



(19)대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(51) 。 Int. Cl. H01M 10/38 (2006.01)	(45) 공고일자 (11) 등록번호 (24) 등록일자	2007년07월25일 10-0742109 2007년07월18일
---	-------------------------------------	--

(21) 출원번호 (22) 출원일자 심사청구일자	10-2001-0015229 2001년03월23일 2006년03월23일	(65) 공개번호 (43) 공개일자	10-2001-0090538 2001년10월18일
----------------------------------	---	------------------------	--------------------------------

(30) 우선권주장 2000-81577 2000년03월23일 일본(JP)

(73) 특허권자 소니 가부시끼 가이샤
 일본국 도쿄도 미나토쿠 코난 1-7-1

(72) 발명자 기미지마다카야키
 일본국후쿠시마고리야마시히와다쵸다카쿠라야자-시모스기시타1반1고
 소니후쿠시마코포레이션내

스기야마츠요시
일본국도쿄도시나가와쿠키타시나가와6쵸메7반35고소니가부시끼가이샤내

(74) 대리인 이병호
 장훈

(56) 선행기술조사문헌
JP06187969 A JP10241737 A
US05965290 A1

심사관 : 김경민

전체 청구항 수 : 총 16 항

(54) 비수성-전해질 2차 전지 및 그 제조방법

(57) 요약

비수성-전해질 2차 전지에서, 그것은 전지가 제조되는 동안에 또는 전지가 제품으로서 사용될 때에, 외부로부터의 압력 또는 절첩(folding)에 의해 발생하는 응력이 전지에 인가되더라도 양전극과 음전극 사이의 단락을 방지한다. 양전극, 상기 양전극내의 겔형 고분자 고체 전해질층, 분리기들, 음전극 내의 겔형 고분자 고체 전해질층, 음전극이 적층된 적층구조를 포함하는 리튬 이온 전지에서, 2개의 피복재는 양전극과 음전극의 단부들에서 제공되며, 2개의 쌍의 피복재들은 2개의 피복재들이 제공된 위치들에 대향하는 양전극 또는 음전극 중의 어느 하나의 전극에서 하나의 전극 상의 위치 내에 제공된다. 이로써, 차단 변화 또는 외부로부터 적층구조에 인가되는 압력에 의해 발생하는 양전극과 음전극 사이의 전기적 단락이 방지될 수 있다.

대표도

도 1

특허청구의 범위

청구항 1.

겔형 또는 가소성 비수성 전해질층(plasticizing nonaqueous electrolyte layer), 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조를 포함하는 비수성-전해질 2차 전지에 있어서,

절연성을 가진 피복재로서, 상기 양전극 또는 상기 음전극 중 적어도 어느 한 전극의 단부에 있어서, 하나의 전극에서 적어도 전해질층으로부터 외부로 향하여 노출된 위치에 대향하는 나머지 전극 상의 위치를 덮는, 상기 피복재를 포함하는, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 2.

겔형 또는 가소성 비수성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조를 포함하는 비수성-전해질 2차 전지에 있어서,

피복재로서, 상기 양전극 또는 상기 음전극 중 어느 한 전극의 단부에 있어서, 하나의 전극에서 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치에 대향하는 나머지 전극 상의 위치 상에 배치되고, 상기 적층구조에 압력이 인가되어도 하나의 전극을 다른 전극으로부터 전기적으로 절연시키는 절연성과 물리적 강도를 갖는, 상기 피복재를 포함하는, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 3.

겔형 또는 가소성 비수성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조를 포함하는 비수성-전해질 2차 전지에 있어서,

절연성을 갖는 피복재로서, 상기 양전극 또는 상기 음전극 중 어느 한 전극의 단부에 있어서, 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치를 덮는, 상기 피복재를 포함하는, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 4.

겔형 또는 가소성 비수성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조를 포함하는 비수성-전해질 2차 전지에 있어서,

절연성을 가진 피복재로서, 상기 양전극 또는 상기 음전극 중 어느 한 전극의 단부에 있어서, 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치를 덮고, 상기 적층구조에 압력이 인가되어도 한 전극을 다른 전극으로부터 전기적으로 절연시키는 절연성과 물리적 강도를 갖는, 상기 피복재를 포함하는, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 5.

제1항에 있어서,

상기 양전극에 대하여, 천이 금속 칼코겐 화합물(transition metal chalcogen compound)이 활성물질로서 이용되며,

상기 음전극에 대하여, 리튬을 도핑(doping) 및 언도핑(un-doping)할 수 있는 물질이 활성물질로서 이용되는, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 6.

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서,

양전극 활성물질에 대하여, 천이 금속 황화물 또는 천이 금속 산화물 또는 LiMO_2 (천이금속 M은 Co, Ni, Mn의 그룹으로부터 선택된 물질)의 리튬 복합 산화물(lithium complex oxide)이 이용되고,

음전극 활성물질에 대하여, 리튬을 도핑 또는 언도핑할 수 있는 비흑연화 탄소 물질과 흑연계 물질이 이용되는, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 7.

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 상기 전해질은 리튬염이 포함된 고체 전해질 또는 겔형 전해질인, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 8.

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 있어서, 권선된 전극(rolled electrode)은 상기 양전극 및 상기 음전극을 평평한 나선형으로 권선하고, 패키지 케이스내에 수용하고, 그 후, 상기 패키지 케이스의 단부들을 밀봉함으로써 형성되는, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 9.

제7항에 있어서, 상기 전해질은 비수성 용매와 전해질염을 포함하여 폴리(비닐리덴플루오로라이드(vinylidene fluoride)) 또는 폴리(비닐리덴플루오로라이드-co-헥사플루오로프로필렌(vinylidene fluoride-co-hexafluoropropylene))를 이용하는 고분자 화합물로 제조되는 겔형 전해질인, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 10.

겔형 또는 가소성 비수성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조를 형성하는 단계와, 상기 적층구조에 외부로부터 압력을 인가하는 단계를 포함하는 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법에 있어서,

상기 적층구조에 외부로부터 압력을 인가하는 단계 이전에, 양전극 또는 음전극 중 적어도 어느 한 전극의 단부에 있어서, 하나의 전극에서 적어도 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치에 대향하는 나머지 전극 상의 위치를, 상기 적층구조에 압력이 인가되어도 상기 두 전극들 사이에 절연상태를 유지할 수 있는 절연성과 물리적 강도를 가진 피복재로 덮는 단계를 포함하는, 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법.

청구항 11.

겔형 또는 가소성 비수성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층되는 적층구조를 형성하는 단계 및 상기 적층구조에 외부로부터 압력을 인가하는 단계를 포함하는 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법에 있어서,

상기 적층구조에 외부로부터 압력을 인가하는 단계 이전에, 상기 양전극 또는 상기 음전극 중 어느 한 전극의 단부에 있어서, 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치를, 상기 적층구조에 압력이 인가되어도 한 전극을 다른 전극으로부터 전기적으로 절연시키는 절연성과 물리적 강도를 가진 피복재로 덮는 단계를 포함하는, 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법.

청구항 12.

제1항에 있어서,

상기 양전극에 대하여, 천이 금속 칼코젠 화합물이 활성물질로서 이용되며,

상기 음전극에 대하여, 리튬을 도핑 및 언도핑할 수 있는 물질이 활성물질로서 이용되는, 비수성-전해질 2차 전지.

청구항 13.

제10항에 있어서,

양전극 활성물질로서, 금속 황화물 또는 금속 산화물 또는 $LiMO_2$ (천이금속 M은 Co, Ni, Mn의 그룹으로부터 선택된 물질)의 리튬 혼합 산화물이 이용되고,

음전극 활성물질로서, 리튬을 도핑 또는 언도핑할 수 있는 비흑연화 탄소 물질 및 흑연계 물질이 이용되는, 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법.

청구항 14.

제1항 내지 제4항 중 어느 한 항에 따른 비수성-전해질 2차 전지를 제조하는 방법에 있어서, 상기 전해질은 고체 전해질 전지 또는 겔형 전해질 겔이고, 리튬을 포함하는 고분자 고체 전해질로 제조되는, 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법.

청구항 15.

제10항 또는 제11항에 있어서, 권선된 전극은 상기 양전극 및 음전극을 평평한 나선형으로 권선하고, 패키지 케이스내에 수용하고, 그 후, 상기 패키지 케이스의 단부들을 밀봉함으로써 형성되는, 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법.

청구항 16.

제14항에 있어서, 상기 전해질은 비수성 용매와 전해질염을 포함하여 폴리(비닐리덴플루오로라이드) 또는 폴리(비닐리덴플루오로라이드-co-헥사플루오로프로필렌)를 이용하는 고분자 화합물로 제조되는 겔형 전해질인, 비수성-전해질 2차 전지의 제조 방법.

명세서

발명의 상세한 설명

발명의 목적

발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술

발명이 속하는 기술분야

본 발명은 비수성 전해질 2차 전지(nonaqueous-electrolyte secondary battery) 및 그 제조방법에 관한 것으로서, 특히, 겔형 또는 가소성의 고분자 전해질층을 갖는 리튬 이온 중합체 2차 전지와 같은 리튬 이온 전지에 관한 것이다.

종래의 기술

근래, 소형 경량의 휴대 전화 또는 휴대형 컴퓨터들과 같은 휴대형 소형 전자기기 등의 보급에 수반하여, 그 전자기기를 구동하기 위해 구동용 전력을 공급하는 전원으로서는 니켈-카드뮴 전지들, 니켈-금속 수소화물 전지(nickel-metal hydride), 리튬 이온 전지들과 같은 소형이고 안정적인 출력 특징들을 갖고, 수회 재충전을 행하여 장기적으로 사용할 수 있는 2차 전지의 연구 및 개발이 활발히 진행되고 있다.

2차 전지들 중에서, 리튬 이온 2차 전지는, 소형이고 경량이며 또한 얇은 모양임에도 안정적인 전력을 출력할 수 있는 특징들을 갖고, 그 얇은 모양에 적합한 구조적 특성을 취하여 절곡 가능한(foldable) 2차 전지로서의 이용하기 위하여 연구 및 개발되고 있다. 위에 기술된 바와 같이, 얇은 모양 또는 절곡 가능한 형태를 실현하기 위하여 가소성 재료(plasticizer)를 포함하여 유연성을 실현하는 겔형 전해질을 사용하는 기술 및 고분자 재료에 리튬염(lithium salt)을 용해시킨 고분자 고체 전해질을 이용하는 기술이 제안되어 있다.

겔형 전해질 또는 고분자 고체 전해질을 이용함으로써, 액상의 전해질을 이용하는 경우는 달리 액체의 누수의 염려는 없고, 소위 드라이 셀로서의 우수한 특징을 얻을 수 있다. 그러나, 양전극 및 음전극과 그들 전극들에 대응하는 전해질을 단순히 적층하는 것만으로는 양전극과 음전극 사이의 충분한 전기적 접촉을 얻을 수 없는 경향이 있다. 이는 겔형 또는 고분자 고체 전해질이 액상의 전해질과 같은 유동성을 갖지 않는 이유 때문이고, 그래서 전해질과 전극들이 밀착되게 접촉하지 않는다.

전극들과 전해질의 충분한 전기적 접촉 상태가 달성되지 않는 경우에, 전지 내의 접촉 저항을 증가시키며, 이로써, 전기적 손실을 증가시키는 데, 이는 원하지 않는 전지 특징들이다. 전해질과 전극들 사이에서 충분한 접촉 면적이 달성되지 않으면, 그들 사이에서 원하는 이온 이동성은 얻을 수 없게 되고, 이는 전지 용량을 본래의 용량보다 적게 감소시킨다. 따라서, 전해질로서 겔형 전해질 또는 고분자 고체 전해질을 이용하는 리튬 이온 전지에서, 우수한 전기적 접촉 상태를 실현하기 위해 전해질층들과 전극들의 활성물질층들을 밀착하게 접촉하는 것이 필요로 되고, 이는 내부저항을 최소로 감소시키고, 최상의 전지용량을 얻게 한다.

전해질층들과 전극들의 활성물질층들 사이에 우수한 전기적 접촉 상태를 얻기 위하여, 전지 내의 내용물들을 포함하는 적층구조를 형성하기 위하여 전해질층들 및 전극들의 활성물질층들을 적층할 때, 전해질층들과 활성물질층들이 접촉하지 않거나 부분적으로 접촉하지 않는 부분들을 실제로 외부로부터 압력을 인가함으로써 원하는 접촉 상태로 변경하는 기술이 사용되는 것이 제안되어 있다.

또한, 양전극 활성물질층에 고분자 고체 전해질을 첨가한 양전극 혼합된 재료를 이용하는 발명이, 예로서 특개평 2-40867호 공보에 의해 제안되어 있다. 이것은, 고분자 고체 전해질의 일부를 양전극 활성물질층에 혼합함으로써 고분자 고체 전해질과 양전극 활성물질층의 전기적 접촉상태를 개선하는 기술이다. 그러나, 이러한 화학적인 관점으로부터 접촉상태를 개선하는 기술을 이용하는 경우에도, 전해질층과 전극의 구조적(물리적)인 접촉이 불충분하면, 이들 사이의 전기적 접촉상태가 불충분하게 되는 경우가 있다. 이러한 이유로 적층구조에 대하여 외부로부터 억압력을 인가하고 그 구조적인 접촉상태를 보다 확실하게 하는 것이 바람직하다.

최근에, 보급이 현저한 휴대용 전화기나 휴대용 컴퓨터 또는 휴대용 게임기 등에 적합한 전지로서, 얇은 형태의 리튬 이온 전지가 주목되고 있다. 이러한 용도에 특히 적합한 얇은 형태를 실현하기 위해서, 필름형의 전해질 또는 포일형(foil-like) 전극 등을 적층하여 전지내의 적층구조를 형성하고, 또는 더욱 그것을 권선하고(rolling) 압축하여, 그것을 필름 형태 또는 박판 형태의 패키징 부재에 수용한 구조로 하는 등이 제안되어 있다.

발명이 이루고자 하는 기술적 과제

그러나, 상술한 종래의 방법에서는, 전해질층들과 전극들을 적층하고 그 외부로부터 압력을 인가할 때에, 양전극 또는 음전극의 단부에서 전해질층들로부터 피복되지 않고 그 외부로 노출되는 부분이 그 때의 압력에 의해 가압되거나 절곡되어 다른 쪽의 전극에 접촉하고, 두 전극들 모두 간에서 단락을 발생시키는 경우가 있다는 문제가 있다.

특히, 얇은 형태의 리튬 이온 전지에서는, 제조후에 사용자가 전지를 전자기기 본체에 착탈하기 위해 강한 힘으로 압입하거나, 낙하시키거나 하여 하중을 걸거나 하는 경우에, 전지 내부의 적층구조에 압력이 가해지거나, 절곡가능한 얇은 형태의 전지의 경우에는 그 절곡에 기인한 압력이 적층구조에 가해지는 일이 있다. 이것에 기인하여, 전극에 있어서 단부 중 특히 전해질층으로부터 피복되지 않고 그 외부로 노출되는 부분이 전극에 접촉하면, 양쪽의 전극이 단락하는 우려가 있다.

또한, 유동성이 높고 역학적으로 약한 겔형의 전해질층을 적층구조내에 갖는 리튬 이온 전지에서는, 그 외부로부터 적층구조에 압력이 인가되면, 겔형의 전해질층이 역학적으로 변형하기 쉽기 때문에, 이것에 기인하여 한 쪽의 전극의 단부가 다른 쪽의 전극에 접촉하기 쉬운 경향이 있다.

양전극 및 음전극 또는 리드 전극은, 일반적으로 양호한 처리량(throughput)이 비용절감을 달성하기 때문에, 금형등을 이용하여 절단가공되었지만, 그 절단 단부에는 종종 절단 버르(burr) 또는 컬링(curling) 등과 같은 돌기가 발생하는 경우가 있다. 이러한 돌기가 한 쪽의 전극에 발생되면, 그 돌기가 전지의 제조 중 또는 사용 중에 다른 쪽의 전극에 접촉하여 단락이 생기는 경우가 있다는 문제가 있다.

다른 경우로서, 시간에 따른 변화(seclusion change) 또는 온도 변화 등에 기인하여 전해질 또는 전극에 내부응력 등이 발생하여 전극의 단부의 위치가 변화하고, 양쪽의 전극이 접촉하여 단락이 발생하는 경우도 있다는 문제가 있다.

이러한 전극 사이의 단락이 발생하면, 그 전지의 유효한 기전력 또는 전지용량이 현저히 저하하거나 심지어는 전력을 전혀 출력할 수 없는 경우도 있다.

본 발명은 이러한 문제점을 감안하여 이루어진 것으로, 그 목적은 제조공정 중 또는 제품으로서 완성되어 이용되는 때에, 양쪽의 전극이 단락하는 것을 방지하는 것을 가능하게 한 리튬 이온 전지 및 그 제조방법을 제공하는 것이다.

발명의 구성

본 발명에 따른 비수성-전해질(nonaqueous-electrolyte) 2차 전지는, 겔형 또는 가소성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조와, 양전극 또는 음전극 중 적어도 어느 한 전극의 단부에 있어서, 하나의 전극에서 적어도 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치에 대향하는, 나머지 전극을 덮기 위해 절연성을 가진 피복재를 포함한다.

본 발명에 따른 비수성-전해질 2차 전지는, 겔형 또는 가소성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조와, 상기 적층구조에 압력이 인가되더라도 양전극 또는 음전극 중 적어도 어느 한 전극의 단부에 있어서, 하나의 전극에서 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치에 대향하는, 나머지 전극을 덮기 위해 절연성과 물리적 강도를 가진 피복재를 포함한다.

상기 비수성-전해질 2차 전지가 고체 전해질 전지 또는 겔형 전해질인 경우에는, 고분자 고체 전해질을 위해 사용되는 고분자 물질로서, 실리콘 겔, 아크릴 겔, 아크릴로나이트라이트 겔, 폴리포스파젠 변성 중합체, 폴리에틸렌 산화물, 폴리프로필렌 산화물, 상기 물질들의 복합 중합체, 가교 중합체, 변성 중합체 등이 사용될 수 있으며, 불소계 중합체로서는, 예로서 폴리비닐리덴플루오라이드, 폴리(비닐리덴플루오라이드-co-헥사플루오로프로필렌), 폴리(비닐리덴플루오라이드-co-테트라플루오로에틸렌) 및 이러한 물질들의 혼합물이 사용될 수 있다. 여러가지 물질들이 또한 상기 물질들과 동일하게 사용될 수 있다.

양전극 활성층 또는 음전극 활성층 상에 적층된 고체 전해질 또는 겔형 전해질로서, 다음의 공정이 양호한 물질을 만들 수 있다. 첫째, 고분자 화합물, 전해질염, 용매를 포함하는 용액이 양전극 활성물질 또는 음전극 활성물질내로 침투되고, 용매가 제거되며, 고체화된다. 양전극 활성층 또는 음전극 활성층 상에 적층된 고체 전해질 또는 겔형 전해질은 양전극 활성층 또는 음전극 활성층 내에 침투되고, 고체화된다. 가교 물질의 경우에는, 상기 공정 후에, 고체화시키기 위해서 교차결합을 수행하기 위해서 빛 또는 열이 가해진다.

겔형 전해질은 리튬염을 포함하는 가소제와, 2 중량% 이상 및 3 중량% 이하의 범위의 매트릭스 고분자로 제조된다. 이 때에, 에스테르류, 에에테르류, 탄산 에에테르류가 독립적으로 또는 가소제의 한 성분으로서 사용될 수 있다.

겔형 전해질을 조정할 때에, 상기와 같은 탄화물 에스테르류를 겔화하는 매트릭스 고분자로서, 겔형 전해질을 형성하기 위해 사용되는 여러가지 고분자가 이용되지만, 산화-환원 안정성의 관점에서 폴리(비닐리덴플루오로라이드)와 폴리(비닐리덴플루오로라이드-co-헥사플루오로프로필렌)과 같은 불소계 고분자가 양호하게 이용된다.

고분자 전해질은 리튬염과, 리튬염이 용해된 고분자 화합물로 제조된다. 고분자 전해질로서, 폴리에틸렌 산화물 및 가교 폴리에틸렌 산화물과 같은 에에테르 고분자, 폴리(메테르크릴레이트에스테르), 아크릴레이트계, 폴리(비닐리덴플루오로

라이드) 및 폴리(비닐리덴플루오로라이드-co-헥사플루오로프로필렌)과 같은 불소계 고분자가 독립적으로 또는 혼합물로서 사용될 수 있으나, 상기 물질들 중에서, 산화-환원 안정성의 관점에서 폴리(비닐리덴플루오로라이드) 또는 폴리(비닐리덴플루오로라이드-co-헥사플루오로프로필렌)과 같은 불소계 고분자가 사용될 수 있다.

그러한 겔형 전해질 또는 고분자 고체 전해질내에 함유된 리튬염으로서, 전지를 위한 통상적인 전해질을 위해 사용되는 리튬염이 사용될 수 있다. 더욱 상세히는, 다음의 물질들이 고려되는데, 즉, 염화 리튬(lithium chloride), 브롬화 리튬(lithium bromide), 요오드 리튬(lithium iodide), 염소산 리튬(chloric lithium), 과염소산 리튬(lithium perchlorate), 브로마트 리튬(lithium bromate), 요오드 리튬(lithium iodate), 질산 리튬(lithium nitrate), 테트라플루오로붕소산리튬(tetrafluorolithiumborate), 헥사플루오로인산리튬(hexafluorophosphoriclithium), 초산 리튬(lithium acetate), 비스(트리플루오로메탄술포닐)이미드리튬(bis(trifluoromethanesulfonyl) LiAsF₆, LiCF₃SO₃, LiC(SO₂CF₃)₃, LiAlCl₄, LiSiF₆이다. 겔형 전해질의 경우에, 리튬염의 양호한 용해 농도는 가소제 내에 0.1 내지 3.0 몰의 범위이며, 더욱 양호하게는, 0.5 내지 2.0 몰의 범위이다. 또한, 리튬염의 종류 또는 그 용해농도는 상기 물질 및 용해농도에 제한되지 않는다.

음전극 물질로서, 리튬을 도핑 또는 언도핑할 수 있는 물질이 양호하다. 그러한 물질로서, 예로서 비흑연화 탄소계 재료 또는 흑연계 재료가 양호하게 사용된다. 더욱 상세하게는, 열분해탄소, 코크스류(cokes)(피치 코크(pitch coke), 니들 코크(needle coke), 석유 코크(petroleum)), 흑연류(graphites), 글래스상 탄소류(glassy carbons), 유기 고분자 화합물소성체(organic macromolecular compound calcinates materials)(페놀 수지(phenolic resin), 푸란 수지(furan resin) 등이 적절한 온도에서 소성화하여 탄화된 것), 탄소 섬유, 활성탄과 같은 탄소계 재료가 사용될 수 있다. 다른 물질로서, 폴리아세틸렌(polyacetylene), 폴리피롤(polypyrrole) 등의 고분자, 또는 SnO₂ 와 같은 산화물이 사용될 수 있다. 그러한 물질을 사용하여 음전극을 형성하는 경우에, 알려진 결합제가 사용될 수 있다.

한편, 양전극은 달성하고자 하는 전지에 따라서 금속 산화물, 금속 유화물 또는 특정 고분자를 양전극 활성물질로서 사용하여 형성될 수 있다.

예로서 리튬 이온 전지가 형성되는 경우, 양전극 활성물질로서, 예로서 리튬을 포함하지 않는 TiS₂, MoS₂, NbSe₂, V₂O₅ 와 같이 리튬을 포함하지 않는 금속 유화물 또는 금속 산화물 또는 LiMO₂를 주로 포함하는 리튬 복합 산화물 등과 같은 전이 금속 칼코겐 화합물이 사용될 수 있다. 리튬 복합 산화물을 형성하는 전이 금속 M으로서, Co, Ni, Mn이 양호하다. LiCoO₂, LiNiO₂, LiNiyCo_{1-y}O₂ 등이 그러한 리튬 복합 산화물의 특정한 예로서 고려될 수 있다. 상기 식에서, M은 한 종류 이상의 전이 금속을 나타내고, x는 전지의 방전 상태에 따라 만족시키는 값으로서 통상적으로 0.05 내지 1.10의 범위에 있고, y는 식을 만족시키는 값으로서 0<y<1이다. 이러한 리튬 복합 산화물은 높은 전압을 발생시킬 수 있고, 에너지 밀도적으로 우수한 특성을 가진 양전극 활성물질을 형성한다. 양전극 활성물질을 사용하여 양전극을 형성할 때에, 알려진 도전재 또는 결합제가 도핑될 수 있다.

여기에서, 전지의 전체적인 구조로서, 여러가지 형태가 다음과 같이 고려될 수 있는데, 즉, 고체 전해질을 사이에 가진 상태로 양전극과 음전극이 교대로 적층된 적층형, 고체 전해질층을 사이에 가진 상태로 양전극과 음전극이 적층된 권선형, 고체 전해질층을 사이에 가진 상태로 양전극과 음전극이 적층되고 다음에는 교대로 절첩된 절첩형이다. 어떠한 형태로 임의로 선택될 수 있다.

본 발명에 따른 비수성-전해질 2차 전지는 겔형 또는 가소성 비수성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조와, 양전극 또는 음전극 중 적어도 어느 한 전극의 단부에 있어서 다른 전극에서 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치를 덮는 피복재를 갖는다.

본 발명에 따른 비수성-전해질 2차 전지는 겔형 또는 가소성 비수성 전해질층, 양전극 및 음전극이 적층된 적층구조를 포함하는 비수성-전해질 2차 전지이며, 피복재를 포함하는데, 피복재는, 양전극 또는 음전극 중 적어도 어느 한 전극의 단부에 있어서, 하나의 전극에서 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 다른 전극 상의 위치를 덮고, 또한 상기 피복재는 상기 적층구조에 압력이 인가되어도 한 전극을 다른 전극으로부터 전기적으로 절연시키기 위해 절연성과 물리적 강도를 갖는다.

본 발명에 따른 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법은, 적층구조에 외부로부터 압력을 인가하는 단계 이전에, 양전극 또는 음전극 중의 적어도 어느 한 전극의 단부에 있어서, 한 전극에서 적어도 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치에 대향하는 다른 전극상의 위치를, 상기 적층구조에 압력이 인가되어도 한 전극을 다른 전극으로부터 절연시키는 절연성과 물리적 강도를 가진 피복재로 덮는 단계를 포함한다.

본 발명에 따른 비수성-전해질 2차 전지의 제조방법은, 상기 적층구조에 외부로부터 압력을 인가하는 단계 이전에, 상기 양전극 또는 음전극 중의 어느 한 전극의 단부에 있어서, 한 전극에서 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치에 대항하는 다른 전극의 위치를, 상기 적층구조에 압력이 인가되어도 한 전극을 다른 전극으로부터 전기적으로 절연시키기 위해 절연성과 물리적 강도를 가진 피복재로 덮는 단계를 포함한다.

본 발명에 따른 비수성-전해질 2차 전지와 그 제조방법은, 절연성을 가진 피복재는 상기 양전극 또는 음전극 중의 적어도 어느 한 전극의 단부에 있어서, 한 전극에서 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치에 대항하는 다른 전극의 위치를 덮는다. 절연성을 가진 피복재는 상기 양전극 또는 음전극 중의 어느 한 전극의 단부에 있어서, 한 전극에서 적어도 상기 전해질층으로부터 외부로 향해 노출된 위치에 대항하는 다른 전극의 위치를 덮는다. 따라서, 한 전극이 어떤 원인으로 다른 전극에 접근하도록 변형되더라도, 피복재는 두개의 전극들 사이의 단락을 방지한다.

피복재는 전해질층과, 양전극과 음전극이 적층된 상기 적층구조에 압력이 인가되어도 한 전극을 다른 전극으로부터 전기적으로 절연시키기 위해 절연성과 물리적 강도를 갖는다. 따라서, 한 전극의 단부가 상기 적층구조에 인가되는 강한 압력으로 인해서 다른 전극에 접근하도록 심각하게 변형되더라도, 피복재는 두개의 전극들 사이의 전기적 단락을 방지한다.

발명의 실시의 형태

이하, 본 발명의 실시의 형태를 도면에 기초하여 상세히 설명한다.

도1은 본 발명의 한 실시예에 따른 리튬 이온 중합체 2차 전지의 일반적인 구성을 도시하는 개략도이다. 도1 및 도1에 기초한 설명에서, 설명 및 도면의 단순화를 위해서, 리튬 이온 중합체 2차 전지의 내부의 적층구조의 일부분을 특히 선택하여 설명한다. 패키지 부재 즉 적층구조를 덮는 필름 같은 것 또는 시트 같은 것 등의 다른 구성에 대해서는 생략한다.

이 리튬 이온 중합체 2차 전지는 양전극(1)과, 양전극내의 겔형의 고분자 고체 전해질층(2)과, 분리기(3)와, 음전극측의 겔형의 고분자 고체 전해질층(4)과, 음전극(5)이 적층되고, 이 점유면적이 소형으로 되도록 복수회 권선한 후에 압축하여 형성된 적층구조(10)를 갖고 있다. 또한, 리튬 이온 중합체 2차 전지의 내부의 주요 구조로서, 양전극측의 리드 전극(6) 및 음전극측의 리드 전극(7)과, 피복재(8a, 8b, 8c, 8d, 8e, 8f)가 포함되어 있다.

도1에 있어서는, 도시의 단순화를 위해서, 양전극측의 리드 전극(6) 및 음전극측의 리드 전극(7)이 중심에 가까이 위치하도록 그 중간점을 중심으로 하여 적층구조(10)를 2회 정도 권선하여 도시하고 있으나, 실제에는 다수회 권선된 것도 있을 수 있다.

양전극(1)은 전극으로서의 양호한 도전성 및 화학적 성질, 권선 가공(rolling process)할 때의 양호한 가공성, 경량 및 값싼 것 등의 이유로, 양전극(1)은 압연된 알루미늄 포일(rolled aluminum foil)을 소정의 외형 수치로 절단하여 얻은 포일형의 금속전극 상에 양전극 활성물질을 코팅하여 형성된 것이다. 이 전극 자체를 절단시에, 일반적으로 처리량(throuput)이 양호하여 대량생산이 가능하기 때문에, 금형 등에 의한 기계적 절단법이 적합하게 이용되지만, 그 절단된 단부에 절단 버르 또는 킨링 등의 돌기가 종종 발생하는 경우도 있다.

음전극(5)은 상기 양전극(1)과 거의 동일한 이유로 압연된 구리의 포일을 소정의 외형 수치로 절단하여 성형된 금속전극 상에 음전극 활성물질을 코팅하여 형성된 것이다. 상기 양전극(1)과 거의 동일한 금형 등에 의한 기계적 절단법을 사용하여 절단된 것이기 때문에, 그 절단된 단부에 절단 버르 또는 킨링 등의 돌기가 종종 발생하는 경우가 있다.

양전극측의 리드 전극(6) 및 음전극측의 리드 전극(7)은 함께 적층구조(10)로 발생된 기전력을 외부로 취출하기 위한 것이다. 도전성이 양호하고 또한 적층구조(10) 내부의 화학적 반응에 대하여 내구성을 가진 알루미늄 합금 박판 등을 금형 등을 사용하여 스탬핑(stamping)하여 형성된 것이기 때문에, 상기 전극과 같은 모양으로 기계적 절단법에 의해 절단된다. 따라서, 절단된 단부에 절단 버르, 킨링 등의 돌기가 발생할 경우가 있다.

양전극측의 겔형의 고분자 고체 전해질층(2) 및 음전극측의 겔형의 고분자 고체 전해질층(4)은 각각의 전극마다 전해질층으로서 적합한 전기 화학적 특성을 가짐과 동시에 전해질이 액상으로 되어 누수됨이 없고, 또한 절곡(folded) 또는 처짐(deflected)에 대하여 허용성이 있는 겔형의 것이다. 이러한 특성을 만족시키는 것으로서는, 예로서 고분자 매트릭스 내에 전해질을 균일하게 분산시킨 것 등이 적합하다.

분리기(3)는 양전극층의 고분자 고체 전해질층(2)과 음전극층의 고분자 고체 전해질층(4)이 혼합되지 않도록 양자를 분리시키는 것으로서, 또한 양전극과 음전극의 사이에서 이온을 실용상 충분히 자유로이 이동시킬 수 있도록한 재질의 것으로, 예로서 미세한 다공성 폴리프로필렌 등이 적합하다.

각각의 위치에 설치된 피복재(8a, 8b, 8c, 8d, 8e, 8f)는, 외부로부터 적층구조(10)에 대하여 압력이 인가되어 한쪽의 전극이 다른 쪽의 전극에 접근한 상태로 되는 경우에도 그들 사이를 전기적으로 절연하는 절연성을 가진 재질로 형성되고, 또한 그러한 압력의 인가에 의해 한쪽의 전극이 변형하여 다른 쪽의 전극에 접촉하여도, 파괴되거나 파손되는 일이 없이 역학적 강도를 가진 재질 또는 두께를 가진 것으로서, 예로서 폴리이미드 또는 폴리프로필렌으로 제조된 테이프를 해당 위치에 접착하여 형성된 것이다.

양전극(1) 및 음전극(5)은 일반적으로 그 단부에 여분의 길이를 갖게 하여 고분자 고체 전해질층(2)보다 길게 형성된다. 이것은 각각의 전극의 주면상에 고분자 고체 전해질층(2, 4)을 도포하거나 부착시키거나 하여 적층구조(10)를 형성할 때에, 고분자 고체 전해질층(2, 4)이 전극과 완전히 접촉할 수 있도록 하기 위한 것이다. 또한 이러한 전극의 단부의 노출양(돌출양)은 적층(laminated layer)을 형성한 후에 압력을 인가하여 권선한 때에, 각각의 전극의 위치가 어긋나서, 많게 된 경우도 있다. 또한, 꺾형 고분자 고체 전해질층(2, 4)은 형상이 신축적이기 때문에, 전지의 제조시 및 제품으로서 사용 중에 적층구조(10)에 대하여 그 외부로부터 압력이 인가되면, 양전극(1) 및 음전극(5)의 단부의 고분자 고체 전해질층(2, 4)의 노출된 부분이 서로 접근한 상태로 된다.

그러나, 이 때에, 양전극(1) 및 음전극(5)의 단부에는 피복재(8a, 8c)가, 또한 그 각각에 대향하는 측의 전극상에는 피복재(8b, 8f, 8d, 8e)가 각각 설치되어 있기 때문에, 그 각각이 설치된 부분을 양쪽의 전극 사이의 단락으로부터 보호한다. 이에 의해, 적층구조(10)에 외부로부터 압력이 인가되어도, 양전극(1)과 음전극(5)의 전기적 단락을 방지할 수 있다.

여기에서, 음전극(5) 측의 리드 전극(7)이 접합된 단부에는 피복재가 배치되지 않았다. 이것은 도1에 도시한 바와 같이 이 부분에서는 분리기(3)를 거쳐서 음전극(5)이 서로 대향하고 있기 때문에, 이러한 무시할 수 있는 정도의 짧은 거리에 걸쳐 단락하여도 전지로서의 기전력의 크기에는 실질적으로는 거의 악영향이 없다.

다음에, 이 리튬 이온 중합체 2차 전지의 제조방법의 개요를 특히 그 피복재의 형성공정과 적층구조(10)에 대하여 압력을 인가하는 공정을 중심으로 하여 설명한다.

상기와 같이, 양전극(1)과, 양전극층의 고분자 고체 전해질층(2)과, 분리기(3)와, 음전극층의 고분자 고체 전해질층(4)과, 음전극(5)을 적층하고, 양전극(1)에는 양전극층의 리드 전극(6)을 접합하고 음전극(5)에는 음전극층의 리드 전극(7)을 접합하여, 아직 권선되지 않은 평탄한 형상의 적층구조(10)를 형성한다.

적층구조(10)를 나선형으로 권선하기 전에, 피복재(8a)는 노출된 부분의 주위에 부착되는데, 고분자 고체 전해질층(2)은 양전극 측내의 리드 전극(6)의 표면을 덮는 방식으로 양전극(1)의 단부에는 배치되지 않는다. 피복재(8a)는 절연성 및 물리적 강도를 가진 폴리이미드 테이프로 제조된다. 한편, 음전극(5)의 단부의 고분자 고체 전해질층(4)으로부터 노출되는 부분을 피복하는 폴리이미드 테이프로 구성되는 피복재(8c)를 접착한다.

이 때에, 상기 양전극(1)의 단부와 대향하는 부분의 음전극(5)을 덮도록 폴리이미드 테이프로 구성되는 피복재(8b, 8f)를 접착하는 한편, 음전극(5)의 단부와 대향하는 부분의 양전극(1)을 덮는 폴리이미드 테이프로 구성되는 피복재(8d, 8e)를 접착한다. 대향측의 전극상에 접착하는 피복재(8b, 8e, 8d, 8f)는 후에 이 적층구조(10)를 나선형으로 권선하고 이것을 가압하여 평평한 형상으로 가공한 후에, 각각의 전극의 단부가 대향하는 것으로 예상되는 위치 및 크기, 즉, 전극의 가공에 의한 위치 어긋남 또는 오차 등을 허용할 수 있는 여유를 가진 위치 및 크기로 설치하는 것이 바람직하다.

상기와 같이, 각각의 피복재(8a, 8b, 8c, 8d, 8e, 8f)를 접착한 후에, 적층구조(10)를 약간 평평한 나선형으로 권선하고, 이것에 대하여 외부로부터 압력을 인가하여 더욱 평평하게 하여 박형화함과 동시에, 적층구조(10)내에 적층된 각각의 전극(1, 5)과 이것에 각각 대응되는 고분자 고체 전해질층(2, 4)의 전기적 접촉 상태를 더욱 확실하게 한다. 이 때에, 압력의 인가에 기인하여, 양전극(1)의 단부와 음전극(5)이 접근하고, 또한 음전극(5)의 단부와 양전극(1)이 접근한 경우에도, 이러한 양쪽의 전극이 접촉하여 전기적 단락을 발생하는 것을 각각의 피복재(8a, 8b, 8c, 8d, 8e, 8f)에 의해 방지할 수 있다.

상기와 같이, 박형 적층구조(10)는 외장재(도시 생략함)에 수용되어, 본 실시예의 형태에 따른 리튬 이온 중합체 2차 전지의 주요부를 제조할 수 있다.

명백하게 본 발명의 많은 변경에 및 변형예가 상기 사상의 관점에서 가능하다. 그러므로, 첨부된 청구항들의 범위내에서, 본 발명의 첨부된 청구항들이 특별히 기술된 것 이외의 방법으로 실시될 수 있다.

[예]

본 실시예에 따른 다수의 리튬 이온 중합체 2차 전지에 있어서, 내부 단락(전극간 단락)의 발생율을 확인하는 실험을 행하였다. 그러나, 이 실험에서는 여러가지 구성마다의 효과를 비교하기 위해서, 도2에 도시한 바와 같이, 다음의 여러가지 경우에서의 내부 단락의 발생율이 관찰되었다. 그러한 경우들은, 피복재(8a, 8b, 8c, 8d, 8e, 8f)를 전혀 설치하지 않은 경우(레벨 1)와, 각각의 전극의 단부에만 피복재(8a, 8c)를 설치한 경우(레벨 2)와, 각각의 전극의 단부에 대항하는 전극상의 위치에만 피복재(8b, 8d, 8e, 8f)를 설치한 경우(레벨 3)와, 상기 실험의 형태와 같이 해당하는 모든 위치 즉 각각의 전극의 단부 및 그것에 대항하는 전극상의 위치 모두에 피복재(8a, 8b, 8c, 8d, 8e, 8f)를 설치한 경우(레벨 4)이다.

그 결과, 내부 단락의 발생율은 레벨 1의 경우에는 70%로 되어, 아주 높은 확률로 발생하는 것이 확인되었다. 레벨 2의 비율은 10%이며, 그것은 크게 감소된 비율을 보였다. 또한, 레벨 3의 비율은 0.3%이었다. 레벨 4에서의 비율은 상당히 감소하였으며, 0.1%이었고, 그것은 내부 단락이 거의 발생하지 않는 것을 보였다.

여기에서, 이 실험에서는, 본 실시예의 형태에 따른 피복재(8a, 8b, 8c, 8d, 8e, 8f)의 효과를 확인하기 위해서, 통상의 제조방법 및 사용 상황에서 인가된 압력보다도 훨씬 높은 압력을 실험적으로 인가하여, 그 조건하에서의 내부 단락 발생율을 조사하였다. 따라서, 이 실험결과는 안전율을 상당히 높이 설정한 조건하에서 행한 것이기 때문에, 특히 상기 레벨 3 또는 4의 경우, 실제의 제조공정 중 또는 제품으로서의 사용중에는 내부 단락은 실질적으로 전혀 발생하지 않는 것으로 생각된다. 또한 레벨 2의 경우에 대해서도, 실제의 제조공정 중 또는 제품으로서 사용 중에 발생하는 내부 단락의 발생율을 수% 정도 또는 그 미만까지 저감할 수 있는 것으로 생각된다.

상기 실시예의 형태에서는, 본 발명에 따른 리튬 이온 전지의 구조 및 그 제조방법을 박형의 리튬 이온 중합체 2차 전지의 주요부의 구조 및 그 제조방법에 적용한 경우에 관해서 도시하였으나, 본 발명의 적용은 이것에만 한정되지 않는다. 그 외에도, 예로서 전해질층이 고분자 고체 전해질 이외의 재질로 구성되는 것에서도, 재질이 겔형 또는 가소성의 전해질 또는 가소성의 양호한 재질로 구성되는 전극 등을 가진 것이면, 어떠한 것도 적용가능하다. 혹은 양전극 또는 음전극의 재질, 리드 전극에 이용되는 금속재료 등에 대해서도, 상기 한 실시예의 형태에서 도시한 것에만 한정되지 않는다.

또한, 상기 한 실시예의 형태에서는, 피복재로서 폴리이미드 테이프를 이용하지만, 이 피복재는 상기와 같은 절연성 또는 물리적 강도를 가진 막으로 되도록 절연막을 해당부분에 착막하여 형성한 것이어도 좋다. 상기 기술은 적층구조를 권선하고 원통형 패키지 부재내로 수용함으로써 형성된 튜브형 리튬 이온 전지에 적용될 수 있다. 그 이유로서, 이와 같은 튜브형 리튬 이온 전지의 경우에, 압력이 제조 단계에서 적층구조에 적용될 것이 종종 요구된다. 전지의 외부측면으로부터 그 중심으로 향하여 압력을 인가함으로써 그 전지의 기전력 또는 출력 계속적 성능을 더욱 개선할 수 있는 기술도 제안되어 있기 때문에, 통형의 리튬 이온 전지 등에서도 제조시 또는 사용시에 압력을 인가하는 경우도 있다.

적층구조를 권선하지 않고 평평한 형태를 그대로 각각의 전극의 단부에 전해질층으로 피복되지 않고 노출되는 부분을 갖도록 한 구조의 리튬 이온 전지 등에도 적용가능한 것은 물론이다.

또한, 상기 실시예의 형태에서는 본 발명을 2차 전지에 적용한 경우의 한 예에 대하여 도시하였으나, 이것에만 한정되지 않고, 상기와 같은 일반적 구성의 리튬 이온 전지이면, 재충전 및 재방전을 행하지 않은 1차 전지에서도 적용가능함은 물론이다.

발명의 효과

상기와 같이, 본 발명의 리튬 이온 전지 또는 리튬 이온 전지의 제조방법에 따르면, 적어도 한쪽의 전극의 전해질층으로부터 그 외부에 노출되는 위치, 또는 그 위치에 대하여 대항하는 위치에 있는 다른 쪽의 전극 상부를 전기적 절연성의 피복재에 의해 덮어 보호하고 있다. 이 결과로서, 그 전지의 제조공정 중 또는 그것이 완성된 후에 제품으로서 사용 중에, 시간에 따른 변화 또는 사용환경의 변화 등의 어떤 요인으로부터, 예로서 한 쪽의 전극의 단부가 다른 쪽의 전극에 접근하도록 변형하여도, 그 양쪽의 전극들이 전기적으로 단락하는 것을 피복재에 의해 방지할 수 있고, 그 결과, 전극들 사이의 단락에 기인한 전지의 유효 기전력의 현저한 저하 또는 전력을 출력할 수 없게 되는 종래의 문제점을 해소할 수 있다.

본 발명의 리튬 이온 전지 또는 리튬 이온 전지의 제조방법에 따르면, 피복재를 전해질층과 양전극과 음전극이 적층된 적층구조에 대하여 압력이 인가되어도 한 쪽의 전극과 다른 쪽의 전극을 전기적으로 절연하는 절연성 및 물리적 강도를 갖는 것으로 한다. 따라서, 그 전지의 제조과정 중 또는 이것이 완성된 후에 제품으로서 사용 중에 외부로부터 압력이 전지 내부의 적층구조에 대하여 인가되는 것 등에 기인하여 한쪽의 전극의 단부가 다른 쪽의 전극에 접근하도록 변형된 경우에도, 그 양쪽의 전극들이 전기적으로 단락하는 것을 피복재에 의해 방지할 수 있다. 그 결과, 전극 사이의 단락에 기인한 전지의 유효 기전력의 현저한 저하 또는 전력을 전혀 출력할 수 없는 종래의 문제점을 해소할 수 있다.

본 발명이 예시의 목적으로 선택된 특정 실시예에 대하여 기술되어 있지만, 당업자들에게는 다양한 수정들이 본 발명의 기본 개념 및 범위에 벗어나지 않고 만들어질 수 있다는 것은 명백하다.

도면의 간단한 설명

도1은 본 발명의 한 실시예에 따른 리튬 이온 중합체 2차 전지의 일반적인 구성을 도시하는 개략도.

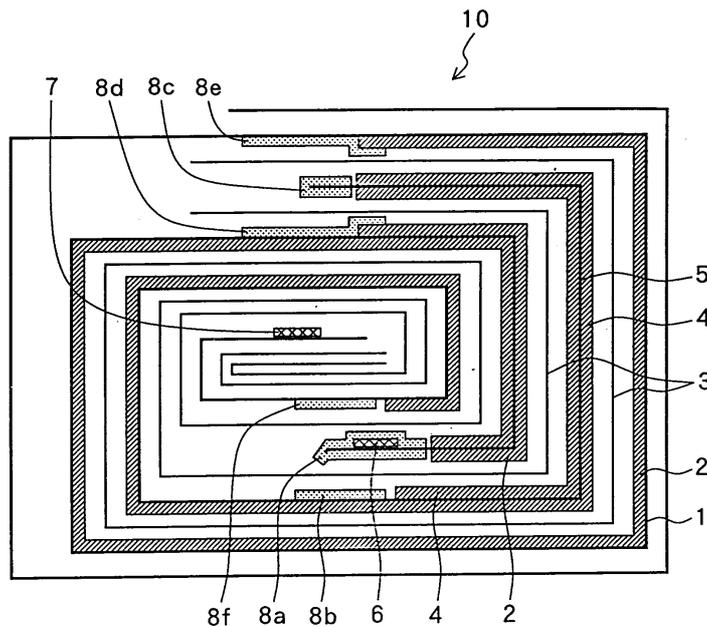
도2는 본 발명의 실시예에 따른 리튬 이온 중합체 2차 전지의 내부 단락 회로의 발생을 확인하는 실험결과를 도시하는 도면.

* 도면의 주요부분에 대한 부호의 설명 *

- 1 : 양전극 2, 4 : 고분자 고체 전해질층
- 3 : 선택기 5 : 음전극
- 6, 7 : 리드 전극 8 : 피복재
- 10 : 적층구조

도면

도면1



도면2

레벨	절연재의 배치 상태	내부 단락 발생율(%)
1	피복재 배치되지 않음	70.0 (%)
2	전극의 단부에 배치됨	10.0 (%)
3	한쪽 전극의 단부에 대항하는 다른쪽 전극상에 배치됨	0.3 (%)
4	전극의 단부 및 한쪽 전극의 단부에 대항하는 다른쪽 전극상에 배치됨	0.1 (%)