

明 細 書

発明の名称：

ジスルホニルアミド塩の顆粒または粉末、およびその製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ジスルホニルアミド塩の顆粒または粉末、およびその製造方法に関する。より詳細に、本発明は、電解質などに好適なジスルホニルアミドアルカリ金属塩やジスルホニルアミドアンモニウム塩などのジスルホニルアミド塩の顆粒または粉末、およびその製造方法に関する。

本願は、2013年11月18日に日本に出願された特願2013-237991号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] ビス（フルオロスルホニル）アミドアルカリ金属塩（ $M^+[(FSO_2)_2N^-]$ ）などのジスルホニルアミド塩は、イオン性伝導材料として、または二次電池などに用いられる電解質や添加剤として有用である（特許文献1、特許文献2）。この化合物を電解質として使用する場合、化合物中に含まれる水、灰分、 SO_4^{2-} 、残留溶媒などの不純物が少ないほど好ましいことが報告されている（非特許文献1、特許文献3）。

[0003] ビス（フルオロスルホニル）アミド塩を製造する方法としては、様々な方法が知られている。例えば、非特許文献2では、スルファミン酸と塩化チオニルとクロロスルホン酸を反応させて得られる化合物を、フッ化カリウムと反応させることにより、ビス（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩を製造している。非特許文献2では、前記反応後の反応液を分液操作等して得られる濃縮液に、塩化メチレンを滴下し、析出した結晶を濾別することでビス（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩を得ている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開2006-210331号公報

特許文献2：特表2001-527505号公報

特許文献3：WO2011/149095

非特許文献

[0005] 非特許文献1：松田義晴ほか、リチウム二次電池の負極充放電特性に及ぼす電解液中のイミド塩純度の影響、電気化学会第68回大会講演要旨集、2001年3月25日、第232頁

非特許文献2：Z. Anorg. Allg. Chem. 2005、631、55-59

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 電池特性を劣化させる溶媒などの不純物の含有量が低いジスルホニルアミド塩を提供することが要求されている。

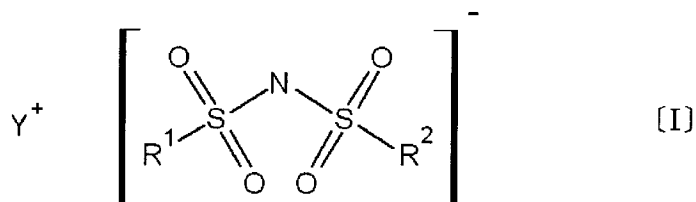
本発明の目的は、このような要求に応え得る、電解質などに好適なジスルホニルアミド塩の顆粒または粉末、およびその製造方法を提供することである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明は、以下の態様を包含する。

〔1〕式〔I〕で表される化合物からなる、モード径が80 μm以下である、顆粒または粉末。

[0008] [化1]



[0009] 式〔I〕中、R¹およびR²はそれぞれ独立して1～6個の炭素原子を有するフッ化アルキル基またはフッ素原子を示し、Y⁺はアルカリ金属カチオンまたはアンモニウムカチオンを示す。

〔２〕モード径が $5\mu\text{m}$ 以上 $80\mu\text{m}$ 以下である〔１〕に記載の顆粒または粉末。

〔３〕式〔Ⅰ〕で表される化合物からなる、メディアン径が $45\mu\text{m}$ 以下である、顆粒または粉末。

〔４〕メディアン径が $5\mu\text{m}$ 以上 $45\mu\text{m}$ 以下である〔３〕に記載の顆粒または粉末。

〔５〕式〔Ⅰ〕で表される化合物からなる、（モード径）／（メディアン径）の比が 1.7 以下である、顆粒または粉末。

〔６〕残留溶媒が 1500ppm 以下である〔１〕～〔５〕のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末。

〔７〕残留溶媒が 800ppm 以下である〔１〕～〔５〕のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末。

〔８〕 R^1 および R^2 がフッ素原子である〔１〕～〔７〕のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末。

〔９〕前記〔１〕～〔８〕のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末を溶解してなる電解液。

〔１０〕式〔Ⅰ〕で表される化合物を含むエステル系溶媒溶液を、ハロゲン化炭化水素系溶媒に添加することによる晶析工程を含む、〔１〕～〔８〕のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末の製造方法。

〔１１〕前記のエステル系溶媒溶液は、式〔Ⅰ〕で表される化合物の濃度が 20 質量％以上 90 質量％以下である、〔１０〕に記載の顆粒または粉末の製造方法。

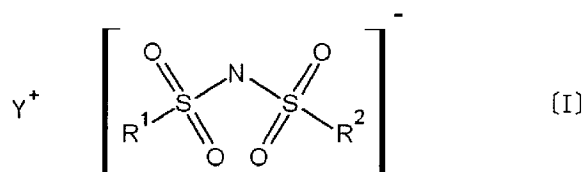
発明の効果

[0010] 本発明に係る顆粒または粉末は、溶媒に素早く均一に溶解させることができ、二次電池、太陽電池などに用いられる電解液の製造の高効率化に資する。また、本発明に係る顆粒または粉末は、溶媒、金属イオンなどの不純物の含有量が低いので、電池特性を劣化させ難い。

発明を実施するための形態

[0011] 本発明に係る顆粒または粉末は、式〔I〕で表される化合物からなるものである。

[0012] [化2]



[0013] 式〔I〕中、 R^1 および R^2 はそれぞれ独立して1～6個の炭素原子を有するフッ化アルキル基またはフッ素原子を示し、 Y^+ はアルカリ金属カチオンまたはアンモニウムカチオンを示す。

[0014] R^1 および R^2 における1～6個の炭素原子を有するフッ化アルキル基としては、トリフルオロメチル基、ペルフルオロエチル基、ペルフルオロプロピル基などが挙げられる。フッ化アルキル基はアルキル基のすべての水素原子がフッ素原子で置換されているものが好ましい。これらのうち R^1 および R^2 はともにフッ素原子であることが好ましい。

[0015] Y^+ におけるアルカリ金属カチオンとしては、リチウムカチオン、ナトリウムカチオン、カリウムカチオンなどが挙げられる。

[0016] 式〔I〕で表わされる化合物は公知の方法によって製造することができる。式〔I〕で表わされる化合物の製造方法としては、例えば、スルファミン酸と塩化チオニルとクロロスルホン酸を反応させて得られる化合物を、フッ化カリウムと反応させることを含む方法、有機溶媒中で、ビス（フルオロスルホニル）アミンアンモニウム塩を、カチオン交換反応させて、ビス（フルオロスルホニル）アミンリチウム塩に転化させることを含む方法、ビス（クロロスルホニル）アミンアンモニウム塩とフッ化水素とを反応させることを含む方法などが挙げられる。

[0017] 本発明の一実施形態に係る顆粒または粉末は、モード径が、好ましくは $80 \mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $5 \mu\text{m}$ 以上 $80 \mu\text{m}$ 以下である。モード径は、個数基準粒度分布における最頻度粒子径である。本発明におけるモード径は

、レーザー回折法によって測定される値である。具体的には、測定対象の顆粒または粉末をジクロロメタンに分散させ、その分散液をレーザー回折式粒度分布測定装置〔島津製作所社製、SALD-2200〕にセットして測定する。該モード径が大きくなりすぎると、電池特性を劣化させる恐れのある溶媒などの不純物の量が多くなる傾向がある。

[0018] 本発明の一実施形態に係る顆粒または粉末は、メディアン径が、好ましくは $4.5\text{ }\mu\text{m}$ 以下、より好ましくは $5\text{ }\mu\text{m}$ 以上 $4.5\text{ }\mu\text{m}$ 以下である。メディアン径は、個数基準累積粒度分布における50%粒子径である。本発明におけるメディアン径は、レーザー回折法によって測定される値である。具体的には、測定対象の顆粒または粉末をジクロロメタンに分散させ、その分散液をレーザー回折式粒度分布測定装置〔島津製作所社製、SALD-2200〕にセットして測定する。該メディアン径が大きくなりすぎると、電池特性を劣化させる恐れのある溶媒などの不純物の量が多くなる傾向がある。

[0019] 本発明の一実施形態に係る顆粒または粉末は、(モード径)/(メディアン径)の比が、好ましくは1.7以下、より好ましくは1.5以下である。(モード径)/(メディアン径)の比が1に近いほど粒度分布が狭いことを意味する。また、(モード径)/(メディアン径)が小さいほど微細な顆粒または粉末が多いことを意味する。モード径およびメディアン径は前述した方法で決定することができる。(モード径)/(メディアン径)の比が大きくなると、大粒径領域の顆粒または粉末に溶媒などの不純物が除去しきれずに残り易くなる。

[0020] 本発明の好ましい実施形態に係る顆粒または粉末は、残留溶媒の量が好ましくは 1500 ppm 以下、より好ましくは 800 ppm 以下である。ここで残留溶媒の量は、エステル系溶媒およびハロゲン化炭化水素系溶媒の合計量である。残留溶媒の量が多すぎると電池特性を劣化させる恐れが高くなる。残留溶媒の量は、測定対象の顆粒または粉末 50 mg を水 5 mL 及びメタノール $1\text{ }\mu\text{L}$ に添加して密閉して測定用の溶液を得、この液を、ヘッドスペースガスクロマトグラフ質量分析システムを用いて下記の条件にて分析する

ことによって決定できる。

[0021] 〈分析条件〉

装置： 島津製作所社製 GCMS-QP2010 plus、GC-2010、パーキンエルマ社製 Turbo Matrix 40

カラム： HP-5（長さ：30m、カラム内径：0.53mm、膜厚：0.25 μ m）（アジレント社製）

カラム温度条件： 50℃（0分保持）、5℃/分で100℃まで昇温（0分保持）

ヘッドスペース条件： バイアル温度70℃（20分保持）、ニードル温度100℃、トランスファライン温度150℃

キャリアガス： ヘリウム、80kPa

インターフェース温度： 230℃

イオン源： EI

イオン源温度： 200℃

測定モード： SIM（ターゲットイオンm/z 72、確認イオンm/z 71）

[0022] 本発明に係る顆粒または粉末は、その調製方法によって、特に限定されない。調製方法としては、例えば、析出または晶析を含む方法、噴霧乾燥を含む方法、凍結乾燥を含む方法、粉碎、造粒および／または分級を含む方法などが挙げられる。これらのうち、本発明では析出または晶析を含む方法で顆粒または粉末を調製するのが好ましい。析出または晶析を含む方法には、蒸発晶析法、冷却晶析法、貧溶媒晶析法などが有るが、貧溶媒晶析法が好ましい。

[0023] 貧溶媒晶析法は、溶液に貧溶媒を添加することによって行う方法と、貧溶媒に溶液を添加することによって行う方法があるが、本発明においては後者の方法が好ましい。前者の方法は貧溶媒を添加する条件（添加速度、添加位置など）が晶析の状態に影響し、例えば、粒径の大きい顆粒または粉末の割合が多くなることがある。

- [0024] 本発明に係る顆粒または粉末の製造に好適な方法は、式〔I〕で表される化合物を含むエステル系溶媒溶液を、ハロゲン化炭化水素系溶媒に添加することによる晶析工程を含むものである。
- [0025] エステル系溶媒は式〔I〕で表される化合物の溶解度が高いものであれば特に限定されない。本発明に用いることができるエステル系溶媒としては、酢酸エチル、酢酸メチル、酢酸ブチル、酢酸メトキシブチル、酢酸セロソルブ、酢酸アミル、酢酸ノルマルプロピル、酢酸イソプロピル、乳酸メチル、乳酸エチル、乳酸ブチルなどが挙げられ、酢酸ブチルが好ましく使用される。
- [0026] 式〔I〕で表される化合物を含むエステル系溶媒溶液は、エステル系溶媒に式〔I〕で表される化合物を添加溶解させることによって得ることができる。また、エステル系溶媒中にて式〔I〕で表される化合物を前述したような反応で合成することによっても得ることができる。前記エステル系溶媒溶液は、式〔I〕で表される化合物の濃度が、好ましくは20質量%以上90質量%以下、より好ましくは30質量%以上75質量%以下、より更に好ましくは30質量%以上50質量%以下である。濃度が低すぎると生産性が低下し、濃度が高すぎると溶液の粘度が高くなって扱いが不便となる傾向にある。
- [0027] ハロゲン化炭化水素系溶媒は、式〔I〕で表される化合物の溶解度が小さいもの、すなわち貧溶媒であれば特に限定されない。本発明に用いることができるハロゲン化炭化水素系溶媒としては、ジクロロメタン、トリクロロエチレン、パークロロエチレン、1, 1-ジクロロ-1-フルオロエタン、3, 3-ジクロロ-1, 1, 1, 2, 2-ペンタフルオロプロパン、1, 3-ジクロロ-1, 1, 2, 2, 3-ペンタフルオロプロパン、ブromoプロパン、クロロホルムなどが挙げられ、ジクロロメタンが好ましく使用される。ハロゲン化炭化水素系溶媒の使用量（体積）は、特に制限されないが、前記エステル系溶媒溶液の体積よりも多いことが好ましい。
- [0028] ハロゲン化炭化水素系溶媒の添加の条件は、特に制限されない。晶析時の温度も特に制限されない。例えば、室温付近にて、好ましくは0～50℃にて、晶析を行うことができる。

[0029] 次に、晶析によって得られた顆粒または粉末を母液から分離する。分離方法として、化学工学における通常の固液分離操作を採用することができる。例えば、沈降法、遠心分離法などが挙げられる。なお、分離された母液は、エステル系溶媒とハロゲン化炭化水素系溶媒とに液液分離して、式〔I〕で表される化合物の合成工程、式〔I〕で表される化合物の晶析工程などにおいて再使用することができる。液液分離は蒸留法などの公知の方法で行うことができる。

[0030] 母液から分離された顆粒または粉末は、公知の方法によって乾燥させる。乾燥は、真空乾燥法、熱風乾燥法、赤外線乾燥法、マイクロ波乾燥法などの方法で行うことができる。これらのうち、真空乾燥法が好ましく、不活性ガスを循環させての真空乾燥法がより好ましい。乾燥温度は、好ましくは20～70℃、より好ましくは30～65℃である。乾燥温度が高すぎると式〔I〕で表される化合物の分解反応が起きることがある。乾燥温度が低すぎると残留溶媒の量が多くなることがある。

[0031] このようにして得られる本発明の顆粒または粉末は、二次電池などにおいて用いられる電解質に好適である。

[0032] 本発明の実施形態に係る電解液は、本発明の顆粒または粉末を溶解してなるものである。電解液に用いられる溶媒は、用途に応じて適切なものを選択することができる。溶媒としては、例えば、エチレンカーボネート、ジエチルカーボネート、ジメチルカーボネート、メチルエチルカーボネート、プロピレンカーボネート、ブチレンカーボネート、γ-ブチロラクトン、ビニレンカーボネート；イミダゾリウム塩イオン液体、ピロリジニウム塩イオン液体、ピペリジニウム塩イオン液体、ピリジニウム塩イオン液体、脂肪族系イオン液体、ホスホニウム塩イオン液体、スルホニウム塩イオン液体、アンモニウム塩イオン液体、よう素系イオン液体などの非水系溶媒が挙げられる。リチウムイオン電池に用いられる電解液には、本発明の顆粒または粉末以外の、リチウム塩が含まれていてもよい。リチウム塩としては、 LiClO_4 、 LiPF_6 、 LiAsF_6 、 LiBF_4 、 LiSO_3CF_3 、 $\text{CH}_3\text{SO}_3\text{Li}$ 、 CF_3

S O₃L i などが挙げられる。

実施例

[0033] 以下、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明する。なお、本発明は以下の実施例によって制限を受けるものではなく、本発明の趣旨に適合し得る範囲で適宜に変更を加えて実施することが勿論可能であり、それらはいずれも本発明の技術的範囲に包含される。

[0034] 合成例 1

(ジ(クロロスルホニル)アミドの合成)

攪拌器、温度計および還流管を取り付けた反応容器に、クロロスルホン酸 123.9 質量部、およびクロロスルホニルイソシアネート 98.1 質量部を仕込んだ。この混合液を攪拌しながら、2.5 時間かけて 130℃まで昇温し、次いで 130℃で 9 時間反応させた。その後、減圧蒸留を行って 98.5℃～101℃/4.2 torr の留分を分取した。ジ(クロロスルホニル)アミドが無色透明な液状物として 77.9 質量部得られた。

[0035] 合成例 2

(ジ(フルオロスルホニル)アミドアンモニウム塩の合成)

フッ素樹脂製反応容器に、合成例 1 で得られたジ(クロロスルホニル)アミド 1.07 質量部を仕込んだ。これにアセトニトリル 7.9 質量部およびフッ化アンモニウム 0.89 質量部を添加し、80～84℃で 4 時間還流して反応させた。その後、室温に冷却し、不溶物を濾し取り、アセトニトリル 7.9 質量部で洗浄した。次いで、溶媒を減圧下で留去して、ジ(フルオロスルホニル)アミドアンモニウム塩 0.95 質量部を得た。

[0036] 実施例 1

反応容器に、ジ(フルオロスルホニル)アミドアンモニウム塩 33.4 質量部、酢酸ブチル 69.5 質量部、および水酸化カリウム 102.5 質量部の 20% 水溶液を仕込み、100 torr の減圧下、40℃で 1 時間攪拌した。反応液を 25℃に冷却した。その後、分液し、水相を酢酸ブチル 81.1 質量部で 2 回抽出した。各抽出操作において得られた有機相を混ぜ合わせ

、水 4.6 質量部で 2 回洗浄した。得られた有機相を減圧下で溶媒留去して 39.1 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 91.2 質量部を得た。収率は 97%であった。

[0037] ジクロロメタン 244.1 質量部に、39.1 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 91.2 質量部を 16～24℃で 52 分間かけて滴下した。1 時間かけて 10℃まで冷却した。その後、7～10℃で 42 分間攪拌した。得られたスラリー液を濾過し、ジクロロメタン 74.0 質量部で洗浄した。得られた固形物を、6 torr の真空下、60℃で 13.4 時間乾燥させて顆粒 35.1 質量部を得た。収率はジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩仕込み量に対し 98%であった。顆粒は、メディアン径が 34.563 μm 、モード径が 26.121 μm 、残留溶媒の量が 370 ppm（ジクロロメタン 210 ppm、酢酸ブチル 160 ppm）であった。

[0038] 実施例 2

実施例 1 と同じ方法で 38.0 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 71.7 質量部を得た。

ジクロロメタン 167.6 質量部に、38.0 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 71.7 質量部を 19～20℃で 30 分間かけて滴下した。1 時間かけて 10℃まで冷却した。その後、10℃で 30 分間攪拌した。得られたスラリー液を濾過し、ジクロロメタン 50.3 質量部で洗浄した。得られた固形物を、2 torr の真空下、40℃で 1 時間乾燥させ、次いで 0.5 torr の真空下、60℃で 2 時間乾燥させて顆粒 25.8 質量部を得た。収率はジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩仕込み量に対し 98%であった。顆粒は、メディアン径が 35.313 μm 、モード径が 39.619 μm 、残留溶媒の量が 640 ppm（ジクロロメタン 550 ppm、酢酸ブチル 90 ppm）であった。

[0039] 実施例 3

実施例 1 と同じ方法で 36.5 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミド

カリウム塩／酢酸ブチル溶液 73.2 質量部を得た。

ジクロロメタン 162.4 質量部に、36.5 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 73.2 質量部を 24～32℃で 29 分間かけて滴下した。2.1 時間かけて 12℃まで冷却した。得られたスラリー液を濾過し、ジクロロメタン 48.8 質量部で洗浄した。得られた固形物を 8～10 torr の真空下、60℃で 18.1 時間乾燥させて顆粒 25.3 質量部を得た。収率はジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩仕込み量に対し 95%であった。顆粒は、メディアン径が 39.658 μm、モード径が 39.619 μm、残留溶媒の量が 790 ppm（ジクロロメタン 430 ppm、酢酸ブチル 360 ppm）であった。

[0040] 実施例 4

実施例 1 と同じ方法で 37.3 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 82.0 質量部を得た。

ジクロロメタン 188.1 質量部に、37.3 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 82.0 質量部を 17～19℃で 30 分間かけて滴下した。32 分間かけて 10℃まで冷却した。その後、5～10℃で 1.2 時間攪拌した。得られたスラリー液を濾過し、ジクロロメタン 56.1 質量部で洗浄した。得られた固形物を 11 torr の真空下、60℃で 18.1 時間乾燥させて顆粒 15.5 質量部を得た。収率はジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩仕込み量に対し 98%であった。顆粒は、メディアン径が 34.420 μm、モード径が 39.619 μm、残留溶媒の量が 1160 ppm（ジクロロメタン 800 ppm、酢酸ブチル 360 ppm）であった。

[0041] 比較例 1

実施例 1 と同じ方法で 38.8 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 81.5 質量部を得た。

38.8 質量%のジ（フルオロスルホニル）アミドカリウム塩／酢酸ブチル溶液 81.5 質量部に、ジクロロメタン 194.2 質量部を 4～5℃で 3

9分間かけて滴下した。滴下終了後、4～5℃で1.4時間攪拌した。得られたスラリー液を濾過し、ジクロロメタン57.9質量部で洗浄した。得られた固形物を5 t o r rの真空下、60℃で12.3時間乾燥させ、4 t o r rの真空下、60℃で20.5時間乾燥させ、次いで、6 t o r rの真空下、60℃で18.9時間乾燥させて顆粒30.9質量部を得た。収率はジ（フルオロスルホニル）イミドカリウム塩仕込み量に対し98%であった。顆粒は、メディアン径が51.796 μm 、モード径が91.146 μm 、残留溶媒の量が5100 p p m（ジクロロメタン2300 p p m、酢酸ブチル2800 p p m）であった。メディアン径が45 μm よりも大きく、モード径が80 μm よりも大きく、且つモード径／メディアン径の比が1.7よりも大きい顆粒は長時間の乾燥を行っても残留溶媒の量が減らなかった。

[0042] 以上の結果は、本発明に従って、メディアン径を45 μm 以下に、モード径を80 μm 以下におよび／またはモード径／メディアン径の比を1.7以下に調整した顆粒または粉末は、残留溶媒の量が少ないので、二次電池、太陽電池などに用いられる電解液用の電解質として有用であることを証している。

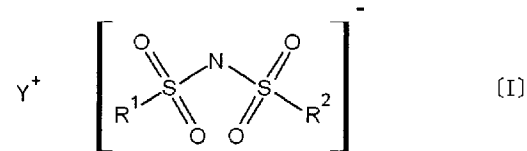
産業上の利用可能性

[0043] 本発明に係る顆粒または粉末は、溶媒に素早く均一に溶解させることができ、二次電池、太陽電池などに用いられる電解液の製造の高効率化に資する。また、本発明に係る顆粒または粉末は、溶媒、金属イオンなどの不純物の含有量が低いので、電池特性を劣化させ難い。

請求の範囲

[請求項1] 式〔I〕で表される化合物からなる、モード径が80 μm以下である、顆粒または粉末。

[化1]

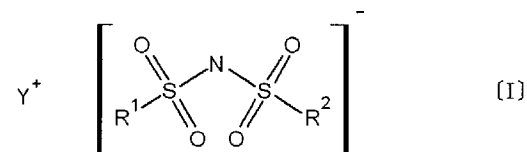


式〔I〕中、R¹およびR²はそれぞれ独立して1～6個の炭素原子を有するフッ化アルキル基またはフッ素原子を示し、Y⁺はアルカリ金属カチオンまたはアンモニウムカチオンを示す。

[請求項2] モード径が5 μm以上80 μm以下である請求項1に記載の顆粒または粉末。

[請求項3] 式〔I〕で表される化合物からなる、メディアン径が45 μm以下である、顆粒または粉末。

[化2]

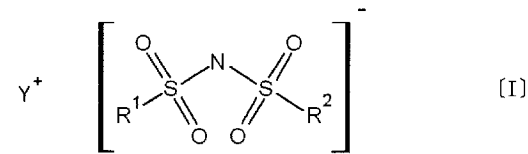


式〔I〕中、R¹およびR²はそれぞれ独立して1～6個の炭素原子を有するフッ化アルキル基またはフッ素原子を示し、Y⁺はアルカリ金属カチオンまたはアンモニウムカチオンを示す。

[請求項4] メディアン径が5 μm以上45 μm以下である請求項3に記載の顆粒または粉末。

[請求項5] 式〔I〕で表される化合物からなる、(モード径)／(メディアン径)の比が1.7以下である、顆粒または粉末。

[化3]



式〔I〕中、 R^1 および R^2 はそれぞれ独立して1～6個の炭素原子を有するフッ化アルキル基またはフッ素原子を示し、 Y^+ はアルカリ金属カチオンまたはアンモニウムカチオンを示す。

[請求項6] 残留溶媒が1500ppm以下である請求項1～5のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末。

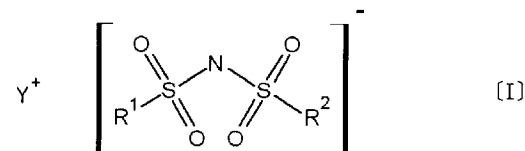
[請求項7] 残留溶媒が800ppm以下である請求項1～5のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末。

[請求項8] R^1 および R^2 がフッ素原子である請求項1～7のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末。

[請求項9] 請求項1～8のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末を溶解してなる電解液。

[請求項10] 式〔I〕で表される化合物を含むエステル系溶媒溶液を、ハロゲン化炭化水素系溶媒に添加することによる晶析工程を含む、請求項1～8のいずれかひとつに記載の顆粒または粉末の製造方法。

[化4]



式〔I〕中、 R^1 および R^2 はそれぞれ独立して1～6個の炭素原子を有するフッ化アルキル基またはフッ素原子を示し、 Y^+ はアルカリ金属カチオンまたはアンモニウムカチオンを示す。

[請求項11] 前記のエステル系溶媒溶液は、式〔I〕で表される化合物の濃度が20質量%以上90質量%以下である、請求項10に記載の顆粒また

は粉末の製造方法。