

(12) 특허협력조약에 의하여 공개된 국제출원

(19) 세계지식재산권기구  
국제사무국

(43) 국제공개일  
2020년 3월 12일 (12.03.2020)



(10) 국제공개번호  
**WO 2020/050559 A1**

- (51) 국제특허분류: *H01M 2/16* (2006.01) *H01M 10/0585* (2010.01)  
*H01M 10/04* (2006.01)
- (21) 국제출원번호: PCT/KR2019/011213
- (22) 국제출원일: 2019년 8월 30일 (30.08.2019)
- (25) 출원언어: 한국어
- (26) 공개언어: 한국어
- (30) 우선권정보: 10-2018-0104608 2018년 9월 3일 (03.09.2018) KR
- (71) 출원인: 주식회사 엘지화학 (LG CHEM, LTD.) [KR/KR]; 07336 서울시 영등포구 여의대로 128, Seoul (KR).
- (72) 발명자: 김민지 (KIM, Min Ji); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학기술연구원, Daejeon (KR). 남관우 (NAM, Kwan Woo); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학기술연구원, Daejeon (KR). 이승현 (LEE, Seung Hyun); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학기술연구원, Daejeon (KR). 이제안 (LEE, Je An); 34122 대전시 유성구 문지로 188 LG화학기술연구원, Daejeon (KR).
- (74) 대리인: 장낙용 등 (JANG, Nak Yong et al.); 06235 서울시 강남구 테헤란로16길 14, 7층, Seoul (KR).
- (81) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 지정국 (별도의 표시가 없는 한, 가능한 모든 종류의 국내 권리의 보호를 위하여): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), 유라시아 (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), 유럽 (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

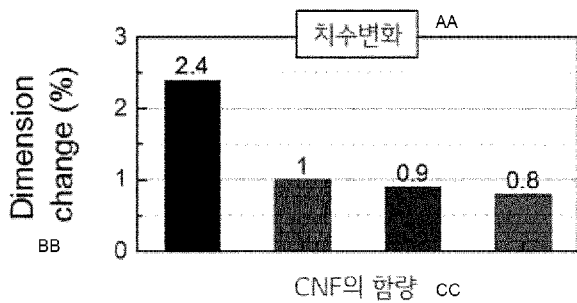
공개:  
— 국제조사보고서와 함께 (조약 제21조(3))



WO 2020/050559 A1

(54) Title: SECONDARY BATTERY SEPARATOR HAVING NO SEPARATOR SUBSTRATE

(54) 발명의 명칭: 분리막 기체가 없는 이차전지용 분리막



AA ... Dimension change  
BB ... Dimension change (%)  
CC ... CNF content

(57) Abstract: The present invention relates to a secondary battery separator for ensuring the insulation between a cathode and an anode, wherein the separator comprises no polyolefin substrate, is composed of a membrane structure comprising a fibrous support, inorganic particles, and a binder, and has improved dimensional stability.

(57) 요약서: 본 발명은 양극 및 음극 간의 절연성을 확보하기 위한 이차전지용 분리막으로서, 상기 분리막은 폴리오레핀 기체를 포함하지 않으며, 섬유상 지지체, 무기 입자, 및 바인더를 포함하는 막구조체로 이루어지고, 치수 안정성이 향상된 이차전지용 분리막에 대한 것이다.

## 명세서

### 발명의 명칭: 분리막 기제가 없는 이차전지용 분리막

#### 기술분야

- [1] 본 출원은 2018년 9월 3일자 한국 특허 출원 제 2018-0104608 호에 기초한 우선권의 이익을 주장하며, 해당 한국 특허 출원의 문헌에 개시된 모든 내용은 본 명세서의 일부로서 포함된다.
- [2] 본 발명은 분리막 기제가 없는 이차전지용 분리막으로서, 구체적으로, 분리막 기제가 없는 분리막의 단점인 치수 변화율을 향상시키기 위하여 섬유상 지지체, 무기 입자 및 바인더를 포함하는 막구조체로 이루어진 이차전지용 분리막에 대한 것이다.

#### 배경기술

- [3] 모바일 기기 관련 시장의 급격한 성장과 함께, 최근에는 전기자동차(EV), 하이브리드 전기자동차(HEV)의 전력 저장 장치 및 동력원으로서 리튬 이차전지의 사용 영역이 확대되고 있다.
- [4] 상기 리튬 이차전지는 양극/분리막/음극 구조의 충방전이 가능한 전극조립체를 전지케이스에 장착한 구조로 이루어져 있으며, 상기 양극 및 음극의 전극은 금속 집전체의 일면 또는 양면에 전극 활물질 등을 포함하는 슬러리를 도포하고 건조 및 압연함으로써 제조된다.
- [5] 이 중 분리막은 이차전지의 수명을 결정짓는 중요한 요소 중 하나로, 양극과 음극을 전기적으로 절연시키면서 전해액은 원활하게 통과할 수 있도록 이온 투과성이 높고, 기계적 강도를 유지하면서 고온에서의 안정성도 필요하다.
- [6] 기존에 통상적으로 사용되는 분리막 기제 상에 무기물 코팅층이 형성된 형태의 분리막은 그의 재료적 특성에 의해 전극과의 접착력이 충분하지 않아, 제조 공정에 따라 계면에서 부분적으로 들뜨거나 주름을 발생시키는 등의 문제가 있다. 또한, 일반적으로 분리막 기제로 사용되는 폴리올레핀은 고온에서 용해되는 등 열적 안정성에 문제가 있다.
- [7] 이와 같은 문제점을 해결하기 위하여, 폴리올레핀 분리막 기제를 제거하고 무기물 코팅층으로만 분리막을 구성하였으나, 분리막이 전해액에 팽윤(swelling)되어 두께가 증가할 뿐 아니라, MD(Machine Direction)방향 및 TD(Transverse Direction)방향 각각에서 모두 연신되는 결과 설정된 분리막의 치수가 변경되어 외관 불량 발생하는 문제가 있다.
- [8] 또한, 치수 변화율이 큰 경우에는 전극과 분리막의 경계부분이 떨어지면서 내부에 기포가 발생할 수 있고, 이로 인한 계면저항 증가로 인해 리튬이 석출되어 셀 저항이 급격히 증가될 수 있다.
- [9] 이와 관련하여, 특허문헌 1은 평균섬유지름이 4 $\mu$ m 이하인 무기섬유 60~97 질량% 및 실리카계 인편상 무기물을 주체로 하는 무기 바인더 3~40중량%를

재료로 하여 제조되고, 상기 무기섬유가 상기 무기 바인더에 의해 결합되고 실질적으로 무기 재료만으로 구성되는 무기 섬유지로 구성되는 비수전해액 전지용 세퍼레이터에 대한 것이다.

- [10] 상기 특허문헌 1은 분리막 기재를 포함하지 않고 무기 섬유 및 무기 바인더를 포함하는 세퍼레이터에 대한 것이나, 특허문헌 1의 세퍼레이터는 무기 섬유의 함량이 무기 바인더의 함량보다 많이 포함하는 조성으로 이루어지고, 전해액 젖음성이 향상된 특징을 갖는다.
- [11] 특허문헌 2는 기재층과, 제1나노 섬유를 포함하는 제1나노 섬유층과, 제2나노 섬유 및 무기 입자를 포함하는 제2나노 섬유층을 갖는 세퍼레이터를 개시한다.
- [12] 상기 특허문헌 2의 세퍼레이터는 나노 섬유를 포함하는 나노 섬유층을 포함하고 나노 섬유층이 세퍼레이터의 제조 과정에서 박리하여 손상되는 것을 억제하는 기능을 발휘하나, 기재층을 포함하는 세퍼레이터인 바, 기재층을 포함하지 않는 분리막으로서 치수 변화율을 낮출 수 있는 방법을 제시하지 못하고 있다.
- [13] 이와 같이, 열적 안정성을 향상시키기 위하여 분리막 기제가 생략된 분리막을 사용하는 경우에, 분리막이 전해액에 팽윤됨으로써 치수 변화가 생기는 것을 방지할 수 있도록 치수 안정성이 향상된 분리막의 개발에 대한 필요성이 높은 실정이다.
- [14] (선행기술문헌)
- [15] 특허문헌 1 일본 등록특허공보 제4922664호
- [16] 특허문헌 2 한국 등록특허공보 제1213567호

## 발명의 상세한 설명

### 기술적 과제

- [17] 본 발명은 상기와 같은 문제점을 해결하기 위한 것으로서, 폴리올레핀 기재를 포함하지 않는 분리막에서 섬유상 지지체를 포함하는 막구조체를 적용함으로써 전해액에 대한 팽윤 저항이 높아 치수 안정성이 향상된 이차전지용 분리막을 제공하는 것을 목적으로 한다.

### 과제 해결 수단

- [18] 본 발명은 상기와 같은 목적을 달성하기 위하여, 양극 및 음극 간의 절연성을 확보하기 위한 이차전지용 분리막으로서, 상기 분리막은 폴리올레핀 기재를 포함하지 않으며, 섬유상 지지체, 무기 입자, 및 바인더를 포함하는 막구조체로 이루어질 수 있다.
- [19] 또한, 상기 섬유상 지지체는 전해액에 대한 팽윤 저항성이 있을 수 있다.
- [20] 또한, 상기 섬유상 지지체는 셀룰로오스 나노파이버(Cellulose NanoFiber, CNF), 셀룰로오스 마이크로파이버(Cellulose Microfiber) 및 아라미드 섬유로 이루어진 군에서 선택되는 1종 이상 일 수 있다.
- [21] 또한, 상기 섬유상 지지체의 함량은 분리막 전체 중량을 기준으로 5중량% 내지

15중량%일 수 있다.

- [22] 또한, 상기 분리막의 두께는 5 $\mu$ m 내지 50 $\mu$ m일 수 있다.
- [23] 또한, 상기 분리막의 치수변화율은 1% 이하일 수 있다.
- [24] 또한, 상기 바인더는 폴리비닐리덴플로라이드, 폴리비닐리덴플로라이드-헥사플루오로프로필렌, 폴리비닐리덴플로라이드-트리클로로에틸렌, 폴리비닐리덴플로라이드-클로로트리플루오로에틸렌, 폴리메틸메타크릴레이트, 폴리아크릴로니트릴, 폴리비닐피롤리돈, 폴리비닐아세테이트, 에틸렌비닐아세테이트, 폴리에틸렌옥사이드, 셀룰로오스 아세테이트, 셀룰로오스 아세테이트 부틸레이트, 셀룰로오스 아세테이트 프로피오네이트, 시아노에틸폴루란, 시아노에틸폴리비닐알콜, 시아노에틸셀룰로오스, 시아노에틸수크로오스, 폴루란, 카르복시메틸셀룰로오스, 아크릴로니트릴스티렌부타디엔 공중합체, 에틸렌-프로필렌-디엔 모노머(EPDM), 숄폰화 EPDM, 스티렌 부티렌 고무(SBR), 불소 고무 및 폴리이미드로 이루어진 군에서 선택되는 1종 이상일 수 있다.
- [25] 또한, 상기 바인더는 바이칼린, 루테올린, 탁시폴린, 미리세틴, 케르세틴, 루틴, 카테킨, 에피갈로카테킨 갈레이트, 뷰테인(butein), 피세아테놀, 탄닌산을 포함하는 페놀계 화합물, 파이로갈릭산, 아밀로즈, 아밀로펙틴, 잔탄검 및 지방산계로 이루어진 수계 또는 비수계 고분자 중 적어도 하나 이상을 추가로 포함할 수 있다.
- [26] 또한, 상기 무기 입자는 유전율 상수가 1 이상인 무기 입자, 압전성(piezoelectricity)을 갖는 무기 입자, 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기 입자, 또는 이들의 둘 이상의 혼합물일 수 있다.
- [27] 또한, 상기 막구조체는 상기 섬유상 지지체, 무기 입자 및 바인더가 균일하게 혼합된 구조로 이루어질 수 있다.
- [28] 또한, 상기 막구조체는 열압착시 용융되어 접착력이 향상되는 접착성 물질을 더 포함할 수 있다.
- [29] 본 발명은 또한, 상기 이차전지용 분리막을 사이에 두고, 양극 및 음극이 적층된 구조로 이루어진 이차전지용 전극조립체를 제공한다.

### 도면의 간단한 설명

- [30] 도 1은 실험예 1에서 분리막의 이온전도도를 측정한 결과를 나타낸 그래프이다.
- [31] 도 2는 실험예 1에서 분리막의 치수변화율을 측정한 결과를 나타낸 그래프이다.
- [32] 도 3은 실험예 1에서 분리막의 인장강도를 측정한 결과를 나타낸 그래프이다.
- [33] 도 4는 실시예 1 내지 3 및 비교예 1에서 제조된 분리막의 SEM 사진이다.
- [34] 도 5는 실험예 3에서 사용된 전극조립체의 사진이다.

## 발명의 실시를 위한 형태

- [35] 본 발명에 따른 이차전지용 분리막은 양극 및 음극 간의 절연성을 확보하기 위한 이차전지용 분리막으로서, 상기 분리막은 폴리올레핀 기재를 포함하지 않으며, 섬유상 지지체, 무기 입자, 및 바인더를 포함하는 막구조체로 이루어질 수 있다.
- [36] 본원 발명의 분리막은 종래의 일반적인 분리막과 비교할 때, 폴리올레핀 계열의 분리막 기제가 없는 구조이다. 즉, 종래의 일반적인 분리막은 폴리올레핀 계열의 분리막 기제의 일면에 무기물과 바인더로 구성되는 무기물층이 도포된 구조인 반면, 본원발명은 종래의 분리막 기제를 생략하고 무기물층을 구성하는 물질들이 바로 분리막을 구성한다.
- [37] 한편, 다른 종래의 분리막으로서, 상기 무기물층으로만 구성되는 분리막은, 폴리올레핀 분리막 기제가 생략되기 때문에 분리막의 전체적인 강도가 낮아짐에 따라 전극조립체 사이에 개재된 분리막이 손상되어 단락이 일어날 가능성이 높은 문제가 있다.
- [38] 또한, 전해액에 대한 함침성이 높아서 팽윤되는 경향이 있기 때문에 두께가 증가하고, MD(Machine Direction)방향 및 TD(Transverse Direction)방향 각각에서 연신되는 결과 설정된 분리막의 치수가 변경되는 단점이 있다.
- [39] 이에, 본원 발명은 분리막을 구성하는 막구조체에 섬유상 지지체를 포함함으로써, 분리막이 팽창하거나 늘어나는 것을 방지할 수 있다. 특히, 상기 섬유상 지지체로서 전해액에 대한 팽윤 저항성이 있는 소재를 사용하는 경우에는, 전해액의 함침성을 유지하여 이온 전도도를 확보하는 동시에 분리막의 치수 변화율을 감소시킬 수 있다.
- [40] 따라서, 분리막의 높은 치수 변화율에 의해 전극과 분리막의 경계가 벌어짐에 따라 전지의 저항이 증가하는 것을 방지할 수 있다.
- [41] 상기 섬유상 지지체는 분리막의 막구조체 내에서 지지체로 적용될 수 있으면서 전해액에 대한 팽윤 저항성이 있는 소재라면 특별히 한정되지 않지만, 예를 들어, 셀룰로오스 나노파이버(Cellulose NanoFiber, CNF), 셀룰로오스 마이크로파이버(Cellulose Microfiber) 또는 아라미드 섬유로 이루어진 군에서 선택되는 1종 이상일 수 있다.
- [42] 하나의 구체적인 예에서, 상기 섬유상 지지체의 함량은 분리막 전체 중량을 기준으로 1중량% 내지 30중량%로 포함될 수 있고, 상세하게는 5중량% 내지 15중량%로 포함될 수 있다.
- [43] 상기 섬유상 지지체의 함량이 1중량% 보다 적은 경우에는 치수 안정성 향상의 목적을 달성하기 어렵고, 30중량% 보다 많이 포함되는 경우에는 상기 막구조체 형성용 슬러리의 점도가 증가하여 막구조체 형성을 위한 코팅 공정이 어려워질 수 있으므로 바람직하지 않다.
- [44] 상기 분리막의 두께는 5 $\mu$ m 내지 50 $\mu$ m의 범위로 이루어질 수 있고, 상세하게는

- 10 $\mu\text{m}$  내지 25 $\mu\text{m}$ 의 범위로 이루어질 수 있다.
- [45] 상기 분리막의 두께가 5 $\mu\text{m}$  보다 작은 경우에는 분리막의 내구성이 떨어지는 문제가 있고, 50 $\mu\text{m}$  보다 큰 경우에는 전체적인 전극조립체의 두께가 증가하여 전지의 용량이 감소하는 문제가 있으므로 바람직하지 않다.
- [46] 상기 무기 입자는 무기 입자들간 빈 공간의 형성을 가능하게 하여 미세 기공을 형성하는 역할과 물리적 형태를 유지할 수 있는 일종의 스페이서(spacer) 역할을 겸하게 되고, 일반적으로 150°C 이상의 고온이 되어도 물리적 특성이 변하지 않는 특성을 갖는다.
- [47] 이러한 무기 입자는 전기화학적으로 안정하기만 하면 특별히 한정되지 않고, 즉, 본원 발명에서 사용할 수 있는 무기 입자는 적용되는 전지의 작동 전압 범위(예컨대, Li/Li+ 기준으로 0~5V)에서 산화 및/또는 환원 반응이 일어나지 않는 것이면 특별히 한정되지 않는다. 특히, 전해질 이온 전달 능력이 높은 무기 입자를 사용하는 경우, 전기화학소자 내의 성능 향상을 도모할 수 있으므로, 가능한 전해질 이온 전달 능력이 높은 것이 바람직하다. 또한, 상기 무기 입자가 높은 밀도를 갖는 경우, 분리막 형성시 분산시키는데 어려움이 있을 뿐만 아니라 전지 제조시 무게 증가의 문제점도 있으므로, 가능한 밀도가 작은 것이 바람직하다. 또한, 유전율이 높은 무기물인 경우, 액체 전해질 내 전해질 염, 예컨대 리튬염의 해리도 증가에 기여하여 전해액의 이온 전도도를 향상시킬 수 있다.
- [48] 상기와 같은 이유들로 인해, 상기 무기 입자는 유전율 상수가 1 이상, 바람직하게는 10 이상인 고유전율 무기 입자, 압전성(piezoelectricity)을 갖는 무기 입자, 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기 입자, 또는 이들의 둘 이상의 혼합물일 수 있다.
- [49] 상기 유전율 상수가 1 이상인 무기 입자의 예로는 SrTiO<sub>3</sub>, SnO<sub>2</sub>, CeO<sub>2</sub>, MgO, NiO, CaO, ZnO, ZrO<sub>2</sub>, Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, TiO<sub>2</sub>, SiC 또는 이들의 혼합물 등이 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [50] 상기 압전성(piezoelectricity)을 갖는 무기 입자는 상압에서는 부도체이나, 일정 압력이 인가되었을 경우 내부 구조 변화에 의해 전기가 통하는 물성을 갖는 물질을 의미하는 것으로서, 유전율 상수가 100 이상인 고유전율 특성을 나타낼 뿐만 아니라 일정 압력을 인가하여 인장 또는 압축되는 경우 전하가 발생하여 한 면은 양으로, 반대편은 음으로 각각 대전됨으로써, 양쪽 면 간에 전위차가 발생하는 기능을 갖는 물질이다.
- [51] 상기와 같은 특징을 갖는 무기 입자를 사용하는 경우, Local crush, Nail 등의 외부 충격에 의해 양 전극의 내부 단락이 발생하는 경우 상기 무기 입자로 인해 양극과 음극이 직접 접촉하지 않을 뿐만 아니라, 상기 무기 입자의 압전성으로 인해 입자 내 전위차가 발생하게 되고 이로 인해 양 전극 간의 전자 이동, 즉 미세한 전류의 흐름이 이루어짐으로써, 완만한 전지의 전압 감소 및 이로 인한 안전성 향상을 도모할 수 있다.

- [52] 상기 압전성을 갖는 무기 입자의 예로는  $\text{BaTiO}_3$ ,  $\text{Pb}(\text{Zr}, \text{Ti})\text{O}_3$  (PZT),  $\text{Pb}_{1-x}\text{La}_x\text{Zr}_{1-y}\text{Ti}_y\text{O}_3$  (PLZT),  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{PbTiO}_3$  (PMN-PT) hafnia ( $\text{HfO}_2$ ) 또는 이들의 혼합물 등이 있으나 이에 한정되는 것은 아니다.
- [53] 상기 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기 입자는 리튬 원소를 함유하되 리튬을 저장하지 아니하고 리튬 이온을 이동시키는 기능을 갖는 무기 입자를 지칭하는 것으로서, 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기 입자는 입자 구조 내부에 존재하는 일종의 결함(defect)으로 인해 리튬 이온을 전달 및 이동시킬 수 있기 때문에, 전지 내 리튬 이온 전도도가 향상되고, 이로 인해 전지 성능 향상을 도모할 수 있다.
- [54] 상기 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기 입자의 예로는 리튬포스페이트( $\text{Li}_3\text{PO}_4$ ), 리튬티타늄포스페이트( $\text{Li}_x\text{Ti}_y(\text{PO}_4)_3$ ,  $0 < x < 2$ ,  $0 < y < 3$ ), 리튬알루미늄티타늄포스페이트( $\text{Li}_x\text{Al}_y\text{Ti}_z(\text{PO}_4)_3$ ,  $0 < x < 2$ ,  $0 < y < 1$ ,  $0 < z < 3$ ),  $14\text{Li}_2\text{O}-9\text{Al}_2\text{O}_3-38\text{TiO}_2-39\text{P}_2\text{O}_5$  등과 같은  $(\text{LiAlTiP})_x\text{O}_y$  계열 glass ( $0 < x < 4$ ,  $0 < y < 13$ ), 리튬란탄티타네이트( $\text{Li}_x\text{La}_y\text{TiO}_3$ ,  $0 < x < 2$ ,  $0 < y < 3$ ),  $\text{Li}_{3.25}\text{Ge}_{0.25}\text{P}_{0.75}\text{S}_4$  등과 같은 리튬게르마늄티오포스페이트( $\text{Li}_x\text{Ge}_y\text{P}_z\text{S}_w$ ,  $0 < x < 4$ ,  $0 < y < 1$ ,  $0 < z < 1$ ,  $0 < w < 5$ ),  $\text{Li}_3\text{N}$  등과 같은 리튬나이트라이드( $\text{Li}_x\text{N}_y$ ,  $0 < x < 4$ ,  $0 < y < 2$ ),  $\text{Li}_3\text{PO}_4$ - $\text{Li}_2\text{S}$ - $\text{SiS}_2$  등과 같은  $\text{SiS}_2$  계열 glass( $\text{Li}_x\text{Si}_y\text{S}_z$ ,  $0 < x < 3$ ,  $0 < y < 2$ ,  $0 < z < 4$ ),  $\text{LiI}$ - $\text{Li}_2\text{S}$ - $\text{P}_2\text{S}_5$  등과 같은  $\text{P}_2\text{S}_5$  계열 glass ( $\text{Li}_x\text{P}_y\text{S}_z$ ,  $0 < x < 3$ ,  $0 < y < 3$ ,  $0 < z < 7$ ), 또는 이들의 혼합물 등이 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [55] 한편, 상기 고유전율 무기 입자, 압전성을 갖는 무기 입자, 및 리튬 이온 전달 능력을 갖는 무기 입자들을 혼용할 경우, 이들의 상승 효과는 배가 될 수 있다.
- [56] 상기 무기 입자의 크기는 제한이 없으나, 균일한 두께의 필름 형성 및 적절한 공극률을 위하여 가능한 한  $0.001\mu\text{m}$  내지  $10\mu\text{m}$  범위인 것이 바람직하다.  $0.001\mu\text{m}$  미만인 경우 분산성이 저하되어 분리막의 물성을 조절하기가 어려우며,  $10\mu\text{m}$  를 초과하는 경우 동일한 고형분 함량으로 제조되는 분리막의 두께가 증가하여 기계적 물성이 저하되며, 또한 지나치게 큰 기공 크기로 인해 전지 충방전시 내부 단락이 일어날 확률이 높아진다.
- [57] 상기 바인더는 액체 전해액 함침시 겹화되어 높은 전해액 함침율(degree of swelling)을 나타낼 수 있는 특징을 가질 수 있다. 실제로, 상기 바인더 고분자들이 전해액 함침율이 우수한 고분자인 경우, 전지 조립 후 주입되는 전해액은 상기 고분자로 스며들게 되고, 흡수된 전해액을 보유하는 고분자는 전해질 이온 전도 능력을 갖게 된다. 또한, 종래 소수성 폴리올레핀 계열 분리막에 비해 전지용 전해액에 대한 젖음성(wetting)이 개선될 뿐만 아니라 종래에 사용되기 어려웠던 전지용 극성 전해액의 적용도 가능하다는 장점이 있다. 따라서, 가능하면 용해도 지수가 15 내지  $45\text{MPa}^{1/2}$ 인 고분자가 바람직하며, 15 내지  $25\text{MPa}^{1/2}$  및 30 내지  $45\text{MPa}^{1/2}$  범위가 더욱 바람직하다. 용해도 지수가  $15\text{MPa}^{1/2}$  미만 및  $45\text{MPa}^{1/2}$ 를 초과하는 경우, 통상적인 전지용 액체 전해액에 의해 함침(swelling)되기 어렵게 된다.

- [58] 하나의 구체적인 예에서, 상기 막구조체는 상기 섬유상 지지체, 무기 입자 및 바인더가 균일하게 혼합된 구조로 이루어질 수 있는 바, 무기 입자 및 바인더로 이루어진 구조체 상에 섬유상 지지체가 별도의 층상구조로 형성되는 구조로 이루어지는 경우에는, 상기 섬유상 지지체가 분리막의 전체적인 지지체의 역할을 수행하기 어려운 바 바람직하지 않다.
- [59] 다른 하나의 구체적인 예에서, 상기 막구조체는 전극과의 결합력을 향상시키기 접착성 물질을 포함할 수 있으며, 상기 접착성 물질은 전극조립체 제조를 위하여 상기 분리막과 양극 및 음극을 적층한 상태에서 고온 고압을 인가하여 라미네이션하는 경우 용융되어 접착력이 향상되는 성질을 갖는 소재로 이루어질 수 있다.
- [60] 본 발명은 또한, 상기 이차전지용 분리막을 사이에 두고, 양극 및 음극이 적층된 구조로 이루어진 이차전지용 전극조립체를 제공한다.
- [61] 상기 양극은 양극 집전체 상에 양극 활물질, 도전재 및 바인더의 혼합물을 도포한 후 건조하여 제조되며, 필요에 따라서는, 충전제를 더 첨가하기도 한다.
- [62] 상기 양극 집전체는 일반적으로  $3\mu\text{m}$  이상 내지  $500\mu\text{m}$  이하의 두께로 만들어진다. 이러한 양극 집전체는, 당해 전지에 화학적 변화를 유발하지 않으면서 도전성을 가진 것이라면 특별히 제한되는 것은 아니며, 예를 들어, 스테인리스 스틸, 알루미늄, 니켈, 티탄, 소성 탄소, 또는 알루미늄이나 스테인리스 스틸의 표면에 카본, 니켈, 티탄, 은 등으로 표면 처리한 것 등이 사용될 수 있다. 집전체는 그것의 표면에 미세한 요철을 형성하여 양극 활물질의 접착력을 높일 수도 있으며, 필름, 시트, 호일, 네트, 다공질체, 발포체, 부직포체 등 다양한 형태가 가능하다.
- [63] 상기 양극 활물질은 리튬 코발트 산화물( $\text{LiCoO}_2$ ), 리튬 니켈 산화물( $\text{LiNiO}_2$ ) 등의 층상 화합물이나 1 또는 그 이상의 전이금속으로 치환된 화합물; 화학식  $\text{Li}_{1-x}\text{Mn}_{2-x}\text{O}_4$  (여기서,  $x$  는  $0 \sim 0.33$  임),  $\text{LiMnO}_3$ ,  $\text{LiMn}_2\text{O}_3$ ,  $\text{LiMnO}_2$  등의 리튬 망간 산화물; 리튬 동 산화물( $\text{Li}_2\text{CuO}_2$ );  $\text{LiV}_3\text{O}_8$ ,  $\text{V}_2\text{O}_5$ ,  $\text{Cu}_2\text{V}_2\text{O}_7$  등의 바나듐 산화물; 화학식  $\text{LiNi}_{1-x}\text{M}_x\text{O}_2$  (여기서,  $M = \text{Co}, \text{Mn}, \text{Al}, \text{Cu}, \text{Fe}, \text{Mg}, \text{B}$  또는  $\text{Ga}$  이고,  $x = 0.01 \sim 0.3$  임)으로 표현되는 Ni 사이트형 리튬 니켈 산화물; 화학식  $\text{LiMn}_{2-x}\text{M}_x\text{O}_2$  (여기서,  $M = \text{Co}, \text{Ni}, \text{Fe}, \text{Cr}, \text{Zn}$  또는  $\text{Ta}$  이고,  $x = 0.01 \sim 0.1$  임) 또는  $\text{Li}_2\text{Mn}_3\text{MO}_8$  (여기서,  $M = \text{Fe}, \text{Co}, \text{Ni}, \text{Cu}$  또는  $\text{Zn}$  임)으로 표현되는 리튬 망간 복합 산화물; 화학식의 Li 일부가 알칼리토금속 이온으로 치환된  $\text{LiMn}_2\text{O}_4$ ; 디설파이드 화합물;  $\text{Fe}_2(\text{MoO}_4)_3$  등을 들 수 있지만, 이들만으로 한정되는 것은 아니다.
- [64] 상기 도전재는 통상적으로 양극 활물질을 포함한 혼합물 전체 중량을 기준으로 1 내지 30 중량%로 첨가된다. 이러한 도전재는 당해 전지에 화학적 변화를 유발하지 않으면서 도전성을 가진 것이라면 특별히 제한되는 것은 아니며, 예를 들어, 천연 흑연이나 인조 흑연 등의 흑연; 카본블랙, 아세틸렌 블랙, 케첸 블랙, 채널 블랙, 퍼네이스 블랙, 램프 블랙, 서머 블랙 등의 카본블랙; 탄소 섬유나

금속 섬유 등의 도전성 섬유; 불화 카본, 알루미늄, 니켈 분말 등의 금속 분말; 산화아연, 티탄산 칼륨 등의 도전성 위스키; 산화 티탄 등의 도전성 금속 산화물; 폴리페닐렌 유도체 등의 도전성 소재 등이 사용될 수 있다.

- [65] 상기 바인더는 활물질과 도전제 등의 결합과 집전체에 대한 결합에 조력하는 성분으로서, 통상적으로 양극 활물질을 포함하는 혼합물 전체 중량을 기준으로 1 내지 30 중량%로 첨가된다. 이러한 바인더의 예로는, 폴리불화비닐리덴, 폴리비닐알코올, 카르복시메틸셀룰로오즈(CMC), 전분, 히드록시프로필셀룰로오즈, 재생 셀룰로오즈, 폴리비닐피롤리돈, 테트라플루오로에틸렌, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 에틸렌-프로필렌-디엔 모노머(EPDM), 술폰화 EPDM, 스티렌 브티렌 고무, 불소 고무, 다양한 공중합체 등을 들 수 있다.
- [66] 상기 충전제는 양극의 팽창을 억제하는 성분으로서 선택적으로 사용되며, 당해 전지에 화학적 변화를 유발하지 않으면서 섬유상 재료라면 특별히 제한되는 것은 아니며, 예를 들어, 폴리에틸렌, 폴리프로필렌 등의 올핀계 중합체; 유리섬유, 탄소섬유 등의 섬유상 물질이 사용된다.
- [67] 상기 음극은 음극 집전체 상에 음극 재료를 도포, 건조하여 제작되며, 필요에 따라, 앞서 설명한 바와 같은 성분들이 선택적으로 더 포함될 수도 있다.
- [68] 상기 음극 집전체는 일반적으로  $3\mu\text{m}$  이상 내지  $500\mu\text{m}$  이하의 두께로 만든다. 이러한 음극 집전체는, 당해 전지에 화학적 변화를 유발하지 않으면서 높은 도전성을 가지는 것이라면 특별히 제한되는 것은 아니며, 예를 들어, 구리, 스테인리스 스틸, 알루미늄, 니켈, 티탄, 소성 탄소, 구리나 스테인리스 스틸의 표면에 카본, 니켈, 티탄, 은 등으로 표면처리한 것, 알루미늄-카드뮴 합금 등이 사용될 수 있다. 또한, 양극 집전체와 마찬가지로, 표면에 미세한 요철을 형성하여 음극 활물질의 결합력을 강화시킬 수도 있으며, 필름, 시트, 호일, 네트, 다공질체, 발포체, 부직포체 등 다양한 형태로 사용될 수 있다.
- [69] 상기 음극 활물질로는, 예를 들어, 난흑연화 탄소, 흑연계 탄소 등의 탄소;  $\text{Li}_x\text{Fe}_2\text{O}_3$  ( $0 \leq x \leq 1$ ),  $\text{Li}_x\text{WO}_2$  ( $0 \leq x \leq 1$ ),  $\text{Sn}_x\text{Me}_{1-x}\text{Me}'_y\text{O}_z$  (Me: Mn, Fe, Pb, Ge; Me': Al, B, P, Si, 주기율표의 1족, 2족, 3족 원소, 할로젠;  $0 < x \leq 1$ ;  $1 \leq y \leq 3$ ;  $1 \leq z \leq 8$ ) 등의 금속 복합 산화물; 리튬 금속; 리튬 합금; 규소계 합금; 주석계 합금; SnO, SnO<sub>2</sub>, PbO, PbO<sub>2</sub>, Pb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Pb<sub>3</sub>O<sub>4</sub>, Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Sb<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Sb<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, GeO, GeO<sub>2</sub>, Bi<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Bi<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, 및 Bi<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 등의 금속 산화물; 폴리아세틸렌 등의 도전성 고분자; Li-Co-Ni 계 재료 등을 사용할 수 있다.
- [70] 본원 발명은 또한, 상기 전극조립체를 포함하는 이차전지를 제공할 수 있다.
- [71] 구체적으로, 상기 이차전지는 고온 안전성 및 긴 사이클 특성과 높은 레이트 특성 등이 요구되는 디바이스의 전원으로 사용될 수 있으며, 이러한 디바이스의 상세한 예로는, 모바일 전자기기(mobile device), 웨어러블 전자기기(wearable device), 전지적 모터에 의해 동력을 받아 움직이는 파워 툴(power tool); 전기자동차(Electric Vehicle, EV), 하이브리드 전기자동차(Hybrid Electric Vehicle,

HEV), 플러그-인 하이브리드 전기자동차(Plug-in Hybrid Electric Vehicle, PHEV) 등을 포함하는 전기차; 전기 자전거(E-bike), 전기 스쿠터(E-scooter)를 포함하는 전기 이륜차; 전기 골프 카트(electric golf cart); 전력 저장 장치(Energy Storage System) 등을 들 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.

[72] 이들 디바이스의 구조 및 그것의 제작 방법은 당업계에 공지되어 있으므로, 본 명세서에서는 그에 대한 자세한 설명은 생략한다.

[73] 이하에서는, 본 발명에 따른 실시예를 참조하여 설명하지만, 이는 본 발명의 더욱 용이한 이해를 위한 것으로, 본 발명의 범주가 그것에 의해 한정되는 것은 아니다.

[74] <실시예 1>

[75] 섬유상 지지체로서 셀룰로오스 나노파이버 5중량%, 바인더로서 폴리비닐리덴플로라이드(PVdF) 47.5중량% 및 무기 입자로서 보에마이트(boehmite) 47.5중량%를 사용한 혼합물에 용매로서 NMP(N-Methylpyrrolidone)를 첨가하여 슬러리를 제조하였다.

[76] 상기 슬러리를 분리막 형태로 성형한 후 150°C에서 30분간 건조하여 분리막을 제조하였다.

[77] <실시예 2>

[78] 섬유상 지지체로서 셀룰로오스 나노파이버 10중량%, 바인더로서 폴리비닐리덴플로라이드-헥사플루오로프로필렌(PVdF-HFP) 47.5중량% 및 무기 입자로서 보에마이트 42.5중량%의 혼합물에 용매로서 NMP를 첨가하여 슬러리를 제조한 점을 제외하고 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 분리막을 제조하였다.

[79] <실시예 3>

[80] 섬유상 지지체로서 셀룰로오스 나노파이버 15중량%, 바인더로서 폴리비닐리덴플로라이드-헥사플루오로프로필렌(PVdF-HFP) 47.5중량% 및 무기 입자로서 보에마이트 37.5중량%의 혼합물에 용매로서 NMP를 첨가하여 슬러리를 제조한 점을 제외하고 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 분리막을 제조하였다.

[81] <비교예 1>

[82] 상기 실시예 1에서 섬유상 지지체를 추가하지 않고 바인더로서 폴리비닐리덴플로라이드(PVdF) 50중량% 및 무기 입자로서 보에마이트 50중량%만을 이용하여 슬러리를 제조한 점을 제외하고 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 분리막을 제조하였다.

[83] <실험예 1>

[84] 물성 측정

[85] 상기 실시예 1 내지 실시예 3 및 비교예 1에서 제조된 분리막의 물성을 확인하기 위하여 이온전도도, 치수변화율 및 인장강도를 측정하였고, 결과를 하기 표 2 및 도 1 내지 3에 나타내었다.

[86] 또한, 상기 실시예 1 내지 3 및 비교예 1의 분리막의 SEM 사진을 도 4에 나타내었다.

[87] [표1]

	실시예 1	실시예 2	실시예 3	비교예 1
이온전도도 ( $10^{-4}$ S/cm)	8.1	8.2	8.8	5.3
치수변화율 (%)	1	0.9	0.8	2.4
인장강도 (kgf/cm)	222	219	214	186

[88] 상기 표 1 및 도 1 내지 4를 참조하면, 섬유상 지지체의 함량이 증가할수록 이온 전도도가 증가하는데, 이는 섬유상 지지체의 함량이 증가할수록 분리막을 구성하는 섬유상 지지체 간의 공간이 형성되면서 전자 이동의 통로 역할을 하기 때문이다.

[89] 또한, 섬유상 지지체의 함량이 증가할수록 치수변화율은 감소한다. 이는 도 4에 나타난 바와 같이 섬유상 지지체의 함량이 증가할수록 표면에서 관찰되는 섬유상 지지체의 양이 많아지는 바, 분리막의 지지체 역할이 강화되어 치수 변화가 억제됨으로써 치수 안전성이 향상되기 때문이다.

[90] 또한, 실시예 1 내지 3의 인장강도는 섬유상 지지체가 포함되지 않은 비교예 1과 비교할 때 증가된 값을 나타내지만, 섬유상 지지체의 함량이 증가할수록 다소 감소하는 것을 알 수 있다.

[91] 실시예 1 내지 실시예 3과 같이 무기 입자의 함량이 줄고 섬유상 지지체의 함량이 증가함에 따라 비용해물질인 섬유상 지지체의 전체 표면적이 증가하는데, 이와 같이 표면적이 증가하는 경우 표면쪽으로 바인더가 상대적으로 밀집되면서 표면 이외의 부분은 상대적으로 바인더의 양이 줄어들게 된다. 인장강도에 영향을 주는 자유로운 상태의 바인더는 상기 표면 이외의 부분에 존재하는 바, 인장강도에 영향을 주는 바인더의 함량이 줄어들기 때문에 섬유상 지지체의 함량이 증가할수록 인장강도가 감소하는 것으로 판단된다.

[92] <실시예 4>

[93] 상기 실시예 2에서 섬유상 지지체로서 셀룰로오스 나노파이버 대신 셀룰로오스 마이크로파이버를 사용한 것을 제외하고 상기 실시예 2와 동일한 방법을 사용하여 분리막을 제조하였다.

[94] <비교예 2>

[95] 폴리에틸렌을 사용하여 분리막 형태로 성형한 후 건조하여 분리막을 제조하였다.

[96] <비교예 3>

[97] 상기 비교예 2에서 사용한 분리막 상에 상기 비교예 1에서 제조한 슬러리를 코팅하고 150°C에서 30분간 건조하여 분리막을 제조하였다.

[98] <실험예 2>

[99] 열적 안정성 평가

[100] 상기 실시예 2, 실시예 4 및 비교예 1 내지 3에서 제조된 분리막을 220°C의 온도를 유지한 챔버에서 10분 동안 보관한 후, 실험전과 실험 후의 길이를 비교하여 열수축률 평가하였다.

[101] 상기 샘플들의 열수축률 평가 결과는 하기 표 2와 같다.

[102] [표2]

	열수축률 (%)
실시예 2	0
실시예 4	0
비교예 1	0
비교예 2	80
비교예 3	16

[103] 상기 표 2를 참조하면, 분리막 기재가 없는 실시예 2, 실시예 4 및 비교예 1의 분리막은 열수축률이 0%로 나타났다. 반면에 폴리에틸렌 소재의 분리막으로만 구성된 비교예 2는 열수축률이 80%로 가장 높게 측정되었고, 상기 비교예 2의 분리막을 기재로 사용하고 바인더 및 무기 입자로 구성된 코팅층이 도포된 비교예 3의 분리막은 열수축률이 16%로 측정되었다.

[104] 이와 같이, 분리막 기재가 생략된 분리막은 열수축률이 현저하게 향상됨을 알 수 있다.

[105] <실험예 3>

[106] 상기 실시예 2 및 비교예 1에서 제조된 분리막을 이용하여 전극조립체를 제조하였다.

[107] 구체적으로, 상기 분리막/양극/분리막/음극/분리막의 구조가 되도록 적층하였는 바, 상기 양극 및 음극의 크기는 4\*6.5 cm<sup>2</sup>이고, 분리막의 크기는 4.5\*7.0 cm<sup>2</sup>로 컷팅하여 제조하였다.

[108] 라미네이터의 온도를 100°C로 설정한 후 상기 전극조립체를 가압하여 라미네이션하고, 도 5에 도시한 바와 같이 집게로 고정하여 전해액에 1일 동안 보관하였다. 이후 전해액에서 전극조립체를 꺼낸 후 분리막의 변형을 관찰하였다.

[109] 도 5를 참조하면, 섬유상 지지체를 포함하는 실시예 1의 분리막을 사용한 전극조립체는 주름이 거의 발생하지 않음을 확인할 수 있으나, 섬유상 지지체를 포함하지 않는 비교예 1의 분리막을 사용한 전극조립체는 전체적으로 늘어나서 주름이 발생하였음을 확인할 수 있다. 즉, 본 발명에 따른 분리막을 사용하는 경우에는, 치수 변화율이 0.9%로 현저히 저하되는 효과를 얻을 수 있는 바, 분리막과 전극의 경계가 들뜨는 현상에 의한 저항 증가의 문제 및 전극과의

접착력이 저하되는 문제 등을 방지할 수 있다.

- [110] 본 발명이 속한 분야에서 통상의 지식을 가진 자라면 상기 내용을 바탕으로 본 발명의 범주내에서 다양한 응용 및 변형을 수행하는 것이 가능할 것이다.

### **산업상 이용가능성**

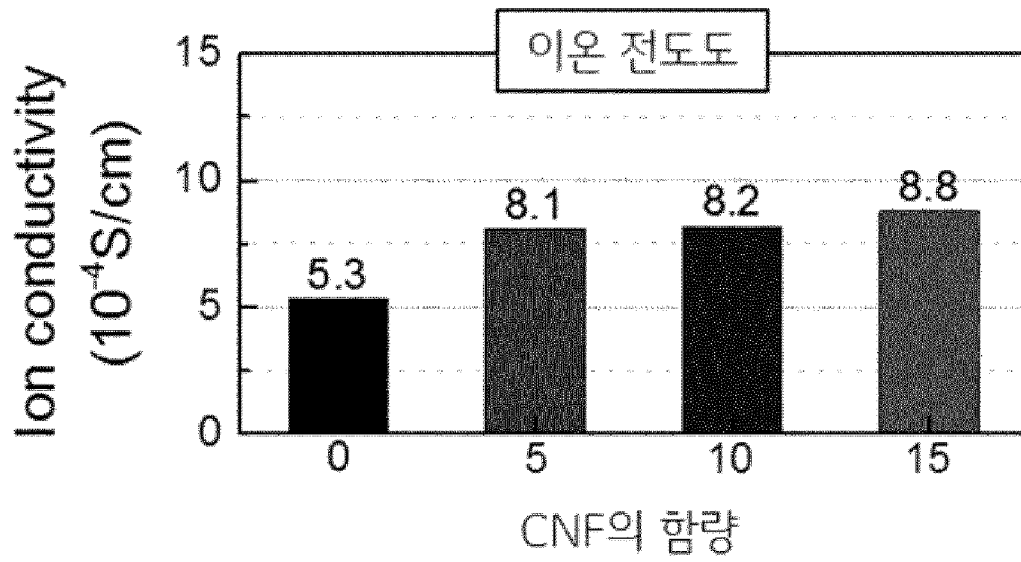
- [111] 이상에서 설명한 바와 같이, 본 발명에 따른 이차전지용 분리막은 고온에서 용융되는 폴리올레핀계 분리막 기재를 포함하지 않기 때문에 열적 안정성을 확보할 수 있다.
- [112] 또한, 분리막을 구성하는 막구조체에 팽윤 저항성이 높은 섬유상 지지체를 포함하는 바, 종래에 분리막이 전해액에 팽윤되어 전극과 분리막 사이가 들뜨면서 전극과 분리막의 경계에서 기포가 발생하여 저항이 증가되는 문제를 방지할 수 있다.

## 청구범위

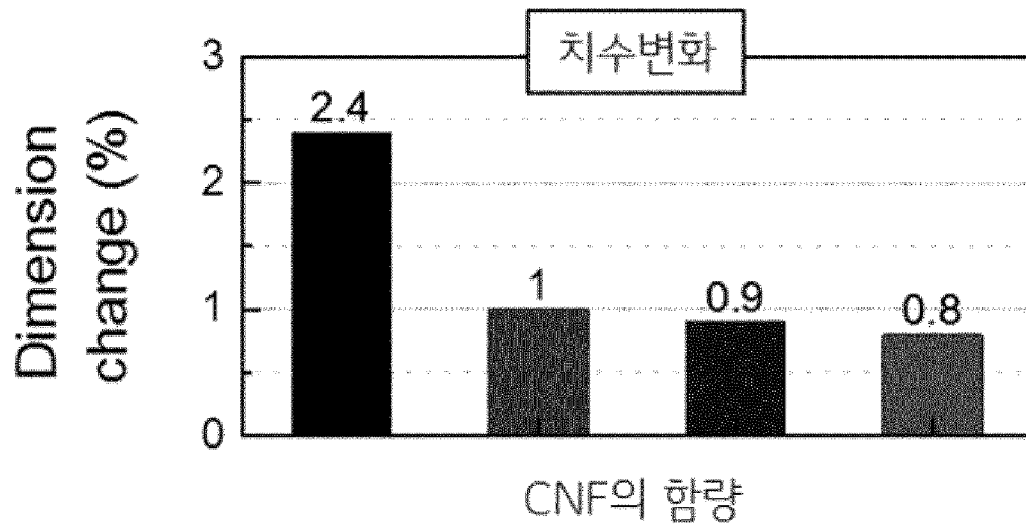
- [청구항 1] 양극 및 음극 간의 절연성을 확보하기 위한 이차전지용 분리막으로서, 상기 분리막은 폴리올레핀 기재를 포함하지 않으며, 섬유상 지지체, 무기 입자, 및 바인더를 포함하는 막구조체로 이루어진 이차전지용 분리막.
- [청구항 2] 제1항에 있어서, 상기 섬유상 지지체는 전해액에 대한 팽윤 저항성이 있는 이차전지용 분리막.
- [청구항 3] 제1항에 있어서, 상기 섬유상 지지체는 셀룰로오스 나노파이버(Cellulose NanoFiber, CNF), 셀룰로오스 마이크로파이버(Cellulose Microfiber) 및 아라미드 섬유로 이루어진 군에서 선택되는 1종 이상인 이차전지용 분리막.
- [청구항 4] 제1항에 있어서, 상기 섬유상 지지체의 함량은 분리막 전체 중량을 기준으로 5중량% 내지 15중량%인 이차전지용 분리막.
- [청구항 5] 제1항에 있어서, 상기 분리막의 두께는 5 $\mu$ m 내지 50 $\mu$ m인 이차전지용 분리막.
- [청구항 6] 제1항에 있어서, 상기 분리막의 치수변화율은 1% 이하인 이차전지용 분리막.
- [청구항 7] 제1항에 있어서, 상기 바인더는 폴리비닐리덴플로라이드, 폴리비닐리덴플로라이드-헥사플루오로프로필렌, 폴리비닐리덴플로라이드-트리클로로에틸렌, 폴리비닐리덴플로라이드-클로로트리플루오로에틸렌, 폴리메틸메타크릴레이트, 폴리아크릴로니트릴, 폴리비닐피롤리돈, 폴리비닐아세테이트, 에틸렌비닐아세테이트, 폴리에틸렌옥사이드, 셀룰로오스 아세테이트, 셀룰로오스 아세테이트 부틸레이트, 셀룰로오스 아세테이트 프로피오네이트, 시아노에틸폴루란, 시아노에틸폴리비닐알콜, 시아노에틸셀룰로오스, 시아노에틸수크로오스, 폴루란, 카르복시메틸셀룰로오스, 아크릴로니트릴스티렌부타디엔 공중합체, 에틸렌-프로필렌-디엔 모노머(EPDM), 술폰화 EPDM, 스티렌 부티렌 고무(SBR), 불소 고무 및 폴리이미드로 이루어진 군에서 선택되는 1종 이상인 이차전지용 분리막.
- [청구항 8] 제1항에 있어서, 상기 바인더는 바이칼린, 루테올린, 탁시폴린, 미리세틴, 케르세틴, 루틴, 카테킨, 에피갈로카테킨 갈레이트, 뷰테인(butein), 피세아테놀, 탄닌산을 포함하는 폐놀계 화합물, 파이로갈릭산, 아밀로즈, 아밀로펙틴, 잔탄검 및 지방산계로 이루어진 수계 또는 비수계 고분자 중 적어도 하나 이상을 추가로 포함하는 이차전지용 분리막.
- [청구항 9] 제1항에 있어서, 상기 무기 입자는 유전율 상수가 1 이상인 무기 입자, 압전성(piezoelectricity)을 갖는 무기 입자, 리튬 이온 전달 능력을 갖는

- 무기 입자, 또는 이들의 둘 이상의 혼합물인 이차전지용 분리막.
- [청구항 10] 제1항에 있어서, 상기 막구조체는 상기 섬유상 지지체, 무기 입자 및 바인더가 균일하게 혼합된 구조로 이루어진 이차전지용 분리막.
- [청구항 11] 제1항에 있어서, 상기 막구조체는 열압착시 용융되어 접착력이 향상되는 접착성 물질을 더 포함하는 이차전지용 분리막.
- [청구항 12] 제1항 내지 제11항 중 어느 한 항에 따른 이차전지용 분리막을 사이에 두고, 양극 및 음극이 적층된 구조로 이루어진 이차전지용 전극조립체.

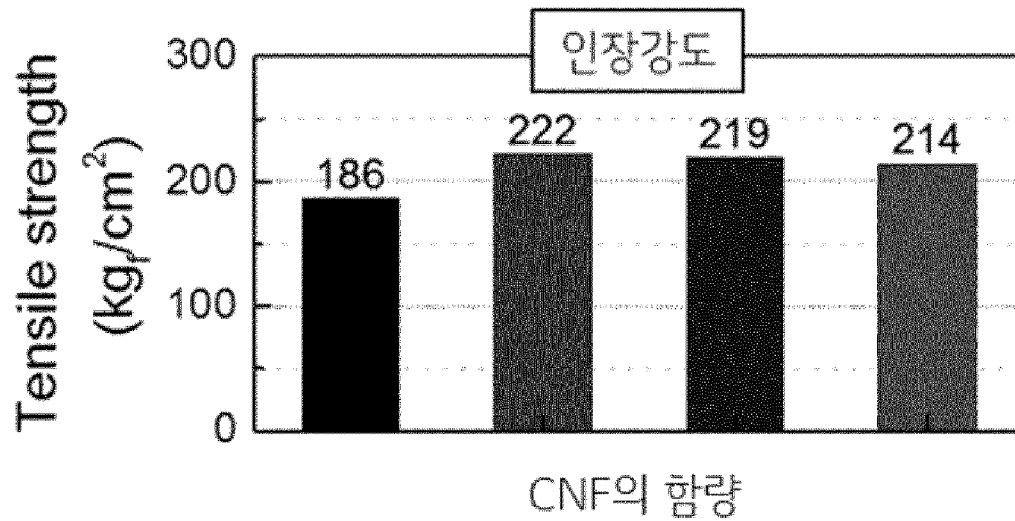
[도1]



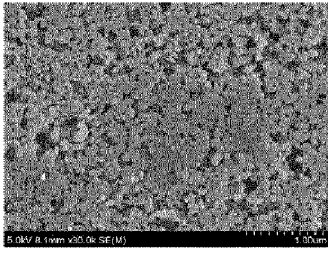
[도2]



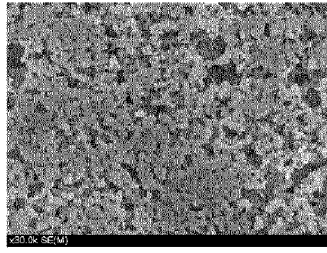
[도3]



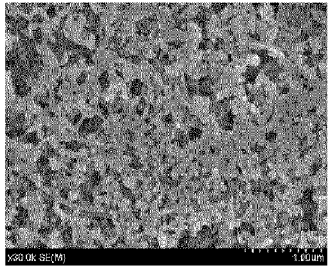
[도4]



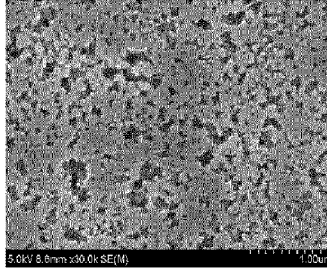
<실시예 1>



<실시예 2>

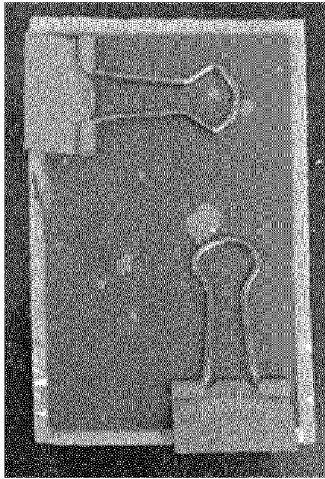


<실시예 3>

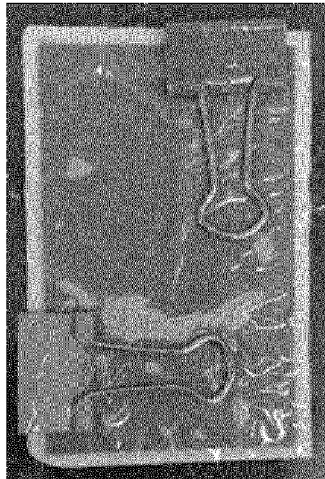


<비교예 1>

[도5]



실시예 2



비교예 1

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/KR2019/011213

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

*H01M 2/16(2006.01)i, H01M 10/04(2006.01)i, H01M 10/0585(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 2/16; H01M 10/05; H01M 10/0525; H01M 10/0566; H01M 10/42; H01M 10/04; H01M 10/0585

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: separator, cellulose, binder, inorganic particle, secondary battery, polyolefin

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2014-107061 A (TOSHIBA CORP.) 09 June 2014 See paragraphs [0008], [0031]-[0044], [0056] and claims 1, 2.	1-7,9,10,12
Y		8,11
Y	KR 10-2018-0081472 A (LG CHEM, LTD.) 16 July 2018 See claim 3.	8
Y	KR 10-2016-0109669 A (SK INNOVATION CO., LTD.) 21 September 2016 See paragraph [0013].	11
A	KR 10-2014-0072696 A (NATIONAL INSTITUTE OF FOREST SCIENCE) 13 June 2014 See paragraph [0012] and claims 2, 4, 5, 15.	1-12
A	US 5158844 A (HAGENS, Vicky L. et al.) 27 October 1992 See column 3 and claim 1.	1-12

 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

"&amp;" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

02 DECEMBER 2019 (02.12.2019)

Date of mailing of the international search report

02 DECEMBER 2019 (02.12.2019)

Name and mailing address of the ISA/KR



Korean Intellectual Property Office  
 Government Complex Daejeon Building 4, 189, Cheongsa-ro, Seo-gu,  
 Daejeon, 35208, Republic of Korea

Facsimile No. +82-42-481-8578

Authorized officer



Telephone No.

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

International application No.

**PCT/KR2019/011213**

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member	Publication date
JP 2014-107061 A	09/06/2014	JP 6121697 B2	26/04/2017
KR 10-2018-0081472 A	16/07/2018	CN 109792020 A EP 3503256 A1 EP 3503256 A9 WO 2018-128484 A1	21/05/2019 26/06/2019 25/09/2019 12/07/2018
KR 10-2016-0109669 A	21/09/2016	None	
KR 10-2014-0072696 A	13/06/2014	CN 105144428 A EP 2930767 A1 JP 2015-537358 A KR 10-1423296 B1 US 10069127 B2 US 2015-0333306 A1 WO 2014-088151 A1	09/12/2015 14/10/2015 24/12/2015 24/07/2014 04/09/2018 19/11/2015 12/06/2014
US 5158844 A	27/10/1992	CA 2045076 A1 EP 0503811 A1 JP 04-312763 A JP 3246669 B2 KR 10-1992-0018998 A	08/09/1992 16/09/1992 04/11/1992 15/01/2002 22/10/1992

<b>A. 발명이 속하는 기술분류(국제특허분류(IPC))</b> <b>H01M 2/16(2006.01)i, H01M 10/04(2006.01)i, H01M 10/0585(2010.01)i</b>		
<b>B. 조사된 분야</b> 조사된 최소문헌(국제특허분류를 기재) H01M 2/16; H01M 10/05; H01M 10/0525; H01M 10/0566; H01M 10/42; H01M 10/04; H01M 10/0585 조사된 기술분야에 속하는 최소문헌 이외의 문헌 한국등록실용신안공보 및 한국공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC 일본등록실용신안공보 및 일본공개실용신안공보: 조사된 최소문헌란에 기재된 IPC 국제조사에 이용된 전산 데이터베이스(데이터베이스의 명칭 및 검색어(해당하는 경우)) eKOMPASS(특허청 내부 검색시스템) & 키워드: 분리막(separator), 셀룰로오스(cellulose), 바인더(binder), 무기 입자(inorganic particle), 이차 전지(secondary battery), 폴리올레핀(polyolefin)		
<b>C. 관련 문헌</b>		
카테고리*	인용문헌명 및 관련 구절(해당하는 경우)의 기재	관련 청구항
X	JP 2014-107061 A (TOSHIBA CORP.) 2014.06.09 단락 [0008], [0031]-[0044], [0056] 및 청구항 1, 2 참조.	1-7,9,10,12
Y		8,11
Y	KR 10-2018-0081472 A (주식회사 엘지화학) 2018.07.16 청구항 3 참조.	8
Y	KR 10-2016-0109669 A (에스케이이노베이션 주식회사) 2016.09.21 단락 [0013] 참조.	11
A	KR 10-2014-0072696 A (대한민국(산림청 국립산림과학원장)) 2014.06.13 단락 [0012] 및 청구항 2, 4, 5, 15 참조.	1-12
A	US 5158844 A (HAGENS VICKY L. 등) 1992.10.27 컬럼 3 및 청구항 1 참조.	1-12
<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 이후 “X”에 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 2019년 12월 02일 (02.12.2019)	국제조사보고서 발송일 2019년 12월 02일 (02.12.2019)	
ISA/KR의 명칭 및 우편주소  대한민국 특허청 (35208) 대전광역시 서구 청사로 189, 4동 (둔산동, 정부대전청사) 팩스 번호 +82-42-481-8578	심사관 김연경 전화번호 +82-42-481-3325	

국제조사보고서에서 인용된 특허문헌	공개일	대응특허문헌	공개일
JP 2014-107061 A	2014/06/09	JP 6121697 B2	2017/04/26
KR 10-2018-0081472 A	2018/07/16	CN 109792020 A EP 3503256 A1 EP 3503256 A9 WO 2018-128484 A1	2019/05/21 2019/06/26 2019/09/25 2018/07/12
KR 10-2016-0109669 A	2016/09/21	없음	
KR 10-2014-0072696 A	2014/06/13	CN 105144428 A EP 2930767 A1 JP 2015-537358 A KR 10-1423296 B1 US 10069127 B2 US 2015-0333306 A1 WO 2014-088151 A1	2015/12/09 2015/10/14 2015/12/24 2014/07/24 2018/09/04 2015/11/19 2014/06/12
US 5158844 A	1992/10/27	CA 2045076 A1 EP 0503811 A1 JP 04-312763 A JP 3246669 B2 KR 10-1992-0018998 A	1992/09/08 1992/09/16 1992/11/04 2002/01/15 1992/10/22