



등록특허 10-2257097



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

**(45) 공고일자** 2021년05월27일  
**(11) 등록번호** 10-2257097  
**(24) 등록일자** 2021년05월21일

- (51) 국제특허분류(Int. Cl.)  
*H01M 10/058* (2010.01) *F26B 3/04* (2006.01)  
*F26B 5/04* (2006.01) *H01M 10/0525* (2010.01)  
*H01M 4/04* (2006.01) *H01M 4/139* (2010.01)  
*H01M 4/62* (2006.01)
- (52) CPC특허분류  
*H01M 10/058* (2019.01)  
*F26B 3/04* (2013.01)
- (21) 출원번호 10-2019-7011268
- (22) 출원일자(국제) 2017년09월08일  
 심사청구일자 2020년08월11일
- (85) 번역문제출일자 2019년04월18일
- (65) 공개번호 10-2019-0052702
- (43) 공개일자 2019년05월16일
- (86) 국제출원번호 PCT/CN2017/101105
- (87) 국제공개번호 WO 2018/054234  
 국제공개일자 2018년03월29일
- (30) 우선권주장  
 15/272,504 2016년09월22일 미국(US)

## (56) 선행기술조사문헌

CN105865159 A\*

JP2014007038 A\*

JP2015053283 A\*

JP2016038962 A\*

\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

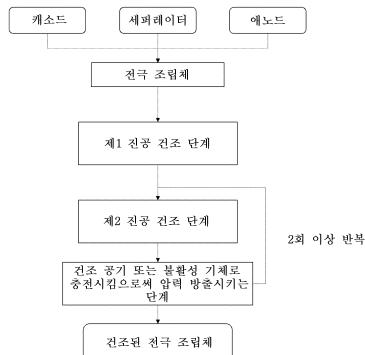
전체 청구항 수 : 총 15 항

심사관 : 최준영

## (54) 발명의 명칭 전극 조립체의 건조 방법

**(57) 요약**

리튬 이온 배터리의 전극 조립체(electrode assembly)의 건조 방법이 본원에 제공되며, 이러한 방법은 전극 조립체를 진공 하에 승온에서 2개의 연속 단계에서 건조하는 단계; 상기 오븐에 고온의 건조 공기 또는 불활성 기체를 충전시키는 단계; 및 진공 건조 단계 및 기체 충전 단계를 수회 반복하는 단계를 포함한다. 본원에 개시된 방법은 특히, 수성 결합제를 사용하는 전극 조립체의 건조에 적합하다.

**대 표 도 - 도1**

(52) CPC특허분류

*F26B 5/04* (2013.01)

*H01M 10/0525* (2013.01)

*H01M 4/0471* (2013.01)

*H01M 4/139* (2013.01)

*H01M 4/622* (2013.01)

---

## 명세서

### 청구범위

#### 청구항 1

전극 조립체(electrode assembly)의 건조 방법으로서, 상기 방법은

1) 하나 이상의 애노드, 하나 이상의 캐소드, 및 하나 이상의 상기 애노드와 하나 이상의 상기 캐소드 사이에  
개재된(interposed) 하나 이상의 세퍼레이터(separator)를 적층시켜, 전극 조립체를 제조하는 단계;

2) 상기 전극 조립체를 건조 챔버에 두는 단계;

3) 상기 전극 조립체를 50°C 내지 90°C의 온도에서 진공 하에 5분 내지 4시간의 기간 동안 건조하는 단계;

4) 상기 전극 조립체를 90°C 초과, 155°C 이하의 온도에서 진공 하에 추가로 건조하는 단계;

5) 상기 건조 챔버에 건조 공기 또는 불활성 기체를 충전시키는 단계; 및

6) 상기 단계 4) 및 5)를 반복하여, 건조된 전극 조립체를 수득하는 단계

를 포함하는, 방법.

#### 청구항 2

제1항에 있어서,

상기 단계 3)에서 상기 건조 챔버 내의 압력을 25 kPa 미만, 15 kPa 미만, 10 kPa 미만, 또는 5 kPa 미만까지  
감소시키는, 방법.

#### 청구항 3

제1항에 있어서,

상기 단계 4)에서 상기 전극 조립체를 15분 내지 4시간, 또는 30분 내지 2시간의 기간 동안 추가로 건조하는,  
방법.

#### 청구항 4

제1항에 있어서,

상기 단계 4)에서 상기 건조 챔버 내의 압력을 25 kPa 미만, 15 kPa 미만, 10 kPa 미만, 또는 5 kPa 미만까지  
감소시키는, 방법.

#### 청구항 5

제1항에 있어서,

상기 건조 공기 또는 불활성 기체의 온도가 70°C 내지 155°C, 또는 80°C 내지 120°C인, 방법.

#### 청구항 6

제1항에 있어서,

상기 건조 공기 또는 불활성 기체가 상기 건조 챔버 내에서 5분 내지 2시간, 또는 15분 내지 30분의 기간 동안  
머무르는, 방법.

#### 청구항 7

제1항에 있어서,

상기 건조 공기 또는 불활성 기체가 상기 건조 챔버를 대기압까지 회복시키는, 방법.

## 청구항 8

제1항에 있어서,

상기 단계 4) 및 단계 5)를 2회 내지 50회, 2회 내지 30회, 또는 2회 내지 20회 반복하는, 방법.

## 청구항 9

제1항에 있어서,

하나 이상의 상기 캐소드가 캐소드 접전체 및 캐소드 전극층을 포함하고,

상기 캐소드 접전체와 상기 캐소드 전극층 사이의 박리 강도(peeling strength)가 0.25 N/cm 이상인, 방법.

## 청구항 10

제1항에 있어서,

하나 이상의 상기 애노드가 애노드 접전체 및 애노드 전극층을 포함하고,

상기 애노드 접전체와 상기 애노드 전극층 사이의 박리 강도가 0.15 N/cm 이상인, 방법.

## 청구항 11

제1항에 있어서,

상기 건조된 전극 조립체의 수분 함량이 상기 건조된 전극 조립체의 총 중량을 기준으로 20 중량 ppm 미만인, 방법.

## 청구항 12

제1항에 있어서,

상기 건조된 전극 조립체 내의 하나 이상의 애노드 및 하나 이상의 캐소드가 하나 이상의 건조된 애노드 및 하나 이상의 건조된 캐소드의 총 중량을 기준으로 20 중량 ppm 미만, 또는 10 ppm 미만의 수분 함량을 갖는, 방법.

## 청구항 13

제1항에 있어서,

상기 건조된 전극 조립체 내의 하나 이상의 세퍼레이터가 하나 이상의 건조된 세퍼레이터의 총 중량을 기준으로 20 중량 ppm 미만, 또는 10 중량 ppm 미만의 수분 함량을 갖는, 방법.

## 청구항 14

제1항에 있어서,

하나 이상의 상기 세퍼레이터가 폴리올레핀, 폴리에틸렌, 고밀도 폴리에틸렌, 저밀도 폴리에틸렌, 초고분자량 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리프로필렌/폴리에틸렌 공중합체, 폴리부틸렌, 폴리펜텐, 폴리아세탈, 폴리아미드, 폴리카르보네이트, 폴리이미드, 폴리에테르에테르 케톤, 폴리설폰, 폴리페닐렌 옥사이드, 폴리페닐렌 설파이드, 폴리아크릴로니트릴, 폴리비닐리덴 플루오라이드, 폴리옥시메틸렌, 폴리비닐 피롤리돈, 폴리에스테르, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, 폴리부틸렌 테레프탈레이트, 폴리에틸렌 나프탈렌, 폴리부틸렌 나프탈레이트 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택되는 중합체성 섬유로 제조된 것인, 방법.

## 청구항 15

제1항에 있어서,

하나 이상의 상기 애노드 및 하나 이상의 상기 캐소드가 각각 독립적으로, 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴레이트화된 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴로니트릴 공중합체, 아크릴로니트릴-부타디엔 고무, 니트릴 부타디엔 고무, 아크릴로니트릴-스티렌-부타디엔 공중합체, 아크릴 고무, 부틸 고무, 불소 고무, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 에틸렌/프로필렌 공중합체, 폴리부타디엔, 폴리에틸렌 옥사이드, 클로로설폰화된 폴리

에틸렌, 폴리비닐피롤리돈, 폴리비닐피리딘, 폴리비닐 알코올, 폴리비닐 아세테이트, 폴리에피클로로하이드린, 폴리포스파젠, 폴리아크릴로니트릴, 폴리스티렌, 라텍스, 아크릴 수지, 폐놀 수지, 에폭시 수지, 카르복시메틸셀룰로스, 하이드록시프로필 셀룰로스, 셀룰로스 아세테이트, 셀룰로스 아세테이트 부티레이트, 셀룰로스 아세테이트 프로파오네이트, 시아노에틸셀룰로스, 시아노에틸수크로스, 폴리에스테르, 폴리아미드, 폴리에테르, 폴리이미드, 폴리카르복실레이트, 폴리카르복실산, 폴리아크릴산, 폴리아크릴레이트, 폴리메타크릴산, 폴리메타크릴레이트, 폴리아크릴아미드, 폴리우레탄, 플루오르화된 중합체, 염소화된 중합체, 알긴산의 염, 폴리비닐리덴플루오라이드, 폴리(비닐리덴 플루오라이드)-헥사플루오로프로펜 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택되는 결합체 물질을 포함하는, 방법.

#### 청구항 16

삭제

#### 청구항 17

삭제

#### 청구항 18

삭제

#### 청구항 19

삭제

### 발명의 설명

#### 기술 분야

[0001] 본 발명은 배터리 분야에 관한 것이다. 특히, 본 발명은 리튬-이온 배터리의 전극 조립체(electrode assembly)의 건조 방법 및 본원에 개시된 방법에 의해 제조되는 전극 조립체에 관한 것이다.

#### 배경 기술

[0002] 지난 20년간 휴대 전화 및 랩탑 컴퓨터와 같은 휴대용 전자 장치의 광범위한 어플리케이션(application)에서 리튬 이온 배터리(LIB)는 많은 주목을 받아 왔다. 전기 자동차(EV) 및 그리드 에너지 저장장치(grid energy storage)의 빠른 시장 발전으로 인해, 고성능, 저비용 LIB는 현재 대규모 에너지 저장 장치에 대한 가장 유망한 옵션 중 하나를 제공하고 있다.

[0003] 현재, 전극은, 적절한 용매에 활성 배터리 전극 물질, 도전체(conductive agent), 및 결합체 물질의 미세한 분말을 분산시킴으로써 제조된다. 분산액을 구리 또는 알루미늄 금속 호일과 같은 집전체 상에 코팅하고, 그런 다음 상기 용매를 제거하기 위해 승온된 온도에서 건조시킬 수 있다. 캐소드 및 애노드의 시트는, 연속으로 적층되거나, 캐소드와 애노드를 분리하는 분리막과 함께 롤링되어, 배터리를 형성하게 된다.

[0004] 리튬 이온 배터리 제조 공정은 수분에 민감하다. 수분 함량이 높은 배터리는 전기화학 성능의 심각한 감쇠(attenuation)를 초래하고, 배터리의 안정성에 영향을 미친다. 따라서, 환경의 습도는 LIB의 제조 공정을 위해 엄격하게 제어되어야 한다. 대부분의 LIB는 습도가 1% 미만인 환경에서 제조된다. 그러나, 엄격한 수분-무함유 공정때문에 상당한 비용이 발생한다. 전극 조립체의 수분 민감성 문제점을 해결하기 위해, 배터리 내 수분 함량을 감소시키기 위해 전해질 충전 전에 전극 조립체를 건조하는 것이 중요하다.

[0005] 중국 특허 104142045 B는 LIB의 전극 조립체의 건조 방법을 기재한다. 이러한 방법은 30~100°C의 온도에서 진공 하에 가열하는 단계; 오븐에 건조 공기 또는 불활성 기체를 충전시키는 단계; 이를 2개 단계를 1 내지 10회 반복하는 단계를 포함한다. 이러한 방법은 430.5 ppm 내지 488.1 ppm의 수분 함량을 갖는 전극 조립체를 제공한다.

[0006] 중국 특허 출원 105115250 A는 LIB의 전극 조립체의 건조 방법을 기재한다. 이러한 방법은 전극 조립체를 85±5°C의 온도에서 진공 하에 가열하는 단계; 오븐에 고온의 건조 질소 기체를 충전시키는 단계; 이를 2개 단계를 10 내지 20회 반복하는 단계를 포함한다. 이러한 방법은 200 ppm 미만의 수분 함량을 갖는 전극 조립체를 제공한다.

한다.

[0007] 중국 특허 102735023 B는 LIB의 전극 조립체의 건조 방법을 기재한다. 이러한 방법은 전극 조립체를 20-70°C의 온도에서 진공 하에 가열하는 단계; 오븐에 건조 공기 또는 질소 기체를 충전시키는 단계; 이들 2개 단계를 5 내지 50회 반복하는 단계를 포함한다. 이러한 방법은 110.1 ppm 내지 137.2 ppm의 수분 함량을 갖는 전극 조립체를 제공한다.

[0008] 중국 특허 103344097 B는 LIB의 전극 조립체의 건조 방법을 기재한다. 이러한 방법은 전극 조립체를 75-85°C의 온도에서 진공 하에 가열하는 단계; 오븐에 비-산화성 기체를 충전시키는 단계; 전극 조립체를 75-85°C까지 가열하는 단계; 전극 조립체를 다시 진공 건조하는 단계를 포함한다. 그러나, 이러한 방법은 건조 공정을 평가하기 위한, 건조된 전극 조립체의 수분 함량을 제공하지 않는다.

[0009] 상기 특허 참조문헌 중 어느 것도, 건조 프로파일과 결합제 조성을 사이의 관계를 평가하기 위해, 전극에서 임의의 결합제 조성을 개시하지 않는다. 또한, 기존의 방법에 의해 건조된 전극 조립체의 수분 함량은 100 ppm 내지 수백 ppm의 범위이고, 이는 LIB의 사이를 안정성 및 속도 능력(rate capability)에 영향을 미칠 수 있다.

[0010] 상기의 관점에서, LIB의 전극 조립체를 낮은 수분 함량까지 건조하는 방법을 개발하는 것이 항상 필요하다. 또한, 낮은 수분 함량 및 양호한 전기화학적 성능을 갖는 전극 조립체가 항상 필요하다.

### 발명의 내용

[0011] 상술한 필요성은 본 명세서에 개시된 다양한 양태 및 구현예에 의해 충족된다.

[0012] 일 양태에서, 전극 조립체의 건조 방법이 제공되며, 상기 방법은

[0013] 1) 하나 이상의 애노드, 하나 이상의 캐소드, 및 하나 이상의 상기 애노드와 하나 이상의 상기 캐소드 사이에 개재된 하나 이상의 세퍼레이터를 적층시켜, 전극 조립체를 제조하는 단계;

[0014] 2) 상기 전극 조립체를 건조 챔버에 두는 단계;

[0015] 3) 상기 전극 조립체를 약 50°C 내지 약 90°C의 온도에서 진공 하에 5분 내지 4시간의 기간 동안 건조하는 단계;

[0016] 4) 상기 전극 조립체를 약 80°C 내지 약 155°C의 온도에서 진공 하에 추가로 건조하는 단계;

[0017] 5) 상기 건조 챔버에 건조 공기 또는 불활성 기체를 충전시키는 단계; 및

[0018] 6) 상기 단계 4) 및 5)를 반복하여, 건조된 전극 조립체를 수득하는 단계

[0019] 를 포함한다.

[0020] 일부 구현예에서, 단계 3)에서 건조 챔버 내의 압력을 25 kPa 미만, 15 kPa 미만, 10 kPa 미만, 또는 5 kPa 미만까지 감소시킨다.

[0021] 소정의 구현예에서, 단계 4)에서 전극 조립체를 약 15분 내지 약 4시간, 또는 약 30분 내지 약 2시간의 기간 동안 추가로 건조한다.

[0022] 일부 구현예에서, 단계 4)에서 건조 챔버 내의 압력을 25 kPa 미만, 15 kPa 미만, 10 kPa 미만, 또는 5 kPa 미만까지 감소시킨다.

[0023] 소정의 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체의 온도는 약 70°C 내지 약 155°C, 또는 약 80°C 내지 약 120°C이다.

[0024] 일부 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체는 건조 챔버 내에서 약 5분 내지 약 2시간, 또는 약 15분 내지 약 30분의 기간 동안 머무른다.

[0025] 소정의 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체는 건조 챔버를 대기압까지 회복시킨다.

[0026] 일부 구현예에서, 단계 4) 및 5)를 2 내지 50회, 2 내지 30회, 또는 2 내지 20회 반복한다.

[0027] 소정의 구현예에서, 하나 이상의 캐소드는 캐소드 집전체 및 캐소드 전극층을 포함하며, 여기서, 상기 캐소드 집전체와 상기 캐소드 전극층 사이의 박리 강도(peeling strength)는 0.25 N/cm 이상이다.

[0028] 일부 구현예에서, 하나 이상의 애노드는 애노드 집전체 및 애노드 전극층을 포함하며, 여기서, 상기 애노드 집

전체와 상기 애노드 전극층 사이의 박리 강도는 0.15 N/cm 이상이다.

[0029] 소정의 구현예에서, 건조된 전극 조립체의 수분 함량은 상기 건조된 전극 조립체의 총 중량을 기준으로, 20 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 미만, 또는 5 중량 ppm 미만이다.

[0030] 일부 구현예에서, 건조된 전극 조립체는 하나 이상의 건조된 애노드 및 하나 이상의 건조된 캐소드를 포함하며, 여기서, 하나 이상의 건조된 애노드 및 하나 이상의 건조된 캐소드는 하나 이상의 상기 건조된 애노드 및 하나 이상의 상기 건조된 캐소드의 총 중량을 기준으로, 20 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 또는 5 중량 ppm의 수분 함량을 가진다.

[0031] 소정의 구현예에서, 건조된 전극 조립체는 하나 이상의 건조된 세퍼레이터를 포함하며, 여기서, 하나 이상의 건조된 세퍼레이터는 하나 이상의 상기 건조된 세퍼레이터의 총 중량을 기준으로, 20 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 또는 5 중량 ppm의 수분 함량을 가진다.

[0032] 일부 구현예에서, 하나 이상의 세퍼레이터는 폴리올레핀, 폴리에틸렌, 고밀도 폴리에틸렌, 저밀도 폴리에틸렌, 초고분자량 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리프로필렌/폴리에틸렌 공중합체, 폴리부틸렌, 폴리펜텐, 폴리아세탈, 폴리아미드, 폴리카르보네이트, 폴리이미드, 폴리에테르에테르 케톤, 폴리실폰, 폴리페닐렌 옥사이드, 폴리페닐렌 설플라이드, 폴리아크릴로니트릴, 폴리비닐리덴 플루오라이드, 폴리옥시메틸렌, 폴리비닐 피롤리돈, 폴리에스테르, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, 폴리부틸렌 테레프탈레이트, 폴리에틸렌 나프탈렌, 폴리부틸렌 나프탈레이트 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택되는 중합체성 섬유로 제조된다.

[0033] 소정의 구현예에서, 하나 이상의 애노드 및 하나 이상의 캐소드는 각각 독립적으로, 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴레이트화된 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴로니트릴 공중합체, 아크릴로니트릴-부타디엔 고무, 니트릴 부타디엔 고무, 아크릴로니트릴-스티렌-부타디엔 공중합체, 아크릴 고무, 부틸 고무, 불소 고무, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 에틸렌/프로필렌 공중합체, 폴리부타디엔, 폴리에틸렌 옥사이드, 클로로설플화된 폴리에틸렌, 폴리비닐파롤리돈, 폴리비닐파리딘, 폴리비닐 알코올, 폴리비닐 아세테이트, 폴리에파클로로하이드린, 폴리포스파젠, 폴리아크릴로니트릴, 폴리스티렌, 라텍스, 아크릴 수지, 폐놀 수지, 애폐시 수지, 카르복시메틸 셀룰로스, 하이드록시프로필 셀룰로스, 셀룰로스 아세테이트, 셀룰로스 아세테이트 부티레이트, 셀룰로스 아세테이트 프로피오네이트, 시아노에틸셀룰로스, 시아노에틸수크로스, 폴리에스테르, 폴리아미드, 폴리에테르, 폴리이미드, 폴리카르복실레이트, 폴리카르복실산, 폴리아크릴산, 폴리아크릴레이트, 폴리메타크릴산, 폴리메타크릴레이트, 폴리아크릴아미드, 폴리우레탄, 플루오르화된 중합체, 염소화된 중합체, 알긴산의 염, 폴리비닐리덴 플루오라이드, 폴리(비닐리덴 플루오라이드)-헥사플루오로프로펜 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택되는 결합제 물질을 포함한다.

[0034] 또한, 본원에 개시된 방법에 의해 제조된 전극 조립체를 포함하는 리튬 배터리가 제공된다.

### 도면의 간단한 설명

[0035] 도 1은 본원에 개시된 방법의 일 구현예를 도시한다.

도 2는 실시예 2에 기재된 방법에 의해 제조된 전극 조립체를 함유하는 전기화학 전지의 사이클 성능(cycling performance)을 도시한다.

도 3은 실시예 4에 기재된 방법에 의해 제조된 전극 조립체를 함유하는 전기화학 전지의 사이클 성능을 도시한다.

도 4는 실시예 6에 기재된 방법에 의해 제조된 전극 조립체를 함유하는 전기화학 전지의 사이클 성능을 도시한다.

도 5는 실시예 8에 기재된 방법에 의해 제조된 전극 조립체를 함유하는 전기화학 전지의 사이클 성능을 도시한다.

### 발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0036] 전극 조립체의 건조 방법이 본원에 제공되며, 상기 방법은

[0037] 1) 하나 이상의 애노드, 하나 이상의 캐소드, 및 하나 이상의 상기 애노드와 하나 이상의 상기 캐소드 사이에 개재된 하나 이상의 세퍼레이터를 적층시켜, 전극 조립체를 제조하는 단계;

- [0038] 2) 상기 전극 조립체를 건조 챔버에 두는 단계;
- [0039] 3) 상기 전극 조립체를 약 50°C 내지 약 90°C의 온도에서 진공 하에 5분 내지 4시간의 기간 동안 건조하는 단계;
- [0040] 4) 상기 전극 조립체를 약 80°C 내지 약 155°C의 온도에서 진공 하에 추가로 건조하는 단계;
- [0041] 5) 상기 건조 챔버에 건조 공기 또는 불활성 기체를 충전시키는 단계; 및
- [0042] 6) 상기 단계 4) 및 5)를 반복하여, 건조된 전극 조립체를 수득하는 단계
- [0043] 를 포함한다.
- [0044] "전극"이라는 용어는 "캐소드" 또는 "애노드"를 의미한다.
- [0045] "양극(positive electrode)"이라는 용어는 캐소드와 호환하여 사용된다. 마찬가지로, "음극(negative electrode)"이라는 용어는 애노드와 호환하여 사용된다.
- [0046] "결합제 물질"이라는 용어는 활성 배터리 전극 물질 및 도전제를 제자리에 유지시키는 데 사용될 수 있는 화학 물질 또는 성분을 지칭한다.
- [0047] "수계 결합제 물질"이라는 용어는 수용성 또는 수분산성(water-dispersible) 결합제 중합체를 지칭한다. 수계 결합제 물질의 일부 비제한적인 예로는, 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴레이트화된 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴로니트릴-부타디엔 고무, 아크릴 고무, 부틸 고무, 불소 고무, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 에틸렌/프로필렌 공중합체, 폴리부타디엔, 폴리에틸렌 옥사이드, 폴리비닐파리돈, 폴리에피클로로하이드린, 폴리포스파젠, 폴리아크릴로니트릴, 폴리스티렌, 에틸렌/프로필렌/디엔 공중합체, 폴리비닐파리돈, 클로로설폰화된 폴리에틸렌, 라텍스, 폴리에스테르 수지, 아크릴 수지, 폐놀 수지, 에폭시 수지, 폴리비닐 알코올, 카르복시메틸 셀룰로스, 하이드록시프로필 셀룰로스 및 이들의 조합.
- [0048] "유기계 결합제 물질"이라는 용어는 유기 용매, 특히 N-메틸-2-피롤리돈(NMP)에 용해되거나 분산된 결합제를 지칭한다. 유기계 결합제 물질의 일부 비제한적인 예로는, 폴리테트라플루오로에틸렌(PTFE), 퍼플루오로알콕시 중합체(PFA), 폴리비닐리덴 플루오라이드(PVDF), 테트라플루오로에틸렌(TFE)과 헥사플루오로프로필렌(HFP)의 공중합체, 플루오르화된 에틸렌-프로필렌(FEP) 공중합체, 및 테트라플루오로에틸렌, 헥사플루오로프로필렌 및 비닐리덴 플루오라이드의 삼중합체 및 이들의 조합이 있다.
- [0049] "집전체"라는 용어는 2차 배터리를 방전 또는 충전시키는 동안, 전극에 전류가 흐르는 것을 유지하기 위해 활성 배터리 전극 물질 및 화학적으로 불활성인 고 전자 도체(high electron conductor)를 코팅하기 위한 지지체를 의미한다.
- [0050] "도전제"라는 용어는 화학적으로 불활성이고 양호한 전기 전도성을 갖는 물질을 지칭한다. 따라서, 도전제는 종종, 전극의 전기 전도성을 개선하기 위해 전극의 제조 시 전극 활성 물질과 혼합된다. 일부 구현예에서, 도전제는 탄소질 물질이다.
- [0051] "전극 조립체"라는 용어는 하나 이상의 양극, 하나 이상의 음극, 및 상기 양극과 상기 음극 사이에 개재된 하나 이상의 세퍼레이터를 포함하는 구조물을 지칭한다.
- [0052] "박리 강도"라는 용어는 코팅층이 라미네이트화된 기판으로부터 상기 코팅층을 분리하는 데 필요한 힘을 지칭한다.
- [0053] "표면 조도(surface roughness)"라는 용어는 물질의 표면 상에 존재하는 형상(shape)의 불규칙성을 지칭한다.
- [0054] "실온"이라는 용어는 약 18°C 내지 약 30°C, 예컨대 18, 19, 20, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 28, 29, 또는 30°C의 실내 온도를 지칭한다. 일부 구현예에서, 실온은 약 20°C +/- 1°C 또는 +/- 2°C 또는 +/- 3°C의 온도를 의미한다. 다른 구현예에서는, 실온은 약 22°C 내지 약 25°C의 온도를 의미한다.
- [0055] "C 속도(C rate)"라는 용어는 전지 또는 배터리의 충전 또는 방전 속도를 말하며, Ah 또는 mAh의 총 저장 용량의 관점에서 표현된다. 예를 들어, 1 C의 속도는 1시간 내에 모든 저장된 에너지를 사용하는 것을 의미하고; 0.1 C는 1시간 동안 에너지의 10%를 사용하거나 10시간 이내에 에너지 전체를 사용하는 것을 의미한다. 5 C는 12분 안에 전체 에너지를 사용하는 것을 의미한다.
- [0056] "암페어-시(Ah; ampere-hour)"라는 용어는 배터리의 저장 용량을 명시하기 위해 사용되는 단위이다. 예를

들어, 1 Ah 용량의 배터리는, 1시간 동안 1 암페어의 전류, 또는 2시간 동안 0.5 A의 전류를 공급할 수 있는 등이다. 따라서, 1 암페어-시(Ah)는 3,600 쿠лон과 등가이다. 유사하게는, "밀리암페어-시"라는 용어도 배터리의 저장 용량 단위를 지칭하고, 암페어-시의 1/1,000이다.

[0057] "배터리 사이클 수명"이라는 용어는, 배터리의 공정 용량(nominal capacity)이 상기 배터리의 초기 정격 용량(rated capacity)의 80% 미만으로 떨어지기 전에 상기 배터리가 수행할 수 있는 완전 충전/방전 사이클의 횟수를 지칭한다.

[0058] 이하에서 본원에 개시된 모든 수는, "약" 또는 "대략"이라는 단어가 그 수와 관련하여 사용되는지 여부에 관계 없이, 근사값이다. 이 값들은 1%, 2%, 5% 또는 때로는 10 내지 20% 정도 다를 수 있다. 하한( $R^L$ ) 및 상한( $R^U$ )을 갖는 수치 범위가 개시될 때마다, 그 범위에 속하는 임의의 수를 구체적으로 개시한다. 특히, 그 범위 내에서 다음의 수치가 구체적으로 개시된다:  $R=R^L+k*(R^U-R^L)$ , 여기서 k는 1%의 증가분을 갖는 1% 내지 100%의 범위의 변수이며, 즉 k는 1%, 2%, 3%, 4%, 5%, …, 50%, 51%, 52%, …, 95%, 96%, 97%, 98%, 99%, 또는 100%이다. 또한, 상기에서 정의된 2개의 R 수에 의해 정의되는 임의의 수치 범위도 구체적으로 개시된다.

[0059] 도 1은 본원에 개시된 방법의 일 구현예를 보여준다. 복수의 애노드 및 복수의 개소드와 이를 사이에 개재된 세퍼레이터를 적층함으로써 전극 조립체를 제조한다. 상기 전극 조립체를 2개의 연속 단계에서 진공 하에 점진적으로 건조하며, 이때 제1 단계에서의 온도는 후속 단계에서의 온도보다 낮다. 그 후에, 상기 건조 챔버에 고온의 건조 공기를 충전시킨다. 진공 건조 및 압력 회복 단계를, 요망되는 수분 함량이 달성될 때까지 반복한다.

[0060] 일반적으로, 리튬-이온 배터리 제조 공정은, 최적의 생산 조건을 보존하기 위해 환경이 조심스럽게 제어되어야 하는 건조실에서 수행된다. 공기의 이슬점은 건조실의 품질의 지표(indicator)이다. 배터리 생산에 전형적인 이슬점 값은 -40°C 내지 -65°C의 범위이다. 배터리의 효율 및 서비스 수명은 전지 생산 단계에서 결정된다. 그럼에도 불구하고, 선행 기술 문헌 중 어느 것도, 특정하게 낮은 물 함량(예를 들어 20 ppm 미만)을 갖는 전극 조립체를 달성하는 방법을 기재하고 있지 않다.

[0061] 전극 조립체는 하나 이상의 음극, 하나 이상의 세퍼레이터 및 하나 이상의 양극을 순차적으로 적층함으로써 제작된다. 전극 조립체의 구성을 위한 하나 이상의 양극, 하나 이상의 음극 및 하나 이상의 세퍼레이터의 수 및 배열은 특별히 제한되지 않는다. 일부 구현예에서, 전극 조립체는, 2개의 최외곽 전극이 반대되는 극성(즉, 양극 및 음극)을 갖는 적층된 구조, 예컨대 양극/세퍼레이터/음극 구조 또는 양극/세퍼레이터/음극/세퍼레이터/양극/세퍼레이터/음극 구조를 가진다.

[0062] 소정의 구현예에서, 전극 조립체는, 2개의 최외곽 전극이 동일한 극성(즉, 양극 또는 음극)을 갖는 적층된 구조, 예컨대 양극/세퍼레이터/음극/세퍼레이터/양극 구조 또는 음극/세퍼레이터/양극/세퍼레이터/음극 구조를 가진다.

[0063] 일부 구현예에서, 전극 조립체는, 세퍼레이터가 최외곽 면들 중 하나 상에 배치된 구조, 예컨대 세퍼레이터/양극/세퍼레이터/음극 구조 또는 양극/세퍼레이터/음극/세퍼레이터 구조를 가진다. 다른 구현예에서, 전극 조립체는, 세퍼레이터가 최외곽 면들 둘 다 상에 배치된 구조, 예컨대 세퍼레이터/양극/세퍼레이터/음극/세퍼레이터 구조를 가진다.

[0064] 소정의 구현예에서, 전극 조립체는, 공기가 -65°C의 이슬점을 갖는 엄격한 습도 제어 하에 조립된다. 일부 구현예에서, 전극 조립체는, 공기가 -50°C, -40°C, -30°C, -20°C, -10°C, 0°C, 5°C 또는 10°C의 이슬점을 갖는 건조 조건 하에 조립된다. 소정의 구현예에서, 전극 조립체는 습도가 제어되지 않는 개방된 공기에서 조립된다.

[0065] 대향하는 활성 애노드와 캐소드 표면 사이에 배치된 세퍼레이터는 상기 애노드와 상기 캐소드 사이에서 접촉 및 리튬-이온 배터리의 단락을 방지할 수 있다. 일부 구현예에서, 세퍼레이터는 직물 또는 부직포 중합체성 섬유, 천연 섬유, 탄소 섬유, 유리 섬유 또는 세라믹 섬유를 포함할 수 있다. 소정의 구현예에서, 세퍼레이터는 직물 또는 부직포 중합체성 섬유를 포함한다.

[0066] 소정의 구현예에서, 부직포 또는 직물의 섬유는 유기 중합체, 예컨대 폴리올레핀, 폴리에틸렌, 고밀도 폴리에틸렌, 선형 저밀도 폴리에틸렌, 저밀도 폴리에틸렌, 초고분자량 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리프로필렌/폴리에틸렌 공중합체, 폴리부틸렌, 폴리펜텐, 폴리아세탈, 폴리아미드, 폴리카르보네이트, 폴리이미드, 폴리에테르에테르 케톤, 폴리설론, 폴리페닐렌 옥사이드, 폴리페닐렌 설파이드, 폴리아크릴로니트릴, 폴리비닐리덴 플루오라이드, 폴리옥시메틸렌, 폴리비닐 피롤리돈, 폴리에스테르, 폴리에틸렌 테레프탈레이트, 폴리부틸렌 테레프탈레이트

이트, 폴리에틸렌 나프탈렌, 폴리부틸렌 나프탈레이트, 이들의 유도체 또는 이들의 조합으로 제조된다. 소정의 구현예에서, 세페레이터는 폴리에틸렌, 고밀도 폴리에틸렌, 선형 저밀도 폴리에틸렌, 저밀도 폴리에틸렌, 초고분자량 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리프로필렌/폴리에틸렌 공중합체 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택되는 폴리올레핀성 섬유로 제조된다. 일부 구현예에서, 세페레이터는 폴리에스테르, 폴리아세탈, 폴리아미드, 폴리카르보네이트, 폴리이미드, 폴리에테르에테르 케톤, 폴리에테르 설폰, 폴리페닐렌 옥사이드, 폴리페닐렌 설파이드, 폴리에틸렌 나프탈렌 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택되는 중합체성 섬유로 제조된다. 다른 구현예에서, 중합체성 섬유는 폴리에틸렌, 고밀도 폴리에틸렌, 선형 저밀도 폴리에틸렌, 저밀도 폴리에틸렌, 초고분자량 폴리에틸렌, 폴리프로필렌 또는 폴리프로필렌/폴리에틸렌 공중합체가 아니다. 추가의 구현예에서, 중합체성 섬유는 폴리아세탈, 폴리에테르 설폰, 폴리페닐렌 옥사이드, 폴리페닐렌 설파이드 또는 폴리카르보네이트가 아니다. 더 추가의 구현예에서, 중합체성 섬유는 폴리아미드, 폴리이미드 또는 폴리에테르에테르 케톤이 아니다. 그러나, 모든 다른 공지된 중합체성 섬유 또는 많은 천연 섬유가 마찬가지로 사용될 수 있다.

[0067] 일부 구현예에서, 본원에 개시된 세페레이터는 100°C 이상, 120°C 이상, 140°C 이상, 160°C 이상, 180°C 이상, 200°C 이상 또는 250°C 이상의 용융점을 가진다. 일부 구현예에서, 본원에 개시된 세페레이터는 약 140°C 이상, 약 160°C 이상, 약 180°C 이상, 약 200°C 이상, 또는 약 250°C 이상의 용융점을 가진다. 높은 용융점을 가진 세페레이터는 높은 열적 안정성을 나타내며, 따라서, 열적 수축 없이 고온에서 건조될 수 있다. 이는 또한, 건조가 보다 효율적으로 수행될 수 있게 한다. 따라서, 전극 조립체는 상대적으로 단시간에 건조되어, 짧은 생산 시간을 초래할 수 있다.

[0068] 세페레이터는 코팅된 형태 또는 비코팅된 형태일 수 있다. 일부 구현예에서, 세페레이터의 두께는 약 10 μm 내지 약 200 μm, 약 30 μm 내지 약 100 μm, 약 10 μm 내지 약 75 μm, 약 10 μm 내지 약 50 μm, 약 10 μm 내지 약 20 μm, 약 15 μm 내지 약 40 μm, 약 15 μm 내지 약 35 μm, 약 20 μm 내지 약 40 μm, 약 20 μm 내지 약 35 μm, 약 20 μm 내지 약 30 μm, 약 30 μm 내지 약 60 μm, 약 30 μm 내지 약 50 μm, 또는 약 30 μm 내지 약 40 μm이다.

[0069] 소정의 구현예에서, 세페레이터의 두께는 약 15 μm, 약 20 μm 또는 약 25 μm이다. 일부 구현예에서, 본 발명의 세페레이터의 두께는 40 μm 미만, 35 μm 미만, 30 μm 미만, 25 μm 미만 또는 20 μm 미만이다. 세페레이터가 충분히 얇다면, 수분은 높은 건조 속도로 증발될 수 있다.

[0070] 일부 구현예에서, 전극 조립체는 느슨하게 적층된다. 느슨하게 적층된 전극 조립체에서는 전극 층과 세페레이터 층 사이에 보이드 공간(void space)이 존재하여, 수분이 나갈 수 있다. 따라서, 느슨하게 적층된 전극 조립체는 단기간에 효과적으로 건조될 수 있다. 한편, 전극 조립체가 건조 전에 압력 하에 압축될 때, 치밀하게 패킹된 전극 조립체에서는 전극 층과 세페레이터 층 사이에 보이드 공간이 거의 없거나 전혀 없어서, 공기 유동 및 건조 효율이 감소된다.

[0071] 소정의 구현예에서, 양극, 세페레이터 및 음극은 건조 전에 적층되고 젤리-롤 배열로 나선형으로 감긴다. 롤 전극 조립체는 치밀하게 패킹되기 때문에, 마찬가지로 전극 층과 세페레이터 층 사이에 보이드 공간이 거의 없거나 전혀 없어서, 공기 유동 및 건조 효율이 감소된다.

[0072] 양극은 캐소드 집전체 상에 지지된 캐소드 전극층을 포함한다. 상기 캐소드 전극층은 하나 이상의 캐소드 물질 및 결합제 물질을 포함한다. 캐소드 전극층은, 상기 캐소드 전극층의 전자 전도성을 증강시키기 위해 도전체를 추가로 포함할 수 있다. 음극은 애노드 집전체 상에 지지된 애노드 전극층을 포함한다. 상기 애노드 전극층은 하나 이상의 애노드 물질 및 결합제 물질을 포함한다. 애노드 전극층은 상기 애노드 전극층의 전자 전도성을 증강시키기 위해 도전체를 추가로 포함할 수 있다.

[0073] 일부 구현예에서, 하나 이상의 캐소드는 캐소드 집전체, 및 캐소드 물질, 결합제 물질 및 도전체를 포함하는 캐소드 전극층을 포함하고, 하나 이상의 애노드는 애노드 집전체, 및 애노드 물질, 결합제 물질 및 도전체를 포함하는 애노드 전극층을 포함하며, 여기서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층은 각각 독립적으로, 상기 캐소드 전극층 및 상기 애노드 전극층의 총 부피를 기준으로, 40% 미만, 37% 미만, 35% 미만, 33% 미만, 30% 미만, 25% 미만, 20% 미만, 18% 미만, 15% 미만, 13% 미만, 10% 미만 또는 8% 미만의 보이드 부피를 가진다. 소정의 구현예에서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 각각의 보이드 부피는 독립적으로, 상기 캐소드 전극층 및 상기 애노드 전극층의 총 부피를 기준으로, 8% 내지 40%, 8% 내지 35%, 8% 내지 30%, 10% 내지 30%, 13% 내지 30%, 13% 내지 33%, 15% 내지 30%, 18% 내지 30%, 20% 내지 30%, 또는 25% 내지 30%이다.

[0074] 전극층의 보이드 부피가 35% 이상이면, 배터리의 에너지 밀도 및 동력 출력이 둘 다 낮다. 전극층의 보이드 부

피가 10% 내지 35%라면, 배터리는 리튬 이온의 양호한 확산율 및 고출력 성능을 보여준다.

[0075] 집전체는 활성 배터리 전극 물질의 전기화학 반응에 의해 발생되는 전자를 수합하거나, 전기화학 반응에 필요한 전자를 공급하는 작용을 한다. 일부 구현예에서, 호일, 시트 또는 필름 형태일 수 있는 양극 및 음극의 집전체는 각각 독립적으로, 스테인리스강, 티타늄, 니켈, 알루미늄, 구리 또는 전기-전도성 수지이다. 소정의 구현예에서, 캐소드 집전체는 알루미늄 박막이다. 일부 구현예에서, 애노드 집전체는 구리 박막이다.

[0076] 일부 구현예에서, 집전체는 약 6  $\mu\text{m}$  내지 약 100  $\mu\text{m}$ 의 두께를 가진다. 집전체의 두께는 배터리 내에서 집전체가 차지하는 부피 및 전극 물질의 양, 및 따라서 배터리에서의 용량에 영향을 줄 것이다.

[0077] 집전체의 표면 상에 형성된 표면 조도는 집전체에 대한 전극 물질의 결합력을 증강시켜, 상기 집전체와 전극층 사이에서 접착을 개선할 수 있다. 소정의 구현예에서, 집전체는 약 0.1  $\mu\text{m}$  내지 약 5  $\mu\text{m}$ , 약 1  $\mu\text{m}$  내지 약 3  $\mu\text{m}$ , 약 0.1  $\mu\text{m}$  내지 약 1  $\mu\text{m}$ , 또는 약 0.1  $\mu\text{m}$  내지 약 0.5  $\mu\text{m}$ 의 표면 조도 Ra를 가진다. 일부 구현예에서, 집전체는 4  $\mu\text{m}$  이하, 3  $\mu\text{m}$  이하, 2  $\mu\text{m}$  이하, 1.5  $\mu\text{m}$  이하, 0.8  $\mu\text{m}$  이하, 또는 0.5  $\mu\text{m}$  이하의 표면 조도 Ra를 가진다.

[0078] 일부 구현예에서, 집전체 상에서 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 각각의 두께는 독립적으로 약 1  $\mu\text{m}$  내지 약 300  $\mu\text{m}$ , 약 10  $\mu\text{m}$  내지 약 300  $\mu\text{m}$ , 약 20  $\mu\text{m}$  내지 약 100  $\mu\text{m}$ , 약 1  $\mu\text{m}$  내지 약 100  $\mu\text{m}$ , 약 1  $\mu\text{m}$  내지 약 50  $\mu\text{m}$ , 약 1  $\mu\text{m}$  내지 약 40  $\mu\text{m}$ , 약 10  $\mu\text{m}$  내지 약 40  $\mu\text{m}$ , 약 10  $\mu\text{m}$  내지 약 30  $\mu\text{m}$ , 또는 약 10  $\mu\text{m}$  내지 약 25  $\mu\text{m}$ 이다. 일부 구현예에서, 집전체 상에서 전극층의 두께는 약 10  $\mu\text{m}$ , 약 15  $\mu\text{m}$ , 약 20  $\mu\text{m}$ , 약 25  $\mu\text{m}$ , 약 30  $\mu\text{m}$ , 약 35  $\mu\text{m}$  또는 약 40  $\mu\text{m}$ 이다.

[0079] 소정의 구현예에서, 집전체 상에서 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 각각의 밀도는 독립적으로 약 1.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 6.5  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 약 1.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 5.0  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 약 1.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 4.0  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 약 1.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 3.5  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 약 1.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 3.0  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 약 1.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 2.0  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 약 2.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 5.0  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 약 2.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 4.0  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 약 3.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 5.0  $\text{g}/\text{cm}^3$ , 또는 약 3.0  $\text{g}/\text{cm}^3$  내지 약 6.0  $\text{g}/\text{cm}^3$ 이다. 유사하게는, 전극층의 밀도 증가는 최종 전극 코팅에서 보이드 부피의 감소, 및 더 치밀한 전극을 초래할 것이며, 이로써 요망되는 배터리 용량이 달성될 것이다.

[0080] 일부 구현예에서, 캐소드 물질은  $\text{LiCoO}_2$ ,  $\text{LiNiO}_2$ ,  $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{O}_2$ ,  $\text{Li}_{1+z}\text{Ni}_x\text{Mn}_{-y}\text{Co}_{1-x-y}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Al}_z\text{O}_2$ ,  $\text{LiV}_2\text{O}_5$ ,  $\text{LiTiS}_2$ ,  $\text{LiMoS}_2$ ,  $\text{LiMnO}_2$ ,  $\text{LiCrO}_2$ ,  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ,  $\text{LiFeO}_2$ ,  $\text{LiFePO}_4$  및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택되는 캐소드 물질이며, 여기서, 각각의 x는 독립적으로 0.3 내지 0.8이며; 각각의 y는 독립적으로 0.1 내지 0.45이고; 각각의 z는 독립적으로 0 내지 0.2이다. 소정의 구현예에서, 캐소드 물질은  $\text{LiCoO}_2$ ,  $\text{LiNiO}_2$ ,  $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{O}_2$ ,  $\text{Li}_{1+z}\text{Ni}_x\text{Mn}_{-y}\text{Co}_{1-x-y}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Al}_z\text{O}_2$ ,  $\text{LiV}_2\text{O}_5$ ,  $\text{LiTiS}_2$ ,  $\text{LiMoS}_2$ ,  $\text{LiMnO}_2$ ,  $\text{LiCrO}_2$ ,  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ,  $\text{LiFeO}_2$ ,  $\text{LiFePO}_4$ , 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택되며, 여기서, 각각의 x는 독립적으로 0.4 내지 0.6이며; 각각의 y는 독립적으로 0.2 내지 0.4이고; 각각의 z는 독립적으로 0 내지 0.1이다. 다른 구현예에서, 캐소드 물질은  $\text{LiCoO}_2$ ,  $\text{LiNiO}_2$ ,  $\text{LiV}_2\text{O}_5$ ,  $\text{LiTiS}_2$ ,  $\text{LiMoS}_2$ ,  $\text{LiMnO}_2$ ,  $\text{LiCrO}_2$ ,  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ,  $\text{LiFeO}_2$  또는  $\text{LiFePO}_4$ 가 아니다. 추가의 구현예에서, 캐소드 물질은  $\text{LiNi}_x\text{Mn}_y\text{O}_2$ ,  $\text{Li}_{1+z}\text{Ni}_x\text{Mn}_{-y}\text{Co}_{1-x-y}\text{O}_2$  또는  $\text{LiNi}_x\text{Co}_y\text{Al}_z\text{O}_2$ 가 아니며, 여기서, 각각의 x는 독립적으로 0.3 내지 0.8이며; 각각의 y는 독립적으로 0.1 내지 0.45이고; 각각의 z는 독립적으로 0 내지 0.2이다.

[0081] 소정의 구현예에서, 애노드 물질은 천연 그래파이트 미립자, 합성 그래파이트 미립자, Sn (주석) 미립자,  $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$  미립자, Si (실리콘) 미립자, Si-C 복합체 미립자 및 이들의 조합으로 구성된 군에서 선택된다. 다른 구현예에서, 애노드 물질은 천연 그래파이트 미립자, 합성 그래파이트 미립자, Sn (주석) 미립자,  $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$  미립자, Si (실리콘) 미립자 또는 Si-C 복합체 미립자가 아니다.

[0082] 일부 구현예에서, 캐소드 물질 및 애노드 물질 각각의 양은 캐소드 전극 층 또는 애노드 전극 층의 총 중량을 기준으로 독립적으로, 50 중량% 이상, 55 중량% 이상, 60 중량% 이상, 65 중량% 이상, 70 중량% 이상, 75 중량% 이상, 80 중량% 이상, 85 중량% 이상, 90 중량% 이상, 또는 95 중량%이다. 소정의 구현예에서, 캐소드 물질 및 애노드 물질 각각의 양은 캐소드 전극 층 또는 애노드 전극 층의 총 중량을 기준으로 독립적으로, 50 중량% 이하, 55 중량% 이하, 60 중량% 이하, 65 중량% 이하, 70 중량% 이하, 75 중량% 이하, 80 중량% 이하, 85 중량% 이하, 90 중량% 이하, 또는 95 중량% 이하이다.

- [0083] 소정의 구현예에서, 도전체는 탄소, 카본 블랙, 그래파이트, 그래핀, 그래핀 나노플라트렛, 탄소 섬유, 탄소 나노-섬유, 그래파이트화된 카본 플레이크, 탄소 튜브, 탄소 나노튜브, 활성탄, 메조포러스 카본 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택된다. 특정 구현예에서, 도전체는 카본 블랙, 그래파이트, 팽창그래파이트, 그래핀, 그래핀 나노플라트렛, 탄소 섬유, 탄소 나노-섬유, 그래파이트화된 카본 플레이크, 탄소 튜브, 탄소 나노튜브, 활성탄 또는 메조포러스 카본이 아니다.
- [0084] 일부 구현예에서, 캐소드 전극 층 또는 애노드 전극 층 각각에서 도전체의 양은 상기 캐소드 전극 층 또는 애노드 전극 층의 총 중량을 기준으로 독립적으로, 1 중량% 이상, 2 중량% 이상, 3 중량% 이상, 4 중량% 이상, 5 중량% 이상, 10 중량% 이상, 15 중량% 이상, 20 중량% 이상, 25 중량% 이상, 30 중량% 이상, 35 중량% 이상, 40 중량% 이상, 45 중량% 이상, 또는 50 중량% 이상이다. 소정의 구현예에서, 캐소드 전극 층 또는 애노드 전극 층 각각에서 도전체의 양은 상기 캐소드 전극 층 또는 애노드 전극 층의 총 중량을 기준으로 독립적으로, 1 중량% 이하, 2 중량% 이하, 3 중량% 이하, 4 중량% 이하, 5 중량% 이하, 10 중량% 이하, 15 중량% 이하, 20 중량% 이하, 25 중량% 이하, 30 중량% 이하, 35 중량% 이하, 40 중량% 이하, 45 중량% 이하, 또는 50 중량% 이하이다.
- [0085] 소정의 구현예에서, 캐소드 전극 층 또는 애노드 전극 층 각각에서 도전체의 양은 상기 캐소드 전극 층 또는 애노드 전극 층의 총 중량을 기준으로 독립적으로, 약 0.05 중량% 내지 약 0.5 중량%, 약 0.1 중량% 내지 약 1 중량%, 약 0.25 중량% 내지 약 2.5 중량%, 약 0.5 중량% 내지 약 5 중량%, 약 2 중량% 내지 약 5 중량%, 약 3 중량% 내지 약 7 중량%, 또는 약 5 중량% 내지 약 10 중량%이다.
- [0086] 전극 조립체의 조립 후, 상기 전극 조립체를 건조 챔버에 넣는다. 일부 구현예에서, 건조 챔버를 진공 펌프에 연결하여, 챔버 내의 압력이 감소될 수 있다. 압력은 물의 비점을 낮추기에 충분할 정도로 감소된다. 따라서, 건조 기간은 상당히 단축될 수 있다. 소정의 구현예에서, 건조 챔버를 중심 진공 공급장치에 연결하여, 몇몇 진공 건조 오븐이 동시에 작동될 수 있게 한다. 일부 구현예에서, 중심 진공 공급장치에 연결된 진공 건조 오븐의 수는 작동되는 펌프의 수에 따라 1 내지 20개의 범위이다. 소정의 구현예에서, 진공 펌프 또는 중심 진공 공급장치를, 기체 유출 밸브가 달린 흡입관에 의해 상기 건조 챔버에 연결한다. 일부 구현예에서, 건조 챔버를 또한, 기체 유입 밸브가 달린 도관(duct)에 의해 건조 공기 또는 불활성 기체를 함유하는 기체 저장소에 연결한다. 기체 유출 밸브가 닫히고 기체 유입 밸브가 열리면, 건조 챔버 내에서 진공이 상실된다. 상기 밸브는 솔레노이드 또는 니들(needle) 유형 또는 질량 유동 조절기(mass flow controller)일 것이다. 적절한 유동 조정을 허용하는 임의의 장치가 사용될 것이다.
- [0087] 펌프에 필요한 힘을 감소시키기 위해, 건조 챔버와 펌프 사이에 축합기가 제공될 수 있다. 축합기는 수증기를 밖으로 축합시켜, 분리시킨다.
- [0088] 본 발명은 2개 이상의 건조 단계, 즉 제1 단계(즉, 단계 3) 및 제2 단계(즉, 단계 4)로 전극 조립체를 건조하는 단계를 포함한다. 본원에 개시된 전극 조립체는 2개 이상의 연속 단계에서 점진적으로 건조되며, 이때, 제1 단계의 온도는 후속 단계 중 임의의 단계에서의 온도보다 낮다.
- [0089] 제1 단계에서의 온도는 50°C 내지 90°C의 범위일 수 있다. 부분적으로-건조된 전극 조립체는 제1 단계로부터 수득된다. 소정의 구현예에서, 전극 조립체는 제1 단계에서 진공 하에 약 50°C 내지 약 90°C, 약 50°C 내지 약 85°C, 약 50°C 내지 약 80°C, 약 60°C 내지 약 90°C, 약 60°C 내지 약 85°C, 약 60°C 내지 약 80°C, 또는 약 70°C 내지 약 90°C의 온도에서 건조될 수 있다. 일부 구현예에서, 전극 조립체는 제1 단계에서 진공 하에 약 50°C 이상, 약 60°C 이상, 약 70°C 이상, 또는 약 80°C 이상의 온도에서 건조될 수 있다. 소정의 구현예에서, 전극 조립체는 제1 단계에서 진공 하에 90°C 미만, 85°C 미만, 80°C 미만, 75°C 미만, 70°C 미만, 65°C 미만, 60°C 미만, 55°C 미만, 또는 50°C 미만의 온도에서 건조될 수 있다.
- [0090] 제1 단계에서 더 낮은 온도는, 전극층의 균열 또는 취성화(embrittlement)를 피하기 위한 느린 건조에 유익하다. 전극층의 내부가 전극층의 표면보다 느리게 건조하기 때문에, 전극층의 표면은 표면 균열의 가능성 을 감소시키기 위해 느리게 건조되어야 한다.
- [0091] 제1 단계를 위한 건조 기간은 약 5분 내지 약 4시간의 범위일 수 있다. 일부 구현예에서, 제1 단계에서 진공 하에 전극 조립체의 건조 기간은 약 5분 내지 약 4시간, 약 5분 내지 약 3시간, 약 5분 내지 약 2시간, 약 5분 내지 약 1시간, 약 10분 내지 약 2시간, 약 15분 내지 약 2시간, 약 15분 내지 약 1시간, 약 30분 내지 약 4시간, 약 30분 내지 약 3시간, 약 30분 내지 약 2시간, 약 30분 내지 약 1시간, 약 1시간 내지 약 4시간, 약 1시간 내지 약 3시간, 또는 약 1시간 내지 약 2시간이다. 일부 구현예에서, 제1 단계에서 진공 하에 전극 조립체

의 건조 기간은 약 5분 내지 약 2시간, 또는 약 15분 내지 약 30분이다.

[0092] 제2 단계에서 온도는 80°C 내지 155°C의 범위일 수 있다. 소정의 구현예에서, 전극 조립체는 제2 단계에서 진공 하에 약 70°C 내지 약 155°C, 약 80°C 내지 약 155°C, 약 90°C 내지 약 155°C, 약 100°C 내지 약 155°C, 약 100°C 내지 약 140°C, 약 100°C 내지 약 130°C, 약 100°C 내지 약 120°C, 약 100°C 내지 약 110°C, 또는 약 110°C 내지 약 130°C의 온도에서 건조될 수 있다. 소정의 구현예에서, 전극 조립체는 제2 단계에서 진공 하에 약 80°C 내지 약 155°C의 온도에서 건조될 수 있다. 일부 구현예에서, 전극 조립체는 제2 단계에서 진공 하에 약 80°C 이상, 약 90°C 이상, 약 100°C 이상, 약 110°C 이상, 약 120°C 이상, 약 130°C 이상, 약 140°C 이상 또는 약 150°C 이상의 온도에서 건조될 수 있다. 소정의 구현예에서, 전극 조립체는 제2 단계에서 진공 하에 155°C 미만, 150°C 미만, 145°C 미만, 140°C 미만, 135°C 미만, 130°C 미만, 125°C 미만, 120°C 미만, 115°C 미만, 110°C 미만, 105°C 미만, 100°C 미만, 또는 90°C 미만의 온도에서 건조될 수 있다.

[0093] 제2 단계의 건조 기간은 약 15분 내지 약 4시간의 범위일 수 있다. 일부 구현예에서, 제2 단계에서 진공 하에 전극 조립체의 건조 기간은 약 15분 내지 약 3시간, 약 15분 내지 약 2시간, 약 15분 내지 약 1시간, 약 15분 내지 약 30분, 약 30분 내지 약 4시간, 약 30분 내지 약 3시간, 약 30분 내지 약 2시간, 약 30분 내지 약 1시간, 약 1시간 내지 약 4시간, 약 1시간 내지 약 3시간, 약 1시간 내지 약 2시간, 약 2시간 내지 약 4시간, 또는 약 2시간 내지 약 3시간이다. 일부 구현예에서, 제2 단계에서 진공 하에 전극 조립체의 건조 기간은 약 5분 내지 약 2시간, 또는 약 15분 내지 약 30분이다.

[0094] 건조 챔버의 압력을 감소시킬 수 있는 임의의 진공 펌프가 본원에 사용될 수 있다. 진공 펌프의 일부 비제한적인 예로는, 건조 진공 펌프, 터보 퍼프, 로터리 베인(rotary vane) 진공 펌프, 극저온 펌프 및 수착 펌프(sorption pump)가 있다.

[0095] 일부 구현예에서, 진공 펌프는 오일 프리 펌프이다. 오일 프리 펌프는 펌핑되는 기체에 노출되는 펌프 파트에 오일이 없어도 작동되거나 또는 부분 진공 하에 작동된다. 따라서, 펌프를 통해 역류하는(backstream) 임의의 기체에 오일 증기가 없다. 전극 조립체의 표면 상에 증착된 프로그레시브 오일 증기는 배터리의 전기화학 성능을 감소시킬 수 있다. 이러한 펌프의 일례는 격막(diaphragm) 진공 펌프이다.

[0096] 소정의 구현예에서, 고 진공은 건조 챔버를 비우기 위해 2-단계 펌핑 시스템을 사용함으로써 달성될 수 있다. 펌핑 시스템은 터보-몰레큘러 펌프(turbo-molecular pump)와 같은 고 진공 펌프와 연속하여 배열된 로터리 펌프 또는 격막 펌프와 같은 1차 진공 펌프를 포함한다.

[0097] 일부 구현예에서, 전극 조립체는 대기압 하에 건조된다. 소정의 구현예에서, 건조는 진공 상태에서 수행된다. 추가의 구현예에서, 진공 상태는 약  $1 \times 10^{-1}$  Pa 내지 약  $1 \times 10^{-4}$  Pa, 약 10 Pa 내지 약  $1 \times 10^{-1}$  Pa, 약  $1 \times 10^3$  Pa 내지 약 10 Pa, 또는 약  $2.5 \times 10^4$  Pa 내지 약  $1 \times 10^3$  Pa 범위 내의 압력에서 유지된다. 보다 추가의 구현예에서, 진공 상태는 약  $1 \times 10^3$  Pa, 약  $2 \times 10^3$  Pa, 약  $5 \times 10^3$  Pa, 약  $1 \times 10^4$  Pa, 또는 약  $2 \times 10^4$  Pa의 압력에서 존재한다.

[0098] 예정된 건조 기간 후, 건조 챔버는 건조 공기 또는 불활성 기체를 함유하는 기체 저장소로 기체 유입 밸브를 통해 직접 환기시킨다. 일부 구현예에서, 기체 저장소는 질소 기체 실린더이다. 소정의 구현예에서, 불활성 기체는 헬륨, 아르곤, 네온, 크립톤, 제논, 질소, 이산화탄소 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택된다. 일부 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체의 수분 함량은 10 ppm 이하, 8 ppm 이하, 5 ppm 이하, 4 ppm 이하, 3 ppm 이하, 2 ppm 이하 또는 1 ppm 이하의 수준에서 유지된다.

[0099] 소정의 구현예에서, 기체 충전 단계는 제2 건조 단계 후에, 건조 챔버에 건조 공기 또는 불활성 기체를 충전시킴으로써 수행된다. 다른 구현예에서, 기체 충전 단계는 제1 건조 단계 및 제2 건조 단계 후에, 건조 챔버에 건조 공기 또는 불활성 기체를 충전시킴으로써 수행된다.

[0100] 일부 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체는 건조 챔버에 들어가기 전에 예열된다. 소정의 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체의 온도는 약 70°C 내지 약 130°C, 약 70°C 내지 약 110°C, 약 70°C 내지 약 100°C, 약 70°C 내지 약 90°C, 약 70°C 내지 약 80°C, 약 80°C 내지 약 155°C, 약 80°C 내지 약 120°C, 약 80°C 내지 약 100°C, 약 90°C 내지 약 155°C, 약 90°C 내지 약 130°C, 약 90°C 내지 약 100°C, 약 70°C 내지 약 155°C, 약 100°C 내지 약 130°C 또는 약 100°C 내지 약 120°C이다. 일부 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체는 건조 챔버에 들어가기 전에 약 70°C 내지 약 155°C까지 예열된다.

[0101] 소정의 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체는 건조 챔버 내에서 약 30초 내지 약 2시간, 약 1분 내지 약 1

시간, 약 5분 내지 약 30분, 약 5분 내지 약 15분, 약 5분 내지 약 10분, 약 10분 내지 약 30분, 약 10분 내지 약 20분, 약 10분 내지 약 15분, 약 15분 내지 약 1시간, 약 15분 내지 약 30분, 약 15분 내지 약 20분, 또는 약 30분 내지 약 1시간의 기간 동안 머무른다. 일부 구현예에서, 건조 공기 또는 불활성 기체는 건조 챔버 내에서 약 30초 내지 약 2시간, 약 5분 내지 약 2시간, 또는 약 15분 내지 약 30분의 기간 동안 머무른다.

[0102] 일부 구현예에서, 전극 조립체는, 상기 전극 조립체를 건조 기체와 함께 예정된 시간 동안 인큐베이션함으로써, 진공 하에 더 건조될 수 있다. 이러한 절차는 전극 조립체의 수분 함량을 적절한 수준까지 감소시키는 데 필요한 횟수만큼 반복될 수 있다. 소정의 구현예에서, 이러한 절차는, 전극 조립체 내 수분 함량이 상기 건조된 전극 조립체의 총 중량을 기준으로, 40 중량 ppm 미만, 30 중량 ppm 미만, 20 중량 ppm 미만, 15 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 미만, 또는 5 중량 ppm 미만으로 될 때까지 약 2 내지 50회 반복될 수 있다.

[0103] 소정의 구현예에서, 진공 건조 단계 및 기체 충전 단계는 2회 이상, 3회 이상, 4회 이상, 5회 이상, 6회 이상, 7회 이상, 8회 이상, 9회 이상, 10회 이상, 12회 이상, 14회 이상, 16회 이상, 18회 이상, 20회 이상, 22회 이상, 24회 이상, 26회 이상, 28회 이상 또는 30회 이상 반복될 수 있다. 일부 구현예에서, 진공 건조 단계 및 기체 충전 단계는 2 내지 50회, 2 내지 30회, 2 내지 20회, 2 내지 10회, 5 내지 30회, 5 내지 20회, 또는 5 내지 10회 반복될 수 있다. 소정의 구현예에서, 진공 건조 단계 및 기체 충전 단계는 2회 이상 반복될 수 있다.

[0104] 일부 구현예에서, 전극 조립체의 건조 공정은 진공 건조, 및 후속해서 열풍 건조를 포함한다. 일부 구현예에서, 건조 챔버는 위 및/또는 아래로부터 전극 조립체 방향으로 열풍을 불어 넣는다. 소정의 구현예에서, 열풍 건조는 약 1 미터/초 내지 약 50 미터/초, 약 1 미터/초 내지 약 40 미터/초, 약 1 미터/초 내지 약 30 미터/초, 약 1 미터/초 내지 약 20 미터/초, 약 1 미터/초 내지 약 10 미터/초, 약 10 미터/초 내지 약 50 미터/초, 약 10 미터/초 내지 약 40 미터/초, 약 10 미터/초 내지 약 30 미터/초, 약 10 미터/초 내지 약 20 미터/초, 약 20 미터/초 내지 약 30 미터/초, 약 30 미터/초 내지 약 40 미터/초, 또는 약 40 미터/초 내지 약 50 미터/초의 공기 속도에서 수행된다. 다른 구현예에서, 가열된 공기 대신에, 가열된 불활성 기체(즉, 헬륨, 아르곤)가 사용된다.

[0105] 건조 기체는 열 교환 표면을 통해 예열될 수 있다. 일부 구현예에서, 열풍의 온도는 약 50°C 내지 약 155°C, 약 60°C 내지 약 150°C, 약 80°C 내지 약 150°C, 약 100°C 내지 약 150°C, 약 70°C 내지 약 150°C, 약 70°C 내지 약 130°C, 약 70°C 내지 약 100°C, 약 80°C 내지 약 150°C, 약 80°C 내지 약 130°C, 약 80°C 내지 약 110°C, 약 100°C 내지 약 140°C, 또는 약 100°C 내지 약 120°C의 범위이다.

[0106] 소정의 구현예에서, 열풍 건조 기간은 약 1분 내지 약 2시간, 약 1분 내지 약 1시간, 약 1분 내지 약 30분, 약 1분 내지 약 15분, 약 5분 내지 약 30분, 약 5분 내지 약 20분, 약 5분 내지 약 15분, 약 5분 내지 약 10분, 약 10분 내지 약 1시간, 약 10분 내지 약 30분, 약 10분 내지 약 20분, 약 15분 내지 약 1시간, 또는 약 15분 내지 약 30분이다.

[0107] 일부 구현예에서, 전극 조립체는 열풍을 예정된 시간 동안 불어 넣은 후, 진공 하에 더 건조될 수 있다. 이러한 절차는 전극 조립체의 수분 함량을 적절한 수준, 예컨대 40 ppm, 30 ppm, 20 ppm, 15 ppm, 10 ppm, 또는 5 ppm까지 감소시키는 데 필요한 횟수만큼 반복될 수 있다.

[0108] 현재, 물은, 리튬-이온 배터리의 유기-기반 생산 공정에서 염격하게 제어되어야 하는 주된 인자이다. 본 발명의 이점은, 대부분의 제조가 건조실 밖에서 수행될 수 있다는 점이다. 일부 구현예에서, 조립 공정은 건조실 또는 글리브박스 밖에서 수행될 수 있다. 소정의 구현예에서, 전해질을 충전시키는 단계만, 또는 전극 조립체를 건조하고 전해질을 충전시키는 단계 둘 다, 건조실 또는 글리브박스 밖에서 수행된다. 따라서, 공장 내 습도 조절이 피해질 수 있어서, 투자 비용을 유의하게 낮출 수 있다.

[0109] 수분의 존재는 배터리의 작동에 유해하다. 일반적으로, 종래의 방법에 의해 제조된 전극 조립체 내 수분 함량은 상기 전극 조립체의 총 중량을 기준으로 100 중량 ppm 초과의 물 함량을 함유한다. 초기 배터리 성능이 허용 가능할지라도, 상기 배터리 성능의 열화 속도는 허용되지 않을 수 있다. 따라서, 충분히 높은 배터리 성능을 달성할 수 있도록, 배터리 내에서 낮은 수분 함량을 갖는 것이 유리할 것이다.

[0110] 본원에 개시된 방법에 의해 제조된 전극 조립체는 특히 낮은 수분 함량을 가지며, 이는 리튬-이온 배터리의 신뢰할 만한 성능에 기여한다. 일부 구현예에서, 건조된 전극 조립체 내 수분 함량은 상기 건조된 전극 조립체의 총 중량을 기준으로, 약 5 중량 ppm 내지 약 50 중량 ppm, 약 5 중량 ppm 내지 약 40 중량 ppm, 약 5 중량 ppm 내지 약 30 중량 ppm, 약 5 중량 ppm 내지 약 20 중량 ppm, 약 5 중량 ppm 내지 약 10 중량 ppm, 약 3 중량

ppm 내지 약 30 중량 ppm, 약 3 중량 ppm 내지 약 20 중량 ppm, 또는 약 3 중량 ppm 내지 약 10 중량 ppm이다.

[0111] 소정의 구현예에서, 건조된 전극 조립체 내 수분 함량은 상기 건조된 전극 조립체의 총 중량을 기준으로, 50 중량 ppm 미만, 40 중량 ppm 미만, 30 중량 ppm 미만, 20 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 미만, 5 중량 ppm 미만, 4 중량 ppm 미만, 3 중량 ppm 미만, 2 중량 ppm 미만, 또는 1 중량 ppm 미만이다. 일부 구현예에서, 본원에 개시된 건조된 전극 조립체는 상기 건조된 전극 조립체의 총 중량을 기준으로 약 5 중량 ppm 이하의 물 농도를 가진다.

[0112] 일부 구현예에서, 건조된 전극 조립체는 하나 이상의 건조된 애노드 및 하나 이상의 건조된 캐소드를 포함하며, 여기서, 하나 이상의 건조된 애노드 및 하나 이상의 건조된 캐소드는 하나 이상의 상기 건조된 애노드 및 하나 이상의 상기 건조된 캐소드의 총 중량을 기준으로, 50 중량 ppm 미만, 40 중량 ppm 미만, 30 중량 ppm 미만, 20 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 미만, 5 중량 ppm 미만, 또는 3 중량 ppm 미만의 수분 함량을 가진다.

[0113] 소정의 구현예에서, 하나 이상의 애노드 및 하나 이상의 캐소드는 하나 이상의 상기 캐소드 또는 애노드의 총 중량을 기준으로, 30 중량 ppm 미만, 20 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 미만, 5 중량 ppm 미만, 또는 3 중량 ppm 미만이다. 일부 구현예에서, 하나 이상의 캐소드 또는 애노드는 30 중량 ppm 미만, 20 중량 ppm 미만, 15 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 미만, 5 중량 ppm 미만, 4 중량 ppm 미만, 3 중량 ppm 미만, 2 중량 ppm 미만, 또는 1 중량 ppm 미만의 수분 함량을 가진다.

[0114] 일부 구현예에서, 건조된 전극 조립체는 하나 이상의 건조된 세퍼레이터를 포함하며, 여기서, 하나 이상의 건조된 세퍼레이터는 하나 이상의 상기 건조된 세퍼레이터의 총 중량을 기준으로, 50 중량 ppm 미만, 40 중량 ppm 미만, 30 중량 ppm 미만, 20 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 미만, 5 중량 ppm 미만, 또는 3 중량 ppm 미만의 수분 함량을 가진다.

[0115] 전극 코팅층의 박리 강도는 통상, 코팅층 내에서 결합제의 양을 증가시킴으로써 증가되어 왔다. 그러나, 결합제 양의 증가는 천연적으로, 전극 코팅층 내에서 전극 활성 물질의 양의 감소를 초래하며, 이로써 단위 중량 당 배터리 용량을 감소시킨다. 2-단계 건조 공정을 수행함으로써, 실제로 충분한 박리 강도가 수득된다.

[0116] 본 발명은 2개 건조 단계, 제1 단계 및 제2 단계를 이용한 전극 조립체의 건조를 포함하며, 이때, 제1 단계의 온도는 제2 단계의 온도보다 낮다. 제1 단계에서의 더 낮은 온도는 표면 수분의 급격한 손실을 방지하고, 사실상 건조 시 불균일성을 없앰으로써 생성물 품질을 증가시킨다. 건조가 너무 빠르거나 또는 온도가 너무 높으면, 이는 불균일한 건조를 유발할 수 있고, 전극층을 불균일하게 축소시켜, 전극 박리 강도의 감소를 유발할 수 있다.

[0117] 선행 기술 문헌 중 어느 것도, 결합제 조성물과 전극 박리 강도 사이의 관계를 기재하는 건조 방법을 개시하고 있지 않다. 2-단계 건조 공정은 특히, 수성 결합제를 포함하는 전극에 적합하다. 결합제는 전극 조성물 중 작은 부분만 구성하지만, 일부 경우에는 이를 결합제는 리튬-이온 배터리의 사이를 안정성 및 속도 능력과 같은 배터리 성능에 영향을 주는 중요한 역할을 한다. 수성 결합제는 전극 제작에 사용하기에 더 친환경적이고 더 용이하다. 그러나, 수성 결합제, 예컨대 카르복시메틸 셀룰로스(CMC)는 취성(brITTLE) 결합제로서 간주되며, 이러한 결합제는 약간의 변형 후에 분해된다. 건조가 너무 빠르거나 또는 온도가 너무 높으면, 수성 결합제가 취성으로 될 가능성이 있고, 따라서 취성 전극을 초래한다.

[0118] 일부 구현예에서, 하나 이상의 캐소드는 캐소드 집전체 및 캐소드 전극층을 포함하며, 여기서, 상기 캐소드 집전체와 상기 캐소드 전극층 사이의 박리 강도는 0.05 N/cm 이상, 0.1 N/cm 이상, 0.15 N/cm 이상, 0.2 N/cm 이상, 0.25 N/cm 이상, 0.3 N/cm 이상, 0.35 N/cm 이상, 0.4 N/cm 이상, 0.5 N/cm 이상, 또는 0.75 N/cm 이상이다. 소정의 구현예에서, 캐소드 전극층과 캐소드 집전체 사이의 박리 강도는 0.05 N/cm 내지 0.75 N/cm, 0.05 N/cm 내지 0.6 N/cm, 0.05 N/cm 내지 0.5 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.5 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.45 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.4 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.35 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.5 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.45 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.4 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.35 N/cm, 또는 0.15 N/cm 내지 0.3 N/cm이다.

[0119] 소정의 구현예에서, 하나 이상의 애노드는 애노드 집전체 및 애노드 전극층을 포함하며, 여기서, 상기 애노드 집전체와 상기 애노드 전극층 사이의 박리 강도는 0.05 N/cm 이상, 0.1 N/cm 이상, 0.15 N/cm 이상, 0.2 N/cm 이상, 0.3 N/cm 이상, 0.35 N/cm 이상, 0.45 N/cm 이상, 0.5 N/cm 이상, 0.55 N/cm 이상, 또는 0.65 N/cm 이상이다. 일부 구현예에서, 애노드 전극층과 애노드 집전체 사이의 박리 강도는 0.05 N/cm 내지 0.65 N/cm, 0.05 N/cm 내지 0.45 N/cm, 0.05 N/cm 내지 0.4 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.55 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.45 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.4 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.35 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.5 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.45 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.4 N/cm, 0.1 N/cm 내지 0.35 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.5 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.45 N/cm, 0.15

N/cm 내지 0.4 N/cm, 0.15 N/cm 내지 0.35 N/cm, 또는 0.15 N/cm 내지 0.3 N/cm이다.

[0120] 집전체와 전극층 사이의 박리 강도가 높은 경우, 활성 물질의 탈리(detachment)는 반복되는 충전 및 방전 동안 발생할 가능성이 적다. 전극 박리 강도가 0.15 N/cm 이상인 경우, 활성 전극 물질을 집전체 표면 상으로 라미네이션시킨 후에도 전극은 충분한 박리 강도를 가지고, 전극층은 재충전성 리튬 배터리의 충전 및 방전 동안 전극 활성 물질의 수축 및 팽창으로 인한 부피 변화 동안 분리되지 않는다.

[0121] 건조 단계 후, 전극 조립체는 50°C 이하까지 천연 냉각될 수 있으며, 그 후에 건조 챔버로부터 제거된다. 일부 구현예에서, 전극 조립체는 건조 챔버로부터 제거되기 전에, 45°C 이하, 40°C 이하, 35°C 이하, 30°C 이하, 또는 25°C 이하까지 냉각된다. 소정의 구현예에서, 전극 조립체는 실온까지 냉각된다. 일부 구현예에서, 표적 온도에 더 빠르게 도달하기 위해, 전극 조립체는 건조 기체 또는 불활성 기체를 취입함으로써 냉각된다.

[0122] 전극층 내의 결합제 물질은 전극 물질 및 도전체를 집전체 상에서 함께 결합시키는 역할을 한다. 소정의 구현 예에서, 하나 이상의 애노드 및 하나 이상의 캐소드는 각각 독립적으로, 유기계 결합제 물질, 수계 결합제 물질, 또는 수계 결합제 물질과 유기계 결합제 물질의 혼합물로 구성된 군으로부터 선택되는 결합제 물질을 포함한다.

[0123] 일부 구현예에서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질은 각각 독립적으로, 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴화된 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴로니트릴 공중합체, 아크릴로니트릴-부타디엔 고무, 니트릴 부타디엔 고무, 아크릴로니트릴-스티렌-부타디엔 공중합체, 아크릴 고무, 부틸 고무, 불소 고무, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 에틸렌/프로필렌 공중합체, 폴리부타디엔, 폴리에틸렌 옥사이드, 클로로설폰화된 폴리에틸렌, 폴리비닐파롤리돈, 폴리비닐파리딘, 폴리비닐 알코올, 폴리비닐 아세테이트, 폴리에피클로로하이드린, 폴리포스파젠, 폴리아크릴로니트릴, 폴리스티렌, 라텍스, 아크릴 수지, 페놀 수지, 에폭시 수지, 카르복시메틸 셀룰로스, 하이드록시프로필 셀룰로스, 셀룰로스 아세테이트, 셀룰로스 아세테이트 부티레이트, 셀룰로스 아세테이트 프로파오네이트, 시아노에틸셀룰로스, 시아노에틸수크로스, 폴리에스테르, 폴리아미드, 폴리에테르, 폴리이미드, 폴리카르복실레이트, 폴리카르복실산, 폴리아크릴산, 폴리아크릴레이트, 폴리메타크릴산, 폴리메타크릴레이트, 폴리아크릴아미드, 폴리우레탄, 플루오르화된 중합체, 염소화된 중합체, 알긴산 염, 폴리비닐리텐 플루오라이드, 폴리(비닐리텐 플루오라이드)-헥사플루오로프로펜 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택된다. 추가의 구현예에서, 알긴산 염은 Na, Li, K, Ca, NH<sub>4</sub>, Mg, Al 또는 이들의 조합으로부터 선택되는 양이온을 포함한다.

[0124] 소정의 구현예에서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질은 각각 독립적으로, 스티렌-부타디엔 고무, 카르복시메틸 셀룰로스, 폴리비닐리텐 플루오라이드, 아크릴로니트릴 공중합체, 폴리아크릴산, 폴리아크릴로니트릴, 폴리(비닐리텐 플루오라이드)-헥사플루오로프로펜, 라텍스, 알긴산 염 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택된다.

[0125] 일부 구현예에서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질은 각각 독립적으로, SBR, CMC, PAA, 알긴산 염 또는 이들의 조합으로부터 선택된다. 소정의 구현예에서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질은 각각 독립적으로 아크릴로니트릴 공중합체이다. 일부 구현예에서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질은 각각 독립적으로 폴리아크릴로니트릴이다. 소정의 구현예에서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질에는 각각 독립적으로, 스티렌-부타디엔 고무, 카르복시메틸 셀룰로스, 폴리비닐리텐 플루오라이드, 아크릴로니트릴 공중합체, 폴리아크릴산, 폴리아크릴로니트릴, 폴리(비닐리텐 플루오라이드)-헥사플루오로프로펜, 라텍스 또는 알긴산 염이 없다.

[0126] 소정의 구현예에서, 각각의 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질의 양은 독립적으로 상기 캐소드 전극층 및 상기 애노드 전극층의 총 중량을 기준으로, 1 중량% 이상, 2 중량% 이상, 3 중량% 이상, 4 중량% 이상, 5 중량% 이상, 10 중량% 이상, 15 중량% 이상, 20 중량% 이상, 25 중량% 이상, 30 중량% 이상, 35 중량% 이상, 40 중량% 이상, 45 중량% 이상, 또는 50 중량% 이상이다. 일부 구현예에서, 각각의 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질의 양은 독립적으로 상기 캐소드 전극층 및 상기 애노드 전극층의 총 중량을 기준으로, 1 중량% 이하, 2 중량% 이하, 3 중량% 이하, 4 중량% 이하, 5 중량% 이하, 10 중량% 이하, 15 중량% 이하, 20 중량% 이하, 25 중량% 이하, 30 중량% 이하, 35 중량% 이하, 40 중량% 이하, 45 중량% 이하, 또는 50 중량% 이하이다.

[0127] 일부 구현예에서, 각각의 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질의 양은 독립적으로 상기 캐소드 전극층 및 상기 애노드 전극층의 총 중량을 기준으로, 약 2 중량% 내지 약 10 중량%, 약 3 중량% 내지 약 6 중량%

%, 약 5 중량% 내지 약 10 중량%, 약 7.5 중량% 내지 약 15 중량%, 약 10 중량% 내지 약 20 중량%, 약 15 중량% 내지 약 25 중량%, 약 20 중량% 내지 약 40 중량%, 또는 약 35 중량% 내지 약 50 중량%이다.

[0128] 밀봉된 용기 내에 수분이 존재하는 것을 방지하기 위해, 전해질 충전 단계가 건조실에서 수행된다. 건조 후, 전극 조립체를 용기 내부에 놓고, 그 후에 전해질을 첨가하여, 세퍼레이터 및 전극의 모든 층들의 기공, 및 전극 조립체 내 양극 및 음극 및 세퍼레이터 사이의 각각의 캡을 밀봉 전에 불활성 분위기 하에 충전시킨다.

[0129] 본원에 개시된 방법은 더 적은 에너지를 소비함으로써 리튬-이온 배터리의 생산 비용을 감축시키고, 건조에 필요한 제조 시간을 단축시킨다. 따라서, 이러한 방법은 특히, 이의 낮은 비용 및 취급 용이성 때문에 산업 공정에 적합하다.

[0130] 또한, 비수성 전해질 이차 배터리용 전극 조립체가 본원에 제공되며, 상기 전극 조립체는 하나 이상의 애노드, 하나 이상의 캐소드, 및 하나 이상의 상기 애노드와 하나 이상의 상기 캐소드 사이에 개재된 하나 이상의 세퍼레이터를 포함하고, 여기서, 하나 이상의 애노드는 애노드 집전체 및 애노드 전극층을 포함하고, 하나 이상의 캐소드는 캐소드 집전체 및 캐소드 전극층을 포함하며, 여기서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층은 각각 독립적으로 35% 미만의 보이드 부피를 가지고, 하나 이상의 캐소드 및 애노드는 각각 각각 독립적으로 0.15 N/cm 이상의 박리 강도를 가진다. 다른 구현예에서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층은 각각 독립적으로, 33% 미만, 30% 미만, 25% 미만, 20% 미만, 18% 미만, 또는 15% 미만의 보이드 부피를 가진다.

[0131] 소정의 구현예에서, 캐소드 전극층은 캐소드 물질, 결합제 물질 및 도전제를 포함하고, 애노드 전극층은 애노드 물질, 결합제 물질 및 도전제를 포함하며, 여기서, 캐소드 전극층 및 애노드 전극층 내의 결합제 물질은 각각 독립적으로, 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴레이트화된 스티렌-부타디엔 고무, 아크릴로니트릴 공중합체, 아크릴로니트릴-부타디엔 고무, 니트릴 부타디엔 고무, 아크릴로니트릴-스티렌-부타디엔 공중합체, 아크릴 고무, 부틸 고무, 불소 고무, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 에틸렌/프로필렌 공중합체, 폴리부타디엔, 폴리에틸렌 옥사이드, 클로로설폰화된 폴리에틸렌, 폴리비닐파리돈, 폴리비닐파리딘, 폴리비닐 알코올, 폴리비닐 아세테이트, 폴리에피클로로하이드린, 폴리포스파젠, 폴리아크릴로니트릴, 폴리스티렌, 라텍스, 아크릴 수지, 페놀 수지, 에폭시 수지, 카르복시메틸 셀룰로스, 하이드록시프로필 셀룰로스, 셀룰로스 아세테이트, 셀룰로스 아세테이트 부티레이트, 셀룰로스 아세테이트 프로파오네이트, 시아노에틸셀룰로스, 시아노에틸수크로스, 폴리에스테르, 폴리아미드, 폴리에스르, 폴리아미드, 폴리카르복실레이트, 폴리카르복실산, 폴리아크릴산, 폴리아크릴레이트, 폴리메타크릴산, 폴리메타크릴레이트, 폴리아크릴아미드, 폴리우레탄, 플루오르화된 중합체, 염소화된 중합체, 알긴산 염, 폴리비닐리덴 플루오라이드, 폴리(비닐리덴 플루오라이드)-헥사플루오로프로펜 및 이들의 조합으로 구성된 군으로부터 선택된다.

[0132] 일부 구현예에서, 집전체와 전극층 사이의 박리 강도는 0.15 N/cm 이상, 0.2 N/cm 이상, 0.3 N/cm 이상, 0.4 N/cm 이상, 또는 0.5 N/cm 이상이다. 추가의 구현예에서, 캐소드 집전체와 캐소드 전극층 사이의 박리 강도는 0.3 N/cm 이상, 0.4 N/cm 이상, 또는 0.5 N/cm 이상이다. 보다 추가의 구현예에서, 애노드 집전체와 애노드 전극층 사이의 박리 강도는 0.15 N/cm 이상, 0.2 N/cm 이상, 또는 0.3 N/cm 이상이다.

[0133] 소정의 구현예에서, 전극 조립체의 물 함량은 상기 전극 조립체의 총 중량을 기준으로, 20 중량 ppm 미만, 10 중량 ppm 미만, 또는 5 중량 ppm 미만이다.

[0134] 또한, 본원에 개시된 방법에 의해 제조된 전극 조립체를 포함하는 리튬 배터리가 본원에 제공된다.

[0135] 하기의 실시예는 본 발명의 구현예를 예시하기 위해 제시된다. 모든 수치는 근사치이다. 수치 범위가 주어질 때, 언급된 범위를 벗어나는 구현예가 여전히 본 발명의 범위 내에 속할 수 있음을 이해해야 한다. 각 실시예에 기재된 특정 세부 사항은 본 발명의 필수 특징으로 해석 되어서는 안된다.

### 실시예

[0137] 전극 조립체 내 수분 함량을 Karl-fisher 적정에 의해 측정하였다. 전극 조립체를 아르곤 기체가 충전된 글러브박스 내에서 1 cm x 1 cm의 작은 조각들로 절단하였다. 1 cm x 1 cm 크기의 절단된 전극 조립체를 샘플 바이얼 내에서 칭량하였다. 그 후에, 칭량된 전극 조립체를 Karl Fischer 전량 분석(coulometry) 수분 분석기(831 KF Coulometer, Metrohm, Switzerland)를 사용한 Karl Fischer 측정을 위해 적정 용기에 첨가하였다. 측정을 3회 반복하여, 평균값을 확인하였다.

[0138] 전극 또는 세퍼레이터 내 수분 함량을 Karl-fisher 적정에 의해 분석하였다. 전극 조립체를 아르곤 기체가 충전된 글러브박스 내에서 1 cm x 1 cm의 작은 조각들로 절단하였다. 전극 조립체를 애노드, 캐소드 및 세퍼레이

터 층으로 나누었다. 분리된 전극층 및 세퍼레이터 층의 수분 함량을 Karl Fischer 적정에 의해 개별적으로 분석하였다. 측정을 3회 반복하여, 평균값을 확인하였다.

[0139] 전극의 박리 강도를 박리 테스터(Instron, US로부터 입수; 모델 번호 MTS 5581)에 의해 측정하였다. 건조된 전극 조립체를 애노드, 캐소드 및 세퍼레이터 층으로 분리하였다. 캐소드 층 및 애노드 층을 각각 25 mm×100 mm 크기의 직사각형 형상으로 절단하였다. 그 후에, 멘딩 테이프(3M; US; 모델 번호 810) 스트립을, 전극 코팅층을 갖는 전극 표면 상에 부착시키고, 그 위에서 2 kg 롤러의 왕복 운동에 의해 압축시켜, 박리 강도 테스트용 샘플을 제조하였다. 각각의 샘플을 박리 테스터 상에 마운팅하고, 후속해서 실온에서 180°에서 멘딩 테이프를 박리함으로써 박리 강도를 측정하였다. 상기 멘딩 테이프를 50 mm/분의 속도로 박리시켰다. 측정을 10 mm 내지 70 mm의 예정된 간격에서 수행하고, 3회 반복하였다.

#### 실시예 1

##### A) 양극 슬러리의 제조

[0142] 94 중량% 캐소드 물질(LNMC TLM 310, Xinxiang Tianli Energy Co. Ltd., China로부터 입수), 도전제로서 3 중량% 카본 블랙(SuperP; Timcal Ltd, Bodio, Switzerland로부터 입수), 및 결합제로서 0.8 중량% 폴리아크릴산(PAA, #181285, Sigma-Aldrich, US로부터 입수), 1.5 중량% 스티렌 부타디엔 고무(SBR, AL-2001, NIPPON A&L INC., Japan로부터 입수) 및 0.7 중량% 폴리비닐리덴 플루오라이드(PVDF; Solef® 5130, Solvay S.A., Belgium로부터 입수)를 혼합하고, 이들을 탈이온수에 분산시켜 고형분 함량이 50 중량%인 슬러리를 형성함으로써 양극 슬러리를 제조하였다. 상기 슬러리를 플래터너리 교반 혼합기에 의해 균질화하였다.

##### B) 양극의 제조

[0144] 전사 코터(ZY-TSF6-6518, Jin Fan Zhanyu New Energy Technology Co. Ltd., China로부터 입수)를 사용하여, 20  $\mu\text{m}$ 의 두께 및 5.5  $\mu\text{m}$ 의 표면 조도 Ra를 가진 알루미늄 호일의 양면에 상기 균질화된 슬러리를 약 26 mg/cm<sup>2</sup>의 면적 밀도로 코팅시켰다. 약 8 미터/분의 컨베이어 속도에서 작동되는 전사 코터의 서브-모듈로서의 24 미터 길이의 컨베이어 열풍 건조 오븐으로 상기 알루미늄 호일 상에 코팅된 필름을 3분 동안 건조시켜, 양극을 수득했다. 온도 프로그래밍 오븐으로 약 60°C의 입구 온도에서 약 75°C의 출구 온도로 온도가 점차 상승하도록 제어할 수 있는 온도 변화도를 실현했다. 그 후에, 전극을 압축시켜 코팅의 밀도를 증가시키고, 상기 밀도는 2.74 g/cm<sup>3</sup>이었다. 전극층의 보이드 부피는 31%이다.

##### C) 음극의 제조

[0146] 90 중량%의 하드 카본(HC; 99.5% 순도, Ruifute Technology Ltd., Shenzhen, Guangdong, China로부터 입수), 5 중량%의 카본 블랙 및 5 중량%의 폴리아크릴로니트릴을 탈이온수에서 혼합하여 50 중량%의 고형분 함량을 가진 슬러리를 형성함으로써, 음극 슬러리를 제조하였다. 전사 코터를 사용하여, 9  $\mu\text{m}$ 의 두께 및 3.4  $\mu\text{m}$ 의 표면 조도 Ra를 가진 구리 호일의 양면에 상기 슬러리를 약 15 mg/cm<sup>2</sup>의 면적 밀도로 코팅시켰다. 약 10 미터/분의 컨베이어 속도로 작동되는 24 미터 길이의 컨베이어 열풍 건조 오븐으로 상기 구리 호일 상에 코팅된 필름을 약 50°C에서 2.4분 동안 건조시켜, 음극을 수득했다. 그 후에, 전극을 압축시켜 코팅의 밀도를 증가시키고, 상기 밀도는 1.8 g/cm<sup>3</sup>이었다. 전극층의 보이드 부피는 19%이다.

#### 실시예 2

##### 전극 조립체의 조립

[0149] 건조 후, 실시예 1의 생성된 캐소드 필름 및 애노드 필름을 사용하여 각각의 전극 판으로 절단하여 캐소드 및 애노드를 각각 제조하였다. 습도 조절 없이 열린 공기 내에서 애노드, 캐소드, 및 양극과 음극 사이에 개재된 세퍼레이터를 적층함으로써 전극 조립체를 제조하였다. 세퍼레이터는 PET 부직포로 제작된 미소공성 막(MITSUBISHI PAPER MILLS LTD, Japan로부터 입수)이었으며, 30  $\mu\text{m}$ 의 두께를 가졌다. 제1 건조 단계 동안 전극 조립체를 글러브박스 내에서 진공 오븐에서  $5 \times 10^3$  Pa의 압력 하에 70°C에서 2.5시간 동안 건조하였다. 제2 건조 단계 동안 전극 조립체를 진공 하에  $5 \times 10^3$  Pa의 압력에 120°C에서 1.5시간 동안 추가로 건조하였다. 그 후에, 건조 챔버에 5 ppm의 수분 함량 및 90°C의 온도를 갖는 고온 건조한 공기를 충전시켰다. 고온 건조한 공기는 건조 챔버 내에서 15분 동안 유지되었으며, 그 후에 건조 챔버를 빠져 나갔다. 제2 단계에서의 진공 건조 단계, 및 상기 제2 단계 후 수행되는 기체 충전 단계를 수반하는 사이클을 10회 반복하였다.

[0150] 전극 조립체, 전극 및 세퍼레이터의 수분 함량

[0151] 전극 조립체, 전극 및 세퍼레이터의 수분 함량의 평균값은 각각 5 ppm, 9 ppm 및 13 ppm이었다.

[0152] 전극 박리 강도

[0153] 건조된 전극 조립체 내의 가공된 캐소드 및 애노드의 박리 강도의 평균값은 각각 0.45 N/cm 및 0.23 N/cm이었으며, 비가공된 캐소드 및 애노드의 박리 강도의 평균값은 각각 0.44 N/cm 및 0.21 N/cm이었다. 캐소드 및 애노드 둘 다, 높은 박리 강도를 보여주었고, 이는 건조 공정에 의해 대체로 영향을 받지 않은 채로 남아 있었다.

[0154] 파우치 타입 배터리의 조립

[0155] 파우치 전지는 건조된 전극 조립체를 알루미늄-플라스틱 라미네이트 필름으로 제작된 케이스에 패키징함으로써 조립하였다. 상기 캐소드 및 애노드 전극 판은 분리막에 의해 분리상태로 유지되고, 상기 케이스는 예비 성형되었다. 그 후, 수분 및 산소 함량이 1 ppm 미만의 고순도 아르곤 분위기에서, 패킹된 전극을 유지하는 케이스에 전해질을 충전시켰다. 상기 전해질은, 부피 비 1:1:1의 에틸렌 카보네이트(EC), 에틸 메틸 카보네이트(EMC), 및 디메틸 카보네이트(DMC)의 혼합물 중의 LiPF<sub>6</sub> 용액(1 M)이었다. 전해질을 충전한 후, 상기 파우치 전지를 진공 밀봉한 다음, 표준 정사각 형태의 편치 도구를 사용하여 기계적으로 가압하였다.

[0156] 실시예 2의 전기화학적 측정

I) 공칭 용량

[0158] 상기 전지는 3.0 V 및 4.2 V 사이의 배터리 테스터(BTS-5V20A, Neware Electronics Co. Ltd, China로부터 입수)에서 25°C에서 C/2의 전류 밀도로 정전류(galvanostat) 테스트하였다. 공칭 용량은 약 2.8 Ah였다.

[0159] II) 사이클 성능

[0160] 3.0 V 및 4.2 V 사이의 1 C의 일정 전류 속도(constant current rate)에서 충전 및 방전시킴으로써 파우치 전지의 사이클 성능을 테스트하였다. 사이클 성능의 테스트 결과를 도 2에 나타낸다. 562 사이클 후에 용량 유지율은 초기값의 약 94.7%였다. 전기화학적 테스트는 광범위한 전위에서 배터리의 양호한 전기화학적 안정성, 뿐만 아니라 뛰어난 사이클 성능을 보여준다.

[0161] 실시예 3

A) 양극 슬러리의 제조

[0163] 92 중량% 캐소드 물질(LiMn<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, HuaGuan HengYuan LiTech Co. Ltd., Qingdao, China로부터 입수), 도전제로서 4 중량% 카본 블랙(SuperP; Timcal Ltd, Bodio, Switzerland로부터 입수) 및 결합제로서 4 중량% 폴리비닐리텐 플루오라이드(PVDF; Solef® 5130, Solvay S.A., Belgium로부터 입수)를 혼합하고, 이들을 N-메틸-2-페롤리돈(NMP; ≥99%의 순도, Sigma-Aldrich, USA로부터 입수)에 분산시켜 고형분 함량이 50 중량%인 슬러리를 형성함으로써 양극 슬러리를 제조하였다. 상기 슬러리를 플래티너리 교반 혼합기에 의해 균질화하였다.

B) 양극의 제조

[0165] 전사 코터를 사용하여, 20 μm의 두께를 가진 알루미늄 호일의 양면에 상기 균질화된 슬러리를 약 2.4 mg/cm<sup>2</sup>의 면적 밀도로 코팅시켰다. 약 4 미터/분의 컨베이어 속도에서 작동되는 전사 코터의 서브-모듈로서의 24 미터 길이의 컨베이어 열풍 건조 오븐으로 상기 알루미늄 호일 상에 코팅된 필름을 6분 동안 건조시켜, 양극을 수득했다. 온도 프로그래밍 오븐으로 약 65°C의 입구 온도에서 약 80°C의 출구 온도로 온도가 점차 상승하도록 제어 할 수 있는 온도 변화도를 실현했다. 그 후에, 전극을 압축시켜 코팅의 밀도를 증가시키고, 상기 밀도는 2.83 g/cm<sup>3</sup>이었다. 전극총의 보이드 부피는 29%이다.

C) 음극의 제조

[0167] 90 중량%의 하드 카본(HC; 99.5%의 순도, Ruifute Technology Ltd., Shenzhen, Guangdong, China로부터 입수)을 1.5 중량%의 카르복시메틸 셀룰로스(CMC, BSH-12, DKS Co. Ltd., Japan로부터 입수) 및 결합제로서 3.5 중량%의 SBR(AL-2001, NIPPON A&L INC., Japan로부터 입수), 및 도전제로서 5 중량%의 카본 블랙을 탈이온수에 분산시켜 50 중량%의 고형분 함량을 가진 또 다른 슬러리를 형성함으로써, 음극 슬러리를 제조하였다. 전사 코터를 사용하여, 9 μm의 두께를 가진 구리 호일의 양면에 상기 슬러리를 약 15 mg/cm<sup>2</sup>의 면적 밀도로 코팅시켰

다. 약 10 미터/분의 컨베이어 속도로 작동되는 24 미터 길이의 컨베이어 열풍 건조 오븐으로 상기 구리 호일 상에 코팅된 필름을 약 50°C에서 2.4분 동안 건조시켜, 음극을 수득했다. 그 후에, 전극을 압축시켜 코팅의 밀도를 증가시키고, 상기 밀도는 1.8 g/cm<sup>3</sup>이었다. 전극층의 보이드 부피는 19%이다.

#### [0168] 실시예 4

##### [0169] 전극 조립체의 조립

건조 후, 실시예 3의 생성된 캐소드 필름 및 애노드 필름을 사용하여 각각의 전극 판으로 절단하여 캐소드 및 애노드를 각각 제조하였다. 습도 조절 없이 열린 공기 내에서 애노드, 캐소드, 및 양극과 음극 사이에 개재된 세퍼레이터를 적층함으로써 전극 조립체를 제조하였다. 세퍼레이터는 35 μm의 두께를 갖는 부직포 직물로 제작된 세라믹 코팅된 미소공성 막(SEPARION, Evonik Industries, Germany)이었다. 제1 단계 동안 전극 조립체를 글러브박스 내에서 진공 오븐에서  $1 \times 10^4$  Pa의 압력 하에 85°C에서 1.5시간 동안 건조하였다. 제2 단계 동안 전극 조립체를 진공 하에  $5 \times 10^3$  Pa에서 105°C에서 2.5시간 동안 추가로 건조하였다. 그 후에, 건조 챔버에 5 ppm의 수분 함량 및 90°C의 온도를 갖는 고온 건조한 공기를 충전시켰다. 고온 건조한 공기는 건조 챔버 내에서 15분 동안 유지되었으며, 그 후에 건조 챔버를 빠져 나갔다. 제2 단계에서의 진공 건조 단계, 및 상기 제2 단계 후 수행되는 기체 충전 단계를 수반하는 사이클을 5회 반복하였다.

##### [0171] 전극 조립체, 전극 및 세퍼레이터의 수분 함량

전극 조립체, 전극 및 세퍼레이터의 수분 함량의 평균값은 각각 13 ppm, 9 ppm 및 15 ppm이었다.

##### [0173] 전극 박리 강도

건조된 전극 조립체 내의 가공된 캐소드 및 애노드의 박리 강도의 평균값은 각각 0.31 N/cm 내지 0.18 N/cm이고, 비가공된 캐소드 및 애노드의 박리 강도의 평균값은 각각 0.32 N/cm 내지 0.17 N/cm이었다. 캐소드 및 애노드 둘 다 높은 박리 강도를 보여주었고, 이는 건조 공정에 의해 대체로 영향을 받지 않은 채로 남아 있었다.

#### [0175] 실시예 4의 전기화학적 측정

##### [0176] I) 공칭 용량

실시예 4에 기재된 방법에 의해 제조된 건조된 전극 조립체를 함유하는 파우치 전지를 실시예 2에 기재된 방법에 따라 조립하였다. 상기 전지는 3.0 V 및 4.2 V 사이의 배터리 테스터에서 25°C에서 C/2의 전류 밀도로 정전류 테스트하였다. 공칭 용량은 약 2.9 Ah였다.

##### [0178] II) 사이클 성능

3.0 V 및 4.2 V 사이의 1 C의 일정 전류 속도에서 충전 및 방전시킴으로써 파우치 전지의 사이클 성능을 테스트하였다. 사이클 성능의 테스트 결과를 도 3에 나타낸다. 1050 사이클 후에 용량 유지율은 초기값의 약 94.2%였다. 전기화학적 테스트는 광범위한 전위에서 배터리의 양호한 전기화학적 안정성, 뿐만 아니라 뛰어난 사이클 성능을 보여준다.

#### [0180] 실시예 5

##### [0181] A) 양극 슬러리의 제조

94 중량% 캐소드 물질 LiNi<sub>0.33</sub>Mn<sub>0.33</sub>Co<sub>0.33</sub>O<sub>2</sub>(Shenzhen Tianjiao Technology Co. Ltd., China로부터 입수), 도전제로서 3 중량% 카본 블랙(SuperP; Timcal Ltd, Bodio, Switzerland로부터 입수), 및 결합제로서 1.5 중량% 폴리아크릴산(PAA, #181285, Sigma-Aldrich, US로부터 입수) 및 1.5 중량% 폴리아크릴로니트릴(LA 132, Chengdu Indigo Power Sources Co., Ltd., China로부터 입수)을 혼합하고, 이들을 탈이온수에 분산시켜 고형분 함량이 50 중량%인 슬러리를 형성함으로써 양극 슬러리를 제조하였다. 상기 슬러리를 플래터너리 교반 혼합기에 의해 균질화하였다.

##### [0183] B) 양극의 제조

20 μm 두께의 알루미늄 호일의 양면 위에, 전사 코터를 사용하여 약 32 mg/cm<sup>2</sup>의 면적 밀도로, 상기 균질화된 슬러리를 코팅하였다. 상기 알루미늄 호일 상에 코팅된 필름을 약 6 미터/분의 컨베이어 속도로 작동되는 전사

코터의 서브 모듈로서의 24 미터 길이의 컨베이어 열풍 건조 오븐으로 4분 동안 건조시켜, 양극을 수득하였다. 온도 프로그래밍 오븐으로 60°C의 입구 온도에서 75°C의 출구 온도까지 온도가 점차 상승하도록 제어할 수 있는 온도 변화도를 실현했다. 그 후에, 전극을 압축시켜 코팅의 밀도를 증가시키고, 상기 밀도는 3.47 g/cm<sup>3</sup>이었다. 전극층의 보이드 부피는 13%이다.

#### [0185] C) 음극의 제조

90 중량%의 하드 카본, 5 중량%의 카본 블랙 및 5 중량%의 폴리아크릴로니트릴을 탈이온수에 분산시켜 50 중량%의 고형분 함량을 가진 슬러리를 형성함으로써, 음극 슬러리를 제조하였다. 전사 코터를 사용하여, 9 μm의 두께를 가진 구리 호일의 양면에 상기 슬러리를 약 15 mg/cm<sup>2</sup>의 면적 밀도로 코팅시켰다. 약 10 미터/분의 컨베이어 속도로 작동되는 24 미터 길이의 컨베이어 열풍 건조 오븐으로 상기 구리 호일 상에 코팅된 필름을 약 50°C에서 2.4분 동안 건조시켜, 음극을 수득했다.

#### [0187] 실시예 6

##### [0188] 전극 조립체의 조립

건조 후, 실시예 5의 생성된 캐소드 필름 및 애노드 필름을 사용하여 각각의 전극 판으로 절단하여 캐소드 및 애노드를 각각 제조하였다. 습도 조절 없이 열린 공기 내에서 애노드, 캐소드, 및 양극과 음극 사이에 개재된 세퍼레이터를 적층함으로써 전극 조립체를 제조하였다. 세퍼레이터는 20 μm의 두께를 갖는 폴리이미드로 제조된 미소공성 막(Jiangxi Advanced Nanofiber Technology Co., Ltd., China)이었다. 제1 단계 동안 전극 조립체를 글러브박스 내에서 진공 오븐에서  $1.5 \times 10^4$  Pa의 압력 하에 95°C에서 3.5시간 동안 건조하였다. 제2 단계 동안 전극 조립체를 진공 하에  $5 \times 10^3$  Pa에서 115°C에서 2시간 동안 추가로 건조하였다. 그 후에, 건조 챔버에 5 ppm의 수분 함량 및 85°C의 온도를 갖는 고온 건조한 공기를 충전시켰다. 고온 건조한 공기는 건조 챔버 내에서 15분 동안 유지되었으며, 그 후에 건조 챔버를 빠져 나갔다. 제2 단계에서의 진공 건조 단계, 및 상기 제2 단계 후 수행되는 기체 충전 단계를 수반하는 사이클을 11회 반복하였다.

##### [0190] 전극 조립체의 수분 함량

전극 조립체의 수분 함량의 평균값은 6 ppm이었다.

##### [0192] 전극 박리 강도

건조된 전극 조립체 내의 가공된 캐소드 및 애노드의 박리 강도의 평균값은 각각 0.51 N/cm 내지 0.28 N/cm이고, 비가공된 캐소드 및 애노드의 박리 강도의 평균값은 각각 0.49 N/cm 내지 0.25 N/cm이었다. 캐소드 및 애노드 둘 다 높은 박리 강도를 보여주었고, 이는 건조 공정에 의해 대체로 영향을 받지 않은 채로 남아 있었다.

#### [0194] 실시예 6의 전기화학적 측정

##### [0195] I) 공칭 용량

실시예 6에 기재된 방법에 의해 제조된 건조된 전극 조립체를 함유하는 파우치 전지를 실시예 2에 기재된 방법에 따라 조립하였다. 상기 전지는 3.0 V 및 4.2 V 사이의 배터리 테스터에서 25°C에서 C/2의 전류 밀도로 정전류 테스트하였다. 공칭 용량은 약 10 Ah였다.

##### [0197] II) 사이클 성능

3.0 V 및 4.2 V 사이의 1 C의 일정 전류 속도에서 충전 및 방전시킴으로써 파우치 전지의 사이클 성능을 테스트하였다. 사이클 성능의 테스트 결과를 도 4에 나타낸다. 601 사이클 후에 용량 유지율은 초기값의 약 94.3%였다. 전기화학적 테스트는 광범위한 전위에서 배터리의 양호한 전기화학적 안정성, 뿐만 아니라 뛰어난 사이클 성능을 보여준다.

#### [0199] 실시예 7

##### [0200] A) 양극 슬러리의 제조

91 중량% 캐소드 물질 LiFePO<sub>4</sub>(Xiamen Tungsten Co. Ltd, China로부터 입수), 도전체로서 5 중량% 카본 블랙 (SuperP; Timcal Ltd, Bodio, Switzerland로부터 입수), 및 결합제로서 4 중량% 폴리아크릴로니트릴(LA 132,

Chengdu Indigo Power Sources Co., Ltd., China로부터 입수)을 혼합하고, 이들을 탈이온수에 분산시켜 고형분 함량이 50 중량%인 슬러리를 형성함으로써 양극 슬러리를 제조하였다. 상기 슬러리를 플래터너리 교반 혼합기에 의해 균질화하였다.

[0202] B) 양극의 제조

30  $\mu\text{m}$  두께의 알루미늄 호일의 양면 위에, 전사 코터를 사용하여 약  $56 \text{ mg/cm}^2$ 의 면적 밀도로, 상기 균질화된 슬러리를 코팅하였다. 그 후에, 상기 알루미늄 호일 상에 코팅된 필름을 약 4 미터/분의 컨베이어 속도로 작동되는 전사 코터의 서브 모듈로서의 24 미터 길이의 컨베이어 열풍 건조 오븐으로 6분 동안 건조시켜, 양극을 수득하였다. 온도 프로그래밍 오븐으로  $75^\circ\text{C}$ 의 입구 온도에서  $90^\circ\text{C}$ 의 출구 온도까지 온도가 점차 상승하도록 제어할 수 있는 온도 변화도를 실현했다. 그 후에, 전극을 압축시켜 코팅의 밀도를 증가시키고, 상기 밀도는  $2.98 \text{ g/cm}^3$ 이었다. 전극층의 보이드 부피는 26%이다.

[0204] C) 음극의 제조

90 중량%의 하드 카본(HC; 99.5%의 순도, Ruijute Technology Ltd., China로부터 입수)을 결합제로서 1.5 중량% CMC(BSH-12, DKS Co. Ltd., Japan) 및 3.5 중량% SBR(AL-2001, NIPPON A&L INC., Japan) 및 도전제로서 5 중량%의 카본 블랙과 함께 혼합시키고 이를 탈이온수에 분산시켜 50 중량%의 고형분 함량을 가진 또 다른 슬러리를 형성함으로써, 음극을 제조하였다. 전사 코터를 사용하여, 9  $\mu\text{m}$ 의 두께를 가진 구리 호일의 양면에 상기 슬러리를 약  $15 \text{ mg/cm}^2$ 의 면적 밀도로 코팅시켰다. 그 후에, 약 10 미터/분의 컨베이어 속도로 작동되는 24 미터 길이의 컨베이어 열풍 건조 오븐으로 상기 구리 호일 상에 코팅된 필름을 약  $50^\circ\text{C}$ 에서 2.4분 동안 건조시켜, 음극을 수득했다.

[0206] 실시예 8

[0207] 전극 조립체의 조립

실시예 7의 생성된 캐소드 필름 및 애노드 필름을 사용하여 각각의 전극 판으로 절단하여 캐소드 및 애노드를 각각 제조하였다. 습도 조절 없이 열린 공기 내에서 애노드, 캐소드, 및 양극과 음극 사이에 개재된 세퍼레이터를 적층함으로써 전극 조립체를 제조하였다. 세퍼레이터는 부직포 직물로 제조된 세라믹 코팅된 미소공성 막(SEPARION, Evonik Industries, Germany)이었으며, 약  $35 \mu\text{m}$ 의 두께를 가졌다. 제1 단계 동안 전극 조립체를 글러브박스 내에서 진공 오븐에서  $7 \times 10^3 \text{ Pa}$ 의 압력 하에  $65^\circ\text{C}$ 에서 4시간 동안 건조하였다. 전극 조립체를 진공 하에  $1 \times 10^4 \text{ Pa}$ 에서  $115^\circ\text{C}$ 에서 1.2시간 동안 추가로 건조하였다. 그 후에, 건조 챔버에 5 ppm의 수분 함량 및  $100^\circ\text{C}$ 의 온도를 갖는 고온 건조한 공기를 충전시켰다. 고온 건조한 공기는 건조 챔버 내에서 5분 동안 유지되었으며, 그 후에 건조 챔버를 빠져 나갔다. 제2 단계에서의 진공 건조 단계, 및 상기 제2 단계 후 수행되는 기체 충전 단계를 수반하는 사이클을 8회 반복하였다.

[0209] 전극 조립체의 수분 함량

전극 조립체의 수분 함량의 평균값은 7 ppm이었다.

[0211] 전극 박리 강도

건조된 전극 조립체 내의 가공된 캐소드 및 애노드의 박리 강도의 평균값은 각각  $0.38 \text{ N/cm}$  내지  $0.24 \text{ N/cm}$ 이고, 비가공된 캐소드 및 애노드의 박리 강도의 평균값은 각각  $0.37 \text{ N/cm}$  내지  $0.22 \text{ N/cm}$ 이었다. 캐소드 및 애노드 둘 다 높은 박리 강도를 보여주었고, 이는 건조 공정에 의해 대체로 영향을 받지 않은 채로 남아 있었다.

[0213] 실시예 8의 전기화학적 측정

[0214] I) 공칭 용량

실시예 8에 기재된 방법에 의해 제조된 건조된 전극 조립체를 함유하는 파우치 전지를 실시예 2에 기재된 방법에 따라 조립하였다. 상기 전지는 3.0 V 및 4.2 V 사이의 배터리 테스터에서  $25^\circ\text{C}$ 에서 C/2의 전류 밀도로 정전류 테스트하였다. 공칭 용량은 약 9 Ah였다.

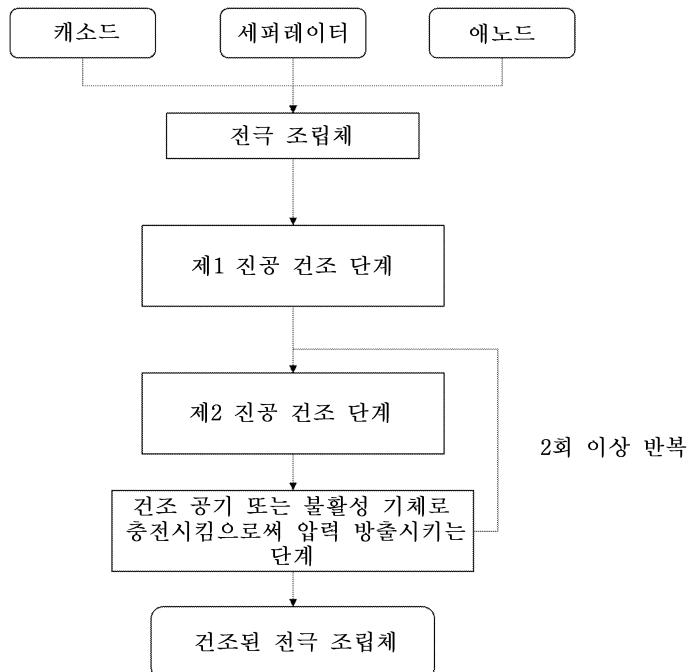
[0216] II) 사이클 성능

[0217] 3.0 V 및 4.2 V 사이의 1 C의 일정 전류 속도에서 충전 및 방전시킴으로써 파우치 전지의 사이를 성능을 테스트하였다. 사이를 성능의 테스트 결과를 도 5에 나타낸다. 452 사이클 후에 용량 유지율은 초기값의 약 94.2%였다. 전기화학적 테스트는 광범위한 전위에서 배터리의 양호한 전기화학적 안정성, 뿐만 아니라 뛰어난 사이를 성능을 보여준다.

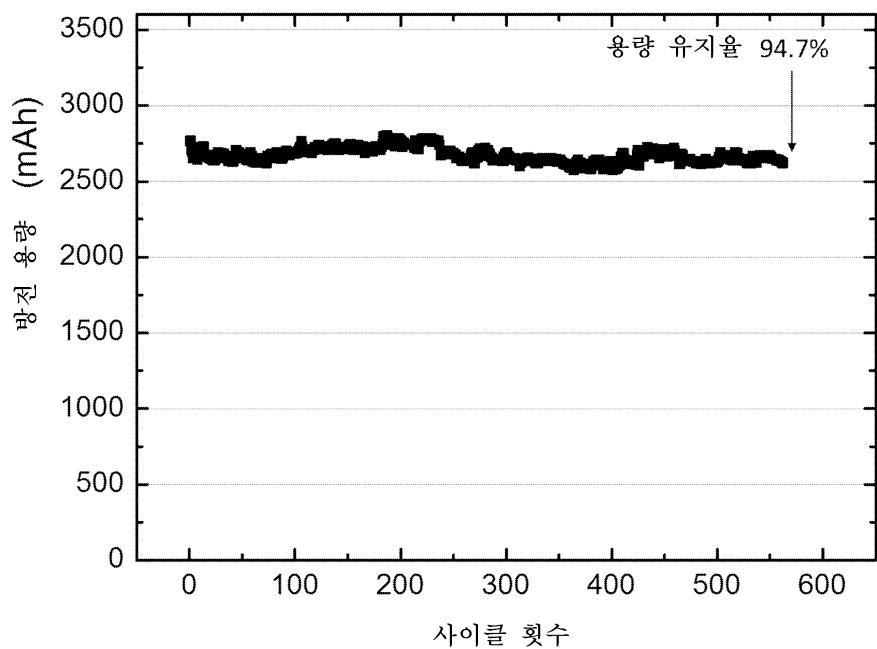
[0218] 본 발명은 제한된 수의 구현예와 관련하여 설명되었지만, 일 구현예의 구체적인 특징은 본 발명의 다른 구현예에 영향을 주어서는 안된다. 일부 구현예에서, 상기 방법은 본원에서 언급되지 않은 다수의 단계를 포함할 수 있다. 다른 구현예에서, 본 방법은 본원에 열거되지 않은 임의의 단계를 포함하지 않거나 실질적으로 포함하지 않는다. 설명된 구현예로부터의 변형 및 변경이 존재한다. 첨부된 청구범위는 본 발명의 범위 내에 속하는 것으로 모든 변형 및 변경을 포함하고자 하는 것이다.

## 도면

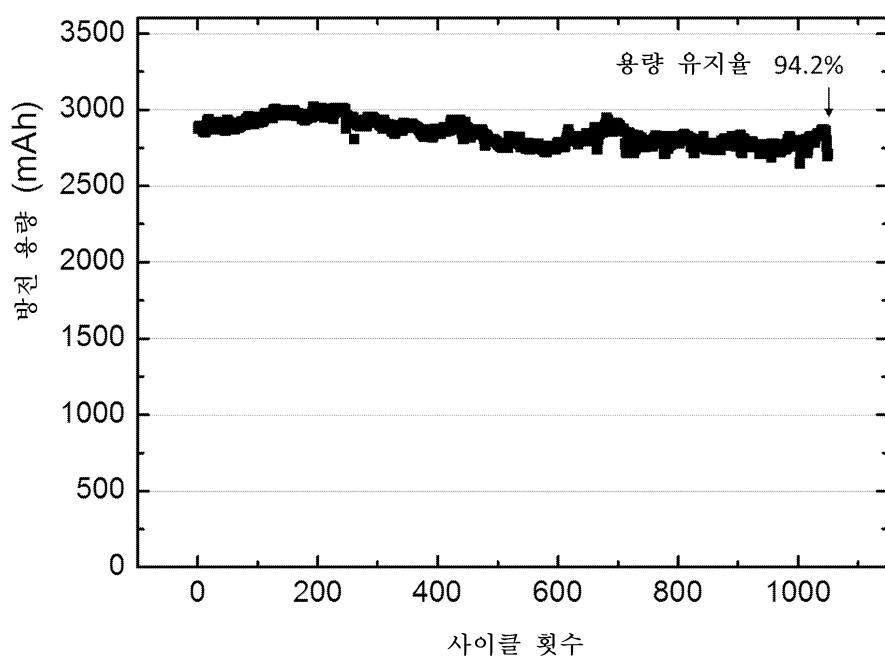
### 도면1



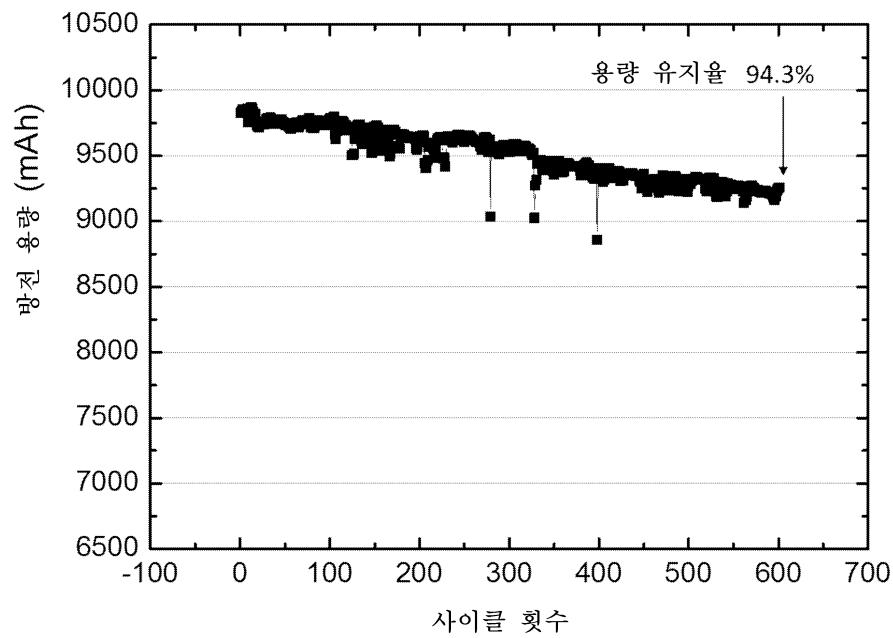
도면2



도면3



## 도면4



## 도면5

