



(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公開本

(11)公開編號：TW 201618360 A

(43)公開日：中華民國 105 (2016) 年 05 月 16 日

(21)申請案號：103139416

(22)申請日：中華民國 103 (2014) 年 11 月 13 日

(51)Int. Cl.：

*H01M4/62 (2006.01)**H01M4/36 (2006.01)**H01M4/139 (2010.01)**H01M4/13 (2010.01)**H01M10/052 (2010.01)*

(71)申請人：光宇材料股份有限公司 (中華民國) GET GREEN ENERGY CORP., LTD (TW)

臺中市梧棲區自立路 39 號

李 敬華 (美國) LI, CHING HUA (US)

臺中市梧棲區自立路 39 號

(72)發明人：邱國峰 CHIU, KUO FENG (TW)；賴柏年 (TW)；劉信利 (TW)；李軍翰 (TW)

(74)代理人：惲軼群；陳文郎

申請實體審查：有 申請專利範圍項數：15 項 圖式數：4 共 21 頁

(54)名稱

適用於鋰電池的電極材料、其製造方法，及適用於鋰電池的電極

(57)摘要

一種適用於鋰電池的電極材料，包含複數個活性顆粒；及一離子型披覆層，披覆於該等活性顆粒表面；其中，該離子型披覆層包括經官能基接枝的聚芳基醚酮，及複數個與該經官能基接枝的聚芳基醚酮不規則地彼此穿插交疊的石墨烯。該電極材料的製造方法包含將一經官能基接枝的聚芳基醚酮固體物溶解於一溶劑中，形成一經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液；將複數個活性顆粒及石墨烯加入該經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液而形成一混合物漿料；將該混合物漿料乾燥，形成該電極材料。

指定代表圖：



圖1

201618360

發明摘要

103139416

※ 申請案號：

※ 申請日： 103. 11.1 3

※IPC 分類：

H01M4/62(2006.01)
H01M4/36(2006.01)
H01M4/139(2010.01)
H01M4/13(2010.01)
H01M10/052(2010.01)

【發明名稱】 適用於鋰電池的電極材料、其製造方法，及適用於鋰電池的電極

【中文】

一種適用於鋰電池的電極材料，包含複數個活性顆粒；及一離子型披覆層，披覆於該等活性顆粒表面；其中，該離子型披覆層包括經官能基接枝的聚芳基醚酮，及複數個與該經官能基接枝的聚芳基醚酮不規則地彼此穿插交疊的石墨烯。該電極材料的製造方法包含將一經官能基接枝的聚芳基醚酮固體物溶解於一溶劑中，形成一經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液；將複數個活性顆粒及石墨烯加入該經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液而形成一混合物漿料；將該混合物漿料乾燥，形成該電極材料。

【英文】

【代表圖】

【本案指定代表圖】：圖（ 1 ）。

【本代表圖之元件符號簡單說明】：

無

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：

無

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】 適用於鋰電池的電極材料、其製造方法，及適用於鋰電池的電極

【技術領域】

【0001】 本發明是有關於一種適用於鋰電池的電極材料及其製造方法，特別是指一種含有離子型披覆層的電極材料及其製造方法。

【先前技術】

【0002】 石墨烯目前是世上最薄卻也是最堅硬的奈米材料，具有高達 5300 W/m·K 的導熱係數，而電阻率只約 $10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$ ，因此被期待可用來發展出更新一代的電極材料。

【0003】 由於石墨烯分散性不佳、易於團聚的特性，目前含有石墨烯的電極材料 1 或超級電容包含具導電性的活性物質、導電材料及添加劑，該添加劑包括黏著劑及分散劑，其中該分散劑例如十二烷基苯磺酸鈉(sodium dodecyl benzene sulfonate，SDBS)、十二烷基硫酸鈉(sodium dodecyl sulfate，SDS)等。但添加該分散劑的電極材料導電性及電化學活性較差，當實際用於電池時，在大電流下充放電易有電容量劇烈下降，及操作電壓降低等問題產生。

【發明內容】

【0004】 因此，本發明之第一目的，即在提供一種適用

於鋰電池的電極材料。

【0005】 於是本發明適用於鋰電池的電極材料，包含：

複數個活性顆粒；及

一離子型披覆層，披覆於該等活性顆粒表面；

其中，該離子型披覆層包括經官能基接枝的聚芳基醚酮，及複數個與該經官能基接枝的聚芳基醚酮不規則地彼此穿插交疊的石墨烯。

【0006】 本發明之第二目的，在於提供一種適用於鋰電池的電極材料的製造方法。

【0007】 於是本發明適用於鋰電池的電極材料的製造方法包含：

將一經官能基接枝的聚芳基醚酮固體物溶解於一溶劑中，形成一經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液；

將複數個活性顆粒及石墨烯加入該經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液而形成一混合物漿料；

將該混合物漿料乾燥，形成該適用於鋰電池的電極材料。

【0008】 本發明之第三目的，在於提供一種適用於鋰電池的電極。

【0009】 於是本發明適用於鋰電池的電極，包含：

一基材，及

一形成於該基材上的層狀結構，包含一電極層，該電極層包括如前所述的適用於鋰電池的電極材料及導電材料。

【0010】 本發明之功效在於，透過該電極材料包含離子

型披覆層披覆於該等活性顆粒表面，由於該離子型披覆層能使石墨烯均勻分散不團聚，可以同時取代現有的黏著劑及分散劑，當本發明電極材料作為鋰電池的電極材料時，可以提升電容量、快速充放電，且具有良好的循環穩定性。

【圖式簡單說明】

【0011】 本發明之其他的特徵及功效，將於參照圖式的實施方式中清楚地呈現，其中：

圖 1 是一 SEM 圖，說明實施例 1 的電極材料；

圖 2 是一電容量-電位關係圖，說明含有實施例 1 及比較例 1 電極材料的鋰電池的放電測試的結果；

圖 3 是一充電放電循環次數-最終電容量關係圖，說明含有實施例 1 及比較例 1 電極材料的鋰電池經充電放電循環測試的結果；及

圖 4 是一充電放電循環次數-電容量維持率關係圖，說明含有實施例 1 及比較例 1 電極材料的鋰電池的比較例 1 經充電放電循環測試的結果。

【實施方式】

【0012】 本發明適用於鋰電池的電極材料，包含：複數個活性顆粒，及一離子型披覆層，披覆於該等活性顆粒表面。其中，該離子型披覆層包括經官能基接枝的聚芳基醚酮，及複數個與該經官能基接枝的聚芳基醚酮不規則地彼此穿插交疊的石墨烯。

【0013】 該經官能基接枝的聚芳基醚酮藉由 π 鍵的交互利用其苯環結構與石墨烯相互吸附，並利用該官能基的靜電斥力達到分散的效果，所以可使石墨烯均勻分散於該經官能基接枝的聚芳基醚酮，有效地克服石墨烯分散性不佳、易於團聚的特性。因此，該離子型披覆層具有分散及黏結該等具導電性的活性顆粒的作用，不但可取代傳統電極材料中的黏著劑、分散劑與導電劑，該離子型披覆層還可以在該電極材料中形成一種具有傳導電子與傳導離子的三維網絡，進而有效地降低該電極材料的內阻。

【0014】 較佳地，該聚芳基醚酮是選自於聚醚酮 [poly ether ketone，簡稱 PEK]、聚醚醚酮 [Polyether ether ketone，簡稱 PEEK]、聚醚酮酮 [Polyetherketoneketone，簡稱 PEKK]、聚(醚醚酮酮) [poly(ether ether ketone ketone)，簡稱 PEEKK]、聚醚酮醚酮酮 [polyetherketoneetherketoneketone，簡稱 PEKEKK]，及前述之一組合。

【0015】 較佳地，該經官能基接枝的聚芳基醚酮是經 SO_3^- 或 NO_3^- 官能基接枝，因此帶有極性且具有離子傳導之功效。

【0016】 較佳地，該經官能基接枝的聚芳基醚酮是經 SO_3^- 接枝的聚醚醚酮。

【0017】 該活性顆粒為具有導電性的活性顆粒。較佳地，當作爲正極材料時，該活性顆粒是選自於 LiCoO_2 、 LiNiO_2 、 LiMn_2O_4 、 LiMnCoO_4 、 $\text{LiCo}_{0.3}\text{Ni}_{0.3}\text{Mn}_{0.3}\text{O}$ 、

LiCoPO_4 、 LiMnCrO_4 、 LiNiVO_4 、 LiMnCrO_4 、 $\text{LiMn}_{1.5}\text{Ni}_{0.5}\text{O}_4$ 、 LiCoVO_4 、 LiFePO_4 ；當作爲負極材料時，該活性顆粒是選自於 Si 、 SiSn_x 、 Sn 、 SnO 、 SnO_2 、 Ge 、 Ga 、前述化合物或元素之衍生物或合金，及前述之一組合。

【0018】較佳地，以該電極材料的總重計，該等活性顆粒的含量範圍爲 80 至 95 wt%，該經官能基接枝的聚芳基醚酮的含量範圍爲 0.5 至 15wt%，及該等石墨烯的含量範圍爲 0.1 至 5 wt%。

【0019】較佳地，該石墨烯的片體厚度爲 0.35 nm 至 10 nm，長度範圍爲 20 至 2000 nm。

【0020】本發明適用於鋰電池的電極材料的製造方法，包含：

將一經官能基接枝的聚芳基醚酮固體物溶解於一溶劑中，形成一經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液；

將複數個活性顆粒及石墨烯加入該經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液而形成一混合物漿料；

將該混合物漿料乾燥，形成該適用於鋰電池的電極材料。

【0021】較佳地，形成該經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液之後，是先將複數個石墨烯加入該經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液而形成一預混漿料，之後將複數個具導電性的活性顆粒加入該預混漿料，形成一混合物漿料。

【0022】較佳地，經官能基接枝的聚芳基醚酮固體物是

經 SO_3^- 或 NO_3^- 官能基接枝的聚芳基醚酮固體物，且該經 SO_3^- 或 NO_3^- 官能基枝的聚芳基醚酮固體物是經由混合一磺化物或硝化物溶液與一聚芳基醚酮，且使該聚芳基醚酮發生官能基接枝，之後再進行固化而獲得。更佳地，該磺化物是硫酸，該硝化物是硝酸。

【0023】 較佳地，以該經官能基接枝的聚芳基醚酮的總重計，該官能基的含量範圍為 5 至 20 wt%。

【0024】 較佳地，以該電極材料的總重計，該等活性顆粒的含量範圍為 80 至 95 wt%，該經官能基接枝的聚芳基醚酮的含量範圍為 2 至 15 wt%，及該等石墨烯的含量範圍為 5 至 0.1 wt%。

【0025】 較佳地，該溶劑是選自於二甲基亞砜 (DMSO)、二甲基甲醯胺 (DMF)，及四氫呋喃 (THF)。

【0026】 較佳地，該聚芳基醚酮是選自於聚醚酮、聚醚醚酮、聚醚酮酮、聚(醚醚酮酮)、聚醚酮醚酮酮，及前述之一組合。

【0027】 較佳地，該乾燥溫度為 40 至 200℃。

【0028】 本發明適用於鋰電池的電極，包含：

一基材，及

一形成於該基材上的層狀結構，包含一電極層，該電極層包括如前所述的適用於鋰電池的電極材料及導電材料。

【0029】 該基材的種類並沒有特別限制，使用一般適用於鋰電池的基材即可。較佳地，該基材是選自於銅箔基

板、鋁箔基板、鎳箔基板、鈦箔基板及不繡鋼箔基板。

【0030】 較佳地，該電極層還包括一黏結該導電材料與該電極材料的黏結劑。

【0031】 較佳地，該電極層的厚度為 200nm 至 200μ m。

【0032】 較佳地，該導電材料，包括一碳質材料，該碳質材料具有多數個碳質顆粒；該碳質材料可如但不限於軟碳、硬碳(熱解碳)、無定型碳材料、石墨顆粒、導電碳粉，及前述之一組合。該適用於鋰電池的電極材料是與前述相同，在此不再贅述。

【0033】 較佳地，該黏結劑是至少一種選自於由下列所構成群組的化合物：聚氟化二乙烯(Polyvinylidene fluoride，簡稱 PVDF)、聚偏氯乙烯(polyvinylidene chloride)、聚氟亞乙烯(polyfluoro vinylidene)、聚乙烯醇(polyvinyl alcohol)、羧甲基纖維素(carboxymethyl cellulose，簡稱 CMC)、澱粉、羥丙基纖維素(hydroxypropyl cellulose)、再生纖維素(regenerated cellulose)、聚乙烯基吡咯烷酮(polyvinyl pyrrolidone)、四氟乙烯(tetrafluoroethylene)、聚乙烯(polyethylene)、聚丙烯(polypropylene)、乙烯-丙烯-二烯聚合物(ethylene-propylene-diene polymer，簡稱 EPDM)、磺化乙烯-丙烯-二烯聚合物、苯乙烯-丁二烯橡膠(styrene butadiene rubber，簡稱 SBR)、氟橡膠(fluorine rubber)，及前述之組合。

【0034】 本發明將就以下實施例來作進一步說明，但應

瞭解的是，該實施例僅為例示說明之用，而不應被解釋為本發明實施之限制。

< 實施例 1 及比較例 1 >

【0035】 [製備適用於鋰電池的電極材料]

【0036】 [實施例 1]

於 50 至 80℃ 混合一磺化物溶液與一聚芳基醚酮，使該聚芳基醚酮磺化，之後以冰水洗淨再進行固化而獲得磺化的聚芳基醚酮固體物。

將該磺化的聚芳基醚酮固體物溶於二甲基亞砷(DMSO)中，然後加入石墨烯，加入作為活性顆粒的磷酸鐵鋰(LiFePO_4)，及作為導電材料的碳黑(粒徑 5 至 10 μm)，攪拌均勻，形成一混合物漿料。該混合物漿料的固形物部分為 9.8 wt% 碳黑、0.2 wt% 石墨烯、10 wt% 該磺化的聚芳基醚酮，及 80 wt% 磷酸鐵鋰。

取一圓片形之銅箔基板(面積 1.33 cm^2)，利用研磨處理除去該銅箔基板表面的氧化物與有機污染物，並提升表面平整度，再置入以丙酮與乙醇溶液中以超音波震盪方式清潔基板上之油膜等污染物，隨即將該混合物漿料以攪拌器均勻攪拌後，取約 3mg 以刮刀塗佈於該基板，形成一厚度為 5 至 150 μm 的塗層，置入烘箱以 40 至 200℃ 烘乾，製得實施例 1 之電極材料。

實施例 1 之適用於鋰電池的電極材料的 SEM 照片是如圖 1 所示。

【0037】 [比較例 1]

將石墨烯、作為導電材料的碳黑(粒徑 5 至 10 μm)、作為具導電性的活性顆粒的磷酸鐵鋰(LiFePO_4)、作為分散劑的十二烷基苯磺酸鈉(sodium dodecyl benzene sulfonate, SDBS), 及作為黏著劑的聚偏二氯乙烯(polyvinylidene difluoride, PVDF)溶於 NMP 中並均勻混合, 形成一混合物漿料。該混合物漿料的固形物部分為 9.8 wt%碳黑、0.2 wt%石墨烯、2wt%十二烷基苯磺酸鈉、8wt%聚偏二氯乙烯, 及 80 wt%磷酸鐵鋰。

取一圓片形之銅箔基板(面積 1.33 cm^2), 利用研磨處理除去該銅箔基板表面的氧化物與有機污染物, 並提升表面平整度, 再置入以丙酮與乙醇溶液中以超音波震盪方式清潔基板上之油膜等污染物, 隨即將該混合物漿料以攪拌器均勻攪拌後, 取約 3mg 以刮刀塗佈於該基板, 形成一厚度為 5 至 150 μm 的塗層, 置入烘箱以 40 至 200 $^{\circ}\text{C}$ 烘乾, 製得比較例 1 之電極材料。

【0038】 [鋰離子半電池的製作方式]

以鋰金屬為相對電極及負極, 取實施例或比較例所製備的正極材料與前述鋰金屬負極、聚丙烯(polypropylene, 簡稱 PP)隔離膜, 及以 LiPF_6 為溶質之電解液, 配合 CR2032 組件, 以常規製法製成鈕扣型鋰電池。

< 性質測試 >

【0039】 [充電放電循環測試]

於 25 $^{\circ}\text{C}$ 下, 繪製含有實施例 1 及比較例 1 之鋰電池的首次放電的電容量-電位關係圖。

於 25℃ 下，鋰電池充電放電範圍為 2.0 至 3.6V，充電 - 放電速率分別為 0.2C、1C、5C、10C，及 20C，繪製含有實施例 1 及比較例 1 電極材料之鋰電池的第 1 至 5 次充電放電循環次數 - 電容量關係圖。

於 25℃ 下，鋰電池充電放電範圍為 2.0 至 3.6V，充電 - 放電速率為 1C，繪製含有實施例 1 及比較例 1 之電極材料的鋰電池的充電放電循環次數 - 電容量維持率關係圖。

於圖 2 及 3 中，●表示含有實施例 1 電極材料的鋰電池，■表示含有比較例 1 電極材料的鋰電池或超級電容；圖 4 中，黑色記號表示含有實施例 1 電極材料的鋰電池，淺色記號表示含有比較例 1 電極材料的鋰電池。

【0040】 [界面電位(zeta potential)]

於 25℃ 下，分別測量實施例 1 及比較例 1 之混合物漿料的界面電位。於密封的透明容器中注入一混合物漿料，以 532nm 波長之雷射光掃描，利用都普勒效應量測其中顆粒的電泳遷移率。將測得的電泳遷移率乘上漿料黏滯系數，再除以漿料介電常數，即可求得該漿料的界面電位。

該漿料的界面電位需高於 30mV 方能合乎一般對於鋰電池的需求，並且，當該混合物漿料中的石墨烯完全分散不團聚，該混合物漿料的界面電位會高於 40mV。

【0041】 比較例 1 混合物漿料的界面電位為 18mV。實施例 1 混合物漿料的界面電位為 54mV，顯著地高於比較例 1 且高於 40mV，可以判斷實施例 1 混合物漿料中的石墨烯已完全分散。由此可知，實施例 1 電極材料中，該經官能基

接枝的聚芳基醚酮的離子型披覆層能確實將石墨烯分散。

【0042】如圖 2 所示，當含有實施例 1 及比較例 1 電極的鋰電池在相同的放電速率 1C 下，以實施例 1 電極材料作為正極的鋰電池的電池電容量明顯較高。

【0043】如圖 3 所示，當含有實施例 1 及比較例 1 電極的鋰電池在各種放電速率下，含有實施例 1 電極材料的鋰電池電容量明顯較高，可見本發明電極材料的鋰電池能在大電流下工作。如圖 4 所示，當含有實施例 1 及比較例 1 電極的鋰電池在相同的充放電速率(1C)下進行 200 次充電-放電循環測試，含有實施例 1 電極材料的鋰電池電容量明顯較穩定，電容量保持率約為 100%，而含有比較例 1 電極材料的鋰電池的電容量保持率僅 87%。

【0044】綜上所述，本發明透過該電極材料包含離子型披覆層披覆於該等活性顆粒表面，由於該離子型披覆層能使石墨烯均勻分散，可以取代現有的黏著劑、分散劑及導電劑，當該電極材料用於鋰電池或超級電容時，可以提升電容量、快速充放電，且具有良好的循環穩定性，故確實能達成本發明之目的。

【0045】惟以上所述者，僅為本發明之較佳實施例而已，當不能以此限定本發明實施之範圍，即大凡依本發明申請專利範圍及專利說明書內容所作之簡單的等效變化與修飾，皆仍屬本發明專利涵蓋之範圍內。

【符號說明】

【0046】

無

【生物材料寄存】

國內寄存資訊【請依：寄存機構、日期、號碼順序註記】

國外寄存資訊【請依：寄存國家、機構、日期、號碼順序註記】

【序列表】(請換頁單獨記載)

申請專利範圍

1. 一種適用於鋰電池的電極材料，包含：
 複數個活性顆粒；及
 一離子型披覆層，披覆於該等活性顆粒表面；
 其中，該離子型披覆層包括經官能基接枝的聚芳基醚酮，及複數個與該經官能基接枝的聚芳基醚酮不規則地彼此穿插交疊的石墨烯。
2. 如請求項 1 所述的適用於鋰電池的電極材料，其中，該聚芳基醚酮是選自於聚醚酮、聚醚醚酮、聚醚酮酮、聚(醚醚酮酮)、聚醚酮醚酮酮，及前述之一組合。
3. 如請求項 1 所述的適用於鋰電池的電極材料，其中，該經官能基接枝的聚芳基醚酮是經 SO_3^- 或 NO_3^- 官能基接枝。
4. 如請求項 1 所述的適用於鋰電池的電極材料，其中，該經官能基接枝的聚芳基醚酮是經 SO_3^- 接枝的聚醚醚酮。
5. 如請求項 1 所述的適用於鋰電池的電極材料，其中，該活性顆粒是選自於 LiCoO_2 、 LiNiO_2 、 LiMn_2O_4 、 LiMnCoO_4 、 $\text{LiCo}_{0.3}\text{Ni}_{0.3}\text{Mn}_{0.3}\text{O}$ 、 LiCoPO_4 、 LiMnCrO_4 、 LiNiVO_4 、 LiMnCrO_4 、 $\text{LiMn}_{1.5}\text{Ni}_{0.5}\text{O}_4$ 、 LiCoVO_4 、 LiFePO_4 、 Si 、 SiSn_x 、 Sn 、 SnO 、 SnO_2 、 Ge 、 Ga 、前述化合物或元素的衍生物或合金，及前述之一組合。
6. 如請求項 1 所述的適用於鋰電池的電極材料，其中，以

該電極材料的總重計，該等具導電性的活性顆粒的含量範圍為 80 至 95 wt%，該經官能基接枝的聚芳基醚酮的含量範圍為 0.5 至 15 wt%，及該等石墨烯的含量範圍為 0.1 至 5 wt%。

7. 如請求項 1 所述的適用於鋰電池的電極材料，其中，該石墨烯的片體厚度為 0.35 nm 至 10 nm，長度範圍為 20 至 2000 nm。

8. 一種適用於鋰電池的電極材料的製造方法，包含：

將一經官能基接枝的聚芳基醚酮固體物溶解於一溶劑中，形成一經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液；

將複數個活性顆粒及石墨烯加入該經官能基接枝的聚芳基醚酮溶液而形成一混合物漿料；

將該混合物漿料乾燥，形成該適用於鋰電池的電極材料。

9. 如請求項 8 所述的適用於鋰電池的電極材料的製造方法，其中該經官能基接枝的聚芳基醚酮固體物是經由混合一硫化物或硝化物溶液與一聚芳基醚酮，且使該聚芳基醚酮發生官能基接枝，之後再進行固化而獲得。
10. 如請求項 8 所述的適用於鋰電池的電極材料的製造方法，其中，該溶劑是選自於二甲基亞砷、二甲基甲醯胺，及四氫呋喃。
11. 如請求項 8 所述的適用於鋰電池的電極材料的製造方法，其中，以該電極材料的總重計，該等具導電性的

活性顆粒的含量範圍為 80 至 95 wt%，該經官能基接枝的聚芳基醚酮的含量範圍為 0.5 至 15 wt%，及該等石墨烯的含量範圍為 5 至 0.1 wt%。

12. 如請求項 8 所述的適用於鋰電池的電極材料的製造方法，其中，該聚芳基醚酮是選自於聚醚酮、聚醚醚酮、聚醚酮酮、聚(醚醚酮酮)、聚醚酮醚酮酮，及前述之一組合。
13. 如請求項 8 所述的適用於鋰電池的電極材料的製造方法，其中，該乾燥溫度為 40 至 200°C。
14. 如請求項 8 所述的適用於鋰電池的電極材料的製造方法，其中，該經官能基接枝的聚芳基醚酮是經 SO_3^- 或 NO_3^- 官能基接枝。
15. 一種適用於鋰電池的電極，包含：
 - 一基材，及
 - 一形成於該基材上的層狀結構，包含一電極層，該電極層包括如請求項 1 所述的適用於鋰電池的電極材料及導電材料。

圖式



圖1

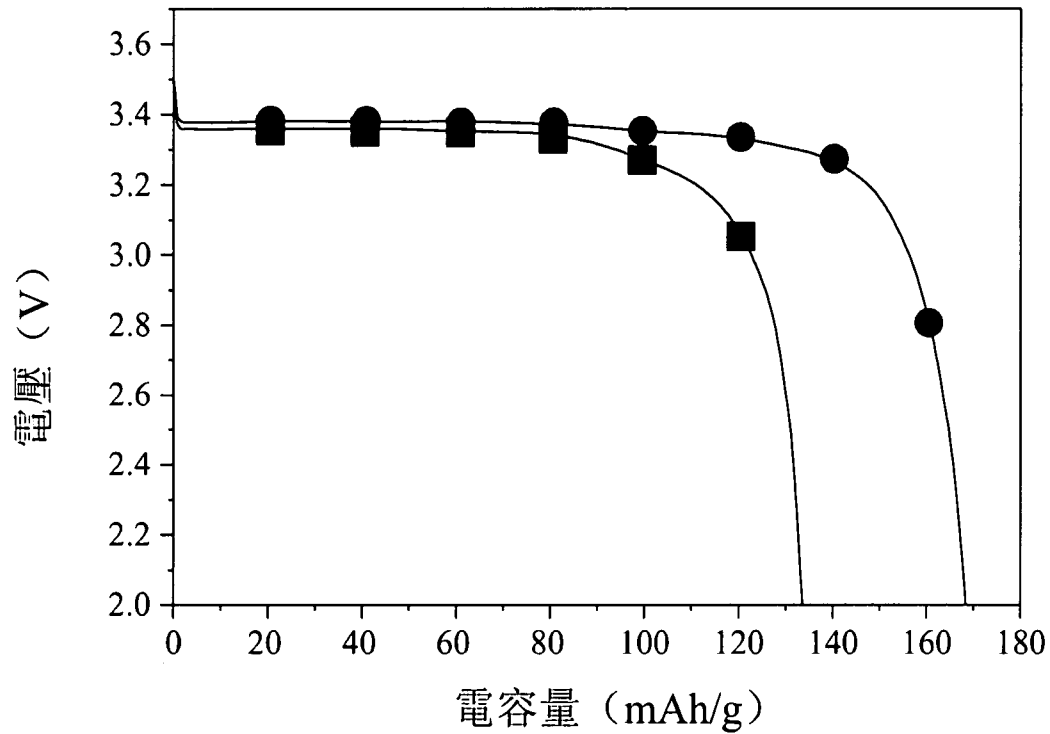


圖2

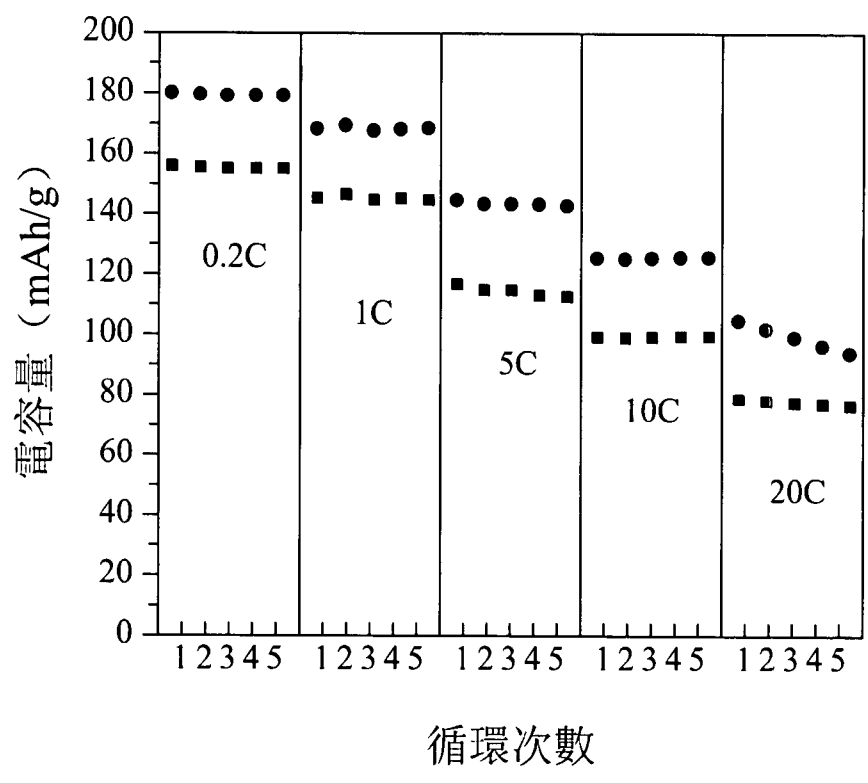


圖3

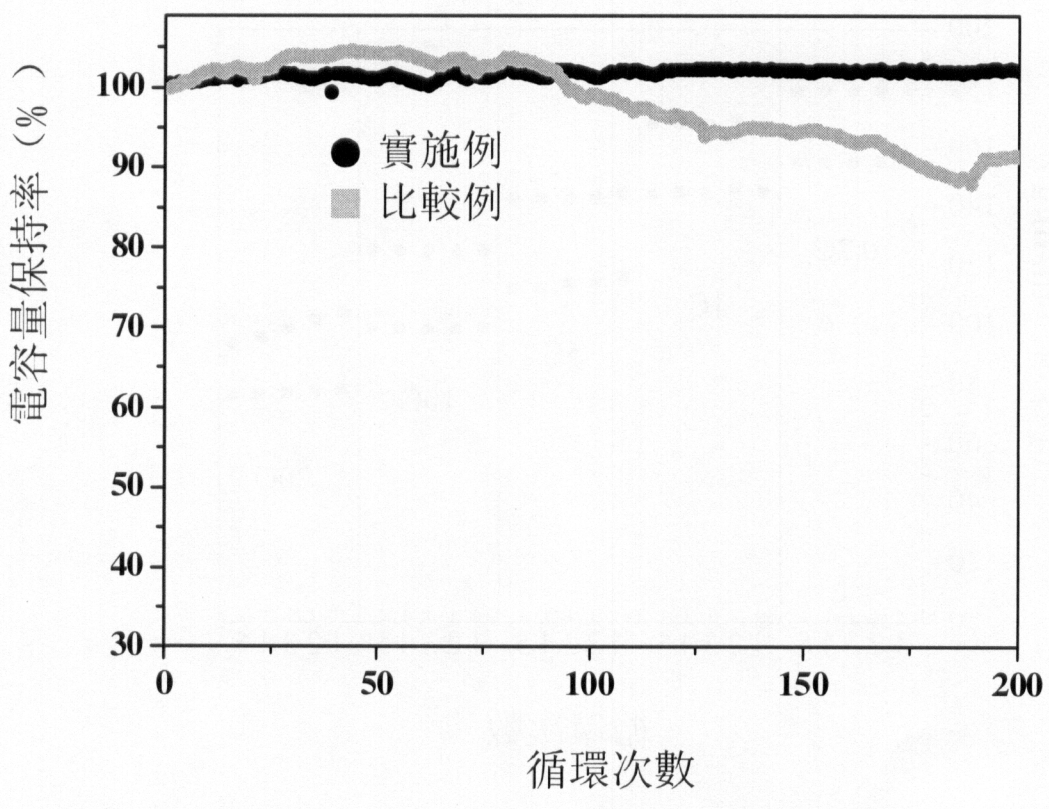


圖4