

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구  
국제사무국

(43) 국제공개일  
2025년 1월 16일 (16.01.2025)



(10) 국제공개번호  
**WO 2025/014235 A1**

(51) 국제특허분류:

*H01M 4/583* (2010.01) *H01M 4/525* (2010.01)  
*H01M 4/133* (2010.01) *H01M 4/505* (2010.01)  
*H01M 4/1393* (2010.01) *H01M 10/0583* (2010.01)  
*H01M 10/052* (2010.01) *H01M 4/02* (2006.01)

ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(21) 국제출원번호: PCT/KR2024/009713

(22) 국제출원일: 2024년 7월 8일 (08.07.2024)

(25) 출원언어: 한국어

(26) 공개언어: 한국어

(30) 우선권정보:  
10-2023-0089499 2023년 7월 11일 (11.07.2023) KR

(71) 출원인: 주식회사 엘지에너지솔루션 (**LG ENERGY SOLUTION, LTD.**) [KR/KR]; 07335 서울특별시 영등포구 여의대로 108, 타워1, Seoul (KR).

(72) 발명자: 노석인 (**NOH, Suk In**); 34122 대전광역시 유성구 문지로 188 LG 에너지솔루션 기술연구원, Daejeon (KR). 이용주 (**LEE, Yong Ju**); 34122 대전광역시 유성구 문지로 188 LG 에너지솔루션 기술연구원, Daejeon (KR).

(74) 대리인: 김홍균 (**KIM, Hong Gyun**); 05854 서울특별시 송파구 법원로 114 엠스테이트 B동 309호, 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 역내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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,

공개:

— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))

(54) Title: ANODE FOR LITHIUM SECONDARY BATTERY, AND MANUFACTURING METHOD THEREFOR

(54) 발명의 명칭: 리튬 이차전지용 음극 및 이의 제조방법

(57) Abstract: The present invention relates to an anode for a lithium secondary battery, and a manufacturing method therefor, and has a controlled average aspect ratio of a carbon-based anode active material contained in an anode active layer and orientation index (O.I) of an anode current collector so as to satisfy predetermined ranges, thereby having high adhesion to the anode current collector, and thus has excellent lifespan characteristics. In addition, a lithium secondary battery comprising same has excellent output characteristics, and can be charged in a short time even at a 1C-rate.

(57) 요약서: 본 발명은 리튬 이차전지용 음극 및 이의 제조방법에 관한 것으로, 상기 음극은 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비와 음극 집전체에 대한 정렬도(O.I)를 소정의 범위를 만족하도록 제어함으로써, 음극 집전체에 대한 접착력이 높으므로 수명 특성이 뛰어난 특징을 갖는다. 또한, 이를 포함하는 리튬 이차전지는 출력 특성이 우수하고, 1C-rate에서도 단시간에 충전이 가능한 이점이 있다.



WO 2025/014235 A1

## 명세서

### 발명의 명칭: 리튬 이차전지용 음극 및 이의 제조방법 기술분야

- [1] 본 발명은 리튬 이차전지용 음극 및 이의 제조방법에 관한 것이다.
- [2] 본 출원은 2023. 07. 11일자 대한민국 특허 출원 제10-2023-0089499호에 기초한 우선권의 이익을 주장하며, 해당 한국 특허 출원의 문헌에 개시된 모든 내용은 본 명세서의 일부로서 포함된다.

[3]

### 배경기술

- [4] 최근 휴대형 전자기기와 같은 소형 장치뿐 아니라, 하이브리드 자동차나 전기 자동차의 배터리 팩 또는 전력저장장치와 같은 중대형 장치에도 리튬 이차전지가 널리 적용되고 있다. 특히, 최근에는 환경문제에 대한 관심이 커짐에 따라, 대기 오염의 주요 원인의 하나인 가솔린 차량, 디젤 차량 등 화석 연료를 사용하는 차량을 대체할 수 있는 전기자동차, 하이브리드 전기자동차 등에 대한 연구가 많이 진행되고 있다.
- [5] 기존 리튬 이차전지는 에너지 밀도의 한계로 인해 단거리용 전기 자동차 등에만 국한되어 적용이 가능하다. 이에, 현재까지 리튬 이차전지의 에너지 밀도를 보다 높이는 방향으로 기술이 집중적으로 개발되었다.
- [6] 그러나, 개발된 자동차용 리튬 이차전지들은 차량 운행에 따른 방전 후 충전하는데 걸리는 시간이 많이 소요되는 문제가 있다. 따라서, 전기 자동차의 보급율이 높아지면서 충전 시간을 사용자가 수용할 수 있는 수준으로 단축하고자 하는 요구가 증가하고 있다.
- [7] 한편, 리튬 이차전지는 양극/분리막/음극의 적층 구조로 이루어진 충방전이 가능한 발전소자이다. 리튬 이차전지는 충전 시, 전지 내부의 양극에서 양극활물질에 함유된 리튬이 산화되어 방출되는 리튬 탈리 반응이 유도되고, 음극에서 리튬이 환원되어 음극활물질 내부로 들어가는 리튬 삽입 반응이 일어난다. 일반적으로 양극활물질에서의 탈리 반응이 음극활물질에서의 삽입 반응보다 빠르므로 리튬 이차전지의 급속 충방전 성능은 주로 음극에 의해 결정되게 된다.
- [8] 상기 음극의 음극활물질로서 흑연을 포함하는 재료가 널리 이용되고 있는 실정이다. 흑연을 포함하는 재료가 리튬을 방출할 때의 평균 전위는 약 0.2V (Li/Li<sup>+</sup> 기준)이며, 방전 전위가 비교적 평탄한 양상을 나타낸다. 이 때문에 흑연을 음극활물질로 사용하는 경우, 이차전지의 전압은 높고 일정한 장점이 있다.
- [9] 음극에 쓰이는 음극활물질로는 비정질 탄소 또는 결정질 탄소가 사용되고 있으며, 이 중에서도 결정질 탄소가 용량이 높아 주로 사용되고 있다. 이러한 결정질 탄소로는 천연흑연, 인조 흑연 등의 흑연계 탄소가 있다.

- [10] 상기 흑연계 탄소는 그 종류에 따라 그 특성에 차이가 있다. 예컨대, 천연 흑연의 경우 가격이 저렴하고 집전체에 대해 우수한 접착력을 나타내지만, 인조 흑연에 비해 고율 충방전 성능이나 수명 특성 측면에 있어서는 상대적으로 열위하다. 그러나, 상기 인조 흑연은 표면의 결함(defect)이나 관능기의 함량이 적으므로, 집전체에 대한 접착력이 약하고, 전해액에 저온 성능 향상을 목적으로 프로필렌 카보네이트(propylene carbonate, PC)를 혼합하여 사용 시, 상기 프로필렌 카보네이트가 흑연의 층간 구조를 이루는 각 층을 박리(exfoliation)시켜 파괴되는 문제점이 있다.
- [11] 이에 따라, 천연 흑연과 인조 흑연을 적절히 조합하여 각각의 장점을 살리기 위한 혼합 흑연을 리튬 이차전지의 음극 활물질로서 적용하기 위한 시도가 있었다. 그러나, 이와 같은 혼합 흑연의 경우 집전체에 대한 접착력이 감소되어 수명 특성 및 내충격 안정성 등에서 만족할 만한 수준에 이르기 어려운 한계가 있다.
- [12] 따라서, 이러한 문제점을 근본적으로 해결하기 위해서는 집전체에 대한 접착력 등이 높아 수명 특성이 뛰어나고, 출력 특성이 우수하며, 급속 충전 특성이 높은 음극 기술에 대한 필요성이 높은 실정이다.

[13]

[14] [선행기술문헌]

[15] 대한민국 공개특허공보 제10-2022-0064389호

[16]

## 발명의 상세한 설명

### 기술적 과제

- [17] 본 발명의 목적은 집전체에 대한 접착력 등이 높아 수명 특성이 뛰어나고, 출력 특성이 우수하며, 급속 충전 특성이 높은 리튬 이차전지용 음극 및 이의 제조방법을 제공하는데 있다.

[18]

### 과제 해결 수단

- [19] 상술된 문제를 해결하기 위하여,
- [20] 본 발명은 일실시예에서,
- [21] 음극 집전체; 및 상기 음극 집전체의 적어도 일면에 마련되고 평균 종횡비가 0.85 이하인 탄소계 음극활물질을 포함하는 음극 활성층을 포함하고,
- [22] 음극 활성층은 하기 식 1에 따른 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)가 10 이하인 리튬 이차전지용 음극을 제공한다:
- [23] [식 1]
- [24]  $O.I = I_{004}/I_{110}$
- [25] 식 1에서,
- [26]  $I_{004}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 (0,0,4) 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타내고,

- [27]  $I_{110}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 (1,1,0) 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타낸다.
- [28] 이때, 상기 탄소계 음극활물질은 0.2 이상 0.8 이하의 평균 중량비를 가질 수 있다.
- [29] 또한, 상기 음극 활성층은 식 1에 따른 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)가 0.01 내지 10일 수 있다.
- [30] 아울러, 상기 탄소계 음극활물질은 천연 흑연 및 인조 흑연 중 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [31] 하나의 예로서, 상기 탄소계 음극활물질은 인조 흑연일 수 있다.
- [32] 또한, 상기 탄소계 음극활물질의 평균 입경(D50)은  $0.01\mu\text{m}$  내지  $20\mu\text{m}$ 일 수 있다.
- [33] 이와 더불어, 상기 음극 활성층은 20% 내지 30%의 공극률을 가질 수 있다.
- [34] 또한, 상기 음극 활성층의 평균 두께는  $50\mu\text{m}$  내지  $500\mu\text{m}$ 일 수 있다.
- [35]
- [36] 또한, 본 발명은 실시예에서,
- [37] 음극 집전체의 적어도 일면에 음극 슬러리를 도포하는 단계;
- [38] 도포된 음극 슬러리에 자기장을 인가하는 단계; 및
- [39] 자기장이 인가된 음극 슬러리를 건조하여 음극 활성층을 형성하는 단계를 포함하는, 상술된 본 발명의 리튬 이차전지용 음극의 제조방법을 제공한다.
- [40] 이때, 상기 자기장을 인가하는 단계는 1초 내지 20초 동안 수행될 수 있다.
- [41] 또한, 상기 자기장을 인가하는 단계는 1,000G 내지 7,000G의 자기장 세기로 수행될 수 있다.
- [42]
- [43] 나아가, 본 발명은 일실시예에서,
- [44] 양극, 상술된 본 발명의 음극, 및 상기 양극과 음극 사이에 배치되는 분리막을 포함하는 전극 조립체; 및
- [45] 상기 전극 조립체가 함침되는 전해액 조성물을 포함하는 리튬 이차전지를 제공한다.
- [46] 이때, 상기 양극은 양극 집전체의 적어도 일면에 마련되고 하기 화학식 1 및 화학식 2로 나타내는 리튬 금속 산화물 중 1종 이상의 양극활물질을 포함하는 양극 활성층을 포함할 수 있다:
- [47] [화학식 1]
- [48]  $\text{Li}_x[\text{Ni}_y\text{Co}_z\text{Mn}_w\text{M}^1_v]\text{O}_2$
- [49] [화학식 2]
- [50]  $\text{LiM}_p^2\text{Mn}_{1-p}\text{O}_4$
- [51] 상기 화학식 1 및 화학식 2에서,
- [52]  $\text{M}^1$ 은 W, Cu, Fe, V, Cr, Ti, Zr, Zn, Al, In, Ta, Y, La, Sr, Ga, Sc, Gd, Sm, Ca, Ce, Nb, Mg, B, 및 Mo 중 1종 이상의 원소이고,

- [53]  $x, y, z, w$  및  $v$ 는 각각  $1.0 \leq x \leq 1.30$ ,  $0.5 \leq y < 1$ ,  $0 < z \leq 0.3$ ,  $0 < w \leq 0.3$ ,  $0 \leq v \leq 0.1$ 이 되,  $y+z+w+v=1$ 이고,
- [54]  $M^2$ 는 Ni, Co 또는 Fe이며,
- [55]  $p$ 는  $0.05 \leq p \leq 1.0$ 이다.
- [56]
- [57] 하나의 예로서, 상기 양극활물질은  $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.2}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.9}\text{Co}_{0.05}\text{Mn}_{0.05}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.1}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.15}\text{Al}_{0.05}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.7}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.1}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.7}\text{Mn}_{1.3}\text{O}_4$ ,  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$  및  $\text{LiNi}_{0.3}\text{Mn}_{1.7}\text{O}_4$  중 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [58] 한편, 상기 전극 조립체는 스택형 전극 조립체; 지그재그형 전극 조립체; 또는 지그재그-스택형 전극 조립체일 수 있다.

[59]

### 발명의 효과

- [60] 본 발명에 따른 리튬 이차전지용 음극은 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비와 음극 집전체에 대한 정렬도(O.I)를 소정의 범위를 만족하도록 제어함으로써, 음극 집전체에 대한 접착력이 높으므로 수명 특성이 뛰어난 특징을 갖는다. 또한, 이를 포함하는 리튬 이차전지는 출력 특성이 우수하고, 1C-rate에서도 단시간에 충전이 가능한 이점이 있다.

[61]

### 발명의 실시를 위한 최선의 형태

- [62] 본 발명은 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 실시예를 가질 수 있는 바, 특정 실시예들을 상세한 설명에 상세하게 설명하고자 한다.
- [63] 그러나, 이는 본 발명을 특정한 실시 형태에 대해 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 기술 범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포함하는 것으로 이해되어야 한다.
- [64] 본 발명에서, "포함한다" 또는 "가지다" 등의 용어는 명세서 상에 기재된 특징, 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부품 또는 이들을 조합한 것이 존재함을 지정하려는 것이지, 하나 또는 그 이상의 다른 특징들이나 숫자, 단계, 동작, 구성요소, 부품 또는 이들을 조합한 것들의 존재 또는 부가 가능성을 미리 배제하지 않는 것으로 이해되어야 한다.
- [65] 또한, 본 발명에서, 층, 막, 영역, 판 등의 부분이 다른 부분 "상에" 있다고 기재된 경우, 이는 다른 부분 "바로 위에" 있는 경우뿐만 아니라 그 중간에 또 다른 부분이 있는 경우도 포함한다. 반대로 층, 막, 영역, 판 등의 부분이 다른 부분 "하에" 있다고 기재된 경우, 이는 다른 부분 "바로 아래에" 있는 경우뿐만 아니라 그 중간에 또 다른 부분이 있는 경우도 포함한다. 또한, 본 출원에서 "상에" 배치된다고 하는 것은 상부 뿐만 아니라 하부에 배치되는 경우도 포함하는 것일 수 있다.

- [66] 또한, 본 발명에서, "주성분으로 포함하다"란 전체 중량(또는 전체 부피)에 대하여 정의된 성분을 50 중량% 이상(또는 50 부피% 이상), 60 중량% 이상(또는 60 부피% 이상), 70 중량% 이상(또는 70 부피% 이상), 80 중량% 이상(또는 80 부피% 이상), 90 중량% 이상(또는 90 부피% 이상) 또는 95 중량% 이상(또는 95 부피% 이상) 포함하는 것을 의미할 수 있다. 예를 들어, "음극활물질로서 흑연을 주성분으로 포함하다"란 음극활물질 전체 중량에 대하여 흑연을 50 중량% 이상, 60 중량% 이상, 70 중량% 이상, 80 중량% 이상, 90 중량% 이상 또는 95 중량% 이상 포함하는 것을 의미할 수 있으며, 경우에 따라서는 음극활물질 전체가 흑연으로 이루어져 흑연이 100 중량%로 포함하는 것을 의미할 수도 있다.
- [67] 아울러, 본 명세서에서, "탄소계 음극활물질이 배향되다" 또는 "탄소계 음극활물질이 정렬되다"란 음극활물질 입자를 구성하는 탄소계 음극활물질의 2차원 평면 구조를 나타내는 특정 결정면(예컨대, 흑연의 a-b축 결정면)이 음극 집전체 표면을 기준으로 소정의 기울기를 갖도록 배열됨을 의미하는 것으로서, 이는 탄소계 음극활물질 입자 자체가 음극 활성층 내부에서 특정 방향을 갖도록 배열되는 것과는 상이할 수 있다.
- [68] 이와 더불어, "탄소계 음극활물질의 배향성이 높다"란 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 2차원 평면 구조를 나타내는 특정 결정면(예컨대, 흑연의 ab축 결정면)이 음극 집전체 표면을 기준으로 소정의 기울기를 갖는 빈도가 높음을 의미할 수 있다. 또한, 경우에 따라서는 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 상기 결정면이 음극 집전체 표면을 기준으로 높은 각도(예컨대, 수직에 가까운 각도, 45° 초과; 구체적으로 60° 이상)로 배열되었음을 의미할 수 있다.
- [69] 또한, "탄소계 음극활물질의 정렬도가 높다"란 본 명세서에서 언급된 "정렬도(O.I)"가 큰 값을 갖는다는 것으로서, 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 2차원 평면 구조를 나타내는 특정 결정면(예컨대, 흑연의 a-b축 결정면)이 음극 집전체 표면을 기준으로 낮은 각도(예컨대, 45° 미만)로 배열되었음을 의미할 수 있다. 이와 반대로, "탄소계 음극활물질의 정렬도가 낮다"란 "정렬도(O.I)"가 작은 값을 갖는다는 것으로서, 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 상기 결정면이 음극 집전체 표면을 기준으로 높은 각도(예컨대, 수직에 가까운 각도, 45° 이상; 구체적으로 60° 이상)로 배열되었음을 의미할 수 있다.
- [70] 나아가, 본 명세서에서 "탄소계 음극활물질의 결정면"이란, 탄소계 음극활물질의 원자가 결정의 외형을 이루는 면으로서, 본 발명에서는 탄소계 음극활물질의 평면을 포함하는 결정면, 또는 탄소계 음극활물질 결정의 a축/b축/a-b축을 포함하는 결정면을 의미할 수 있다.
- [71] 또한, 본 명세서에서 "평균 입경(D<sub>50</sub>)"이란 입자의 입경 분포에 있어서 적산값이 50%이 되는 입경을 의미하고, 이를 메디안 직경(median diameter)이라고도 한다. 상기 평균 입경은 레이저 회절 입도 측정 장치를 통해 측정될 수 있다.
- [72] 아울러, 본 명세서에서 "중형비"란 음극활물질을 단면 구조 분석을 수행하거나 이차원 입자로 투영하는 경우 이차원 입자의 중심을 지나는 가장 긴 치수에 대한

가장 짧은 치수의 비를 의미한다. 또한, "평균 중횡비"란 활물질 입자 모집단의 각 입자의 중횡비의 수가중평균(number-weighted mean average)을 의미한다. 상기 중횡비는 입자 형상 분석기를 통해 측정하거나, 또는 주사 전자 현미경(SEM)이나 에너지 분산 분광계 등으로 사용하여 2차원 투영된 입자의 형태를 측정 후 측정된 결과를 분석함으로써 판단될 수 있다.

[73]

[74] 이하, 본 발명을 보다 상세하게 설명한다.

[75]

[76] 리튬 이차전지용 음극

[77] 본 발명은 일실시예에서,

[78] 음극 집전체; 및 상기 음극 집전체의 적어도 일면에 마련되고 평균 중횡비가 0.85 이하인 탄소계 음극활물질을 포함하는 음극 활성층을 포함하고,

[79] 상기 음극 활성층은 하기 식 1에 따른 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)가 10 이하인 리튬 이차전지용 음극을 제공한다:

[80] [식 1]

$$[81] \quad O.I = I_{004}/I_{110}$$

[82] 식 1에서,

[83]  $I_{004}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 (0,0,4) 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타내고,

[84]  $I_{110}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 (1,1,0) 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타낸다.

[85]

[86] 본 발명에 따른 리튬 이차전지용 음극은 음극 집전체의 적어도 일면에 음극 활성층을 포함한다. 상기 음극 활성층은 음극의 전기적 활성을 구현하는 층으로서, 전지의 충방전 시 전기화학적 산화환원 반응을 구현하는 음극활물질을 주성분으로 포함한다.

[87] 여기서, 상기 음극활물질은 탄소계 음극활물질이고, 상기 탄소계 음극활물질은 탄소 원자를 주성분으로 하는 소재를 의미한다. 이러한 탄소계 음극활물질로는 흑연을 포함할 수 있다. 상기 흑연은 천연 흑연, 인조 흑연 중 어느 하나 이상을 포함할 수 있다. 또한, 흑연으로서는 천연 흑연, 인조 흑연 이외, 타르.피치를 원료로 한 메소페이즈 소성 탄소(벌크 메소페이즈), 코크스류(생 코크스, 그린 코크스, 피치 코크스, 니들 코크스, 석유 코크스 등) 등을 흑연화한 것 등을 더 포함할 수 있다.

[88] 하나의 예로서, 본 발명에 따른 음극 활성층은 인조 흑연을 단독으로 포함할 수 있다. 본 발명은 음극 활성층에 인조 흑연을 단독으로 포함하여 음극의 수명이 현저히 향상되므로 자동차 배터리와 같이 잦은 충전을 장시간 견뎌야 하는 조건에서 유리하게 작용할 수 있다. 아울러, 인조 흑연은 천연 흑연과 비교하여 동일

한 C-rate 조건에서 보다 빠른 속도로 충전이 가능하고 출력 성능이 뛰어난 이점이 있다.

- [89] 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비는 입자의 형상을 나타내는 지표 중 하나로서, 탄소계 음극활물질의 형상에 따라 음극 활성화층의 전기적 성능이나 접착력이 상이할 수 있다. 본 발명은 음극 활성화층에 함유되는 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비가 소정의 범위를 만족하도록 형상/형태를 제어함으로써 음극 집전체와 음극 활성화층간 접착력을 높이면서 음극의 출력과 급속 충전을 동시에 향상시킬 수 있다.
- [90] 구체적으로, 음극 활성화층에 함유되는 탄소계 음극활물질은 평균 종횡비가 0.85 이하일 수 있다. 예를 들어, 상기 탄소계 음극활물질은 평균 종횡비가 0.2 이상 0.8 이하; 0.10 내지 0.85; 0.25 내지 0.85; 0.25 내지 0.80; 0.25 내지 0.70; 0.25 내지 0.60; 0.25 내지 0.50; 0.25 내지 0.40; 0.40 내지 0.65; 0.50 내지 0.80; 0.50 내지 0.65; 0.60 내지 0.85; 0.60 내지 0.75; 0.70 내지 0.85; 0.10 내지 0.40; 또는 0.45 내지 0.75 일 수 있다.
- [91] 본 발명에서 평균 종횡비가 0.85 이하, 구체적으로 0.60 이하라는 것은 입자의 중심을 기준으로 임의의 일방향으로 인장된 타원체의 형태를 갖는 것을 의미할 수 있다. 즉, 본 발명은 임의의 일방향으로 인장된 타원체 형태의 탄소계 음극활물질을 음극 활성화층에 포함할 수 있다. 이 경우, 상기 음극 활성화층은 리튬 이온의 이동 경로를 보다 단축시킬 수 있으므로, 음극의 출력 특성을 높일 수 있고 충전 시간을 보다 짧게 단축시킬 수 있다. 구체적으로, 상기 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비가 0.85를 초과하는 경우 음극 표면에서의 굴곡도가 증가하여 이차전지의 충전 시 충전 속도가 낮은 한계가 있다.
- [92] 나아가, 탄소계 음극활물질은 상술된 평균 종횡비를 만족하는 형상을 가지며, 바람직하게는 판형, 시트형, 인편상형, 침상형 등의 형상이 아닌 각각 둥근 입자 형태를 가질 수 있다. 여기서, 둥근 입자 형태란 모가 나지 않은 형태의 입자를 의미할 수 있다. 이러한 입자는 단면 구조 분석을 수행하거나 이차원 입자로 투영하는 경우 그 형상이 구형체이나 타원체일 수 있고, 경우에 따라서는 형상을 정의하기 어려운 무정형(shapelessness, 無定形)일 수 있다.
- [93] 하나의 예로서, 탄소계 음극활물질은 타원체일 수 있다. 이 경우 상기 탄소계 음극활물질은 음극 활성화층 내에서 리튬 이온의 이동 경로로 보다 쉽게 확보할 수 있으며, 이를 통하여 동일 조건하에서 충전을 수행하더라도 보다 짧은 시간에 충전을 완료할 수 있다.
- [94] 또한, 상기 타원체는 복수의 인편상의 흑연이 집합하여 형성된 흑연 조립물일 수 있다. 이 경우, 1개의 흑연 조립물은 인편상의 흑연이 2~100개, 바람직하게는 3~20개 집합하여 형성될 수 있다. 본 발명은 탄소계 음극활물질의 형상을 상기와 같이 제어함으로써 음극 활성화층의 전기 전도성을 보다 높일 수 있고, 음극 집전체와의 접촉 면적을 극대화하여 음극 활성화층과 음극 집전체간 접착력을 향상시킬 수 있다.

- [95] 이와 더불어, 상기 탄소계 음극활물질은 소정의 평균 입경( $D_{50}$ )을 가질 수 있다. 예컨대, 상기 탄소계 음극활물질의 평균 입경( $D_{50}$ )은  $0.1\mu\text{m}$  내지  $20\mu\text{m}$ 일 수 있으며, 구체적으로는  $5\mu\text{m}$  내지  $20\mu\text{m}$ ;  $10\mu\text{m}$  내지  $20\mu\text{m}$ ;  $11\mu\text{m}$  내지  $19\mu\text{m}$ ;  $8\mu\text{m}$  내지  $15\mu\text{m}$ ;  $15\mu\text{m}$  내지  $20\mu\text{m}$ ;  $5\mu\text{m}$  내지  $8\mu\text{m}$ ;  $0.1\mu\text{m}$  내지  $15\mu\text{m}$ ;  $0.1\mu\text{m}$  내지  $10\mu\text{m}$ ;  $0.1\mu\text{m}$  내지  $8\mu\text{m}$ ;  $0.1\mu\text{m}$  내지  $5\mu\text{m}$ ;  $0.1\mu\text{m}$  내지  $3\mu\text{m}$ ;  $0.1\mu\text{m}$  내지  $1\mu\text{m}$ ;  $0.5\mu\text{m}$  내지  $10\mu\text{m}$ ;  $0.5\mu\text{m}$  내지  $5\mu\text{m}$ ;  $0.5\mu\text{m}$  내지  $4.5\mu\text{m}$ ;  $0.5\mu\text{m}$  내지  $3\mu\text{m}$ ;  $1\mu\text{m}$  내지  $4.5\mu\text{m}$ ;  $1\mu\text{m}$  내지  $3\mu\text{m}$ ; 또는  $0.8\mu\text{m}$  내지  $1.8\mu\text{m}$ 일 수 있다.
- [96] 본 발명은 상기 범위에서 음극 활성층의 전기 저항 증가를 억제할 수 있다. 뿐만 아니라, 상기 평균 입경 범위에서 탄소계 음극활물질은 비표면적을 높이면서 리튬 이온의 충전으로 인한 입자의 팽창을 막아줄 수 있도록 입자들 각각에 대한 팽창 방향의 무질서도를 최대화시킬 수 있으므로, 음극 활성층과 음극 집전체 간의 접착력을 보다 높일 수 있다. 또한, 본 발명은 상기 범위에서 음극 활성층의 전기 전도성을 높일 수 있고, 동시에 리튬 이온의 이동 경로를 확보할 수 있는 이점이 있다.
- [97] 반면, 탄소계 음극활물질은 상기 평균 입경( $D_{50}$ )의 하한가보다 낮은 입경을 가질 경우 단위 부피당 입자의 수의 증가로 인하여 많은 양의 바인더가 필요하므로 이들을 포함하는 음극 활성층의 전기적 물성이 저하될 수 있다. 반면, 상기 평균 입경( $D_{50}$ )의 상한가를 초과하는 높은 입경을 가지면, 이차전지의 충방전 시 음극 활물질의 팽창률이 현저히 증가하므로 충방전이 반복됨에 따라 음극활물질 입자간 결착성; 및 음극활물질 입자와 집전체의 결착성이 떨어지게 되어 사이클 특성이 크게 감소될 수 있다.
- [98] 나아가, 상기 탄소계 음극활물질은 하기 식 2를 0.1 내지 13으로 만족할 수 있다:
- [99] [식 2]
- [100]  $A \cdot D_{50}$
- [101] 상기 식 2에서,
- [102] A는 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비를 나타내고,
- [103]  $D_{50}$ 은 탄소계 음극활물질의 평균 입경(단위:  $\mu\text{m}$ )을 나타낸다.
- [104]
- [105] 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비와 평균 입경은 각각 음극 활성층과 음극 집전체의 접착력과 음극 활성층 내 리튬 이온의 이동 경로에 영향을 주는 파라미터이다. 상기 평균 종횡비와 평균 입경은 그 값이 작을수록 음극 활성층과 음극 집전체간 접착력을 높일 수 있으므로 음극의 수명을 높일 수 있다. 그러나, 이들이 너무 작은 값을 가질 경우 오히려 음극 활성층의 저항이 증가하여 전기적 물성이 낮아질 수 있다. 이는 음극의 충방전 용량 및 출력에 영향을 미칠 수 있다.
- [106] 그러나, 본 발명은 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비와 평균 입경의 상관 관계를 나타내는 식 2가 소정 범위를 만족하게 제어함으로써 음극의 수명 특성과 함

게 전기적 성능을 높게 구현할 수 있다. 상기 식 2는 충방전 시 전기화학적 산화 환원 반응을 수행하는 탄소계 음극활물질의 형상과 크기가 유기적 및/또는 상보적으로 작용함을 나타내는 파라미터이다. 본 발명은 상기 식 2를 소정 범위로 만족함으로써 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비와 평균 입경 중 어느 하나가 현저히 낮은 값을 갖더라도 음극의 우수한 수명 특성과 전기적 성능을 동시에 구현할 수 있다. 구체적으로, 상기 음극은 식 2를 0.1 내지 13로 만족할 수 있다. 예컨대, 상기 음극은 식 2를 0.1 내지 11; 0.1 내지 10; 0.1 내지 9; 0.1 내지 8; 0.1 내지 7; 0.1 내지 5; 0.1 내지 3; 0.5 내지 5; 0.5 내지 6.9; 0.5 내지 8.9; 5 내지 9; 2 내지 7; 3 내지 8; 1 내지 8; 10 내지 13; 또는 1 내지 6로 만족할 수 있다.

[107] 본 발명에 따른 음극은 음극 활성층과 음극 집전체 간의 접착력을 유지하면서 빠른 충전 속도를 구현하기 위하여 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질들의 결정 구조 특성이 제어될 수 있다.

[108] 하나의 예로서, 상기 음극 활성층은 하기 식 1에 따른 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)가 15 이하일 수 있다:

[109] [식 1]

$$[110] \quad O.I = I_{004}/I_{110}$$

[111] 식 1에서,

[112]  $I_{004}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 [0,0,4] 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타내고,

[113]  $I_{110}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 [1,1,0] 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타낸다.

[114]

[115] 상기 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)는 X선 회절(XRD) 측정 시 탄소계 음극활물질이 갖는 ab축 결정면이 일정한 방향, 구체적으로는 음극 집전체 표면에 대하여 배향된 정도를 나타내는 지표가 될 수 있다. 구체적으로, 음극 활성층은 X선 회절 측정 시 탄소계 음극활물질인 흑연에 대한 피크인  $2\theta=26.5\pm 0.2^\circ$ ,  $42.4\pm 0.2^\circ$ ,  $43.4\pm 0.2^\circ$ ,  $44.6\pm 0.2^\circ$ ,  $54.7\pm 0.2^\circ$  및  $77.5\pm 0.2^\circ$ 를 나타낸다. 이는 흑연의 (0,0,2)면, (1,0,0)면, (1,0,1)R면, (1,0,1)H면, (0,0,4)면, (1,1,0)면을 나타내는 것이다. 여기서,  $2\theta=43.4\pm 0.2^\circ$ 에서 나타나는 피크는 탄소계 음극활물질의 (1,0,1)R면과 전류 집전체, 예를 들어 구리(Cu)의 (1,1,1)면에 해당하는 피크가 중복(overlap)되어 나타난 것으로 볼 수도 있다.

[116] 이 중 (0,0,4)면을 나타내는  $2\theta=54.7\pm 0.2^\circ$ 에서의 피크와 (1,1,0)면을 나타내는  $2\theta=77.5\pm 0.2^\circ$ 에서의 피크의 각 강도를 적분하여 얻어지는 면적의 비율을 통해 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)를 측정할 수 있다.

[117]  $2\theta=54.7\pm 0.2^\circ$ 에서의 피크는 탄소계 음극활물질의 결정면 중 음극 집전체와의 기울기를 갖는 결정면을 나타내는 피크이므로, 상기 정렬도(O.I)는 그 값이 0에 가까울수록 음극 집전체 표면에 대한 기울기가  $90^\circ$ 에 가깝고, 그 값이 커질수록 음극 집전체 표면에 대한 기울기가  $0^\circ$  또는  $180^\circ$ 에 가까움을 의미할 수 있다. 즉,

본 발명에 따른 음극 활성층은 해당층에 함유된 탄소계 음극활물질이 음극 집전체에 대하여  $60^\circ$  이상,  $70^\circ$  이상,  $70\sim 90^\circ$ ,  $80\sim 90^\circ$ ,  $65\sim 85^\circ$  또는  $70\sim 85^\circ$ 의 각도를 갖도록 정렬될 수 있다. 이에 따라, 상기 음극 활성층은 탄소계 음극활물질이  $60^\circ$  미만의 낮은 각도로 정렬된 경우와 비교하여 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)가 낮을 수 있다. 여기서, 상기 정렬도(O.I)는 탄소계 음극활물질의 ab축 결정면의 정렬 정도를 나타내는 것이다. 탄소계 음극활물질의 ab축 결정면 정렬 시 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 입자 자체의 회전도 유도될 수 있다. 그러나, 이때의 입자 회전은 입자의 형태에 영향을 받으므로 ab축 결정면이 정렬되는 정렬되는 정도와 비교하여 동등하지 않으므로, 상기 정렬도(O.I)가 탄소계 음극활물질의 입자가 정렬되는 것을 나타내는 것은 어려울 수 있다.

[118] 여기서, 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질은 상기 정렬도(O.I)가 10 이하일 수 있으며, 구체적으로는 0.01 내지 10; 0.01 내지 9; 0.01 내지 7; 0.01 내지 5; 0.01 내지 3; 1 내지 9; 3 내지 9; 5 내지 9; 3 내지 8; 4 내지 7; 6 내지 10; 6 내지 9; 0.01 내지 4; 0.1 내지 2.5; 0.1 내지 2.0; 0.1 내지 1.5; 0.2 내지 1.3; 0.4 내지 1.3; 0.4 내지 1.3; 0.4 내지 1.0; 0.5 내지 1.3; 1.1 내지 1.3; 0.5 내지 0.9; 또는 0.4 내지 0.6일 수 있다.

[119] 본 발명은 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)를 상술된 바와 같이 조절함으로써 음극 활성층 내부에 리튬 이온이 보다 짧게 이동할 수 있는 이동로(ion migration channel)를 확보할 수 있다. 이로 인해, 본 발명의 음극은 리튬 이온의 긴 이동거리로 인한 저항 증가를 방지할 수 있으므로, 충방전 시 리튬 이온의 이동 속도를 보다 증가시켜 높은 안전성으로 급속 충전 성능과 출력 성능을 동시에 향상시킬 수 있다.

[120] 구체적으로, 종래 리튬 이차전지의 급속 충전은 정전류-정전압(CC-CV) 방식으로 1C-rate를 초과하는 높은 C-rate 조건에서 충전을 수행함으로써 속도를 증가시키는 방식이 적용되었다. 일반적으로 정전류-정전압(CC-CV) 방식의 충전은 충전 시 전극 내 리튬 이온 확산이 정전류(CC) 충전 단계에서 진행되는데, 장시간 확산으로 인해 필연적으로 농도 분극을 야기한다. 이러한 리튬 이온의 농도 분극은 특히 이차전지의 정격 용량값(Ah) 대비 충전되는 전류량(A)이 표준값(즉, 1C-rate에서의 전류량: 1A)을 초과하는 고율 조건에서 음극에서의 리튬 석출을 쉽게 야기하므로 이차전지의 안전성이 현저히 낮은 한계가 있다. 또한, 고율 정전류-정전압(CC-CV) 방식의 충전은 정전류(CC) 충전 단계에서 매우 빠른 속도로 상한 전압에 도달하므로 활물질이 완전 소비되기 전에 전류가 미리 설정한 한계치로 떨어질 수 있다. 즉, 정전압(CV) 충전 단계에서 충전 시간이 현저히 증가되므로 이차전지를 충전하는 총 시간의 저감 효과가 미미한 문제가 있다.

[121] 그러나, 본 발명은 음극 활성층 내 리튬 이온의 이동로를 짧게 확보할 수 있으므로 충전 시 음극 활성층에서 유도되는 저항을 현저히 저감시킬 수 있다. 이러한 저항 감소는 정전류-정전압(CC-CV) 방식으로 충전 시 전체 충전 시간 중 정전류(CC) 충전 단계의 수행 시간이 정전압(CV) 충전 단계의 수행 시간 보다 길게 유

도할 수 있다. 여기서, 정전류(CC) 충전 단계는 동일한 양의 전류가 흐르므로 단위 시간당 충전 용량이 같으나, 정전압(CV) 충전 단계는 동일한 전압을 유지하기 위하여 전류가 저감되는 경향을 나타낸다. 즉, 정전압(CV) 충전 단계에서 단위 시간당 충전 용량이 급격히 감소되므로 정전류(CC) 충전 단계의 수행 시간이 증가할수록 전체 충전 시간은 현저히 저감될 수 있다. 따라서, 본 발명은 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)를 제어함으로써 정전류(CC) 충전 단계의 수행 시간을 증가시킬 수 있으며, 이를 통해 현저히 짧은 시간 내에 이차전지의 충전을 완료할 수 있다.

[122] 나아가, 이러한 이차전지의 급속 충전은 고율 C-rate 조건이 아닌 표준값(예컨대, 1C-rate) 조건 하에서도 구현이 가능하므로 충전 시 음극 활성층에서 유도되는 리튬 이온의 농도 분극 현상으로 인한 리튬 이차전지의 안전성 문제를 극복할 수 있는 이점이 있다.

[123]

[124] 한편, 상기 음극 활성층은 20% 내지 30%의 공극률을 가질 수 있으며, 구체적으로는 23% 내지 30%; 25% 내지 30%; 26% 내지 29%; 또는 24% 내지 28%의 공극률을 가질 수 있다.

[125] 이 경우, 상기 음극 활성층은 0.62 m<sup>2</sup>/g 이하의 BET 비표면적을 나타낼 수 있으며, 구체적으로는 0.615 m<sup>2</sup>/g 이하, 0.6 m<sup>2</sup>/g 이하, 0.5 m<sup>2</sup>/g 이하, 0.20 내지 0.62 m<sup>2</sup>/g, 0.30 내지 0.62 m<sup>2</sup>/g, 0.40 내지 0.62 m<sup>2</sup>/g, 0.40 내지 0.60 m<sup>2</sup>/g, 0.40 내지 0.55 m<sup>2</sup>/g, 0.40 내지 0.50 m<sup>2</sup>/g, 또는 0.58 내지 0.62 m<sup>2</sup>/g의 BET 비표면적을 나타낼 수 있다. 여기서, 상기 비표면적은 BET(Brunauer-Emmett-Teller; BET)법으로 측정할 수 있다. 예를 들어, 기공 분포 측정기(Porosimetry analyzer; Bell Japan Inc, Belsorp-II mini)를 사용하여 질소 가스 흡착 유통법에 의해 BET 6점법으로 측정할 수 있다.

[126] 본 발명은 음극 활성층 중에서 최외각에 위치하여 전해질과 직접 접촉하는 음극 활성층의 공극률 및/또는 BET 비표면적을 상기 범위로 조절함으로써 음극 활성층의 전해액 젖음성의 저하없이 음극의 에너지 밀도를 보다 높일 수 있다.

[127] 또한, 전체 음극 활성층의 평균 두께는 50 μm 내지 500 μm일 수 있으며, 구체적으로는 100 μm 내지 400 μm; 200 μm 내지 350 μm; 50 μm 내지 180 μm; 80 μm 내지 150 μm; 100 μm 내지 250 μm; 100 μm 내지 250 μm; 또는 130 μm 내지 190 μm일 수 있다. 본 발명은 음극 활성층의 평균 두께를 상기 범위로 조절함으로써 음극 활성층에 함유된 각 탄소계 음극활물질의 결정 특성을 용이하게 제어할 수 있다. 이에 따라, 본 발명의 음극은 음극 활성층과 음극 집전체의 접착력을 높게 구현할 수 있을 뿐만 아니라, 표준 조건(1C-rate) 하에서도 짧은 시간 내에 충전을 완료할 수 있는 급속 충전이 가능한 이점이 있다.

[128] 또한, 본 발명에 따른 음극 활성층은 주성분인 음극활물질과 함께, 필요에 따라 도전재, 바인더, 기타 첨가제 등을 선택적으로 더 포함할 수 있다.

[129] 상기 도전재는 카본 블랙, 아세틸렌 블랙, 케첸 블랙, 탄소나노튜브, 탄소섬유 등을 1종 이상 포함할 수 있으나, 이에 제한되는 것은 아니다.

- [130] 하나의 예로서, 상기 음극 활성층은 도전재로서 카본 블랙, 탄소나노튜브, 탄소 섬유 등을 단독으로 함유하거나 병용할 수 있다.
- [131] 이때, 상기 도전재의 함량은 음극 활성층 전체 100 중량부에 대하여 0.1 내지 10 중량부일 수 있으며, 구체적으로는 0.1 내지 8 중량부, 0.1 내지 5 중량부, 0.1 내지 3 중량부, 2 내지 6 중량부 또는 0.5 내지 2 중량부일 수 있다. 본 발명은 도전재의 함량을 상기와 같은 범위로 제어함으로써 낮은 함량의 도전재로 인해 음극의 저항이 증가하여 충전 용량이 저하되는 것을 방지할 수 있으며, 과량의 도전재로 인해 음극활물질의 함량이 저하되어 충전 용량이 저하되거나 음극 활성층의 로딩량 증가로 인해 급속 충전 특성이 떨어지는 문제를 예방할 수 있다.
- [132] 아울러, 상기 바인더는 음극활물질과 도전재 등의 결합과 집전체에 대한 결합에 조력하는 성분으로서 전극의 전기적 물성을 저하시키지 않는 범위에서 적절히 적용될 수 있으나, 구체적으로는 비닐리덴플루오라이드-헥사플루오로프로필렌 코폴리머(PVDF-co-HFP), 폴리비닐리덴플루오라이드(polyvinylidene fluoride, PVdF), 폴리아크릴로니트릴(polyacrylonitrile), 폴리메틸메타크릴레이트(polymethylmethacrylate), 폴리비닐알코올, 카르복시메틸셀룰로오스(CMC), 전분, 히드록시프로필셀룰로오스, 재생 셀룰로오스, 폴리비닐피롤리돈, 폴리테트라플루오로에틸렌, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리아크릴산, 에틸렌-프로필렌-디엔 모노머, 술폰화된 에틸렌-프로필렌-디엔 모노머, 스티렌 부타디엔 고무(SBR) 및 불소 고무 중 어느 하나 이상을 포함할 수 있다.
- [133] 상기 바인더의 함량은 음극 활성층 100 중량부에 대하여 0.1 내지 10 중량부일 수 있고, 구체적으로는 0.1 내지 8 중량부, 0.1 내지 5 중량부, 0.1 내지 3 중량부 또는 2 내지 6 중량부일 수 있다. 본 발명은 음극 활성층에 함유된 바인더의 함량을 상기 범위로 제어함으로써 낮은 함량의 바인더로 인해 활성층의 접착력이 저하되거나 과량의 바인더로 인해 전극의 전기적 물성이 저하되는 것을 방지할 수 있다.
- [134] 또한, 상기 음극 집전체는 당해 전지에 화학적 변화를 유발하지 않으면서 높은 도전성을 가지는 것이라면 특별히 제한되는 것은 아니며, 예를 들어, 구리, 스테인리스 스틸, 니켈, 티탄, 소성 탄소 등을 사용할 수 있으며, 구리나 스테인리스 스틸의 경우 카본, 니켈, 티탄, 은 등으로 표면 처리된 것을 사용할 수도 있다. 이와 더불어, 상기 음극 집전체의 평균 두께는 제조되는 음극의 도전성과 총 두께를 고려하여 1~500  $\mu\text{m}$ 에서 적절하게 적용될 수 있다.

[135]

[136] 리튬 이차전지

[137] 또한, 본 발명은 일실시예에서,

[138] 양극, 상술된 본 발명의 음극 및 상기 양극과 음극 사이에 배치된 분리막을 포함하는 전극 조립체; 및

[139] 상기 전극 조립체가 함침되는 전해액 조성물을 포함하는 리튬 이차전지를 제공한다.

[140]

[141] 본 발명에 따른 리튬 이차전지는 복수의 양극과 복수의 음극이 교대로 배치되고 이들 사이에 분리막이 위치하는 구조의 전극 조립체를 포함한다. 상기 리튬 이차전지는 상술된 본 발명의 음극을 구비하여, 출력 특성이 우수할 뿐만 아니라 1C-rate에서도 단시간에 충전이 가능하므로 전기 자동차 등의 중대형 장치용 전력으로 유용하게 사용될 수 있다.

[142] 이때, 상기 음극은 상술된 구성과 동일한 구성을 가지므로 구체적인 설명은 생략한다.

[143] 또한, 상기 양극은 양극 집전체 상에 양극활물질을 포함하는 양극 활성층을 포함하고, 상기 양극 활성층은 필요에 따라 도전재, 바인더, 기타 첨가제 등을 선택적으로 더 포함할 수 있다.

[144] 상기 양극활물질은 양극 집전체 상에서 전기화학적으로 반응을 일으킬 수 있는 물질로서, 가역적으로 리튬 이온의 인터칼레이션과 디인터칼레이션이 가능한 하기 화학식 1 및 화학식 2로 나타내는 리튬 금속 산화물 중 1종 이상을 포함할 수 있다:

[145] [화학식 1]

[146]  $\text{Li}_x[\text{Ni}_y\text{Co}_z\text{Mn}_w\text{M}^1_v]\text{O}_2$

[147] [화학식 2]

[148]  $\text{LiM}^2_p\text{Mn}_q\text{P}_r\text{O}_4$

[149] 상기 화학식 1 및 화학식 2에서,

[150]  $\text{M}^1$ 은 W, Cu, Fe, V, Cr, Ti, Zr, Zn, Al, In, Ta, Y, La, Sr, Ga, Sc, Gd, Sm, Ca, Ce, Nb, Mg, B, 및 Mo로 중 1종 이상의 원소이고,

[151]  $x, y, z, w$  및  $v$ 는 각각  $1.0 \leq x \leq 1.30$ ,  $0.5 \leq y < 1$ ,  $0 < z \leq 0.3$ ,  $0 < w \leq 0.3$ ,  $0 \leq v \leq 0.1$ 이 되,  $y+z+w+v=1$ 이고,

[152]  $\text{M}^2$ 는 Ni, Co 또는 Fe이며,

[153]  $p$ 는  $0.05 \leq p \leq 1.0$ 이고,

[154]  $q$ 는  $2-p$ 이며,

[155]  $r$ 는 0 또는 1이다.

[156]

[157] 상기 화학식 1 및 화학식 2로 나타내는 리튬 금속 산화물은 각각 니켈(Ni)과 망간(Mn)을 고함량으로 함유하는 물질로서, 양극활물질로 사용하는 경우, 종래 통상적으로 사용되는 인산철산화물( $\text{LiFeO}_4$ ) 등 양극활물질과 비교하여 고용량 및/또는 고전압의 전기를 안정적으로 공급할 수 있는 이점이 있다.

[158] 이때, 상기 화학식 1로 나타내는 리튬 금속 산화물로는  $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.2}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.9}\text{Co}_{0.05}\text{Mn}_{0.05}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.1}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.15}\text{Al}_{0.05}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.7}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.1}\text{O}_2$  등을 포함할 수 있다. 또한, 상기 화학식 2로 나타내는 리튬 금속 산화물은  $\text{LiNi}_{0.7}\text{Mn}_{1.3}\text{O}_4$ ;  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ ;  $\text{LiNi}_{0.3}\text{Mn}_{1.7}\text{O}_4$  등을 포함할

- 수 있다. 상기 화학식 1 및/또는 화학식 2로 나타내는 리튬 금속 산화물은 단독으로 사용하거나 병용하여 사용할 수 있다.
- [159] 또한, 상기 양극활물질은 양극 활성층 중량 기준 85 중량부 이상 포함될 수 있으며, 구체적으로는 90 중량부 이상, 93 중량부 이상 또는 95 중량부 이상 포함될 수 있다.
- [160] 아울러, 상기 양극 활성층은 양극활물질과 함께 도전재, 바인더, 기타 첨가제 등을 더 포함할 수 있다.
- [161] 이때, 상기 도전재는 양극의 전기적 성능을 향상시키기 위해 사용되는 것으로서, 당업계에서 통상적으로 사용되는 것을 적용할 수 있으나, 구체적으로는 천연 흑연, 인조 흑연, 카본 블랙, 아세틸렌 블랙, 덴카 블랙, 케첸 블랙, 수퍼-P, 채널 블랙, 퍼네이스 블랙, 램프 블랙, 서머 블랙, 그래핀 및 탄소나노튜브 중 1종 이상을 포함할 수 있다.
- [162] 아울러, 상기 도전재는 양극 활성층 100 중량부 기준 0.1~5 중량부로 포함할 수 있고, 구체적으로는 0.1~4 중량부; 2~4 중량부; 1.5~5 중량부; 1~3 중량부; 0.1~2 중량부; 또는 0.1~1 중량부로 포함할 수 있다.
- [163] 또한, 상기 바인더는 양극활물질, 양극 첨가제 및 도전재가 서로 결합되게 하는 역할을 수행하며, 이러한 기능을 갖는 것이면 특별히 제한되지 않고 사용될 수 있다. 구체적으로, 상기 바인더로는 폴리비닐리덴플루오라이드-헥사플루오로프로필렌 코폴리머(PVdF-co-HFP), 폴리비닐리덴플루오라이드(polyvinylidene fluoride, PVdF), 폴리아크릴로니트릴(polyacrylonitrile), 폴리메틸메타크릴레이트(polymethylmethacrylate) 및 이들의 공중합체 중 1종 이상의 수지를 포함할 수 있다. 하나의 예로서, 상기 바인더는 폴리비닐리덴플루오라이드(polyvinylidene fluoride)를 포함할 수 있다.
- [164] 이와 더불어, 상기 바인더는 양극 활성층 100 중량부 기준 1~10 중량부로 포함할 수 있고, 구체적으로는 2~8 중량부; 또는 1~5 중량부로 포함할 수 있다.
- [165] 상기 양극 활성층의 총 두께는 특별히 제한되는 것은 아니나, 구체적으로는 50  $\mu\text{m}$  내지 300  $\mu\text{m}$ 일 수 있으며, 보다 구체적으로는 100  $\mu\text{m}$  내지 200  $\mu\text{m}$ ; 80  $\mu\text{m}$  내지 150  $\mu\text{m}$ ; 120  $\mu\text{m}$  내지 170  $\mu\text{m}$ ; 150  $\mu\text{m}$  내지 300  $\mu\text{m}$ ; 200  $\mu\text{m}$  내지 300  $\mu\text{m}$ ; 또는 150  $\mu\text{m}$  내지 190  $\mu\text{m}$ 일 수 있다.
- [166] 또한, 상기 양극은 양극 집전체로서 당해 전지에 화학적 변화를 유발하지 않으면서 높은 도전성을 가지는 것을 사용할 수 있다. 예를 들어, 스테인리스 스틸, 알루미늄, 니켈, 티탄, 소성 탄소 등을 사용할 수 있으며, 알루미늄이나 스테인리스 스틸의 경우 카본, 니켈, 티탄, 은 등으로 표면 처리된 것을 사용할 수도 있다. 아울러, 상기 집전체의 평균 두께는 제조되는 양극의 도전성과 총 두께를 고려하여 3~500  $\mu\text{m}$ 에서 적절하게 적용될 수 있다.
- [167] 아울러, 각 단위셀의 양극과 음극 사이에 개재되는 분리막은 높은 이온 투과도와 기계적 강도를 갖는 절연성 박막으로서, 당업계에서 통상적으로 사용되는 것이라면 특별히 제한되지 않으나, 구체적으로는 내화학적 및 소수성의 폴리프로

필렌; 폴리에틸렌; 폴리에틸렌-프로필렌 공중합체 중 1종 이상의 중합체를 포함하는 것을 사용할 수 있다. 상기 분리막은 상술된 중합체를 포함하는 시트나 부직포 등의 다공성 고분자 기재 형태를 가질 수 있으며, 경우에 따라서는 상기 다공성 고분자 기재 상에 유기물 또는 무기물 입자가 유기 바인더에 의해 코팅된 복합 분리막의 형태를 가질 수도 있다. 아울러, 상기 분리막은 기공의 평균 직경이 0.01~10 $\mu\text{m}$ 일 수 있고, 평균 두께는 5~300 $\mu\text{m}$ 일 수 있다.

- [168] 한편, 본 발명에 따른 리튬 이차전지는 특별히 제한되는 것은 아니나, 스택형; 지그재그형; 또는 지그재그-스택형 전극 조립체를 포함할 수 있는 형태의 이차전지일 수 있다. 하나의 예로서, 본 발명에 따른 리튬 이차전지는 파우치형 이차전지 또는 각형 이차전지일 수 있다.
- [169] 파우치형 이차전지 및/또는 각형 이차전지는 제한된 공간 내에 높은 밀도로 이차전지의 단위셀을 패킹(packaging)할 수 있으므로 에너지 밀도 측면에서 활용도가 높은 이점이 있다.
- [170] 나아가, 상기 리튬 이차전지에서, 전해액 조성물은 리튬 이차전지에 통상적으로 적용되는 것이라면 특별히 제한되지 않고 사용될 수 있다.
- [171] 구체적으로, 상기 전해액 조성물은 비수계 유기용매, 리튬염 및 전해액 첨가제 등을 포함할 수 있다.
- [172] 여기서, 상기 비수계 유기 용매는 당업계에서 비수계 전해질에 사용하는 것이라면 특별히 제한되지 않고 적용될 수 있다. 예를 들어, 상기 비수계 유기 용매로는 N-메틸-2-피롤리디논, 에틸렌 카보네이트(EC), 프로필렌 카보네이트(PC), 프로필렌 카보네이트, 부틸렌 카보네이트, 디메틸 카보네이트(DMC), 디에틸 카보네이트(DEC), 감마-부틸로락톤, 1,2-디메톡시 에탄(DME), 테트라하이드로퓨란, 2-메틸 테트라하이드로퓨란, 디메틸설폭사이드, 1,3-디옥소런, 포름아미드, 디메틸포름아미드, 디옥소런, 아세트니트릴, 니트로메탄, 포름산 메틸, 초산메틸, 인산 트리에스테르, 트리메톡시 메탄, 디옥소런 유도체, 설포란, 메틸 설포란, 1,3-디메틸-2-이미다졸리디논, 프로필렌 카보네이트 유도체, 테트라하이드로퓨란 유도체, 에테르, 피로피온산 메틸(MP), 프로피온산 에틸(EP), 프로피온산 프로필(PP) 등의 비양자성 유기 용매가 사용될 수 있다.
- [173] 또한, 본 발명에서 이용되는 비수계 유기 용매는 1종류를 단독으로 이용될 수 있고, 2종류 이상을 용도에 맞추어 임의의 조합이나 비율로 혼합하여 이용될 수 있다. 이들 중에서는 산화 환원에 대한 전기 화학적인 안정성과 열이나 용질과의 반응에 관한 화학적 안정성의 관점에서, 특히 프로필렌 카보네이트, 에틸렌 카보네이트, 플루오로에틸렌 카보네이트, 디에틸 카보네이트, 디메틸 카보네이트, 에틸메틸 카보네이트 등이 혼합되는 것이 바람직하다.
- [174] 아울러, 상기 리튬염은 당업계에서 비수계 전해질에 사용하는 것이라면 특별히 제한되지 않고 적용될 수 있다. 구체적으로, 상기 리튬염은 LiCl, LiBr, LiI, LiClO<sub>4</sub>, LiBF<sub>4</sub>, LiB<sub>10</sub>Cl<sub>10</sub>, LiPF<sub>6</sub>, LiCF<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>, LiCF<sub>3</sub>CO<sub>2</sub>, LiAsF<sub>6</sub>, LiSbF<sub>6</sub>, LiAlCl<sub>4</sub>, CH<sub>3</sub>SO<sub>3</sub>Li, (CF<sub>3</sub>SO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>NLi 및 (FSO<sub>2</sub>)<sub>2</sub>NLi 중 1종 이상을 포함할 수 있다.

- [175] 상기 리튬염을 적절하게 사용하기 위한 적절 농도 범위의 하한은 0.5mol/L 이상, 구체적으로는 0.7mol/L 이상, 보다 구체적으로는 0.9mol/L 이상이고, 상한은 2.5mol/L 이하, 구체적으로는 2.0mol/L 이하, 보다 구체적으로는 1.5mol/L 이하의 범위이다. 리튬염의 농도가 0.5mol/L를 하회하면 이온 전도도가 저하됨으로써 비수계 전해액 전지의 사이클 특성, 출력 특성이 저하될 우려가 있다. 또한, 리튬염의 농도가 2.5mol/L를 초과하면 비수계 전해액 전지용 전해액의 점도가 상승하므로, 역시 이온 전도도를 저하시킬 우려가 있으며, 비수계 전해액 전지의 사이클 특성, 출력 특성을 저하시킬 우려가 있다.
- [176] 또한, 한번에 다량의 리튬염을 비수계 유기 용매에 용해하면, 리튬염의 용해열 때문에 전해액의 온도가 상승하는 경우가 있다. 이와 같이 리튬염의 용해열로 인해 비수계 유기 용매의 온도가 현저하게 상승하면, 불소를 함유한 리튬염의 경우, 분해가 촉진되어 불화 수소(HF)가 생성될 우려가 있다. 불화 수소(HF)는 전지 성능의 열화의 원인이 되기 때문에 바람직하지 않다. 따라서, 상기 리튬염을 비수계 유기 용매에 용해할 때의 온도는 특별히 한정되지 않지만, -20~80°C로 조절될 수 있고, 구체적으로는 0~60°C로 조절될 수 있다.
- [177] 나아가, 상기 전해액 첨가제는 전해액 조성물의 물성을 개선하기 위하여 추가적인 보조 성분으로 포함될 수 있다. 본 발명의 비수계 전해액에 일반적으로 이용되는 전해액 첨가제를 임의의 비율로 첨가해도 된다. 구체적으로는, 시클로헥실벤젠, 비페닐, t-부틸벤젠, 카보네이트, 비닐에틸렌카보네이트, 디플루오로아니솔, 플루오로에틸렌카보네이트, 프로판술폰, 숙시노니트릴, 디메틸비닐렌카보네이트 등의 과충전 방지 효과, 부극 피막 형성 효과, 정극 보호 효과를 가지는 화합물을 들 수 있다. 또한, 리튬 폴리머 전지라고 불리는 비수계 전해액 전지에 사용되는 경우와 같이 비수계 전해액 전지용 전해액을 겔화제나 가교 폴리머에 의해 의고체화하여 사용하는 것도 가능하다.
- [178]
- [179] 본 발명에 따른 리튬 이차전지는 상술된 구성을 가짐으로써 전지의 출력 특성이 뛰어날 뿐만 아니라, 1C-rate에서도 단시간에 충전이 가능한 이점이 있다.
- [180]
- [181] 음극의 제조방법
- [182] 또한, 본 발명은 일실시예에서,
- [183] 음극 집전체의 적어도 일면에 음극 슬러리를 도포하는 단계;
- [184] 도포된 음극 슬러리에 자기장을 인가하는 단계; 및
- [185] 자기장이 인가된 음극 슬러리를 건조하여 음극 활성층을 형성하는 단계를 포함하는 리튬 이차전지용 음극의 제조방법을 제공한다.
- [186]
- [187] 본 발명에 따른 음극의 제조방법은 상술된 본 발명의 음극을 제조하는 방법을 의미한다. 상기 음극의 제조방법은 음극 집전체 상에 음극 슬러리를 도포하고, 도포된 음극 슬러리의 표면에 자기장을 인가한 후 각 음극 슬러리를 건조시킴

로써 음극활물질의 결정 특성이 제어된 음극 활성층을 갖는 음극을 제조할 수 있다.

- [188] 여기서, 상기 음극 슬러리를 도포하는 단계는 이동 중인 음극 집전체 표면에 탄소계 음극활물질을 함유하는 음극 슬러리를 토출하여 코팅하는 단계이다. 본 단계는 당업계에서 통상적으로 적용되는 방식이라면 특별히 제한되지 않고 적용될 수 있으나, 바람직하게는 다이 코팅법을 이용할 수 있다. 상기 다이 코팅법은 음극 슬러리의 토출 조건을 제어하기 위한 shim을 구비하는 슬롯 다이를 통해 수행될 수 있다. 이 경우, 상기 shim의 형상, 위치 등을 제어함으로써 음극 집전체 상에 도포되는 음극 슬러리의 로딩량, 도포 두께 등을 용이하게 제어할 수 있다.
- [189] 한편, 상기 음극 슬러리에 자기장을 인가하는 단계는 음극 슬러리에 함유된 음극활물질의 결정 특성을 제어하는 단계일 수 있다. 구체적으로, 본 단계는 음극 집전체 상에 도포된 음극 슬러리의 표면에 자기장을 인가함으로써 음극 슬러리에 포함된 탄소계 음극활물질의 a-b축 결정면이 음극 집전체에 대하여 높은 각도를 갖도록 정렬시킬 수 있다.
- [190] 이때, 자기장 인가는 표면에 음극 슬러리가 도포된 상태로 이동되는 음극 집전체의 상부 및 하부에 배치된 자석부에 의해 자기장이 인가될 수 있다. 이렇게 상부 및 하부에 배치된 자석부의 극성은 서로 상이할 수 있다.
- [191] 아울러, 각 음극 슬러리에 함유된 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)는 인가되는 자기장의 세기, 인가 시간 등에 의해 조절될 수 있으며, 이에 따라 상기 자기장을 인가하는 단계는 소정의 자기장 세기 조건 하에서 수행될 수 있다.
- [192] 구체적으로, 상기 자기장을 인가하는 단계는 10,000G(가우스, Gauss) 이하의 자기장이 인가될 수 있으며, 구체적으로는 1,000G 내지 7,000G; 2,000G 내지 6,000G; 1,500G 내지 5,000G; 1,500G 내지 4,500G; 4,000G 내지 7,000G; 2,000G 내지 4,000G; 2,500G 내지 3,500G; 3,000G 내지 6,500G; 또는 2,700G 내지 3,300G의 세기로 자기장이 인가될 수 있다.
- [193] 또한, 상기 자기장을 인가하는 단계는 1초 내지 20초 동안 수행될 수 있으며, 구체적으로는 1초 내지 15초; 1초 내지 10초; 5초 내지 20초; 10초 내지 20초; 11초 내지 18초; 1초 내지 5초; 7초 내지 13초; 또는 6초 내지 11초 동안 수행될 수 있다.
- [194] 하나의 예로서, 상기 자기장을 인가하는 단계에는 음극 슬러리에  $3,000 \pm 50G$ 의 자기장이 9초 내지 11초 동안 인가될 수 있다.
- [195] 나아가, 상기 자기장을 인가하는 단계는 앞서 언급된 바와 같이, 도포된 음극 슬러리의 상부 및 하부에 도입된 자석부에 의해 수행되며, 음극 슬러리에 인가되는 자기장이 음극 슬러리 표면 전체에 균일하게 인가될 수 있도록 자석부의 크기가 음극 슬러리의 크기보다 크게 조절될 수 있다. 예컨대, 상기 자석부는 음극 슬러리의 폭 방향 길이 기준 105% 내지 200%의 길이 비율을 가질 수 있으며, 구체적으로는 음극 슬러리의 폭 방향 길이 기준 110% 내지 180%; 110% 내지 160%;

110% 내지 140%; 110% 내지 130%; 130% 내지 150%; 또는 105% 내지 120%의 길이 비율을 가질 수 있다.

- [196] 본 발명은 자기장을 인가하는 단계에서 상술된 바와 같이 자기장의 세기, 인가 시간 및/또는 자석부 크기를 제어함으로써 음극 슬러리에 함유된 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)를 소정의 범위를 만족하도록 균일하게 구현할 수 있다.
- [197] 또한, 상기 음극 활성층을 형성하는 단계는 음극 슬러리를 건조하는 단계; 및 건조된 음극 슬러리를 압연하는 단계를 포함할 수 있다.
- [198] 이때, 상기 음극 슬러리를 건조하는 단계는 음극 활성층 내에 함유된 탄소계 음극활물질의 배향을 유지할 수 있는 방식이라면 특별히 제한되지 않고 적용될 수 있다.
- [199] 예컨대, 상기 건조하는 단계는 열풍 건조기, 진공 오븐기 등을 이용하여 음극 슬러리에 열 에너지를 가함으로써 음극 슬러리를 건조시킬 수 있다.
- [200] 아울러, 건조된 음극 슬러리를 압연하는 단계는 롤 프레스 등을 이용하여 건조된 음극 슬러리에 압력을 가함으로써 음극 활성층의 밀도를 증가시키는 단계이다. 이때, 상기 압연은 상온보다 높은 온도 조건에서 수행될 수 있다.
- [201] 구체적으로, 상기 압연은 50°C 내지 100°C의 온도, 보다 구체적으로는 60°C 내지 100°C; 75°C 내지 100°C; 85°C 내지 100°C; 50°C 내지 90°C; 60°C 내지 80°C 또는 65°C 내지 90°C의 온도로 수행될 수 있다. 구체적으로는 상기 압연은 2m/s 내지 7m/s의 압연 속도로 수행될 수 있으며, 보다 구체적으로는 2m/s 내지 6.5m/s; 2m/s 내지 6m/s; 2m/s 내지 5.5m/s; 2m/s 내지 5m/s; 2m/s 내지 4.5m/s; 2m/s 내지 4m/s; 2.5m/s 내지 4m/s; 2.5m/s 내지 3.5m/s; 3.5m/s 내지 5m/s; 5m/s 내지 7m/s; 5.5m/s 내지 6.5m/s 또는 6m/s 내지 7m/s의 압연 속도로 수행될 수 있다. 아울러, 상기 압연은 50MPa 내지 200MPa의 압력 조건하에서 수행될 수 있으며, 구체적으로는 50MPa 내지 150MPa; 50MPa 내지 100MPa; 100MPa 내지 200MPa; 150MPa 내지 200MPa 또는 80MPa 내지 140MPa의 압력 조건하에서 수행될 수 있다.
- [202] 본 발명은 건조된 음극 슬러리의 압연을 상기 온도, 속도 및/또는 압력 조건하에서 수행함으로써 형성되는 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 정렬도 변화를 최소화하면서 음극의 에너지 밀도를 높일 수 있다.
- [203]
- [204] 이하, 본 발명을 실시예 및 실험예에 의해 보다 상세히 설명한다.
- [205] 단, 하기 실시예 및 실험예는 본 발명을 예시하는 것일 뿐, 본 발명의 내용이 하기 실시예 및 실험예에 한정되는 것은 아니다.
- [206]
- [207] 실시예 1~8 및 비교예 1~3. 리튬 이차전지용 음극의 제조
- [208] 탄소계 음극활물질로서 인편상의 1차 입자가 조립되어 2차 입자 형태를 갖는 인조 흑연을 준비하였다. 이와 함께, 도전재로서 카본 블랙과 바인더로서 카복시메틸셀룰로오스(CMC)와 스티렌 부타디엔 고무(SBR)를 준비하였다. 또한,

레이저 회절 산란식 입도 분포 측정법으로 상기 탄소계 음극활물질의 평균 입경 ( $D_{50}$ )을 측정하였다. 그 결과는 하기 표 1에 나타냈다.

- [209] 그런 다음, 인조 흑연 96 중량부, 카르복시메틸셀룰로오스(CMC) 1.5 중량부 및 스티렌부타디엔 고무(SBR) 2.5 중량부를 고형분 50%가 되도록 물과 혼합하여 음극 슬러리를 제조하였다.
- [210] 음극 슬러리가 준비되면, 싱글 다이 코터를 이용하여 롤투롤 이송(이송 속도: 5 m/min)되고 있는 구리 박판(두께:  $10\mu\text{m}$ ) 상에 음극 슬러리를 캐스팅하였다.
- [211] 도포된 음극 슬러리의 상부와 음극 집전체의 하부에 음극 슬러리의 폭 방향 길이 기준 110~120%의 길이 비율을 갖는 영구자석을 배치하고,  $3,000\pm 20\text{ G}$ 의 자기장 세기로 자기장을 인가하였다. 이때, 자기장이 인가된 시간은 표 1에 나타냈다. 자기장이 인가된 음극 슬러리를 열풍 건조하여 음극 집전체 상에 음극 활성층이 적층된 형태로 음극을 형성하였다. 형성된 음극 활성층을  $50\pm 1^\circ\text{C}$ 에서 100~150MPa의 압력 및 3 m/s의 이송 속도로 압연하여 리튬 이차전지용 음극(음극 활성층의 평균 두께:  $190\pm 5\mu\text{m}$ , 로딩량: 5~20 mg/cm<sup>2</sup>)을 제조하였다.
- [212] 제조된 각 음극을 대상으로 음극 활성층 단면에 대한 주사전자 현미경(SEM) 분석을 수행하여 분광 이미지를 얻었다. 얻은 이미지를 분석하여 음극 활성층에 함유된 인조 흑연의 평균 종횡비를 산출하였다. 이때, 상기 평균 종횡비는 인조 흑연 입자의 중심을 지나는 가장 긴 치수에 대한 가장 짧은 치수의 비를 의미한다. 그 결과는 하기 표 1에 나타내었다.
- [213] 이와 더불어, 제조된 각 음극을 대상으로, 음극 활성층에 대한 X선 회절 분광(XRD)을 수행하여 스펙트럼을 측정하였다. 이때, X선 회절(XRD)의 측정 조건은 다음과 같다:
- [214] - 타겟: Cu( $K\alpha$ 선) 흑연 단색화 장치
- [215] - 슬릿(slit): 발산 슬릿 = 1도, 수신 슬릿 = 0.1mm, 산란 슬릿 = 1도
- [216] - 측정 구역: (1,1,0) 면:  $76.5^\circ < 2\theta < 78.5^\circ$  / (0,0,4) 면:  $53.5^\circ < 2\theta < 56.0^\circ$ .
- [217]
- [218] 상기 조건으로 측정된 스펙트럼으로부터 각 음극 활성층에 함유된 탄소계 활물질의 평균 정렬도(O.I)를 식 1을 이용하여 산출하였다. 그 결과는 표 1에 나타냈다:
- [219] [식 1]
- [220] 
$$O.I = I_{004}/I_{110}$$
- [221] 식 1에서,
- [222]  $I_{004}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 (0,0,4) 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타내고,
- [223]  $I_{110}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 (1,1,0) 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타낸다.
- [224] [표1]

	자기장 인가 조건		탄소계 음극활물질		음극 활성층의 O.I
	인가 여부	시간 [초]	평균 종횡비	평균 입경(D <sub>50</sub> )	
실시예 1	O	9~11	0.30	15.5±0.2 $\mu$ m	7
실시예 2	O	9~11	0.55	15.5±0.2 $\mu$ m	7
실시예 3	O	9~11	0.78	15.5±0.2 $\mu$ m	7
실시예 4	O	9~11	0.55	1.5±0.1 $\mu$ m	8
실시예 5	O	9~11	0.55	5.0±0.2 $\mu$ m	8
실시예 6	O	9~11	0.55	8.5±0.2 $\mu$ m	8
실시예 7	O	9~11	0.55	12.5±0.2 $\mu$ m	7
실시예 8	O	9~11	0.55	22.0±0.2 $\mu$ m	7
비교예 1	O	1~2	0.55	15.5±0.2 $\mu$ m	16
비교예 2	X	O	0.55	15.5±0.2 $\mu$ m	23
비교예 3	O	9~11	0.95	15.5±0.2 $\mu$ m	10

[225]

[226]

[227] 비교예 4~5. 리튬 이차전지용 음극의 제조

[228] 탄소계 음극활물질로서 타원체 형태를 갖는 천연 흑연 또는 인편상 형태를 갖는 인조 흑연을 사용한 것을 제외하고, 실시예 2와 동일한 방법으로 수행하여 리튬 이차전지용 음극을 제조하였다.

[229] 제조된 음극들을 대상으로 ① 음극 활성층 단면에 대한 주사 전자 현미경(SEM) 분석을 수행하여 음극 활성층에 함유된 탄소계 음극활물질의 평균 종횡비를 산출하였다. 또한, ② 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD)을 측정하여 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)를 구하였다. 그 결과는 하기 표 2에 나타났다.

[230]

[표2]

	탄소계 음극활물질			음극 활성층의 O.I
	종류	평균 종횡비	평균 입경(D <sub>50</sub> )	
비교예 4	천연 흑연	0.55	15.5±0.2 $\mu$ m	12
비교예 5	인조 흑연	0.55	15.5±0.2 $\mu$ m	11

[231]

[232]

[233] 실시예 9~16 및 비교예 6~10. 리튬 이차전지의 제조

- [234] 양극활물질로서 입자크기  $5\mu\text{m}$ 인  $\text{LiNi}_{0.7}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.1}\text{O}_2$ 를 준비하고, 카본계 도전재 및 바인더로서 폴리비닐리덴플루오라이드와 94:3:3의 중량 비율로 N-메틸 피롤리돈(NMP)에 혼합하여 슬러리를 형성하고, 알루미늄 박판 상에 캐스팅하고  $120^\circ\text{C}$ 의 진공오븐에서 건조시킨 후 압연하여 양극을 제조하였다.
- [235] 상기 얻어진 양극과 실시예 1~8 및 비교예 1~5에서 각각 제조된 음극의 사이에  $18\mu\text{m}$ 의 폴리프로필렌으로 이루어진 분리막을 개재시키고, 케이스에 삽입한 다음, 전해질 조성물을 주입하여 1Ah급 리튬 이차전지를 조립하였다.
- [236] 이때, 각 리튬 이차전지에 적용된 음극의 종류는 하기 표 3에 나타냈다.
- [237] [표3]

	적용된 음극의 종류
실시예 9	실시예 1에서 제조된 음극
실시예 10	실시예 2에서 제조된 음극
실시예 11	실시예 3에서 제조된 음극
실시예 12	실시예 4에서 제조된 음극
실시예 13	실시예 5에서 제조된 음극
실시예 14	실시예 6에서 제조된 음극
실시예 15	실시예 7에서 제조된 음극
실시예 16	실시예 8에서 제조된 음극
비교예 6	비교예 1에서 제조된 음극
비교예 7	비교예 2에서 제조된 음극
비교예 8	비교예 3에서 제조된 음극
비교예 9	비교예 4에서 제조된 음극
비교예 10	비교예 5에서 제조된 음극

- [238]
- [239] 실험예.
- [240] 본 발명에 따른 음극의 성능을 평가하기 위하여, 실시예 및 비교예에서 제조된 각 음극과 리튬 이차전지를 대상으로 하기의 실험을 수행하였다.
- [241]
- [242] 1) 음극 집전체에 대한 접착력 평가
- [243] 실시예 1~8과 비교예 1~5에서 각각 제조된 음극을 가로 및 세로의 길이가 각각 25mm 및 70mm가 되도록 절단하여 시편을 제작하였다. 양면 테이프를 이용하여 준비된 시편을 유리판에 부착하였으며, 이때 집전체가 유리판에 대면하도록 배치하였다. 유리판에 고정된 시편을 인장 시험기에 고정시킨 후, 각 음극의 음극 활성층을 음극 집전체와  $90^\circ$ 의 각도를 이루도록  $25^\circ\text{C}$ 에서 100mm/min 속도로 잡

아당겨 탈리시켰다. 이때, 실시간으로 측정된 박리력을 음극 집전체와 음극 활성층의 계면 접촉력으로 정의하였으며, 측정된 결과를 하기 표 4에 나타냈다.

[244]

[245] 2) 1C-rate 급속 충전 평가

[246] 실시예 9~16 및 비교예 6~10에서 제조된 각 리튬 이차전지들을 각각 25°C에서 0.3C 속도로 4.2V까지 CC-CV 조건으로 충전하고, 0.3C 속도로 2.5V까지 CC 조건으로 방전하여 활성화시켰다.

[247] 활성화된 각 리튬 이차전지들을 25°C의 온도에서 정전류-정전압(CC-CV) 방식으로 충전을 수행하면서, 충전 상태(SOC)가 80%에 도달하는데 소요되는 시간을 측정하였다. 이때, 상기 충전은 1.0C-rate의 전류로 전압이 4.2V에 이를 때까지 정전류(CC) 충전을 수행하고, 이어서 4.2V를 유지하다가 전류가 0.005C-rate에 도달하면 컷오프(cut-off)하는 정전압(CV) 충전을 수행하였다. 측정된 충전 소요 시간은 하기 표 4에 나타냈다.

[248] [표4]

	음극의 종류	접착력	충전 소요시간 (SOC 80%)
실시예 9	실시예 1에서 제조된 음극	34 gf/cm	11초
실시예 10	실시예 2에서 제조된 음극	33 gf/cm	16초
실시예 11	실시예 3에서 제조된 음극	34 gf/cm	19초
실시예 12	실시예 4에서 제조된 음극	39 gf/cm	12초
실시예 13	실시예 5에서 제조된 음극	38 gf/cm	12초
실시예 14	실시예 6에서 제조된 음극	37 gf/cm	11초
실시예 15	실시예 7에서 제조된 음극	35 gf/cm	11초
실시예 16	실시예 8에서 제조된 음극	31 gf/cm	21초
비교예 6	비교예 1에서 제조된 음극	25 gf/cm	28초
비교예 7	비교예 2에서 제조된 음극	28 gf/cm	51초
비교예 8	비교예 3에서 제조된 음극	30 gf/cm	24초
비교예 9	비교예 4에서 제조된 음극	29 gf/cm	32초
비교예 10	비교예 5에서 제조된 음극	14 gf/cm	22초

[249]

[250]

[251] 상기 표 4에 나타낸 바와 같이, 본 발명에 따른 리튬 이차전지용 음극은 음극 활성층과 음극 집전체의 접착력이 우수할 뿐만 아니라, 1C-rate 조건에서 빠른 속도로 충전이 완료되는 것을 알 수 있다.

- [252] 구체적으로, 실시예의 음극들은 음극 활성층과 음극 집전체의 접착력이 31 gf/cm 이상(구체적으로는 33 gf/cm 이상)으로 높게 나타났다. 또한, 이러한 음극을 포함하는 실시예의 이차전지들은 1C-rate의 표준 정전류-정전압 (CC-CV) 충전 조건에서 21초 이하(구체적으로는 20초 미만)의 짧은 시간 내에 충전 상태(SOC) 80%에 도달하였다.
- [253] 반면, 비교예의 음극들은 음극 활성층과 음극 집전체의 접착력이 30 gf/cm 이하로 낮게 나타났다. 다만, 비교예 4의 음극은 음극 활성층과 음극 집전체의 접착력이 30 gf/cm으로 나타났으며, 이를 포함하는 이차전지는 충전 상태(SOC) 80% 도달하는데 22초 이상의 시간이 소요되는 것으로 확인되었다.
- [254] 이는 음극 활성층에 포함된 탄소계 음극활물질의 평균 중량비와 정렬도(O.I)를 제어함으로써 음극 집전체와 음극 활성층의 접착력과 표준 C-rate 조건에서의 충전 속도가 향상될 수 있음을 의미한다.
- [255]
- [256] 이러한 결과로부터, 본 발명에 따른 리튬 이차전지용 음극은 음극 집전체에 대한 접착력이 높으므로 수명 특성이 뛰어나며, 이를 포함하는 리튬 이차전지는 출력 특성이 우수하고, 1C-rate에서도 단시간에 충전이 가능한 것을 알 수 있다.
- [257]
- [258] 이상에서는 본 발명 바람직한 실시예를 참조하여 설명하였지만, 해당 기술 분야의 숙련된 당업자 또는 해당 기술 분야에 통상의 지식을 갖는 자라면, 후술될 특허청구범위에 기재된 본 발명의 기술 영역으로부터 벗어나지 않는 범위 내에서 본 발명을 다양하게 수정 및 변경시킬 수 있음을 이해할 수 있을 것이다.
- [259] 따라서, 본 발명의 기술적 범위는 명세서의 상세한 설명에 기재된 내용으로 한정되는 것이 아니라 특허청구범위에 의해 정해져야만 할 것이다.

## 청구범위

- [청구항 1] 음극 집전체; 및 상기 음극 집전체의 적어도 일면에 마련되고 평균 종횡비가 0.85 이하인 탄소계 음극활물질을 포함하는 음극 활성층을 포함하고; 상기 음극 활성층은 하기 식 1에 따른 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)가 10 이하인 리튬 이차전지용 음극:
- [식 1]
- $$O.I = I_{004}/I_{110}$$
- 식 1에서,  
 $I_{004}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 (0,0,4) 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타내고,  
 $I_{110}$ 는 음극 활성층에 대한 X선 회절(XRD) 분광 분석 시 탄소계 음극활물질의 (1,1,0) 결정면을 나타내는 피크의 면적을 나타낸다.
- [청구항 2] 제1항에 있어서,  
 상기 탄소계 음극활물질은 0.2 이상 0.8 이하의 평균 종횡비를 갖는 리튬 이차전지용 음극.
- [청구항 3] 제1항에 있어서,  
 상기 음극 활성층은 식 1에 따른 탄소계 음극활물질의 정렬도(O.I)가 0.01 내지 10인 리튬 이차전지용 음극.
- [청구항 4] 제1항에 있어서,  
 상기 탄소계 음극활물질은 천연 흑연 및 인조 흑연 중 1종 이상을 포함하는 리튬 이차전지용 음극.
- [청구항 5] 제1항에 있어서,  
 상기 탄소계 음극활물질은 인조 흑연인 것을 특징으로 하는 리튬 이차전지용 음극.
- [청구항 6] 제1항에 있어서,  
 상기 탄소계 음극활물질의 평균 입경( $D_{50}$ )은  $0.01\mu\text{m}$  내지  $20\mu\text{m}$ 인 리튬 이차전지용 음극.
- [청구항 7] 제1항에 있어서,  
 상기 음극 활성층은 20% 내지 30%의 공극률을 갖는 리튬 이차전지용 음극.
- [청구항 8] 제1항에 있어서,  
 상기 음극 활성층의 평균 두께는  $50\mu\text{m}$  내지  $500\mu\text{m}$ 인 리튬 이차전지용 음극.
- [청구항 9] 음극 집전체의 적어도 일면에 음극 슬러리를 도포하는 단계;  
 도포된 음극 슬러리에 자기장을 인가하는 단계; 및  
 자기장이 인가된 음극 슬러리를 건조하여 음극 활성층을 형성하는 단계를 포함하는 제1항에 따른 리튬 이차전지용 음극의 제조방법.

- [청구항 10] 제9항에 있어서,  
상기 자기장을 인가하는 단계는 1초 내지 20초 동안 수행되는 리튬 이차 전지용 음극의 제조방법.
- [청구항 11] 제9항에 있어서,  
상기 자기장을 인가하는 단계는 1,000G 내지 7,000G의 자기장 세기로 수행되는 리튬 이차전지용 음극의 제조방법.
- [청구항 12] 양극, 제1항에 따른 음극, 및 상기 양극과 음극 사이에 배치되는 분리막을 포함하는 전극 조립체; 및  
상기 전극 조립체가 함침되는 전해액 조성물을 포함하는 리튬 이차전지.
- [청구항 13] 제12항에 있어서,  
상기 양극은 양극 집전체의 적어도 일면에 마련되고 하기 화학식 1 및 화학식 2로 나타내는 리튬 금속 산화물 중 1종 이상의 양극활물질을 포함하는 양극 활성층을 포함하는 리튬 이차전지:  
[화학식 1]  
$$\text{Li}_x[\text{Ni}_y\text{Co}_z\text{Mn}_w\text{M}^1_v]\text{O}_2$$
  
[화학식 2]  
$$\text{LiM}^2_p\text{Mn}_{1-p}\text{O}_4$$
  
상기 화학식 1 및 화학식 2에서,  
 $\text{M}^1$ 은 W, Cu, Fe, V, Cr, Ti, Zr, Zn, Al, In, Ta, Y, La, Sr, Ga, Sc, Gd, Sm, Ca, Ce, Nb, Mg, B, 및 Mo 중 1종 이상의 원소이고,  
 $x, y, z, w$  및  $v$ 는 각각  $1.0 \leq x \leq 1.30$ ,  $0.5 \leq y < 1$ ,  $0 < z \leq 0.3$ ,  $0 < w \leq 0.3$ ,  $0 \leq v \leq 0.1$ 이 되,  $y+z+w+v=1$ 이고,  
 $\text{M}^2$ 는 Ni, Co 또는 Fe이며,  
 $p$ 는  $0.05 \leq p \leq 1.0$ 이다.
- [청구항 14] 제13항에 있어서,  
상기 양극활물질은  $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.2}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.9}\text{Co}_{0.05}\text{Mn}_{0.05}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.1}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.6}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.15}\text{Al}_{0.05}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.7}\text{Co}_{0.1}\text{Mn}_{0.1}\text{Al}_{0.1}\text{O}_2$ ,  $\text{LiNi}_{0.7}\text{Mn}_{1.3}\text{O}_4$ ,  $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$  및  $\text{LiNi}_{0.3}\text{Mn}_{1.7}\text{O}_4$  중 1종 이상을 포함하는 리튬 이차전지.
- [청구항 15] 제12항에 있어서,  
상기 전극 조립체는 스택형 전극 조립체; 지그재그형 전극 조립체; 또는 지그재그-스택형 전극 조립체인 리튬 이차전지.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2024/009713

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<b>H01M 4/583(2010.01)i; H01M 4/133(2010.01)i; H01M 4/1393(2010.01)i; H01M 10/052(2010.01)i; H01M 4/525(2010.01)i; H01M 4/505(2010.01)i; H01M 10/0583(2010.01)i; H01M 4/02(2006.01)i</b>		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) H01M 4/583(2010.01); C01B 32/20(2017.01); H01M 10/0587(2010.01); H01M 4/133(2010.01); H01M 4/1393(2010.01); H01M 50/249(2021.01); H01M 50/258(2021.01)		
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: 리튬 이차전지(lithium secondary battery), 음극(anode), 탄소계 활물질(carbon based active material), 종횡비(aspect ratio), 정렬도(orientation index, O.I), 자기장(magnetic field)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	KR 10-2544496 B1 (LG ENERGY SOLUTION, LTD.) 20 June 2023 (2023-06-20) See claims 1, 3-7 and 9-11; paragraphs [0069], [0072], [0119], [0121]-[0136], [0146] and [0190]; and table 1, example 1.	1-15
A	CN 113036298 A (CONTEMPORARY AMPEREX TECHNOLOGY CO., LTD.) 25 June 2021 (2021-06-25) See claims 1-11; and paragraphs [0076]-[0080], [0086], [0091] and [0100].	1-15
A	KR 10-2536147 B1 (LG ENERGY SOLUTION, LTD.) 26 May 2023 (2023-05-26) See claims 1 and 4-11; and paragraphs [0076]-[0078].	1-15
DA	KR 10-2022-0064389 A (CONTEMPORARY AMPEREX TECHNOLOGY CO., LIMITED) 18 May 2022 (2022-05-18) See claims 1 and 4-11; and paragraphs [0077]-[0080].	1-15
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 "D" document cited by the applicant in the international application "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 <b>25 October 2024</b>		Date of mailing of the international search report <b>27 October 2024</b>
Name and mailing address of the ISA/KR <b>Korean Intellectual Property Office Government Complex-Daejeon Building 4, 189 Cheongsaro, Seo-gu, Daejeon 35208</b> Facsimile No. +82-42-481-8578		Authorized officer  Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

**PCT/KR2024/009713**

<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2013-069432 A (TOYOTA MOTOR CORP.) 18 April 2013 (2013-04-18) See claims 1-7.	1-15
-----		

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

International application No.

**PCT/KR2024/009713**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)			Publication date (day/month/year)
KR	10-2544496	B1	20 June 2023	CN	118541828	A	23 August 2024
				EP	4447164	A1	16 October 2024
				WO	2024-136079	A1	27 June 2024
-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
CN	113036298	A	25 June 2021	CN	113036298	B	11 February 2022
-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
KR	10-2536147	B1	26 May 2023	WO	2024-111906	A1	30 May 2024
-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
KR	10-2022-0064389	A	18 May 2022	CN	113228341	A	06 August 2021
				CN	113228341	B	23 June 2023
				EP	3859827	A1	04 August 2021
				EP	3859827	A4	11 August 2021
				EP	3859827	B1	17 August 2022
				JP	2022-540521	A	15 September 2022
				JP	7222147	B2	14 February 2023
				KR	10-2529777	B1	09 May 2023
				US	11961993	B2	16 April 2024
				US	2021-0336244	A1	28 October 2021
-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----	-----
JP	2013-069432	A	18 April 2013	None			
-----	-----	-----	-----	-----			-----

<b>A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))</b> <b>H01M 4/583(2010.01)i; H01M 4/133(2010.01)i; H01M 4/1393(2010.01)i; H01M 10/052(2010.01)i; H01M 4/525(2010.01)i; H01M 4/505(2010.01)i; H01M 10/0583(2010.01)i; H01M 4/02(2006.01)i</b>		
<b>B. 조사된 분야</b> 조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재) H01M 4/583(2010.01); C01B 32/20(2017.01); H01M 10/0587(2010.01); H01M 4/133(2010.01); H01M 4/1393(2010.01); H01M 50/249(2021.01); H01M 50/258(2021.01) 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: 리튬 이차전지(lithium secondary battery), 음극(anode), 탄소계 활물질(carbon based active material), 종횡비(aspect ratio), 정렬도(orientation index, O.I), 자기장(magnetic field)		
<b>C. 관련 문헌</b>		
카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	KR 10-2544496 B1 (주식회사 엘지에너지솔루션) 2023.06.20 청구항 1, 3-7, 9-11; 단락 [0069], [0072], [0119], [0121]-[0136], [0146], [0190]; 표 1; 실시예 1	1-15
A	CN 113036298 A (CONTEMPORARY AMPEREX TECHNOLOGY CO., LTD.) 2021.06.25 청구항 1-11; 단락 [0076]-[0080], [0086], [0091], [0100]	1-15
A	KR 10-2536147 B1 (주식회사 엘지에너지솔루션) 2023.05.26 청구항 1, 4-11; 단락 [0076]-[0078]	1-15
DA	KR 10-2022-0064389 A (컨템포러리 앰퍼렉스 테크놀로지 씨오., 리미티드) 2022.05.18 청구항 1, 4-11; 단락 [0077]-[0080]	1-15
A	JP 2013-069432 A (TOYOTA MOTOR CORP.) 2013.04.18 청구항 1-7	1-15
<input type="checkbox"/> 추가 문헌이 C(계속)에 기재되어 있습니다. <input checked="" type="checkbox"/> 대응특허에 관한 별지를 참조하십시오.		
* 인용된 문헌의 특별 카테고리: "A" 특별히 관련이 없는 것으로 보이는 일반적인 기술수준을 정의한 문헌 "D" 본 국제출원에서 출원인이 인용한 문헌 "E" 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 신규성 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 <b>2024년 10월 25일 (25.10.2024)</b>		국제조사보고서 발송일 <b>2024년 10월 27일 (27.10.2024)</b>
ISA/KR의 명칭 및 우편주소 대한민국 특허청 (35208) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사) 팩스 번호 +82-42-481-8578		심사관 허주형 전화번호 +82-42-481-5373

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
KR 10-2544496 B1	2023/06/20	CN 118541828 A	2024/08/23
		EP 4447164 A1	2024/10/16
		WO 2024-136079 A1	2024/06/27
-----	-----	-----	-----
CN 113036298 A	2021/06/25	CN 113036298 B	2022/02/11
-----	-----	-----	-----
KR 10-2536147 B1	2023/05/26	WO 2024-111906 A1	2024/05/30
-----	-----	-----	-----
KR 10-2022-0064389 A	2022/05/18	CN 113228341 A	2021/08/06
		CN 113228341 B	2023/06/23
		EP 3859827 A1	2021/08/04
		EP 3859827 A4	2021/08/11
		EP 3859827 B1	2022/08/17
		JP 2022-540521 A	2022/09/15
		JP 7222147 B2	2023/02/14
		KR 10-2529777 B1	2023/05/09
		US 11961993 B2	2024/04/16
		US 2021-0336244 A1	2021/10/28
WO 2021-109133 A1	2021/06/10		
-----	-----	-----	-----
JP 2013-069432 A	2013/04/18	없음	
-----	-----	-----	-----