



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2015-0116096

(43) 공개일자 2015년10월15일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)

H01M 4/88 (2006.01) H01M 8/02 (2006.01)

H01M 8/10 (2006.01)

(21) 출원번호 10-2014-0040544

(22) 출원일자 2014년04월04일

심사청구일자 2014년04월04일

(71) 출원인

계명대학교 산학협력단

대구광역시 달서구 달구벌대로 1095 (신당동)

(72) 발명자

최해운

대구 달성군 다사읍 대실역남로 33, 307동 1702호
(죽곡청아람리슈빌3단지아파트)

(74) 대리인

김일환

전체 청구항 수 : 총 12 항

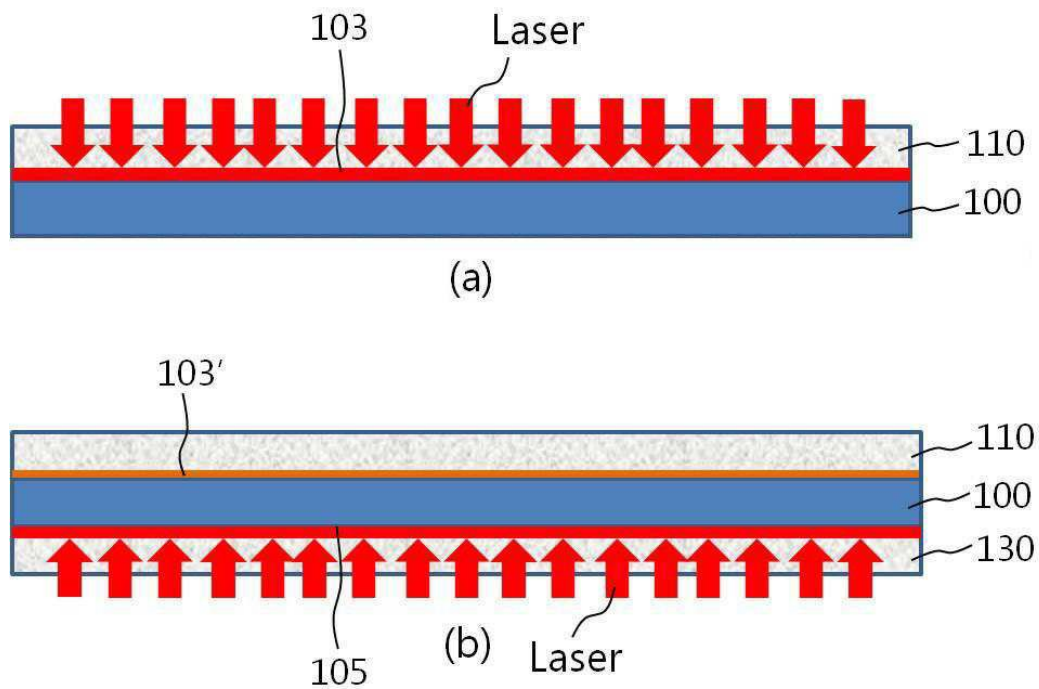
(54) 발명의 명칭 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법

(57) 요약

본 발명은 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법에 관한 것으로, (a) 연료전지에 사용되는 분리막 상면에 제1 세라믹 박판을 위치시키고, 상기 제1 세라믹 박판에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막에 상기 제1 세라믹 박판을 부착하는 단계; 및 (b) 상기 분리막 하면에 제2 세라믹 박판을 위치시키고, 상기

(뒷면에 계속)

대표도 - 도1



제2 세라믹 박판에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막에 상기 제2 세라믹 박판을 부착하는 단계를 포함하되, 상기 레이저광이 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판 내부를 통과하며 발생하는 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판과 상기 분리막 계면의 열을 통해 상기 분리막 양면에 상기 세라믹 박판을 부착시키는 것을 특징으로 한다.

이와 같은, 본 발명은 공정시간을 최대로 단축할 수 있을 뿐만 아니라, 레이저광의 조사 영역을 이동시키기 위한 스테이지 장치가 필요 없을 뿐만 아니라, 종래의 세라믹 물질의 바인더 또는 분말을 분사하여 코팅하는 방식과 달리 레이저 조사 후에 소결하는 과정이 필요 없다는 점에서 공정이 간단하고 공정단가를 크게 낮출 수 있다는 점에서 큰 장점이 있다.

명세서

청구범위

청구항 1

(a) 연료전지에 사용되는 분리막 상면에 제1 세라믹 박판을 위치시키고, 상기 제1 세라믹 박판에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막에 상기 제1 세라믹 박판을 부착하는 단계; 및

(b) 상기 분리막 하면에 제2 세라믹 박판을 위치시키고, 상기 제2 세라믹 박판에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막에 상기 제2 세라믹 박판을 부착하는 단계를 포함하되,

상기 레이저광이 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판 내부를 통과하며 발생하는 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판과 상기 분리막 계면의 열을 통해 상기 분리막 양면에 상기 세라믹 박판을 부착시키는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 레이저광의 조사는,

상기 제1 세라믹 박판 상부면에 일정간격으로 매트릭스 형태의 다수의 레이저 스팟이 형성되도록 조사하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 3

제1항에 있어서,

상기 레이저광의 조사는,

상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판 면적에 대응하여 하나의 레이저 스팟을 형성하도록 조사하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 4

제3항에 있어서,

상기 레이저광의 조사는, 레이저 장치 및 상기 세라믹 박판 사이에 렌즈를 구비하고 레이저 빔을 균질화 하여 대면적에 조사하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 레이저광의 조사는,

상기 제1 세라믹 박판 상부면에 일정간격으로 스트라이프 형태의 다수의 레이저 조사라인 또는 나선 원형의 조사라인을 형성하며 조사하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 6

제1항 내지 제5항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 분리막의 두께가 $20\mu\text{m}$ 내지 $50\mu\text{m}$ 이고,

상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판의 두께가 $200\mu\text{m}$ 내지 $500\mu\text{m}$ 인 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 7

(a) 연료전지용 분리막 상하면 각각에 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판을 위치시키는 단계;

(b) 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판에 동시에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막에 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판을 부착하는 단계를 포함하되,

상기 레이저광이 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판 내부를 통과하며 발생하는 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판과 상기 분리막 계면의 열을 통해 상기 분리막 양면에 상기 세라믹 박판을 부착시키는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 8

제7항에 있어서,

상기 레이저광의 조사는,

상기 제1 세라믹 박판 상부면에 일정간격으로 매트릭스 형태의 다수의 레이저 스팟이 형성되도록 조사하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 9

제7항에 있어서,

상기 레이저광의 조사는,

상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판 면적에 대응하여 하나의 레이저 스팟을 형성하도록 조사하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 10

제9항에 있어서,

상기 레이저광의 조사는, 레이저 장치 및 상기 세라믹 박판 사이에 렌즈를 구비하고 레이저 빔을 균질화 하여 대면적에 조사하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 11

제7항에 있어서,

상기 레이저광의 조사는,

상기 제1 세라믹 박판 상부면에 일정간격으로 스트라이프 형태의 다수의 레이저 조사라인 또는 나선 원형의 조사라인을 형성하며 조사하는 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

청구항 12

제7항 내지 제11항 중 어느 한 항에 있어서,

상기 분리막의 두께가 20 μm 내지 50 μm 이고,

상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판의 두께가 200 μm 내지 500 μm 인 것을 특징으로 하는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 분리막과 세라믹 박판 접합방법에 관한 것으로, 보다 상세하게는 레이저를 이용한 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 리튬 이차 전지는 리튬 이온이 양극 및 음극에서 인터칼레이션(intercalation)/디인터칼레이션(deintercalation)될 때의 산화, 환원 반응에 의하여 전기 에너지를 생성한다. 리튬 이차 전지는 리튬 이온을 가역적으로 인터칼레이션/디인터칼레이션할 수 있는 물질을 양극과 음극의 활물질로 사용하고, 상기 양극과 음극 사이에 유기 전해액 또는 폴리머 전해액을 충전시켜 제조한다.

[0003] 리튬 이차 전지는 음극판과 양극판이 분리막을 사이에 두고 일정 형태로 감기거나 적층되는 전극조립체와, 이 전극조립체와 전해액이 수납되는 케이스로 구성된다.

[0004] 리튬 이차 전지의 분리막의 기본적인 기능은 양극과 음극을 분리하여 단락을 방지하는 것이며, 나아가 전지반응에 필요한 전해액을 흡입하여 높은 이온전도도를 유지하는 것이 중요하다. 특히, 리튬 이차 전지의 경우에는 전지반응을 저해하는 물질의 이동을 방지하거나 이상이 발생할 때에 안전성을 확보할 수 있는 부가적인 기능이 요구된다.

[0005] 고에너지 밀도 및 대용량의 리튬이온 이차전지, 리튬이온 고분자전지를 포함하는 이차전지는 상대적으로 높은 작동온도범위를 지녀야 하며, 지속적으로 고율 충방전 상태로 사용될 때 온도가 상승되므로, 이들 전지에 사용되는 분리막은 보통의 분리막에서 요구되는 것보다도 높은 내열성과 열 안정성이 요구되고 있다. 또한, 급속 충방전 및 저온에 대응할 수 있는 높은 이온전도도 등 우수한 전지특성을 지녀야 한다.

[0006] 분리막은 전지의 양극과 음극 사이에 위치하여 절연시키며, 전해액을 유지시켜 이온전도의 통로를 제공하며, 전지의 온도가 지나치게 높아지면 전류를 차단하기 위하여 분리막의 일부가 용융되어 기공을 막는 폐쇄 기능을 갖고 있다.

[0007] 온도가 더 올라가 분리막이 용융되면 큰 홀이 생겨 양극과 음극 사이에 단락이 발생된다. 이 온도를 단락온도(SHORT CIRCUIT TEMPERATURE)라 하는데, 일반적으로 분리막은 낮은 폐쇄(SHUTDOWN) 온도와 보다 높은 단락온도를 가져야 한다.

[0008] 폴리에틸렌 분리막의 경우 전지의 이상 발열시 150℃ 이상에서 수축하여 전극 부위가 드러나게 되어 단락이 유발될 가능성이 있다. 그러므로, 고에너지 밀도화, 대형화 이차전지를 위하여 폐쇄기능과 내열성을 모두 갖는 것이 매우 중요하다. 즉, 내열성이 우수하여 열 수축이 작고, 높은 이온전도도에 따른 우수한 싸이클 성능을 갖는 분리막이 필요하다.

[0009] 분리막로의 재질로는 통상 폴리프로필렌, 폴리에틸렌 등의 폴리올레핀계 미다공성 고분자막 또는 이들의 다중막이 사용된다. 기존의 분리막은 다공막층이 시트(sheet) 또는 필름(film) 형상이므로, 내부 단락이나 과충전에 의한 발열에 의해 다공막의 기공 막힘과 함께 시트상 분리막도 수축하는 결점을 가진다. 따라서 시트상 분리막이 전지의 내부 발열에 의해 수축이 일어나서 쪼그라들게 되면 분리막이 줄어들어서 없어진 부분은 양극과 음극이 직접 닿게 되므로 발화, 파열, 폭발에 이르게 된다.

[0010] 일본 공개특허 2005-209570에서는 고에너지 밀도화 및 대형화시 충분한 안전성을 확보하기 위하여, 폴리올레핀 분리막을 내열성 수지에 침지하고 있으나, 폴리올레핀 분리막의 기공을 막아 리튬이온의 이동을 제한하므로 충방전 특성의 저하가 일어나게 되어 내열성을 확보하였다 하더라도 자동차용과 같은 대용량 전지의 요구에는 많이 못 미치고 있다. 또한, 내열성 수지의 침지로 인해 폴리올레핀 다공막의 기공구조가 막히지 않는다

하더라도, 보편적으로 사용되는 폴리올레핀 분리막의 기공도는 40% 정도이고 기공크기 또한 수십 nm 크기이므로 대용량 전지를 위한 이온전도도에 한계가 있다.

- [0011] 또한, 필름상 분리막은 과충전시에 전면적인 리튬 덴드라이트(dendrite)가 형성된다. 이는 필름 형상이기 때문에 음극과 필름과의 들뜬 공간이 생기게 되고 음극 안쪽으로 들어가지 못한 리튬 이온이 음극 표면, 즉 음극과 필름과의 들뜬 공간에 쌓이게 되어 리튬 금속상으로 석출되기 때문이다. 리튬이 전면적으로 석출되면 석출된 리튬 덴드라이트가 필름상의 분리막을 뚫어 양극과 음극이 접촉될 수도 있고, 동시에 리튬 금속과 전해액의 부반응이 진행되고, 이러한 반응에 따른 발열과 가스 발생에 의해 전지가 발화, 폭발하는 문제점이 있다.
- [0012] 더욱이, 필름상 분리막은 폴리올레핀계 필름 분리막으로서 내부 단락시 초기 발열에 의해 손상된 부분에 더하여 그 주변 필름이 계속 수축되거나 용융되어 필름 분리막이 타서 없어지는 부분이 넓어지게 되므로 더욱 하드(hard)한 쇼트를 발생시킬 수 있다. 즉, 전지의 온도가 외부 열원이 등의 이유로 갑자기 상승할 경우, 분리막의 미세 통공이 폐쇄됨에도 불구하고 전지의 온도 상승이 일정 시간 계속되어 분리막의 파손이 생기는 문제점이 있다.
- [0013] 또한, 고밀도 활물질층에 의해 전지가 고용량화되어 극판의 밀도가 높아지게 되면 극판에 전해액이 스며들지 않아 전지의 주액 속도가 느려지거나 필요한 전해액량 만큼 주액이 되지 못하는 문제점이 있다.
- [0014] 더불어, 전지의 고용량화에 따라 이차 전지에서 단시간에 많은 전류가 흐르는 경우, 분리막의 미세 통공이 폐쇄되어도 전류 차단에 의해 전지의 온도가 낮아지기 보다는 이미 발생된 열에 의해 분리막의 용융이 계속되어 분리막의 파손에 의한 내부 단락이 발생할 가능성이 커지는 문제점이 있다.
- [0015] 따라서, 전극 사이의 내부 단락을 높은 온도에서도 안정적으로 방지하는 것이 요청됨에 따라, 세라믹 필러의 입자가 내열성 바인더와 결합되어 이루어지는 다공성 세라믹층으로 구성된 분리막이 제안되고 있다.
- [0016] 상기 세라믹층은 내부 단락에 대한 안전성이 높고, 극판 상에 코팅되어 접촉되므로 내부 단락시 수축되거나 녹는 문제가 없다. 또한, 높은 공극율의 세라믹 분말을 사용함으로써 양호한 고율 충방전 특성을 가지며, 전해액을 빨리 흡습하므로 전해액의 주액 속도를 향상시킨다.
- [0017] 상기와 같이, 세라믹층은 양극판과 음극판이 대향하는 두 면 중 적어도 어느 한 면의 전극 집전체와 전극 활물질층에 전체적으로 형성된다. 따라서, 종래에 세라믹층은 양극판과 음극판에서 활물질층이 형성되지 않은 시작단과 끝단의 무지부를 제외한 모든 면에 전체적으로 적층함으로써 균일한 두께를 확보하기 어려워 품질관리가 어려우며, 재료비 증가에 따른 생산 효율이 감소되는 문제점이 있다.
- [0018] 또한, 세라믹층은 일반적으로 동종의 세라믹 필러가 사용되어 단일층으로 형성되는데, 세라믹층이 미세한 작은 입자만으로 이루어진 단일층이라면, 너무 치밀하여 리튬 이온의 원활한 이동에 방해가 된다. 따라서, 고율 충방전이나 저온충방전 용량이 적어지고, 이때, 같은 양의 바인더를 쓴다면 입자가 작을수록 표면적이 넓어지므로 바인더의 절대량이 부족하게 되어 연성(flexibility)도 나빠지게 되는 문제점이 있다.
- [0019] 더욱이, 세라믹 물질과 바인더로 이루어진 다공성 세라믹층(즉, 세라믹 분리막)을 구비하는 리튬 이차전지는 음극 또는 양극의 활물질에 세라믹 슬러리를 캐스팅하여 1~40 μ m 두께의 박막으로 형성할 때 전체 면적에 걸쳐서 균일하게 일정한 두께로 세라믹 물질의 탈리 없이 형성하는 것은 매우 높은 공정 정밀도를 요구하며 음극과 양극을 적층하여 전지를 조립할 때 크랙이 발생하는 문제가 있다.
- [0020] 한편, 국제공개 WO 2001/89022호에는 초극세 섬유상의 다공성 고분자 분리막을 포함하는 리튬이차전지 및 그 제조방법에 관한 것으로서, 다공성 고분자 분리막이 하나 이상의 고분자를 용융시키거나 또는 하나 이상의 고분자를 유기 용매에 용해시켜 얻어진 용융 고분자 또는 고분자 용액을 전하유도 방사장치(electrospinning machine)의 배럴(barrel)에 투입한 후, 용융 고분자 또는 고분자 용액을 기관상에 노즐을 통하여 전하유도 방사시켜 다공성 분리막을 형성시키는 방법이 개시되어 있다.
- [0021] 또한, 상기 다공성 고분자 분리막은 하나 이상의 고분자를 유기 용매에 용해시킨 고분자 용액을 전기방사(electrospinning)에 의해 50 μ m 두께로 제조한 후, 리튬이차전지를 제조하기 위하여 음극과 양극 사이에 다공성 고분자 분리막을 삽입하여 라미네이션으로 일체화시키고 있다.
- [0022] 또한, 한국 공개특허 제2008-13208호에는 내열성 초극세 섬유상 분리막 및 그 제조 방법과, 이를 이용한 이차전지가 개시되어 있으며, 내열성 초극세 섬유상 분리막은 전기방사(ELECTROSPINNING) 방법에 의해 제조되며, 용점이 180℃ 이상이거나 용점이 없는 내열성 고분자 수지의 초극세 섬유로 이루어지거나, 혹은 내열성 고분자 수지

의 초극세 섬유와 함께 전해액에 팽윤이 가능한 고분자 수지의 초극세 섬유상으로 이루어져 있다.

[0023] 또한, 상기 공개특허 제2008-13208호에서는 분리막에 기계적 특성, 이온전도도 및 전기 화학적 특성을 향상시키기 위하여 TiO_2 등의 무기 첨가제를 1-95중량% 함유하는 것을 제안하고 있다.

[0024] 그러나, 무기 첨가제는 방사용액에 다량 함유되는 경우 분산도가 떨어져서 방사가 불가능한 문제를 안고 있으며, 고분자 물질과 함께 방사되는 경우 오히려 방사된 섬유에서 불순물로 작용하기 때문에 강도를 떨어뜨리는 문제가 있다.

선행기술문헌

특허문헌

[0025] (특허문헌 0001) 대한민국 공개특허 제2008-13208호

(특허문헌 0002) 대한민국 공개특허 제2008-13208호

발명의 내용

해결하려는 과제

[0026] 상술한 문제를 해결하고자 하는 본 발명의 과제는 낮은 에너지의 레이저로도 분리막과 세라믹 박판을 접합할 수 있을 뿐만 아니라, 공정속도 및 정밀성을 크게 높일 수 있고, 공정시간을 최대로 단축할 수 있으며, 공정이 간단하고 공정 단가를 크게 낮출 수 있는 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법을 제공하고자 함이다.

과제의 해결 수단

[0027] 상술한 과제를 해결하기 위한 본 발명의 제1 특징은, (a) 연료전지에 사용되는 분리막 상면에 제1 세라믹 박판을 위치시키고, 상기 제1 세라믹 박판에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막에 상기 제1 세라믹 박판을 부착하는 단계; 및 (b) 상기 분리막 하면에 제2 세라믹 박판을 위치시키고, 상기 제2 세라믹 박판에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막에 상기 제2 세라믹 박판을 부착하는 단계를 포함하되, 상기 레이저광이 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판 내부를 통과하며 발생하는 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판과 상기 분리막 계면의 열을 통해 상기 분리막 양면에 상기 세라믹 박판을 부착시키는 것이다.

[0028] 여기서, 상기 레이저광의 조사는, 상기 제1 세라믹 박판 상부면에 일정간격으로 매트릭스 형태의 다수의 레이저 스팟이 형성되도록 조사하는 것이 바람직하고, 상기 레이저광의 조사는, 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판 면적에 대응하여 하나의 레이저 스팟을 형성하도록 조사하는 것이 바람직하다.

[0029] 또한, 바람직하게는 상기 레이저광의 조사는, 레이저 장치 및 상기 세라믹 박판 사이에 렌즈를 구비하고 레이저 빔을 균질화 하여 대면적에 조사하는 것일 수 있고, 상기 레이저광의 조사는, 상기 제1 세라믹 박판 상부면에 일정간격으로 스트라이프 형태의 다수의 레이저 조사라인 또는 나선 원형의 조사라인을 형성하며 조사하는 것일 수 있다.

[0030] 더하여, 상기 분리막의 두께가 $20\mu m$ 내지 $50\mu m$ 이고, 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판의 두께가 $200\mu m$ 내지 $500\mu m$ 인 것이 바람직하다.

[0031] 그리고 본 발명의 제2 특징은 (a) 연료전지용 분리막 상하면 각각에 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판을 위치시키는 단계; (b) 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판에 동시에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막에 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판을 부착하는 단계를 포함하되, 상기 레이저광이 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판 내부를 통과하며 발생하는 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판과 상기 분리막 계면의 열을 통해 상기 분리막 양면에 상기 세라믹 박판을 부착시키는 것이다.

[0032] 여기서, 상기 레이저광의 조사는, 상기 제1 세라믹 박판 상부면에 일정간격으로 매트릭스 형태의 다수의 레이저 스팟이 형성되도록 조사하는 것이 바람직하고, 상기 레이저광의 조사는, 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹

박판 면적에 대응하여 하나의 레이저 스팟을 형성하도록 조사하는 것이 바람직하다.

[0033] 또한, 상기 레이저광의 조사는, 레이저 장치 및 상기 세라믹 박판 사이에 렌즈를 구비하고 레이저 빔을 균질화하여 대면적에 조사하는 것이 바람직하고, 상기 레이저광의 조사는, 상기 제1 세라믹 박판 상부면에 일정간격으로 스트라이프 형태의 다수의 레이저 조사라인 또는 나선 원형의 조사라인을 형성하며 조사하는 것이 바람직하다.

[0034] 더하여, 바람직하게는 상기 분리막의 두께가 20 μ m 내지 50 μ m 이고, 상기 제1 세라믹 박판 및 제2 세라믹 박판의 두께가 200 μ m 내지 500 μ m 인 것일 수 있다.

발명의 효과

[0035] 이와 같은 본 발명은, 종래의 금속간 접합과 같이 고밀도의 레이저광을 이용하여 접합 홀을 이용하는 접합과는 달리 낮은 에너지의 레이저로도 분리막과 세라믹 박판을 접합할 수 있을 뿐만 아니라, 레이저광의 산란특성으로 인하여, 진입되는 초기의 레이저 조사점(스팟)이 계면에서 넓은 분포영역의 에너지 전달영역을 형성하고 가열되어 용융접합이 가능하다는 점에서 공정속도 및 정밀성을 크게 높일 수 있는 장점이 있다.

[0036] 또한, 본 발명은 공정시간을 최대로 단축할 수 있을 뿐만 아니라, 레이저광의 조사 영역을 이동시키기 위한 스테이지 장치가 필요 없을 뿐만 아니라, 종래의 세라믹 물질의 바인더 또는 분말을 분사하여 코팅하는 방식과 달리 레이저 조사 후에 소결하는 과정이 필요없다는 점에서 공정이 간단하고 공정단가를 크게 낮출 수 있다는 점에서 큰 장점이 있다.

[0037] 더하여, 계면에 전달되는 열을 통해 일부 영역에서 용융접합시키는 방법을 제안함으로써 기공 막힘을 방지할 수 있는 효율적이고 양질의 접합방법을 제안한다.

도면의 간단한 설명

[0038] 도 1은 본 발명의 실시예에 따른 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법의 공정을 나타낸 모식도이고,
 도 2는 본 발명의 또 다른 실시예로서, 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법의 공정 모식도이고,
 도 3은 본 발명의 또 다른 실시예로서, 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법에서 매트릭스 형태의 레이저광 조사패턴을 나타내고,
 도 4는 본 발명의 또 다른 실시예로서, 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법에서 하나의 스팟으로 형성된 원형의 레이저광 조사패턴을 나타내고,
 도 5는 본 발명의 또 다른 실시예로서, 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법에서 스트라이프 형태의 레이저광 조사패턴을 나타내고,
 도 6은 본 발명의 실시예에 따른 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법에 적용되는 세라믹층의 레이저 투과에 따른 에너지 산란 및 흡수에 대한 시뮬레이션 그래프이고,
 도 7은 세라믹 층의 레이저 산란에 의한 에너지 분포를 나타낸 시뮬레이션 사진이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

[0039] 본 발명의 이점 및 특징, 그리고 그것을 달성하는 방법은 첨부되는 도면과 함께 상세하게 후술되어 있는 실시예들을 통해 설명될 것이다. 그러나 본 발명은 여기에서 설명되는 실시예들에 한정되지 않고 다른 형태로 구체화될 수도 있다. 단지, 본 실시예들은 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 본 발명의 기술적 사상을 용이하게 실시할 수 있을 정도로 상세히 설명하기 위하여 제공되는 것이다.

[0040] 도면들에 있어서, 본 발명의 실시예들은 도시된 특정 형태로 제한되는 것이 아니며 명확성을 기하기 위하여 과장된 것이다. 또한 명세서 전체에 걸쳐서 동일한 참조번호로 표시된 부분들은 동일한 구성요소를 나타낸다.

[0041] 본 명세서에서 "및/또는"이란 표현은 전후에 나열된 구성요소들 중 적어도 하나를 포함하는 의미로 사용된다. 또한, 단수형은 문구에서 특별히 언급하지 않는 한 복수형도 포함한다. 또한, 명세서에서 사용되는 "포함한다" 또는 "포함하는"으로 언급된 구성요소, 단계, 동작 및 소자는 하나 이상의 다른 구성요소, 단계, 동작, 소자 및 장치의 존재 또는 추가를 의미한다.

- [0042] 이하에서 본 발명의 바람직한 실시예를 도면을 참조하여 상세히 설명하기로 한다.
- [0043] 도 1은 본 발명의 실시예에 따른 연료전지용 분리막과 세라믹 박판 접합방법의 공정을 나타낸 모식도이다. 도 1에 나타난 바와 같이, 본 발명의 실시예에 따른 연료전지용 분리막(100)의 세라믹 접합방법은, (a) 연료전지에 사용되는 분리막(100) 상면에 제1 세라믹 박판(110)을 위치시키고, 상기 제1 세라믹 박판(110)에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막(100)에 상기 제1 세라믹 박판(110)을 부착하는 단계; 및 (b) 상기 분리막(100) 하면에 제2 세라믹 박판(130)을 위치시키고, 상기 제2 세라믹 박판(130)에 균일하게 레이저광을 일정시간 동안 조사하여 상기 분리막(100)에 상기 제2 세라믹 박판(130)을 부착하는 단계를 포함하되, 상기 레이저광이 제1 세라믹 박판(110) 및 제2 세라믹 박판(130) 내부를 통과하며 발생하는 상기 제1 세라믹 박판(110) 및 제2 세라믹 박판(130)과 상기 분리막(100) 계면의 열을 통해 상기 분리막(100) 양면에 상기 세라믹 박판을 부착시키는 것을 특징으로 한다.
- [0044] 이와 같이 본 발명의 실시예는 연료전지용 분리막(100) 양면에 내열성 향상을 위해, 세라믹 박판을 접합하는 방법을 제안하는 것으로, 분리막(100)에 양면에 세라믹 박판을 위치시켜 레이저광을 조사함으로써, 레이저광이 세라믹 박판 내부를 통과 산란되면서 전달되는 에너지로 인하여 분리막(100)과 세라믹 박판의 계면에 발생하는 열을 통해 분리막(100)의 용융 접합되는 방법을 제공한다.
- [0045] 이처럼 본 발명의 실시예는 세라믹 박판의 투과광 산란 성질을 이용하여, 분리막(100) 양면에 세라믹 박판을 위치시켜 레이저를 넓은 분포로 조사하여, 레이저가 세라믹 박판을 투과하며 산란되어 보다 넓은 분포로 계면에 에너지를 전달하여 균일하고 빠르게 접합할 수 있는 방법을 제공한다.
- [0046] 도 1에 나타난 바와 같이, (a) 단계에서, 연료전지용 분리막(100) 상면에 제1 세라믹 박판(110)을 위치시키고, 레이저를 이용하여 레이저 광을 넓은 분포로 고르게 일정시간 동안 상기 세라믹 박판 상부면에 조사시킨다. 세라믹 박판에 레이저를 조사하게 되면, 레이저광이 세라믹 박판 내부로 침투하는 깊이에 따라 산란하거나 침투 영역에서 세라믹 박판이 에너지를 흡수하게 되어 가열되게 되는데, 상기 분리막(100)과 세라믹 박판의 계면(103)에 에너지가 전달되어 가열되게 되면, 분리막(100)의 일부 영역에서 용융되면서 상기 세라믹 박판에 접합되게 된다.
- [0047] 그러므로, 본 발명의 실시예는 종래의 금속간 또는 이종물질간 레이저 접합방법으로, 상부의 시료를 레이저를 조사하여 홀을 형성하고, 접합 대상의 시료가 용융되어 상기 홀에 모세관 형상으로 채워지면 접합시키는 방법과 달리, 레이저광이 세라믹 내부에서의 산란과 에너지 전달 특성을 이용해, 미리 접촉되어 있는 분리막(100)이 상기 레이저광 스팟을 중심으로 특정 영역에서 가열되고 용융되어 세라믹 박판을 접합한다는 점에서 큰 차이점이 있다.
- [0048] 레이저광의 조사는 넓은 세라믹 박판에 일정 간격으로 계면영역에 에너지가 전달되어 그 영역에서 분리막(100)의 용융되어 접합될 수 있도록 미리 설정된 시간 동안 다수 조사하여 세라믹 박판 전 영역에 골고루 분포하도록 조사함으로써, 균일하게 접합할 수 있게 되고, 보다 정밀하고 강력하게 접합할 수 있다는 큰 장점이 있다.
- [0049] 그리고 나서, (b) 단계에서, 다시 분리막(100) 하부면에 제2 세라믹 박판(130)을 위치시키고 (a) 단계와 같이 세라믹 박판 상부에 레이저광을 넓은 분포 영역으로 조사시켜 접합시키게 된다.
- [0050] 여기서, 연료전지용 분리막(100) 재질로는 통상 폴리프로필렌, 폴리에틸렌 등의 폴리올레핀계 미다공성 고분자막 또는 이들의 다중막이 사용된다. 두께는 약 20 μ m 내지 50 μ m로 형성하여 양면에 세라믹 박판을 접합한다.
- [0051] 그러나 분리막(100)은 다공막층이 시트(sheet) 또는 필름(film) 형상이므로, 내부 단락이나 과충전에 의한 발열에 의해 다공막의 기공 막힘과 함께 시트상 분리막(100)도 수축할 수 있고, 시트상 분리막(100)이 전지의 내부 발열에 의해 수축이 일어나서 쪼그라들게 되면 분리막(100)이 줄어들어서 없어진 부분은 양극과 음극이 직접 닿게 되므로 발화, 과열, 폭발에 이를 수 있기 때문에, 본 발명의 실시예에서는 고분자 분리막(100) 양면에 세라믹 박판을 접합시켜 외부열을 차단시켜 내열성을 강화시키고, 레이저광이 분리막(100)까지 투과시켜 접합시키는 방식이 아닌 계면에 전달되는 열을 통해 일부 영역에서 용융접합시키는 방법을 제안함으로써 기공 막힘을 방지할 수 있는 효율적이고 양질의 접합방법을 제안한다.
- [0052] 그리고, 세라믹 박판은 내부 단락에 대한 안전성이 높고, 높은 공극율의 다공성 세라믹 박판을 사용함으로써 양호한 고율 충방전 특성을 가지며, 전해액을 빨리 흡습하므로 전해액의 주액 속도를 향상시키는 장점이 있다.
- [0053] 또한, 동종의 세라믹 필러가 사용되어 단일층으로 형성되는데, 세라믹층이 미세한 작은 입자만으로 이루어진 단

일층이라면, 너무 치밀하여 리튬 이온의 원활한 이동에 방해가 되므로, 고율 충방전이나 저온충방전 용량이 적어지고, 바인더를 쓴다면 입자가 작을수록 표면적이 넓어지므로 바인더의 절대량이 부족하게 되어 연성(flexibility)도 나빠지게 되는 문제점이 있었지만, 본 발명의 실시예에서는 대략 200 μm 내지 500 μm 정도의 다공성 세라믹 박판을 사용함으로써 상술한 문제를 상당부분 해소할 수 있는 장점이 있다.

[0054] 도 2는 본 발명의 또 다른 실시예로서, 연료전지용 분리막(100)의 세라믹 접합방법의 공정 모식도이다. 도 2에 나타난 바와 같이, 본 발명의 실시예는 도 1의 실시예와는 달리 분리막(100) 상면 또는 하면 어느 하나에 레이저광을 이용하여 세라믹 박판을 접합하고, 그 반대면에 다시 레이저광을 조사하여 접합하는 방법이 아니라, 분리막(100) 양면에 홀더 등을 통하여 세라믹 박판을 위치시키고, 세라믹 박판 양쪽에서 2개의 레이저광을 동시에 조사하여 한번에 접합시키는 방법을 제안한다.

[0055] 이렇게 동시에 양면을 접합하게 되면, 보다 빨리 접합할 수 있을 뿐만 아니라, 한쪽면에 먼저 접합한 후에 발생할 수 있는 분리막(100)의 변형으로 다른 면의 접합의 어려움을 방지할 수 있다는 장점이 있다. 그리고, 레이저광은 분리막(100)을 사이에 두고 상하 동일한 영역에 동시에 조사하여 접합하는 방법도 가능하고, 서로 다른 영역에 양쪽에서 조사하며 접합하는 방법도 가능하다.

[0056] 도 3 내지 도 5는 본 발명의 또 다른 실시예로서, 연료전지용 분리막(100)의 세라믹 접합방법에서 서로 다른 조사패턴을 갖는 접합방법을 예시한 도면이다. 도 3은 매트릭스 형태의 조사패턴이고, 도 4는 하나의 스폿으로 형성된 원형패턴이고, 도 5는 직선이 서로 일정간격을 두고 형성되는 스트라이프 패턴이다.

[0057] 도 3에 나타난 바와 같이, 레이저 스폿(10)이 일정 간격으로 다수 형성되는 매트릭스 패턴으로서, 레이저광을 어느 한 스폿에 일정 시간동안 조사하고, 상하좌우 방향을 일정간격으로 다시 하나의 스폿(10)에 일정 시간동안 조사하는 것을 반복하는 공정을 나타낸다. 이와 같은 방법은 촘촘하고 정밀하며 균일하게 세라믹 박판을 분리막(100)에 접합할 수 있게 되어 접합의 질을 상당히 높일 수 있는 장점이 있다.

[0058] 도 4에 나타난 바와 같이, 세라믹 박판에 하나의 레이저 스폿으로 분리막(100)과 접합하는 방법으로, 레이저광 및 세라믹 박판 사이에 렌즈를 설치하여 렌즈의 간격조정을 통해 포커싱 및 스폿의 사이즈를 세라믹 박판의 면전과 동일하게 하여 조사하는 방식을 적용한다. 이와 같은 방법을 적용하면, 렌즈 등을 이용하여 한번에 레이저광을 조사하여 접합하게 되므로 공정시간을 최대로 단축할 수 있을 뿐만 아니라, 레이저광의 조사 영역을 이동시키기 위한 스테이지 장치가 필요 없기 때문에 생산단가를 크게 낮출 수 있는 장점이 있다.

[0059] 레이저광의 조사 영역을 변경하는 방식은 시료를 고정하는 스테이지 장치를 2차원에서 정밀하게 이동할 수 있는 고가의 스테이지 장치가 필요하거나 레이저 장치 조사를 정밀하게 변경할 수 있는 리니어 이동 장치를 레이저 장치에 설치되어야 한다는 점에서 제조 장치의 구성을 간단하게 하고 단가를 크게 낮출 수 있는 장점이 있게 된다.

[0060] 그리고, 도 5에 나타난 바와 같이, 레이저 조사를 일정간격의 직선을 다수 배치되도록 스트라이프 패턴(50)을 형성하며 조사하는 것도 가능하다. 이와 같은 스트라이프 패턴(50)은 레이저가 일정 시간 동안 조사하면, 시료를 고정한 스테이지가 일정한 속도로 이동하면서 직선의 조사패턴을 형성하고, 다시 수직인 방향으로 일정 간격으로 이동하여 직선패턴을 다수 반복하여 형성하게 된다.

[0061] 스트라이프 패턴(50)은 다수의 레이저 스폿이 매트릭스 형태로 형성하는 도 3의 실시예와는 달리 직선패턴을 다수 형성하는 방법으로 레이저 조사 공정이 보다 간단하고 시간을 단축할 수 있을 뿐만 아니라, 상대적으로 정밀성을 요하지 않는 장점이 있다.

[0062] 도 6은 본 발명의 실시예에 따른 연료전지용 분리막(100)의 세라믹 접합방법에 적용되는 세라믹층의 레이저 투과에 따른 에너지 산란 및 흡수에 대한 시뮬레이션 그래프이고, 도 7은 세라믹 층의 레이저 산란에 의한 에너지 분포를 나타낸 시뮬레이션 사진이다.

[0063] 도 6 및 도 7에 나타난 바와 같이, 레이저광이 세라믹층에 투과되면, 세라믹 층의 깊이에 따라 산란 및 흡수 에너지가 점점 줄어들어 댐핑 오실레이션 형태의 투과 모델을 보여주는데, 이는 레이저광이 세라믹 입자와 충돌하며 입자에 에너지가 전달되는 경우 일부는 흡수하고, 일부는 산란되어 전송되는 과정을 나타내게 된다.

[0064] 이와 같은 시뮬레이션 결과를 볼 때, 본 발명의 실시예에서 적용되는 레이저 조사에 의한 분리막(100) 및 세라믹 박판의 계면에 레이저광 에너지를 전달한 후 조사영역의 분리막(100) 계면을 가열시켜 용융접합할 수 있음을 알 수 있고, 종래의 금속간 접합과 같이 고밀도의 레이저광을 이용하여 접합 홀을 이용하는 접합과는 달리 낮은 에너지의 레이저로도 분리막(100)과 세라믹 박판을 접합할 수 있을 뿐만 아니라, 레이저광의 산란특성으로 인하여, 진입되는 초기의 레이저 조사점(스팟)이 계면에서 넓은 분포영역의 에너지 전달영역을 형성하고 가열되어 용융접합이 가능하다는 점에서 공정속도 및 정밀성을 크게 높일 수 있는 장점이 있다.

[0065] 그리고, 본 발명의 실시예에는 종래의 세라믹 물질의 바인더 또는 분말을 분사하여 코팅하는 방식과 달리 레이저 조사 후에 소결하는 과정이 필요 없다는 점에서 공정이 간단하고 공정단가를 낮출 수 있다는 점에서 큰 장점이 있다.

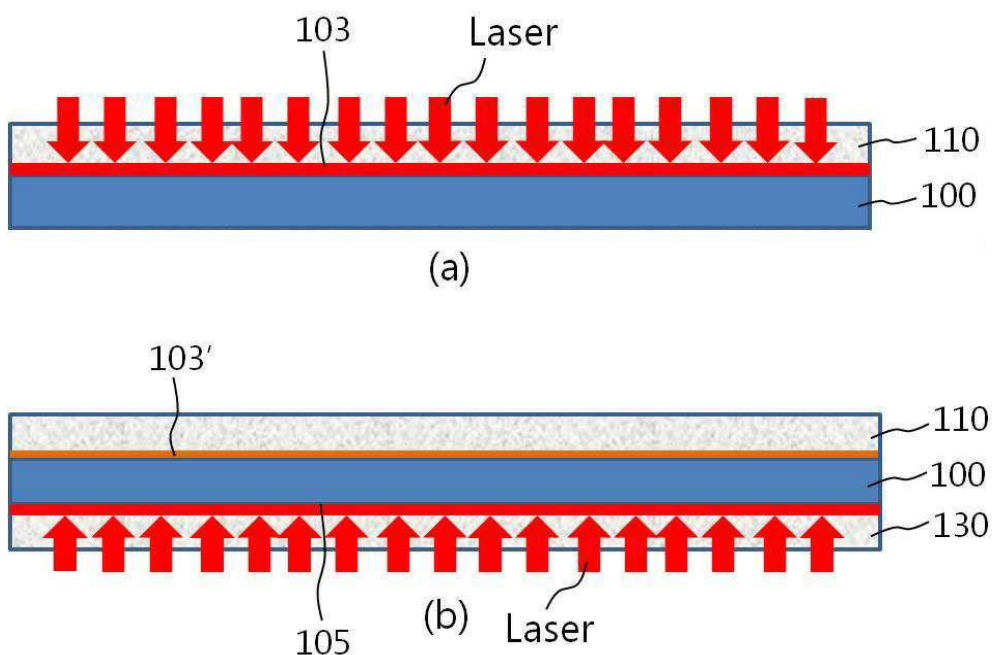
[0066] 이상의 설명에서 본 발명은 특정의 실시 예와 관련하여 도시 및 설명하였지만, 특허청구범위에 의해 나타난 발명의 사상 및 영역으로부터 벗어나지 않는 한도 내에서 다양한 개조 및 변화가 가능하다는 것을 당 업계에서 통상의 지식을 가진 자라면 누구나 쉽게 알 수 있을 것이다.

부호의 설명

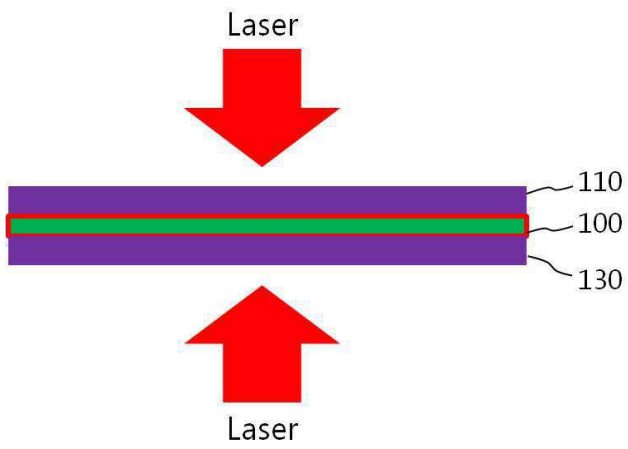
[0067] 100: 분리막, 110: 제1 세라믹 박판, 130: 제2 세라믹 박판

도면

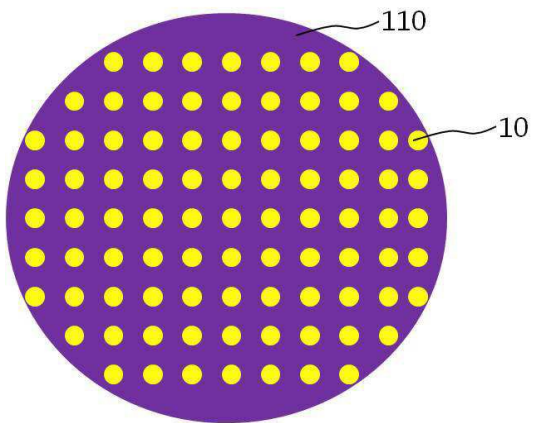
도면1



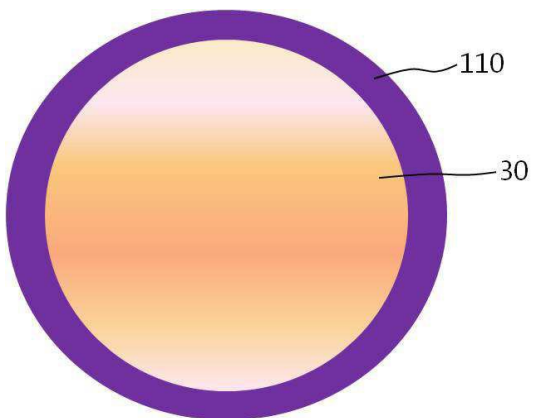
도면2



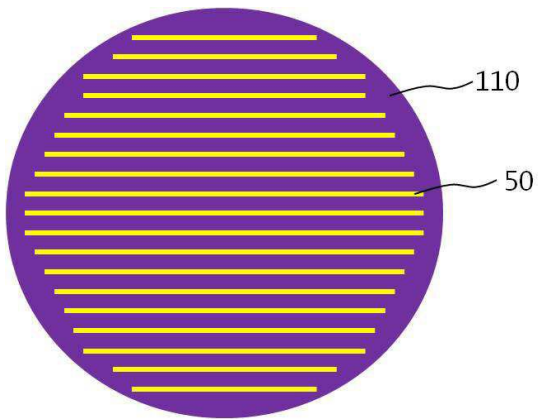
도면3



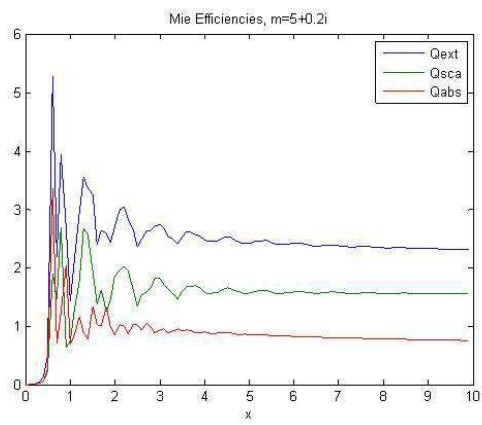
도면4



도면5



도면6



도면7

