

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2017-530528

(P2017-530528A)

(43) 公表日 平成29年10月12日 (2017. 10. 12)

(51) Int. Cl.		F I			テーマコード (参考)
HO 1 M 4/04 (2006. 01)		HO 1 M 4/04	Z		5 H O 5 O
HO 1 M 4/62 (2006. 01)		HO 1 M 4/62	Z		
HO 1 M 4/02 (2006. 01)		HO 1 M 4/02	Z		
HO 1 M 4/139 (2010. 01)		HO 1 M 4/139			
HO 1 M 4/13 (2010. 01)		HO 1 M 4/13			

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 19 頁)

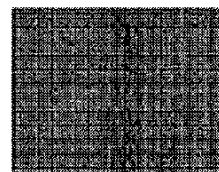
(21) 出願番号	特願2017-516998 (P2017-516998)	(71) 出願人	500239823 エルジー・ケム・リミテッド
(86) (22) 出願日	平成27年10月2日 (2015. 10. 2)		大韓民国 07336 ソウル, ヨンドウ
(85) 翻訳文提出日	平成29年3月29日 (2017. 3. 29)		ンボーグ, ヨイードロ 128
(86) 国際出願番号	PCT/KR2015/010471	(74) 代理人	100110364
(87) 国際公開番号	W02016/053063		弁理士 実広 信哉
(87) 国際公開日	平成28年4月7日 (2016. 4. 7)	(74) 代理人	100122161
(31) 優先権主張番号	10-2014-0133472		弁理士 渡部 崇
(32) 優先日	平成26年10月2日 (2014. 10. 2)	(72) 発明者	ド・ファ・ジュン
(33) 優先権主張国	韓国 (KR)		大韓民国・テジョン・34122・ユソン
			ーグ・ムンジーロ・188・エルジー・ケ
			ム・リサーチ・パーク

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 ゴム系バインダーを含む正極活物質スラリー及びこれから製造された正極

(57) 【要約】

本発明は、ゴム系バインダーを一定の割合で含むことにより、非結晶化度が調節された正極活物質スラリー、これから形成された正極活物質層を含む正極、及び前記正極を含むリチウム二次電池に関する。これに係る正極活物質スラリーから形成された正極活物質層は柔軟性及び圧延性が向上可能であり、これを含む正極を利用したリチウム二次電池の内部短絡、高電圧不良、容量低下などが抑えられ得る。

AA
실시예 1BB
비교예 1AA ... Example 1
BB ... Comparative example 1

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

正極活物質、バインダー及び導電材を含み、

前記バインダーは、バインダーの全体重量に対し 20 重量%から 70 重量%のゴム系バインダーを含むことを特徴とする正極活物質スラリー。

【請求項 2】

前記バインダーは、前記正極活物質 100 重量部に対し 1 重量部から 5 重量部で含まれることを特徴とする請求項 1 に記載の正極活物質スラリー。

【請求項 3】

前記バインダーは、フッ素系バインダー及びゴム系バインダーを含むことを特徴とする請求項 1 に記載の正極活物質スラリー。

10

【請求項 4】

前記フッ素系バインダー及びゴム系バインダーは、3 : 7 から 8 : 2 の重量比を有することを特徴とする請求項 3 に記載の正極活物質スラリー。

【請求項 5】

ゴム系バインダーは、ニトリルーブタジエンゴム、水和されたニトリルーブタジエンゴム、スチレンーブタジエンゴム及び水和されたスチレンーブタジエンゴムからなる群より選択される 1 種以上であることを特徴とする請求項 1 に記載の正極活物質スラリー。

【請求項 6】

前記フッ素系バインダーは、置換または非置換ポリビニリデンフルオリド (P V D F)、ビニリデンフルオリドヘキサフルオロプロピレンコポリマー (P V D F - c o - H E P)、クロロトリフルオロエチレン (C F T F) 及びポリテトラフルオロエチレン (P T F E) からなる群より選択される 1 種以上であることを特徴とする請求項 3 に記載の正極活物質スラリー。

20

【請求項 7】

前記導電材は第 1 導電材及び第 2 導電材を含み、

前記第 1 導電材は黒鉛系導電材であり、

前記第 2 導電材は炭素ナノチューブ、炭素ナノ繊維またはこれらの組み合わせであることを特徴とする請求項 1 に記載の正極活物質スラリー。

【請求項 8】

前記黒鉛系導電材は、カーボンブラック系物質であることを特徴とする請求項 7 に記載の正極活物質スラリー。

30

【請求項 9】

前記黒鉛系導電材は、立体形に発達されている形状または球形状であることを特徴とする請求項 7 に記載の正極活物質スラリー。

【請求項 10】

前記黒鉛系導電材は、比表面積が $10 \text{ m}^2 / \text{g}$ から $300 \text{ m}^2 / \text{g}$ であることを特徴とする請求項 7 に記載の正極活物質スラリー。

【請求項 11】

前記第 1 導電材及び第 2 導電材は、5 : 5 から 9 : 1 の重量比を有することを特徴とする請求項 7 に記載の正極活物質スラリー。

40

【請求項 12】

1) 第 1 導電材及び第 1 バインダーを混合して前分散溶液を製造する段階；

2) 前記前分散溶液に第 2 導電材及び第 2 バインダーを添加し、混合して導電材及びバインダーの混合溶液を製造する段階；

3) 前記混合溶液に正極活物質を添加して混合する段階を含む正極活物質スラリーの製造方法。

【請求項 13】

前記第 1 導電材は黒鉛系導電材であり、

前記黒鉛系導電材はカーボンブラック系物質であり、比表面積が $10 \text{ m}^2 / \text{g}$ から 30

50

0 m² / gであることを特徴とする請求項 1 2 に記載の正極活物質スラリーの製造方法。

【請求項 1 4】

前記第 2 導電材は、炭素ナノチューブ、炭素ナノ繊維またはこれらの組み合わせであることを特徴とする請求項 1 2 に記載の正極活物質スラリーの製造方法。

【請求項 1 5】

前記第 1 導電材と第 2 導電材は、前記正極活物質スラリー内で前記第 1 導電材と第 2 導電材が 5 : 5 から 9 : 1 の重量比を有する量で用いることを特徴とする請求項 1 2 に記載の正極活物質スラリーの製造方法。

【請求項 1 6】

前記第 1 バインダーはゴム系バインダーであり、

10

前記ゴム系バインダーは、ニトリル-ブタジエンゴム、水和されたニトリル-ブタジエンゴム、スチレン-ブタジエンゴム及び水和されたスチレン-ブタジエンゴムからなる群より選択される 1 種以上であることを特徴とする請求項 1 2 に記載の正極活物質スラリーの製造方法。

【請求項 1 7】

前記第 2 バインダーはフッ素系バインダーであり、

前記フッ素系バインダーは、置換または非置換ポリビニリデンフルオリド (P V D F)、ビニリデンフルオリド-ヘキサフルオロプロピレンコポリマー (P V D F - c o - H E P)、クロロトリフルオロエチレン (C F T F) 及びポリテトラフルオロエチレン (P T F E) からなる群より選択される 1 種以上であることを特徴とする請求項 1 2 に記載の正極活物質スラリーの製造方法。

20

【請求項 1 8】

前記第 1 バインダーと第 2 バインダーは、前記正極活物質スラリー内に前記第 1 バインダーと第 2 バインダーが 3 : 7 から 8 : 2 の重量比を有する量で用いることを特徴とする請求項 1 2 に記載の正極活物質スラリーの製造方法。

【請求項 1 9】

前記段階 3) の正極活物質の添加後に有機溶媒を添加する段階をさらに含むことを特徴とする請求項 1 2 に記載の正極活物質スラリーの製造方法。

【請求項 2 0】

請求項 1 に記載の正極活物質スラリーから形成された正極活物質層を含む正極。

30

【請求項 2 1】

前記正極活物質層は、非結晶性の割合が 2 7 % から 5 0 % であることを特徴とする請求項 2 0 に記載の正極。

【請求項 2 2】

請求項 2 0 に記載の正極、負極、及び前記正極と負極の間に介在されている分離膜を含むリチウム二次電池。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0 0 0 1】

関連出願との相互引用

40

本出願は、2 0 1 4 年 1 0 月 2 日付韓国特許出願第 1 0 - 2 0 1 4 - 0 1 3 3 4 7 2 号に基づいた優先権の利益を主張し、当該韓国特許出願の文献に開示されている全ての内容は本明細書の一部として含まれる。

【0 0 0 2】

技術分野

本発明は、ゴム系バインダーを一定の割合で含むことにより、非結晶化度が調節された正極活物質スラリー、これから形成された正極活物質層を含む正極、及び前記正極を含むリチウム二次電池に関する。

【背景技術】

【0 0 0 3】

50

最近、電子産業、移動通信を含む各種の情報通信などのコミュニケーション産業の急速な発展とともに、電子機器の軽薄短小化の要求に応え、ノートパソコン、ネットブック、タブレットPC、携帯電話、スマートホン、PDA、デジタルカメラ、カムコーダーなどのような携帯用電子製品及び通信端末機器が広く普及されており、よって、これら機器の駆動電源である電池の開発に対しても関心が高くなっている。

【0004】

さらに、水素電気自動車やハイブリッド自動車、燃料電池自動車のような電気自動車の開発に伴い、高性能、大容量、高密度及び高出力、高安定性を有する電池の開発に大きな関心が集中されており、速い充放電速度の特性を有する電池の開発もまた大きな 이슈となっている。

10

【0005】

化学エネルギーを電気エネルギーに変える装置である電池は、基本構成材料の種類と特徴に従って一次電池、二次電池、燃料電池、そして太陽電池などに仕分けられる。

【0006】

このうち一次電池は、マンガン電池、アルカリ電池、水銀電池などのように非可逆反応を介してエネルギーを生産するので、容量は大きいがリサイクルができないという欠点があって、エネルギーの非効率性、環境汚染などのような各種の問題点を内在している。

【0007】

二次電池には、鉛蓄電池、ニッケル-メタルハイドライド電池、ニッケル-カドミウム電池、リチウムイオン電池、リチウムポリマー電池、リチウム金属電池などがあり、化学エネルギーと電気エネルギーの可逆的相互変換を利用して充電と放電を繰り返すことができる化学電池であって、可逆反応により作動するのでリサイクルができるという利点がある。

20

【0008】

このような、二次電池の中でリチウム二次電池が活発に研究されており、前記リチウム二次電池は、正極(positive electrode)、負極(negative electrode)、分離膜(separator)及び電解質(electrolyte)の基本的な構成要素を有する。

【0009】

前記正極と負極は、酸化／還元などのエネルギーの変換と保存が発生する電極であって、それぞれ陽と陰の電位を有することになる。分離膜は、正極と負極の間に位置して電氣的な絶縁を維持し、電荷の移動通路を提供する。さらに、電解質は電荷伝達の媒介体の役割を担う。

30

【0010】

一方、前記正極は、正極活物質を含む正極活物質スラリーを正極集電体上に塗布して乾燥することにより製造することができ、このとき、前記正極活物質スラリーは、正極活物質にバインダー及び有機溶媒を添加して混合した流動性を有する混合物である。

【0011】

リチウム二次電池の容量などの電池性能は、用いられる正極活物質に最も大きな影響を受ける。電池性能を向上させるためには正極活物質の高ローディングが必要なので、正極の厚さが増加し得る。これにより、ゼリーロール方式のポリマー電池や、角形電池及び円形電池では、圧延率を高める方案などが用いられている。しかし、圧延率が高くなれば正極にクラックが発生するため、結果的にリチウム二次電池の内部短絡、高電圧不良、容量低下などが発生し得る。

40

【0012】

前記のような背景の下で、本発明者達は正極活物質スラリーの非結晶化度を調節し、これから形成された正極活物質層の柔軟性及び圧延性を高めることができる方法の研究中、ゴム系バインダーを一定の割合で含むバインダーを用いることにより、正極活物質スラリーの非結晶化度を高めることができ、よって、前記正極活物質スラリーから形成された正極活物質層の柔軟性及び圧延性が向上し得ることを確認することによって本発明を完成し

50

た。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

本発明の目的は、ゴム系バインダーを含むバインダーを含むことにより、非結晶化度が向上した正極活物質スラリーを提供することにある。

【0014】

本発明の他の目的は、前記正極活物質スラリーの製造方法を提供することにある。

【0015】

本発明のさらに他の目的は、前記正極活物質スラリーから形成された正極活物質層を含む正極を提供することにある。 10

【0016】

併せて、本発明のさらに他の目的は、前記正極、負極、及び前記正極と負極の間に介在されている分離膜を含むリチウム二次電池を提供することにある。

【課題を解決するための手段】

【0017】

前記課題を解決するため、正極活物質；バインダー及び導電材を含み、前記バインダーは、バインダーの全体重量に対し20重量%から70重量%のゴム系バインダーを含むことを特徴とする正極活物質スラリーを提供する。

【0018】

さらに、本発明は、第1導電材及び第1バインダーを混合して第1混合溶液を製造する段階（段階1）；第2導電材及び第2バインダーを混合して第2混合溶液を製造する段階（段階2）；前記第1混合溶液及び第2混合溶液を混合し、正極活物質を添加して混合する段階（段階3）を含む前記正極活物質スラリーの製造方法を提供する。 20

【0019】

併せて、本発明は、前記正極活物質スラリーから形成された正極活物質層を含む正極、及びこれを含むリチウム二次電池を提供する。

【発明の効果】

【0020】

本発明に係る正極活物質スラリーは、ゴム系バインダーを一定の割合で含むバインダーを適宜調節して含むことにより、前記正極活物質スラリーの非結晶化度を調節することができ、よって、前記正極活物質スラリーから形成された正極活物質層の柔軟性及び圧延性が向上し得る。 30

【0021】

さらに、本発明に係る正極活物質スラリーの製造方法は、前記正極活物質スラリーをなす各成分を順次混合することにより、分散性を高めて導電材間の絡まり現象を抑えることができるので、分散性に優れた正極活物質スラリーを製造することができ、よって、前記正極活物質スラリーから形成された正極活物質層の厚さ及びローディングの偏差が減少し得る。

【0022】

併せて、本発明に係る前記正極活物質スラリーから形成された正極活物質層を含む正極は、柔軟性及び圧延性に優れた正極活物質層を有することにより、これを利用したリチウム二次電池の製造時にクラック（crack）の発生が抑えられ、よって、内部短絡、高電圧不良、容量低下などの問題が防止できる。 40

【0023】

したがって、本発明に係る正極活物質スラリー、これから形成された正極活物質層を含む正極は、これを要する産業、特にリチウム二次電池の産業に容易に適用することができる。

【0024】

本明細書の次の図面は、本発明の好ましい実施形態を例示するものであり、前述した発 50

明の概要とともに本発明の技術思想をさらに理解させる役割を担うものなので、本発明はそのような図面に記載されている事柄にのみ限定されて解釈されてはならない。

【図面の簡単な説明】

【0025】

【図1】本発明の一実施形態に係るバインダー及び正極活物質層のNMR分析の結果を示した図である。

【図2】本発明の一実施形態に係る正極の柔軟性測定の結果を示した図である。

【図3】本発明の一実施形態に係る正極のクラック発生の程度を確認するための顕微鏡分析の結果を示した図である。

【図4】本発明の一実施形態に係る正極の柔軟性測定のための曲率測定器を示したイメージである。

【図5】本発明の一実施形態に係るリチウム二次電池の容量特性を比較分析した結果グラフである。

【発明を実施するための形態】

【0026】

以下、本発明に対する理解を助けるため、本発明をさらに詳しく説明する。

【0027】

本明細書及び特許請求の範囲に用いられた用語や単語は、通常的且つ辞書的な意味に限定して解釈されてはならず、発明者は自身の発明を最良の方法で説明するために用語の概念を適宜定義することができるという原則に即して、本発明の技術的思想に適合する意味と概念に解釈されなければならない。

【0028】

本発明は、正極活物質層の柔軟性及び圧延性を向上させることができる非結晶化度が調節された正極活物質スラリーを提供する。

【0029】

本発明の一実施形態に係る前記正極活物質スラリーは、正極活物質；バインダー及び導電材を含み、前記バインダーは、バインダーの全体重量に対し20重量%から70重量%のゴム系バインダーを含むことを特徴とする。

【0030】

前記ゴム系バインダーは前記バインダーの非結晶化度を調節するものであって、前述したところのように、バインダーの全体重量に対し20重量%から70重量%で前記バインダーに含まれることによって前記バインダーの非結晶化度を調節することができ、結果的に前記バインダーを含む正極活物質スラリーの非結晶化度を調節し、これから形成された正極活物質層の柔軟性及び圧延性を増加させることができる。

【0031】

さらに、前記バインダーはフッ素系バインダーとゴム系バインダーを含むことができ、つまり、前記バインダーはフッ素系バインダーとゴム系バインダーが混合された混合物であり得る。このとき、前記混合物は、前記フッ素系バインダー及びゴム系バインダーが3：7から8：2の重量比で混合されたものであり得る。前述したところのように、前記バインダーは正極活物質スラリーの非結晶化度を調節する役割を担うものであって、前記フッ素系バインダーとゴム系バインダーを前記重量比で混合することにより、目的とする非結晶化度を容易に調節することができる。

【0032】

前記ゴム系バインダーは、ブタジエンゴム系バインダーを用いることができ、具体的にはニトリル-ブタジエンゴム、水和されたニトリル-ブタジエンゴム、スチレン-ブタジエンゴム及び水和されたスチレン-ブタジエンゴムからなる群より選択される1種以上であり得る。

【0033】

前記フッ素系バインダーは、当業界に通常知られているフッ素系バインダーを用いることができ、具体的には置換または非置換ポリビニリデンフルオリド（PVDF）、ビニリ

10

20

30

40

50

デンプルオリドーヘキサフルオロプロピレンコポリマー（P V D F－c o－H E P）、クロトリフルオロエチレン（C F T F）及びポリテトラフルオロエチレン（P T F E）からなる群より選択される１種以上を用いることができる。

【００３４】

一方、前記バインダーは、前記正極活物質スラリーに前記正極活物質１００重量部に対し１重量部から５重量部で含まれてよく、前記正極活物質スラリーは２７％から５０％の非結晶化度を表すことができる。

【００３５】

具体的に、前記正極活物質スラリーは、前述したところのように、前記バインダーにより非結晶化度が調節されてよく、前記バインダーを前記含量比で含むことにより前述した非結晶化度を有することができ、よって、柔軟性及び圧延性に優れた正極活物質層を形成することができる。

10

【００３６】

さらに、前記導電材は第１導電材及び第２導電材を含むことができ、前記第１導電材は黒鉛系導電材であり、前記第２導電材は炭素ナノチューブ、炭素ナノ繊維またはこれらの組み合わせのものであってよい。つまり、本発明に係る前記導電材は、前記第１導電材と第２導電材が混合された導電材混合物であってよく、二種の導電材を混合して用いることにより、前記正極活物質スラリー内に導電材とバインダーの分散性、特にゴム系バインダーの分散性が増加し得る。さらに、後述する製造方法のように、前記導電材とバインダーを順次混合することにより分散性をさらに向上させることができる。前記第１導電材及び第２導電材は、５：５から９：１の重量比を有するように混合するものであり得る。

20

【００３７】

前記黒鉛系導電材は、カーボンブラック系列の物質で立体形に発達されている形状であるか発達されていない球形状のものであってよく、 $300\text{ m}^2/\text{g}$ 以下の比表面積を有するものであってよい。

【００３８】

一方、本発明に係る前記正極活物質は、特に制限されることなく当業界に公知の通常のもので用いることができ、例えば、リチウムコバルト酸化物（ LiCoO_2 ）、リチウムニッケル酸化物（ LiNiO_2 ）などの層状化合物であるか、一つまたはそれ以上の遷移金属で置換された化合物；リチウムマンガン酸化物（ LiMnO_2 ）；リチウム銅酸化物（ Li_2CuO_2 ）；バナジウム酸化物；ニッケルサイト型リチウムニッケル酸化物（ $\text{Li}^+\text{intercalated nickel oxide}$ ）；リチウムマンガン複合酸化物、ジスルフィド化合物またはこれらの組み合わせによって形成される複合酸化物などのように、リチウム吸着物質（ $\text{lithium intercalation material}$ ）を主成分とする化合物であってよい。

30

【００３９】

前記正極活物質スラリーは、前述した有効成分（正極活物質、バインダー及び導電材）以外に、必要に応じて充填剤及び有機溶媒をさらに含むことができる。

【００４０】

前記充填剤は、負極の膨張を抑える成分として必要に応じて使用有無を決めることができ、当該電池に化学的変化を誘発することなく繊維状の材料であれば特に制限されるものではないが、例えば、ポリエチレン、ポリプロピレンなどのオレフィン系重合体；ガラス繊維、炭素繊維などの繊維条物質であってよい。

40

【００４１】

前記有機溶媒には、特に限定されるものではないが、例えば、イソプロピルアルコール、 N -メチルピロリドン（ NMP ）、アセトンなどであってよい。

【００４２】

さらに、本発明は、前記正極活物質スラリーの製造方法を提供する。

【００４３】

本発明の一実施形態に係る前記正極活物質スラリーは、第１導電材及び第１バインダー

50

を混合して前分散溶液を製造する段階（段階１）；前記前分散溶液に第２導電材及び第２バインダーを混合してバインダー及び導電材混合溶液を製造する段階（段階２）；前記混合溶液に正極活物質を添加して混合する段階（段階３）を含むことを特徴とする。

【００４４】

前記段階１は、第１バインダーの分散性を高めるため、第１導電材と第１バインダーを均一に混合して前分散溶液を製造する段階である。このとき、前記第１導電材は黒鉛系導電材であり、具体的には前述した通りである。前記第１バインダーはゴム系バインダーであり、具体的には前述した通りである。

【００４５】

前記混合は、当業界に通常公知の混合方法を介して行うことができ、例えば、攪拌機、高せん断ミキサーなどを利用して行うことができる。

【００４６】

前記段階２は、前記前分散溶液に第２導電材及び第２バインダーを添加して混合し、導電材及びバインダー混合溶液を製造する段階である。このとき、前記第２導電材及び第２バインダーは前述した通りであり、前記混合も前述した方法を介して行うことができる。

【００４７】

一方、前記段階１及び段階２でそれぞれ用いられる第１導電材及び第２導電材の使用量は、正極活物質スラリー内で前記第１導電材と第２導電材が前述したところのような重量比を有するように用いられるものであってよく、前記段階１及び段階２でそれぞれ用いられる第１バインダー及び第２バインダーの使用量は、正極活物質スラリー内に前記第１バインダーと第２バインダーが前述したところのような重量比を有するように用いられるものであってよい。

【００４８】

本発明に係る前記製造方法は、第１導電材、第２導電材、第１バインダー及び第２バインダーを一度に同時に混合せず、前述したところのように順次混合することにより、バインダーと導電材の間の分散性、特に、ゴム系バインダーの分散性を高めることができ、導電材の間の絡まり現象が抑えられ得る。

【００４９】

前記段階３は、前記導電材及びバインダーの混合溶液に正極活物質を添加し、混合して正極活物質スラリーを製造する段階である。具体的な正極活物質は、前述した通りである。

【００５０】

本発明に係る前記製造方法は、前記段階３の正極活物質の添加後に有機溶媒を添加する段階をさらに含むことができ、前記有機溶媒を添加することにより、正極活物質スラリーの固形分の濃度及び粘度を調節することができる。具体的な有機溶媒の種類は、前述した通りである。

【００５１】

併せて、本発明は、前記正極活物質スラリーから形成された正極活物質層を含む正極を提供する。

【００５２】

本発明の一実施形態に係る前記正極は、前述したところのように、前記正極活物質スラリーから形成された正極活物質層を含み、前記正極活物質層は非結晶性の割合が２７％から５０％であり得る。よって、前記正極活物質層は柔軟性及び圧延性に優れ、結果的に前記正極を含むリチウム二次電池の製造時に加工性に優れ、加工中のクラック（crack）の発生が抑えられ得るので、前記リチウム二次電池の内部短絡、高電圧不良及び容量低下の問題が減少可能である。

【００５３】

一方、本発明に係る前記正極は、正極集電体の少なくとも一面上に前記正極活物質スラリーを塗布し、乾燥して製造することができる。

【００５４】

前記正極集電体は、一般に3 μmから500 μmの厚さのものを用いることができ、当該電池に化学的变化を誘発することなく、高い導電性を有するものであれば特に制限されるものではないが、例えば、銅、ステンレススチール、アルミニウム、ニッケル、チタン、焼成炭素、またはアルミニウムやステンレススチールの表面にカーボン、ニッケル、チタンまたは銀などで表面処理したものなどが用いられ得る。

【0055】

前記塗布は特に制限されることなく、当業界に通常知られている方法によって行うことができ、例えば、前記正極活物質スラリーを前記正極集電体の少なくとも一面上に噴射または分配させたあと、ドクターブレード (doctor blade) などを使って均一に分散させて行うことができる。以外にも、ダイキャスト (die casting)、コンマコーティング (comma coating)、スクリーンプリンティング (screen printing) などの方法を介して行うことができる。

10

【0056】

前記乾燥は特に制限されるものではないが、50℃から200℃の真空オーブンで1日以内に熱処理して行うことであり得る。このときの熱処理は、直接的に熱を加えること、及び熱風乾燥などの間接的に熱を加えることを全て含むことができる。

【0057】

さらに進んで、本発明は、前記正極、負極、及び前記正極と負極の間に介在された分離膜を含むリチウム二次電池を提供する。

【0058】

前記負極は、負極集電体の少なくとも一面上に負極活物質スラリーを塗布し、乾燥して製造することができ、このときの前記負極活物質スラリーは、負極活物質以外にバインダー、導電材及び充填剤などの添加剤をさらに含むことができる。

20

【0059】

前記負極活物質は特に制限されることなく、当業界に通常知られている、リチウムイオンが挿入及び脱離可能な炭素材、リチウム金属、ケイ素または錫などを用いることができる。好ましくは前記炭素材を用いることができ、炭素材には低結晶状炭素及び高結晶状炭素などが全て用いられ得る。前記低結晶状炭素には軟化炭素 (soft carbon) 及び硬化炭素 (hard carbon) を挙げることができ、前記高結晶状炭素には天然黒鉛、キッシュ黒鉛 (kish graphite)、熱分解炭素 (pyrolytic carbon)、液晶ピッチ系炭素繊維 (mesophase pitch based carbon fiber)、炭素微小球体 (meso-carbon microbeads)、液晶ピッチ (mesophase pitches) 及び石油と石炭系コークス (petroleum or coal tar pitch derived cokes) などの高温焼成炭素を挙げることができる。

30

【0060】

前記負極集電体は、前述した正極集電体と同じに含まれるものであってよく、前記導電材及び充填剤は前述した通りであってよく、必要に応じて有機溶媒を用いることができる。このとき、前記有機溶媒は前述した通りであってよい。

【0061】

前記バインダーは、ビニリデンフルオリドヘキサフルオロプロピレンコポリマー (PVDF-co-HEP)、ポリビニリデンフルオリド (PVDF)、クロロトリフルオロエチレン (CTFE)、ポリアクリロニトリル、ポリメチルメタクリレート、ポリビニルアルコール、カルボキシメチルセルロース (CMC)、澱粉、ヒドロキシプロピルセルロース、再生セルロース、ポリビニルピロリドン、テトラフルオロエチレン、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリアクリル酸、エチレンプロピレンジエンモノマー (EPDM)、スルホン化EPDM、スチレンブタジエンゴム (SBR) 及びフッ素ゴムからなる群より選択される1種以上のものであり得る。

40

【0062】

前記塗布及び乾燥は、前述した通りであってよい。

50

【0063】

前記分離膜は、高いイオン透過度と機械的強度を有する絶縁性の薄い薄膜であってよく、一般に、 $0.01\mu\text{m}$ から $10\mu\text{m}$ の気孔直径、 $5\mu\text{m}$ から $300\mu\text{m}$ の厚さを有するものであってよい。このような分離膜には、多孔性高分子フィルム、例えば、エチレン単独重合体、プロピレン単独重合体、エチレン／ブテン共重合体、エチレン／ヘキセン共重合体及びエチレン／メタクリレート共重合体などのようなポリオレフィン系高分子で製造した多孔性高分子フィルムを単独でまたはこれらを積層して用いることができ、または、通常の多孔性不織布、例えば、高融点のガラス繊維、ポリエチレンテレフタレート繊維などからなる不織布を用いることができるが、これに制限されるものではない。

【0064】

さらに、前記電解質は、電解質に通常用いられる有機溶媒及びリチウム塩を含むことができ、特に制限されるものではない。

【0065】

前記リチウム塩の陰イオンには、 F^- 、 Cl^- 、 I^- 、 NO_3^- 、 $\text{N}(\text{CN})_2^-$ 、 BF_4^- 、 ClO_4^- 、 PF_6^- 、 $(\text{CF}_3)_2\text{PF}_4^-$ 、 $(\text{CF}_3)_3\text{PF}_3^-$ 、 $(\text{CF}_3)_4\text{PF}_2^-$ 、 $(\text{CF}_3)_5\text{PF}^-$ 、 $(\text{CF}_3)_6\text{P}^-$ 、 CF_3SO_3^- 、 $\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_3^-$ 、 $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $(\text{FSO}_2)_2\text{N}^-$ 、 $\text{CF}_3\text{CF}_2(\text{CF}_3)_2\text{CO}^-$ 、 $(\text{CF}_3\text{CO}_2)_2\text{CH}^-$ 、 $(\text{SF}_5)_3\text{C}^-$ 、 $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3\text{C}^-$ 、 $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_7\text{SO}_3^-$ 、 CF_3CO_2^- 、 CH_3CO_2^- 、 SCN^- 及び $(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ からなる群より選択される1種以上であり得る。

【0066】

前記有機溶媒には、代表的に、プロピレンカーボネート、エチレンカーボネート、ジエチルカーボネート、ジメチルカーボネート、エチルメチルカーボネート、メチルプロピルカーボネート、ジプロピルカーボネート、ジメチルスルホキシド、アセトニトリル、ジメトキシエタン、ジエトキシエタン、ビニレンカーボネート、スルホラン、ガンマーブチロラクトン、プロピレンスルファイト及びテトラヒドロフランからなる群より選択される1種以上のものであり得る。

【0067】

特に、前記カーボネート系有機溶媒のうち環状カーボネートであるエチレンカーボネート及びプロピレンカーボネートは高粘度の有機溶媒であって、誘電率が高く電解質内のリチウム塩をよく解離させるので好ましく用いられてよく、このような環状カーボネート、ジメチルカーボネート及びジエチルカーボネートのような低粘度、低誘電率の線形カーボネートを適した割合で混合して用いれば、高い電気伝導率を有する電解液を製造することができるので、さらに好ましく用いられてよい。

【0068】

さらに、前記電解質は、必要に応じて充放電特性、難燃性特性などの改善のため、ピリジン、トリエチルホスファイト、トリエタノールアミン、環状エーテル、エチレンジアミン、 n -グライム(glyme)、ヘキサリン酸トリアミド、ニトロベンゼン誘導体、硫黄、キノンイミン染料、 N -置換オキサゾリジノン、 N 、 N -置換イミダゾリジン、エチレングリコールジアルキルエーテル、アンモニウム塩、ピロール、2-メトキシエタノール、三塩化アルミニウムなどをさらに含むことができる。場合によっては、不燃性を与えるため、四塩化炭素、三フッ化エチレンなどのハロゲン含有溶媒をさらに含むことができ、高温保存特性を向上させるため二酸化炭酸ガスをさらに含むこともでき、 FEC (fluoroethylene carbonate)、 PRS (propene sulfone)、 FPC (fluoropropylene carbonate)などをさらに含むことができる。

【0069】

本発明に係るリチウム二次電池は、正極と負極の間に分離膜を配置して電極組立体を形成し、前記電極組立体は、円筒状電池ケースまたは角形電池ケースに入れたあと、電解質を注入して製造することができる。または、前記電極組立体を積層したあと、これを電解

10

20

30

40

50

質に含浸させて得られた結果物を電池ケースに入れ、密封して製造することもできる。

【0070】

本発明で用いられる電池ケースは、当分野で通常用いられるものが採用されてよく、電池の用途に伴う外形に制限がなく、例えば、缶を用いた円筒状、角形、パウチ（pouch）型またはコイン（coin）型などとなり得る。

【0071】

本発明に係るリチウム二次電池は、小型デバイスの電源として用いられる電池セルに用いられ得るだけでなく、多数の電池セルを含む中大型電池モジュールに単位電池としても好ましく用いられ得る。前記中大型デバイスの好ましい例には、電気自動車、ハイブリッド電気自動車、プラグインハイブリッド電気自動車、電力貯蔵用システムなどを挙げることができ、これらだけに限定されるものではない。

10

【0072】

以下、下記実施例及び実験例によって本発明をさらに詳しく説明する。ところが、下記実施例及び実験例は本発明を例示するためのものであって、これらだけに本発明の範囲が限定されるものではない。

【0073】

実施例 1

1) 正極活物質スラリーの製造

デンカブラックとスチレンーブタジエンゴムを混合して前分散させ、ここに炭素ナノチューブとポリビニリデンフルオリドを添加し、混合して導電材及びバインダー混合溶液を製造した。ここに LiCoO_2 及び NMP を添加し、混合して正極活物質スラリーを製造した。このとき、前記デンカブラックと炭素ナノチューブは 5 : 5 の重量比で用い、前記スチレンーブタジエンゴムとポリビニリデンフルオリドは 2 : 8 の重量比で用いた。さらに、全体バインダーの含量（スチレンーブタジエンゴム及びポリビニリデンフルオリドの合計量）は前記 LiCoO_2 の全体重量に対し 2 重量部で用い、全体導電材の含量（デンカブラック及び炭素ナノチューブの合計量）は前記 LiCoO_2 の全体重量に対し 2 重量部で用いた。

20

【0074】

2) リチウム二次電池の製造

前記製造された正極活物質スラリーを $20\text{ }\mu\text{m}$ 厚さのアルミニウム薄膜に塗布し、 130°C で 12 時間の間真空乾燥して正極活物質層が形成された正極を製造した。

30

【0075】

対電極（counter electrode）としてリチウム金属ホイル（foil）を用い、前記対電極及び前記実施例 1-1）で製造した正極をコイン状に打抜きし、 LiPF_6 が 1 mol 及び 2 重量%の VC（vinyl chloride）が溶解されているカーボネート系電解液を注入してコイン型半電池を製造した。

【0076】

実施例 2

正極活物質スラリーの製造時に、前記スチレンーブタジエンゴムとポリビニリデンフルオリドを 7 : 3 の重量比で用いたことを除き、前記実施例 1 と同様の方法を介して試験用リチウム二次電池を製作した。

40

【0077】

比較例 1

正極活物質スラリーの製造時に、スチレンーブタジエンゴムを用いずにポリビニリデンフルオリドだけを用いたことを除き、前記実施例 1 と同様の方法を介して試験用リチウム二次電池を製作した。

【0078】

比較例 2

正極活物質スラリーの製造時に、スチレンーブタジエンゴム及びポリビニリデンフルオリドを 1 : 9 の重量比で用いたことを除き、前記実施例 1 と同様の方法を介して試験用リ

50

チウム二次電池を製作した。

【0079】

比較例 3

正極活物質スラリーの製造時に、スチレンーブタジエンゴム及びポリビニリデンフルオリドを 8 : 2 の重量比で用いたことを除き、前記実施例 1 と同様の方法を介して試験用リチウム二次電池を製作した。

【0080】

実験例 1

バインダーの非結晶化度が正極活物質スラリーの結晶性に及ぼす影響を確認するため、前記実施例 1 及び 2 と比較例 1 から比較例 3 で用いた各バインダー及び正極活物質スラリーの非結晶化度を比較分析した。結果を図 1 及び下記表 1 に示した。

10

【0081】

まず、正極活物質スラリーのうちバインダーに対する非結晶化度を分析し、正極活物質スラリーに対する非結晶化度を分析し、前記バインダーの非結晶化度と正極活物質スラリーの間の相関関係を測定した。正極活物質スラリーのうちバインダーに対する非結晶化度は、前記実施例 1 及び 2 と比較例 1 から比較例 3 で製造した各正極活物質スラリーを、150℃で1時間乾燥して細かく粉体に製造し、これを NMR を使って非結晶化度を分析した。

【0082】

正極活物質スラリーに対する非結晶化度は、前記バインダーの非結晶化度の測定方法と同様に行った。

20

【0083】

【表 1】

区分	バインダーの非結晶化度 (%)	正極活物質スラリーの非結晶化度 (%)
実施例1	58.8	29.7
実施例2	59.8	35
比較例1	42.8	1
比較例2	45.2	13.4
比較例3	61.6	35.5 (スラリーの凝集)

30

【0084】

前記表 1 に示されているところのように、本発明に係るゴム系バインダーを一定の含量で含む実施例 1 及び実施例 2 のバインダーは、ゴム系バインダーを含まない比較例のバインダーに比べて数等高い非結晶化度を表し、実施例 1 及び実施例 2 の正極活物質スラリーの非結晶化度も、比較例の正極活物質スラリーの非結晶化度に比べて著しく増加した。これは、バインダーの非結晶化度に従って正極活物質スラリーの結晶性に影響を及ぼし得ることを意味する。

40

【0085】

さらに、ゴム系バインダーを、本発明で提示する割合の範囲を外れて少なく含む比較例 2 のバインダーは、実施例 1 及び実施例 2 のバインダーに比べて著しく低いバインダー非結晶化度を表し、正極活物質スラリーの非結晶化度も著しい差異を表した。一方、ゴム系バインダーを本発明で提示する割合の範囲を外れて高い割合で含む比較例 3 のバインダーは、実施例 1 及び実施例 2 のバインダーに比べて高い非結晶化度を表し、正極活物質スラリーも高い非結晶化度を表したが、正極活物質スラリーの凝集現象が大きく発生した。

50

【0086】

実験例 2

前記実施例 1 と比較例 1 で製作した各正極の柔軟性及び圧延性を比較分析した。分析結果を図 2 及び図 3 に示した。

【0087】

前記柔軟性及び圧延性は、図 4 に示した曲率測定器を利用して棒の直径（R 値）に応じた前記各正極の柔軟性を測定した。

【0088】

図 2 は、曲率測定器によって変形された各正極の表面のイメージであり、図 3 は、前記各正極の変形部分のクラック（c r a c k）の発生の程度を確認するための顕微鏡写真である。

10

【0089】

図 2 及び図 3 に示されているところのように、本発明に係る実施例 1 の正極が比較例 1 の正極に比べ、試験された全体 R 値に対し曲率特性（柔軟性）に優れることを確認した。

【0090】

具体的に、図 2 に示されているところのように、実施例 1 の正極は試験された全体 R 値に対し特定の変形を引き起していないが、比較例 1 の正極は R 値が減少するほど深刻な変形を表した。

【0091】

さらに、図 3 に示されているところのように、実施例 1 の正極はクラックが発生していないが、比較例 1 の正極は深刻なクラックが観察された。

20

【0092】

これは、本発明に係るゴム系バインダーを一定の割合で含むバインダーを利用して製造された正極活物質から形成された正極の柔軟性に優れることを意味する。

【0093】

実験例 3

前記実施例 1 と比較例 1 で製作した各リチウム二次電池の寿命特性を比較分析した。結果を図 5 に示した。

【0094】

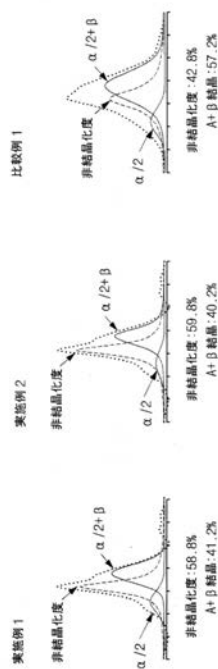
各電池を 23℃で CC/CV で 0.2C の速度で充電した後、1.5V まで CC で 0.2C の速度で放電して充電及び放電容量を測定し、これを介して充放電効率及び放電率特性を分析した。

30

【0095】

図 5 に示されているところのように、本発明に係る実施例 1 の正極を利用したリチウム二次電池が、比較例 1 の正極を利用したリチウム二次電池と同等な程度の寿命特性を表すことを確認した。

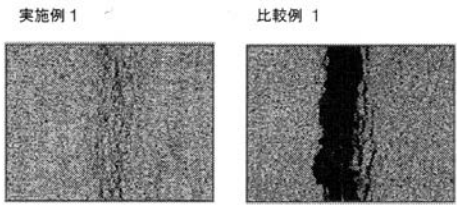
【図 1】



【図 2】

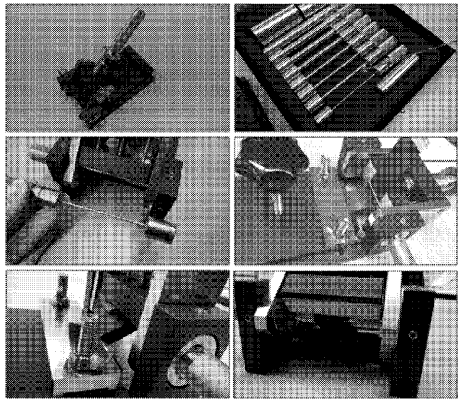
R(mm)	実施例 1	比較例 1
2.1mm		
1.1mm		
0.9mm		

【図 3】

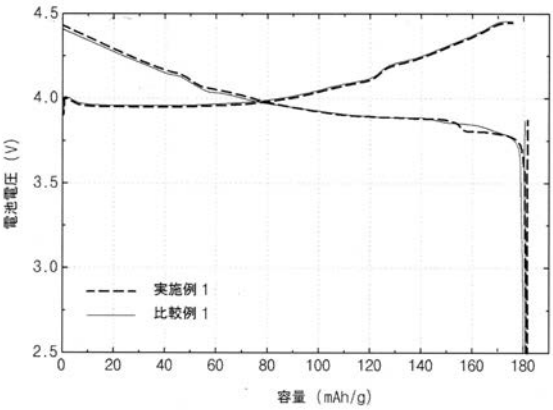


【図 4】

[54]



【図 5】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2015/010471

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER H01M 4/62(2006.01)i, H01M 4/139(2010.01)i, H01M 10/052(2010.01)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 4/62; H01M 4/525; H01G 11/22; H01M 4/48; H01M 4/38; H01M 10/05; H01M 10/052; H01M 4/505; H01M 4/139 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: rubber binder, fluorine binder, conductive material, cathode active material slurry		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2005-243518 A (SANYO ELECTRIC CO., LTD.) 08 September 2005 See claims 1, 3-4; comparative example 1, example 1; paragraph [0024].	1-22
A	KR 10-1312265 B1 (SAMSUNG SDI CO., LTD.) 25 September 2013 See claims 1, 7-11.	1-22
A	KR 10-2014-0099715 A (LG CHEM. LTD.) 13 August 2014 See claims 1, 4-8, 11.	1-22
A	KR 10-2013-0085551 A (VINATECH CO., LTD.) 30 July 2013 See claims 1, 5-7.	1-22
A	KR 10-2010-0092702 A (SAMSUNG SDI CO., LTD.) 23 August 2010 See claims 1, 4-6.	1-22
☐ 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 19 JANUARY 2016 (19.01.2016)		Date of mailing of the international search report 19 JANUARY 2016 (19.01.2016)
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/KR2015/010471

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
JP 2005-243518 A	08/09/2005	NONE	
KR 10-1312265 B1	25/09/2013	KR 10-2013-0004826 A US 2013-0011731 A1	14/01/2013 10/01/2013
KR 10-2014-0099715 A	13/08/2014	NONE	
KR 10-2013-0085551 A	30/07/2013	NONE	
KR 10-2010-0092702 A	23/08/2010	KR 10-1135491 B1 US 2010-0209776 A1	13/04/2012 19/08/2010

국제조사보고서		국제출원번호 PCT/KR2015/010471
A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC)) H01M 4/62(2006.01)i, H01M 4/139(2010.01)i, H01M 10/052(2010.01)i		
B. 조사된 분야 조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재) H01M 4/62; H01M 4/525; H01G 11/22; H01M 4/48; H01M 4/38; H01M 10/05; H01M 10/052; H01M 4/505; H01M 4/139 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: 고무제 바인더, 불소제 바인더, 도전재, 양극 활물질 슬러리		
C. 관련 문헌		
카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	JP 2005-243518 A (SANYO ELECTRIC CO., LTD.) 2005.09.08 청구항 1, 3-4; 비교예 1, 실시예 1; 단락 [0024] 참조.	1-22
A	KR 10-1312265 B1 (삼성에스디아이 주식회사) 2013.09.25 청구항 1, 7-11 참조.	1-22
A	KR 10-2014-0099715 A (주식회사 엘지화학) 2014.08.13 청구항 1, 4-8, 11 참조.	1-22
A	KR 10-2013-0085551 A (비나텍주식회사) 2013.07.30 청구항 1, 5-7 참조.	1-22
A	KR 10-2010-0092702 A (삼성에스디아이 주식회사) 2010.08.23 청구항 1, 4-6 참조.	1-22
☐ 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 “B” 국제출원일보다 빠른 출원일 또는 우선일을 가지나 국제출원일 이후에 공개된 선출원 또는 특허 문헌 “L” 우선권 주장에 의문을 제기하는 문헌 또는 다른 인용문헌의 공개일 또는 다른 특별한 이유(이유를 명시)를 밝히기 위하여 인용된 문헌 “O” 구두 개시, 사용, 전시 또는 기타 수단을 언급하고 있는 문헌 “P” 우선일 이후에 공개되었으나 국제출원일 이전에 공개된 문헌 “T” 국제출원일 또는 우선일 후에 공개된 문헌으로, 출원과 상충하지 않으며 발명의 기초가 되는 원리나 이론을 이해하기 위해 인용된 문헌 “X” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌 하나만으로 청구된 발명의 신구성 또는 진보성이 없는 것으로 본다. “Y” 특별한 관련이 있는 문헌. 해당 문헌이 하나 이상의 다른 문헌과 조합하는 경우로 그 조합이 당업자에게 자명한 경우 청구된 발명은 진보성이 없는 것으로 본다. “&” 동일한 대응특허문헌에 속하는 문헌		
국제조사의 실제 완료일 2016년 01월 19일 (19.01.2016)		국제조사보고서 발송일 2016년 01월 19일 (19.01.2016)
ISA/KR의 명칭 및 우편주소 대한민국 특허청 (35208) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사) 팩스 번호 +82-42-472-7140		심사관 이동욱 전화번호 +82-42-481-8163

서식 PCT/ISA/210 (두 번째 용지) (2015년 1월)

국제조사보고서
대응특허에 관한 정보

국제출원번호
PCT/KR2015/010471

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
JP 2005-243518 A	2005/09/08	없음	
KR 10-1312265 B1	2013/09/25	KR 10-2013-0004826 A US 2013-0011731 A1	2013/01/14 2013/01/10
KR 10-2014-0099715 A	2014/08/13	없음	
KR 10-2013-0085551 A	2013/07/30	없음	
KR 10-2010-0092702 A	2010/08/23	KR 10-1135491 B1 US 2010-0209776 A1	2012/04/13 2010/08/19

서식 PCT/ISA/210 (대응특허 추가용지) (2015년 1월)

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), 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

(72)発明者 サン・フン・チェ

大韓民国・テジョン・34122・ユソング・ムンジーロ・188・エルジー・ケム・リサーチ
・パーク

Fターム(参考) 5H050 AA02 AA08 AA14 AA19 BA01 BA08 BA16 BA17 CA02 CA07
CA08 CA09 CA26 CB07 CB08 CB11 CB12 DA02 DA10 DA11
DA19 EA08 EA09 EA10 EA23 EA24 EA28 FA12 FA16 FA17
FA19 FA20 GA10 GA13 HA01 HA07 HA13