

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구
국제사무국

(43) 국제공개일
2016년 7월 14일 (14.07.2016)



(10) 국제공개번호
WO 2016/111606 A1

- (51) 국제특허분류:
H01M 2/16 (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2016/000247
- (22) 국제출원일: 2016년 1월 11일 (11.01.2016)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보:
10-2015-0003622 2015년 1월 9일 (09.01.2015) KR
- (71) 출원인: 주식회사 엘지화학 (LG CHEM, LTD.)
[KR/KR]; 07336 서울시 영등포구 여의대로 128, Seoul (KR).
- (72) 발명자: 신현경 (SHIN, Hyun-Kyung); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG 화학기술연구원, Daejeon (KR). 김민형 (KIM, Min-Hyung); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG 화학기술연구원, Daejeon (KR). 성동욱 (SUNG, Dong-Wook); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG 화학기술연구원, Daejeon (KR). 성인혁 (SUNG, In-Hy-ouk); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG 화학기술연구원, Daejeon (KR). 이지은 (LEE, Ji-Eun); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG 화학기술연구원, Daejeon (KR). 이주성 (LEE, Joo-Sung); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG 화학기술연구원, Daejeon (KR).

(74) 대리인: 특허법인 필엔온지 (PHIL & ONZI INT'L PATENT & LAW FIRM); 06670 서울시 서초구 반포대로 63, 8층, Seoul (KR).

(81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

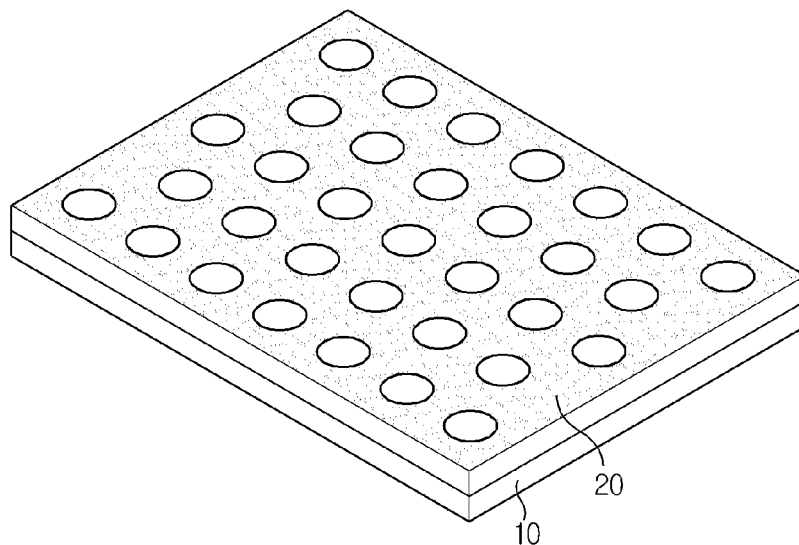
공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제 21 조(3))

[다음 쪽 계속]

(54) Title: HEAT-DIFFUSIBLE SEPARATION FILM AND SECONDARY CELL COMPRISING SAME

(54) 발명의 명칭: 열확산성 분리막 및 이를 포함하는 이차전지



(57) Abstract: Provided is a heat-diffusible separation film comprising: a separation film; and a porous heat-transfer film which is formed on at least one surface of the separation film.

(57) 요약서: 분리막 및 상기 분리막의 적어도 일면에 형성된 다공성 열전달 필름을 포함하는 열확산성 분리막이 제공된다.

WO 2016/111606 A1



-
- 청구범위 보정 기한 만료 전의 공개이며, 보정서를
접수하는 경우 그에 관하여 별도 공개함 (규칙
48.2(h))

명세서

발명의 명칭: 열확산성 분리막 및 이를 포함하는 이차전지 기술분야

- [1] 본 발명은 열확산성 분리막 및 이를 포함하는 이차전지에 관한 것으로, 더욱 상세하게는 전지 셀 내에서 국부적으로 발생하는 열을 빠르게 확산할 수 있는 열확산성 분리막 및 이를 포함하는 이차전지에 관한 것이다.
- [2] 본 출원은 2015년 1월 9일에 출원된 한국특허출원 제10-2015-0003622호에 기초한 우선권을 주장하며, 해당 출원의 명세서 및 도면에 개시된 모든 내용은 본 출원에 원용된다.

배경기술

- [3] 최근, 에너지 저장 기술에 대한 관심이 갈수록 높아지고 있다. 휴대폰, 캠코더 및 노트북, 나아가 전기 자동차의 에너지까지 적용 분야가 확대되면서 충방전이 가능한 이차전지, 특히 리튬 이차전지의 개발은 관심의 초점이 되고 있다.
- [4] 그러나, 이차전지의 다공성 분리막은 재료적 특성과 연신을 포함하는 제조 공정 상의 특성으로 인하여 약 100°C 이상의 온도에서 극심한 열 수축 거동을 보임으로써 양극과 음극 사이의 단락을 일으키는 문제점이 있다.
- [5] 리튬 이온 배터리 분야에서 통상적으로 사용되고 있는 분리막은 폴리에틸렌 또는 폴리프로필렌과 같은 폴리올레핀계 소재를 이용하고 있으며 대체적으로 25 μ m 정도의 두께를 갖는다.
- [6] 현재 상용화되고 있는 분리막 개발의 이슈로 열적 안정성을 꼽을 수 있다. 고분자 수지 분리막의 경우 120 후반에서 열수축이 시작되며 특히 권취 방식의 원통형/각형 전지의 경우 T/D 방향으로의 응력이 상대적으로 취약한 코어 부분에서 그 변형의 정도가 커서 고온에서의 장시간 노출시 분리막 수축으로 인한 양극 및/또는 음극 무지부의 접촉 및 발열, 발화 가능성이 존재하게 된다. 분리막의 열수축 개선을 위해 습식 코팅 방식으로 무기물-고분자 수지 복합체를 제조하기도 하지만, 분리막의 두께가 수 μ m 이상 증가하여 한정된 공간의 배터리 셀의 에너지 밀도 저하를 유발하는 문제가 있다.
- [7] 또한, 배터리 셀에서 국부적으로 열이 발생하여 일정 온도 이상이 되면 분리막이 녹으면서 양극과 음극 사이에 단락이 일어나게 되고, 이에 의해 2차적인 열이 발생하여 셀 안정성을 크게 저하시킬 수 있어, 분리막의 열적 안정성을 개선하기 위한 기술 개발이 꾸준히 요구되고 있다.

발명의 상세한 설명

기술적 과제

- [8] 본 발명은 상기와 같은 문제점을 해결하기 위하여, 다공성 열전달 필름을 사용하여, 분리막 상에 국부적으로 발생하는 열을 빠르게 확산할 수 시킬 수 있는 열확산성 분리막 및 이를 포함하는 이차전지를 제공한다.

- [9] 본 발명의 다른 목적 및 장점들은 하기 설명에 의해서 이해될 수 있을 것이다. 또한, 본 발명의 목적 및 장점들은 특허청구범위에 기재된 수단 또는 방법 및 이에 조합에 의해 실현될 수 있음을 쉽게 알 수 있을 것이다.

과제 해결 수단

- [10] 상기 과제를 해결하기 위하여, 본 발명의 일 측면에 따르면, 분리막 및 상기 분리막의 적어도 일면에 형성된 다공성 열전달 필름을 포함하는 열확산성 분리막이 제공된다.
- [11] 상기 다공성 열전달 필름은 두께방향으로의 열전도도보다 면방향으로의 열전도도가 더 큰 값을 가질 수 있다.
- [12] 상기 다공성 열전달 필름의 면방향으로의 열전도도는 두께방향으로의 열전도도의 20배 이상 큰 것일 수 있다.
- [13] 상기 다공성 열전달 필름은 내부의 기공들이 서로 연결된 형태로 존재하는 개포형(open cell type)의 구조일 수 있다.
- [14] 상기 다공성 열전달 필름은 내부의 기공들이 서로 독립적으로 존재하는 폐포형(close cell type)의 구조를 가질 수 있다.
- [15] 상기 다공성 열전달 필름은 흑연, 그래파이트, 탄소나노튜브 및 탄소나노섬유로 이루어진 군에서 선택되는 적어도 어느 하나로 형성될 수 있다.
- [16] 상기 분리막은 다공성 고분자 기재 단독으로 이루어지거나, 다공성 고분자 기재 및 상기 다공성 고분자 기재의 적어도 일면에서 형성된 다공성 코팅층을 포함할 수 있다.
- [17] 상기 다공성 코팅층은 무기물 입자와 바인더 고분자 입자로 이루어질 수 있다.
- [18] 본 발명의 다른 일 측면에 따르면 전술한 분리막을 포함하는 이차전지가 제공된다.

발명의 효과

- [19] 본 발명은 분리막 표면에 다공성 열전달 필름을 부착한 열확산성 분리막을 제공함으로써, 전지 셀 내에서 국부적으로 발생하는 열을 빠르게 확산시킬 수 있는 장점이 있다.
- [20] 또한, 최적화된 기공 형태를 가진 웹 형태의 다공성 열전달 필름을 제공함으로써, 열 확산 효과를 극대화할 수 있는 장점이 있다.
- [21] 아울러, 상기과 같은 분리막을 포함하여, 셀 안정성이 향상되며, 수명 특성이 개선된 이차전지를 제공할 수 있는 장점이 있다.

도면의 간단한 설명

- [22] 본 명세서에 첨부되는 도면들은 본 발명의 바람직한 실시예를 예시한 것이며, 전술한 발명의 내용과 함께 본 발명의 기술 사상을 더욱 잘 이해시키는 역할을 하는 것이므로, 본 발명은 그러한 도면에 기재된 사항에만 한정되어 해석되는 것은 아니다.
- [23] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 열확산성 분리막을 간략히 도시한

사시도이다.

발명의 실시를 위한 형태

- [24] 이하, 본 발명에 대하여 상세히 설명하기로 한다. 이에 앞서 본 명세서 및 특허청구범위에 사용된 용어 또는 단어는 통상적이거나 사전적인 의미로 한정 해석되어서는 안되며, 발명자는 그 자신의 발명을 가장 최선의 방법으로 설명하기 위해 용어의 개념을 적절하게 정의할 수 있다는 원칙에 입각하여 본 발명의 기술적 사상에 부합하는 의미와 개념으로 해석되어야만 한다. 따라서, 본 명세서상에 기재된 실시예와 도면에 도시된 구성은 본 발명의 가장 바람직한 일 실시예에 불과할 뿐이고, 본 발명의 기술적 사상을 모두 대변하는 것은 아니므로, 본 출원시점에 있어서, 이들을 대체할 수 있는 다양한 균등물과 변형예들이 있을 수 있음을 이해하여야 한다.
- [25] 도 1은 본 발명의 일 실시예에 따른 열확산성 분리막을 간략히 도시한 사시도이다.
- [26] 도 1을 참조하면, 본 발명의 일 실시예에 따른 열확산성 분리막은, 분리막(10) 및 상기 분리막(10)의 적어도 일면에 형성된 다공성 열전달 필름(20)을 포함한다.
- [27] 상기 분리막은 이차전지에 적용하여 음극과 양극의 단락의 방지하는 물질을 제한없이 사용할 수 있으나, 바람직하게는 다공성 고분자 기재일 수 있으며, 보다 상세하게는 폴리에틸렌, 폴리프로필렌과 같은 폴리올레핀으로 이루어진 다공성 고분자 필름일 수 있으며, 이러한 폴리올레핀 다공성 고분자 필름 기재는 예를 들어 80 내지 130°C의 온도에서 섰다운 기능을 발현한다.
- [28] 이때, 폴리올레핀 다공성 고분자 필름은 고밀도 폴리에틸렌, 선형 저밀도 폴리에틸렌, 저밀도 폴리에틸렌, 초고분자량 폴리에틸렌과 같은 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리부틸렌, 폴리펜텐 등의 폴리올레핀계 고분자를 각각 단독 또는 이들의 2종 이상 혼합하여 형성할 수 있다.
- [29] 또한, 상기 다공성 고분자 필름 기재는 폴리올레핀 외에 폴리에스테르 등의 다양한 고분자들을 이용하여 필름 형상으로 성형하여 제조될 수도 있다. 또한, 상기 다공성 고분자 필름 기재는 2층 이상의 필름층이 적층된 구조로 형성될 수 있으며, 각 필름층은 전술한 폴리올레핀, 폴리에스테르 등의 고분자 단독으로 또는 이들을 2종 이상 혼합한 고분자로 형성될 수도 있다.
- [30] 또한, 상기 다공성 고분자 필름 기재 및 다공성 부직포 기재는 상기와 같은 폴리올레핀계 외에 폴리에틸렌테레프탈레이트(polyethyleneterephthalate), 폴리부틸렌테레프탈레이트(polybutyleneterephthalate), 폴리에스테르(polyester), 폴리아세탈(polyacetal), 폴리아미드(polyamide), 폴리카보네이트(polycarbonate), 폴리이미드(polyimide), 폴리에테르에테르케톤(polyetheretherketone), 폴리에테르설폰(polyethersulfone), 폴리페닐렌옥사이드(polyphenyleneoxide), 폴리페닐렌설파이드(polyphenylenesulfide), 폴리에틸렌나프탈렌(polyethylenenaphthalene) 등을 각각 단독으로 또는 이들을

혼합한 고분자로 형성될 수 있다.

- [31] 또한, 상기 다공성 기재의 두께는 특별히 제한되지 않으나, 5 내지 $50\ \mu\text{m}$ 가 바람직하고, 다공성 기재에 존재하는 기공의 크기는 전극접착층의 고분자 바인더 섬유보다 작으면 되고, 바람직하게는 0.001 내지 $50\ \mu\text{m}$ 이며, 기공도는 01 내지 99%인 것이 바람직하다.
- [32] 아울러, 본 발명에 적용할 수 있는 분리막으로 전술한 다공성 고분자 기재의 적어도 일면에 다공성 코팅층을 더 포함할 수 있으며, 상기 다공성 코팅층은 무기물 입자 및 바인더 고분자를 포함할 수 있다.
- [33] 상기 무기물 입자들은 충전되어 서로 접촉된 상태에서 상기 바인더 고분자에 의해 서로 결합되고, 이로 인해 무기물 입자들 사이에 인터스티셜 볼륨(interstitial volume)이 형성되고, 상기 무기물 입자 사이의 인터스티셜 볼륨(interstitial volume)은 빈 공간이 되어 기공을 형성한다.
- [34] 즉, 바인더 고분자는 무기물 입자들이 서로 결합된 상태를 유지할 수 있도록 이들을 서로 부착하며, 예를 들어 바인더 고분자가 무기물 입자 사이를 연결 및 고정 시키고 있다. 또한, 상기 다공성 코팅층의 기공은 무기물 입자들 간의 인터스티셜 볼륨(interstitial volume)이 빈 공간이 되어 형성된 기공이고, 이는 무기물 입자들에 의한 충전 구조(closed packed or densely packed)에서 실질적으로 면접하는 무기물 입자들에 의해 한정되는 공간이다. 이러한 다공성 코팅층의 기공을 통하여 전자를 작동시키기 위하여 필수적인 리튬이온이 이동하는 경로를 제공할 수 있다.
- [35] 상기 무기물 입자는 전기화학적으로 안정하기만 하면 특별히 제한되지 않는다. 즉 본 발명에서 사용할 수 있는 무기물 입자는 적용되는 전기화학소자의 작동 전압 범위(예컨대, Li/Li^+ 기준으로 0~5 V)에서 산화 및/또는 환원 반응이 일어나지 않는 것이면 특별히 제한되지 않는다. 특히, 무기물 입자로서 유전율이 높은 무기물 입자를 사용하는 경우, 액체 전해질 내 전해질 염, 예컨대 리튬염의 해리도 증가에 기여하여 전해액의 이온 전도도를 향상시킬 수 있다.
- [36] 전술한 이유들로 인해, 상기 무기물 입자는 유전율 상수가 5 이상이고, 바람직하게는 10 이상인 고유전율 무기물 입자 또는 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기물 입자 또는 이들의 혼합물을 포함할 수 있다.
- [37] 유전율 상수가 5 이상인 무기물 입자의 비제한적인 예로는 BaTiO_3 , $\text{Pb}(\text{Zr}_x\text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ (PZT, $0 < x < 1$), $\text{Pb}_{1-x}\text{La}_x\text{Zr}_{1-y}\text{Ti}_y\text{O}_3$ (PLZT, $0 < x < 1$, $0 < y < 1$), $(1-x)\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $x\text{PbTiO}_3$ (PMN-PT, $0 < x < 1$), 하프니아(HfO_2), SrTiO_3 , SnO_2 , CeO_2 , MgO , NiO , CaO , ZnO , ZrO_2 , SiO_2 , Y_2O_3 , Al_2O_3 , SiC 및 TiO_2 로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물과 같은 무기물 입자들은 유전율 상수가 100 이상인 고유전율 특성을 나타낼 뿐만 아니라, 일정 압력을 인가하여 인장 또는 압축하는 경우 전하가 발생하여 양쪽 면 간에 전위차가 발생하는 압전성(piezoelectricity)을 가짐으로써, 외부 충격에 의한 양 전극의 내부 단락 발생을 방지하여 전기화학소자의 안정성 향상을 도모할 수 있다.

- [38] 또한, 상기 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기물 입자는 리튬 원소를 함유하되, 리튬을 저장하지 않고 리튬 이온을 이동시키는 기능을 갖는 무기물 입자를 의미한다. 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기물 입자의 비제한적인 예로는 리튬포스페이트(Li_3PO_4), 리튬티타늄포스페이트($\text{Li}_x\text{Ti}_y(\text{PO}_4)_3, 0 < x < 2, 0 < y < 3$), 리튬알루미늄티타늄포스페이트($\text{Li}_x\text{Al}_y\text{Ti}_z(\text{PO}_4)_3, 0 < x < 2, 0 < y < 1, 0 < z < 3$), $(\text{LiAlTiP})_x\text{O}_y$ 계열 글래스(glass)($0 < x < 4, 0 < y < 13$), 리튬란탄티타네이트($\text{Li}_x\text{La}_y\text{TiO}_3, 0 < x < 2, 0 < y < 3$), 리튬게르마니움티오포스페이트($\text{Li}_x\text{Ge}_y\text{P}_z\text{S}_w, 0 < x < 4, 0 < y < 1, 0 < z < 1, 0 < w < 5$), 리튬나이트라이드($\text{Li}_x\text{N}_y, 0 < x < 4, 0 < y < 2$), $\text{SiS}_2(\text{Li}_x\text{Si}_y\text{S}_z, 0 < x < 3, 0 < y < 2, 0 < z < 4)$ 계열 글래스 및 $\text{P}_2\text{S}_5(\text{Li}_x\text{P}_y\text{S}_z, 0 < x < 3, 0 < y < 3, 0 < z < 7)$ 계열 글래스 또는 이들의 혼합물 등이 있으며, 전술한 고유전율 무기물 입자와 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기물 입자 등을 혼용할 경우 이들의 상승 효과는 배가될 수 있다.
- [39] 상기 다공성 코팅층의 무기물 입자 크기는 제한이 없으나, 균일한 두께의 코팅층 형성 및 적절한 공극률을 위하여, 가능한 한 0.001 내지 10 μm 범위인 것이 바람직하다.
- [40] 상기 다공성 코팅층을 형성하는 고분자 바인더는 무기물 입자와 함께 다공성 코팅층 형성에 사용될 수 있는 바인더는 제한없이 사용할 수 있으나, 바람직하게는 유기계 바인더 고분자 또는 수계 바인더 고분자일 수 있다.
- [41] 상기 다공성 열전달 필름은 분리막의 일면 또는 양면에 형성될 수 있다.
- [42] 이때, 전술한 바와 같이 분리막이 다공성 고분자 기재 및 다공성 코팅층으로 이루어진 경우, 상기 다공성 열전달 필름은 상기 다공성 코팅층의 표면에 형성될 수 있다.
- [43] 또한, 본 발명에 적용할 수 있는 다공성 열전달 필름은 흑연, 그래파이트, 탄소나노튜브 및 탄소나노섬유로 이루어진 군에서 선택되는 적어도 어느 하나로 형성될 수 있고, 바람직하게는 그래파이트로 형성될 수 있다.
- [44] 본 발명에 적용할 수 있는 다공성 열전달 필름은 전지 셀 내에서 발생하는 열을 빠르게 확산시켜, 양극과 음극이 단락되는 것을 방지하기 위한 것이다.
- [45] 따라서, 상기 다공성 열전달 필름의 두께방향으로 열전도도보다 면방향으로 열전도도가 더 큰 값을 가져야 하며, 이로 인해 상기 다공성 열전달 필름은 전지 셀 내의 열이 분리막으로 확산 되는 것을 막을 수 있다.
- [46] 상세하게는 상기 다공성 열전달 필름의 면 방향으로의 열 전도도가 두께방향보다 20배 이상 큰 값을 가지는 것이 바람직하며, 이는 전술한 열 확산 효율을 증가시키기 위함이다.
- [47] 본 발명의 일 실시예 따른 열확산성 분리막의 다공성 열전달 필름은 내부에 다공성의 재질로 이루어진다. 이러한 다공성 열전달 필름은 개포형(開泡形, open cell type)의 구조를 가지도록 형성될 수도 있고, 폐포형(閉泡形, closed cell type)의 구조를 가지도록 형성될 수도 있다. 개포형 구조는 다공성 열전달 시트 내부의 기공들이 서로 연결된 형태로 존재하는 반면, 폐포형 구조에서는 다공성 열전달

시트 내부의 기공들이 연결되지 않고 독립적으로 존재한다.

[48] 본 발명의 다른 일 실시예에 따라 전술한 열확산성 분리막을 포함하는 이차전지가 제공된다.

[49] 상기 이차전지는 열확산성 분리막을 사이에 두고 양극, 음극이 적층된 구조일 수 있다.

[50] 상기 양극은 전지 셀을 구성할 수 있는 물질은 제한없이 적용 가능하고, 바람직하게는 양극활물질이 코팅된 전극집전체로 이루어질 수 있다.

[51] 이때, 상기 양극활물질은 LiCoO_2 , LiNiO_2 , LiMn_2O_4 , LiCoPO_4 , LiFePO_4 , LiNiMnCoO_2 및 $\text{LiNi}_{1-x-yz}\text{Co}_x\text{M1}_y\text{M2}_z\text{O}_2$ (M1 및 M2는 서로 독립적으로 Al, Ni, Co, Fe, Mn, V, Cr, Ti, W, Ta, Mg 및 Mo로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나이고, x, y 및 z는 서로 독립적으로 산화물 조성 원소들의 원자 분율로서 $0 \leq x < 0.5$, $0 \leq y < 0.5$, $0 \leq z < 0.5$, $0 < x+y+z = 1$ 임) 등으로 이루어진 활물질 입자를 사용하여 제조할 수 있다.

[52] 또한, 상기 음극 역시 전지 셀을 구성할 수 있는 물질은 제한없이 적용 가능하고, 바람직하게는 음극활물질이 코팅된 전극집전체로 이루어질 수 있다.

[53] 상기 음극활물질은 천연흑연, 인조흑연과 같은 탄소질재료; 리튬 함유 티타늄 복합 산화물(LTO), Si, Sn, Li, Zn, Mg, Cd, Ce, Ni 또는 Fe인 금속류(Me); 상기 금속류(Me)로 구성된 합금류; 상기 금속류(Me)의 산화물(MeO_x); 및 상기 금속류(Me)와 탄소와의 복합체 등으로 이루어진 활물질 입자를 사용하여 제조할 수 있다.

[54] 아울러, 양극 또는 음극의 전극집전체는 스테인리스스틸, 알루미늄, 니켈, 티탄, 소성탄소, 구리; 카본, 니켈, 티탄 또는 은으로 표면 처리된 스테인리스스틸; 알루미늄-카드뮴 합금 등으로 제조된 것을 사용할 수 있다.

[55] 이하, 본 발명을 구체적으로 설명하기 위하여 실시예를 들어 상세히 설명하기로 한다. 그러나 본 발명에 따른 실시예들은 여러가지 다른 형태로 변형될 수 있으며, 본 발명의 범위가 아래에서 상술하는 실시예들에 한정되는 것으로 해석되어서는 안된다. 본 발명의 실시예들은 당업계에서 평균적인 지식을 가지는 자에게 본 발명을 보다 완전하게 설명하기 위해서 제공되는 것이다.

[56]

[57] [실시예 1]

[58] 두께가 약 $20\mu\text{m}$ 인 흑연 시트를 펀칭 기계로 지름 $1000\mu\text{m}$ 의 원형 구멍을 뚫어 기공도가 70%가 되게 하였다. PVDF계 바인더를 사용하여 폴리에틸렌 분리막/흑연시트/양극을 접착시키고, CMC(carboxymethyl cellulose) 계열 바인더를 이용하여 흑연시트와 양극이 접착되지 않은 분리막의 다른 면에 음극을 접착시켰다. 음극/분리막/흑연시트/양극과 EC와 LiPF_6 를 주요 성분으로 하는 전해액을 함께 사용하여 $27\text{cm} \times 10\text{cm} \times 0.5\text{cm}$ 의 리튬이온전지 셀을 제작하였다. 과열 시험과 못 관통 시험을 진행하여 시간에 따른 셀 전압 변화와

국부(세 지점 : 중앙 지점과 그로부터 5cm 떨어져 있는 두 지점)온도의 시간에 따른 변화를 측정하였다.

[59]

[60] [실시예 2]

[61] 실시예 1에서 사용한 흑연 시트 대신 박리 흑연을 사용하였다. 이때, 박리 흑연은 팽창흑연을 고온에서 급속 가열과 초음파 처리를 통하여 제조하였으며, 두께가 약 40nm인 박리흑연은 PVDF계 바인더와 함께 폴리에틸렌 분리막에 부착하였다. (용매에 박리흑연과 바인더를 넣어 교반 후 분리막 위에 코팅한다) 박리 흑연이 붙은 면에 양극을 접착시키고, 박리 흑연이 붙지 않은 분리막의 다른 면에 음극을 접착시킨 후, 음극/분리막/박리흑연/양극과 EC와 LiPF₆를 주요 성분으로 하는 전해액을 함께 사용하여 27cm x 10cm x 0.5cm 리튬이온전지 셀을 제작하여, 실시예 1과 같이 과열 시험과 못 관통 시험을 진행하였다.

[62]

[63] [비교예 1]

[64] 음극/분리막/양극과 EC와 LiPF₆를 주요 성분으로 하는 전해액을 함께 사용하여 27cm x 10cm x 0.5cm 리튬이온전지 셀을 제작하여, 실시예 1과 같이 과열 시험과 못 관통 시험을 진행하였다.

[65]

[66] 과열시험/못 관통시험의 전압과 국부 온도 변화 측정

[67] 비교예 1의 리튬이온전지 셀은 실시예 1, 2에 비해 셀 전압의 감소가 빠르고, 위치에 따른 온도 편차가 크며, 온도가 빠르게 증가하는데 반해, 실시예 1, 2는 흑연시트와 박리흑연이 전지 셀 내에서 국부적으로 발생한 열을 먼 방향으로 빠르게 확산시킴으로써, 온도 편차가 낮게 측정된다.

[68]

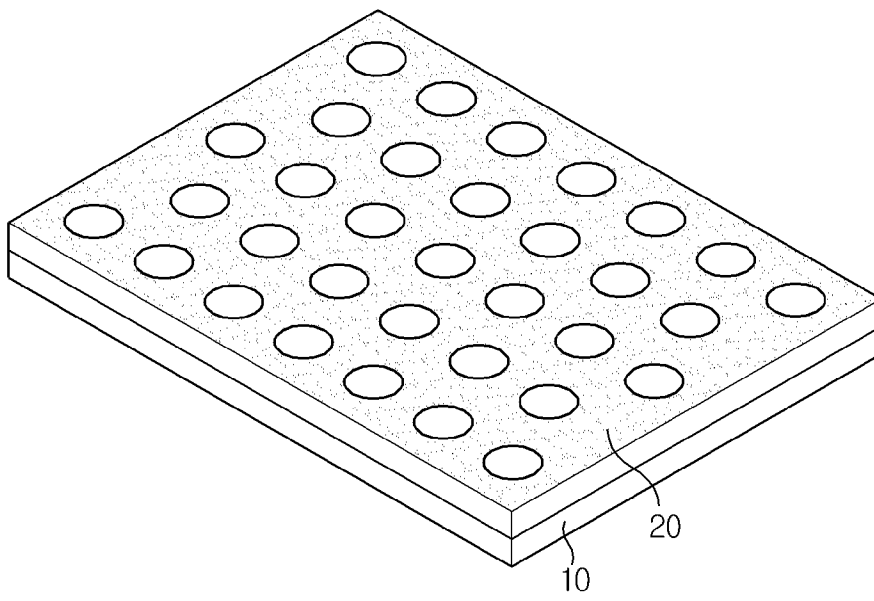
[69] 이상과 같이, 본 발명은 비록 한정된 실시예와 도면에 의해 설명되었으나, 본 발명은 이것에 의해 한정되지 않으며, 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에 의해 본 발명의 기술사상과 아래에 기재될 특허청구범위의 균등범위 내에서 다양한 수정 및 변형이 가능함을 물론이다.

[70]

청구범위

- [청구항 1] 분리막 및 상기 분리막의 적어도 일면에 형성된 다공성 열전달 필름을 포함하는 열확산성 분리막.
- [청구항 2] 제 1항에 있어서,
상기 다공성 열전달 필름은 두께방향으로의 열전도도보다 면방향으로의 열전도도가 더 큰 값을 갖는 것을 특징으로 하는 열확산성 분리막.
- [청구항 3] 제 1항에 있어서,
상기 다공성 열전달 필름의 면방향으로의 열전도도는 두께방향으로의 열전도도보다 20배 이상 큰 것을 특징으로 하는 열확산성 분리막.
- [청구항 4] 제 1항에 있어서,
상기 다공성 열전달 필름은 내부의 기공들이 서로 연결된 형태로 존재하는 개포형(open cell type)의 구조를 갖는 것을 특징으로 하는 열확산성 분리막.
- [청구항 5] 제 1항에 있어서,
상기 다공성 열전달 필름은 내부의 기공들이 서로 독립적으로 존재하는 폐포형(close cell type)의 구조를 갖는 것을 특징으로 하는 열확산성 분리막.
- [청구항 6] 제 1항에 있어서,
상기 다공성 열전달 필름은 흑연, 그래파이트, 탄소나노튜브 및 탄소나노섬유로 이루어진 군에서 선택되는 적어도 어느 하나로 형성되는 것을 특징으로 하는 열확산성 분리막.
- [청구항 7] 제 1항에 있어서,
상기 분리막은 다공성 고분자 기재 단독으로 이루어지거나, 다공성 고분자 기재 및 상기 다공성 고분자 기재의 적어도 일면에서 형성된 다공성 코팅층을 포함하는 것을 특징으로 하는 열확산성 분리막.
- [청구항 8] 제 7항에 있어서,
상기 다공성 코팅층은 무기물 입자와 바인더 고분자 입자로 이루어진 것을 특징으로 하는 열확산성 분리막.
- [청구항 9] 제 1항 내지 제 8항 중 어느 한 항의 열확산성 분리막을 포함하는 이차전지.

[Fig. 1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2016/000247**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER*****H01M 2/16(2006.01)i***

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01M 2/16; B32B 9/00; H05K 7/20; H01L 23/36; C01B 31/04; H01M 10/052; C08J 5/22

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Korean Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Japanese Utility models and applications for Utility models: IPC as above

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

eKOMPASS (KIPO internal) & Keywords: membrane, porous heat transfer film, thermal conductivity, open cell type, closed cell type, carbon, carbon nano tube

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	KR 10-2010-0073753 A (HYOSUNG CORPORATION) 01 July 2010 See abstract; paragraphs [0007] and [0028]-[0031]; and claims 1-7.	1-9
Y	JP 2010-171030 A (KANEKA CORP.) 05 August 2010 See paragraphs [0031]-[0040]; and claims 1 and 2.	1-9
A	JP 2013-224258 A (KANEKA CORP.) 31 October 2013 See paragraphs [0019]-[0030]; and claims 1-7.	1-9
A	KR 10-2013-0099592 A (CHEIL INDUSTRIES INC.) 06 September 2013 See abstract; paragraphs [0012]-[0021]; and claims 1-5.	1-9
A	JP 2014-133669 A (KANEKA CORP.) 24 July 2014 See paragraphs [0033]-[0038]; and claims 1-6.	1-9



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“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)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“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

“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

“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

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

28 APRIL 2016 (28.04.2016)

Date of mailing of the international search report

29 APRIL 2016 (29.04.2016)

Name and mailing address of the ISA/KR

Korean Intellectual Property Office
Government Complex-Daejeon, 189 Seonsa-ro, Daejeon 302-701,
Republic of Korea

Facsimile No. 82-42-472-7140

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/KR2016/000247

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
KR 10-2010-0073753 A	01/07/2010	NONE	
JP 2010-171030 A	05/08/2010	JP 2015-019085 A	29/01/2015
JP 2013-224258 A	31/10/2013	JP 5624647 B2	12/11/2014
KR 10-2013-0099592 A	06/09/2013	CN 103296236 A	11/09/2013
		EP 2634836 A1	04/09/2013
		EP 2634836 B1	01/10/2014
		KR 10-1515357 B1	28/04/2015
		US 2013-0224555 A1	29/08/2013
JP 2014-133669 A	24/07/2014	NONE	

A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))

H01M 2/16(2006.01)i

B. 조사된 분야

조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재)

H01M 2/16; B32B 9/00; H05K 7/20; H01L 23/36; C01B 31/04; H01M 10/052; C08J 5/22

조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌

한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC

국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우))

eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 분리막, 다공성 열전달 필름, 열전도도, 개포형, 폐포형, 흑연, 탄소나노튜브

C. 관련 문헌

카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
Y	KR 10-2010-0073753 A (주식회사 효성) 2010.07.01 요약; 단락 [0007] 및 [0028]-[0031]; 및 청구항 1-7 참조.	1-9
Y	JP 2010-171030 A (KANEKA CORP.) 2010.08.05 단락 [0031]-[0040]; 및 청구항 1 및 2 참조.	1-9
A	JP 2013-224258 A (KANEKA CORP.) 2013.10.31 단락 [0019]-[0030]; 및 청구항 1-7 참조.	1-9
A	KR 10-2013-0099592 A (제일모직주식회사) 2013.09.06 요약; 단락 [0012]-[0021]; 및 청구항 1-5 참조.	1-9
A	JP 2014-133669 A (KANEKA CORP.) 2014.07.24 단락 [0033]-[0038]; 및 청구항 1-6 참조.	1-9

☐ 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다.

☒ 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.

* 인용된 문헌의 특별 카테고리:

“A” 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌

“T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌

“E” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌

“X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신규성 또는 진보성이 없는 것으로 본다.

“L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌

“Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다.

“O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌

“&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌

“P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌

국제조사의 실제 완료일

2016년 04월 28일 (28.04.2016)

국제조사보고서 발송일

2016년 04월 29일 (29.04.2016)

ISA/KR의 명칭 및 우편주소



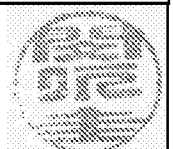
대한민국 특허청
(35208) 대전광역시 서구 청사로 189,
4동 (둔산동, 정부대전청사)

팩스 번호 +82-42-481-8578

심사관

민인규

전화번호 +82-42-481-3326



국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2010-0073753 A	2010/07/01	없음	
JP 2010-171030 A	2010/08/05	JP 2015-019085 A	2015/01/29
JP 2013-224258 A	2013/10/31	JP 5624647 B2	2014/11/12
KR 10-2013-0099592 A	2013/09/06	CN 103296236 A	2013/09/11
		EP 2634836 A1	2013/09/04
		EP 2634836 B1	2014/10/01
		KR 10-1515357 B1	2015/04/28
		US 2013-0224555 A1	2013/08/29
JP 2014-133669 A	2014/07/24	없음	