

(12) DEMANDE INTERNATIONALE PUBLIÉE EN VERTU DU TRAITÉ DE COOPÉRATION EN MATIÈRE DE BREVETS (PCT)

(19) Organisation Mondiale de la  
Propriété Intellectuelle  
Bureau international



(10) Numéro de publication internationale  
**WO 2024/105128 A1**

(43) Date de la publication internationale  
23 mai 2024 (23.05.2024)

(51) Classification internationale des brevets :

*H01M 10/0567* (2010.01) *H01M 4/485* (2010.01)  
*H01M 10/0569* (2010.01) *H01M 4/505* (2010.01)  
*H01M 10/0525* (2010.01) *H01M 4/525* (2010.01)  
*H01M 10/054* (2010.01) *H01M 4/58* (2010.01)  
*C07F 9/54* (2006.01) *H01M 4/587* (2010.01)

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) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection régionale disponible) : ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasiatique (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), européen (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).

(21) Numéro de la demande internationale :

PCT/EP2023/081963

(22) Date de dépôt international :

15 novembre 2023 (15.11.2023)

(25) Langue de dépôt :

français

(26) Langue de publication :

français

(30) Données relatives à la priorité :

FR2211929 16 novembre 2022 (16.11.2022) FR

(71) Déposant : **SOLVIONIC** [FR/FR] ; 11 Chemin des Silos, 31100 TOULOUSE (FR).

(72) Inventeurs : **RULLIERE, Pauline** ; Chez Solvionic, 11 Chemin des Silos, 31100 TOULOUSE (FR). **BREMOND, Emma** ; Chez Solvionic, 11 Chemin des Silos, 31100 TOULOUSE (FR). **FALGAYRAT, Anaïs** ; Chez Solvionic, 11 Chemin des Silos, 31100 TOULOUSE (FR). **LIN, Rongying** ; Chez Solvionic, 11 Chemin des Silos, 31100 TOULOUSE (FR). **FANTINI, Sébastien** ; Chez Solvionic, 11 Chemin des Silos, 31100 TOULOUSE (FR). **MALBOSC, François** ; Chez Solvionic, 11 Chemin des Silos, 31100 TOULOUSE (FR).

(74) Mandataire : **MARTIN-TOUAUX, Elsa** ; IP TRUST, 2 rue de Clichy, 75009 PARIS (FR).

(81) États désignés (sauf indication contraire, pour tout titre de protection nationale disponible) : 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,

Publiée:

- avec rapport de recherche internationale (Art. 21(3))
- avant l'expiration du délai prévu pour la modification des revendications, sera republiée si des modifications sont reçues (règle 48.2(h))
- en noir et blanc ; la demande internationale telle que déposée était en couleur ou en échelle de gris et est disponible sur PATENTSCOPE pour téléchargement.

(54) Title: (2-CYANOETHYL) PHOSPHONIUM SALT-BASED ELECTROLYTE COMPOSITION, AND BATTERY COMPRISING SAME

(54) Titre : COMPOSITION D'ELECTROLYTE A BASE DE SEL DE (2-CYANOETHYL)PHOSPHONIUM ET BATTERIE LE COMPRENANT

(57) Abstract: The present invention relates to a (2-cyanoethyl) phosphonium salt-based electrolyte composition and to the battery comprising same. More particularly, the present invention relates to an improved electrolyte composition for a lithium-ion or sodium-ion battery leading to improved capacity and cyclability. The electrolyte composition comprises a lithium or sodium salt, an aprotic organic solvent, and a (2-cyanoethyl) phosphonium salt compound.

(57) Abrégé : La présente invention concerne une composition d'électrolyte à base de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium ainsi que la batterie le comprenant. Elle concerne plus particulièrement une composition d'électrolyte améliorée pour batterie lithium-ion ou sodium-ion conduisant à une capacité et une cyclabilité améliorées. Cette composition d'électrolyte comprend un sel de lithium ou de sodium, un solvant organique aprotique, un composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium.



WO 2024/105128 A1

## Description

### **Titre de l'invention : COMPOSITION D'ELECTROLYTE A BASE DE SEL DE (2-CYANOETHYL)PHOSPHONIUM ET BATTERIE LE COMPRENANT**

[0001] La présente invention concerne une composition d'électrolyte à base de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium ainsi que la batterie le comprenant. Elle concerne plus particulièrement une composition d'électrolyte améliorée pour batterie lithium-ion ou sodium-ion conduisant à une capacité et une cyclabilité améliorées. Cette composition d'électrolyte comprend un sel de lithium ou de sodium, un solvant organique aprotique, un composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium.

#### **Domaine de l'invention**

[0002] Une batterie électrochimique est assemblée à partir d'une cathode (électrode positive), d'une anode (électrode négative), d'un séparateur et d'un électrolyte. Le principe de fonctionnement est basé sur l'échange réversible des ions entre la cathode et l'anode. Il y a oxydation du matériau de l'anode et réduction des composants électrolytiques et il y a réduction du matériau de la cathode et oxydation des composants électrolytiques. Grâce à ces réactions d'oxydo-réduction, une batterie est chargée par la conversion d'énergie électrique en énergie chimique. L'électrolyte joue un rôle important dans le transport des ions entre la cathode et l'anode. Différents composés sont utilisés dans les électrolytes. Certains composés d'électrolyte se dégradent et participent à la formation de l'interphase électrolyte solide (SEI) et à la formation de l'interphase de l'électrolyte cathodique (CEI) pour améliorer les propriétés et donc les performances de la cellule électrochimique, notamment la cyclabilité, l'efficacité coulombique et la capacité.

[0003] La technologie d'électrolyte actuelle met en œuvre des composés qui ne permettent pas une amélioration suffisante de la capacité et de la durée de vie de la cellule électrochimique.

[0004] L'état de l'art décrit différents composés tels que le carbonate de vinylène (communément appelé VC), le carbonate de fluoroéthylène (communément appelé FEC), le 1,3,6-hexanetricarbonitrile, l'acétonitrile, les siloxanes, les sulfates, les sulfites, les phosphates etc. qui ne permettent pas d'atteindre une excellente cyclabilité c'est-à-dire une longue durée de vie pour la batterie et une excellente capacité tout en conservant une bonne conductivité de l'électrolyte. Ils ne sont pas thermiquement stables et ne permettent pas d'être solubles en des proportions variables dans le solvant de l'électrolyte pour s'adapter aux choix des matériaux d'électrodes.

[0005] "The Role of Electrolyte Additives on the Interfacial Chemistry and Thermal

Reactivity of Si-Anode-Based Li-Ion Battery”, ACS Applied Energy Materials 2019 2 (9), 6513-6527, décrit des composés classiques qui, malgré leurs caractéristiques bénéfiques, conduisent à des problèmes persistants. Par exemple, la présence de VC dans l'électrolyte peut conduire à une impédance de la cellule trop élevée. Dans un autre exemple, la présence de FEC dans l'électrolyte peut entraîner un dégagement gazeux important à température élevée et donc un risque d'emballement thermique.

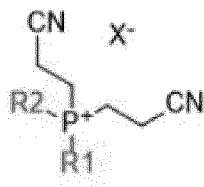
- [0006] « Classical solid electrolyte interphase additives, such as vinylene carbonate and fluoroethylene carbonate, have limited potential for simultaneously achieving a long lifespan and fast chargeability in high-energy-density lithium-ion batteries (LIBs).” Park *et al.* 2021, décrit le développement des nouveaux composés d'électrolytes pour les batteries Li-ion à haute-densité énergétique. Cette référence décrit les inconvénients des composés d'électrolyte classiques tels que le carbonate de vinylène et le carbonate de fluoroéthylène, ils ne permettent pas d'obtenir simultanément une durée de vie (cyclabilité) suffisante et une capacité de charge suffisamment rapide dans les batteries lithium-ion à haute densité d'énergie.
- [0007] Le document DE102008021271 décrit un électrolyte comprenant un sel de mono(2-cyanoéthyl)phosphonium.
- [0008] Le document JP2018056013 décrit également un électrolyte comprenant un sel de mono(2-cyanoéthyl)phosphonium.
- [0009] Les composés à base de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium sont intéressants en particulier du fait qu'ils sont stables jusqu'à une température de 250 °C ; ces composés permettent de pouvoir choisir l'un ou l'autre de ses membres pour s'adapter à la nature de l'électrode ainsi que de moduler sa solubilité dans le solvant de l'électrolyte et ne pas être à l'origine d'une augmentation de la résistance interne de la cellule électrochimique lors de l'étape de formation de la SEI et / ou de la CEI. Toutefois, les composés de mono(2-cyanoéthyl)phosphonium ont l'inconvénient de devoir être en concentration plus élevée pour atteindre la même efficacité dans le temps que les composés de bis(2-cyanoéthyl)phosphonium ou les composés de tris(2-cyanoéthyl)phosphonium. En effet, pour atteindre la même efficacité, il est opportun de multiplier la concentration des mono(2-cyanoéthyl)phosphonium alors que lorsque la molécule de phosphonium porte deux ou trois chaînes 2-cyanoéthyles, il y a seulement besoin d'une concentration plus faible de molécule. Ceci est important pour éviter une viscosité trop élevée et donc éviter une diminution de la conductivité de l'électrolyte. Il existe un besoin d'un composé d'électrolyte thermiquement stable, soluble en des proportions variables dans le solvant de l'électrolyte pour répondre au besoin du choix d'électrodes et maintenir une excellente capacité, une excellente cyclabilité ainsi qu'une bonne conductivité et une bonne stabilité électrochimique de la batterie.

## Résumé de l'invention

[0010] Les inventeurs de la présente invention ont développé une nouvelle composition d'électrolyte pour batterie lithium-ion et sodium-ion apportant à ces systèmes une bonne cyclabilité et une bonne capacité.

[0011] Selon un premier aspect de l'invention, la composition d'électrolyte comprend un sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium de formule (I)

[0012] [Chem.1]



(I)

[0013] dans laquelle

[0014] X- est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthanides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates ;

[0015] R1 est *indépendamment* choisi parmi une chaîne -CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CN non substituée, par un alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique ; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons ;

[0016] R2 est *indépendamment* choisi parmi un groupement alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique ; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[0017] Selon un second aspect, l'invention concerne une batterie comprenant une anode, une cathode et une composition d'électrolyte à base de composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium tel que représenté par la formule (I).

## Avantages de l'invention

[0018] L'invention propose une nouvelle famille de compositions d'électrolyte pour batterie à base de sel de phosphonium. Ces compositions permettent d'avoir un électrolyte qui

sera utilisé dans une batterie ayant une bonne cyclabilité et capacité. Cela conduit à l'obtention d'une batterie performante et durable.

[0019] Cette nouvelle famille de compositions d'électrolyte présente plusieurs avantages.

[0020] Premièrement, les composés d'électrolyte de cette famille combinent les propriétés du nitrile présent au moins deux fois au sein de la molécule et celle de l'atome de phosphore qui permet un meilleur transport des ions Li<sup>+</sup>. Le ratio molaire du composé en fonction du nombre de fonctions nitriles portées par le composé est également amélioré. En effet, plus il y a de fonctions nitriles portées par le composé, moins il sera nécessaire d'augmenter la masse de composé ajouté ; chaque composé possède un optimum de concentration pour lequel la conductivité est maximale. La concentration sera plus faible et la conductivité sera ainsi améliorée.

[0021] La fonction nitrile ajoute une polarité et une réactivité spécifique. Ceci influence également d'autres propriétés physiques telles que le moment dipolaire et la constante diélectrique. En outre, la fonction nitrile ajoute des propriétés de solvatation aux cations phosphonium en intra- et en intermoléculaire, ce qui améliore la mobilité des ions Li<sup>+</sup>.

[0022] Deuxièmement, le sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium est thermiquement stable jusqu'à 250 °C. Cela lui permet d'une part de ne pas se décomposer en des sous-produits qui pourraient être défavorables aux bonnes performances de la batterie. D'autre part la fonction chimique nitrile lui permet de participer à la formation de la SEI et CEI de façon sacrificielle pour conserver les propriétés chimiques des autres composés d'électrolyte afin d'obtenir une SEI stable et efficace pour la bonne performance de la batterie. Ce composé permet de pouvoir former une SEI à une température de 45 °C.

[0023] Troisièmement, le composé est soluble dans le solvant de l'électrolyte dans des proportions variables pour répondre au besoin de s'adapter à la nature des matériaux d'électrodes. En effet, ce composé par sa nature ionique est soluble dans une proportion nécessaire pour le type d'électrode choisi.

[0024] Cette nouvelle famille de compositions d'électrolyte permet de répondre à ce besoin.

[0025] Quatrièmement, un grand nombre de molécules d'électrolyte est accessible par remplacement des radicaux R1 et R2 ce qui permet d'avoir la molécule la plus en adéquation avec le système électrochimique, notamment vis-à-vis du choix des électrodes et pour atteindre un haut voltage.

[0026] Cinquièmement, le procédé de synthèse des composés d'électrolyte de cette famille de compositions est industrialisable.

[0027] La batterie présente une haute capacité et une longue cyclabilité du fait de la nature des sels d'électrolyte, à savoir la présence de l'atome de phosphore et la présence d'au moins deux chaînes 2-cyanoéthyles, la molécule d'électrolyte se trouvant sous forme

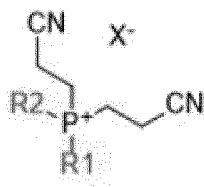
monomère ou dimère. Le dimère étant un homodimère, la nature de la substitution chimique restant la même, le monomère et le dimère auront des propriétés chimiques similaires.

[0028] Les composés bis(2-cyanoéthyl)lphosphonium et tris(2-cyanoéthyl)phosphonium sont les composés préférés.

### Description détaillée de l'invention

[0029] Un premier objet de l'invention concerne une composition d'électrolyte comprenant un sel de Lithium ou un sel de Sodium, un solvant organique aprotique et un composé d'électrolyte, dans laquelle ledit composé d'électrolyte comprend un sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium tel que représenté par la formule (I) :

[0030] [Chem.1]



(I)

[0031] dans laquelle

[0032] X- est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthanides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates;

[0033] R1 est *indépendamment* choisi parmi le groupe constitué par une chaîne -CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CN non substituée, par un alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique ; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle fluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[0034] R2 est *indépendamment* choisi parmi le groupe constitué par un groupement alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique ; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[0035] Les atomes d'hydrogène peuvent donc être substitués en partie dans la mesure où la molécule est stable.

- [0036] Le terme "alkyle" désigne un radical aliphatique saturé, linéaire ou ramifié, ayant le nombre d'atomes de carbone indiqué. Le fragment alkyle peut être à chaîne linéaire ou ramifiée
- [0037] Le terme "alcényle" désigne un groupement alkyle, tel que défini ci-dessus, comportant au moins une double liaison C=C.
- [0038] Le terme "alcynyle" désigne un groupement alkyle, tel que défini ci-dessus, comportant au moins une triple liaison C≡C.
- [0039] Le terme "cycloalkyle" désigne un ensemble de cycles saturés ou partiellement insaturés, monocyclique, bicyclique, polycyclique ponté ou spiro. Les cycles monocycliques comprennent, par exemple, les cycles cyclopropyle, cyclobutyle, cyclopentyle et cyclohexyle.
- [0040] Dans un mode de réalisation particulièrement préféré, le sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium comprend trois chaînes 2-cyanoéthyles et correspond à la formule (II) dans laquelle
- [0041] X- est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthanides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates;
- [0042] R1 est *indépendamment* choisi parmi un alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique ; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.
- [0043] R2 est *indépendamment* choisi parmi un groupement alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique ; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile un groupement thioéther ou leurs combinaisons.
- [0044] Dans un mode de réalisation plus particulièrement préféré, R1 est un alkyle en C1-C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement nitrile, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons ;
- [0045] De manière encore plus préférée, R1 est choisi parmi un méthyle ou un alkyle en C1-C4 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement

silyle, un groupement siloxy, un groupement nitrile, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons; et R2 est un alkyle en C1-C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons ; et de manière plus préférée R2 est un alkyle en C1-C4 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement nitrile, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons et de manière tout à fait préférée parmi un méthyle, un éthyle, un propyle, un iso-butyle, un n-butyle, ou un allyle.

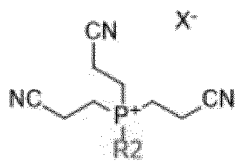
[0046] Dans un mode de réalisation préféré, X<sup>-</sup> est choisi parmi bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (TFSI), tétrafluoroborate, hexafluorophosphate, dicyanamide, triflate, 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazole, fluorosulfonyl(trifluoromethanesulfonyl)imide, bis(oxalato)borate, difluorobis(oxalato)borate, acétate., N-éthyl-N-méthyl-fonctionnalisés sulfonimide, (difluoromethanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (difluoromethanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide.

[0047] Dans un mode de réalisation encore plus préféré, X<sup>-</sup> est choisi parmi le FSI ou le TFSI.

[0048] Les modes de réalisation préférés quant au choix de l'anion X<sup>-</sup> exposés ci-dessus peuvent être combinés aux modes de réalisation préférés quant au choix des groupes R1 et R2 exposés précédemment.

[0049] Dans un mode de réalisation préféré, le sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium comprend trois chaînes 2-cyanoéthyle et correspond à la formule (II)

[0050] [Chem.2]



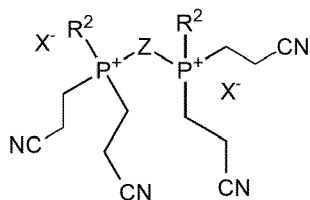
(II)

[0051] dans laquelle

[0052] X<sup>-</sup> est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthanides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates ;



- [0053] R2 est *indépendamment* choisi parmi un groupement alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.
- [0054] Dans un mode de réalisation préféré, R2 est un alkyle en C1-C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons; de manière plus préféré R2 est choisi parmi un alkyle en C1-C4 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons ; de manière tout à fait préférée R2 est choisi parmi un méthyle, un éthyle, un propyle, un iso-butyle, un n-butyle ou un allyle.
- [0055] Dans un mode de réalisation préféré, X<sup>-</sup> est choisi parmi bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (TFSI), tétrafluoroborate, hexafluorophosphate, dicyanamide, triflate, 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazolate, fluorosulfonyl(trifluoromethanesulfonyl)imide, bis(oxalato)borate, difluorobis(oxalato)borate, acétate. *N*-ethyl-*N*-methyl-functionalized sulfonimide, (difluoromethanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (difluoromethanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide.
- [0056] Dans un mode de réalisation encore plus préféré, X<sup>-</sup> est choisi parmi le FSI ou le TFSI.
- [0057] Les modes de réalisation préférés quant au choix de l'anion X<sup>-</sup> exposés ci-dessus peuvent être combinés aux modes de réalisation préférés quant au choix des groupes R1 et R2 exposés précédemment.
- [0058] Dans un mode de réalisation particulier le sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium est sous la forme d'un dimère de sel de phosphonium tel que représenté par la formule (III),
- [0059] [Chem.3]



(III)

[0060] dans laquelle

[0061] Z est choisi parmi les di-radicaux alkyles en C1-C20 de type  $-(CH_2)_n-$  pouvant comprendre un ou plusieurs éther ou pouvant comprendre un ou plusieurs enchainements de type  $-CH_2-Y-CH_2-$  avec  $Y=S$  ou  $SO$  ou  $SO_2$ ; de préférence le di-radical alkyles est un diradical éthyle, propyle, butyle ou pentyle.

[0062] X- est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthanides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates;

[0063] R2 est indépendamment choisi parmi le groupe constitué par une chaîne  $-CH_2-CH_2-CN$  non substituée, par un alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique, un groupement vinylbenzylique; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un  $-CF_3$ , un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[0064] Dans un mode de réalisation plus particulièrement préféré, R2 est un alkyle en C1-C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un  $-CF_3$ , un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[0065] De manière encore plus préférée, R2 est choisi parmi un méthyle ou un alkyle en C1-C4 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un  $-CF_3$ , un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[0066] Dans un mode de réalisation préféré, X- est choisi parmi bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (TFSI), tétrafluoroborate, hexafluorophosphate, dicyanamide, triflate, 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazolate, fluorosulfonyl(trifluoromethanesulfonyl)imide, bis(oxalato)borate, difluorobis(oxalato)borate, acétate. *N*-ethyl-*N*-methyl-functionalized sulfonimide, (difluoromethanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (difluoromethanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide.

[0067] Dans un mode de réalisation encore plus préféré, X- est choisi parmi le FSI ou le TFSI.

- [0068] Les modes de réalisation préférés quant au choix de l'anion X<sup>-</sup> exposés ci-dessus peuvent être combinés aux modes de réalisation préférés quant au choix des groupes R2 exposés précédemment.
- [0069] L'invention concerne donc une composition d'électrolyte comprenant un sel de lithium ou de sodium, un solvant organique aprotique et un composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium telle que décrite précédemment.
- [0070] Selon un mode de réalisation préféré, le solvant organique aprotique est choisi parmi un liquide ionique, un carbonate, une glyme, un alkyl-sulfonamide ou un mélange de ceux-ci.
- [0071] Dans un mode de réalisation préféré, le solvant est un liquide ionique.
- [0072] Tel qu'utilisé dans la présente invention, « liquide ionique » désigne un sel fondu à une température inférieure à 100 °C.
- [0073] Lorsque le solvant est un liquide ionique, il comprend (i) un cation choisi parmi un imidazolium, ou un pyrrolidinium, un morpholinium, un pyridinium, un pipéridinium, un phosphonium, un ammonium et (ii) un anion choisi parmi l'hexafluorophosphate (PF<sub>6</sub><sup>-</sup>), le tétrafluoroborate (BF<sub>4</sub><sup>-</sup>), le bis(trifluorométhanesulfonyl)imide (TFSI), le bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), le dicyanamide (DCA), le 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazole (TDI), le fluorosulfonyl-(trifluorométhanesulfonyl)imide (FTFSI), le (difluorométhanesulfonyl)(trifluorométhanesulfonyl)imide (DFTFSI), le bis(oxalato)borate (BOB), le difluoro(oxalato)borate (DFOB).
- [0074] Dans un mode de réalisation préféré, les liquides ioniques choisis sont de haute qualité [pureté 99,9 % ; H<sub>2</sub>O ≤ 5 ppm ; halogénures ≤ 1 ppm ; lithium, sodium et potassium ≤ 10 ppm ; composés organiques azotés ≤ 10 ppm ; test de couleur 20-10 Hazen].
- [0075] Dans un mode de réalisation préféré, la composition d'électrolyte comprend au moins 30% de liquide ionique, en particulier au moins 50% de liquide ionique et préférentiellement au moins 70% de liquide ionique.
- [0076] Des sels de phosphonium selon l'invention sont décrits dans la partie expérimentale : P1(2CN)<sub>3</sub>FSI, P14(2CN)<sub>2</sub>FSI, P13(2CN)<sub>2</sub>FSI, , P14(2CN)<sub>2</sub>FSI et Pbutène(2CN)<sub>3</sub>FSI.
- [0077] Un deuxième objet de l'invention est une batterie comprenant une cathode, une anode, un séparateur et l'électrolyte comprenant un composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium tel que décrit précédemment.
- [0078] Dans un mode de réalisation particulier, la batterie selon l'invention peut fournir une densité d'énergie supérieure à 350 Wh/kg lorsque l'électrolyte est composé de liquide ionique et du composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium. En effet, le composé est compatible avec les performances des liquides ioniques tels que la non-inflammabilité, le voltage élevé et l'utilisation avec des températures élevées.

[0079] Le matériau actif pour la cathode est choisi parmi :

- a. Pour une batterie Lithium-ion : un composé intercalant du lithium, choisi parmi le phosphate de lithium-fer, (LiFePO<sub>4</sub>), l'oxyde de lithium-nickel-manganèse-cobalt, (LiNi<sub>x</sub>Mn<sub>y</sub>Co<sub>z</sub>O<sub>2</sub>), l'oxyde de lithium-nickel-manganèse-cobalt dopé, (LiNi<sub>x</sub>Mn<sub>y</sub>Co<sub>z</sub>O<sub>2</sub>), l'oxyde de lithium-cobalt (LiCoO<sub>2</sub>), l'oxyde de lithium-cobalt dopé, l'oxyde de lithium-nickel (LiNiO<sub>2</sub>), l'oxyde de lithium-nickel dopé, l'oxyde de lithium-manganèse (LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), l'oxyde de lithium-manganèse dopé, NCA, l'oxyde de lithium-vanadium, l'oxyde de lithium-vanadium dopé, des oxydes de lithium et de métaux mixtes, Lithium Manganèse Nickel Oxyde (LMNO), des oxydes de lithium et de métaux de transition mixtes, des oxydes de lithium et de métaux de transition mixtes dopés (NCA, LMNX,), le phosphate de lithium-vanadium, le phosphate de lithium-manganèse, le phosphate de lithium-cobalt, les phosphates de lithium et de métaux mixtes, les sulfures métalliques et leurs combinaisons.
- b. Pour une batterie Sodium-ion : un oxyde métallique tel que VO<sub>2</sub>, V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, H<sub>2</sub>V<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, b- MnO<sub>2</sub> ;

[0080] le NaMOX en couches tel que Na<sub>0.71</sub>CoO<sub>2</sub>, Na<sub>0.7</sub>MnO<sub>2</sub>, b-NaMnO<sub>2</sub>, Na<sub>1.1</sub>V<sub>3</sub>O<sub>7.9</sub>, Na<sub>2</sub>RuO<sub>3</sub>, Na<sub>2/3</sub>[Ni<sub>1/3</sub>Mn<sub>2/3</sub>]O<sub>2</sub>, Na<sub>0.67</sub>Co<sub>0.5</sub>Mn<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub>, Na<sub>0.66</sub>Li<sub>0.18</sub>Mn<sub>0.71</sub>Ni<sub>0.21</sub>Co<sub>0.08</sub>O<sub>2+x</sub> ;

- des oxydes tunnel 1D tels que Na<sub>0.44</sub>MnO<sub>2</sub>, Na<sub>0.66</sub>[Mn<sub>0.66</sub>Ti<sub>0.34</sub>]O<sub>2</sub>, Na<sub>0.61</sub>[Mn<sub>0.27</sub>Fe<sub>0.34</sub>Ti<sub>0.39</sub>]O<sub>2</sub> ;
- des fluorures tels que FeO<sub>0.7</sub>F<sub>1.3</sub> et NaFeF<sub>3</sub> ;
- des sulfates tels que Na<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> et Eldfellite NaFe(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> ;
- des phosphates NaFePO<sub>4</sub> et FePO<sub>4</sub> ; Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>@C@rGO, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>/C, NaVOPO<sub>4</sub> ;
- des pyrophosphates tels que Na<sub>2</sub>CoP<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, Na<sub>2</sub>FeP<sub>2</sub>O<sub>7</sub> et Na<sub>3.12</sub>Fe<sub>2.44</sub>(P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>)<sub>2</sub> ;

[0081] des fluorophosphates tels que NaVPO<sub>4</sub>F, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>F<sub>3</sub>,

- Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>O<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>F@RuO<sub>2</sub>, Na<sub>3</sub>(VO<sub>1-x</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>F<sub>1+2x</sub>, Na<sub>3.5</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>F<sub>3</sub> ;
- des phosphates mixtes tels que Na<sub>7</sub>V<sub>4</sub>(P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>)<sub>4</sub>(PO<sub>4</sub>), Na<sub>3</sub>MnPO<sub>4</sub>CO<sub>3</sub> ;
  - des hexacyanométalates tels que MnHCMn PBAs, Na<sub>1.32</sub>Mn[Fe(CN)<sub>6</sub>]0.83.3.5H<sub>2</sub>O, Na<sub>x</sub>Co[Fe(CN)<sub>6</sub>]0.90.2.9H<sub>2</sub>O ;
  - des cathodes sans métal critique telles que Na<sub>2</sub>C<sub>6</sub>O<sub>6</sub>, Na<sub>6</sub>C<sub>6</sub>O<sub>6</sub>, SSDC, C<sub>6</sub>Cl<sub>4</sub>O<sub>2</sub>/CMK, PTCDA-PI, les poly(anthraquinonyl imide)s et le graphite fonctionnalisé ;
  - les analogues de blanc de Prusse ;
  - les analogues du bleu de Prusse.

[0082] Le matériau actif pour l'anode est choisi parmi :

- a. Pour une batterie Lithium-ion :
  - un oxyde composite de titane contenant du lithium (LTO) ;
  - mélange d'oxydes de niobium (XNO)
  - des métaux (Me) tels que Si, Sn, Li, Zn, Mg, Cd, Ce, Ni et Fe ou des alliages de ceux-ci ;
  - le graphite, le graphène, y compris les particules de graphite naturel, de graphite artificiel, de microbilles de méso-carbone (MCMB) et de carbone (y compris le carbone mou, le carbone dur, les nanofibres de carbone et les nanotubes de carbone) ;
  - le silicium (Si), des composites silicium/graphite, des combinaisons de silicium de germanium (Ge), l'étain (Sn), le plomb (Pb), l'antimoine (Sb), le bismuth (Bi), le zinc (Zn), l'aluminium (Al), le nickel (Ni), le cobalt (Co), le manganèse (Mn), le titane (Ti), le fer (Fe) et le cadmium (Cd) ;
  - des alliages ou composés intermétalliques de Si, Ge, Sn, Pb, Sb, Bi, Zn, Al ou Cd avec d'autres éléments, lesdits alliages ou composés étant stœchiométriques ou non stœchiométriques ;
  - des oxydes, carbures, nitrures, sulfures, phosphures, séléniures et tellurures de Si, Ge, Sn, Pb, Sb, Bi, Zn, Al, Fe, Ni, Co, Ti, Mn ou Cd, et leurs mélanges ou composites ;
  - des oxydes (MeO<sub>x</sub>) des métaux (Me) ;
  - des composites des métaux (Me) avec du carbone ;
  - des matériaux MXene, [M<sub>x</sub>C où X = 2,3,4).
- a. Pour une batterie Sodium-ion : des matériaux à base d'oxydes, de sulfures, de séléniures, de phosphures et de MOF et des matériaux à base de carbone ; les matériaux à base de carbone comprennent le graphite expansé, le graphite expansé dopé N, le noir de carbone, le carbone amorphe, les microsphères de carbone, le carbone dur, le carbone mou méso-puissant, les nanotubes de carbone, les nanofeuillets de graphène, les CNT dopés à l'azote, la mousse de graphène dopée N, les nanofibres poreuses dopées N, le carbone microporeux et le carbone poreux en forme de cube ; les oxydes comprennent les nanofleurs de MnO<sub>2</sub>, les nanofeuillets de NiO, le SnO poreux, les nanotubes de SnO<sub>2</sub> poreux, le Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-C 3D poreux, le CuO-RGO poreux, les MnO-CNT dopés à l'azote ultrapetits, les micro-fleurs de CuS, SnS<sub>2</sub>-RGO, Co<sub>3</sub>S<sub>4</sub>-PANI, ZnS-RGO, NiS-RGO, Co<sub>3</sub>S<sub>4</sub>-PANI, MoS<sub>2</sub>-C, les nanofeuillets de WS<sub>2</sub>-carbone conducteur dopé à l'azote, les nanotiges de Sb<sub>3</sub>Se<sub>3</sub>-RGO, le MoSe<sub>2</sub>-fibre de carbone, les nanostructures de Sn<sub>4</sub>P<sub>3</sub> à coquilles multiples, les nanosphères de Sn<sub>4</sub>P<sub>3</sub>-C, Se<sub>4</sub>P<sub>4</sub>, les nanoparticules de CoP, les matrices

de nanotiges FeP sur du tissu de carbone, MoP-C, CUP2-C, le graphène NiO/Ni creux, le CoSe/C structuré en coquille-jaune dopé à l'azote ; le métal de Na.

[0083] Dans un mode de réalisation préféré, pour les batteries Lithium-ion et Sodium-ion, lorsque la cathode est en Lithium Manganèse Nickel Oxyde (LMNO) alors l'anode est en graphite ou en Lithium Titanate (LTO) ; lorsque la cathode est en Nickel Manganèse Cobalt 532 (NMC532) alors l'anode est en graphite ; lorsque la cathode est en Nickel Manganèse Cobalt 622 (NMC622) alors l'anode est en graphite ; lorsque la cathode est en Nickel Manganèse Cobalt 811 (NMC811) alors l'anode est en graphite lorsque la cathode est en Lithium Fer Phosphate (LFP) alors l'anode est en graphite ; lorsque la cathode est en Lithium Fer Phosphate (LFP) alors l'anode est en Lithium Titanate (LTO).

[0084] Les séparateurs peuvent être constitués :

[0085] - d'une membrane polymère microporeuse qui est une polyoléfine semi-cristalline telle que le polyéthylène (PE), le polypropylène (PP), le polyéthylène à haute densité (HDPE), PE-PP, PS-PP, les mélanges polyéthylène téréphtalate-polypropylène (PET-PP), le poly(fluorure) de vinylidène (PVDF), le polyacrylonitrile (PAN) ; de polyoxyméthylène, de poly(4-méthyl-1-pentène) ; de tapis de tissu non tissé tel que la cellulose, la polyoléfine, la polyamide, le polytétrafluoroéthylène (PTFE), le poly(fluorure de vinylidène-co-hexafluoropropylène (PVDF-HFP), le polychlorure de vinyle (PVC), le polyester. D'autres types de polymères sont des matériaux à base de polyoléfine et leurs mélanges tels que le polyéthylène-polypropylène. De polymères greffés tels que des séparateurs de polyéthylène greffés au siloxane, des séparateurs microporeux greffés au poly(méthylmétacrylate). De toiles de nanofibres en polyfluorure de vinylidène (PVDF). De séparateur modifié par la polytriphénylamine (PTPAN). D'électrolytes polymères tels que des électrolytes polymères ioniques.

[0086] Des exemples de tels polymères ioniques sont des composés formés de, par exemple, poly(diallyldiméthylammonium) avec un anion choisi parmi l'hexafluorophosphate (PF<sub>6</sub><sup>-</sup>), le tétrafluoroborate (BF<sub>4</sub><sup>-</sup>), le bis(trifluorométhanesulfonyl)imide (TFSI), le bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), le dicyanamide (DCA), le 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazolide (TDI), le fluorosulfonyl-(trifluorométhanesulfonyl)imide (FTFSI) et le (difluorométhanesulfonyl)(trifluorométhanesulfonyl)imide (DFTFSI), le bis(oxalato)borate (BOB), le difluoro(oxalato)borate (DFOB).

[0087] - De polymères liquides ioniques avec en outre des liquides ioniques (ou sans), électrolytes polymères/copolymères mélangés de l'oxyde de polyéthylène (PEO), polyvinylpyrrolidone, oxyde de polyéthylène, polyacrylonitrile, polyéthylène glycols, glymes, polymères fluorés à toute autre combinaison d'électrolytes polymères et

liquides ioniques ou à une combinaison de liquides ioniques et de polymère liquide ionique.

[0088] - De liquide ionique polymérisable ;

[0089] - De séparateur composite inorganique tel que les poudres d'oxyde métallique (TiO<sub>2</sub>, ZrO<sub>2</sub>, LiAlO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, MgO, CaCO<sub>3</sub>) dans une matrice polymère (PVDF-HFP, PTFE), AlO (OH)/alcool polyvinylique (PVA) sur PET ; séparateurs céramiques tels que l'alumine ou des particules céramiques mélangées avec des polymères ou une combinaison de polymères et/ou de liquides ioniques ; polymère revêtu en surface tel qu'un film polymère de type gel (PEO, PVDF-HFP) sur des membranes microporeuses ; imprégnation d'un électrolyte polymère en gel tel qu'un électrolyte à base de liquide ionique dans des membranes microporeuses ; fibres de verre ; séparateurs en verre conducteur. Les séparateurs peuvent également comprendre des électrolytes à l'état solide tels que des électrolytes céramiques solides et des électrolytes polymères solides.

[0090] Dans un mode de réalisation préféré, la batterie comprend une composition d'électrolyte comprenant un solvant liquide ionique et le composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium décrit aux formules (I), (II) ou (III) ainsi qu'une cathode en matériau Lithium Manganèse Nickel Oxyde (LMNO).

[0091] Dans un mode de réalisation particulier, la batterie comprend une cathode, un électrolyte tel que décrit précédemment et un séparateur.

[0092] Dans un mode de réalisation particulier, la batterie comprend un séparateur et un électrolyte qui sont identiques. C'est le cas notamment lorsque l'électrolyte est solide car il joue aussi le rôle de séparateur.

## **BREVE DESCRIPTION DES FIGURES**

[0093] [Fig.1][Fig.1] : **Graphique montrant les profils de charge/décharge de la pile (LMNO/Graphite) à des vitesses de charge et de décharge de 0.1 C et les 10ème, 100ème, 250ème et 450ème cycles à 0.5 C de 2 V à 5 V par rapport à Li+/Li pour l'électrolyte 1 M LiFSI in PYR13FSI + 0.063 mol/kg de Tris(2-cyanoéthyl)méthylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide (P1(2CN)3FSI) à 20 °C.**

[0094] [Fig.2][Fig.2] : **Graphique montrant les profils de charge/décharge de la pile (LMNO/Graphite) à des vitesses de charge et de décharge de 0.1 C et les 10ème et 47ème cycles à 0.5 C de 2 V à 5 V par rapport à Li+/Li pour l'électrolyte 1 M LiFSI dans PYR13FSI à 20 °C.**

[0095] [Fig.3][Fig.3] : **Graphique montrant les capacités de décharge et les efficacités coulombiques en fonction du nombre de cycles pour les cellules entières (LMNO/Graphite) avec et sans composé Tris(2-cyanoéthyl)méthylphosphonium**

**bis(fluorosulfonyl)imide (P1(2CN)3FSI) à une vitesse de charge et de décharge de 0.5 C de 2 V à 5 V par rapport à Li+/Li à 20 °C.**

- [0096] [Fig.4][Fig.4] : **Graphique montrant les profils de charge/décharge de la pile (LMNO/Graphite) à des vitesses de charge et de décharge de 0.1 C et les 10<sup>ème</sup>, 50<sup>ème</sup>, 150<sup>ème</sup> et 274<sup>ème</sup> cycles à 0.5 C de 2 V à 5 V par rapport à Li+/Li pour l'électrolyte 1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.063 mol/kg de Bis(2-cyanoéthyl)butylméthylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide (P14(2CN)2FSI) à 20 °C.**
- [0097] [Fig.5][Fig.5] : Graphique montrant les profils de charge/décharge de la pile (LMNO/Graphite) à des vitesses de charge et de décharge de 0.1 C et les 10<sup>ème</sup>, 50<sup>ème</sup>, 150<sup>ème</sup> et 247<sup>ème</sup> cycles à 0.5 C de 2 V à 5 V par rapport à Li+/Li pour l'électrolyte 1M LiFSI dans PYR13FSI à 20 °C.
- [0098] [Fig.6][Fig.6] : Graphique montrant les capacités de décharge et les efficacités coulombiques en fonction de nombre de cycles pour les cellules entières (LMNO/Graphite) avec et sans composé Bis(2-cyanoéthyl)butylméthylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide (P14(2CN)<sub>2</sub>FSI) à une vitesse de charge et de décharge de 0.5 C entre 2V à 5V par rapport à Li+/Li à 20 °C.
- [0099] [Fig.7][Fig.7] : Graphique montrant les profils de charge/décharge de la pile (LMNO/LTO) à des vitesses de charge et de décharge de 0.05 C, 0.2 C et 0.5 C de 1.2 V à 3.5 V par rapport à Li+/Li pour l'électrolyte 1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.126 mol/kg Bis(2-cyanoéthyl)propylméthylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide (P13(2CN)<sub>2</sub>FSI) à 20 °C.
- [0100] [Fig.8][Fig.8] : Graphique montrant les profils de charge/décharge de la pile (LMNO/LTO) à des vitesses de charge et de décharge de 0.05 C, 0.2 C et 0.5 C de 1.2 V à 3.5 V par rapport à Li+/Li pour l'électrolyte 1M LiFSI dans PYR13FSI à 20 °C.
- [0101] [Fig.9][Fig.9] : Graphique montrant les capacités de décharge et les efficacités coulombiques en fonction de nombre de cycles pour les cellules entières (LMNO/LTO) avec et sans composé Bis(2-cyanoéthyl)propylméthylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide (P13(2CN)<sub>2</sub>FSI) à différentes vitesses de charge et de décharge de 1.2 V à 3.5 V par rapport à Li+/Li à 20 °C.
- [0102] [Fig.10][Fig.10] : **Graphique montrant les capacités de décharge et les efficacités coulombiques en fonction de nombre de cycles pour les cellules entières (NMC622/Gr) avec et sans composé P14(2CN)2FSI à différentes vitesses de charge et de décharge de 2 V à 4.2 V par rapport à Li+/Li à température ambiante (TA).**
- [0103] [Fig.11][Fig.11] : **Graphique montrant les capacités de décharge et les efficacités coulombiques en fonction de nombre de cycles pour les cellules entières (NMC622/Gr) avec et sans composé Bis(2-cyanoéthyl)butylméthylphosphonium**



**bis(fluorosulfonyl)imide (P14(2CN)2FSI) à long cyclage en C/2 de 2 V à 4.2 V par rapport à Li+/Li à température ambiante (TA).**

[0104] [Fig.12][Fig.12] : **Graphique montrant les capacités de décharge et les efficacités coulombiques en fonction de nombre de cycles pour les cellules entières (NMC532/Graphite) avec et sans composé**

**bis(2-cyanoéthyl)ethylmethylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide**

[0105] (P12(2CN)<sub>2</sub>FSI) à différentes vitesses de charge et de décharge entre 2.5 V à 4.2 V par rapport à Li+/Li à 45 °C.

[0106] [Fig.13][Fig.13] : **Graphique montrant les profils de charge/décharge de la pile (LMNO/Graphite) à un taux C de 0.5C de 3.5 V à 5 V par rapport à Li+/Li pour l'électrolyte 3M LiFSI in N1113FSI + 0.0105 mol/kg Pbutène(2CN)3FSI à 25°C.**

[0107] [Fig.14][Fig.14]: **Graphique montrant les capacités de décharge et les efficacités coulombiques d'une cellule entière (LMNO/Graphite) avec Pbutène(2CN)3FSI à un taux C de C/2 entre 3.5V à 5V par rapport à Li+/Li à 25°C.**

[0108] [Fig.15][Fig.15] : **Graphique montrant les capacités de décharge d'une cellule entière (LMNO/Lithium métal) avec P14(2CN)2FSI à un taux C de C/2 entre 3.5V à 5V par rapport à Li+/Li à 25°C.**

[0109] [Fig.16][Fig.16]: **Graphique montrant les capacités de charge et de décharge d'une cellule entière (Bleu de Prusse/Carbone dur) avec P14(2CN)2FSI à des taux de C de 0.05C, 0.1C et 0.14C entre 2V et 4V par rapport à Na+/Na à 25°C.**

## **EXEMPLES**

[0110] **EXEMPLE 1 : Préparation de l'électrolyte et des piles boutons**

[0111] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec des teneurs en eau et O<sub>2</sub> inférieures à 1 ppm, le sel métallique est dissout dans un solvant organique aprotique dans une concentration souhaitée. Un ou plusieurs composés sont ensuite ajoutés et mélangés afin d'obtenir une solution homogène d'électrolyte.

[0112] Les piles bouton complètes (CR2032) sont assemblées dans une boîte à gants sous atmosphère d'argon avec des teneurs inférieures à 1 ppm en O<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>O. Les électrodes utilisées sont commerciales et elles ont été achetées déjà enduites sur les collecteurs de courant (aluminium et cuivre). Elles ont des capacités entre 1 et 4 mAh/cm<sup>2</sup> et sont découpées en disques de 13 mm de diamètre.

[0113] Les électrodes sont séparées par un séparateur de 16 mm de diamètre ayant une épaisseur comprise entre 11 et 180 µm pouvant être à base de différents matériaux. Le séparateur est ensuite imbibé d'électrolyte. Les piles bouton ont ensuite été scellées par un instrument de sertissage de pile bouton afin d'obtenir une batterie avant de réaliser les caractérisations électrochimiques.

[0114] Une spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS) et des mesures de cyclage galvanostatique ont été effectuées à l'aide d'un potentiostat VMP3 (BioLogic) et d'un

cycleur de batterie multivoie (Arbin Inc). Les mesures d'impédance (EIS) ont été réalisées sur des cellules à deux électrodes à une polarisation en circuit ouvert en appliquant une onde sinusoïdale RMS de 10 mV à des fréquences allant de 1MHz à 10 mHz.

[0115] Le cyclage galvanostatique est obtenu en chargeant et en déchargeant les cellules à différents courants constants aux tensions de coupure maximale et minimale propres aux différentes combinaisons de matériaux actifs.

[0116] Les impédances et cyclages galvanostatiques ont été réalisés dans une enceinte climatique maintenant une température constante de 20 °C.

[0117] **EXEMPLE 2 : PREPARATION D'UNE BATTERIE LMNO/Graphite AVEC ET SANS COMPOSE [P1(2CN)<sub>3</sub>FSI] et CHARGE ET DECHARGE DE LA PILE**

[0118] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec une teneur en eau et O<sub>2</sub> inférieures à 1 ppm, le sel de lithium LiFSI (0.936 g) est dissout dans le liquide ionique PYR13FSI (6.045 g) pour obtenir la concentration souhaitée, le composé (2-cyanoéthyl)phosphonium P1(2CN)<sub>3</sub>FSI (0.170 g) est ensuite ajouté et mélangé afin d'obtenir une solution d'électrolyte homogène.

[0119] Les batteries ont été préparées selon la méthode décrite dans l'Exemple 1. Le tableau 1 ci-dessous regroupe les différentes combinaisons de cathode/anode/électrolyte testées en batterie.

[0120] [Tableaux1]

<i>Electrode Positive - Capacité</i>	<i>Electrode Négative - Capacité</i>	<i>Electrolytes</i>
LMNO – 1.1 mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite – 2.2 mAh/cm <sup>2</sup>	1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.063 mol/kg P1(2CN) <sub>3</sub> FSI
LMNO – 1.1 mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite – 2.2 mAh/cm <sup>2</sup>	1M LiFSI dans PYR13FSI

[0121] **Tableau 1** : Combinaisons de cathode LMNO/anode Graphite/électrolyte testée en batterie.

[0122] Les batteries ont été testées en cyclage galvanostatique de 2 à 5 V à différents taux de C : 0.1 C et 0.5 C dans une enceinte climatique à 20 °C.

[0123] La [Fig.1], dans laquelle l'électrolyte contient le composé P1(2CN)<sub>3</sub>FSI, montre une perte de capacité en décharge de 7% entre 0.1C et 0.5C respectivement 114.54 mAh/g et 106.33 mAh/g. Plus la vitesse de charge et de décharge augmente, plus la polarisation entre la charge et la décharge augmente. Pour le cyclage en 0.5 C, la perte de capacité en décharge en 450 cycles est de 18.5% (de 114.54 à 93.30 mAh/g).

- [0124] La [Fig.2], dans laquelle l'électrolyte ne contient pas le composé  $P1(2CN)_3FSI$  montre une perte de capacité en décharge de 38% entre 0.1 C et 0.5 C respectivement 118.54 mAh/g et 73.22 mAh/g. Pour les charges et décharges à un taux 0.5 C, les profils diffèrent légèrement de ceux de 0.1 C. En effet, les plateaux de transition sont moins bien définis, plus particulièrement celui de 4.56 V.
- [0125] En comparant les profils charge/décharge des deux systèmes, ceux contenant le composé en (2-cyanoéthyl)phosphonium sont plus stables.
- [0126] [Tableaux2]

<i>Electrolyte</i>	<i>C-rate</i>	<i>Capacité de charge (mAh/g)</i>	<i>Capacité de décharge (mAh/g)</i>	<i>Efficacité (%)</i>
1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.063 mol/kg $P1(2CN)_3FSI$	0.5C (1 <sup>er</sup> cycle)	106.52	106.23	99.72
1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.063 mol/kg $P1(2CN)_3FSI$	0.5C (450 <sup>ème</sup> cycle)	93.48	93.39	99.86
1M LiFSI dans PYR13FSI	0.5C (1 <sup>er</sup> cycle)	76.53	75.80	99.04
1M LiFSI dans PYR13FSI	0.5C (47 <sup>ème</sup> cycle)	63.39	62.85	99.15

- [0127] **Tableau 2** : Caractéristiques des piles avec un système LMNO/Graphite à 0.5 C avec et sans composé (2-cyanoéthyl)phosphonium.
- [0128] Le Tableau 2 et la [Fig.3] montrent la capacité de décharge en fonction de nombre de cycles des deux systèmes, avec et sans composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium ainsi que leurs efficacités coulombiques.
- [0129] Sans composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium, la capacité de décharge de la batterie diminue dès les premiers cycles pour des vitesses de charge et de décharge de 0.5 C contrairement au système contenant le composé en (2-cyanoéthyl)phosphonium pour lequel la capacité reste stable plus longtemps, 12% de perte de capacité en 450 cycles (106.23mAh/g à 93.39mAh/g) à 100% DoD. L'efficacité coulombique est également supérieure pour l'électrolyte contenant le (2-cyanoéthyl)phosphonium, elle se rapproche de 99.9% contre 99.2% sans celui-ci.
- [0130] **EXEMPLE 3 : PREPARATION D'UNE BATTERIE LMNO/Graphite AVEC ET SANS COMPOSE [ $P14(2CN)_2FSI$ ] et CHARGE ET DECHARGE DE LA PILE**
- [0131] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec une teneur en eau et  $O_2$  inférieures à 1 ppm, le sel de lithium LiFSI (0.936 g) est dissout dans le liquide ionique PYR13FSI (6.045 g) pour obtenir la concentration souhaitée, un composé de

(2-cyanoéthyl)phosphonium P14(2CN)<sub>2</sub>FSI (0.172 g) est ensuite ajouté et mélangé afin d'obtenir une solution d'électrolyte homogène.

[0132] Les batteries ont été préparées selon la méthode décrite dans l'Exemple 1. Le tableau 3 ci-dessous regroupe les différentes combinaisons de cathode/anode/électrolyte testées en batterie.

[0133] [Tableaux3]

<i>Electrode Positive - Capacité</i>	<i>Electrode Négative - Capacité</i>	<i>Electrolytes</i>
LMNO – 1.1mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite – 1.4 mAh/cm <sup>2</sup>	1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.0628 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI
LMNO – 1.1mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite – 1.4 mAh/cm <sup>2</sup>	1M LiFSI dans PYR13FSI

[0134] **Tableau 3 :** Combinaisons de cathode LMNO/anode Graphite/électrolyte testée en batterie.

[0135] Les batteries ont été testées en cyclage galvanostatique de 2 à 5 V à différents taux de C : 0.1 C et 0.5 C dans une enceinte climatique à 20 °C.

[0136] La [Fig.4], dans laquelle l'électrolyte contient le composé P14(2CN)<sub>2</sub>FSI, montre une perte de capacité en décharge de 7.5% entre 0.1 C et 0.5 C respectivement 124.08 mAh/g et 114.73 mAh/g. Plus les vitesses de charge et de décharge augmentent, plus la polarisation entre la charge et la décharge augmente. Pour le cyclage en 0.5 C, la perte de capacité en décharge en 243 cycles est de 4.5% (de 114.73 à 109. 63mAh/g).

[0137] La [Fig.5], dans laquelle l'électrolyte ne contient pas le composé P14(2CN)<sub>2</sub>FSI, montre une perte de capacité en décharge de 9% entre 0.1 C et 0.5 C respectivement 117.19 mAh/g et 107.02 mAh/g. A une vitesse de charge et de décharge de 0.2 C, la capacité de décharge diminue de 13% entre le 10ème et le 247ème cycle en C/2 en passant de 107.02mAh/g à 93.39mAh/g.

[0138] La perte de capacité est moins importante pour le système dans lequel l'électrolyte contient le composé P14(2CN)<sub>2</sub>FSI.

[0139] [Tableaux4]

<i>Electrolyte</i>	<b>C-rate (Nbr de cycles)</b>	<b>Capacité de charge (mAh/g)</b>	<b>Capacité de décharge (mAh/g)</b>	<b>Efficacité (%)</b>
1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.063 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.5 C (1 <sup>er</sup> cycle)	115.30	114.83	99.59
1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.063 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.5 C (247 <sup>ème</sup> cycle)	109.73	109.63	99.87
1M LiFSI dans PYR13FSI	0.5 C (1 <sup>er</sup> cycle)	107.99	107.46	99.51
1M LiFSI dans PYR13FSI	0.5 C (247 <sup>ème</sup> cycle)	93.64	93.33	99.67

[0140] **Tableau 4:** Caractéristiques des piles avec un système LMNO/Graphite à 0.5 C avec et sans composé P14(2CN)<sub>2</sub>FSI .

[0141] Le Tableau 4 et la [Fig.6] montrent la capacité de décharge en fonction de nombre de cycles des deux systèmes, avec et sans composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium .

[0142] Sans composé P14(2CN)<sub>2</sub>FSI, la capacité de décharge du premier cycle à une vitesse de charge et de décharge de 0.5 C est plus faible qu'avec le composé en (2-cyanoéthyl)phosphonium (respectivement 107.99 mAh/g et 115.30 mAh/g). Concernant la cyclabilité, la capacité du système contenant le composé P14(2CN)<sub>2</sub>FSI est plus stable au cours des cycles. En effet, en prenant en compte les 247 premiers cycles, la perte de capacité pour le système sans composé P14(2CN)<sub>2</sub>FSI est de 13.1% contre 4.9% pour celui contenant le composé P14(2CN)<sub>2</sub>FSI. L'efficacité coulombique est également supérieure pour l'électrolyte contenant le (2-cyanoéthyl)phosphonium.

[0143] **EXEMPLE 4 : PREPARATION D'UNE BATTERIE LMNO/LTO AVEC ET SANS COMPOSE [P13(2CN)<sub>2</sub>FSI] et CHARGE ET DECHARGE DE LA PILE**

[0144] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec une teneur en eau et O<sub>2</sub> inférieures à 1 ppm, le sel de lithium LiFSI (0.936 g) est dissout dans le liquide ionique PYR13FSI (6.045 g) pour obtenir la concentration souhaitée, un composé de (2-cyanoéthyl)phosphonium P13(2CN)<sub>2</sub>FSI (0.331 g) est ensuite ajouté et mélangé afin d'obtenir une solution d'électrolyte homogène.

[0145] Les batteries ont été préparées selon la méthode décrite dans l'Exemple 1. Le tableau 5 ci-dessous regroupe les différentes combinaisons de cathode/anode/électrolyte testées en batterie.

[0146] [Tableaux5]

<i>Electrode Positive - Capacité</i>	<i>Electrode Négative - Capacité</i>	<i>Electrolytes</i>
LMNO – 1.1mAh/cm <sup>2</sup>	LTO – 2 mAh/cm <sup>2</sup>	1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.126 mol/kg P13(2CN) <sub>2</sub> FSI
LMNO – 1.1mAh/cm <sup>2</sup>	LTO – 2 mAh/cm <sup>2</sup>	1M LiFSI dans PYR13FSI

[0147] **Tableau 5** : Combinaisons de cathode LMNO/anode LTO/électrolyte testée en batterie.

[0148] Les batteries ont été testées en cyclage galvanostatique de 1.2 à 3.5 V à différents taux de C : 0.05 C, 0.1 C, 0.14 C, 0.2 C, 0.33 C et 0.5C dans une enceinte climatique à 20 °C.

[0149] La [Fig.7], dans laquelle l'électrolyte contient le composé P13(2CN)<sub>2</sub>FSI, montre une perte de capacité en décharge de 14% entre 0.05 C et 0.5 C respectivement 141.08 mAh/g et 121.44 mAh/g. Plus la vitesse de charge et de décharge augmente, plus la polarisation entre la charge et la décharge augmente.

[0150] La [Fig.8], dans laquelle l'électrolyte ne contient pas le composé P13(2CN)<sub>2</sub>FSI, montre une perte de capacité en décharge de 30% entre 0.05 C et 0.5 C respectivement 131.54 mAh/g et 91.22 mAh/g. Dès le taux 0.2 C, le profil de charge/décharge diffère de 0.05 C. En effet, la disparition de l'un des plateaux de transition est observée vers 2.5 V, cela peut être dû à une consommation irréversible des ions Li<sup>+</sup> lors de la formation de films de passivation à la surface des électrodes. Quand il n'y a plus assez d'ions Li<sup>+</sup> pour participer au processus de conversion Mn<sub>4</sub><sup>+</sup>/Mn<sub>3</sub><sup>+</sup>, le plateau de transition disparaît.

[0151] En comparant les profils charge/décharge des deux systèmes, celui contenant le composé en (2-cyanoéthyl)phosphonium en [Fig.7] est plus stable car aucun plateau de transition ne disparaît au cours des cycles. Ce composé de P13(2CN)<sub>2</sub>FSI joue un rôle pour la formation du film de passivation et réduit donc la consommation irréversible des ions Li<sup>+</sup> au cours des cycles.

[0152] [Tableaux6]

<i>Electrolyte</i>	<i>C-rate</i>	<i>Capacité de charge (mAh/g)</i>	<i>Capacité de décharge (mAh/g)</i>	<i>Efficacité (%)</i>
1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.126 mol/kg P13(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.05 C	146.18	141.08	96.47
1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.126 mol/kg P13(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.5 C	122.76	121.44	98.96
1M LiFSI dans PYR13FSI	0.05 C	138.15	131.54	95.22
1M LiFSI dans PYR13FSI	0.5 C	92.45	91.22	98.72

[0153] **Tableau 6** : Caractéristiques des piles avec un système LMNO/LTO à 0.05 C et 0.5 C avec et sans composé.

[0154] Le Tableau 6 et la [Fig.9] montrent la capacité de décharge des deux systèmes, avec et sans composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium .

[0155] Sans composé de P13(2CN)<sub>2</sub>FSI, la capacité de décharge de la batterie diminue dès les C/10 contrairement au système contenant le composé en (2-cyanoéthyl)phosphonium pour lequel la capacité reste stable plus longtemps et plus élevée pour des taux de C jusqu'à 0.5 C. L'efficacité coulombique est également supérieure avec la formulation contenant le (2-cyanoéthyl)phosphonium.

[0156] **EXEMPLE 5 : PREPARATION D'UNE BATTERIE NMC622/Graphite AVEC ET SANS COMPOSE [P14(2CN)<sub>2</sub>FSI] et CHARGE ET DECHARGE DE LA PILE**

[0157] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec une teneur en eau et O<sub>2</sub> inférieures à 1ppm, le sel de lithium LiFSI (1.00g) est dissout dans le liquide ionique EMIMFSI (6.49g) dans une concentration souhaitée, un composé en (2-cyanoéthyl)phosphonium P14(2CN)<sub>2</sub>FSI (0.184g) est ensuite ajouté et mélangé afin d'obtenir une solution homogène.

[0158] Les batteries ont été préparées selon la méthode décrite dans l'Exemple 1.

[0159] [Tableaux7]

<i>Electrode Positive /Capacité</i>	<i>Electrode Négative / Capacité</i>	<i>Electrolytes</i>
NMC622 – 1.86 mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite – 2.4 mAh/cm <sup>2</sup>	1.07M LiFSI dans EMIMFSI + 0.0628 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI
NMC622 – 1.86 mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite – 2.4 mAh/cm <sup>2</sup>	1.07M LiFSI dans EMIMFSI

[0160] **Tableau 7** : Combinaisons de cathode NMC622/ électrolyte / anode Graphite testées

en batterie.

[0161] Les batteries ont été testées en cyclage galvanostatique de 2 à 4.2V à différents taux de C : 0.05C, 0.1C, 0.14C, 0.2C, 0.33C et 0.5C à température ambiante (TA).

[0162] [Tableaux8]

<i>Electrolyte</i>	<b>C-rate (nombre de cycle)</b>	<b>Capacité de charge (mAh/g)</b>	<b>Capacité de décharge (mAh/g)</b>	<b>Efficacité (%)</b>
1.07M LiFSI in EMIMFSI + 0.063 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.05C 2 <sup>nd</sup>	156.69	153.54	97.98
1.07M LiFSI in EMIMFSI + 0.063 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.5C (45 <sup>ème</sup> )	146.00	145.84	99.89
1.07M LiFSI in EMIMFSI + 0.063 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.5C (265 <sup>ème</sup> )	127.35	126.74	99.52
1.07M LiFSI in EMIMFSI	0.05C (2 <sup>nd</sup> )	151.41	144.47	95.41
1.07M LiFSI in EMIMFSI	0.5C (45 <sup>ème</sup> )	113.66	113.29	99.67
1.07M LiFSI in EMIMFSI	0.5C (265 <sup>ème</sup> )	111.43	92.50	83.01

[0163] **Tableau 8** : Caractéristiques des piles avec un système NMC622/Gr à 0.05 C et 0.5 C avec et sans composé.

[0164] Le tableau 8 et les Figures 10 et 11 montrent la capacité de décharge en fonction de nombre de cycles des deux systèmes, avec et sans composé. La [Fig.10] montre les premiers 60 cycles et la [Fig.11] montre la continuation des cycles à C/2 jusqu'à 250 cycles à température ambiante.

[0165] Sans composé, la capacité de décharge de la batterie diminue graduellement contrairement au système contenant le composé en (2-cyanoéthyl)phosphonium pour lequel la capacité aux différentes vitesses de charge et de décharge est mieux conservée. La [Fig.10] montre que l'effet est d'autant plus marqué sur le retour à des vitesses de charge et de décharge de 0.1 C, où la capacité de rétention de la capacité de décharge est nettement plus faible sans le (2-cyanoéthyl)phosphonium qu'avec. L'efficacité coulombique est également supérieure avec la formulation contenant le (2-cyanoéthyl)phosphonium.

[0166] **EXEMPLE 6 : Tableau comparatif montrant l'impact du nombre de fonction nitrile sur la concentration nécessaire pour atteindre l'efficacité de la molécule.**



[0167] [Tableaux9]

Produits	Masse molaire	Nombres de fonction nitrile	Nombre de fonction nitrile/Masse molaire
P1(2CN) <sub>3</sub> FSI	388,351	3	1/129
P12(2CN) <sub>2</sub> FSI	363,342	2	1/181
P13(2CN) <sub>2</sub> FSI	377,368	2	1/188
P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	391,395	2	1/195

[0168] **Tableau 9** Tableau comparatif montrant le ratio Masse molaire de la molécule/ Nombre de fonction nitrile porté par la molécule.

[0169] Pour un même système d'électrodes, lorsqu'on utilise le P1(2CN)<sub>3</sub>FSI, il faudra 129g de molécule alors que pour le P14(2CN)<sub>2</sub>FSI, il faudra 195g de molécule pour la même efficacité, ce qui engendre une concentration plus élevée et donc une diminution de la conductivité.

[0170] [Tableaux10]

Produits	Capacité (mAh/g) 1er cycle C/2	Capacité (mAh/g) 174th cycle C/2	Rétention de Capacité (%)
1-(cyanométhyl)-1-méthylpyrrolidinium <b>PYR1(1CN)FSI</b>	107,37	96,47	89,85
(2-cyanoéthyl)triméthylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide <b>P111(2CN)FSI</b>	108,12	86,78	80,26
Bis(2-cyanoéthyl)butylméthylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide <b>P14(2CN)2FSI</b>	114,83	110,86	96,54
Tris(2-cyanoéthyl)méthylphosphonium bis(fluorosulfonyl)imide <b>P1(2CN)3FSI</b>	106,23	105	98,84

[0171] **Tableau 10** : A concentration équivalente de produits (composé d'électrolyte) , les retentions de capacité avec les molécules contenant deux ou trois fonctions nitriles sont plus importantes qu'avec les molécules contenant une seule fonction nitrile.

[0172] **Exemple 7 : PREPARATION D'UNE BATTERIE NMC532/GRAPHITE AVEC ET SANS COMPOSE [P12(2CN)2FSI] et CHARGE ET DECHARGE DE LA PILE**

[0173] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec une teneur en eau et O<sub>2</sub> inférieures à 1 ppm, le sel de lithium LiFSI (0.936 g) est dissout dans le liquide ionique PYR13FSI (6.045 g) pour obtenir la concentration souhaitée, un composé de

(2-cyanoéthyl)phosphonium P12(2CN)<sub>2</sub>FSI (0.320 g) est ensuite ajouté et mélangé afin d'obtenir une solution d'électrolyte homogène.

[0174] Les batteries ont été préparées selon la méthode décrite dans l'Exemple 1. Le tableau 11 ci-dessous regroupe les différentes combinaisons de cathode/anode/électrolyte testées en batterie.

[0175] [Tableaux11]

<i>Electrode Positive - Capacité</i>	<i>Electrode Négative</i>	<i>Electrolytes</i>
NMC532 – 1.5mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite	1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.126 mol/kg P12(2CN) <sub>2</sub> FSI
NMC532 – 1.5mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite	1M LiFSI dans PYR13FSI

[0176] **Tableau 11:** Combinaisons de cathode NMC532/anode Graphite/électrolyte testées en batterie.

[0177] Les batteries ont été testées en cyclage galvanostatique de 2.5 à 4.2 V à différents taux de C : 0.05 C, 0.1 C, 0.14 C, 0.2 C, 0.33 C et 0.5 C dans une enceinte climatique à 45 °C.

[0178] [Tableaux12]

<i>Electrolyte</i>	<i>C-rate (nombre de cycle)</i>	<i>Capacité de charge (mAh/cm<sup>2</sup>)</i>	<i>Capacité de décharge (mAh/cm<sup>2</sup>)</i>	<i>Efficacité (%)</i>
1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.126 mol/kg P12(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.05 C (2 <sup>nd</sup> )	1.52	1.50	98.26
1M LiFSI dans PYR13FSI + 0.126 mol/kg P12(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.5 C (24 <sup>ème</sup> )	1.37	1.37	99.93
1M LiFSI dans PYR13FSI	0.05 C (2 <sup>nd</sup> )	1.16	1.06	91.30
1M LiFSI dans PYR13FSI	0.5 C (24 <sup>ème</sup> )	0.89	0.89	99.28

[0179] **Tableau 12 :** Caractéristiques des piles avec un système NMC532/Graphite à 0.05 C et 0.5 C avec et sans composé

[0180] Le Tableau 12 et la [Fig.12] montrent la capacité de décharge en fonction de nombre de cycles des deux systèmes, avec et sans composé de sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium à 45 °C .

[0181] La [Fig.12], dans laquelle l'électrolyte contient le composé P12(2CN)<sub>2</sub>FSI, montre une perte de capacité en décharge de 8.6 % entre 0.05 C et 0.5 C respectivement 1.5

mAh/cm<sup>2</sup> et 1.37 mAh/cm<sup>2</sup> contre une perte de capacité de décharge de 16 % pour l'électrolyte ne contenant pas le composé de (2-cyanoéthyl)phosphonium.

[0182] La [Fig.12] montre que la capacité à un taux de 0.05C pour l'électrolyte contenant le composé P12(2CN)<sub>2</sub>FSI est plus importante que dans l'électrolyte ne contenant pas le composé, 1.50 mAh/cm<sup>2</sup> contre 1.06mAh/cm<sup>2</sup>.

[0183] Sans composé de P12(2CN)<sub>2</sub>FSI, la capacité de décharge de la batterie n'est pas stable dès les premiers cycles contrairement au système contenant le composé en (2-cyanoéthyl)phosphonium pour lequel la capacité de décharge reste stable plus longtemps et est plus élevée pour des taux de C jusqu'à 0.5 C. L'efficacité coulombique est également supérieure avec la formulation contenant le (2-cyanoéthyl)phosphonium.

[0184] **EXEMPLE 8 : PREPARATION D'UNE BATTERIE LMNO/GRAPHITE AVEC [Pbutène(2CN)<sub>3</sub>FSI] CHARGE ET DECHARGE DE LA PILE**

[0185] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec une teneur en eau et O<sub>2</sub> inférieure à 1ppm, est préparée une solution à 3mol/L de sel de lithium LiFSI dans le liquide ionique N1113FSI à 45°C. Pour 5g de cette solution est ajouté à une concentration souhaitée, le Pbutène(2CN)<sub>3</sub>FSI (0.0225 g). Le tout est mélangé afin d'obtenir une solution homogène.

[0186] La batterie a été préparée selon la méthode décrite dans l'Exemple 1. Le tableau 13 ci-dessous regroupe la combinaison cathode/anode/électrolyte testée en batterie.

[0187] [Tableaux13]

<i>Electrode Positive / Capacité</i>	<i>Electrode Négative / Capacité</i>	<i>Electrolytes</i>
LMNO – 1.05mAh/cm <sup>2</sup>	Graphite – 1.43mAh/cm <sup>2</sup>	3M LiFSI in N1113FSI + 0.0105 mol/kg Pbutène(2CN) <sub>3</sub> FSI

[0188] **Tableau 13** : Combinaison de cathode LMNO/anode Graphite/électrolyte testée en batterie.

[0189] La batterie a été testée en cyclage galvanostatique de 3.5 à 5V à un taux de C : 0.5C dans une enceinte climatique à 25°C.

[0190] La [Fig.13] montre une perte de capacité en décharge de 7.3% entre le 1<sup>er</sup> cycle en 0.5C et le 490<sup>ème</sup> cycle en 0.5C en passant respectivement de 112.23mAh/g à 103.98mAh/g. Au 490<sup>ème</sup> cycle ainsi que tout le long du cyclage galvanostatique, les plateaux de potentiels correspondants aux mécanismes de (dé)lithiation des matériaux du système ne sont pas dégradés.

[0191] [Tableaux14]

<i>Electrolyte</i>	<i>C-rate</i>	<i>Capacité de charge (mAh/g)</i>	<i>Capacité de décharge (mAh/g)</i>	<i>Efficacité (%)</i>
3M LiFSI in N1113FSI + 0.0105 mol/kg Pbutène(2CN) <sub>3</sub> FSI	0.5C (1 <sup>er</sup> cycle)	112.86	112.23	99.44
3M LiFSI in N1113FSI + 0.0105 mol/kg Pbutène(2CN) <sub>3</sub> FSI	0.5C (490 <sup>ème</sup> cycle)	104.03	103.98	99.95

[0192] **Tableau 14** : Caractéristiques d'une pile avec un système LMNO/Graphite à 0,5C.[0193] Le tableau 14 et la [Fig.14] montrent la capacité de décharge d'un système avec [Pbutène(2CN)<sub>3</sub>FSI][0194] Avec [Pbutène(2CN)<sub>3</sub>FSI] la capacité de décharge du premier cycle à un taux C de 0.5C est de 112.23mAh/g. Concernant la cyclabilité, la capacité du système contenant Pbutène(2CN)<sub>3</sub>FSI est stable au cours des cycles. En effet, en prenant en compte les 490 premiers cycles, la rétention de capacité pour le système contenant [Pbutène(2CN)<sub>3</sub>FSI] est 92.7% avec une profondeur de charge et de décharge de 100%. L'efficacité coulombique est également haute pour l'électrolyte contenant le [Pbutène(2CN)<sub>3</sub>FSI], c'est-à-dire de 99.95% au 490<sup>ème</sup> cycles.[0195] **EXEMPLE 9 : PREPARATION D'UNE BATTERIE LMNO/Lithium Métal avec [P14(2CN)<sub>2</sub>FSI] CHARGE ET DECHARGE DE LA PILE**[0196] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec une teneur en eau et O<sub>2</sub> inférieure à 1ppm, le sel de lithium LiFSI (3.74g) est dissout dans le liquide ionique N1114FSI (10.51g) dans une concentration souhaitée, P14(2CN)<sub>2</sub>FSI (0.35g) est ensuite ajouté et mélangé afin d'obtenir une solution homogène.

[0197] La batterie a été préparée selon la méthode décrite dans l'Exemple 1. Le tableau 15 ci-dessous regroupe la combinaison cathode/anode/électrolyte testée en batterie.

[0198] [Tableaux15]

<i>Electrode Positive /Capacité</i>	<i>Electrode Négative / Capacité</i>	<i>Electrolytes</i>
LMNO – 1.07mAh/cm <sup>2</sup>	Lithium métal	2M LiFSI in N1114FSI + 0.0628 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI

[0199] **Tableau 15:** Combinaison de cathode LMNO/anode Lithium métal/électrolyte testée en batterie.

[0200] La batterie a été testée en cyclage galvanostatique de 3.5 à 5V à un taux de C de 0.5C dans une enceinte climatique à 25°C.

[0201] [Tableaux16]

<i>Electrolyte</i>	<i>C-rate</i>	<i>Capacité de décharge (mAh/g)</i>
2M LiFSI in N1114FSI + 0.0628 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.5C (1 <sup>er</sup> cycle)	136.59
2M LiFSI in N1114FSI + 0.0628 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.5C (180 <sup>ème</sup> cycle)	136.26

[0202] **Tableau 16:** Caractéristiques d'une pile avec un système LMNO/Lithium métal à 0,5C.

[0203] Le tableau 16 et la [Fig.15] montrent la capacité de décharge d'un système avec[P14(2CN)<sub>2</sub>FSI] .

[0204] Avec [P14(2CN)<sub>2</sub>FSI], la capacité de décharge du premier cycle à un taux C de 0.5C est de 136.59mAh/g. Concernant la cyclabilité, la capacité du système contenant P14(2CN)<sub>2</sub>FSI est stable au cours des cycles. En effet, après 180 cycles, aucune perte de capacité significative est observée pour le système contenant [P14(2CN)<sub>2</sub>FSI] pour une profondeur de charge et de décharge de 100%.

[0205] **EXEMPLE 10 : PREPARATION D'UNE BATTERIE BLEU DE PRUSSE/ CARBONE DUR [P14(2CN)<sub>2</sub>FSI]**

[0206] Dans une boîte à gants sous atmosphère inerte (Argon) avec une teneur en eau et O<sub>2</sub> inférieure à 1ppm, le sel de sodium NaFSI (2.03g) est dissout dans le liquide ionique N1114FSI (11.76g) dans une concentration souhaitée, P14(2CN)<sub>2</sub>FSI (0.339g) est ensuite ajouté et mélangé afin d'obtenir une solution homogène.

[0207] La batterie a été préparée selon la méthode décrite dans l'Exemple 1. Le tableau 17 ci-dessous regroupe la combinaison cathode/anode/électrolyte testée en batterie.

[0208] [Tableaux17]

<i>Electrode Positive /Capacité</i>	<i>Electrode Négative / Capacité</i>	<i>Electrolytes</i>
Bleu de Prusse – 0.56mAh/cm <sup>2</sup>	Carbone dur – 0.85mAh/cm <sup>2</sup>	1M NaFSI in N1114FSI + 0.0628 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI

[0209] **Tableau 17 :** Combinaison de cathode Bleu de Prusse/anode Carbone dur/électrolyte testée en batterie.

[0210] [Tableaux18]

<i>Electrolyte</i>	<b>C-rate</b>	<b>Capacité de charge (%)</b>	<b>Capacité de décharge (%)</b>	<b>Efficacité (%)</b>
1M NaFSI in N1114FSI + 0.0628 mol/kg P14(2CN) <sub>2</sub> FSI	0.05C	100	94.42	94.42
	0.1C	76.70	75.93	98.98
	0.14C	62.33	62.02	99.44

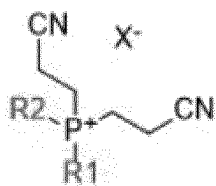
[0211] **Tableau 18** : Caractéristiques d'une pile avec un système Bleu de Prusse/Carbone dur à différents taux de C.

[0212] La [Fig.16] et le tableau 18 montrent qu'avec Avec P14(2CN)<sub>2</sub>FSI , les efficacités coulombiques à des taux de C de 0.1C et 0.14C sont respectivement de 98.98% et 99.44%.

## Revendications

[Revendication 1]

Composition d'électrolyte comprenant un sel de Lithium ou un sel de Sodium, un solvant organique aprotique et un composé d'électrolyte, dans laquelle ledit composé d'électrolyte comprend un sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium tel que représenté par la formule (I) :  
[Chem.1]



(I)

dans laquelle :

X- est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthanides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates;

R1 est *indépendamment* choisi parmi une chaîne -CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CN non substituée, un alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

R2 est *indépendamment* choisi parmi un groupement alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[Revendication 2]

Composition d'électrolyte selon la revendication 1 dans laquelle R1 est choisi parmi chaîne -CH<sub>2</sub>-CH<sub>2</sub>-CN non substituée, un alkyle en C1 -C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement

sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons ; et R2 est un alkyle en C1 -C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement nitrile, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

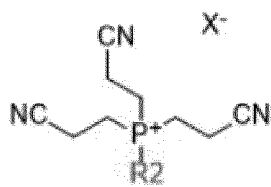
[Revendication 3] Composition d'électrolyte selon la revendication 2 dans laquelle R1 est choisi parmi un méthyle ou un alkyle en C1-C4 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un alkyle perfluoré, un silyle, un siloxy, un sulfoxyde, un nitrile, un thioéther ou leurs combinaisons ; et dans lequel R2 est choisi parmi un méthyle, un éthyle, un propyle, un iso-butyle, un n-butyle ou un allyle.

[Revendication 4] Composition d'électrolyte selon la revendication 1 dans laquelle :  
X- est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates ;  
R1 est indépendamment choisi parmi un alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.  
R2 est indépendamment choisi parmi un groupement alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, par un groupement vinylbenzylique; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[Revendication 5] Composition d'électrolyte selon la revendication 4 dans laquelle R1 et R2 sont indépendamment choisis parmi un alkyle en C1-C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.



- [Revendication 6] Composition d'électrolyte selon la revendication 5 dans laquelle R1 est choisi parmi un méthyle ou un alkyle en C1-C4 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons ; et R2 est choisi parmi un méthyle, un éthyle, un propyle, un iso-butyle, un n-butyle ou un allyle.
- [Revendication 7] Composition d'électrolyte selon l'une des revendications 1 à 6 dans laquelle l'anion est choisi parmi bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (TFSI), tétrafluoroborate, hexafluorophosphate, dicyanamide, triflate, 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazolate, fluoro-sulfonyl(trifluoromethanesulfonyl)imide, bis(oxalato)borate, difluorobis(oxalato)borate, acétate, N-ethyl-N-méthyl-fonctionalized sulfonimide, (difluoromethanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (difluoromethanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide.
- [Revendication 8] Composition d'électrolyte selon la revendications 7 dans laquelle l'anion X<sup>-</sup> est choisi parmi le FSI ou le TFSI.
- [Revendication 9] Composition d'électrolyte selon la revendication 1 dont le sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium est représenté par la formule (II) :  
[Chem.2]



(II)

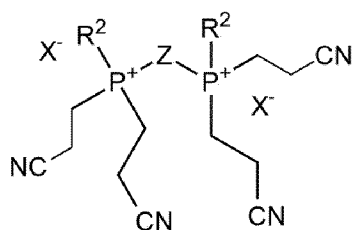
dans laquelle

X<sup>-</sup> est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates ; et

R2 est indépendamment choisi parmi un groupement alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, par un groupement vinylbenzylique; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un

- fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.
- [Revendication 10] Composition d'électrolyte selon la revendication 9 dans laquelle R2 est un alkyle en C1-C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.
- [Revendication 11] Composition d'électrolyte selon la revendication 10 dans laquelle R2 est choisi parmi un alkyle en C1-C4 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un -CF<sub>3</sub>, un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.
- [Revendication 12] Composition d'électrolyte selon la revendication 11 dans laquelle R2 est choisi parmi un méthyle, un éthyle, un propyle, un iso-butyle, un n-butyle ou un allyle.
- [Revendication 13] Composition d'électrolyte selon l'une des revendications 9 à 12 dans laquelle l'anion est choisi parmi bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (TFSI), tétrafluoroborate, hexafluorophosphate, dicyanamide, triflate, 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazolate, fluoro-sulfonyl(trifluoromethanesulfonyl)imide, bis(oxalato)borate, difluorobis(oxalato)borate, acétate., N-ethyl-N-méthyl-fonctionalized sulfonimide, (difluoromethanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (difluoromethanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide.
- [Revendication 14] Composition d'électrolyte selon la revendication 13 dans laquelle l'anion X- est choisi parmi le FSI ou le TFSI.
- [Revendication 15] Composition d'électrolyte selon la revendication 1 dans laquelle le sel de (2-cyanoéthyl)phosphonium est sous la forme d'un dimère de sel de phosphonium, ledit dimère étant représenté par la formule (III)

[Chem.3]



(III)

dans laquelle

Z est choisi parmi les di-radicaux alkyles en C1-C20 de type  $-(CH_2)_n-$  pouvant comprendre un ou plusieurs éther ou pouvant comprendre un ou plusieurs enchainements de type  $-CH_2-Y-CH_2-$  avec  $Y=S$  ou  $SO$  ou  $SO_2$  ; de préférence le di-radical alkyles est un diradical éthyle, propyle, butyle ou pentyle ;

X- est choisi parmi les phosphates de fluoroalkyle, les phosphinates de fluoroalkyle, les phosphonates de fluoroalkyle, les acétates, les triflates, les imides, les amidures, les méthides, les borates, les phosphates, les sulfonimides ou les aluminates ;

R2 est indépendamment choisi parmi une chaîne  $-CH_2-CH_2-CN$  non substituée, par un alkyle en C1-C20, un cycloalkyle en C3-C6, un alcényle en C2-C20, un cycloalcényle en C5-C8, un alcynyle en C2-C20, un groupement vinylbenzylique; dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un  $-CF_3$ , un éther, un groupement alkyle, un alkyle perfluoré, un silyle, un siloxy, un sulfoxyde, un nitrile, un thioéther ou leurs combinaisons ;

[Revendication 16] Composition d'électrolyte selon la revendication 15 dans laquelle R2 est un alkyle en C1 -C10 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un  $-CF_3$ , un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons.

[Revendication 17] Composition d'électrolyte selon la revendication 16 dans laquelle R2 est choisi parmi un méthyle ou un alkyle en C1-C4 dans lesquels les atomes d'hydrogène peuvent être substitués par un fluor, un  $-CF_3$ , un éther, un groupement alkyle, un groupement alkyle perfluoré, un groupement silyle, un groupement siloxy, un groupement sulfoxyde, un groupement thioéther ou leurs combinaisons ; et R2 est choisi parmi un méthyle, un éthyle, un propyle, un iso-butyle, un n-butyle ou un allyle.

[Revendication 18] Composition d'électrolyte selon l'une des revendications 15 à 17 dans

laquelle l'anion est choisi parmi bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), bis(trifluoromethanesulfonyl)imide (TFSI), tétrafluoroborate, hexafluorophosphate, dicyanamide, triflate, 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazolate, fluorosulfonyl(trifluoromethanesulfonyl)imide, bis(oxalato)borate, difluorobis(oxalato)borate, acétate., N-éthyl-N-méthyl-fonctionnalisés sulfonimide, (difluoromethanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(trifluoromethanesulfonyl)imide, (difluoromethanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide, (methanesulfonyl)(fluoromethanesulfonyl)imide.

- [Revendication 19] Composition d'électrolyte selon la revendication 18 dans laquelle l'anion X<sup>-</sup> est choisi parmi le FSI ou le TFSI.
- [Revendication 20] Composition d'électrolyte selon l'une des revendications 1 à 19 dans laquelle ledit solvant organique aprotique est choisi parmi un liquide ionique, un carbonate, un glyme, un alkyl-sulfonamide ou un mélange de ceux-ci.
- [Revendication 21] Composition d'électrolyte selon l'une des revendications 1 à 20 dans laquelle le liquide ionique comprend (i) un cation choisi parmi un imidazolium, ou à base de pyrrolidinium, de morpholinium, de pyridinium, de pipéridinium, de phosphonium, d'ammonium et (ii) un anion choisi parmi l'hexafluorophosphate (PF<sub>6</sub>), le tétrafluoroborate (BF<sub>4</sub>), le bis(trifluorométhanesulfonyl)imide (TFSI), le bis(fluorosulfonyl)imide (FSI), le dicyanamide (DCA), le 4,5-dicyano-2-(trifluorométhyl)imidazole (TDI), le fluorosulfonyl(trifluorométhanesulfonyl)imide (FTFSI), le (difluorométhanesulfonyl)(trifluorométhanesulfonyl)imide (DFTFSI), le bis(oxalato)borate (BOB), le difluoro(oxalato)borate (DFOB).
- [Revendication 22] Composition d'électrolyte selon l'une des revendications 1 à 21 comprenant un sel de lithium ou de sodium, un composé d'électrolyte tel que défini à l'une des revendications 1, 4 ou 9 et un liquide ionique.
- [Revendication 23] Batterie comprenant une cathode, un séparateur et une composition d'électrolyte tel que décrit à l'une des revendications 1 à 22.
- [Revendication 24] Batterie comprenant une cathode, une anode, un séparateur et une composition d'électrolyte tel que définie à l'une des revendications 1 à 22.
- [Revendication 25] Batterie selon l'une des revendications 23 ou 24 où le séparateur et l'électrolyte sont identiques.
- [Revendication 26] Batterie selon l'une des revendications 23 à 25 dans laquelle la cathode est choisie parmi

- a. Pour une batterie Lithium : un composé intercalant du lithium, choisi parmi le phosphate de lithium-fer, (LiFePO<sub>4</sub>), l'oxyde de lithium-nickel-manganèse-cobalt, (LiNixMnyCozO<sub>2</sub>), l'oxyde de lithium-nickel-manganèse-cobalt dopé, (LiNixMnyCozO<sub>2</sub>), l'oxyde de lithium-cobalt (LiCoO<sub>2</sub>), l'oxyde de lithium-cobalt dopé, l'oxyde de lithium-nickel (LiNiO<sub>2</sub>), l'oxyde de lithium-nickel dopé, l'oxyde de lithium-manganèse (LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>), l'oxyde de lithium-manganèse dopé, NCA, l'oxyde de lithium-vanadium, l'oxyde de lithium-vanadium dopé, des oxydes de lithium et de métaux mixtes, Lithium Manganèse Nickel Oxyde (LMNO), des oxydes de lithium et de métaux de transition mixtes, des oxydes de lithium et de métaux de transition mixtes dopés (NCA, LMNX,), le phosphate de lithium-vanadium, le phosphate de lithium-manganèse, le phosphate de lithium-cobalt, les phosphates de lithium et de métaux mixtes, les sulfures métalliques et leurs combinaisons.
- b. Pour une batterie Sodium-ion : un oxyde métallique tel que VO<sub>2</sub>, V<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, H<sub>2</sub>V<sub>3</sub>O<sub>8</sub>, b- MnO<sub>2</sub> ;

le NaMOX en couches tel que Na<sub>0.71</sub>CoO<sub>2</sub>, Na<sub>0.7</sub>MnO<sub>2</sub>, b-NaMnO<sub>2</sub>, Na<sub>1.1</sub>V<sub>3</sub>O<sub>7.9</sub>, Na<sub>2</sub>RuO<sub>3</sub>, Na<sub>2/3</sub>[Ni<sub>1/3</sub>Mn<sub>2/3</sub>]O<sub>2</sub>, Na<sub>0.67</sub>Co<sub>0.5</sub>Mn<sub>0.5</sub>O<sub>2</sub>, Na<sub>0.66</sub>Li<sub>0.18</sub>Mn<sub>0.71</sub>Ni<sub>0.21</sub>Co<sub>0.08</sub>O<sub>2+x</sub> ; des oxydes tunnel 1D tels que Na<sub>0.44</sub>MnO<sub>2</sub>, Na<sub>0.66</sub>[Mn<sub>0.66</sub>Ti<sub>0.34</sub>]O<sub>2</sub>, Na<sub>0.61</sub>[Mn<sub>0.27</sub>Fe<sub>0.34</sub>Ti<sub>0.39</sub>]O<sub>2</sub> ; des fluorures tels que FeO<sub>0.7</sub>F<sub>1.3</sub> et NaFeF<sub>3</sub> ; des sulfates tels que Na<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub>(SO<sub>4</sub>)<sub>3</sub> et Eldfellite NaFe(SO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> ; des phosphates NaFePO<sub>4</sub> et FePO<sub>4</sub> ; Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>@C@rGO, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>/C, NaVOPO<sub>4</sub> ; des pyrophosphates tels que Na<sub>2</sub>CoP<sub>2</sub>O<sub>7</sub>, Na<sub>2</sub>FeP<sub>2</sub>O<sub>7</sub> et Na<sub>3.12</sub>Fe<sub>2.44</sub>(P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>)<sub>2</sub> ; des fluorophosphates tels que NaVPO<sub>4</sub>F, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>F<sub>3</sub>, Na<sub>3</sub>V<sub>2</sub>O<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>F@RuO<sub>2</sub>, Na<sub>3</sub>(VO<sub>1-x</sub>PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>F<sub>1+2x</sub>, Na<sub>3.5</sub>V<sub>2</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>F<sub>3</sub> ; des phosphates mixtes tels que Na<sub>7</sub>V<sub>4</sub>(P<sub>2</sub>O<sub>7</sub>)<sub>4</sub>(PO<sub>4</sub>), Na<sub>3</sub>MnPO<sub>4</sub>CO<sub>3</sub> ; des hexacyanométalates tels que MnHCMn PBAs, Na<sub>1.32</sub>Mn[Fe(CN)<sub>6</sub>]0.83.3.5H<sub>2</sub>O, Na<sub>x</sub>Co[Fe(CN)<sub>6</sub>]0.90.2.9H<sub>2</sub>O ;

des cathodes sans métal critique telles que Na<sub>2</sub>C<sub>6</sub>O<sub>6</sub>, Na<sub>6</sub>C<sub>6</sub>O<sub>6</sub>, SSDC, C<sub>6</sub>Cl<sub>4</sub>O<sub>2</sub>/CMK, PTCDA-PI, les poly(anthraquinonyl imide)s et le graphite fonctionnalisé ;

les analogues de blanc de Prusse

Les analogues de bleu de Prusse

[Revendication 27] Batterie selon l'une des revendications 24, à 26 dans laquelle l'anode est choisie parmi :

a. Pour une batterie Lithium-ion :

un oxyde composite de titane contenant du lithium ;

mélange d'oxydes de niobium (XNO) ;

des métaux (Me) tels que Si, Sn, Li, Zn, Mg, Cd, Ce, Ni et Fe ou des alliages de ceux-ci ;

le graphite, le graphène, y compris les particules de graphite naturel, de graphite artificiel, de microbilles de méso-carbone (MCMB) et de carbone (y compris le carbone mou, le carbone dur, les nanofibres de carbone et les nanotubes de carbone) ;

le silicium (Si), des composites silicium/graphite, des combinaisons de silicium de germanium (Ge), l'étain (Sn), le plomb (Pb), l'antimoine (Sb), le bismuth (Bi), le zinc (Zn), l'aluminium (Al), le nickel (Ni), le cobalt (Co), le manganèse (Mn), le titane (Ti), le fer (Fe) et le cadmium (Cd) ;

des alliages ou composés intermétalliques de Si, Ge, Sn, Pb, Sb, Bi, Zn, Al ou Cd avec d'autres éléments, lesdits alliages ou composés étant stœchiométriques ou non stœchiométriques ;

des oxydes, carbures, nitrures, sulfures, phosphures, séléniures et tellures de Si, Ge, Sn, Pb, Sb, Bi, Zn, Al, Fe, Ni, Co, Ti, Mn ou Cd, et leurs mélanges ou composites ;

des oxydes (MeO<sub>x</sub>) des métaux (Me) ;

et des composites des métaux (Me) avec du carbone ;

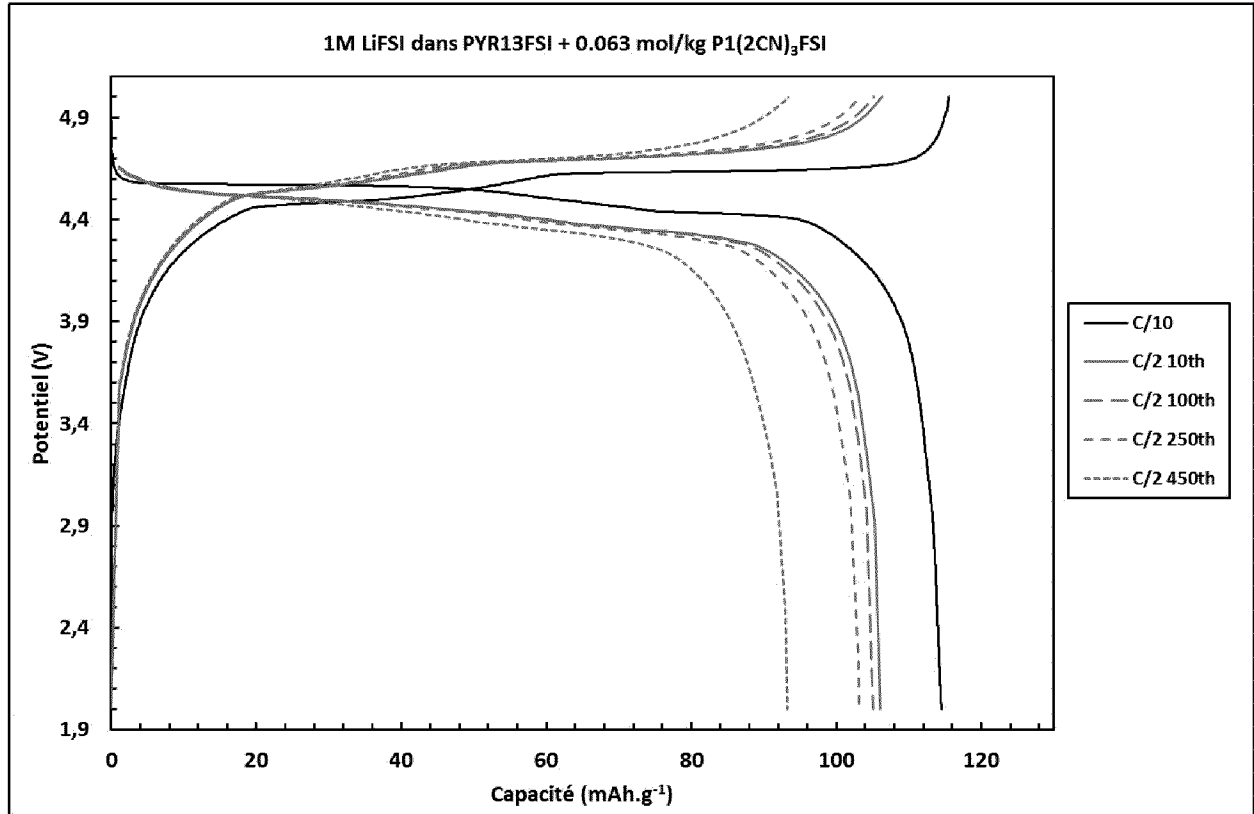
des matériaux MXene, [M<sub>x</sub>C où X = 2,3,4).

a. Pour une batterie Sodium-ion : des matériaux à base d'oxydes, de sulfures, de séléniures, de phosphures et de MOF et des matériaux à base de carbone ; les matériaux à base de carbone comprennent le graphite expansé, le graphite expansé dopé N, le noir de carbone, le carbone amorphe, les microsphères de carbone, le carbone dur, le carbone mou méso-puissant, les

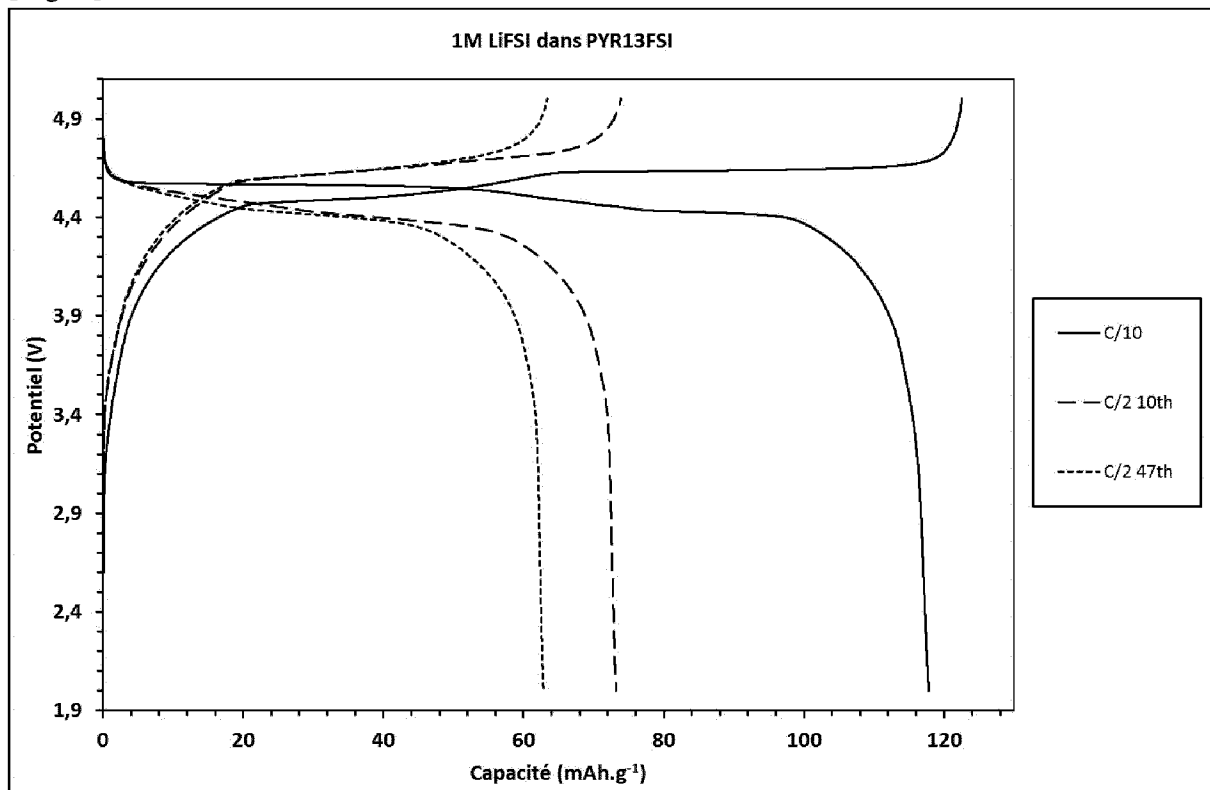
nanotubes de carbone, les nanofeuillets de graphène, les CNT dopés à l'azote, la mousse de graphène dopée N, les nanofibres poreuses dopées N, le carbone microporeux et le carbone poreux en forme de cube ; les oxydes comprennent les nanofleurs de MnO<sub>2</sub>, les nanofeuillets de NiO, le SnO poreux, les nanotubes de SnO<sub>2</sub> poreux, le Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>-C 3D poreux, le CuO-RGO poreux, les MnO-CNT dopés à l'azote ultrapetits, les micro-fleurs de CuS, SnS<sub>2</sub>-RGO, Co<sub>3</sub>S<sub>4</sub>-PANI, ZnS-RGO, NiS-RGO, Co<sub>3</sub>S<sub>4</sub>-PANI, MoS<sub>2</sub>-C, les nanofeuillets de WS<sub>2</sub>-carbone conducteur dopé à l'azote, les nanotiges de Sb<sub>3</sub>Se<sub>3</sub>-RGO, le MoSe<sub>2</sub>-fibre de carbone, les nanostructures de Sn<sub>4</sub>P<sub>3</sub> à coquilles multiples, les nanosphères de Sn<sub>4</sub>P<sub>3</sub>-C, Se<sub>4</sub>P<sub>4</sub>, les nanoparticules de CoP, les matrices de nanotiges FeP sur du tissu de carbone, MoP-C, CUP<sub>2</sub>-C, le graphène NiO/Ni creux, le CoSe/C structuré en coquille-jaune dopé à l'azote ; le métal de Na.

[Revendication 28] Batterie selon l'une des revendications 24 à 27 dans laquelle lorsque cathode est en LMNO alors l'anode est en graphite ou en LTO ; lorsque la cathode est en NMC532 alors l'anode est en graphite ; lorsque la cathode est en NMC622 alors l'anode est en graphite ; lorsque la cathode est en LFP alors l'anode est en graphite ; lorsque la cathode est en LFP alors l'anode est en LTO.

[Fig. 1]

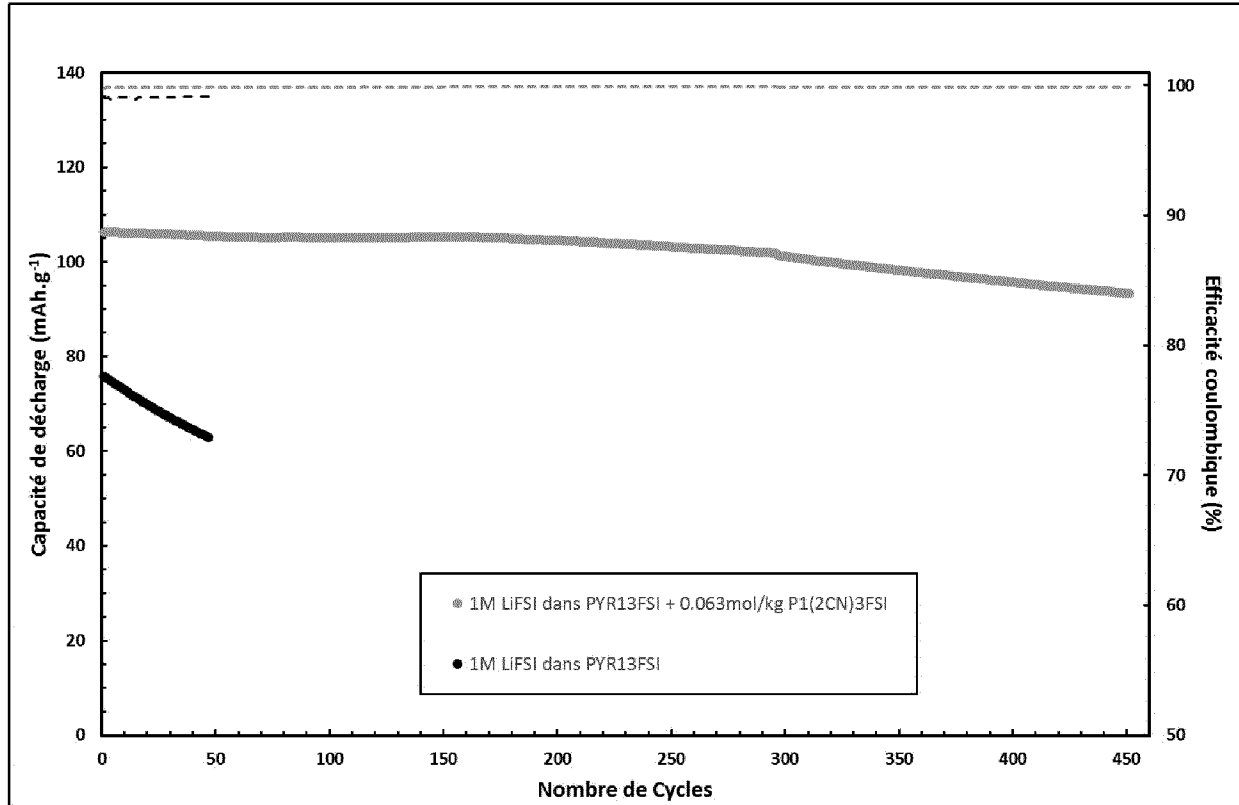


[Fig. 2]

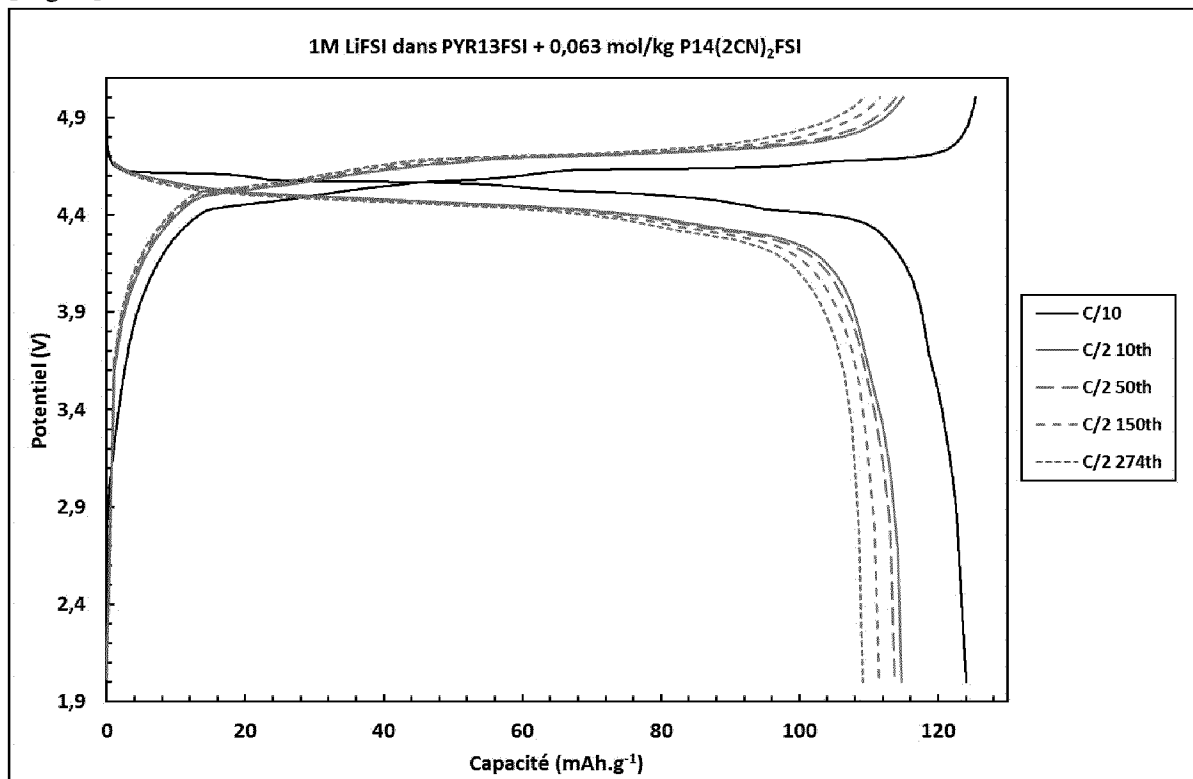




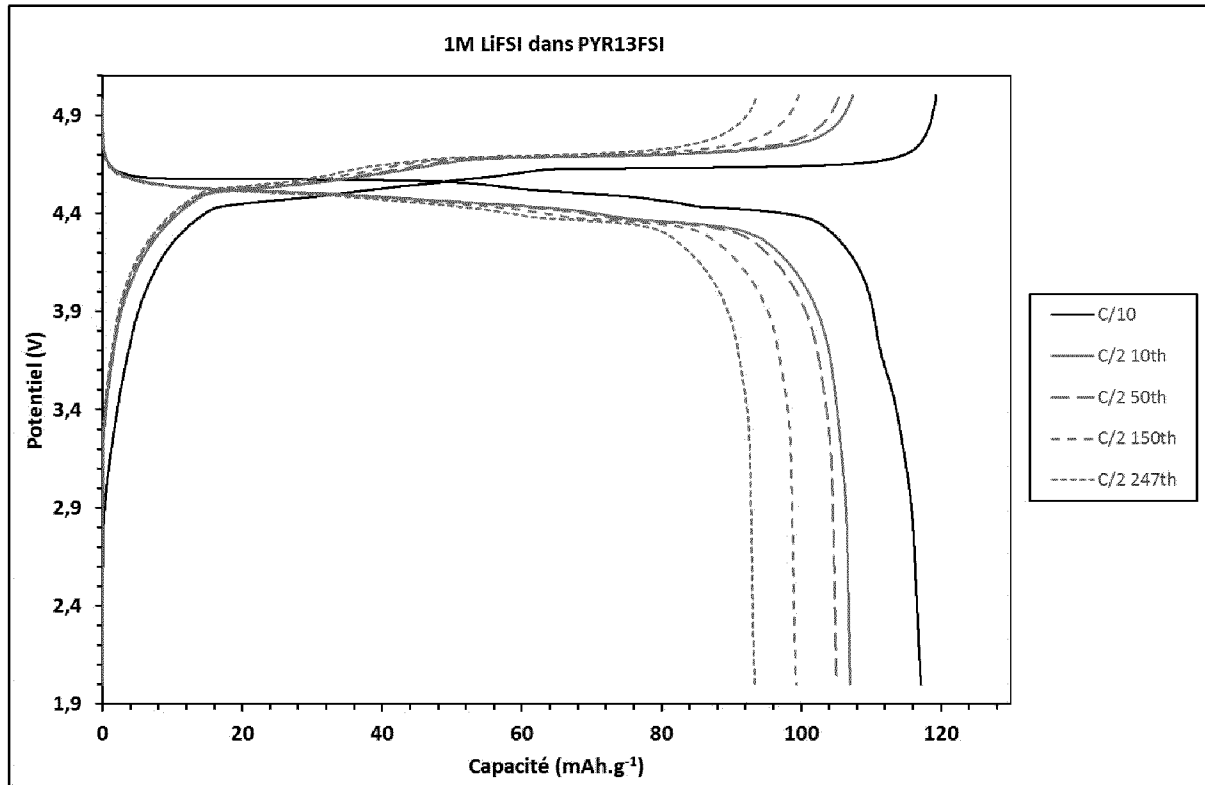
[Fig. 3]



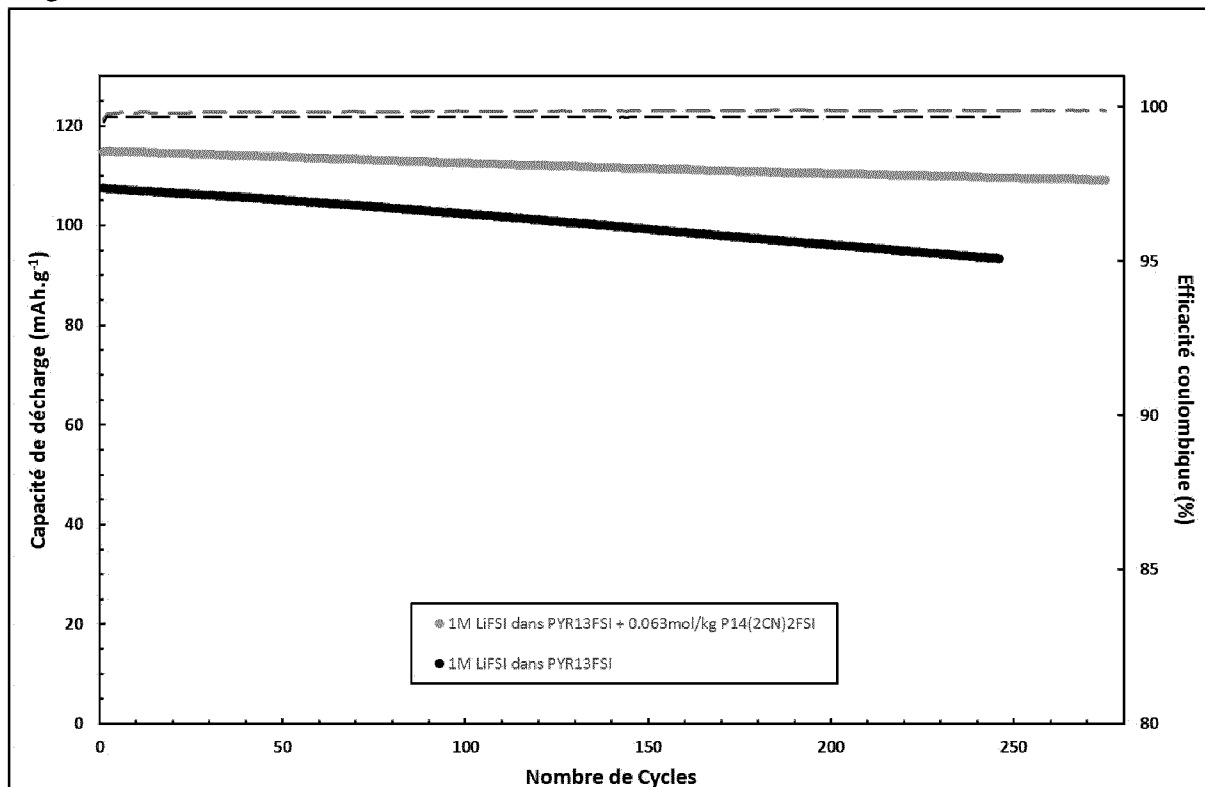
[Fig. 4]



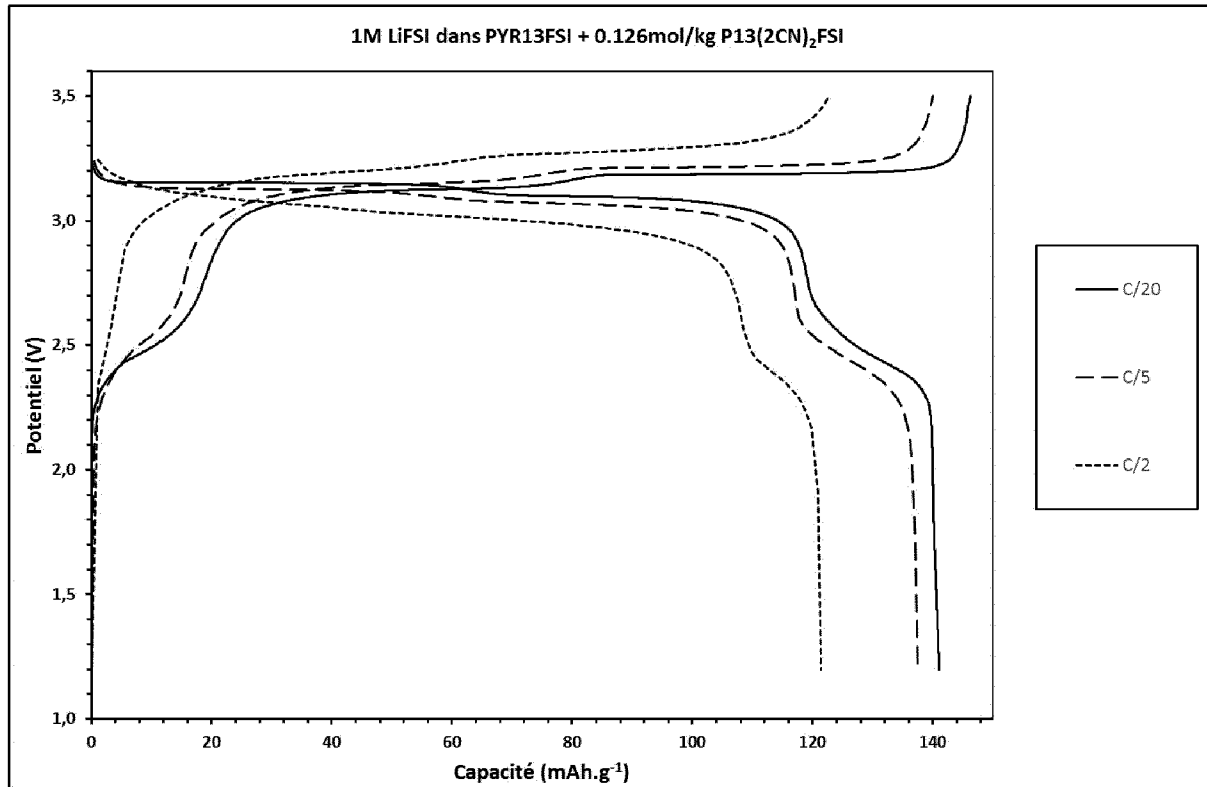
[Fig. 5]



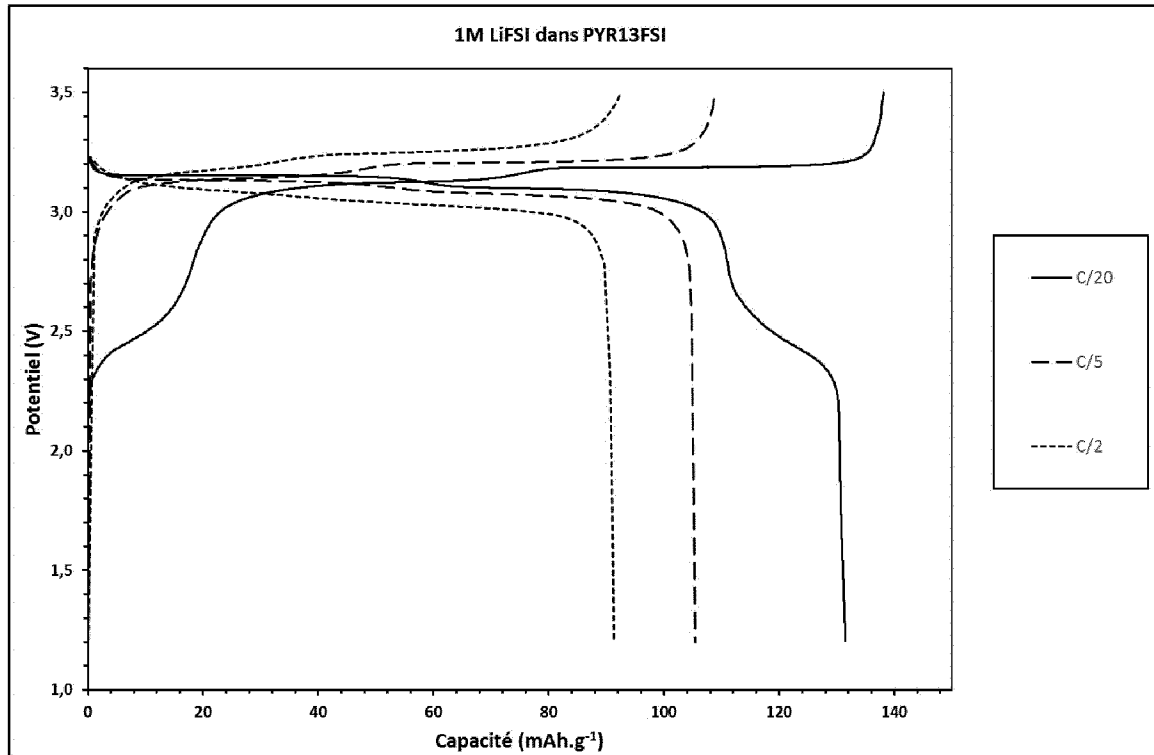
[Fig. 6]



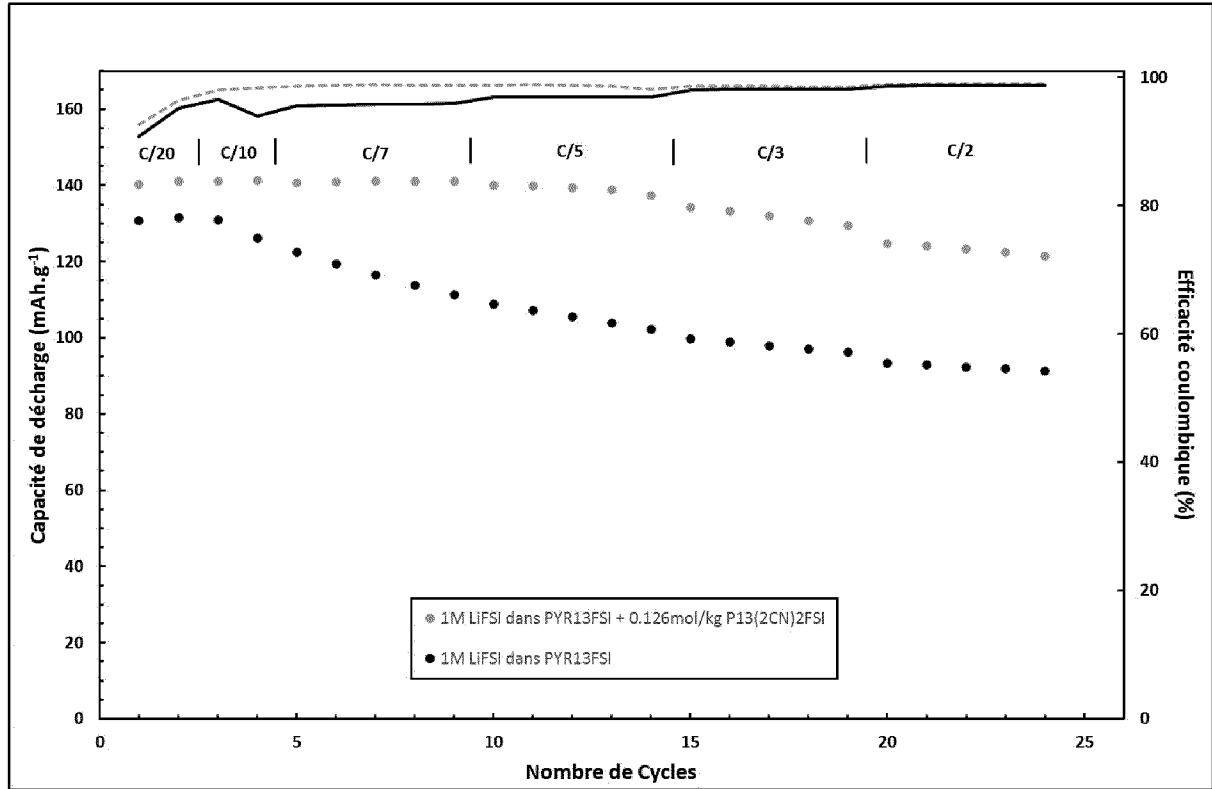
[Fig. 7]



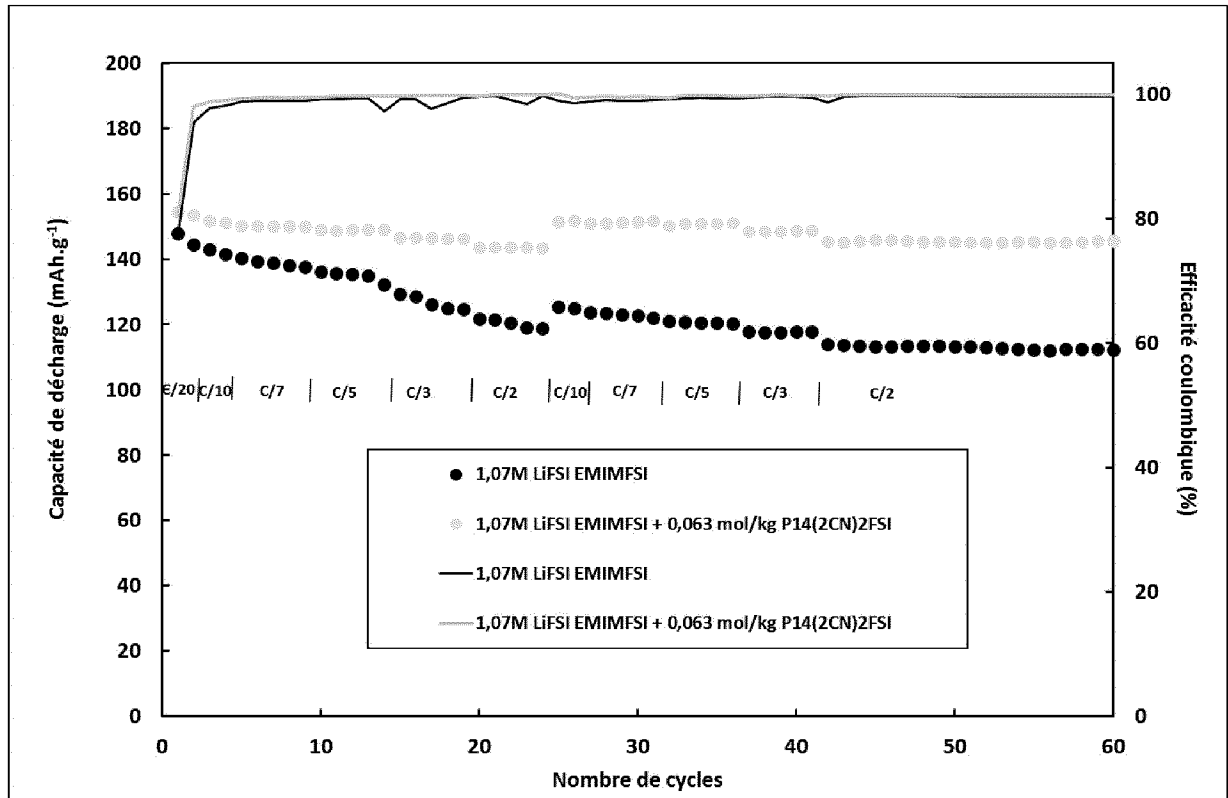
[Fig. 8]



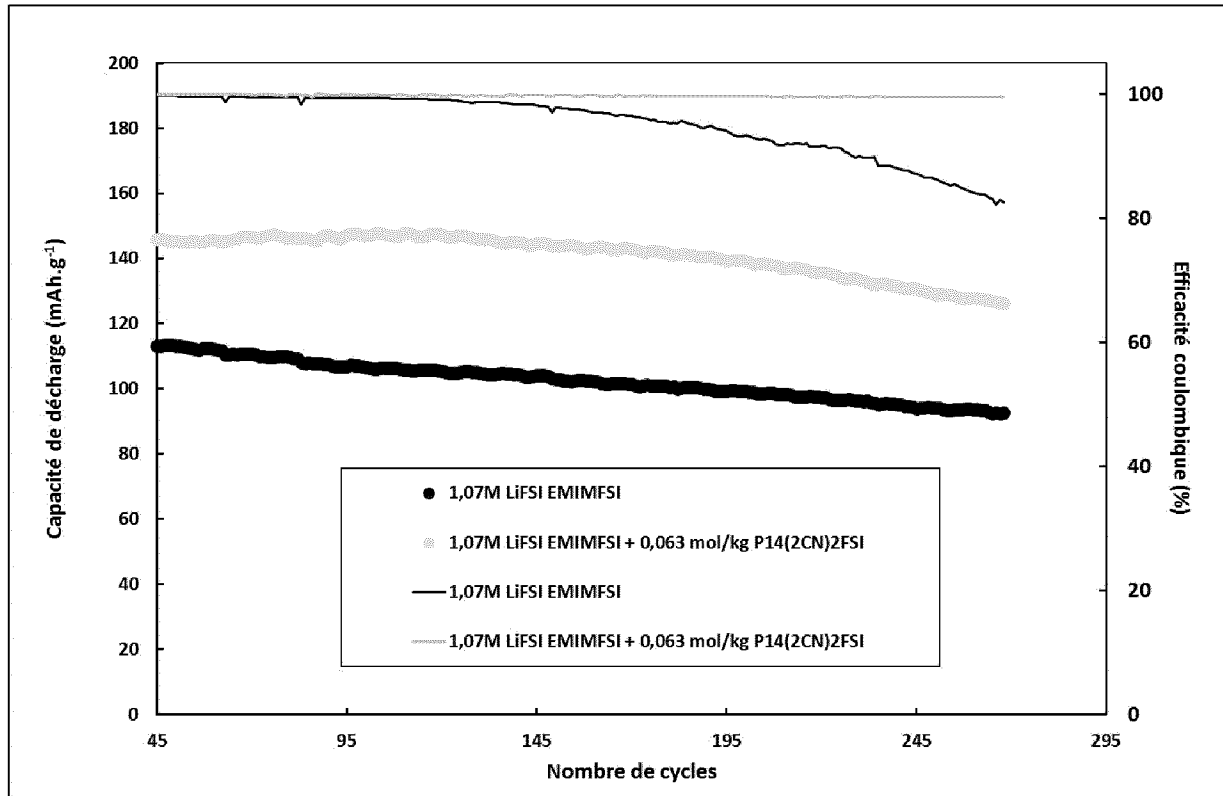
[Fig. 9]



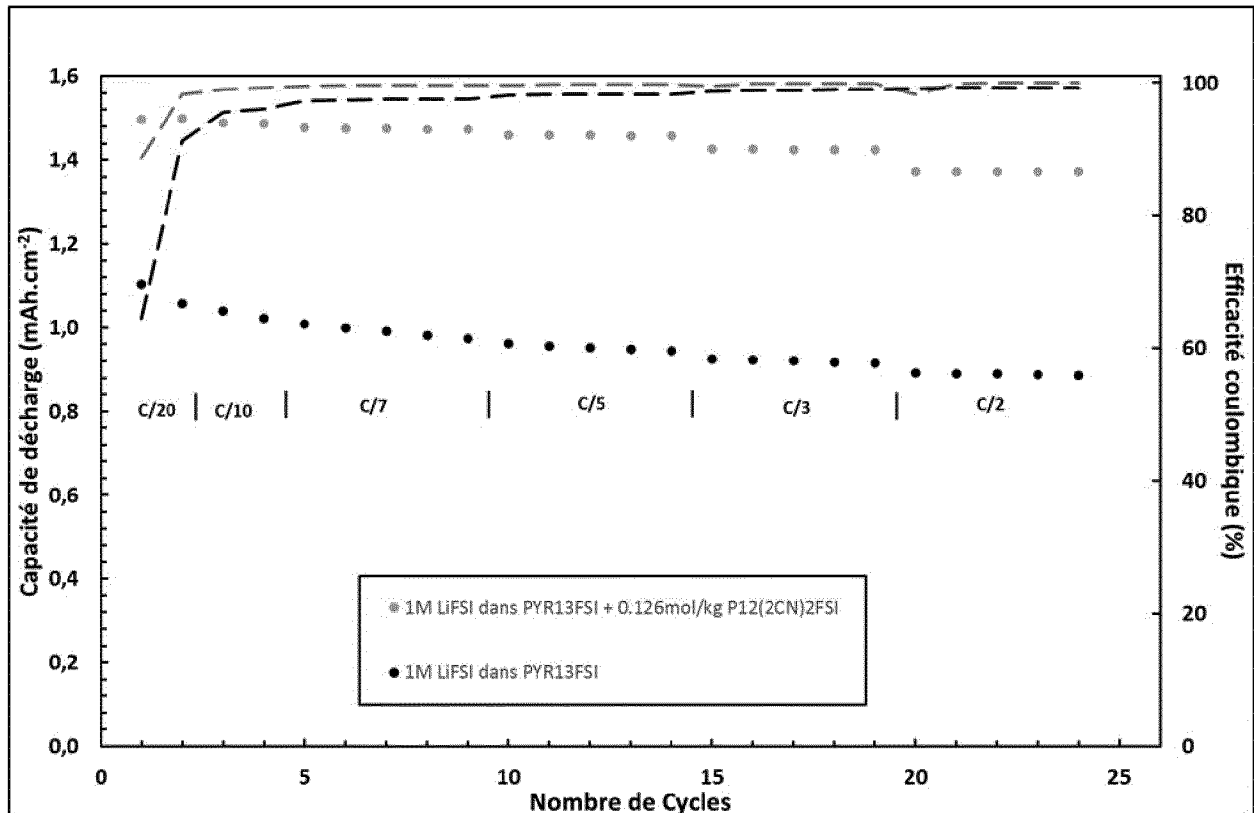
[Fig. 10]



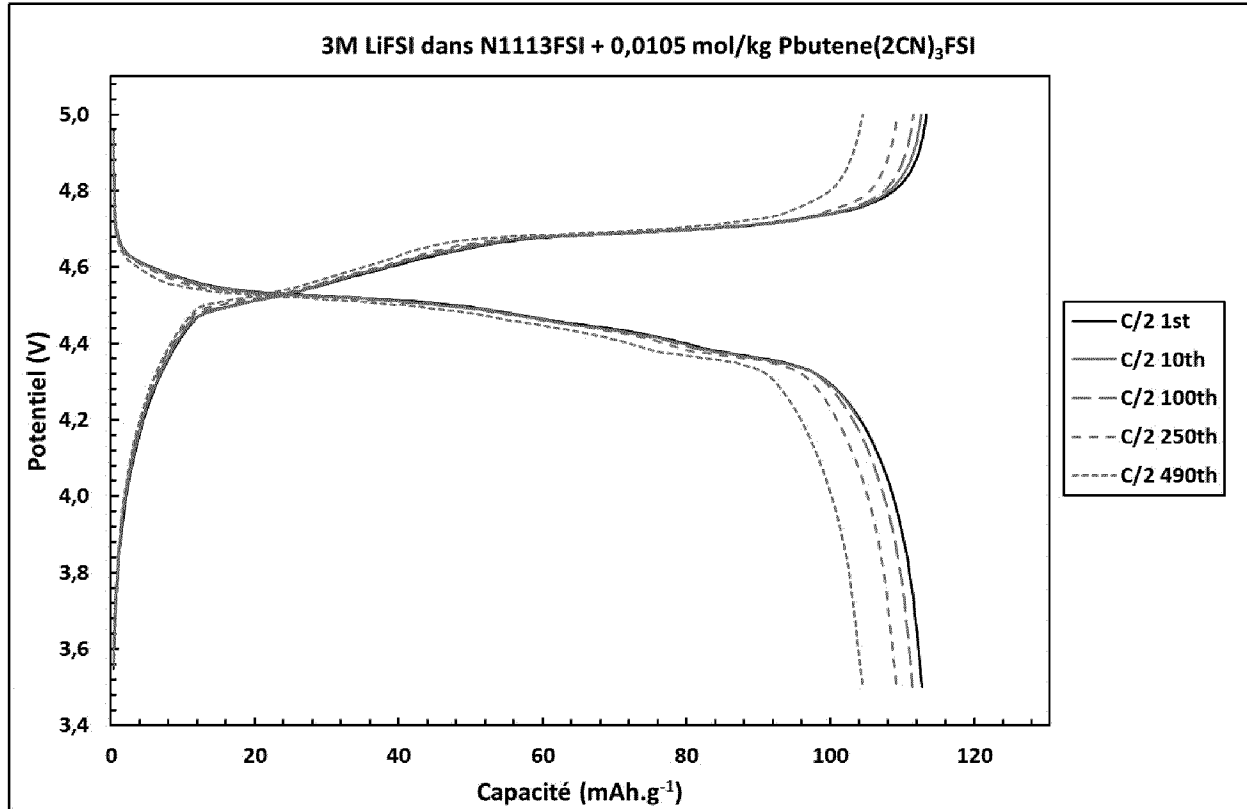
[Fig. 11]



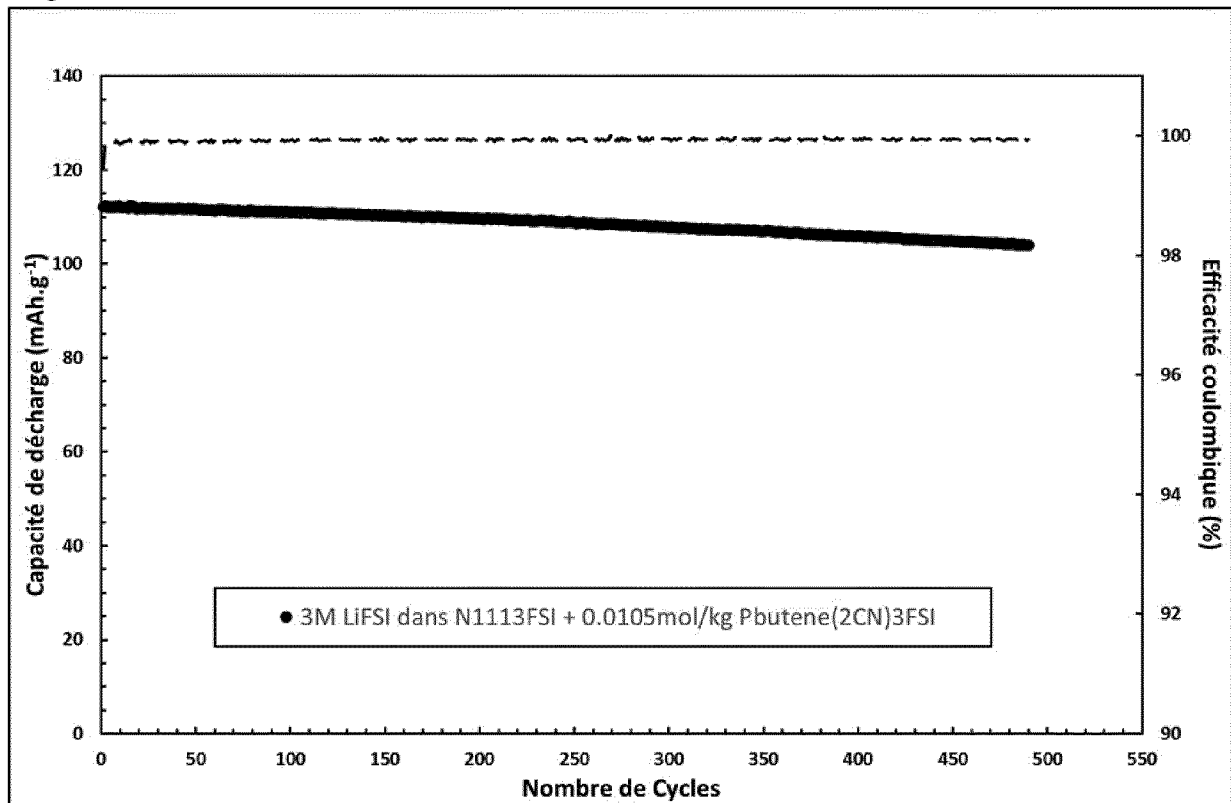
[Fig. 12]



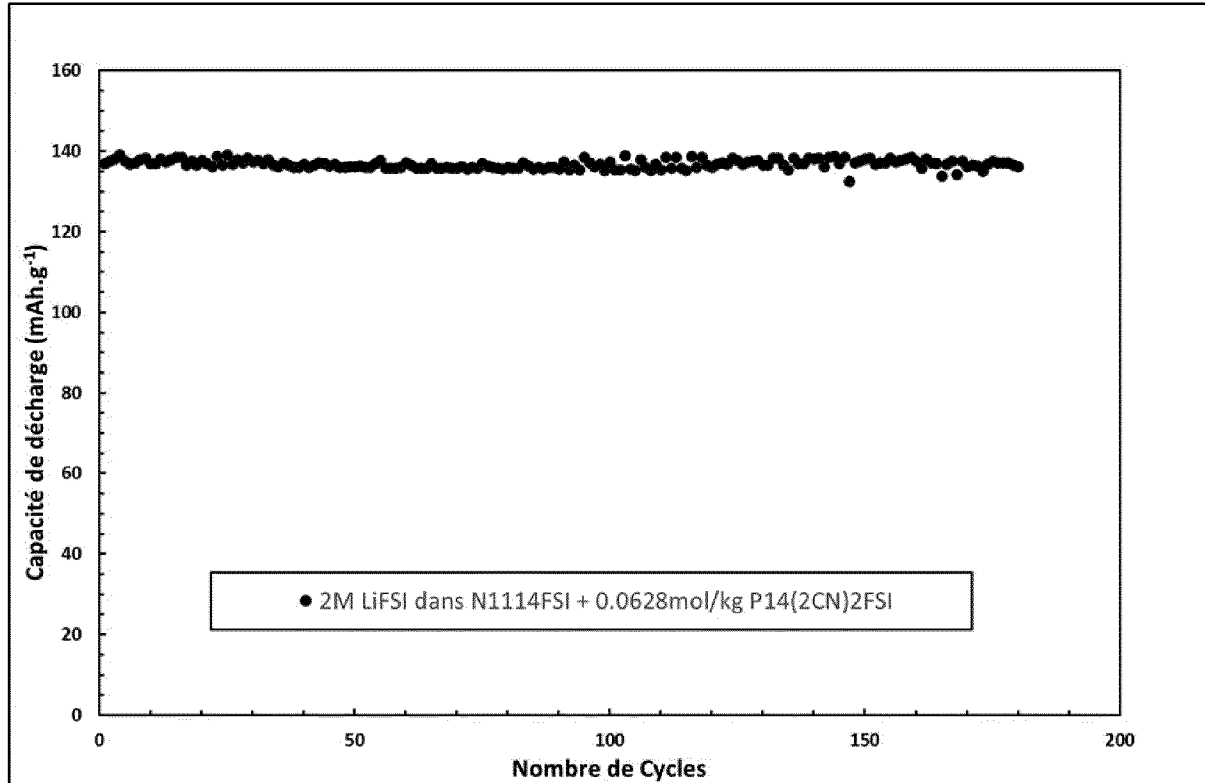
[Fig. 13]



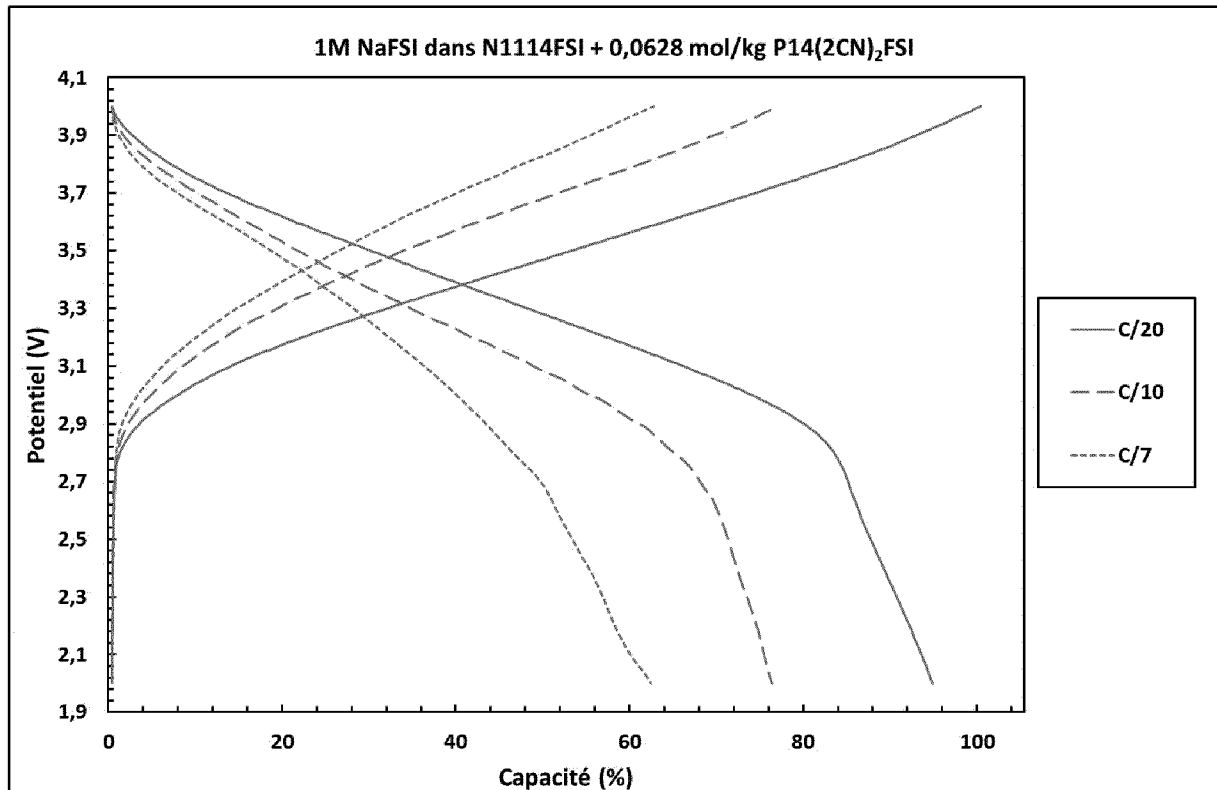
[Fig. 14]



[Fig. 15]



[Fig. 16]



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

**PCT/EP2023/081963**

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>H01M 10/0567</i> (2010.01)i; <i>H01M 10/0569</i> (2010.01)i; <i>H01M 10/0525</i> (2010.01)i; <i>H01M 10/054</i> (2010.01)i; <i>C07F 9/54</i> (2006.01)i; <i>H01M 4/485</i> (2010.01)n; <i>H01M 4/505</i> (2010.01)n; <i>H01M 4/525</i> (2010.01)n; <i>H01M 4/58</i> (2010.01)n; <i>H01M 4/587</i> (2010.01)n		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C07F; H01G; 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) EPO-Internal, WPI Data, INSPEC, COMPENDEX		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	M. OGATA ET AL. "Effects of Crosslinking on Physical Properties of Phenol-Formaldehyde Novolac Cured Epoxy Resins" <i>JOURNAL OF APPLIED POLYMER SCIENCE</i> , Vol. 48, No. 4, 20 April 1993 (1993-04-20), pages 583-601 DOI: 10.1002/APP.1993.070480403 ISSN: 0021-8995, XP000455203 abstract page 586; table II; compound MTCEP.TPB	1-28
A	EP 0309622 A1 (TAKEMOTO YUSHI K.K.) 05 April 1989 (1989-04-05) page 1, line 40 - page 2, line 23 page 6; table 1B; compound 2g claims 1 and 2	1-28
<input checked="" 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>“&amp;” document member of the same patent family</p>		
Date of the actual completion of the international search <b>31 January 2024</b>		Date of mailing of the international search report <b>26 March 2024</b>
Name and mailing address of the ISA/EP <b>European Patent Office p.b. 5818, Patentlaan 2, 2280 HV Rijswijk Netherlands</b> Telephone No. (+31-70)340-2040 Facsimile No. (+31-70)340-3016		Authorized officer <b>Masson, Jean-Pierre</b>  Telephone No.



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/EP2023/081963

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2022052382 A1 (NINGDE AMPEREX TECHNOLOGY LTD.) 17 February 2022 (2022-02-17) paragraph [0005] - paragraph [0014] paragraph [0019] paragraph [0041] - paragraph [0051] paragraph [0090] paragraph [0093] - paragraph [0094] paragraph [0100] - paragraph [0101] examples I, II claims 1-3, 8 and 10	1-28
A	WO 2004035542 A1 (SOLVENT INNOVATION GMBH) 29 April 2004 (2004-04-29) page 1, lines 4-9 page 5, line 8 - page 8, line 22 page 8, line 24 - page 11, line 12 page 16, lines 29-31 page 18, lines 16-17 example 1 claims 1, 5 and 6	1-28
A	JP 2018056013 A (JNC CORP.; JNC PETROCHEMICAL CORP.) 05 April 2018 (2018-04-05) cited in the application abstract examples 1.3, 2.3, 3.3; table 1 paragraph [0043]; compound CA(3) claims 1-5, 10 and 11	1-28
A	WO 2009132740 A2 (MERCK PATENT GMBH) 05 November 2009 (2009-11-05) cited in the application page 1, lines 3-9 page 3, line 30 - page 6, line 32 page 8, line 12 - page 9, line 12 page 16, lines 1-25 page 21; table 3 page 28; table 6 page 34; table 9 claims 1, 3, 4, 6 and 8-16	1-28

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/EP2023/081963**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
EP	0309622	A1	05 April 1989	DE	3752023	T2	24 July 1997
				EP	0309622	A1	05 April 1989
US	2022052382	A1	17 February 2022	EP	3985773	A1	20 April 2022
				JP	7343583	B2	12 September 2023
				JP	2022547364	A	14 November 2022
				KR	20210074393	A	21 June 2021
				US	2022052382	A1	17 February 2022
				WO	2022032585	A1	17 February 2022
WO	2004035542	A1	29 April 2004	AU	2003278072	A1	04 May 2004
				DE	10247578	A1	22 April 2004
				WO	2004035542	A1	29 April 2004
JP	2018056013	A	05 April 2018	NONE			
WO	2009132740	A2	05 November 2009	CN	102015666	A	13 April 2011
				DE	102008021271	A1	28 January 2010
				EP	2274291	A2	19 January 2011
				EP	3061757	A1	31 August 2016
				JP	5778575	B2	16 September 2015
				JP	2011525173	A	15 September 2011
				KR	20110008091	A	25 January 2011
				US	2011045359	A1	24 February 2011
				US	2015152045	A1	04 June 2015
				WO	2009132740	A2	05 November 2009

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Demande internationale n°

PCT/EP2023/081963

<b>A. CLASSEMENT DE L'OBJET DE LA DEMANDE</b>					
<b>INV.</b>	<b>H01M10/0567</b>	<b>H01M10/0569</b>	<b>H01M10/0525</b>	<b>H01M10/054</b>	<b>C07F9/54</b>
<b>ADD.</b>	<b>H01M4/485</b>	<b>H01M4/505</b>	<b>H01M4/525</b>	<b>H01M4/58</b>	<b>H01M4/587</b>
Selon la classification internationale des brevets (CIB) ou à la fois selon la classification nationale et la CIB					
<b>B. DOMAINES SUR LESQUELS LA RECHERCHE A PORTE</b>					
Documentation minimale consultée (système de classification suivi des symboles de classement) <b>C07F H01G H01M</b>					
Documentation consultée autre que la documentation minimale dans la mesure où ces documents relèvent des domaines sur lesquels a porté la recherche					
Base de données électronique consultée au cours de la recherche internationale (nom de la base de données, et si cela est réalisable, termes de recherche utilisés) <b>EPO-Internal, WPI Data, INSPEC, COMPENDEX</b>					
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS</b>					
Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents				no. des revendications visées
<b>A</b>	<b>M. OGATA ET AL: "Effects of Crosslinking on Physical Properties of Phenol-Formaldehyde Novolac Cured Epoxy Resins", JOURNAL OF APPLIED POLYMER SCIENCE, vol. 48, no. 4, 20 avril 1993 (1993-04-20), pages 583-601, XP000455203, ISSN: 0021-8995, DOI: 10.1002/APP.1993.070480403 abrégé page 586; tableau II; composé MTCEP.TPB</b> -----				<b>1-28</b>
<b>A</b>	<b>EP 0 309 622 A1 (TAKEMOTO YUSHI K.K.) 5 avril 1989 (1989-04-05) page 1, ligne 40 - page 2, ligne 23 page 6; tableau 1B; composé 2g revendications 1, 2</b> ----- -/--				<b>1-28</b>
<input checked="" type="checkbox"/>	Voir la suite du cadre C pour la fin de la liste des documents				<input checked="" type="checkbox"/> Les documents de familles de brevets sont indiqués en annexe
* Catégories spéciales de documents cités:					
"A" document définissant l'état général de la technique, non considéré comme particulièrement pertinent			"T" document ultérieur publié après la date de dépôt international ou la date de priorité et n'appartenant pas à l'état de la technique pertinent, mais cité pour comprendre le principe ou la théorie constituant la base de l'invention		
"E" document antérieur, mais publié à la date de dépôt international ou après cette date			"X" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme nouvelle ou comme impliquant une activité inventive par rapport au document considéré isolément		
"L" document pouvant jeter un doute sur une revendication de priorité ou cité pour déterminer la date de publication d'une autre citation ou pour une raison spéciale (telle qu'indiquée)			"Y" document particulièrement pertinent; l'invention revendiquée ne peut être considérée comme impliquant une activité inventive lorsque le document est associé à un ou plusieurs autres documents de même nature, cette combinaison étant évidente pour une personne du métier		
"O" document se référant à une divulgation orale, à un usage, à une exposition ou tous autres moyens			"&" document qui fait partie de la même famille de brevets		
"P" document publié avant la date de dépôt international, mais postérieurement à la date de priorité revendiquée					
Date à laquelle la recherche internationale a été effectivement achevée			Date d'expédition du présent rapport de recherche internationale		
<b>31 janvier 2024</b>			<b>26/03/2024</b>		
Nom et adresse postale de l'administration chargée de la recherche internationale Office Européen des Brevets, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Fax: (+31-70) 340-3016			Fonctionnaire autorisé  <b>Masson, Jean-Pierre</b>		

C(suite). DOCUMENTS CONSIDERES COMME PERTINENTS		
Catégorie*	Identification des documents cités, avec, le cas échéant, l'indication des passages pertinents	no. des revendications visées
A	<p>US 2022/052382 A1 (NINGDE AMPEREX TECHNOLOGY LTD.) 17 février 2022 (2022-02-17) alinéa [0005] - alinéa [0014] alinéa [0019] alinéa [0041] - alinéa [0051] alinéa [0090] alinéa [0093] - alinéa [0094] alinéa [0100] - alinéa [0101] exemples I, II revendications 1-3, 8, 10</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-28
A	<p>WO 2004/035542 A1 (SOLVENT INNOVATION GMBH) 29 avril 2004 (2004-04-29) page 1, lignes 4-9 page 5, ligne 8 - page 8, ligne 22 page 8, ligne 24 - page 11, ligne 12 page 16, lignes 29-31 page 18, lignes 16-17 exemple 1 revendications 1, 5, 6</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-28
A	<p>JP 2018 056013 A (JNC CORP.; JNC PETROCHEMICAL CORP.) 5 avril 2018 (2018-04-05) cité dans la demande abrégé exemples 1.3, 2.3, 3.3; tableau 1 alinéa [0043]; composé CA(3) revendications 1-5, 10, 11</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-28
A	<p>WO 2009/132740 A2 (MERCK PATENT GMBH) 5 novembre 2009 (2009-11-05) cité dans la demande page 1, lignes 3-9 page 3, ligne 30 - page 6, ligne 32 page 8, ligne 12 - page 9, ligne 12 page 16, lignes 1-25 page 21; tableau 3 page 28; tableau 6 page 34; tableau 9 revendications 1, 3, 4, 6, 8-16</p> <p style="text-align: center;">-----</p>	1-28

# RAPPORT DE RECHERCHE INTERNATIONALE

Renseignements relatifs aux membres de familles de brevets

Demande internationale n°

PCT/EP2023/081963

Document brevet cité au rapport de recherche		Date de publication	Membre(s) de la famille de brevet(s)	Date de publication
EP 0309622	A1	05-04-1989	DE 3752023 T2	24-07-1997
			EP 0309622 A1	05-04-1989
-----				
US 2022052382	A1	17-02-2022	EP 3985773 A1	20-04-2022
			JP 7343583 B2	12-09-2023
			JP 2022547364 A	14-11-2022
			KR 20210074393 A	21-06-2021
			US 2022052382 A1	17-02-2022
			WO 2022032585 A1	17-02-2022
-----				
WO 2004035542	A1	29-04-2004	AU 2003278072 A1	04-05-2004
			DE 10247578 A1	22-04-2004
			WO 2004035542 A1	29-04-2004
-----				
JP 2018056013	A	05-04-2018	AUCUN	
-----				
WO 2009132740	A2	05-11-2009	CN 102015666 A	13-04-2011
			DE 102008021271 A1	28-01-2010
			EP 2274291 A2	19-01-2011
			EP 3061757 A1	31-08-2016
			JP 5778575 B2	16-09-2015
			JP 2011525173 A	15-09-2011
			KR 20110008091 A	25-01-2011
			US 2011045359 A1	24-02-2011
			US 2015152045 A1	04-06-2015
			WO 2009132740 A2	05-11-2009
-----				