

(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2016-0032575
(43) 공개일자 2016년03월24일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01M 10/04 (2015.01) H01M 10/058 (2010.01)
H01M 4/04 (2006.01) H01M 4/139 (2010.01)
(21) 출원번호 10-2014-0122887
(22) 출원일자 2014년09월16일
심사청구일자 2015년10월16일

(71) 출원인
주식회사 엘지화학
서울특별시 영등포구 여의대로 128 (여의도동)
(72) 발명자
김지은
대전광역시 유성구 문지로 188(문지동, LG화학기
술연구원)
이주성
대전광역시 유성구 문지로 188(문지동, LG화학기
술연구원)
(뒷면에 계속)
(74) 대리인
특허법인필앤은지

전체 청구항 수 : 총 19 항

(54) 발명의 명칭 전극조립체의 제조방법, 그에 의해 제조된 전극조립체 및 그를 포함하는 전기화학소자

(57) 요약

본 발명은 전극조립체의 제조방법, 그에 의해 제조된 전극조립체 및 그를 포함하는 전기화학소자에 관한 것으로서, 더욱 자세하게는 평면상의 제1 극성 집전체를 마련하는 단계; 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에 제1 극성 활물질층을 형성하여 제1 극성 전극을 준비하는 단계; 상기 제1 극성 전극을 건조하는 제1 건조단계; 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에 세퍼레이터를 형성하여 막전극 집합체를 준비하는 단계; 상기 막전극 집합체의 세퍼레이터의 상면에, 제2 극성 활물질층 및 제2 극성 집전체를 포함하는 제2 극성 전극을 형성하여 전극조립체를 준비하는 단계; 및 상기 전극조립체를 건조하는 제2 건조단계;를 포함하며, 상기 각각의 단계들은, 컨베이어 벨트로 이동하면서 연속적으로 수행되는 전극 조립체의 제조방법, 그에 의해 제조된 전극조립체 및 그를 포함하는 전기화학소자에 관한 것이다.

본 발명에 따르면, 전극조립체를 제조하는 각각의 단계들이 컨베이어 시스템 내에서 일체적, 연속적으로 수행됨으로써 효율적인 전극조립체의 제조가 가능하며, 제1 극성 활물질층이 형성되거나, 세퍼레이터가 형성될 때, 또는 제 2 극성 전극이 형성될 때에 내부 개방면을 포함하는 패턴프레임을 위치시킨 후 원하는 부위에 정확히 형성 시킴으로써, 캐소드와 애노드가 서로 접촉하는 것을 방지하여 양 전극의 단락을 예방할 수 있다.

(72) 발명자

성동욱

대전광역시 유성구 문지로 188(문지동, LG화학기술
연구원)

김종훈

대전광역시 유성구 문지로 188(문지동, LG화학기술
연구원)

명세서

청구범위

청구항 1

평면상의 제1 극성 집전체를 마련하는 단계;

상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에 제1 극성 활물질층을 형성하여 제1 극성 전극을 준비하는 단계;

상기 제1 극성 전극을 건조하는 제1 건조단계;

상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에 세퍼레이터를 형성하여 막전극 집합체를 준비하는 단계;

상기 막전극 집합체의 세퍼레이터의 상면에, 제2 극성 활물질층 및 제2 극성 집전체를 포함하는 제2 극성 전극을 형성하여 전극조립체를 준비하는 단계; 및

상기 전극조립체를 건조하는 제2 건조단계;를 포함하며,

상기 각각의 단계들은, 컨베이어 벨트로 이동하면서 연속적으로 수행되는 전극 조립체의 제조방법.

청구항 2

제1항에 있어서,

상기 제1 극성 집전체 및 상기 제2 극성 집전체는, 서로 독립적으로 각각 스테인리스스틸; 알루미늄; 니켈; 티탄; 소성탄소; 구리; 카본, 니켈, 티탄 또는 은으로 표면처리한 스테인리스스틸; 알루미늄-카드뮴합금; 도전재로 표면처리된 비전도성 고분자; 또는 전도성 고분자;로 제조된 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 3

제2항에 있어서,

상기 도전재는, 폴리아세틸렌, 폴리아닐린, 폴리피롤, 폴리티오펜, 폴리설파니트리드, ITO(Indium Thin Oxide), 구리, 은, 팔라듐 및 니켈로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물인 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 4

제2항에 있어서,

상기 전도성 고분자는, 폴리아세틸렌, 폴리아닐린, 폴리피롤, 폴리티오펜 및 폴리설파니트리드로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물인 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 5

제1항에 있어서,

상기 제1 극성 전극 및 제2 극성 전극은, 각각 캐소드 및 애노드이거나, 애노드 및 캐소드인 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 제1 극성 활물질층을 형성하는 단계는, 제1 극성 활물질을 포함하는 슬러리를, 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에 도포하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 7

제6항에 있어서,

상기 제1 극성 활물질층을 형성하는 단계는, 제1 극성 활물질층이 형성되는 위치와 대응되는 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 제

1 극성 활물질을 포함하는 슬러리를 도포하는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 8

제6항에 있어서,

상기 제1 극성 활물질은, LiCoO_2 , LiNiO_2 , LiMn_2O_4 , LiCoPO_4 , LiFePO_4 , LiNiMnCoO_2 및 $\text{LiNi}_{1-x-y-z}\text{Co}_x\text{Mn}_y\text{M}_2\text{O}_2$ (M1 및 M2 는 서로 독립적으로 Al, Ni, Co, Fe, Mn, V, Cr, Ti, W, Ta, Mg 및 Mo로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나이고, x , y 및 z 는 서로 독립적으로 산화물 조성 원소들의 원자 분율로서 $0 \leq x < 0.5$, $0 \leq y < 0.5$, $0 \leq z < 0.5$, $x+y+z \leq 1$)로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나의 활물질 입자 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물이거나,

천연흑연, 인조흑연, 탄소질재료; 리튬 함유 티타늄 복합 산화물(LTO), Si, Sn, Li, Zn, Mg, Cd, Ce, Ni 또는 Fe인 금속류(Me); 상기 금속류(Me)로 구성된 합금류; 상기 금속류(Me)의 산화물(MeO_x); 및 상기 금속류(Me)와 탄소와의 복합체로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나의 활물질 입자 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물인 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 9

제1항에 있어서,

상기 제1 건조단계는, 120 내지 180℃의 온도에서, 5 내지 60분 동안 수행되는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 10

제1항에 있어서,

상기 세퍼레이터를 형성하는 단계는, 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에 다공성 기재를 부착하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 11

제10항에 있어서,

상기 다공성 기재는, 적어도 일면상에 무기물 입자와 고분자 바인더의 혼합물을 포함하는 다공성 코팅층을 더 구비하는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 12

제10항에 있어서,

상기 다공성 기재는, 폴리올레핀, 폴리에스테르, 폴리아세탈, 폴리아미드, 폴리카보네이트, 폴리이미드, 폴리에테르에테르케톤, 폴리에테르설폰, 폴리페닐렌옥사이드 및 폴리페닐렌설파이드로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물로 이루어진 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 13

제1항에 있어서,

상기 세퍼레이터를 형성하는 단계는, 세퍼레이터가 도포되는 위치와 대응되는 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 세퍼레이터를 도포하는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 14

제1항에 있어서,

상기 제2 극성 전극을 형성하는 단계는, 제2 극성 활물질을 포함하는 슬러리를, 상기 세퍼레이터의 상면에 도포하여 제2 극성 활물질층을 형성하는 단계; 및 상기 제2 극성 활물질층 상에 제2 극성 집전체를 부착하는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 15

제1항에 있어서,

상기 제2 극성 전극을 형성하는 단계는, 제2 극성 활물질층 및 제2 극성 집전체를 포함하는 제2 극성 전극을, 상기 세퍼레이터의 상면에 부착하는 단계를 포함하는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 16

제1항에 있어서,

상기 제2 극성 전극을 형성하는 단계는, 제2 극성 전극이 형성되는 위치와 대응되는 상기 막전극 집합체의 세퍼레이터의 상면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 제2 극성 활물질을 포함하는 슬러리를 도포하는 단계;를 포함하는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 17

제1항에 있어서,

상기 제2 건조단계는, 120 내지 180℃의 온도에서, 5 내지 60분 동안 수행되는 것을 특징으로 하는 전극조립체의 제조방법.

청구항 18

제1항 내지 제17항 중 어느 한 항의 방법에 의해 제조된 전극조립체.

청구항 19

제18항의 전극조립체를 구비하는 전기화학소자.

발명의 설명

기술 분야

[0001]

본 발명은 전극조립체의 제조방법, 그에 의해 제조된 전극조립체 및 그를 포함하는 전기화학소자에 관한 것으로서, 더욱 상세하게는 각각의 단계들이 컨베이어 벨트로 이동하면서 연속적으로 수행되는 전극조립체의 제조방법, 그에 의해 제조된 전극조립체 및 그를 포함하는 전기화학소자에 관한 것이다.

배경 기술

[0002]

최근 에너지 저장 기술에 대한 관심이 갈수록 높아지고 있다. 휴대폰, 캠코더 및 노트북 PC, 나아가서는 전기자동차의 에너지까지 적용분야가 확대되면서 전기화학소자의 연구와 개발에 대한 노력이 점점 구체화되고 있다. 전기화학소자는 이러한 측면에서 가장 주목을 받고 있는 분야이고 그 중에서도 충방전이 가능한 이차전지의 개발은 관심의 초점이 되고 있으며, 최근에는 이러한 전지를 개발함에 있어서 용량 밀도 및 비에너지를 향상시키기 위하여 새로운 전극과 전지의 설계에 대한 연구개발로 진행되고 있다.

[0003]

현재 적용되고 있는 이차전지 중에서 1990년대 초에 개발된 리튬 이차전지는 수용액 전해액을 사용하는 Ni-MH, Ni-Cd, 황산-납 전지 등의 재래식 전지에 비해서 작동 전압이 높고 에너지 밀도가 월등히 크다는 장점으로 각광을 받고 있다.

[0004]

일반적으로, 리튬 이차전지는 캐소드, 애노드, 및 상기 캐소드와 상기 애노드 사이에 개재되는 세퍼레이터로 구성된 단위 셀이 적층 또는 권취된 구조로 금속 캔 또는 라미네이트 시트의 케이스에 내장되고, 그 내부에 전해액이 주입 또는 함침됨으로써 구성된다.

[0005]

이차전지를 구성하는 캐소드/세퍼레이터/애노드 구조의 전극조립체는 그것의 구조에 따라 크게 젤리-롤형(권취형)과 스택형(적층형)으로 구분된다. 활물질이 도포된 긴 시트형의 캐소드와 애노드 사이에 세퍼레이터를 개재하여 권취한 폴딩형 전극조립체(젤리-롤)와, 소정 크기의 다수의 캐소드와 애노드를 세퍼레이터가 개재된 상태에서 순차적으로 적층한 스택형 전극조립체로 분류된다.

[0006]

한편, 종래에는 전극 집전체에 전극 활물질을 도포하여 전극을 제조하는 공정을 수행한 후 별도의 공정으로, 제

조된 양 전극의 사이에 세퍼레이터를 개재시키는 공정을 수행함으로써, 전극조립체를 제조하였다. 전술한 제조 공정은 단속적으로 수행되어, 전극조립체를 제조하는데 시간이 더 많이 소요될 수 있다는 문제점이 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

[0007] 따라서, 본 발명이 해결하고자 하는 과제는, 전극조립체를 제조하는 각각의 단계들이 컨베이어 시스템 내에서 일체적, 연속적으로 수행됨으로써 효율적인 전극조립체의 제조가 가능한 전극조립체의 제조방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

[0008] 상기 과제를 해결하기 위하여, 본 발명의 일 측면에 따르면, 평면상의 제1 극성 집전체를 마련하는 단계; 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에 제1 극성 활물질층을 형성하여 제1 극성 전극을 준비하는 단계; 상기 제1 극성 전극을 건조하는 제1 건조단계; 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에 세퍼레이터를 형성하여 막전극 집합체를 준비하는 단계; 상기 막전극 집합체의 세퍼레이터의 상면에, 제2 극성 활물질층 및 제2 극성 집전체를 포함하는 제2 극성 전극을 형성하여 전극조립체를 준비하는 단계; 및 상기 전극조립체를 건조하는 제2 건조단계;를 포함하며, 상기 각각의 단계들은, 컨베이어 벨트로 이동하면서 연속적으로 수행되는 전극 조립체의 제조방법이 제공된다.

[0009] 이때, 상기 제1 극성 집전체 및 상기 제2 극성 집전체는, 서로 독립적으로 각각 스테인리스스틸; 알루미늄; 니켈; 티탄; 소성탄소; 구리; 카본, 니켈, 티탄 또는 은으로 표면처리한 스테인리스스틸; 알루미늄-카드뮴합금; 도전재로 표면처리된 비전도성 고분자; 또는 전도성 고분자;로 제조될 수 있다.

[0010] 여기서, 상기 도전재는, 폴리아세틸렌, 폴리아닐린, 폴리피롤, 폴리티오펜, 폴리설파니트리드, ITO(Indium Thin Oxide), 구리, 은, 팔라듐 및 니켈로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물일 수 있다.

[0011] 그리고, 상기 전도성 고분자는, 폴리아세틸렌, 폴리아닐린, 폴리피롤, 폴리티오펜 및 폴리설파니트리드로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물일 수 있다.

[0012] 그리고, 상기 제1 극성 전극 및 제2 극성 전극은, 각각 캐소드 및 애노드이거나, 애노드 및 캐소드일 수 있다.

[0013] 그리고, 상기 제1 극성 활물질층을 형성하는 단계는, 제1 극성 활물질을 포함하는 슬러리를, 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에 도포하는 단계를 포함할 수 있다.

[0014] 이때, 상기 제1 극성 활물질층을 형성하는 단계는, 제1 극성 활물질층이 형성되는 위치와 대응되는 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 제1 극성 활물질을 포함하는 슬러리를 도포하는 단계;를 포함할 수 있다.

[0015] 그리고, 상기 제1 극성 활물질은, LiCoO_2 , LiNiO_2 , LiMn_2O_4 , LiCoPO_4 , LiFePO_4 , LiNiMnCoO_2 및 $\text{LiNi}_{1-x-y-z}\text{Co}_x\text{M}_1\text{M}_2\text{O}_2$ (M_1 및 M_2 는 서로 독립적으로 Al, Ni, Co, Fe, Mn, V, Cr, Ti, W, Ta, Mg 및 Mo로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나이고, x, y 및 z는 서로 독립적으로 산화물 조성 원소들의 원자 분율로서 $0 \leq x < 0.5$, $0 \leq y < 0.5$, $0 \leq z < 0.5$, $x+y+z \leq 1$)로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나의 활물질 입자 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물이거나, 천연흑연, 인조흑연, 탄소질재료; 리튬 함유 티타늄 복합 산화물(LTO), Si, Sn, Li, Zn, Mg, Cd, Ce, Ni 또는 Fe인 금속류(Me); 상기 금속류(Me)로 구성된 합금류; 상기 금속류(Me)의 산화물(MeO_x); 및 상기 금속류(Me)와 탄소와의 복합체로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나의 활물질 입자 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물일 수 있다.

[0016] 그리고, 상기 제1 건조단계는, 120 내지 180℃의 온도에서, 5 내지 60분 동안 수행될 수 있다.

[0017] 그리고, 상기 세퍼레이터를 형성하는 단계는, 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에 다공성 기재를 부착하는 단계를 포함할 수 있다.

[0018] 여기서, 상기 다공성 기재는, 적어도 일면상에 무기물 입자와 고분자 바인더의 혼합물을 포함하는 다공성 코팅층을 더 구비할 수 있다.

- [0019] 그리고, 상기 다공성 기재는, 폴리올레핀, 폴리에스테르, 폴리아세탈, 폴리아미드, 폴리카보네이트, 폴리이미드, 폴리에테르에테르케톤, 폴리에테르설폰, 폴리페닐렌옥사이드 및 폴리페닐렌설파이드로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물로 이루어질 수 있다.
- [0020] 그리고, 상기 세퍼레이터를 형성하는 단계는, 세퍼레이터가 도포되는 위치와 대응되는 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 세퍼레이터를 도포하는 단계;를 포함할 수 있다.
- [0021] 그리고, 상기 제2 극성 전극을 형성하는 단계는, 제2 극성 활물질을 포함하는 슬러리를, 상기 세퍼레이터의 상면에 도포하여 제2 극성 활물질층을 형성하는 단계; 및 상기 제2 극성 활물질층 상에 제2 극성 집전체를 부착하는 단계;를 포함할 수 있다.
- [0022] 그리고, 상기 제2 극성 전극을 형성하는 단계는, 제2 극성 활물질층 및 제2 극성 집전체를 포함하는 제2 극성 전극을, 상기 세퍼레이터의 상면에 부착하는 단계를 포함할 수 있다.
- [0023] 그리고, 상기 제2 극성 전극을 형성하는 단계는, 제2 극성 전극이 형성되는 위치와 대응되는 상기 막전극 집합체의 세퍼레이터의 상면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 제2 극성 활물질을 포함하는 슬러리를 도포하는 단계;를 포함할 수 있다.
- [0024] 그리고, 상기 제2 건조단계는, 120 내지 180℃의 온도에서, 5 내지 60분 동안 수행될 수 있다.
- [0025] 한편, 본 발명의 다른 측면에 따르면, 전술한 본 발명의 제조방법에 의해 제조된 전극조립체가 제공된다.
- [0026] 그리고, 본 발명의 또 다른 측면에 따르면, 전술한 본 발명의 전극조립체를 구비하는 전기화학소자가 제공된다.

발명의 효과

- [0027] 본 발명의 일 실시예에 따르면, 전극조립체를 제조하는 각각의 단계들이 컨베이어 시스템 내에서 일체적, 연속적으로 수행됨으로써 효율적인 전극조립체의 제조가 가능하다.
- [0028] 그리고, 본 발명의 다른 실시예에 따르면, 제1 극성 활물질층이 형성되거나, 세퍼레이터가 형성될 때, 또는 제2 극성 전극이 형성될 때에 내부 개방면을 포함하는 패턴프레임을 위치시킨 후 원하는 부위에 정확히 형성시킴으로써, 캐소드와 애노드가 서로 접촉하는 것을 방지하여 양 전극의 단락을 예방할 수 있다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0029] 이하, 본 발명을 상세히 설명하기로 한다. 본 명세서 및 청구범위에 사용된 용어나 단어는 통상적이거나 사전적인 의미로 한정해서 해석되어서는 아니 되며, 발명자는 그 자신의 발명을 가장 최선의 방법으로 설명하기 위해 용어의 개념을 적절하게 정의할 수 있다는 원칙에 입각하여 본 발명의 기술적 사상에 부합하는 의미와 개념으로 해석되어야만 한다.
- [0030] 본 발명에 따른 전극조립체의 제조방법은 다음과 같다.
- [0031] 우선, 평면상의 제1 극성 집전체를 마련한다 (S1).
- [0032] 이때 사용될 수 있는 상기 제1 극성 집전체는 활물질의 전기화학 반응에 의해 생성된 전자를 모으거나 전기화학 반응에 필요한 전자를 공급하는 역할을 하는 것으로서, 활물질이 용이하게 접촉할 수 있고, 전지의 전압 범위에서 반응성이 없는 것이면 어느 것이라도 사용할 수 있다. 구체적으로, 스테인리스스틸; 알루미늄; 니켈; 티탄; 소성탄소; 구리; 카본, 니켈, 티탄 또는 은으로 표면처리한 스테인리스스틸; 알루미늄-카드뮴합금; 도전재로 표면처리된 비전도성 고분자; 또는 전도성 고분자;로 제조된 것일 수 있다.
- [0033] 그리고, 상기 도전재로는, 폴리아세틸렌, 폴리아닐린, 폴리피롤, 폴리티오펜, 폴리설파이드, ITO(Indium Thin Oxide), 구리, 은, 팔라듐 및 니켈 등이 사용될 수 있으며, 상기 전도성 고분자로는, 폴리아세틸렌, 폴리아닐린, 폴리피롤, 폴리티오펜 및 폴리설파이드 등이 사용 가능하다. 다만, 집전체에 사용되는 비전도성 고분자는 특별히 종류를 한정하지는 않는다.
- [0034] 이어서, 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에 제1 극성 활물질층을 형성하여 제1 극성 전극을 준비한다 (S2).
- [0035] 이때, 상기 제1 극성 전극은 캐소드 또는 애노드일 수 있으며, 후술하는 제2 극성 전극은 상기 제1 극성 전극과 반대 극성을 갖도록 애노드 또는 캐소드일 수 있다.

- [0036] 여기서, 제1 극성 활물질을 포함하는 슬러리를, 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에 도포할 수 있고, 이때, 상기 제1 극성 활물질을 포함하는 슬러리는, 슬롯-다이 코팅, 롤 코팅 및 스프레이 코팅 등 일반적인 코팅방법에 의해 제1 극성 집전체의 표면에 도포될 수 있다.
- [0037] 그리고, 제1 극성 활물질층이 형성되는 위치와 대응되는 상기 제1 극성 집전체의 적어도 일면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 제1 극성 활물질을 포함하는 슬러리를 도포하는 단계;를 거쳐 상기 제1 극성 활물질층을 형성할 수 있다.
- [0038] 이때 상기 패턴프레임의 모양 및 내부 개방면의 면적은, 사용자가 제조하고자 하는 전기화학소자의 종류에 따라 상이해질 수 있다. 이때, 상기 제1 극성 전극이 캐소드일 때, 애노드의 경우에 비해 개방면의 면적이 다소 작은 패턴프레임이 사용될 수 있다.
- [0039] 상기 패턴프레임을 이용하면, 사용자가 원하는 위치에 원하는 면적으로 정확하게 상기 제1 극성 활물질층을 도포할 수 있고, 이는 추후 전극끼리의 접촉을 방지하는 역할을 하여, 양 전극의 단락을 예방한다.
- [0040] 한편, 상기 제1 극성 전극이 캐소드인 경우, 상기 제1 극성 활물질은, LiCoO_2 , LiNiO_2 , LiMn_2O_4 , LiCoPO_4 , LiFePO_4 , LiNiMnCoO_2 및 $\text{LiNi}_{1-x-y-z}\text{Co}_x\text{M}_1\text{M}_2\text{O}_2$ (M_1 및 M_2 는 서로 독립적으로 Al, Ni, Co, Fe, Mn, V, Cr, Ti, W, Ta, Mg 및 Mo로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나이고, x, y 및 z는 서로 독립적으로 산화물 조성 원소들의 원자 분율로서 $0 \leq x < 0.5$, $0 \leq y < 0.5$, $0 \leq z < 0.5$, $x+y+z \leq 1$)로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나의 활물질 입자 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물로 이루어질 수 있다.
- [0041] 이와 반대로, 상기 제1 극성 전극이 애노드인 경우, 상기 제1 극성 활물질은, 천연흑연, 인조흑연, 탄소질재료; 리튬 함유 티타늄 복합 산화물(LTO), Si, Sn, Li, Zn, Mg, Cd, Ce, Ni 또는 Fe인 금속류(Me); 상기 금속류(Me)로 구성된 합금류; 상기 금속류(Me)의 산화물(MeO_x); 및 상기 금속류(Me)와 탄소와의 복합체로 이루어진 군으로부터 선택된 어느 하나의 활물질 입자 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물로 이루어질 수 있다.
- [0042] 이어서, 상기 제1 극성 전극을 건조한다 (S3).
- [0043] 이때, 상기 제1 극성 전극은, 120 내지 180℃의 온도에서, 5 내지 60분 동안 건조될 수 있다. 그리고, 이러한 건조단계는 진공상태에서 수행될 수 있으며, 동시에 상기 제1 극성 전극을 압착하면서 수행될 수 있다. 상기 온도에서 상기 시간 동안 건조시킴으로써, 상기 제1 극성 활물질층이 함유할 수 있는 수분량을 적절히 감소시켜, 수분으로 인한 셀 성능 저하를 방지할 수 있다.
- [0044] 이어서, 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에 세퍼레이터를 형성하여 막전극 접합체를 준비한다 (S4).
- [0045] 이때, 상기 세퍼레이터를 형성하는 단계는, 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에 다공성 기재를 부착하는 단계를 포함할 수 있다.
- [0046] 여기서, 상기 다공성 기재는 당해 분야에서 통상적으로 사용되는 다공성 기재라면 모두 사용이 가능하고, 예를 들면 폴리올레핀계 다공성 막(membrane) 또는 부직포를 사용할 수 있으나, 이에 특별히 한정되는 것은 아니다.
- [0047] 상기 폴리올레핀계 다공성 막의 예로는, 고밀도 폴리에틸렌, 선형 저밀도 폴리에틸렌, 저밀도 폴리에틸렌, 초고 분자량 폴리에틸렌과 같은 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리부틸렌, 폴리펜텐 등의 폴리올레핀계 고분자를 각각 단독으로 또는 이들을 혼합한 고분자로 형성한 막(membrane)을 들 수 있다.
- [0048] 상기 부직포로는 폴리올레핀계 부직포 외에 예를 들어, 폴리에틸렌 테레프탈레이트(polyethyleneterephthalate), 폴리부틸렌 테레프탈레이트(polybutyleneterephthalate), 폴리에틸렌 나프탈렌(polyethylenenaphthalene) 등과 같은 폴리에스테르(polyester), 폴리아세탈(polyacetal), 폴리아미드(polyamide), 폴리카보네이트(polycarbonate), 폴리이미드(polyimide), 폴리에테르에테르케톤(polyetheretherketone), 폴리에테르설폰(polyethersulfone), 폴리페닐렌옥사이드(polyphenyleneoxide), 폴리페닐렌설파이드(polyphenylenesulfide) 등을 각각 단독으로 또는 이들을 혼합한 고분자로 형성한 부직포를 들 수 있다. 부직포의 구조는 장섬유로 구성된 스폰본드 부직포 또는 펠트 블로운 부직포일 수 있다.
- [0049] 상기 다공성 기재의 두께는 특별히 제한되지 않으나, 5 내지 50 μm 일 수 있고, 다공성 기재에 존재하는 기공 크기 및 기공도 역시 특별히 제한되지 않으나 각각 0.01 내지 50 μm 및 10 내지 95%일 수 있다.
- [0050] 한편, 본 발명에서는 상기 다공성 기재의 적어도 일면상에, 무기물 입자와 고분자 바인더의 혼합물을 포함하는 다공성 코팅층을 더 구비하는 것을 사용할 수 있다. 이러한 다공성 코팅층을 구비하는 다공성 기재에 있어서,

다공성 기재에 형성된 다공성 코팅층 내의 무기물 입자들은 다공성 코팅층의 물리적 형태를 유지할 수 있는 일종의 스페이서(spacer) 역할을 함으로써, 전기화학소자의 과열 시 다공성 기재가 열 수축되는 것을 억제하며, 다공성 기재가 손상되는 경우에도 캐소드와 애노드가 직접 접촉하는 것을 방지한다.

[0051] 이때, 세퍼레이터가 도포되는 위치와 대응되는 상기 제1 극성 전극의 적어도 일면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 세퍼레이터를 도포하는 단계;를 거쳐 상기 막전극 접합체를 형성할 수 있다.

[0052] 여기서, 상기 패턴프레임의 모양 및 상기 내부 개방면의 면적은, 사용자가 제조하고자 하는 전기화학소자의 종류에 따라 상이해질 수 있다. 예를 들어, 사각형 모양의 패턴프레임이 사용될 수 있지만, 이에만 한정되는 것은 아니다. 그리고, 패턴프레임의 내부 개방면의 면적은, 캐소드와 애노드간의 접촉을 방지할 수 있는 정도라면 제한되는 것은 아니다. 즉, 캐소드와 애노드의 면적보다 큰 개방된 면적을 갖는 패턴프레임이 사용될 수 있다. 여기서, 상기 내부 개방면의 면적에 대응하는 부분을 제외한 세퍼레이터 부분은 재단될 수 있다.

[0053] 이어서, 상기 막전극 접합체의 세퍼레이터의 상면에, 제2 극성 활물질층 및 제2 극성 집전체를 포함하는 제2 극성 전극을 형성하여 전극조립체를 준비한다 (S5).

[0054] 여기서, 상기 제2 극성 전극은 전술한 바와 같이 제1 극성 전극과 반대의 극성을 지니게 되며, 상기 제2 극성 집전체 및 상기 제2 극성 활물질층으로 사용될 수 있는 것은 전술한 바와 같다.

[0055] 그리고, 상기 제2 극성 전극을 형성하는 단계는, 제2 극성 활물질을 포함하는 슬러리를, 상기 세퍼레이터의 상면에 도포하여 제2 극성 활물질층을 형성하는 단계; 및 상기 제2 극성 활물질층 상에 제2 극성 집전체를 부착하는 단계;를 포함할 수 있고, 제2 극성 활물질층 및 제2 극성 집전체를 포함하는 제2 극성 전극을, 상기 세퍼레이터의 상면에 부착함으로써 상기 전극조립체를 준비할 수 있다.

[0056] 그리고, 제2 극성 전극이 형성되는 위치와 대응되는 상기 막전극 접합체의 세퍼레이터의 상면에, 내부 개방면이 구비된 패턴프레임을 위치시키는 단계; 및 상기 내부 개방면으로 상기 제2 극성 활물질을 포함하는 슬러리를 도포하는 단계;를 거쳐 상기 전극조립체를 준비할 수 있다.

[0057] 여기서 상기 패턴프레임의 모양 및 내부 개방면의 면적은, 전술한 제1 극성 전극에서의 경우와 동일하며, 이때, 상기 내부 개방면의 면적에 대응하는 부분을 제외한 제2 극성 전극 부분은 상기 내부 개방면의 면적에 대응하는 크기로 재단될 수 있다.

[0058] 이어서, 상기 전극조립체를 건조한다 (S6).

[0059] 이때, 상기 전극조립체는, 120 내지 180℃의 온도에서, 5 내지 60분 동안 건조될 수 있다. 그리고, 이러한 건조 단계는 진공상태에서 수행될 수 있으며, 동시에 상기 전극조립체를 압착하면서 수행될 수 있다. 상기 온도에서 상기 시간 동안 건조시킴으로써, 상기 제1 극성 활물질층 및 상기 제2 극성 활물질층이 함유할 수 있는 수분량을 적절히 감소시켜, 수분으로 인한 셀 성능 저하를 방지할 수 있고, 제1 극성 활물질층 및 제2 극성 활물질층의 경화도를 제어함으로써 크랙을 방지할 수 있다.

[0060] 전술한 상기 S1 ~ S6 각각의 단계들은, 컨베이어 벨트로 이동하면서 연속적으로 수행되며, 이로써 효율적인 전극조립체의 제조가 가능하다.

[0061] 이러한 본 발명의 제조방법으로 제조된 전극조립체는, 권취(winding)됨으로써 젤리-롤형 또는 적층(lamination, stack)과정을 거쳐 스택형으로 제조된 후, 전해액과 함께 전지케이스에 내장되어 전기화학소자로 제조된다.

[0062] 그리고, 전기화학소자의 외형은 특별한 제한이 없으나, 캔을 사용한 원통형, 각형, 파우치(pouch)형 또는 코인(coin)형 등이 될 수 있다.

[0063] 이때, 전기화학소자는 전기 화학 반응을 하는 모든 소자를 포함하며, 구체적인 예를 들면, 모든 종류의 1차, 이차 전지, 연료 전지, 태양 전지 또는 슈퍼 커패시터 소자와 같은 커패시터(capacitor) 등이 있다. 특히, 상기 2차 전지 중 리튬 금속 이차 전지, 리튬 이온 이차 전지, 리튬 폴리머 이차 전지 또는 리튬 이온 폴리머 이차 전지 등을 포함하는 리튬 이차전지가 바람직하다.

[0064] 그리고, 본 발명에서 사용될 수 있는 전해액에 포함되는 전해질염은 리튬염이다. 상기 리튬염은 리튬 이차전지용 전해액에 통상적으로 사용되는 것들이 제한 없이 사용될 수 있다. 예를 들어 상기 리튬염의 음이온으로는 F^- , Cl^- , Br^- , I^- , NO_3^- , $N(CN)_2^-$, BF_4^- , ClO_4^- , PF_6^- , $(CF_3)_2PF_4^-$, $(CF_3)_3PF_3^-$, $(CF_3)_4PF_2^-$, $(CF_3)_5PF^-$, $(CF_3)_6P^-$, $CF_3SO_3^-$,

$\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_3^-$, $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{N}^-$, $(\text{FSO}_2)_2\text{N}^-$, $\text{CF}_3\text{CF}_2(\text{CF}_3)_2\text{CO}^-$, $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_2\text{CH}^-$, $(\text{SF}_5)_3\text{C}^-$, $(\text{CF}_3\text{SO}_2)_3\text{C}^-$, $\text{CF}_3(\text{CF}_2)_7\text{SO}_3^-$, CF_3CO_2^- , CH_3CO_2^- , SCN^- 및 $(\text{CF}_3\text{CF}_2\text{SO}_2)_2\text{N}^-$ 로 이루어진 군에서 선택된 어느 하나일 수 있다.

- [0065] 전술한 전해액에 포함되는 유기용매로는 리튬 이차전지용 전해액에 통상적으로 사용되는 것들을 제한 없이 사용할 수 있으며, 예를 들면 에테르, 에스테르, 아미드, 선형 카보네이트, 환형 카보네이트 등을 각각 단독으로 또는 2종 이상 혼합하여 사용할 수 있다.
- [0066] 그 중에서 대표적으로는 환형 카보네이트, 선형 카보네이트, 또는 이들의 혼합물인 카보네이트 화합물을 포함할 수 있다.
- [0067] 상기 환형 카보네이트 화합물의 구체적인 예로는 에틸렌 카보네이트(ethylene carbonate, EC), 프로필렌 카보네이트(propylene carbonate, PC), 1,2-부틸렌 카보네이트, 2,3-부틸렌 카보네이트, 1,2-펜틸렌 카보네이트, 2,3-펜틸렌 카보네이트, 비닐렌 카보네이트, 비닐에틸렌 카보네이트 및 이들의 할로겐화물로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물이 있다. 이들의 할로겐화물로는 예를 들면, 플루오로에틸렌 카보네이트(fluoroethylene carbonate, FEC) 등이 있으며, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0068] 또한 상기 선형 카보네이트 화합물의 구체적인 예로는 디메틸 카보네이트(DMC), 디에틸 카보네이트(DEC), 디프로필 카보네이트, 에틸메틸 카보네이트(EMC), 메틸프로필 카보네이트 및 에틸프로필 카보네이트로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물 등이 대표적으로 사용될 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0069] 특히, 상기 카보네이트계 유기용매 중 환형 카보네이트인 에틸렌 카보네이트 및 프로필렌 카보네이트는 고점도의 유기용매로서 유전율이 높아 전해질 내의 리튬염을 보다 더 잘 해리시킬 수 있으며, 이러한 환형 카보네이트에 디메틸 카보네이트 및 디에틸 카보네이트와 같은 저점도, 저유전율 선형 카보네이트를 적당한 비율로 혼합하여 사용하면 보다 높은 전기 전도율을 갖는 전해액을 만들 수 있다.
- [0070] 또한, 상기 유기용매 중 에테르로는 디메틸 에테르, 디에틸 에테르, 디프로필 에테르, 메틸에틸 에테르, 메틸프로필 에테르 및 에틸프로필 에테르로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물을 사용할 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0071] 그리고 상기 유기용매 중 에스테르로는 메틸 아세테이트, 에틸 아세테이트, 프로필 아세테이트, 메틸 프로피오네이트, 에틸 프로피오네이트, γ -부티로락톤, γ -발레로락톤, γ -카프로락톤, σ -발레로락톤 및 ϵ -카프로락톤으로 이루어진 군에서 선택되는 어느 하나 또는 이들 중 2종 이상의 혼합물을 사용할 수 있으나, 이에 한정되는 것은 아니다.
- [0072] 상기 전해액의 주입은 최종 제품의 제조 공정 및 요구 물성에 따라, 전기화학소자의 제조 공정 중 적절한 단계에서 행해질 수 있다. 즉, 전기화학소자 조립 전 또는 전기화학소자 조립 최종 단계 등에서 적용될 수 있다.
- [0073] 이상의 설명은 본 발명의 기술 사상을 예시적으로 설명한 것에 불과한 것으로서, 본 발명이 속하는 기술 분야에서 통상의 지식을 가진 자라면 본 발명의 본질적인 특성에서 벗어나지 않는 범위에서 다양한 수정 및 변형이 가능할 것이다. 따라서, 본 발명에 개시된 실시예들은 본 발명의 기술 사상을 한정하기 위한 것이 아니라 설명하기 위한 것이고, 이러한 실시예에 의하여 본 발명의 기술 사상의 범위가 한정되는 것은 아니다. 본 발명의 보호 범위는 아래의 청구범위에 의하여 해석되어야 하며, 그와 동등한 범위 내에 있는 모든 기술 사상은 본 발명의 권리범위에 포함되는 것으로 해석되어야 할 것이다.