



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 공개특허공보(A)

(11) 공개번호 10-2017-0051561
(43) 공개일자 2017년05월12일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01M 10/04 (2015.01) H01M 4/04 (2006.01)
(52) CPC특허분류
H01M 10/0418 (2013.01)
H01M 4/0404 (2013.01)
(21) 출원번호 10-2015-0150644
(22) 출원일자 2015년10월29일
심사청구일자 2016년05월03일

(71) 출원인
서울대학교산학협력단
서울특별시 관악구 관악로 1 (신림동)
(72) 발명자
강기석
경기도 과천시 별양로 12 329동 1603호 (원문동,
래미안슈르아파트)
이명환
강원도 속초시 교동 943-3 밤골길 28
김중순
대전광역시 유성구 구즉로 25 316동 906호 (송강
동, 송강그린아파트)
(74) 대리인
특허법인 대아

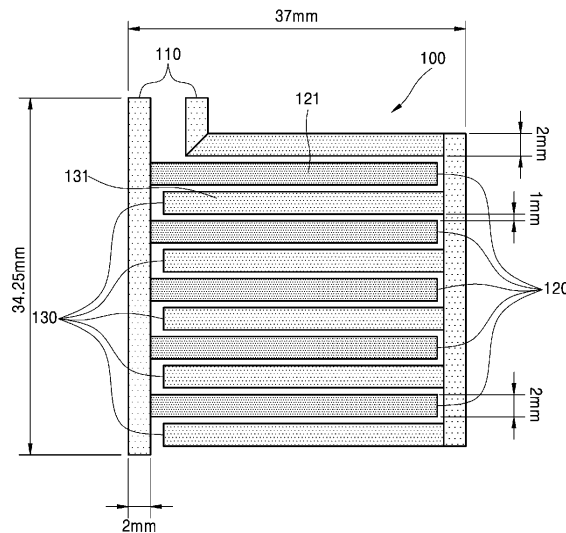
전체 청구항 수 : 총 9 항

(54) 발명의 명칭 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지 및 이의 제조방법

(57) 요약

본 발명은 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지 및 이의 제조방법에 관한 것으로, 더욱 구체적으로 알루미늄 집전체에 음극재가 도포되고 막대 형상의 복수의 평행한 돌기가 형성된 음극; 및 알루미늄 집전체에 양극재가 도포되고 막대 형상의 복수의 평행한 돌기가 형성된 양극;을 포함하고, 상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 평행한 돌기가 교대로 구비된 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지 및 이의 제조방법에 관한 것이다.

대표도 - 도1



(52) CPC특허분류

H01M 4/661 (2013.01)

Y02E 60/12 (2013.01)

명세서

청구범위

청구항 1

알루미늄 집전체에 음극재가 도포되고 막대 형상의 복수의 평행한 돌기가 형성된 음극; 및
알루미늄 집전체에 양극재가 도포되고 막대 형상의 복수의 평행한 돌기가 형성된 양극;을 포함하고,
상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 평행한 돌기가 교대로 구비된 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지.

청구항 2

제1항에 있어서,
상기 음극재는 $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ 인 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지.

청구항 3

제1항에 있어서,
상기 음극재는 탄소 코팅된 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지.

청구항 4

제1항에 있어서,
상기 양극재는 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$, LiMn_2O_4 , LiCoO_2 , LiFePO_4 , LiCoPO_4 , LiMnPO_4 , LiV_3O_8 , V_2O_5 , VO_2 , $\text{Ti}_2\text{P}_2\text{O}_7$, LiNiO_2 , $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_2$, $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.15}\text{Al}_{0.05}\text{O}_2$, $\text{LiNi}_{0.33}\text{Co}_{0.33}\text{Mn}_{0.33}\text{O}_2$ 및 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_2$ 로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종인 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지.

청구항 5

제1항에 있어서,
상기 이차전지는 파우치 타입인 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지.

청구항 6

음극 전구체를 혼합하고 고에너지 볼밀링하여 고상합성법으로 음극재를 제조한 후 알루미늄 포일에 도포시켜 음극을 제조하는 단계;
양극 전구체를 혼합하고 고에너지 볼밀링하여 고상합성법으로 양극재를 제조한 후 알루미늄 포일에 도포시켜 양극을 제조하는 단계; 및
상기 음극 및 양극을 편칭시켜 막대 형상의 복수의 돌기를 형성시킨 후 상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 돌기가 교대로 구비되도록 파우치에 부착시키는 단계;를 포함하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법.

청구항 7

제6항에 있어서,

상기 음극 전구체는 Li_2CO_3 및 TiO_2 를 포함하는 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법.

청구항 8

제6항에 있어서,

상기 양극 전구체는 Li_2NiO_2 , MnO_2 , Li_2CO_3 , NiO 및 MnCO_3 로 이루어진 군으로부터 선택되는 2종 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법.

청구항 9

제6항에 있어서,

상기 음극재는 탄소 코팅을 위해 유기 첨가제와 혼합한 후 고에너지 볼밀링하고 열처리하는 단계를 더 포함하는 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법.

발명의 설명

기술 분야

[0001] 본 발명은 양극 및 음극이 동일 집전체이고 양극 및 음극이 동일평면에 존재하여 플렉서블한 이차전지 및 이를 제조하는 방법에 관한 것이다.

배경 기술

[0002] 종래 플렉서블(flexible) 이차전지의 경우 대부분 3D 구조의 다공성 탄소 소재, 탄소 나노 튜브, 탄소 텍스타일(textile) 등의 탄소 소재 기반에 전극 활물질이 코팅된 형태로 사용하거나 플렉서블(flexible)한 기판에 집전체 및 전극물질이 증착된 형태의 방식이 주로 이용되었다. 하지만 종래 기술의 경우 복잡한 공정을 거치게 되거나 제조 단가가 높다는 문제를 가지게 된다.

[0003] 또한, 플렉서블(flexible) 이차전지가 요구되는 소자들은 두께도 중요한 요소 중 하나이다. 따라서 두께도 얇은 박형 구조의 이차전지가 많이 요구되는 실정이다. 하지만 현재의 이차전지 시스템은 양극, 분리막, 음극 순의 적층 구조를 기본으로 하고 있어 각 극간의 응력이 다르게 주어져 전지 구성요소간에 결함이 생기는 문제를 갖게 된다.

[0004] 다양한 소자에 맞춰 이차전지간 연결에 따른 전압 및 용량의 디자인이 자유로워야 한다. 더불어 대부분의 플렉서블(flexible) 이차전지가 요구되는 소자의 경우 휴대 가능한 소자가 많이 존재하기에 빠른 충전 속도 및 고용량의 전지 성능이 필요한 실정이지만 종래 기술에서는 부족한 부분이 많이 존재한다.

[0005] 따라서, 이러한 문제점을 극복하기 위해 디자인이 자유로우며 얇은 두께를 갖고 응력에 버틸 수 있는 구조의 플렉서블(flexible) 이차전지 시스템이 필요한 실정이다.

[0006] 이와 관련된 선행문헌으로는 대한민국 공개특허 제10-2015-0084242호(2015.07.22. 공개)에 개시되어 있는 가요성 이차 전지 및 그 제조방법이 있다.

발명의 내용

해결하려는 과제

- [0007] 따라서, 본 발명은 디자인이 자유로우며 두께가 얇고 높은 응력에 변형되지 않는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지 및 이를 제조하는 방법을 제공하는데 있다.
- [0008] 본 발명이 해결하고자 하는 과제는 이상에서 언급한 과제(들)로 제한되지 않으며, 언급되지 않은 또 다른 과제(들)는 이하의 기재로부터 당업자에게 명확하게 이해될 수 있을 것이다.

과제의 해결 수단

- [0009] 상기 과제를 해결하기 위해, 본 발명은 알루미늄 집전체에 음극재가 도포되고 막대 형상의 복수의 평행한 돌기가 형성된 음극; 및 알루미늄 집전체에 양극재가 도포되고 막대 형상의 복수의 평행한 돌기가 형성된 양극;을 포함하고, 상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 평행한 돌기가 교대로 구비된 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지를 제공한다.
- [0010] 또한, 본 발명은 음극 전구체를 혼합하고 고에너지 불밀링하여 고상합성법으로 음극재를 제조한 후 알루미늄 포일에 도포시켜 음극을 제조하는 단계; 양극 전구체를 혼합하고 고에너지 불밀링하여 고상합성법으로 양극재를 제조한 후 알루미늄 포일에 도포시켜 양극을 제조하는 단계; 및 상기 음극 및 양극을 편칭시켜 막대 형상의 복수의 돌기를 제조한 후 상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 돌기가 교대로 구비되도록 파우치 위에 부착시키는 단계;를 포함하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법을 제공한다.

발명의 효과

- [0011] 본 발명에 따르면, 종래 음극에 많이 사용되는 구리, 니켈 등의 집전체를 사용하지 않고 음극 및 양극이 동일한 알루미늄 집전체를 사용하여 제조 단가를 크게 줄일 수 있으며, 음극 및 양극 제조시 공정을 단순화시킬 수 있고, 음극 및 양극이 동일 집전체를 사용하여 인쇄형으로 전지를 제조할 수 있다.
- [0012] 또한, 본 발명에 따른 이차전지는 양극 및 음극이 동일 평면에 존재하여 적층식(양극-분리막-음극) 구조에 비해 응력을 적게 받고 전지의 두께를 크게 줄일 수 있으며, 플렉서블(flexible)한 이차전지를 제조할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0013] 도 1은 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지를 나타낸 모식도이다.
- 도 2는 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법을 나타낸 순서도이다.
- 도 3은 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 내부를 나타낸 사진이다.
- 도 4는 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지를 나타낸 사진이다.
- 도 5는 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 파우치셀 타입의 동일평면형 이차전지의 정전류 방전(0.1C)에 의한 전압 및 용량 변화를 나타낸 그래프이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0014] 이하 첨부된 도면을 참조하면서 본 발명에 따른 바람직한 실시예를 상세히 설명하기로 한다.
- [0015] 본 발명의 이점 및 특징, 그리고 그것을 달성하는 방법은 첨부된 도면과 함께 상세하게 후술되어 있는 실시 예들을 참조하면 명확해질 것이다.
- [0016] 그러나 본 발명은 이하에 개시되는 실시예들에 의해 한정되는 것이 아니라 서로 다른 다양한 형태로 구현될 것이며, 단지 본 실시예들은 본 발명의 개시가 완전하도록 하며, 본 발명이 속하는 기술분야에서 통상의 지식을 가진 자에게 발명의 범주를 완전하게 알려주기 위해 제공되는 것이며, 본 발명은 청구항의 범주에 의해 정의될 뿐이다.
- [0017] 또한, 본 발명을 설명함에 있어 관련된 공지 기술 등이 본 발명의 요지를 흐리게 할 수 있다고 판단되는 경우

그에 관한 자세한 설명은 생략하기로 한다.

- [0018] 본 발명은 알루미늄 집전체에 음극재가 도포되고 막대 형상의 복수의 평행한 돌기가 형성된 음극; 및
- [0019] 알루미늄 집전체에 양극재가 도포되고 막대 형상의 복수의 평행한 돌기가 형성된 양극;을 포함하고,
- [0020] 상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 평행한 돌기가 교대로 구비된 것을 특징으로 하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지를 제공한다.
- [0021] 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지는 종래 음극에 많이 사용되는 구리, 니켈 등의 집전체를 사용하지 않고 음극 및 양극이 동일한 알루미늄 집전체를 사용하여 제조 단가를 크게 줄일 수 있으며, 음극 및 양극 제조시 공정을 단순화시킬 수 있고, 음극 및 양극이 동일 집전체를 사용하여 인쇄형으로 전지를 제조할 수 있다. 또한, 본 발명에 따른 이차전지는 양극 및 음극이 동일 평면에 존재하여 적층식(양극-분리막-음극) 구조에 비해 응력을 적게 받고 전지의 두께를 크게 줄일 수 있으며, 플렉서블(flexible)한 이차전지를 제조할 수 있다.
- [0022] 도 1은 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지를 나타낸 모식도이다. 도 1을 참고하면, 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지(100)는 알루미늄 집전체(110) 위에 음극재(121)가 도포된 음극(120) 및 알루미늄 집전체(110) 위에 양극재(131)가 도포된 양극(130)을 포함하고, 상기 음극(120) 및 양극(130)에는 막대 형상의 복수의 돌기가 형성되어 있으며, 상기 음극(120) 및 양극(130)에 형성된 막대 형상의 복수의 돌기가 교대로 구비된다. 즉, 상기 복수의 평행한 음극(120) 사이에 양극(130)이 위치하게 된다. 도 1에 나타난 바와 같이, 본 발명의 일실시예에 따른 동일평면형 이차전지에서 음극(120) 및 양극(130)의 폭은 2 mm이고, 음극(120) 및 양극(130)이 1 mm의 간격으로 구비된다.
- [0023] 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지에서 상기 음극재는 알루미늄 집전체에 형성되기 때문에 $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ 만이 사용가능하고, 상기 음극재는 탄소 코팅될 수 있다.
- [0024] 또한, 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지에서 상기 양극재는 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$, LiMn_2O_4 , LiCoO_2 , LiFePO_4 , LiCoPO_4 , LiMnPO_4 , LiV_3O_8 , V_2O_5 , VO_2 , $\text{Ti}_2\text{P}_2\text{O}_7$, LiNiO_2 , $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{0.5}\text{O}_2$, $\text{LiNi}_{0.8}\text{Co}_{0.15}\text{Al}_{0.05}\text{O}_2$, $\text{LiNi}_{0.33}\text{Co}_{0.33}\text{Mn}_{0.33}\text{O}_2$ 및 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Co}_{0.2}\text{Mn}_{0.3}\text{O}_2$ 로 이루어진 군으로부터 선택되는 1종을 사용할 수 있다.
- [0025] 상기 이차전지는 파우치 타입이다.
- [0026] 또한, 본 발명은 음극 전구체를 혼합하고 고에너지 불밀링하여 고상합성법으로 음극재를 제조한 후 알루미늄 포일에 도포시켜 음극을 제조하는 단계;
- [0027] 양극 전구체를 혼합하고 고에너지 불밀링하여 고상합성법으로 양극재를 제조한 후 알루미늄 포일에 도포시켜 양극을 제조하는 단계; 및
- [0028] 상기 음극 및 양극을 편칭시켜 막대 형상의 복수의 돌기를 제조한 후 상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 돌기가 교대로 구비되도록 파우치에 부착시키는 단계;를 포함하는 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법을 제공한다.
- [0029] 도 2는 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법을 나타낸 순서도이다. 이하, 도 2를 바탕으로 본 발명을 상세히 설명한다.
- [0030] 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법은 음극 전구체를 혼합하고 고에너지 불밀링하여 고상합성법으로 음극재를 제조한 후 알루미늄 포일에 도포시켜 음극을 제조하는 단계(S10) 및 양극 전구체를 혼합하고 고에너지 불밀링하여 고상합성법으로 양극재를 제조한 후 알루미늄 포일에 도포시켜 양극을 제조하는 단계(S20)로 음극 및 양극을 제조할 수 있다.

- [0031] 이때, 상기 음극 전구체는 Li_2CO_3 및 TiO_2 이고, 상기 양극 전구체는 Li_2NiO_2 , MnO_2 , Li_2CO_3 , NiO 및 MnCO_3 로 이루어진 군으로부터 선택되는 2종 이상이다.
- [0032] 다음으로, 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법은 상기 음극 및 양극을 펀칭시켜 막대 형상의 복수의 돌기를 제조한 후 상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 돌기가 교대로 구비되도록 파우치에 부착시키는 단계(S30)를 포함한다.
- [0033] 상기 음극 및 양극에 형성된 복수의 돌기가 교대로 구비되어 파우치에 부착시켜 양극 및 음극이 동일평면에 존재할 수 있다. 이때, 교대로 구비되는 것은 막대 형상의 복수의 돌기로 형성된 음극 사이에 양극이 구비되어 동일 평면에 양극, 음극, 양극, 음극의 순서로 위치하게 된다.
- [0034] 또한, 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조방법은 상기 음극재에 탄소를 코팅시키기 위해 상기 음극재를 유기 첨가제와 혼합한 후 고에너지 볼밀링하고 열처리하는 단계를 더 포함할 수 있다.
- [0035] 실시예 1: 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조 1
- [0036] 음극 제조
- [0037] Li_2CO_3 와 TiO_2 를 화학양론적으로 혼합한 후 12 시간 동안 볼밀링하였다. 볼밀링된 혼합물에 $200 \text{ kg}/\text{cm}^3$ 의 압력을 가하여 펠렛(pellet) 형상으로 제조한 후 850°C 에서 6시간 동안 열처리하여 $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}$ (LTO)를 제조하였다.
- [0038] 양극 제조
- [0039] Li_2CO_3 , NiO 및 MnCO_3 를 혼합한 후 고상법(solid-state reaction)으로 고에너지 볼밀링 후 900°C 에서 24시간 동안 열처리하여 $\text{LiNi}_{0.5}\text{Mn}_{1.5}\text{O}_4$ (LNMO)를 제조하였다.
- [0040] 전지 제조
- [0041] 상기 제조된 LTO, 카본블랙(super P) 및 폴리비닐리덴플루오라이드(PVdF)를 90:5:5의 무게비로 혼합한 후 N-메틸-2-피롤리돈(NMP)에 넣고 Al 포일에 캐스팅 공정으로 도포시킨 후 120°C 오븐에서 2시간 동안 건조시켰다. 상기 제조된 LNMO, 카본블랙(super P) 및 폴리비닐리덴플루오라이드(PVdF)를 80:10:10의 무게비로 혼합한 후 Al 포일에 캐스팅 공정으로 도포시킨 후 120°C 오븐에서 2시간 동안 건조시켰다. 양극이 도포된 Al 포일과 음극이 도포된 Al 포일을 펀칭(punching)하여 동일 구조를 갖는 양극 및 음극을 제조한 후 양극 및 음극이 교차되게 위치시킨 후 Al에 전극탭을 초음파 용접으로 형성시키고 Al 파우치에 테이핑(taping)한 후 분리막과 전해질(1.15M LiPF_6 in EC/DMC/DEC=3/5/2(v/v)+3.0 중량% FEC+2.0 중량% PS)을 주입하고 진공 포장하여 이차전지를 제조하였다.
- [0042] 도 3은 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 내부를 나타낸 사진이고, 도 4는 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지를 나타낸 사진이다.
- [0043] 실시예 2: 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 제조 2
- [0044] 상기 제조된 LTO 분말을 밀링한 후 유기 첨가제인 피로멜리트산 수화물과 9.5:0.5의 무게비로 혼합하고 2시간 동안 고에너지 볼밀링한 후 600°C 에서 2시간 동안 열처리하여 탄소 코팅된 LTO 분말을 제조한 것을 제외하고는 상기 실시예 1과 동일한 방법으로 이차전지를 제조하였다.
- [0045] 실험예 2: 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 타입에 따른 용량 분석
- [0046] 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지의 타입에 따른 용량을 알아보기 위해 파우치셀(pouch cell) 타입으로 이차전지를 제조하여 용량을 분석하고, 그 결과를 도 5에 나타내었다.

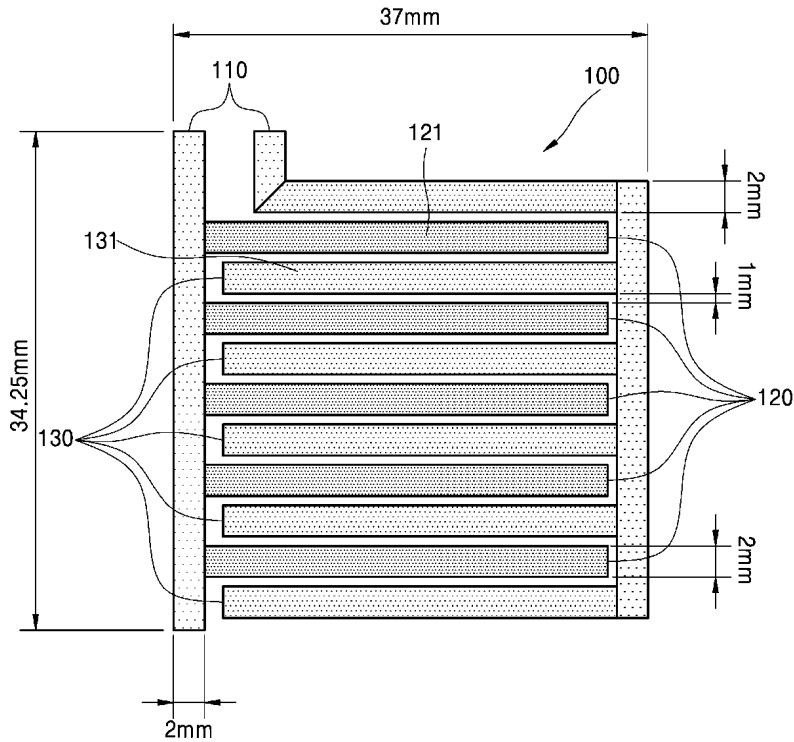
- [0047] 도 5는 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 파우치셀 타입의 동일평면형 이차전지의 정전류 방전 (0.1C)에 의한 전압 및 용량 변화를 나타낸 그래프이다.
- [0048] 도 5에 나타난 바와 같이, 파우치셀 타입의 동일평면형 이차전지에서는 0.068 mAh/cm²의 용량이 나타났다.
- [0049] 따라서, 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지는 양극 및 음극을 동일한 알루미늄 집전체에 형성시켜 전극 조립 및 공정이 단순화시킬 수 있으면서 종래 이차전지와 유사한 용량을 나타낼 수 있고, 음극 및 양극이 동일 평면에 존재하여 플렉서블한 이차전지를 제조할 수 있다.
- [0050] 지금까지 본 발명에 따른 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지 및 이의 제조방법에 관한 구체적인 실시예에 관하여 설명하였으나, 본 발명의 범위에서 벗어나지 않는 한도 내에서는 여러 가지 실시 변형이 가능함은 자명하다.
- [0051] 그러므로 본 발명의 범위에는 설명된 실시예에 국한되어 전해져서는 안 되며, 후술하는 특허청구범위뿐만 아니라 이 특허청구범위와 균등한 것들에 의해 정해져야 한다.
- [0052] 즉, 전술된 실시예는 모든 면에서 예시적인 것이며, 한정적인 것이 아닌 것으로 이해되어야 하며, 본 발명의 범위는 상세한 설명보다는 후술될 특허청구범위에 의하여 나타내어지며, 그 특허청구범위의 의미 및 범위 그리고 그 등과 개념으로부터 도출되는 모든 변경 또는 변형된 형태가 본 발명의 범위에 포함되는 것으로 해석되어야 한다.

부호의 설명

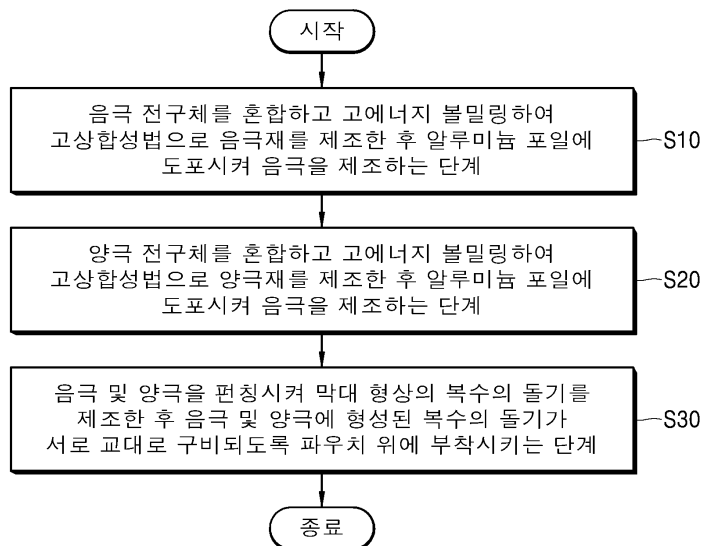
- [0053] 100: 양극 및 음극이 동일 집전체인 동일평면형 이차전지
- 110: 알루미늄 집전체
- 120: 음극
- 121: 음극재
- 130: 양극
- 131: 양극재

도면

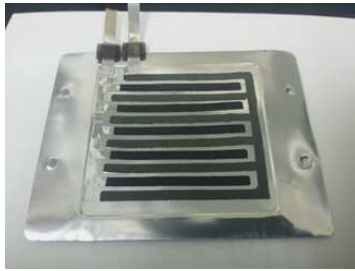
도면1



도면2



도면3



도면4



도면5

