

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2013-541140

(P2013-541140A)

(43) 公表日 平成25年11月7日 (2013.11.7)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
HO 1 M 10/0569 (2010.01)	HO 1 M 10/0569	5 H O 2 9
HO 1 M 10/0568 (2010.01)	HO 1 M 10/0568	
HO 1 M 10/0567 (2010.01)	HO 1 M 10/0567	
HO 1 M 10/052 (2010.01)	HO 1 M 10/052	

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 23 頁)

(21) 出願番号	特願2013-527721 (P2013-527721)	(71) 出願人	508020155
(86) (22) 出願日	平成23年9月6日 (2011.9.6)		ビーエーエスエフ ソシエタス・ヨーロピア
(85) 翻訳文提出日	平成25年4月18日 (2013.4.18)		BASF SE
(86) 国際出願番号	PCT/IB2011/053899		ドイツ連邦共和国 ルートヴィヒスハーフェン (番地なし)
(87) 国際公開番号	W02012/032471		D-67056 Ludwigshafen, Germany
(87) 国際公開日	平成24年3月15日 (2012.3.15)	(74) 代理人	100100354
(31) 優先権主張番号	10176200.3		弁理士 江藤 聡明
(32) 優先日	平成22年9月10日 (2010.9.10)	(72) 発明者	ライトナー, クラウス
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		ドイツ、67059 ルートヴィヒスハーフェン、ダンツィガー プラッツ 3

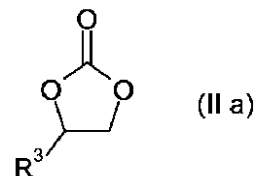
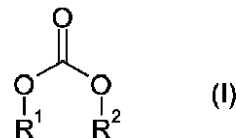
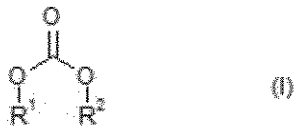
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 低含水量を有する溶媒混合物の製造方法

(57) 【要約】

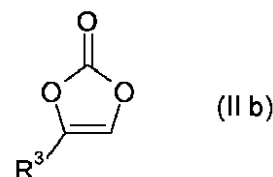
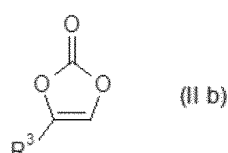
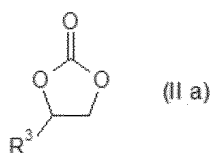
(A) 式 (I) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

【化 1】



(B) 式 (II a) 又は (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

【化 2】

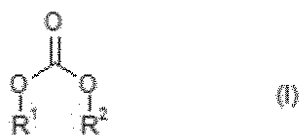


【特許請求の範囲】

【請求項 1】

(A) 式 (I) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

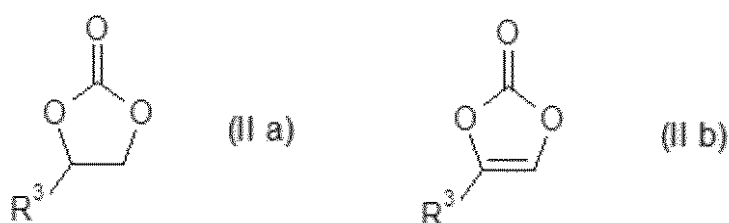
【化 1】



10

(B) 式 (II a) 又は (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

【化 2】



20

(C) 任意に、芳香族化合物、スルホン及びエキソメチレンエチレンカーボネート、有機ホスフェート、メラミン、尿素、及びハロゲン化有機カーボネートから選択される少なくとも 1 種の添加剤、

(D) 任意に、少なくとも 1 種のリチウム塩、

及び 3 ~ 30 質量 ppm の水を含む溶媒混合物の製造方法であって、

(a) 成分 (A)、(B) 及び使用する場合は (C) を互いに混合する工程、

(b) 少なくとも 1 種のイオン交換体又は分子篩を介して乾燥する工程、

(c) イオン交換体又は分子篩からそれぞれ分離する工程、及び

(d) 使用する場合には、少なくとも 1 種のリチウム塩を添加する工程を有し、

前記変数が、以下：

R^1 、 R^2 は、それぞれ同一であるか、あるいは異なっており、且つ $C_1 - C_4$ - アルキルから選択され、

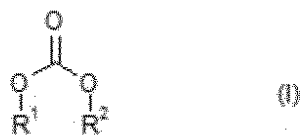
R^3 は、水素及び $C_1 - C_4$ - アルキルから選択される

ように定義されることを特徴とする製造方法。

【請求項 2】

(A) 式 (I) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

【化 3】

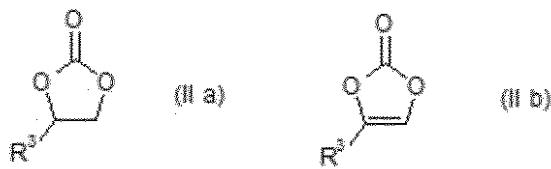


40

(B) 式 (II a) 又は (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

50

【化 4】



10

(C) 任意に、芳香族化合物、スルホン及びエキソメチレンエチレンカーボネート、有機ホスフェート、メラミン、尿素、及びハロゲン化有機カーボネートから選択される少なくとも 1 種の添加剤、

(D) 任意に、少なくとも 1 種のリチウム塩、

及び 3 ~ 30 質量 ppm の水を含む溶媒混合物の製造方法であって、

i . 成分 (A)、(B) 及び使用する場合は (C) の少なくとも 1 種を、個別に、少なくとも 1 種のイオン交換体又は分子篩を介して乾燥する工程、

ii . イオン交換体又は分子篩を、それぞれ、工程 (i) で乾燥した成分から分離する工程、及び

iii . 成分 (A)、(B)、使用する場合は (C) 及び使用する場合は少なくとも 1 種のリチウム塩を、互いに混合する工程を有し、

20

前記変数が、以下：

R^1 、 R^2 は、それぞれ同一であるか、あるいは異なっており、且つ $C_1 - C_4$ - アルキルから選択され、

R^3 は、水素及び $C_1 - C_4$ - アルキルから選択されるように定義されることを特徴とする製造方法。

【請求項 3】

前記溶媒混合物が、5 ~ 20 質量 ppm の水を含む請求項 1 又は 2 に記載の製造方法。

【請求項 4】

イオン交換体又は分子篩が、工程 (c) でろ過により分離される請求項 1 ~ 3 の何れか 1 項に記載の製造方法。

30

【請求項 5】

イオン交換体又は分子篩が、それぞれ少なくとも部分的にリチウム化されたイオン交換体又は少なくとも部分的にリチウム化された分子篩から選択される請求項 1 ~ 4 の何れか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 6】

イオン交換体又は分子篩が、それぞれリチウム化されていないイオン交換体又はリチウム化されていない分子篩から選択される請求項 1 ~ 4 の何れか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 7】

式 (I) で表わされる化合物が、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、及びこれらの混合物から選択される請求項 1 ~ 6 の何れか 1 項に記載の製造方法。

40

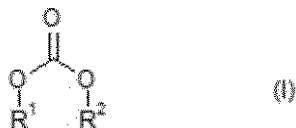
【請求項 8】

式 (II a) で表わされる少なくとも 1 種の化合物及び式 (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物が選択される請求項 1 ~ 7 の何れか 1 項に記載の製造方法。

【請求項 9】

a . 式 (I) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

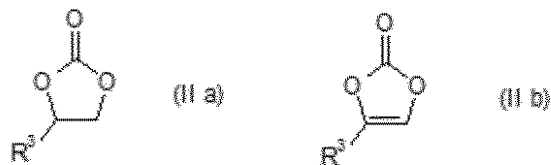
【化 5】



b. 式 (II a) 又は (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

【化 6】

10



c. 任意に、芳香族化合物、スルホン及びエキソメチレンエチレンカーボネート、有機ホスフェート、及びハロゲン化有機カーボネートから選択される少なくとも 1 種の添加剤、

20

d. 任意に、少なくとも 1 種のリチウム塩、

及び 3 ~ 30 質量 ppm の水を含む溶媒混合物であって、

前記変数が、以下：

R^1 , R^2 は、それぞれ同一であるか、あるいは異なっており、且つ C_1 - C_4 - アルキルから選択され、

R^3 は、水素及び C_1 - C_4 - アルキルから選択される

ように定義されることを特徴とする溶媒混合物。

【請求項 10】

5 ~ 25 質量 ppm の水を含む請求項 9 に記載の溶媒混合物。

30

【請求項 11】

式 (I) で表わされる化合物が、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、及びこれらの混合物から選択される請求項 9 又は 10 に記載の溶媒混合物。

【請求項 12】

式 (II a) で表わされる少なくとも 1 種の化合物及び式 (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物を含む請求項 9 ~ 11 の何れか 1 項に記載の溶媒混合物。

【請求項 13】

リチウム塩 (D) が、 LiPF_6 、 LiBF_4 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、及びリチウムビスオキサートボレートから選択される請求項 9 ~ 12 の何れか 1 項に記載の溶媒混合物。

40

【請求項 14】

請求項 9 ~ 13 の何れか 1 項に記載の溶媒混合物を、リチウムイオン電池の製造に使用する方法。

【請求項 15】

請求項 9 ~ 13 の何れか 1 項に記載の溶媒混合物を含むリチウムイオン電池。

【発明の詳細な説明】

【背景技術】

【0001】

(A) 式 (I) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

50

【 0 0 0 2 】

【 化 1 】

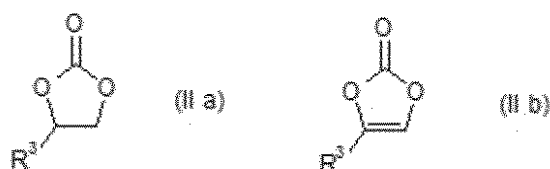


(B) 式 (I I a) 又は (I I b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

10

【 0 0 0 3 】

【 化 2 】



20

(C) 任意に、芳香族化合物、スルホン及びエキソメチレンエチレンカーボネート、有機ホスフェート、並びにハロゲン化有機カーボネートから選択される少なくとも 1 種の添加剤、

(D) 任意に、少なくとも 1 種のリチウム塩、

及び 3 ~ 30 質量 ppm の水を含む溶媒混合物の製造方法であって、

i . 成分 (A)、(B) 及び使用する場合は (C) を、互いに混合する工程、

i i . 少なくとも 1 種のイオン交換体又は分子篩を介して乾燥する工程、

i i i . イオン交換体又は分子篩からそれぞれ分離する工程、及び

i V . 使用する場合は、少なくとも 1 種のリチウム塩を添加する工程を有し、

30

前記変数が、以下：

R^1 , R^2 は、それぞれ同一であるか、あるいは異なっており、且つ $C_1 - C_4$ - アルキルから選択され、

R^3 は、水素及び $C_1 - C_4$ - アルキルから選択されるように定義されることを特徴とする製造方法に関する。

【 0 0 0 4 】

代替となる変形では、本発明は、個々の成分 (A)、(B) 及び使用する場合は (C) の乾燥が、又はこれらの成分のそれぞれの乾燥が、それらが混合される前に行われる溶媒混合物の製造方法に関する。したがって、本発明はまた、

(A) 式 (I) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

40

【 0 0 0 5 】

【 化 3 】

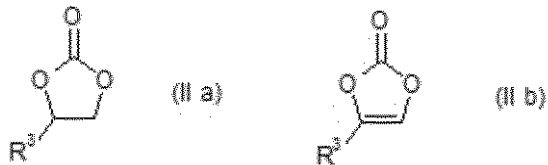


(B) 式 (I I a) 又は (I I b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

50

【 0 0 0 6 】

【 化 4 】



10

(C) 任意に、芳香族化合物、スルトン及びエキソメチレンエチレンカーボネート、有機ホスフェート、メラミン、尿素、並びにハロゲン化有機カーボネートから選択される少なくとも1種の添加剤、

(D) 任意に、少なくとも1種のリチウム塩、

及び3～30質量ppmの水を含む溶媒混合物の製造方法であって、

i. 成分(A)、(B)及び使用する場合は(C)の少なくとも1種を、少なくとも1種のイオン交換体又は分子篩を介してそれぞれ個別に乾燥する工程、

ii. 工程(i)で乾燥した成分からイオン交換体又は分子篩をそれぞれ分離する工程、及び

iii. 成分(A)、(B)、使用する場合は(C)及び使用する場合は少なくとも1種のリチウム塩を、互いに混合する工程を有し、

前記変数が、以下：

R^1 、 R^2 は、それぞれ同一であるか、あるいは異なっており、且つ C_1 - C_4 -アルキルから選択され、

R^3 は、水素及び C_1 - C_4 -アルキルから選択される

ように定義されることを特徴とする製造方法に関する。

【 0 0 0 7 】

本発明は、さらに、

(A) 式(I)で表わされる少なくとも1種の化合物、

(B) 式(II a)又は(II b)で表わされる少なくとも1種の化合物、

(C) 任意に、芳香族化合物、スルトン及びエキソメチレンエチレンカーボネート、有機ホスフェート、並びにハロゲン化有機カーボネートから選択される少なくとも1種の添加剤、

(D) 及び任意に少なくとも1種のリチウム塩、

及び3～30質量ppmの水を含む溶媒混合物に関し、及びまたリチウムイオン電池における本発明に係る溶媒混合物の使用方法に関する。

【 0 0 0 8 】

効率的に電気エネルギーを保存する方法の探究が長い間行われている。電気エネルギーの効率的な保存は、それが有利であるときに生成され、及び必要であるときに使用される電気エネルギーを可能にする。

【 0 0 0 9 】

鉛蓄電池及びニッケル-カドミウム蓄電池等の蓄電池が、何十年も前から知られている。公知の鉛蓄電池及びニッケル-カドミウム蓄電池は、比較的低いエネルギー密度及びメモリ効果という不具合を有する。その不具合は、再充電性を低下させ、それゆえ鉛蓄電池及びニッケル-カドミウム蓄電池の耐用年数を低減させる。

【 0 0 1 0 】

しばしばリチウムイオン電池ともまた呼ばれるリチウムイオン蓄電池は、代替物として使用される。それらは鉛又は比較的貴重金属に基づく蓄電池よりも高いエネルギー密度を提供する。

50

【 0 0 1 1 】

多くのリチウムイオン電池は金属リチウムを利用するので、それらは水に敏感である。それゆえ、リチウムイオン電池で使用されるリチウム塩のために溶媒として水は論外である。代わりに、有機カーボネート、エーテル及びエステルが極性溶媒として十分に用いられる。したがって、文献は電解質のために水を含まない溶媒を用いることを推奨している（W O 2 0 0 7 / 0 4 9 8 8 8等を参照乞う）。

【 0 0 1 2 】

しかしながら、水を含まない溶媒は生産及び加工のためには不便である。リチウムイオン電池のために本質的に便利な多くの溶媒が、水を100ppm以上のオーダーで含む。しかしながら、そのような高い割合の水は、多くのリチウムイオン電池にとって受け入れられるものではない。リチウムイオン電池用の十分に好適な溶媒を供給する際の問題は、人工的なリチウムイオン電池のほとんどのものが、単一の溶媒ではなく溶媒混合物を含んでおり、その溶媒混合物のうちのいくつかの溶媒は、乾燥剤とのその活性が大きく異なるという事実によって複雑化している。

10

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

【 0 0 1 3 】

【 特許文献 1 】 W O 2 0 0 7 / 0 4 9 8 8 8

【 発明の概要 】

【 発明が解決しようとする課題 】

20

【 0 0 1 4 】

本発明は、リチウムイオン電池における電解質として好適な溶媒混合物を提供することを目的とする。本発明はさらに、リチウムイオン電池に好適な溶媒混合物の製造方法を提供することを目的とする。本発明は、最終的に良好な性能特性を有するリチウムイオン電池を提供することを目的とする。

【 課題を解決するための手段 】

【 0 0 1 5 】

私達は、この目的が冒頭に定義した製造方法によって達成されることを見出した。

【 発明を実施するための形態 】

【 0 0 1 6 】

30

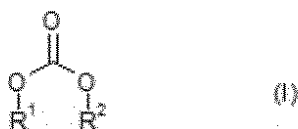
本発明の目的のために、リチウムイオン蓄電池は、リチウムイオン電池と呼ばれる。

本発明に係る製造方法は、

(A) 式 (I) で表わされる少なくとも1種の化合物

【 0 0 1 7 】

【 化 5 】

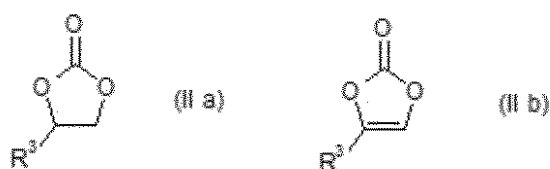


40

(B) 式 (I I a) 又は (I I b) で表わされる少なくとも1種の化合物、

【 0 0 1 8 】

【化 6】



10

及び 3 ~ 30 質量 ppm の、好ましくは 5 ~ 25 質量 ppm の水を含む溶媒混合物を提供する。

【0019】

前記式の変数は、以下：

R^1 , R^2 は、それぞれ同一であるか、あるいは異なっており、且つメチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*sec*-ブチル等（好ましくは、メチル又はエチル）の C_1 - C_4 - アルキルから選択され、

R^3 は、メチル、エチル、*n*-プロピル、イソプロピル、*n*-ブチル、イソブチル、*sec*-ブチル等（好ましくは、メチル）の C_1 - C_4 - アルキルから、及びより具体的には水素から選択される

20

ように定義される。

【0020】

本発明の一実施形態は、式 (I) で表わされる化合物並びに式 (II a) 及び (II b) で表わされる化合物を、1 : 10 ~ 10 : 1 の、及び好ましくは 3 : 1 ~ 1 : 1 の範囲の質量比で含む。

【0021】

好ましい式 (I) で表わされる化合物は、ジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、メチルエチルカーボネート及びこれらの混合物、すなわち、列挙されたジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、及びメチルエチルカーボネートの化合物の少なくとも 2 種の混合物である。

30

【0022】

本発明の一実施の形態では、本発明に従って得られる溶媒混合物は、ジエチルカーボネート及びメチルエチルカーボネート等の式 (I) で表わされる 2 種以上の化合物を含む。

【0023】

一実施の形態では、本発明に従って得られる溶媒混合物は式 (II a) で表わされる少なくとも 1 種の化合物を含むが、式 (II b) で表わされる化合物を含まない。本発明の他の実施の形態では、本発明に従って得られる溶媒混合物は式 (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物を含むが、式 (II a) で表わされる化合物を含まない。本発明の他の実施の形態では、本発明に従って得られる溶媒混合物は式 (II a) で表わされる少なくとも 1 種の化合物及び式 (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物を含む。

40

【0024】

水の割合は、それ自体公知の種々の方法により決定することができる。DIN 51777 又は ISO 760 : 1978 等の、カールフィッシャー滴定が特に好適である。

【0025】

本発明に従って得られる溶媒混合物は、

(C) 芳香族化合物、スルホン及びエキソメチレンエチレンカーボネート、ハロゲン化有機カーボネート、有機ホスフェートから選択される少なくとも 1 種の添加剤、及び / 又は (D) 少なくとも 1 種のリチウム塩

等のさらなる成分を含んでもよい。

【0026】

50

従って、本発明の目的のための“溶媒混合物”は、塩を含まない溶媒混合物のみならず、溶媒混合物中でのリチウム塩溶液にもまた当てはまる。

【 0 0 2 7 】

添加剤として好適な芳香族化合物の例は、ビフェニル、シクロヘキシルベンゼン及び 1, 4 - ジメトキシベンゼンである。

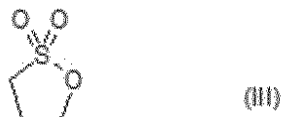
【 0 0 2 8 】

スルトンは置換されていてもよく、又は置換されていなくてもよい。好適なスルトンの例は、ブタンスルトン及びプロピレンスルホン、式 (I I I)、

【 0 0 2 9 】

【 化 7 】

10



及び特に 1 分子あたり少なくとも 1 個の C - C 二重結合を有するスルトンである。置換されたスルトンの例は 1 - フェニル - 1, 3 - ブタンスルホンである。

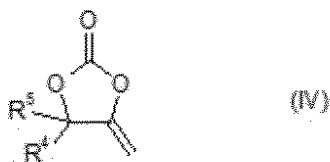
【 0 0 3 0 】

20

エキソメチレンエチレンカーボネートの例は、特に式 (I V)

【 0 0 3 1 】

【 化 8 】



30

[式中、 R^4 及び R^5 はそれぞれ異なっているか、又は同一であることができ、且つそれぞれ C_{1-10} アルキル及び水素から選択される] で表わされる化合物である。好ましい実施の形態では、 R^4 及び R^5 は共にメチルである。

【 0 0 3 2 】

ハロゲン化、より具体的にはフッ素化した有機化合物は、1 分子あたり少なくとも 1 個のハロゲン原子を、好ましくは 1 分子あたり 1 個以上のハロゲン原子を有する環状又は非環状の有機カーボネートを含む。ハロゲン原子は好ましくは塩素であり、より好ましくはフッ素である。例えば、以下の式：

【 0 0 3 3 】

【 化 9 】

40



で表わされるフルオロエチレンカーボネート及びジフルオロエチレンカーボネートが挙げられる。

50

【 0 0 3 4 】

有機ホスフェートは、1種以上の有機アルコールとの、好ましくは1種の有機アルコールとのリン酸のトリエステルを含む。有用な有機アルコールは、置換又は非置換のアルカノール、及び置換又は非置換のフェノール等を含む。有機ホスフェートの好適な例は、トリス(クロロエチル)ホスフェート、トリス(3-クロロプロピル)ホスフェート、トリス(2-イソプロピル)ホスフェート、トリフェニルホスフェート、トリクレジルホスフェート、トリス(, ' -ジクロロイソプロピル)ホスフェート、トリス(2-エチルヘキシル)ホスフェート、レゾルシノールビス(ジフェニルホスフェート)、モノ- , ビス-及びトリス(イソプロピルフェニル)ホスフェート(“イソプロピル化トリフェニルホスフェート”)、及びビスフェノールAジフェニルホスフェートである。有機ホスフェートは難燃剤として機能し得る。

10

【 0 0 3 5 】

メラミン及び尿素は、他の好適な難燃剤の例である。

【 0 0 3 6 】

本発明の一実施の形態は、本発明に従って得られた溶媒混合物の合計に対して全部で0~30質量%の、好ましくは1~10質量%の範囲の添加剤(C)を添加することを含む。

【 0 0 3 7 】

一変形例では、溶媒混合物を製造するための本発明により提供される方法は、少なくとも以下の3個の工程を含む：

20

(a) 上記成分(A)、(B)及び使用する場合は(C)を互いに攪拌すること等により混合する工程。予備乾燥した、又は市販の成分(A)、(B)及び使用する場合は(C)を用いることができる。

(b) その混合物を少なくとも1種のイオン交換体又は好ましくは分子篩を介して乾燥する工程。

(c) イオン交換体又は分子篩から乾燥した溶媒混合物を分離する工程。

(d) 第4番目の、少なくとも1種のリチウム塩又は成分(C)を添加する任意の工程。

【 0 0 3 8 】

他の変形例では、溶媒混合物を製造するための本発明により提供される方法は、少なくとも以下の3個の工程を含む：

30

i . 成分(A)、(B)及び使用する場合は(C)の少なくとも1個を、個別に、少なくとも1種のイオン交換体又は分子篩を介して乾燥する工程、

i i . 工程(i)で乾燥した成分からイオン交換体又は分子篩をそれぞれ分離する工程、及び

i i i . 成分(A)、(B)、使用する場合は(C)及び使用する場合は少なくとも1種のリチウム塩を、互いに混合する工程。

【 0 0 3 9 】

この変形例では、前記乾燥工程に全ての成分(A)、(B)及び使用する場合は(C)を投入する必要は無い。これらの成分の1種、1種以上、又は全部の乾燥が、混合後にこれらの成分が少なくとも1種のリチウム塩(D)の溶媒混合物が本発明に係る割合の水を含むように実施されなければならない。

40

【 0 0 4 0 】

工程(i)に従った個々の成分の乾燥は工程(b)による溶媒混合物の乾燥に対応する方法で実施される。同様に、工程(ii)に従ったイオン交換体又は分子篩からの乾燥した個々の成分の分離は、工程(c)によるイオン交換体又は分子篩からの乾燥した溶媒混合物の分離に対応する方法で実施される。最後に、工程(iii)に従った個々の成分の混合は、工程(a)による混合に対応する方法で実施される。

【 0 0 4 1 】

工程(a)、(b)及び(c)を、より具体的に説明する。

【 0 0 4 2 】

50

成分 (A)、(B) 及び使用する場合は (C) の混合は、所望の温度で実施し得る。

【 0 0 4 3 】

工程 (a) :

本発明の一実施の形態は、10 ~ 100 の範囲の温度での混合を含む。

【 0 0 4 4 】

本発明の一実施の形態は、最も融点の高い成分 (A) 又は (B) の融点を少なくとも1
超える温度での混合を含む。

【 0 0 4 5 】

混合操作のための上限温度は、溶媒混合物の中で最も揮発性の成分の揮発性によって決定される。溶媒混合物の最も揮発性の成分の沸点を下回る温度で混合されることが好ましい。

10

【 0 0 4 6 】

所望の圧力で混合を実施することができ、大気圧が好ましい。混合の持続時間は、例えば、5分から最大24時間までの範囲で選択され得る。

【 0 0 4 7 】

工程 (b) :

イオン交換体及び分子篩はそれ自体知られている。

【 0 0 4 8 】

以下、分子篩は、好ましくは、球 (ビーズ)、粉末、又は棒の形態をとり得る天然及び合成のゼオライトから選択される。4 の分子篩、より好ましくは3 の分子篩が用いられることが好ましい。

20

【 0 0 4 9 】

イオン交換体は、ビーズ又は棒の形態等の成形品として、粉末として、又はカラムとして使用することができる。成形品、特に、ビーズ等の成形品を用いることが好ましい。

【 0 0 5 0 】

本発明の一実施の形態は、カチオン性イオン交換体を用いることを含む。

【 0 0 5 1 】

本発明の一実施の形態では、イオン交換体又は分子篩は、少なくとも部分的にリチウム化されたイオン交換体又は少なくとも部分的にリチウム化された分子篩からそれぞれ選択される。少なくとも部分的にリチウム化されたイオン交換体は、 H^+ 及び / 又は Na^+ 又は K^+ が Li^+ によって非常に実質的に置換されたカチオン性イオン交換体を含む。本発明の他の実施の形態では、イオン交換体又は分子篩は (部分的にさえも) リチウム化されていないものが用いられる。

30

【 0 0 5 2 】

本発明の一実施の形態は、工程 (a) からの溶媒混合物を、溶媒混合物中における分子篩又はイオン交換体の懸濁液を連続的に又は特定の間隔で攪拌すること等により、分子篩又は好ましくはイオン交換体と混合し、その分子篩又はイオン交換体を溶媒混合物と作用させることを可能とすることを含む。攪拌の代わりに振盪又はポンプ循環もまた用いることができる。

【 0 0 5 3 】

他の実施形態は、溶媒混合物を固定相としてイオン交換体 / 分子篩を含む塔又はフィルタ領域に施し、その後、その溶媒混合物をその塔 / フィルタに通過させることを可能とすること (例えば、重力下で、又はポンピングにより増大させることで) により、イオン交換体 / 分子篩を溶媒混合物と作用させることを含む。

40

【 0 0 5 4 】

化学的乾燥剤の不存在下でイオン交換体又は分子篩を溶媒混合物に作用させることが好ましい。本発明の目的のための化学的乾燥剤は、強酸性、強アルカリ性、又は強還元性の乾燥剤であり、より具体的には低分子量の化合物、塩及び元素から選択される。既知の酸性乾燥剤は、例えば、トリメチルアルミニウム等のアルミニウムアルキル、また、五酸化リン、及び濃硫酸を含む。既知の塩基性乾燥剤は、炭酸カリウム及び CaH_2 等を含む。

50

既知の還元性乾燥剤は、元素ナトリウム、元素カリウム、及びナトリウム - カリウム合金等を含む。

【 0 0 5 5 】

本発明の一実施の形態は 4 ~ 1 0 0 の範囲の、好ましくは 1 5 ~ 4 0 の範囲の、より好ましくは 2 0 ~ 3 0 の範囲の温度で工程 (c) を行うことを含む。

【 0 0 5 6 】

本発明の一実施の形態では、イオン交換体又は分子篩が溶媒混合物と作用することが許される時間は、数分 (例えば、少なくとも 5 分) から数日 (好ましくは 2 4 時間以下、及びより好ましくは 1 ~ 6 時間の範囲) の範囲である。

【 0 0 5 7 】

本発明の一実施の形態では、イオン交換体又は分子篩は塔に充填した後に用いられる。この種の実施形態は 0 . 1 ~ 5 0 m / h、及び好ましくは 0 . 5 ~ 1 5 m / h の線流速 (流速 / 空塔の塔断面) で好ましくは運転される。

【 0 0 5 8 】

工程 (c) の実行中に、乾燥の進行がカールフィッシャー滴定により追跡されるように、少量の溶媒混合物が 1 回以上除去され得る。

【 0 0 5 9 】

攪拌又は振とうは最低限に維持されることが好ましい。過度に激しい攪拌 / 振とうは分子篩又はイオン交換体の部分的な崩壊をもたらし得る。そして、これはろ過による除去に問題を生じさせることがある。

【 0 0 6 0 】

イオン交換体 / 分子篩の作用は、溶媒混合物からの水及び酸の存在の痕跡の実質的な除去をもたらす。しかしながら、若干の水が溶媒中に残る。

【 0 0 6 1 】

工程 (c)

溶媒混合物に対する分子篩又はイオン交換体の作用の後、分子篩又はイオン交換体を分離することが必要である。工程 (c) における分離は、溶媒混合物の蒸留若しくはデカンテーション、又は好ましくはろ過により達成され得る。

【 0 0 6 2 】

工程 (c) は好ましくは乾燥窒素下又は乾燥アルゴン下等の不活性ガス下で実施される。しかしながら、乾燥した不活性ガスの代わりに、工程 (c) は乾燥空気下でもまた実施され得る。

【 0 0 6 3 】

溶媒混合物が固定相としてイオン交換体 / 分子篩を含む塔又はフィルタ表面に施され、その後、工程 (b) 及び (c) を同時に実施させるためにその溶媒混合物をカラム / フィルタ量で通過させることを可能とする変形の選択は、同様に本発明の領域の範囲内である。

【 0 0 6 4 】

ビーズ又は棒等の形態で分子篩 / イオン交換体を使用する場合、フィルタ材料の細孔径は好ましくは分子篩 / イオン交換体の平均粒径に適合される。

【 0 0 6 5 】

一変形は、工程 (c) 後に全体又は一部として、1 種以上の成分 (C) を添加することを含む。

【 0 0 6 6 】

工程 (d)

所望であれば、少なくとも 1 種のリチウム塩 (D) を、工程 (d) 中で添加することができ、そして好ましくは溶解させることができる。好適なリチウム塩 (D) は本発明により得られる溶媒混合物中に十分に、例えば、室温で少なくとも 1 g / l で、溶解されなければならない。好適なリチウム塩 (D) の例は、 LiPF_6 、 LiBF_4 、 LiClO_4 、 LiAsF_6 、 LiCF_3SO_3 、 $\text{LiC}(\text{C}_n\text{F}_{2n+1}\text{SO}_2)_3$ 、リチウムビス

10

20

30

40

50

オキサートボラート、リチウムジフルオルビスオキサートボラート、 $\text{LiN}(\text{C}_n\text{F}_{2n+1}\text{SO}_2)_2$ 等のリチウムイミド（ここで、 n は 1 ~ 20 の整数である）、 $\text{LiN}(\text{SO}_2\text{F})_2$ 、 LiSiF_6 、 LiSbF_6 、 LiAlCl_4 、及び一般式 $(\text{C}_n\text{F}_{2n+1}\text{SO}_2)_m\text{XLi}$

〔式中、 m は以下のように定義される：

$m = 1$ 、 X が酸素及び硫黄から選択される場合

$m = 2$ 、 X が窒素及びリンから選択される場合、及び

$m = 3$ 、 X が炭素及びケイ素から選択される場合〕で表わされる塩である。

【0067】

好ましく処方される塩は、 $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 、 LiPF_6 、 LiBF_4 及び LiClO_4 から選択され、 LiPF_6 及び $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ が特に好ましい。

【0068】

工程 (d) でリチウム塩 (D) を添加することに加えて、溶媒混合物は、加熱され、及び / 又はリチウム塩の溶解を促進させる振とう、攪拌又はポンプ循環等のさらなる方法に付され得る。

【0069】

一実施の形態は、本発明により得られる溶媒混合物合計に対して 1 ~ 30 質量 % のリチウム塩 (D) の添加を含むことができ、10 ~ 20 質量 % の範囲であることが好ましい。

【0070】

本発明の一変形では、1 種以上の添加剤 (C) を工程 (a) ~ (c) の実施後に添加することができる。しかしながら、当該添加剤 (C) が本発明により得られる溶媒混合物の水含量を合計で 30 質量 ppm 以上に上昇させない場合にのみ賢明である。

【0071】

本発明の一変形では、少なくとも 1 種のさらなる成分 (B) を、最初に成分 (A) と混合された成分 (B) を超えて添加することができる。

【0072】

本発明の方法により得られる溶媒混合物はリチウムイオン電池の製造に、及び製造のために非常に好適である。

【0073】

本発明は、さらに
(A) 式 (I) で表わされる少なくとも 1 種の化合物

【0074】

【化 10】



(B) 式 (II a) 又は (II b) で表わされる少なくとも 1 種の化合物、

【0075】

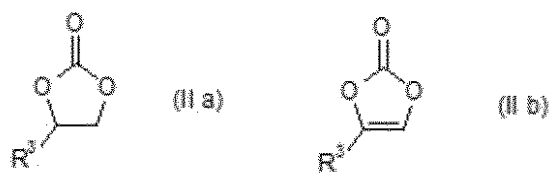
10

20

30

40

【化 1 1】



(C) 任意に、芳香族化合物、スルトン、エキソメチレンエチレンカーボネート、有機ホスフェート、メラミン、尿素及びハロゲン化有機カーボネートから選択される少なくとも1種の添加剤、特に、1種以上のフッ素化有機カーボネート、

(D) 任意に、少なくとも1種のリチウム塩、

及び3～30質量ppmの水、好ましくは5～25質量ppmの水を含む溶媒混合物であって、

上記変数が、以下：

R^1 、 R^2 は、それぞれ同一であるか、あるいは異なっており、且つ $C_1 - C_4$ -アルキルから選択され、

R^3 が、水素及び $C_1 - C_4$ -アルキルから選択される

ように定義されること特徴とする溶媒混合物を提供する。

【0076】

本発明に係る溶媒混合物は、上記本発明に係る方法により有利に得られる。

【0077】

成分(A)、(B)及び水並びに任意の成分(C)及び(D)は上記の通りである。

【0078】

本発明の一実施の形態では、本発明に係る溶媒混合物は、アルコール又は一級若しくは二級アミン等のプロトン性有機化合物の測定可能な割合を含んでいない。

【0079】

本発明の一実施の形態では、本発明に係る溶媒混合物は50質量ppm以下、好ましくは20質量ppm以下、及びより好ましくは10質量ppmのプロトン性有機化合物を含む。

【0080】

本発明の一実施の形態では、本発明に係る溶媒混合物は、
全部で9～90質量%の、好ましくは20～80質量%の式(I)で表わされる化合物、
全部で9～90質量%の、好ましくは20～80質量%の式(II a)又は(II b)で表わされる化合物、

3～30質量ppmの、好ましくは5～25ppmの水、

全部で0～30質量%の、好ましくは1～10質量%の添加剤(C)、

全部で0～30質量%の、好ましくは10～20質量%のリチウム塩(D)を含む。

【0081】

本発明の一実施の形態では、式(I)で表わされる化合物はジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、及びこれらの混合物、すなわち、列挙した化合物であるジメチルカーボネート、ジエチルカーボネート及びメチルエチルカーボネートの少なくとも2種の混合物から選択される。

【0082】

本発明の一実施の形態では、本発明に係る溶媒混合物は式(II a)で表わされる少なくとも1種の化合物及び式(II b)で表わされる少なくとも1種の化合物を含む。

【0083】

本発明の一実施の形態では、本発明に係る溶媒混合物は $LiPF_6$ 、 $LiBF_4$ 、 $LiN(CF_3SO_2)_2$ 、 $LiClO_4$ 、リチウムビスオキサレートボラート、リチウムジ

10

20

30

40

50

フルオルオキサートボラート、 LiAsF_6 、 $\text{LiN}(\text{FSO}_2)_2$ 、 $\text{LiC}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3$ 、 $\text{LiN}(\text{C}_2\text{F}_5\text{SO}_2)_2$ から選択される少なくとも１種のリチウム塩(D)を含み、 LiPF_6 、 LiBF_4 、 $\text{LiN}(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2$ 及びリチウムビスオキサートボラート(LiBOB)であることが好ましい。

【0084】

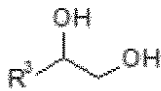
リチウム塩(D)は0.1M～3Mの、好ましくは0.5M～1.5Mの濃度で溶媒混合物に添加することができる。

【0085】

本発明の一実施の形態における本発明に係る溶媒混合物は、全部で50質量ppm未満の式(I)、(IIa)及び/又は(IIb)で表わされる化合物の分解生成物を含む。その分解生成物は、例えば、脂肪族 $\text{C}_1 - \text{C}_4$ -アルカノール、エチレングリコール又は一般式

【0086】

【化12】



[式中、 R^3 はそれぞれ上記の通りである。]で表わされる化合物である。

【0087】

脂肪族 $\text{C}_1 - \text{C}_4$ -アルカノール、エチレングリコール又は上記の式の化合物等の分解生成物はガスクロマトグラフィ等によって検出可能である。

【0088】

好ましい実施の形態における本発明に係る溶媒混合物は、式(I)、(IIa)及び/又は(IIb)で表わされる化合物中に測定可能な割合の分解生成物を含まない。

【0089】

本発明に係る溶媒混合物はリチウムイオン電池の製造に及び製造のために非常に有用である。したがって、本発明はさらに、リチウムイオン電池の製造の際又は製造のための本発明に係る溶媒混合物の使用方法を提供する。本発明はさらに、本発明に係る溶媒混合物を含むリチウムイオン電池を提供する。本発明に係るリチウムイオン電池は良好なサイクル性と優れた安定性を示す。そのリチウムイオン電池は、少なくとも１種のリチウム塩(D)を含む等の本発明に係る溶媒混合物を利用する。

【0090】

本発明に係るリチウムイオン電池は、例えば、遷移金属混合酸化物に基づく(LiMnO_2 、 LiCoO_2 、 LiNiO_2 に基づく等の、 $\text{Li}_{1+w}(\text{Ni}_a\text{Co}_b\text{Mn}_{1-a-b})_{1-w}\text{O}_2$ に基づく)１種以上のカソードを含んでも良い。ここで、 w は0～0.2の範囲内であることができ(好ましくは最大0.1まで)、 a 及び b は、0～1の範囲の数から選択される。但し、 $a+b=1$ の条件に従う。

【0091】

遷移金属混合酸化物に基づくカソードは、例えば炭素を、カーボンブラック、すす、グラファイト、グラフェン等の導電性の形態で、又はカーボンナノチューブとしてさらに含んでも良い。

【0092】

本発明に係る電池中のカソードは、例えば、高分子結合剤等の結合剤をさらに含んでも良い。特に好適な高分子結合剤は、ポリフッ化ビニリデン(PVdF)、ポリテトラフルオロエチレン、テトラフルオロエチレンとヘキサフルオロプロピレンとの共重合体、テトラフルオロエチレンとフッ化ビニリデンとの共重合体、及びポリアクリロニトリルである

。

【0093】

本発明に係るリチウムイオン電池はそれ自体公知の材料からなるアノードを、好ましくは実質的にグラファイトをさらに含んでもよい。本発明に係るリチウムイオン電池は、1個以上の隔離板、1個以上の集電器及び筐体等の、慣用の構成要素をさらに含んでもよい。

。

【0094】

本発明の他の実施の形態では、本発明に係るリチウムイオン電池は、いわゆるリチウム空気電池、すなわち、リチウムの大気酸素との可逆反応により酸化物又は過酸化物を形成する（すなわち、 Li_2O 又は Li_2O_2 を形成する）原理に基づく電池から選択され得る。本発明の他の実施の形態における本発明に係るリチウムイオン電池は、リチウム硫黄電池、すなわち、硫黄のポリスルフィドイオンを介した S^{2-} （ S^{2-} はセルが充電されたときに再酸化される）への反応に基づく電池から選択されても良い。

10

【0095】

本発明を、実施例によって説明する。

【実施例】

【0096】

ppmの値は、全て質量ppmに基づく。決定は、DIN 51777又はISO 760:1978どおりに、電量的検出を伴うカールフィッシャー滴定による。

20

【0097】

I. 本発明に係るリチウムイオン電池の製造

I. 1 本発明に係る溶媒混合物LGM. 1の製造

HS 1000フィルタ上で、アルミノシリケートに基づくゼオライトであって、平均粒径16mmのビーズ形態の、Sylobead（登録商標）MS 564Cとして市販されている3の分子篩37kgを、吸込フィルタであるそのフィルタ表面上のフィルタ上で、1MPa（10bar）で114時間かけて150に加熱することにより活性化した。

。

【0098】

以下のものを、ポンプ回路内の吸込フィルタに接続された攪拌容器中で、乾燥アルゴン下で25で混合した。

30

【0099】

78.2kgのエチレンカーボネート（II. a. 1）、水含量：20ppm

97.6kgのエチルメチルカーボネート（I. 1）、水含量：53ppm

こうして得られる有機カーボネートの混合物を、吸込フィルタ内の分子篩を介してポンプ循環させた。7.5時間後に、15ppmとして決定された水含量を有する本発明に係る溶媒混合物を得た。それ用い、リチウム塩を含む本発明に係る溶媒混合物LGM. 1を得るための、31.0kgの LiPF_6 及び4.4kgのビニレンカーボネートを溶解させた。

【0100】

I. 2 本発明に係るリチウムイオン電池用電極の製造

40

I. 2. 1 カソードの製造

以下のもの：

89gの $\text{Li}_{1.01}\text{Ni}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_{2.01}$

5gのPVdF（Aldrich由来）

3gのカーボンブラック（Super-P（登録商標）、Timcal由来）

3gのカーボンブラック（KS6、Timcal由来）

を、100gのNMPの添加と共に、はちみつ様の懸濁液が形成されるまでアルゴン下で乳鉢中で混合した。はちみつ様の懸濁液をアルミニウム箔上にブレード塗布し、120で16時間乾燥した。こうして得られた乾燥カソード塊の層厚は40μmであった。その層を圧延し、それを25%単位で30μmに圧縮した。次に、電極を50mm×50mm

50

の寸法で切断し、計量し、A1集電コレクタに溶接し、そして真空下、120℃でもう一度乾燥した。

カソードのための決定した活性塊は225mgであった。

I. 2. 2 本発明に係るリチウムイオン電池の製造

I. 2. 1からの乾燥電極をアルゴン充填したグローブボックスに移した。グローブボックス内では、以下の操作を行った：アノードを、その塗布された側面を上にしてヒートシール可能なPET/Al/PET複合フィルム(NEFAB)上に配置し、約500μLのLGM-1を滴らせた。寸法55mm×55mmのポリオレフィン隔離板(セルガード)を電解質で湿らせた電極の中央に折り目無く配置し、同様にLGM-1を滴らせた。次に、カソードに同様にLGM-1を滴らせ、その塗布された側面を下にしてその隔離板の中央に配置した。最後に、過剰量のLGM-1を拭き取り、積層物(PET/Al/PET複合フィルム、アノード、隔離板、カソード)をヒートシール可能なPET/Al/PET複合フィルムで包み、ヒートシール装置を用いて四辺で密封した。

10

【0101】

本発明に係るリチウムイオン電池LIB-1を得た。

【0102】

II. 本発明のリチウムイオン電池LIB-1の電気化学的特性評価：

LIB-1をグローブボックスから取出し、以下の設定を用いた電池試験系(MACCOR)を用いて25℃で(電池の容量を測定しながら)充放電した：

充電：記載したC率で3.2Vから4.2Vまで、その後4.2Vで1時間維持

20

放電：記載したC率で4.2Vから3.2Vまで

電流：0.1C(形成(forming))で1及び2サイクルし、0.5Cで3~300サイクルした。比容量Cは公称値139mAh/gで設定した。

【0103】

結果：

LIB-1のサイクル依存容量及びまた充電/放電効率を図1に示す。3回目のサイクルで測定された(カソード材料に基づく)135mAh/gという容量が、充放電の過程でほとんど低下していないことが明らかである。300サイクル後、その容量はまだ128mAh/gであった。これは、ほんの5%の減少に相当する。ほんの数サイクル後では充放電は高効率(99.95%超)で行われた。

30

【 国际调查报告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/IB2011/053899
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER		
See extra sheet		
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)		
IPC: H01M/-		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
CNPAT, WPI, EPODOC, CNKI: BASF, dimethyl carbonate, diethyl carbonate, methyl ethyl carbonate, ethylene carbonate, vinylene carbonate, water, batter???, electroly+, lithium, ion exchanger, molecular sieve		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	EP0887875A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.), 30 Dec. 1998 (30.12.1998) Claims 1-11, examples 1-6, paragraph 1 on page 2 & lines 40-44 on page 3	1-15
X	CN101685880A (ZHANGJIAGANG GUOTAI HUARONG NEW CHEM. MAT.), 31 Mar. 2010 (31.03.2010) Claims 1-4, examples 1-4	1-15
A	WO2007049888A1 (LG CHEM., LTD.), 03 May 2007 (03.05.2007) Claims 1-10	1-15
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex.		
<p>* Special categories of cited documents:</p> <p>“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>“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)</p> <p>“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search 18 Nov. 2011 (18.11.2011)		Date of mailing of the international search report 05 Jan. 2012 (05.01.2012)
Name and mailing address of the ISA/CN The State Intellectual Property Office, the P.R.China 6 Xitucheng Rd., Jimen Bridge, Haidian District, Beijing, China 100088 Facsimile No. 86-10-62019451		Authorized officer LI, Zhe Telephone No. (86-10)82245331

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/IB2011/053899

Continuation of: A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01M10/05 (2010.01) i

H01M10/056 (2010.01) i

H01M10/36 (2010.01) i

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/IB2011/053899

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
EP0887875A1	30.12.1998	JP11073989A	16.03.1999
		CN1204162A	06.01.1999
		KR19990007408A	25.01.1999
		TW375844A	01.12.1999
		JP4145391B2	03.09.2008
CN101685880A	31.03.2010	None	
WO2007049888A1	03.05.2007	US2007092802A1	26.04.2007
		KR20070044361A	27.04.2007
		EP1952476A1	06.08.2008
		CN101297433A	29.10.2008
		KR100812056B1	07.03.2008
		JP2009514149A	02.04.2009
		TW200731599A	16.08.2007
		EP1952476B1	15.09.2010
		DE602006016979E	28.10.2010

		INTERNATIONALES ANMELDEZEICHEN PCT/IB2011/053899
A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES H01M10/05 (2010.01) i H01M10/056 (2010.01) i H01M10/36 (2010.01) i Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
B. RECHERCHIERTE GEBIETE Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPC: H01M/- Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) CNPAT, WPI, EPODOC, CNKI: BASF, dimethyl carbonate, diethyl carbonate, methyl ethyl carbonate, ethylene carbonate, vinylene carbonate, water, batter???, electrolyt, lithium, ion exchanger, molecular sieve		
C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	EP0887875A1 (MITSUI CHEMICALS, INC.), 30 Dec. 1998 (30.12.1998) Ansprüche 1-11 beispiele 1-6, aufgabe 1 seite 2 & reihen 40-44 seite 3	1-15
X	CN101685880A (ZHANGJIAGANG GUOTAI HUARONG NEW CHEM. MAT.), 31 März 2010 (31.03.10) Ansprüche 1-4, beispielen 1-4	1-15
A	WO2007049888A1 (LG CHEM., LTD.), 03 Mai 2007 (03.05.2007) Ansprüche 1-10	1-15
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen: „A“ Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist „E“ frühere Anmeldung oder Patent, die bzw. das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist „L“ Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) „O“ Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht „P“ Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist „T“ Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrunde liegenden Prinzips oder der ihr zugrunde liegenden Theorie angegeben ist „X“ Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden „Y“ Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist „Z“ Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des tatsächlichen Abschlusses der internationalen Recherche 18 November 2011 (18.11.11)		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts 05 Januar 2012 (05.01.12)
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Fax:		Bevollmächtigter Bediensteter Tel.:

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören		PCT/IB2011/053899	
EP0887875A1	30.12.1998	JP11073989A	16.03.1999
		CN1204162A	06.01.1999
		KR19990007408A	25.01.1999
		TW375844A	01.12.1999
		JP4145391B2	03.09.2008
CN101685880A	31.03.2010	Keine	
WO2007049888A1	03.05.2007	US2007092802A1	26.04.2007
		KR20070044361A	27.04.2007
		EP1952476A1	06.08.2008
		CN101297433A	29.10.2008
		KR100812056B1	07.03.2008
		JP2009514149A	02.04.2009
		TW200731599A	16.08.2007
		EP1952476B1	15.09.2010
		DE602006016979E	28.10.2010

フロントページの続き

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

(72)発明者 マルコウスキー, イトマール, ミヒャエル

ドイツ、6 7 3 4 6 シュパイアー、リンデンヴェーク 1 8

(72)発明者 シュテッカー, フローリアン

ドイツ、6 8 1 6 7 マンハイム、ランゲ レターシュトラッセ 6 1

(72)発明者 キッペンベルガー, ヴニバルト

ドイツ、6 7 0 6 9 ルートヴィヒスハーフェン、ロンドナーリング 8 1

(72)発明者 フメルスベルガー, マルクス

ドイツ、6 8 1 6 9 マンハイム、ダムシュトラッセ 4 4 アー

(72)発明者 ザイツ, クリスティアン

ドイツ、6 9 1 2 0 ハイデルベルク、ヴェルデルシュトラッセ 3 6

(72)発明者 シュツ, マリエラ

ドイツ、6 8 1 6 7 マンハイム、カール ベンツ シュトラッセ 2 8

(72)発明者 ジューリング, カルステン

ドイツ、6 7 2 2 7 フランケンタール、アルブレヒト デュラー リング 2 0 ツェー

Fターム(参考) 5H029 AJ14 AM02 AM03 AM04 AM05 AM07 CJ11

【要約の続き】

(C) 任意に、芳香族化合物、スルトン及びエキソメチレンエチレンカーボネート、メラミン、尿素、有機ホスフェート、及びハロゲン化有機カーボネートから選択される少なくとも1種の添加剤、

(D) 任意に、少なくとも1種のリチウム塩、

及び3 ~ 30質量ppmの水を含む溶媒混合物の製造方法であって、

(a) 成分(A)、(B)及び使用する場合は(C)を互いに混合する工程、

(b) 少なくとも1種のイオン交換体又は分子篩を介して乾燥する工程、

(c) イオン交換体又は分子篩からそれぞれ分離する工程、及び

(d) 使用する場合は少なくとも1種のリチウム塩を添加する工程を有し、

前記変数が、以下：

R^1 , R^2 は、それぞれ同一であるか、あるいは異なっており、且つ $C_1 - C_4$ - アルキルから選択され、

R^3 は、水素及び $C_1 - C_4$ - アルキルから選択される

ように定義されていることを特徴とする製造方法。

【選択図】なし