



(19) 대한민국특허청(KR)
(12) 등록특허공보(B1)

(45) 공고일자 2018년07월05일
 (11) 등록번호 10-1874900
 (24) 등록일자 2018년06월29일

(51) 국제특허분류(Int. Cl.)
H01M 2/02 (2015.01) *B32B 15/088* (2006.01)
B32B 15/09 (2006.01) *B32B 7/12* (2006.01)
H01M 10/0525 (2010.01)
 (52) CPC특허분류
H01M 2/0287 (2013.01)
B32B 15/088 (2013.01)
 (21) 출원번호 10-2016-0165198
 (22) 출원일자 2016년12월06일
 심사청구일자 2016년12월06일
 (65) 공개번호 10-2018-0064834
 (43) 공개일자 2018년06월15일
 (56) 선행기술조사문헌
 KR1020140055851 A*
 JP2016122569 A*
 JP2014063587 A
 KR1020160102427 A
 *는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자
율촌화학 주식회사
 서울특별시 동작구 여의대방로 112 (신대방동)
 (72) 발명자
이지민
 경기도 안산시 상록구 용신로 466, 303호
박종협
 경기도 시흥시 죽율로 36, 205동 1002호
 (뒷면에 계속)
 (74) 대리인
김영철, 김 순 영

전체 청구항 수 : 총 10 항

심사관 : 임창연

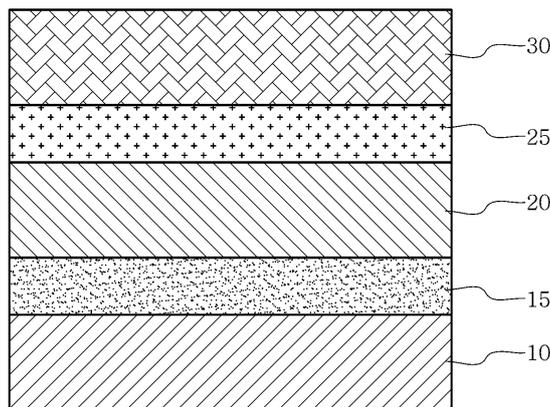
(54) 발명의 명칭 **셀 파우치 및 이의 제조 방법**

(57) 요약

셀 파우치는 순차적으로 적층된 실란트층(sealant layer), 제1 접착층, 배리어층(barrier layer), 제2 접착층 및 외층(outer layer)을 포함한다. 이때, 상기 제1 접착층은 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 및 글리시딜 아민형 에폭시 경화제를 포함한다.

대표도 - 도1

100



(52) CPC특허분류

B32B 15/09 (2013.01)

B32B 7/12 (2013.01)

H01M 10/0525 (2013.01)

B32B 2457/10 (2013.01)

Y02E 60/122 (2013.01)

Y02P 70/54 (2015.11)

(72) 발명자

박한철

서울특별시 관악구 호암로18나길 11-5, 101호

원상혁

경기도 안산시 상록구 이화3길 34-17, 210호

이 발명을 지원한 국가연구개발사업

과제고유번호 10067102

부처명 산업통상자원부

연구관리전문기관 한국산업기술평가관리원

연구사업명 산업소재핵심기술개발

연구과제명 10,000PPM 수분의 24hr 조건에서 5N/15mm 이상의 내불산 신뢰성을 갖는 중대형 리튬이차전지 파우치용 고성능 접착제 및 표면처리 소재/공정 기술 개발

기 여 율 1/1

주관기관 율촌화학(주)

연구기간 2016.07.01 ~ 2019.06.30

청구항 6

제1항에 있어서,

상기 배리어층은 수분 배리어성 및 가스 배리어성을 갖는 금속을 하나 이상 포함하는 것을 특징으로 하는 셀 파우치.

청구항 7

제1항에 있어서,

상기 외층은 폴리아미드계(polyamide-based) 수지 및 폴리에스테르계(polyester-based) 수지 중에서 선택되는 하나 이상을 포함하는 것을 특징으로 하는 셀 파우치.

청구항 8

제7항에 있어서,

상기 폴리아미드계 수지는 나일론(nylon)이고,

상기 폴리에스테르계 수지는 폴리부틸렌테레프탈레이트(polybutylene terephthalate, PBT) 또는 폴리에틸렌테레프탈레이트(polyethylene terephthalate, PET)인 것을 특징으로 하는 셀 파우치.

청구항 9

제1항에 있어서,

상기 셀 파우치는 2차 전지용 셀 파우치인 것을 특징으로 하는 셀 파우치.

청구항 10

제9항에 있어서,

상기 2차 전지는 리튬 이온 2차 전지인 것을 특징으로 하는 셀 파우치.

청구항 11

제1항 및 제3항 내지 제10항 중 어느 한 항에 따른 셀 파우치의 제조 방법으로서, 상기 방법은

배리어층을 형성하는 것;

무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 및 글리시딜 아민형 에폭시 경화제를 이용하여, 상기 배리어층의 일 면 상에 제1 접착층을 형성하는 것;

상기 제1 접착층을 이용하여, 상기 배리어층의 일 면과 결합되는 실란트층을 형성하는 것;

상기 실란트층이 형성되지 않은 상기 배리어층의 다른 면 상에 제2 접착층을 형성하는 것; 및

상기 제2 접착층을 이용하여, 상기 실란트층과 대향하도록 상기 배리어층의 다른 면과 결합되는 외층을 형성하는 것을 포함하는 셀 파우치의 제조 방법.

청구항 12

삭제

발명의 설명

기술 분야

본 명세서는 2차 전지용 셀 파우치 및 이의 제조 방법에 관한 것이다. 보다 구체적으로, 본 명세서는 리튬 이온 2차 전지용 셀 파우치 및 이의 제조 방법에 관한 것이다.

[0001]

배경 기술

- [0002] 일반적으로, 리튬 이온 2차 전지 등의 셀(cell)은 셀 파우치(cell pouch)에 내장(수납)되고 있다. 이러한 셀 파우치는 순차적으로 적층된 실란트층(sealant layer), 배리어층(barrier layer) 및 외층(outer layer)을 포함하고, 이때 각 층들을 결합시킬 수 있도록 상기 실란트층과 배리어층 사이 및 상기 배리어층 및 외층 사이에 접착층들을 더 포함함으로써, 다층 구조를 가질 수 있다.
- [0003] 그러나 상기 접착층들, 특히 상기 실란트층과 배리어층 사이에 구비되는 접착층이 충분한 접착성을 갖지 못하거나, 혹은 외부로부터의 물리적 충격 및/또는 내부에서의 전해액 누설 등으로 인해 쉽게 손상되거나 열화될 경우, 상기 셀 파우치에는 층간 박리 현상, 크랙(crack) 등의 결함이 발생할 수 있어 이의 내부에 내장되는 셀(2차 전지)을 효과적으로 보호하기 어려울 수 있다.
- [0004] 따라서, 각 층들을 결합시키기 위한 접착층들, 특히 상기 실란트층과 배리어층 사이에 구비되는 접착층은 해당 층들이 적어도 부분적으로 박리되거나 분리되지 않도록 충분한 접착력을 제공할 수 있어야 하고, 나아가 내전해액성과 같은 내화학성, 기계적 강도, 내열성 등의 특성들을 더 갖는 것이 바람직할 수 있다.

선행기술문헌

특허문헌

- [0005] (특허문헌 0001) 일본 등록 특허 제4668373호

발명의 내용

해결하려는 과제

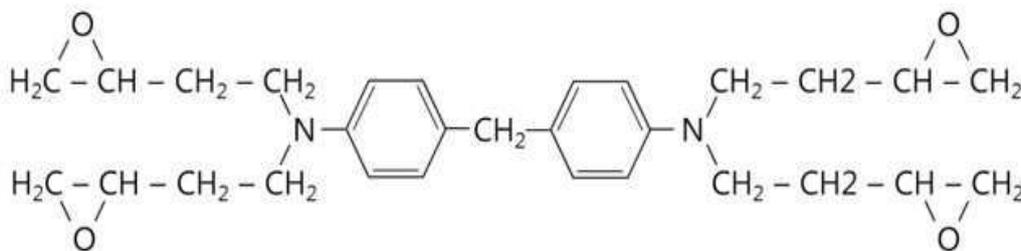
- [0006] 본 발명의 일 목적은 접착성, 내불산성, 내전해액성, 기계적 강도 등이 우수한 접착층을 실란트층과 배리어층 사이에 포함함으로써 높은 신뢰도를 갖는 셀 파우치 및 이의 제조 방법을 제공하는 것이다.

과제의 해결 수단

- [0007] 본 발명의 일 목적을 달성하기 위한 예시적인 구현예들에 따른 셀 파우치는, 실란트층(sealant layer); 상기 실란트층 상에 형성된 제1 접착층; 상기 제1 접착층 상에 형성된 배리어층(barrier layer); 상기 배리어층 상에 형성된 제2 접착층; 및 상기 제2 접착층 상에 형성된 외층(outer layer)을 포함한다. 이때, 상기 제1 접착층은 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 및 글리시딜 아민형 에폭시 경화제를 포함한다.

- [0008] 예시적인 구현예들에 있어서, 글리시딜 아민형 에폭시 경화제는 하기 [화학식 1]로 표시되는 것일 수 있다.

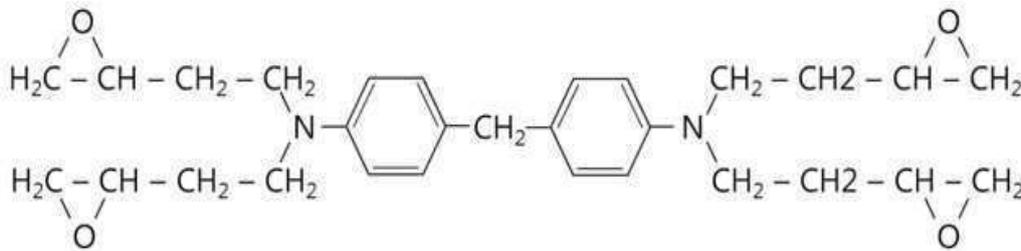
- [0009] [화학식 1]



- [0010]
- [0011] 예시적인 구현예들에 있어서, 글리시딜 아민형 에폭시 경화제는 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 100 중량부를 기준으로, 0.5 내지 10 중량부의 양으로 상기 제1 접착층에 포함될 수 있다.
- [0012] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 실란트층은 상기 셀 파우치의 최내층으로서 상기 셀 파우치에 내장되는 셀과 접촉할 수 있다. 상기 외층은 상기 셀 파우치의 최외층으로서 외부에 노출될 수 있다.
- [0013] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 실란트층은 폴리프로필렌계(polypropylene-based) 수지 또는 무연신 폴리프

로필렌(casting polypropylene, CPP)계 필름을 포함할 수 있다.

- [0014] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 배리어층은 수분 배리어성 및 가스 배리어성을 갖는 금속을 하나 이상 포함할 수 있다.
- [0015] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 외층은 폴리아미드계(polyamide-based) 수지 및 폴리에스테르계(polyester-based) 수지 중에서 선택되는 하나 이상을 포함할 수 있다.
- [0016] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 폴리아미드계 수지는 나일론(nylon)일 수 있다. 상기 폴리에스테르계 수지는 폴리부틸렌테레프탈레이트(polybutylene terephthalate, PBT) 또는 폴리에틸렌테레프탈레이트(polyethylene terephthalate, PET)일 수 있다.
- [0017] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 셀 파우치는 2차 전지용 셀 파우치일 수 있다.
- [0018] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 2차 전지는 리튬 이온 2차 전지일 수 있다.
- [0019] 본 발명의 일 목적을 달성하기 위한 예시적인 구현예들에 따른 셀 파우치의 제조 방법은 다음을 포함한다: 배리어층을 형성하는 것; 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 및 글리시딜 아민형 에폭시 경화제를 이용하여, 상기 배리어층의 일 면 상에 제1 접착층을 형성하는 것; 상기 제1 접착층을 이용하여, 상기 배리어층의 일 면과 결합되는 실란트층을 형성하는 것; 상기 실란트층이 형성되지 않은 상기 배리어층의 다른 면 상에 제2 접착층을 형성하는 것; 및 상기 제2 접착층을 이용하여, 상기 실란트층과 대향하도록 상기 배리어층의 다른 면과 결합되는 외층을 형성하는 것.
- [0020] 예시적인 구현예들에 있어서, 글리시딜 아민형 에폭시 경화제는 하기 [화학식 1]로 표시되는 것일 수 있다.
- [0021] [화학식 1]



- [0022]
- [0023] **발명의 효과**
본 발명의 예시적인 구현예들에 따른 셀 파우치는 순차적으로 적층된 실란트층, 제1 접착층, 배리어층, 제2 접착층 및 외층을 포함하며, 이때 상기 제2 접착층이 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 및 글리시딜 아민형 에폭시 경화제를 포함함으로써, 상기 실란트층과 배리어층 사이에 접착성 및 기계적 강도뿐 아니라, 내불산성, 내전해액성 등의 내화학성 측면에서 안전성을 확보할 수 있다.
- [0024] 구체적으로, 상기 제1 접착층을 통해, 상기 실란트층과 배리어층은 적어도 부분적으로 박리되거나 분리되지 않을 수 있으며 크랙(crack) 등이 발생하지 않아 손상되지 않을 수 있다. 또한, 제1 접착층은 기계적 강도, 내불산성 및 내전해액성이 우수하므로 상기 셀 파우치는 향상된 성형성 및 내화학성을 가질 수 있다.
- [0025] 그러므로 상기 셀 파우치를 이용하여 2차 전지, 구체적으로 리튬 이온 2차 전지를 효과적으로 포장할 수 있다.

도면의 간단한 설명

- [0026] 도 1은 본 발명의 예시적인 구현예들에 따른 셀 파우치의 단면도를 도시한 것이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

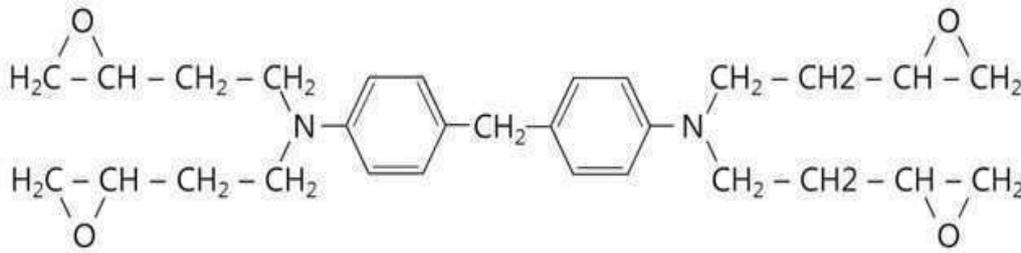
- [0027] 이하, 첨부한 도면을 참조하여 본 발명의 바람직한 구현예들을 상세히 설명하기로 한다.
- [0028] 본 발명은 다양한 변경을 가할 수 있고 여러 가지 형태를 가질 수 있는 바, 실시예들은 본 발명을 특정한 개시 형태로 한정하려는 것이 아니며, 본 발명의 사상 및 기술 범위에 포함되는 모든 변경, 균등물 내지 대체물을 포

함하는 것으로 이해되어야 할 것이다.

- [0029] 본 명세서에서 '셀(cell)'은 전지를 의미하는 것으로서, 리튬 이온 전지, 리튬 폴리머 전지 등과 같은 2차 전지나 휴대용 축전지 등과 같은 각종 전지를 모두 포함하는 최광의의 의미를 지닌다.
- [0030] 본 명세서에서 '셀 파우치(cell pouch)'는 전해액에 함침된 양극, 음극, 세퍼레이터(separator) 등의 셀 구성요소를 포장할 수 있는 것으로서, 가스 배리어성, 수분 배리어성, 내전해액성, 열접착성 등을 고려한 적층 구조의 필름을 셀 구성요소가 내장될 수 있도록 주머니 형태나 박스 형태 등으로 가공한 것을 모두 포함하는 최광의의 의미를 지닌다.
- [0031] 본 명세서에서 '배리어성'은 전지 외부로부터의 수증기(습기)나 공기, 및 전지 내부에서 발생된 가스를 차단하는 특성을 의미한다.
- [0032] 본 명세서에서 '셀 파우치의 성형성이 우수하다'는 것은 가스 배리어성, 수분 배리어성, 내전해액성, 열접착성 등을 갖는 적층 구조의 필름이 손상되거나 깨지지 않고 소정의 형상으로 용이하게 가공될 수 있음을 의미한다. 이때, 셀 파우치의 성형 가능 깊이가 클수록 2차 전지(셀 파우치에 내장되는 셀)의 에너지 밀도를 높일 수 있다.
- [0034] 셀 파우치
- [0035] 본 발명의 예시적인 구현예들에 따른 셀 파우치(cell pouch)는 2차 전지용 셀 파우치로서, 구체적으로 리튬 이온 2차 전지의 셀 파우치로서 사용될 수 있다.
- [0036] 도 1은 본 발명의 예시적인 구현예들에 따른 셀 파우치의 단면도를 도시한 것이다.
- [0037] 도 1을 참조하면, 셀 파우치(100)는 순차적으로 적층된 실란트층(sealant layer)(10), 제1 접착층(15), 배리어층(barrier layer)(20), 제2 접착층(25) 및 외층(30)을 포함하여, 도 1에 도시된 바와 같은 다층 구조를 가질 수 있다.
- [0038] 실란트층(10)은 셀 파우치(100)에 내장되는 셀과 접촉할 수 있는 셀 파우치(100)의 최내층으로서, 실링 수지 또는 필름을 포함하며, 셀이 내장(포장)된 후 열에 의해 접착(열융착)되어 실링(sealing)성을 부여할 수 있다. 상기 실링 수지 또는 필름은 열에 의해 용융 및 봉합될 수 있는(열접착성을 갖는) 것이라면 특별히 제한되지 않으나, 바람직하게는 저온에서 열 봉합이 가능한 저융점 수지 또는 필름으로부터 선택될 수 있다. 또한, 상기 실링 수지 또는 필름은 열 접착성과 함께 절연성, 내전해액성, 내한성 등을 갖는 것이 바람직할 수 있다.
- [0039] 이에 따라, 예시적인 구현예들에 있어서, 실란트층(10)은 실링 수지로서 폴리프로필렌계(polypropylene-based, PP-based) 수지를 포함할 수 있고, 또는 실링 필름으로서 무연신 폴리프로필렌(casting polypropylene, CPP)계 필름을 포함할 수 있다. 폴리프로필렌(PP)계 수지 또는 무연신 폴리프로필렌(CPP)계 필름은 실링성 및 절연성이 양호할 뿐만 아니라, 인장 강도, 강성, 표면 경도 등의 기계적 특성, 내전해액성 등의 내화학성, 및 성형성이 우수하여 본 발명에 유용하게 사용될 수 있다. 폴리프로필렌(PP)계 수지는, 예를 들어 호모 폴리프로필렌(homo PP), 폴리프로필렌 공중합체(PP copolymer), 폴리프로필렌 터폴리머(PP terpolymer) 등으로부터 선택된 하나 이상이 사용될 수 있다.
- [0040] 실란트층(10)은 양호한 열 접착 강도, 즉 실링성을 위해, 약 10um 내지 약 100um의 두께를 가질 수 있다. 실란트층(10)의 두께가 약 10um 미만일 경우, 실링성 부족으로 인해 전해액이 누설되거나 포장된 셀이 충분히 절연되지 않는 문제점들이 발생할 수 있다. 또한, 실란트층(10)의 두께가 약 100um 초과일 경우, 실란트층(10) 상부에 적층되는 다른 층(들)이 상대적으로 얇은 두께로 구현되어야 하므로 셀 파우치(100)는 배리어 특성, 강도, 성형성 등이 저하될 수 있다.
- [0041] 제1 접착층(15)은 실란트층(10)과 배리어층(20)을 결합시키기 위한 것으로서, 실란트층(10) 상에 구비될 수 있다. 제1 접착층(15)은, 실란트층(10)과 배리어층(20) 사이에 높은 접착력, 즉 높은 층간 박리강도를 제공할 수 있고, 나아가 바람직하게는 내전해액성, 내불산성 등의 내화학성을 가질 수 있는, 접착 수지 및 경화제를 포함할 수 있다.
- [0042] 이에 따라, 제1 접착층(15)은 접착 수지로서, 폴리올레핀 수지를 무수말레산으로 그래프트 변형시킨 무수말레산 변형 폴리올레핀 수지를 포함할 수 있다. 또한, 경화제로서, 내불산성, 내전해액성, 내열성, 경화성, 기계적 강도 등이 우수한 글리시딜 아민형 에폭시 경화제, 구체적으로 하기 [화학식 1]로 표시되는 경화제(NNN'N'-테트라글리시딜-4,4'-메틸렌-비스-벤즈아민(NNN'N'-tetraglycidyl-4,4'-methylene-bis-benzamine))를 포함할 수

있다. 이때, 제1 접착층(15)의 접착성(경화성)을 고려하여, 상기 경화제는 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 100 중량부를 기준으로, 약 0.5 내지 10 중량부의 양으로 포함될 수 있다. 보다 구체적으로, 상기 경화제가 약 10 중량부 초과로 양으로 과도하게 포함되면, 상기 경화제가 미반응된(경화에 참여하지 않은) 상태로 제1 접착층(15) 내에 잔류할 수 있어 실란트층(10) 및 배리어층(20) 사이 접착력이 감소될 수 있고, 나아가 제1 접착층(15)을 형성하기 위한 코팅 공정 수행 중 작업성이 감소될 수 있기 때문에 제조적 관점에서도 바람직하지 않을 수 있다. 또한, 상기 경화제가 약 0.5 중량부 미만의 양으로 너무 적게 포함되면, 제1 접착층(15)이 완전히 경화되지 않을 수 있으므로 실란트층(10) 및 배리어층(20) 사이에 충분한 접착력을 제공하기 어려울 수 있다. 결과적으로, 상기 경화제가 약 0.5 내지 10 중량부의 양으로 포함되지 않으면, 높은 신뢰도의 셀 파우치(100)를 구현하기 어려울 수 있다.

[0043] [화학식 1]



[0044]

[0045] 제1 접착층(15)은, 예를 들어 약 1 μ m 내지 10 μ m의 두께를 가질 수 있다. 제1 접착층(15)의 두께가 약 1 μ m 미만으로 너무 얇으면 실란트층(10) 및 배리어층(20) 사이에 충분한 접착력을 확보하기 어려울 수 있으며, 나아가 셀 파우치(100)가 충분한 정도의 내불산성, 내전해액성, 내열성, 기계적 강도 등을 갖기 어려울 수 있다. 또한, 제1 접착층(15)의 두께가 약 10 μ m 초과로 너무 두꺼우면 실란트층(10) 및 배리어층(20) 사이 접착력은 향상될 수 있지만 제1 접착층(15) 상부에 적층되는 다른 층(들), 예를 들어 배리어층(20) 및 외층(30)이 상대적으로 얇은 두께로 구현되어야 하므로 셀 파우치(100)는 배리어 특성, 강도, 성형성 등이 저하될 수 있다.

[0046] 배리어층(20)은 외부로부터의 습기나 공기, 그리고 내부에서 발생된 가스의 출입을 차단하기 위한 것으로서, 제1 접착층(15)을 통해 실란트층(10) 상에 구비될 수 있다. 배리어층(20)은 가스 배리어성 및 수분 배리어성을 갖는 금속을 포함할 수 있으며, 예를 들어 알루미늄(Al), 철(Fe), 구리(Cu), 니켈(Ni), 주석(Sn), 아연(Zn), 인듐(In), 텅스텐(W) 등으로 이루어진 그룹 중에서 선택된 하나 이상(단일 금속 또는 단일 금속의 혼합), 또는 이로부터 선택된 2 이상의 합금(alloy) 등을 포함할 수 있다. 예시적인 구현예들에 있어서, 배리어층(20)은 수분 배리어성, 가스 배리어성 및 성형성을 모두 고려하여, 알루미늄(Al) 또는 알루미늄 합금(Al alloy)을 포함할 수 있다.

[0047] 배리어층(20)은 충분한 정도의 가스 배리어성 및 수분 배리어성을 위하여, 예를 들어 약 10 μ m 이상의 두께, 구체적으로 약 10 μ m 내지 100 μ m의 두께를 가질 수 있다. 또한, 일 구현예에 있어서, 배리어층(20)은 내부식성을 위해, 인산이나 크롬 등에 의해 표면 처리된 것일 수 있다.

[0048] 제2 접착층(25)은 배리어층(20)과 외층(30)을 결합시키기 위한 것으로서, 배리어층(20) 상에 구비될 수 있다. 제2 접착층(25)은 배리어층(20)과 외층(30) 사이에 높은 접착력, 즉 높은 층간 박리강도를 제공할 수 있는, 접착 수지 및 경화제를 포함할 수 있다. 상기 접착 수지는, 예를 들어 폴리에스테르계 접착 수지, 폴리우레탄계 접착 수지, 폴리올레핀계 접착 수지 등을 포함할 수 있다. 상기 경화제는, 예를 들어 이소시아네이트계 경화제, 에폭시계 경화제, 우레탄계 경화제 등을 포함할 수 있다.

[0049] 제2 접착층(25)은, 예를 들어 약 1 μ m 내지 10 μ m의 두께를 가질 수 있다. 제2 접착층(25)의 두께가 약 1 μ m 미만으로 너무 얇으면 배리어층(20) 및 외층(30) 사이에 충분한 접착력을 확보하기 어려울 수 있다. 또한, 제2 접착층(25)의 두께가 약 10 μ m 초과로 너무 두꺼우면 배리어층(20) 및 외층(30) 사이 접착력은 향상될 수 있지만 제2 접착층(25) 상부에 적층되는 외층(30)이 상대적으로 얇은 두께로 구현되어야 하므로 셀 파우치(100)의 강도 등이 저하될 수 있다.

[0050] 외층(30)은 제2 접착층(25)을 통해 배리어층(20) 상에 구비될 수 있으며, 셀 파우치(100)의 최외층으로서 외부에 노출될 수 있다. 외층(30)은 배리어층(20)을 보호할 수 있도록 내마모성과 함께 내열성, 내한성, 내핀홀성, 절연성, 내화학적, 성형성 등을 갖는 것이 바람직할 수 있다. 이에 따라, 예시적인 구현예들에 있어서, 외층

(30)은 폴리아미드계(polyamide-based) 수지 및/또는 폴리에스테르계(polyester-based) 수지를 포함할 수 있다. 상기 폴리아미드계 수지는 연신율이 높아 성형이 유리한 나일론(nylon)일 수 있다. 상기 폴리에스테르계 수지는 높은 내화학성, 내핀홀성, 절연성, 기계적 강도 등을 구현할 수 있는 폴리부틸테레프탈레이트(polybutylene terephthalate, PBT) 또는 폴리에틸테레프탈레이트(polyethylene terephthalate, PET)일 수 있으며, 바람직하게는 폴리에틸테레프탈레이트(PET)에 비해 연신율이 높은 폴리부틸테레프탈레이트(PBT)일 수 있다.

[0051] 외층(30)은 충분한 정도의 내마모성, 내열성, 내핀홀성, 내화학성, 성형성, 절연성 등을 모두 고려하여, 약 10um 내지 50um의 두께를 가질 수 있다. 외층(30)의 두께가 약 10um 미만으로 너무 얇거나 약 50um 초과로 너무 두꺼우면, 셀 파우치(100)에 성형성 저하, 열접착 강도 저하, 각 층간 박리강도 저하 등의 문제가 발생할 수 있다.

[0052] 전술한 바와 같이, 본 발명의 예시적인 구현예들에 따른 셀 파우치는 순차적으로 적층된 실란트층, 제1 접착층, 배리어층, 제2 접착층 및 외층을 포함하며, 이때 상기 제2 접착층이 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 및 글리시딜 아민형 에폭시 경화제를 포함함으로써, 상기 실란트층과 배리어층 사이에 접착성 및 기계적 강도뿐 아니라, 내불산성, 내전해액성 등의 내화학성 측면에서 안전성을 확보할 수 있다.

[0053] 구체적으로, 상기 제1 접착층을 통해, 상기 실란트층과 배리어층은 적어도 부분적으로 박리되거나 분리되지 않을 수 있으며 크랙(crack) 등이 발생하지 않아 손상되지 않을 수 있다. 또한, 제1 접착층은 기계적 강도, 내불산성 및 내전해액성이 우수하므로 상기 셀 파우치는 향상된 성형성 및 내화학성을 가질 수 있다.

[0054] 그러므로 상기 셀 파우치를 이용하여 2차 전지, 구체적으로 리튬 이온 2차 전지를 효과적으로 포장할 수 있다.

[0056] 셀 파우치의 제조 방법

[0057] 본 발명의 예시적인 구현예들에 따른 셀 파우치는 다음의 공정들을 수행하여 제조될 수 있다.

[0058] 수분 배리어성 및 가스 배리어성을 갖는 금속을 이용하여, 전술한 바와 동일한 배리어층을 형성한다.

[0059] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 배리어층은 전술한 바와 같은 금속, 예컨대 알루미늄(Al) 또는 알루미늄 합금(Al alloy)을 증착시켜 금속 증착층을 형성하거나, 또는 전술한 바와 같은 금속, 예컨대 알루미늄(Al) 또는 알루미늄 합금(Al alloy)을 포함하는 금속 포일(foil)을 사용하여 형성할 수 있다. 이때, 상기 배리어층은, 예를 들어 약 10um 이상의 두께, 구체적으로 약 10um 내지 100um의 두께를 갖도록 형성할 수 있다.

[0060] 상기 배리어층의 일 면 상에 전술한 바와 동일한 제1 접착층을 형성한다.

[0061] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 제1 접착층은 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 및 글리시딜 아민형 에폭시 경화제(상기 [화학식 1]로 표시됨)를 포함하는 제1 접착제 조성물을 형성하고, 이를 상기 배리어층의 일 면 상에 도포한 뒤, 약 50 내지 200 °C의 온도에서 건조 및 경화시킴으로써 형성할 수 있다. 상기 제1 접착층은, 예를 들어 약 1um 내지 10um의 두께를 갖도록 형성할 수 있다.

[0062] 상기 제1 접착층을 이용하여, 상기 배리어층의 일 면과 결합되는 실란트층을 형성한다.

[0063] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 실란트층은 전술한 바와 같은 실링 수지 또는 필름, 예컨대 폴리프로필렌(PP)계 수지 또는 무연신 폴리프로필렌(CPP)계 필름을 이용하여, 예를 들어 약 10um 내지 100um의 두께를 갖도록 제1 필름을 형성하고, 상기 제1 필름을 상기 제1 접착층 상에 적층한 후 가압하여 상기 배리어층에 합치시킴으로써 형성할 수 있다.

[0064] 이때, 상기 제1 접착층이 우수한 접착성을 갖는 것으로 인해, 상기 실란트층 및 배리어층은 적어도 부분적으로 박리되거나 분리되지 않고 단단히 결합될 수 있으며, 이에 따라 상기 실란트층, 배리어층 및/또는 이들을 포함하는 상기 셀 파우치에는 크랙(crack) 등으로 인한 손상이 발생하지 않을 수 있다. 또한, 제1 접착층은 높은 내불산성, 내전해액성, 기계적 강도, 내열성 등을 갖기 때문에, 결과적으로 상기 제1 접착층은 상기 셀 파우치의 신뢰도 향상에 기여할 수 있다.

[0065] 상기 실란트층이 형성되지 않은 상기 배리어층의 다른 면 상에 제2 접착층을 형성한다.

[0066] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 제2 접착층은 상기 배리어층 및 후속하여 형성할 외층 사이에 높은 접착력을 제공할 수 있도록, 폴리에스테르계 접착 수지, 폴리우레탄계 접착 수지, 폴리올레핀계 접착 수지 등의 접착 수지; 및 이소시아네이트계 경화제, 에폭시계 경화제, 우레탄계 경화제 등의 경화제를 포함하는 제2 접착제 조성

물을 형성하고, 이를 상기 실란트층이 형성되지 않은 상기 배리어층의 다른 면 상에 도포한 뒤, 약 50 내지 200 °C의 온도에서 건조 및 경화시킴으로써 형성할 수 있다. 상기 제2 접착층은, 예를 들어 약 1um 내지 10um의 두께를 갖도록 형성할 수 있다.

[0067] 상기 제2 접착층을 이용하여, 상기 실란트층과 대향하도록 상기 배리어층의 다른 면과 결합되는 외층을 형성한다.

[0068] 예시적인 구현예들에 있어서, 상기 외층은 폴리아미드계(polyamide-based) 수지 및/또는 폴리에스테르계(polyester-based) 수지를 이용하여, 예를 들어 약 10um 내지 50um의 두께를 갖도록 제2 필름을 형성하고, 상기 제2 필름을 상기 제2 접착층 상에 적층한 후 가압하여 상기 배리어층에 합지시킴으로써 형성할 수 있다.

[0069] 이상에서 설명한 방법을 통해, 실란트층과 배리어층 사이에 향상된 층간 접착력을 가질 뿐만 아니라, 기계적 강도, 성형성 및 내화학성이 우수한 셀 파우치를 용이하게 제조할 수 있다.

[0071] 이하의 실시를 통하여 본 발명은 더욱 상세하게 설명된다. 단, 본문에 개시되어 있는 본 발명의 실시예들은 단지 설명을 위한 목적으로 예시된 것으로서, 본 발명의 실시예들은 다양한 형태로 실시될 수 있으며 본문에 설명된 실시예들에 한정되는 것으로 해석되어서는 안 된다.

[0073] [실시예]

[0074] 알루미늄(Al)을 포함하는 금속 포일(foil)을 사용하여 40um 두께의 배리어층을 형성하였다. 무수말레산 변성 폴리올레핀 수지 및 상기 [화학식 1]로 표시되는 경화제를 포함하는 제1 접착제 조성물을 형성하고, 이를 상기 배리어층의 일 면 상에 도포한 후, 100 내지 150 °C의 온도에서 건조 및 경화시켜 제1 접착층을 형성하였다. 폴리프로필렌(PP) 수지를 이용하여 50um 두께의 제1 필름을 형성하고, 이를 상기 제1 접착층 상에 적층한 뒤 가압하여 상기 배리어층에 합지시킴으로써 실란트층을 형성하였다. 상기 실란트층이 형성되지 않은 상기 배리어층의 다른 면 상에 제2 접착층을 형성하였다. 이때, 상기 제2 접착층은 폴리에스테르계 접착 수지 및 이소시아네이트계 경화제를 포함하는 제2 접착제 조성물을 상기 실란트층이 형성되지 않은 상기 배리어층의 다른 면 상에 도포하고, 70 내지 150 °C의 온도에서 건조 및 경화시켜 형성하였다. 나일론(Nylon)을 이용하여 25um 두께의 제2 필름을 형성하고, 이를 상기 제2 접착층 상에 적층한 뒤 가압하여 상기 배리어층에 합지시킴으로써 외층을 형성하였다.

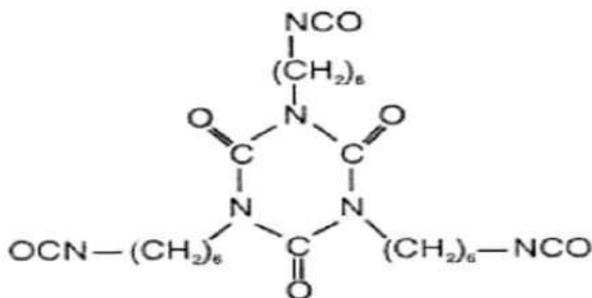
[0075] 이에 따라, 순차적으로 적층된 실란트층, 제1 접착층([화학식 1]로 표시되는 경화제 함유), 배리어층, 제2 접착층, 외층을 포함하는 셀 파우치가 제조되었다.

[0077] [비교예 1]

[0078] 상기 [화학식 1]로 표시되는 경화제 대신에 하기 [화학식 2]로 표시되는 경화제를 사용하여 제1 접착층을 형성하는 것을 제외하고는 실시예 1에서 전술한 바와 동일한 공정을 수행하였다.

[0079] 이에 따라, 순차적으로 적층된 실란트층, 제1 접착층([화학식 2]로 표시되는 경화제 함유), 배리어층, 제2 접착층, 외층을 포함하는 셀 파우치가 제조되었다.

[0080] [화학식 2]



[0081]

[0083] [비교예 2]

[0084] 상기 [화학식 1]로 표시되는 경화제 대신에 하기 [화학식 3]으로 표시되는 경화제(헥사메틸렌 디이소시아네이트(hexamethylene diisocyanate, HDI))를 사용하여 제1 접착층을 형성하는 것을 제외하고는 실시예 1에서 전술한

바와 동일한 공정을 수행하였다.

[0085] 이에 따라, 순차적으로 적층된 실란트층, 제1 접착층([화학식 3]으로 표시되는 경화제(HDI) 함유), 배리어층, 제2 접착층, 외층을 포함하는 셀 파우치가 제조되었다.

[0086] [화학식 3]

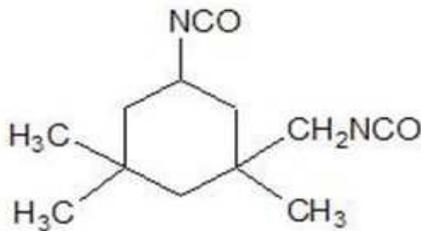
[0087] $OCN-(CH_2)_6-NCO$

[0089] [비교예 3]

[0090] 상기 [화학식 1]로 표시되는 경화제 대신에 하기 [화학식 4]로 표시되는 경화제(이소포론 디이소시아네이트(isophorone diisocyanate(IPDI)))를 사용하여 제1 접착층을 형성하는 것을 제외하고는 실시예 1에서 전술한 바와 동일한 공정을 수행하였다.

[0091] 이에 따라, 순차적으로 적층된 실란트층, 제1 접착층([화학식 4]로 표시되는 경화제(IPDI) 함유), 배리어층, 제2 접착층, 외층을 포함하는 셀 파우치가 제조되었다.

[0092] [화학식 4]



[0093]

[0095] 셀 파우치의 내전해액성 평가

[0096] 셀 파우치의 내전해액성을 평가하기 위하여, 실시예 및 비교예 1 내지 3에 따라 제조된 셀 파우치들을 표준 전해액(1.0M LiPF₆ in EC/DEC/EMC=1:1:1)에 함침시킨 후, [표 1]에 도시된 바와 같은 일정 시간 간격으로 해당 셀 파우치들의 실란트층과 배리어층 사이 박리강도를 측정하였다. 측정 시, 시료의 폭은 15mm로 하였으며, 표점 거리는 300mm로 하였고, 200mm/min의 박리 속도로 박리를 진행하였다. 이때, 박리강도가 높을수록 내전해액성이 우수한 것으로 판단하였으며, 그 결과는 하기 [표 1]에 도시된 바와 같다.

표 1

[0097]

		실시예	비교예1	비교예2	비교예3
실란트층/배리어층 박리강도 (kgf/15mm)	함침 후 24시간	◎	◎	△	△
	함침 후 48시간	◎	○	△	△
	함침 후 72시간	◎	○	△	X
	함침 후 96시간	◎	○	△	X
	함침 후 120시간	◎	△	X	X
	함침 후 144시간	◎	△	X	X
	함침 후 168시간	○	X	X	X

[0098] 우수(◎) 양호(○) 보통(△) 불만족(X)

[0099] [표 1]을 참조하면, 비교예 1 내지 3의 경우보다 실시예의 경우에 있어서 실란트층과 배리어층 사이 박리강도가 더 높았으며, 특히 실시예에 따른 셀 파우치는 함침 후 168시간 경과 시에도 층간 박리강도가 양호한 것을 확인하였다.

[0100] 따라서, 이를 통해, 접착성, 내화학성 등의 측면에서 실란트층과 배리어층 사이에 구비되는 제1 접착층의 안정성을 확보함으로써, 높은 신뢰도의 셀 파우치를 구현할 수 있음을 알 수 있다.

[0102] 셀 파우치의 내불산성 평가

[0103] 셀 파우치의 내불산성을 평가하기 위하여, 실시예 및 비교예 1 내지 3에 따라 제조된 셀 파우치들을 100mm X 100mm의 팩 형태로 제조한 후, 표준전해액(1.0M LiPF₆ in EC/DEC/EMC=1:1:1)과 물을 섞은 용액을 주입하고 주변 부를 실링(sealing)하여 75℃에서 보관하였다. 이후, [표 2] 및 [표 3]에 도시된 바와 같은 일정 시간 간격으로 해당 셀 파우치들의 실란트층과 배리어층 사이 박리강도를 측정하였다.

[0104] 이때, 상기 용액은 표준전해액 10g과 물 0.01g을 혼합한 것, 및 표준전해액 10g과 물 0.1g을 혼합한 것 두 가지를 준비하여 각각 내불산성 0.1% 테스트 및 내불산성 1% 테스트에 활용하였다. 또한, 측정 시, 시료의 폭은 15mm로 하였으며, 표점 거리는 300mm로 하였고, 200mm/min의 박리 속도로 박리를 진행하였다. 박리강도가 높을수록 내불산성이 우수한 것으로 판단하였으며, 상기 측정에 대한 결과는 하기 [표 2] 및 [표 3]에 도시된 바와 같다.

표 2

		실시예	비교예1	비교예2	비교예3
실란트층/배리어층 박리강도 (kgf/15mm)	함침 후 24시간	◎	○	△	△
	함침 후 240시간	◎	○	△	X
	함침 후 480시간	◎	△	△	X
	함침 후 720시간	◎	X	X	X
	함침 후 960시간	○	X	X	X
	함침 후 1,200시간	○	X	X	X

[0106] 우수(◎) 양호(○) 보통(△) 불만족(X)

표 3

		실시예	비교예1	비교예2	비교예3
실란트층/배리어층 박리강도 (kgf/15mm)	함침 후 24시간	◎	○	△	X
	함침 후 240시간	◎	△	△	X
	함침 후 480시간	◎	△	X	X
	함침 후 720시간	○	X	X	X
	함침 후 960시간	○	X	X	X
	함침 후 1,200시간	○	X	X	X

[0108] 우수(◎) 양호(○) 보통(△) 불만족(X)

[0109] [표 2] 및 [표 3]을 참조하면, 비교예 1 내지 3의 경우보다 실시예의 경우에 있어서 실란트층과 배리어층 사이 박리강도가 더 높았다. 특히, 불산 농도가 증가함에 따라 층간 박리강도는 다소 감소하게 되지만, 실시예의 경우 비교예 1 내지 3과는 달리, 함침 후 1,200시간 경과 시에도 여전히 양호한 층간 박리강도를 나타내는 것을 확인하였다.

[0110] 따라서, 이를 통해, 접착성, 내화학성 등의 측면에서 실란트층과 배리어층 사이에 구비되는 제1 접착층의 안정성을 확보함으로써, 높은 신뢰도의 셀 파우치를 구현할 수 있음을 알 수 있다.

[0112] 셀 파우치의 성형성 평가

[0113] 셀 파우치의 성형성을 평가하기 위하여, 실시예 및 비교예 1 내지 3에 따라 제조된 다층 필름들을 각각 150 mm X 150 mm의 크기로 재단하여 정각각형 시편을 제작하고, 40mm X 33mm 크기의 금형을 사용하여 해당 시편들을 성형하였다. 이때, 배리어층에의 크랙 발생 여부를 측정하였으며, 그 결과는 하기 [표 4]에 도시된 바와 같다.

표 4

		실시예	비교예1	비교예2	비교예3
배리어층에	크랙 발생 여부	◎	○	△	△

[0115] 우수(◎) 양호(○) 보통(△) 불만족(X)

[0116] [표 4]를 참조하면, 비교예 1 내지 3에 따라 제조된 다층 필름들보다 실시예에 따라 제조된 다층 필름들이 배리

어층에의 크랙 발생 없이 훨씬 용이하게 성형되는 것을 확인할 수 있었다.

[0117] 따라서, 이를 통해, 접착성, 내화학성 등의 측면에서 실란트층과 배리어층 사이에 구비되는 제1 접착층의 안정성을 확보함으로써, 향상된 성형성을 갖는 높은 신뢰도의 셀 파우치를 구현할 수 있음을 알 수 있다.

부호의 설명

- [0119] 10: 실란트층
 15: 제1 접착층
 20: 배리어층
 25: 제2 접착층
 30: 외층
 100: 셀 파우치

도면

도면1

100

