電極塗佈用塗佈機將該糊平均塗佈於厚度22 μ m之銅箔上。將其以120 $^{\circ}$ C作8小時真空乾燥，再以電極沖切機製得直徑16mm之負極12。

正極11之製作：

15 將LiCoO₂粉末與導電助劑之乙炔碳黑與黏合劑之PVdF以90：5：5之重量比混合，並於該混合物中添加N-甲基吡咯烷酮而取得糊。將該糊以120 $^{\circ}$ C作8小時真空乾燥，再以電極沖切機製得直徑16mm之正極11。

將正極11載於正極罐14之底面，於其上載置多孔質隔
20 離件13後，注入實施例11調製之非水電解液，再插入墊片16。其後，於隔離件13上依序載置負極12、間隔件17、彈簧18及負極罐15，並使用鈕形電池嵌合機(coin crimper machine)，使正極罐14之開口部分向內方折曲而封口，製出非水電解液鋰二次電池。

如下述般評估前述製作之電池。充電係以0.4mA之固定電流進行，於電壓達4.1V時以4.1V進行1小時之定電壓充電。放電係以1.0mA之固定電流進行，放電至電壓為3V為止。電壓到達3V時以3V維持1小時，再調查充放電特性。

- 5 結果，實施例11製作之本發明二次電池顯示有良好之循環特性。

【圖式簡單說明】

第1圖為一截面圖，係用以顯示本發明實施例10所製成之雙重電解電容之部分截面者。

- 10 第2圖為一截面圖，係用以顯示本發明實施例12所製成之鋰二次電池之部分截面者。

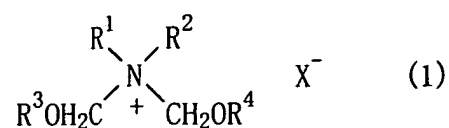
第3圖為一圖表，係用以顯示本發明之實施例6、實施例7及比較例3所製得之各種濃度之混合溶液的導電度者。

【主要元件符號說明】

1...電極	11...正極
2...電極	12...負極
3...隔離件	13...多孔質隔離件
4...容器體	14...正極罐
5...容器體	15...負極罐
6...墊片	16...墊片
7...間隔件	17...間隔片
8...彈簧	18..彈簧

五、中文發明摘要：

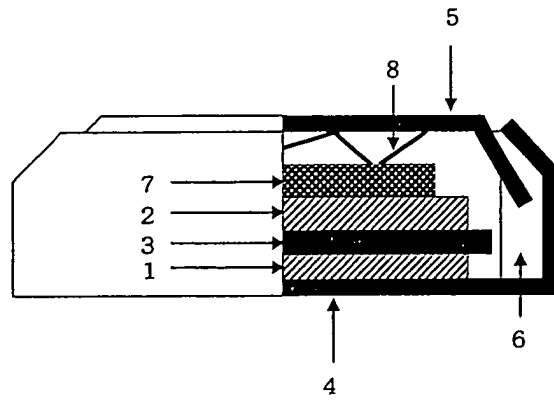
本發明之第四級銨鹽係以通式(1)表示者。



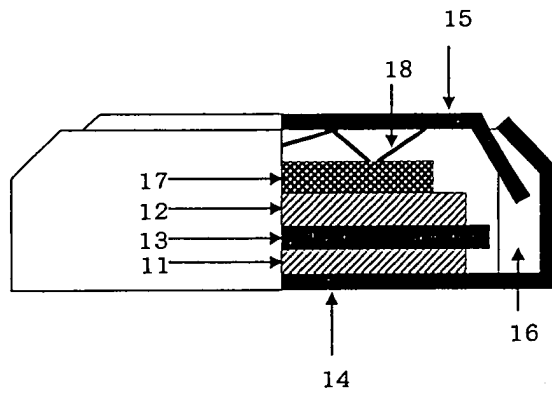
式中、 R^1 及 R^2 為相同或相異之 C_{1-4} 烷基。此外， R^1 及 R^2 可與該等將結合之氮原子相互結合而共同形成飽和雜環。 R^3 及 R^4 為相同或相異之甲基或乙基。 X^- 為陰離子。本發明之四級銨鹽具有 10°C 以下之熔點，對非水系有機溶劑之溶解性優異，且具有特別高之導電度，而可適宜作為電解質。

六、英文發明摘要：

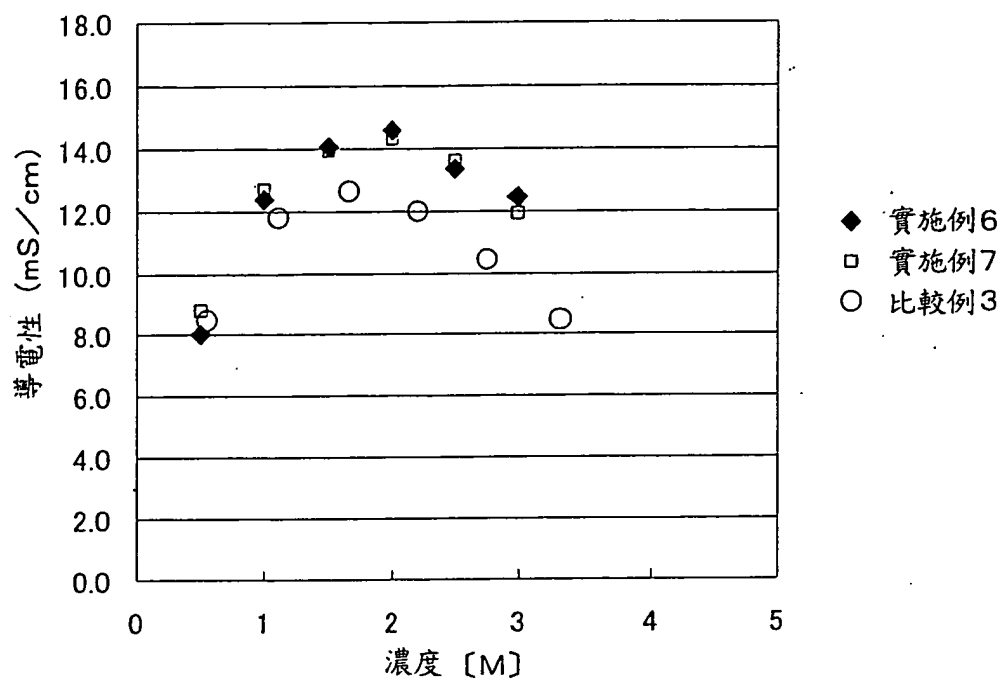
第 1 圖



第 2 圖



第 3 圖



七、指定代表圖：

(一)本案指定代表圖為：第 (1) 圖。

(二)本代表圖之元件符號簡單說明：

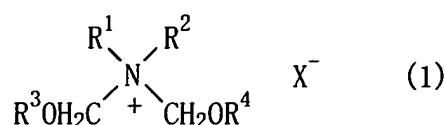
- 1...電極
- 2...電極
- 3...隔離件
- 4...容器體
- 5...容器體
- 6...墊片
- 7...間隔件
- 8...彈簧

八、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：

(無)

十、申請專利範圍：

1. 一種四級銨鹽，係以通式(1)表示者；



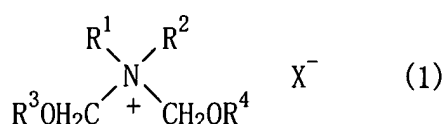
式 中、 R^1 及 R^2 相同或相異，表示 C_{1-4} 烷基；且 R^1 及 R^2 亦可與其等所結合之氮原子相互結合而共同形成 3~5 員之飽和雜環； R^3 及 R^4 相同或相異，表示甲基或乙基； X^- 表示 BF_4^- 、 AlCl_4^- 、 Al_2Cl_7^- 、 PF_6^- 、 AsF_6^- 、 $\text{N}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2^-$ 、 $\text{N}(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2^-$ 、 $\text{C}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3^-$ 、 $\text{N}(\text{CF}_3\text{SO}_2)(\text{CF}_3\text{CO})^-$ 、 CF_3SO_3^- 、 CH_3SO_3^- 、 CH_3CO_2^- 、 CF_3COO^- 、 NO_3^- 、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{COO}^-$ 、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{SO}_3^-$ 、 CF_3BF_3^- 、 $\text{C}_2\text{F}_5\text{BF}_3^-$ 或 I^- 。

2. 如申請專利範圍第 1 項之四級銨鹽，其中 R^1 及 R^2 與所結合之氮原子相互結合而共同形成之 3~5 員之飽和雜環為吡咯啉環。

3. 如申請專利範圍第 1 項之四級銨鹽，其中 R^1 及 R^2 均為甲基。

4. 如申請專利範圍第 1 項之四級銨鹽，其中 X^- 為 BF_4^- 或 $\text{N}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2^-$ 。

5. 一種由四級銨鹽構成之電解質，該四級銨鹽係以通式(1)表示者；



式 中、 R^1 及 R^2 相同或相異，表示 C_{1-4} 烷基；且 R^1 及 R^2 亦可與該等所結合之氮原子相互結合而共同形成 3~5

- 員之飽和雜環； R^3 及 R^4 相同或相異，表示甲基或乙基； X^- 表示 BF_4^- 、 $AlCl_4^-$ 、 $Al_2Cl_7^-$ 、 PF_6^- 、 AsF_6^- 、 $N(CF_3SO_2)_2^-$ 、 $N(CF_3CF_2SO_2)_2^-$ 、 $C(CF_3SO_2)_3^-$ 、 $N(CF_3SO_2)(CF_3CO)^-$ 、 $CF_3SO_3^-$ 、 $CH_3SO_3^-$ 、 $CH_3CO_2^-$ 、 CF_3COO^- 、 NO_3^- 、 $C_6H_5COO^-$ 、 $C_6H_5SO_3^-$ 、 $CF_3BF_3^-$ 、 $C_2F_5BF_3^-$ 或 I^- 。
- 5 $C_6H_5COO^-$ 、 $C_6H_5SO_3^-$ 、 $CF_3BF_3^-$ 、 $C_2F_5BF_3^-$ 或 I^- 。
6. 如申請專利範圍第5項之電解質，其係由四級銨鹽所構成者；其中 R^1 及 R^2 與所結合之氮原子相互結合而共同形成之3~5員之飽和雜環為吡咯啉環。
7. 如申請專利範圍第5項之電解質，其係由四級銨鹽所構成者；其中 R^1 及 R^2 均為甲基。
- 10 成者；其中 R^1 及 R^2 均為甲基。
8. 如申請專利範圍第5項之電解質，其係由四級銨鹽所構成者；其中 X^- 為 BF_4^- 或 $N(CF_3SO_2)_2^-$ 。
9. 一種電解液，含有如申請專利範圍第5~8項中任一項之一種或2種以上的電解質者。
- 15 10. 如申請專利範圍第9項之電解液，其含有如申請專利範圍第5~8項中任一項之至少一種電解質以及有機溶劑。
11. 如申請專利範圍第10項之電解液，其中有機溶劑係選自於由環狀碳酸酯、鏈狀碳酸酯、腈化合物及碲化合物所構成群中之至少一種。
- 20 12. 如申請專利範圍第11項之電解液，其中有機溶劑係選自於由碳酸丙烯酯、碳酸乙烯酯、乙基甲基碳酸酯及碳酸二甲酯所構成群中之至少一種。
13. 一種電化學裝置，係含有如申請專利範圍第9項之電解液者。

14. 如申請專利範圍第 13 項之電化學裝置，其係雙重電解電容或二次電池。