

## 리튬이온 2차 전지용 세퍼레이터 개발에 관한 연구

김준우, 이형춘\*, 최세현\*, 김민, 김병식

동국대학교 화학공학과, 안전공학과, \*FINEPOL(주)

## The study of separator development for Lithium-ion secondary battery

Jun-Woo Kim, Hyung-Chun Lee\*, Sae-Hyun Choi\*, Min Kim, Byoung-Sik Kim,

Department of Chemical Engineering and Safety Engineering,

Dongguk University Seoul 100-715, Korea, \*R&D Center, Finepol Engineering inc., Won-ju,

727-2

### 1. 서론

최근 휴대용 전자제품의 개발과 더불어 이차전지의 개발이 급속도로 이루어지고 있으며 전지가 차지하는 비중이 점차 높아지고 있다. 이는 휴대용 전자제품의 개발목표가 소형화, 경량화, 고성능, 고안정화에 집중되며 또한 장시간 사용을 목표로 하기 때문에 이를 가능하게 하기 위해서 전체 중량의 10-50%를 차지하는 전지내의 핵심 소재부품에 대한 성능개선이 중요한 과제로 대두되고 있다. 이러한, 전지내의 핵심 소재부품중의 하나인 미세다공성 separator는 리튬이온 2차 전지내에서 전기저항과 액체 전해질을 함유기능을 가지며, 기본적으로 정극과 부극을 격리하여, 양극의 접촉에 의한 전지의 단락을 방지할 뿐만 아니라, 전해질 혹은 이온을 통과시키는 역할을 한다. 또한, 외부단락에 의한 전지내의 온도가 급격히 상승할 때, 미세기공이 폐쇄되어, 정극과 부극을 완전히 차단시키는 안전장치의 기능을 가지는 등 전지내에서 매우 중요한 구성요소이다.

본 연구에서는 리튬이온 2차 전지용 separator 제조시 고분자 혼합물의 조성과 고분자 특유의 가소성(plasticity)을 이용하여 separator의 박막화, 슬림화 및 전지의 안정성에 관해 알아보았다.

### 2. 실험

#### 2.1. Dope solution 조제

본 실험에서 사용된 고분자 전해질은 homopolymer인 점도가 매우 높은 PVdf(Polyvinylidene fluoride-Solvay Co., solef grade)를 NMP(n-methyl-2-pyrrolidone)에 용해시킨 후 casting하여 separator를 제조하였으며, separator의 두께는 약 20 $\mu\text{m}$ 이다. 점도가 높은 polymer를 용해시 응집을 방지하기 위해 mixer의 impeller는 자전과 공전을 할 수 있도록 자체적으로 제작하였으며, 용해 후 defoaming 장치를 부착하여 기포를 제거한 후, 용해된 dope solution을 얻었다.

## 2.2. separator 제조공정

separator제조는 Coater방식을 이용하여 제작하였으며, 전처리 과정에서 일정한 온도를 유지한 상태에서 용매를 제거하였다.

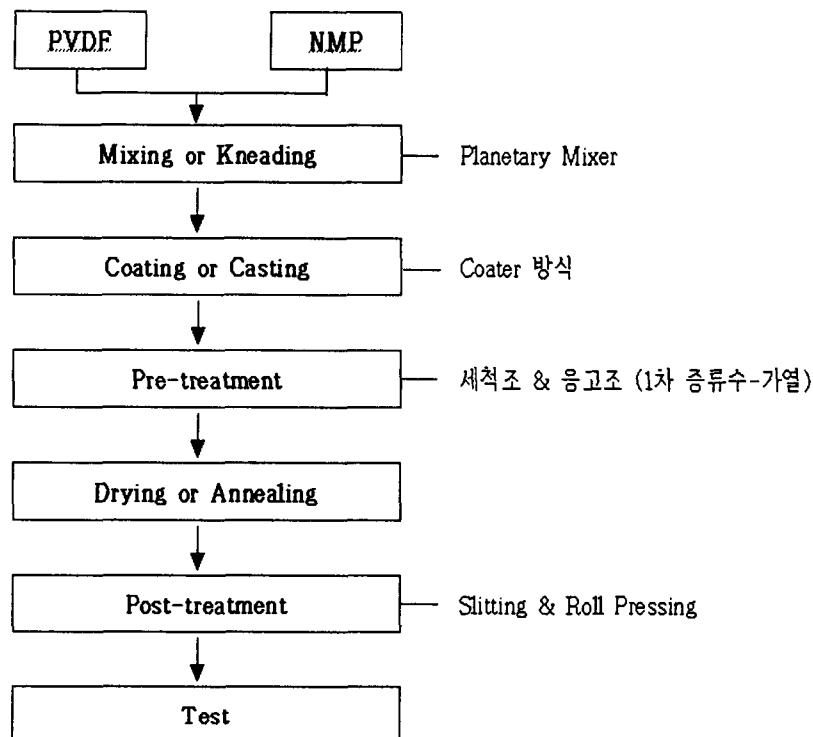


Fig 1. Schematic procedure for preparing porous polymer matrices.

## 3. 결과 및 고찰

### 3-1. 전지의 충·방전특성

Separator의 기공구조는 충·방전시 양·음으로부터의 Li이온을 통과시키는 이온경로로써 작용하기 때문에 이온만 통과할 수 있도록 작고 균일하며, 많은 기공을 갖는 것이 유리하다. 지나치게 큰 기공이 형성되면 전극표면에 Dentrite가 형성되며, 이를 저지하지 못하면 전극간에 단락이 일어나는 경우가 발생할 수 있다.

본 연구에서 제조한 Separator의 기공구조를 Porosimeter 및 SEM을 이용하여 분석한 결과를 나타내었다. Separator상에 나타난 기공구조는 그림에서 보듯이 균일하며, 평균적인 기공의 크기는  $0.09\sim0.11\mu\text{m}$ 정도로 균일하게 pore가 분포되어 있으며, 그림에서 보듯이 Separator내의 pore의 분포가 치밀하게 분포되어 있으므로 Battery의 충·방전특성이 원활히 이루어짐을 알 수 있다.

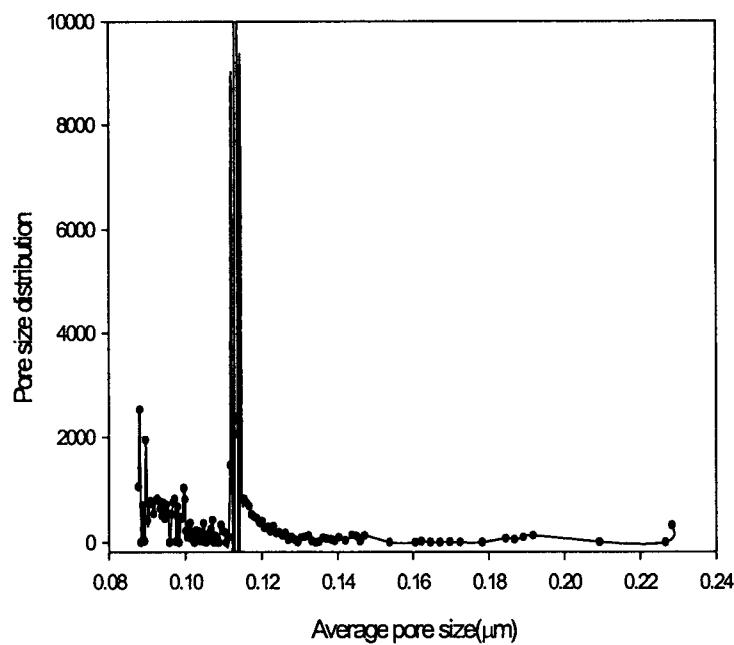


Fig 3.1. Pore size distribution of Separator measured by Porometer.

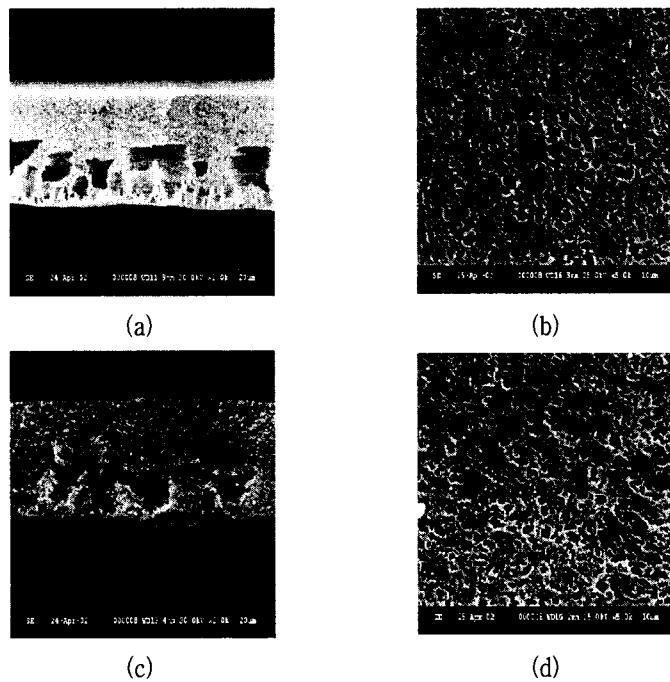


Fig 3.2. SEM photograph of porous polymer matrices, for (a) separator cross section(2k), (b) magnified separator surface(5k) was roll pressing before (c) cross section(5k), (d) magnified surface(5k) was roll pressing after.

### 3-4. 전지의 열화에 대한 안전성

전지의 과충전 및 내부단락에 의해 전지의 이상 고온 상승으로 인하여 separator의 팽창, 열화 등으로 이완과 수축이 일어나면 전해질이 감소하고 battery내의 물질이동 공정에 영향을 미치며 성능저하를 가져다 주며, 극판이 서로 접촉하게 되며 내부 short가 발생하여 발화의 위험성으로 인한 안전성 문제가 발생할 수 있다.

본 실험에서는 온도변화에 의한 separator의 수축정도를 알아보았다. 제조된 LIB(Lithium ion 2nd battery)용 separator에 대한 roll pressing 전과 roll pressing 후의 관계에 대한 실험은 다음과 같다. table에서 보는 바와 같이 roll pressing 전보다 roll pressing 후의 수축율이 더 작아졌음을 알 수 있다. 이러한 이유는 그림에서 보여지듯이 roll pressing 이후가 separator의 surface & cross section이 치밀한 구조를 가지고 있으며, 수축이 거의 없는 것을 알 수 있다.

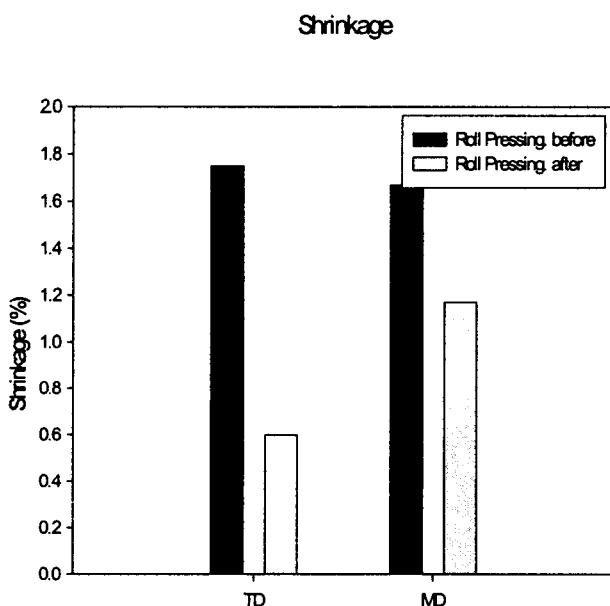


Fig 3.3. Variation of shrinkage of separator at 80°C, during 30min.

### 4. 참고문헌

1. Douglas R. Lloyd, Sung Soo Kim, Kevin E. Kinzer, *J. Memb. Sci.*, **64** (1991), pp 1-11.
2. F. Coowar et al. *J. Power Sources*, **179-186** (1996).
3. P. K. Gallagher, J. B. MacChesney, and D. N. E. Buchanan, *J. Chem. Phys.*, **45**, 2466 (1996)
4. B. E. Fenton, J. M. Parker and P. V. Wright, *Polymer*, Vol 14 p. 589, (1973)
5. M. Alamgir and K. M. Abraham, *J. Electrochem. Soc.*, Vol. **140**, No. 6, L96(1993)