

출원번호통지서

출원일자 2024.09.23
특기사항 심사청구(무) 공개신청(무) 참조번호(11992)
출원번호 10-2024-0128223 (접수번호 1-1-2024-1034713-21)
(DAS접근코드EE3F)
출원인명칭 연세대학교 산학협력단(2-2005-009509-9)
대리인성명 특허법인 충현(9-2010-100021-9)
발명자성명 이상영 정윤석 오경석 송용배 오세중 장보영
발명의명칭 복합 고분자 중간층이 도입된 황화물 기반 전고체전지용 전극

특허청장

<< 안내 >>

1. 귀하의 출원은 위와 같이 정상적으로 접수되었으며, 이후의 심사 진행상황은 출원번호를 이용하여 특허로 홈페이지(www.patent.go.kr)에서 확인하실 수 있습니다.
2. 출원에 따른 수수료는 접수일로부터 다음날까지 동봉된 납입영수증에 성명, 납부자번호 등을 기재하여 가까운 은행 또는 우체국에 납부하여야 합니다.
※ 납부자번호 : 0131(기관코드) + 접수번호
3. 귀하의 주소, 연락처 등의 변경사항이 있을 경우, 즉시 [특허고객번호 정보변경(경정), 정정신고서]를 제출하여야 출원 이후의 각종 통지서를 정상적으로 받을 수 있습니다.
4. 기타 심사 절차(제도)에 관한 사항은 특허청 홈페이지를 참고하시거나 특허고객상담센터(☎ 1544-8080)에 문의하여 주시기 바랍니다.
※ 심사제도 안내 : <https://www.kipo.go.kr>-지식재산제도

【서지사항】

【서류명】 특허출원서

【참조번호】 11992

【출원구분】 특허출원

【출원인】

【명칭】 연세대학교 산학협력단

【특허고객번호】 2-2005-009509-9

【대리인】

【명칭】 특허법인 총현

【대리인번호】 9-2010-100021-9

【지정된변리사】 김성수, 양진, 손성철

【포괄위임등록번호】 2010-014981-7

【발명의 국문명칭】 복합 고분자 중간층이 도입된 황화물 기반 전고체전지용 전극

【발명의 영문명칭】 Electrode having composite polymer interlayers for sulfide-based all solid-state batteries

【발명자】

【성명】 이상영

【성명의 영문표기】 LEE, Sang-Young

【주민등록번호】 681215-1XXXXXX

【우편번호】 03722

【주소】 서울특별시 서대문구 연세로 50, GS칼텍스산학협력관 207호
(신촌동, 연세대학교)

【발명자】

【성명】 정윤석

【성명의 영문표기】 JUNG, Yoon Seok

【주민등록번호】 781116-1XXXXXX

【우편번호】 03722

【주소】 서울특별시 서대문구 연세로 50, GS칼텍스산학협력관 302호
(신촌동, 연세대학교)

【발명자】

【성명】 오경석

【성명의 영문표기】 OH, Kyeong-Seok

【주민등록번호】 941202-1XXXXXX

【우편번호】 03722

【주소】 서울특별시 서대문구 연세로 50, GS칼텍스산학협력관 406호
(신촌동, 연세대학교)

【발명자】

【성명】 송용배

【성명의 영문표기】 SONG, Yong Bae

【주민등록번호】 940312-1XXXXXX

【우편번호】 03722

【주소】 서울특별시 서대문구 연세로 50, GS칼텍스산학협력관 407호
(신촌동, 연세대학교)

【발명자】

【성명】 오세중

【성명의 영문표기】 OH, Sejung

【주민등록번호】 990726-1XXXXXX

【우편번호】 03722

【주소】 서울특별시 서대문구 연세로 50, GS칼텍스산학협력관 406호
(신촌동, 연세대학교)

【발명자】

【성명】 장보영

【성명의 영문표기】 JANG, Boyeong

【주민등록번호】 000919-4XXXXXX

【우편번호】 03722

【주소】 서울특별시 서대문구 연세로 50, GS칼텍스산학협력관 407호
(신촌동, 연세대학교)

【출원언어】 국어

【이 발명을 지원한 국가연구개발사업】

【과제고유번호】 미부여

【과제번호】 RS-2024-00343349

【부처명】 과학기술정보통신부

【과제관리(전문)기관명】 한국연구재단

【연구사업명】 중견연구자지원사업

【연구과제명】 유동특성 다중금속 음극 기반 상온작동 소동 전고체전지

【과제수행기관명】 연세대학교 산학협력단

【연구기간】 2024. 05. 01 ~ 2025. 04. 30

【이 발명을 지원한 국가연구개발사업】

【과제고유번호】 미부여

【과제번호】 2022M3J1A1085397

【부처명】 과학기술정보통신부

【과제관리(전문)기관명】 한국연구재단

【연구사업명】 원천기술개발사업

【연구과제명】 전지설계기반 600Wh/L급 EV용 대면적 전고체 전지 브릿지
기술 개발

【과제수행기관명】 연세대학교 산학협력단

【연구기간】 2024. 01. 24 ~ 2025. 01. 23

【이 발명을 지원한 국가연구개발사업】

【과제고유번호】 미부여

【과제번호】 RS-2024-00344021

【부처명】 과학기술정보통신부

【과제관리(전문)기관명】 한국연구재단

【연구사업명】 중견연구자지원사업

【연구과제명】 이차전지 전해질 재구조화를 위한 전하배위 텍토닉 설계

【과제수행기관명】 연세대학교 산학협력단

【연구기간】 2024. 05. 01 ~ 2025. 04. 30

【임시 명세서】 제출

【취지】 위와 같이 특허청장에게 제출합니다.

대리인 특허법인 총현 (서명 또는 인)

【수수료】

【출원료】 0 면 46,000 원

【가산출원료】 1 면 0 원

【우선권주장료】 0 건 0 원

【심사청구료】 0 항 0 원

【합계】 46,000원

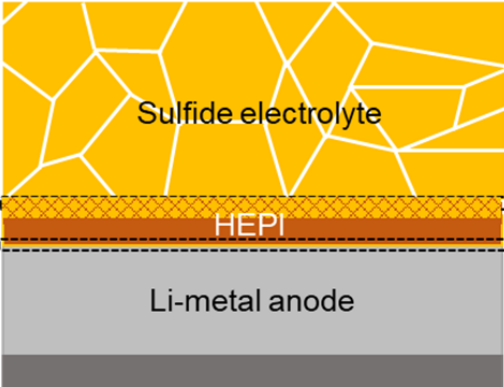
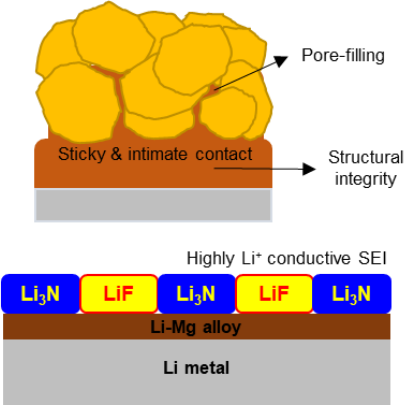
【감면사유】 전담조직(50%감면)[1]

【감면후 수수료】 23,000 원

2024-09-23

【임시명세서】

[임시 명세서 파일 첨부\(\[DP-2024-1162\]임시명세서\(HPC11992\).pdf\)](#)

발명 설명서		
1. 발명의 명칭	한글	복합 고분자 중간층이 도입된 황화물 기반 전고체전지용 전극
	영문	Electrode having composite polymer interlayers for sulfide-based all solid-state batteries
2. 도면의 간단한 설명	<div style="display: flex; justify-content: space-around; align-items: flex-start;">   </div> <p>그림. 고에너지 밀도를 위한 황화물 전해질과 리튬금속 사이 긴밀한 접촉과 안정한 계면을 형성하여 황화물 전해질 전고체 리튬금속전지의 안정화를 도모하는 그림</p>	
3. 발명(고안)의 상세한 설명	<p>[발명의 목적]</p> <p>3.1 발명이 속하는 기술분야</p> <p>본 발명은 고에너지밀도 리튬금속전지의 리튬금속음극과 황화물 전해질 간 비적합성을 개선하기 위해 리튬금속 사이 긴밀한 접촉과 안정한 계면을 형성하는 고분자 제조 방법 및 이를 포함하는 리튬금속전지에 관한 것임.</p> <p>3.2 그 분야 종래기술의 설명 및 문제점</p> <p>전고체 리튬금속전지는 리튬금속의 높은 이론 용량 (3861 mAh g^{-1})과 낮은 산화환원전위 ($-3.04 \text{ V vs. Standard hydrogen electrode}$)와 안전성으로 인해 차세대 전지로 각광받고 있음. Argyrodite-type $\text{Li}_6\text{PS}_5\text{Cl}$로 대표되는 황화물 고체전해질은 높은 이온전도도, 난연성, 연성을 가지는 기계적물성을 가지는 가장 유망한 후보군임.</p> <p>그러나, 황화물 전해질의 리튬금속과의 (전기)화학적 불안정성과 물리적으로 불충분한</p>	

접촉, 본질적인 공극을 통한 불균일한 이온 흐름, 전류밀도로 인한 리튬 수지상 성장이 일어나고 그로 인한 실질적인 전지 구동이 어려운 상태임. 그에 따라 계면에서의 문제점을 해결하기 위해 다중층 전해질, 표면 코팅 등 다양한 방법을 시도하고 있지만, Solid electrolyte interphase (SEI) layer 형성에 대한 고려의 부재, 복잡하고 높은 비용이 드는 공정과정으로 인해 실질적인 저압구동 전고체전지의 개발이 어려운 상태임.

3.3 발명이 이루고자 하는 기술적 과제 (발명의 목적)

본 발명은 높은 엔트로피를 가지는 고분자 중간층을 활용하여 황화물과의 긴밀한 접촉, 리튬 수지상 성장을 억제, 계면에서의 빠른 리튬이온을 가능하게 하는 다양한 성분의 SEI를 형성하여 실질적인 황화물 전해질 전고체 리튬금속전지를 구동할 수 있도록 하는데 그 목적이 있음.

[발명의 구성]

3.4 발명의 구성 및 작용

가) 과제를 해결하기 위한 수단

1) Soft한 고분자 매트릭스 도입을 통한 긴밀한 계면접촉 형성 (공정성, 저압구동, 리튬이온 이동)

2) 높은 엔트로피를 가지는 고분자 매트릭스 도입을 통한 황화물과의 반응성 억제, 안정한 SEI 형성 (리튬 수지상 성장 억제, 계면에서의 빠른 리튬이온 이동)

리튬염의 함량을 조절하여 황화물과의 반응성 억제, 또한 이온 클러스터 형상을 촉진하고 음극 계면에서의 음이온 배위상태를 조정함. 이를 통해 계면 전하전달저항을 더욱 개선함.

구성성분의 높은 엔트로피를 통한 환원전위 변화로 인해 Inorganic-rich (특히, LiF, Li₃N-rich)한 Robust하고 또한 계면에서의 리튬이온의 빠른 이동을 가능하게 하는 Solid electrolyte interphase (SEI) layer 형성을 가능하게 함.

나) 기능 및 작용

- 1) Soft한 고분자 중간층 도입에 의한 황화물 전해질과의 긴밀한 접촉을 통한 공극 제어, 물리적인 계면저항 감소로 인한 황화물 전해질 내부를 향한 리튬 수지상 성장을 억제함.
- 2) 리튬염의 함량을 증가시켜 황화물과의 반응성 억제, 1차 배위구조 내 포함된 음이온의 비율을 증가시킴. 이로 인해 Li^+ 배위에너지가 감소하며 (*Nat. Commun.* 2024, 15, 1319) 음극 계면에서의 전기적인 반발을 통해 리튬이온의 탈배위가 용이해짐 (*Nat. Energy* 2021, 6, 303-313). 이를 통해 계면 전하전달저항이 감소하여 리튬 수지상 성장이 억제됨.
- 3) 구성성분의 높은 엔트로피를 통한 환원전위 변화로 인해 Inorganic-rich (특히, LiF , Li_3N -rich)한 Robust하고 또한 계면에서의 리튬이온의 빠른 이동을 가능하게 하는 Solid electrolyte interphase (SEI) layer 형성을 가능하게 함.

다) 실시예

<황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층 전구체>

용매 (Dimethoxy ethane (DME)), 리튬염 (Lithium bis(fluorosulfonyl)imide (LiFSI)), 단량체 (Trimethylolpropane ethoxylate triacrylate (ETPTA)), 첨가제 (Magnesium nitride (Mg_3N_2), 개시제 (2-Hydroxy-2-methylpropiophenone) (HMPP))를 11 m LiFSI in DME/ETPTA (= 85/15, w/w) + 10 wt.% Mg_3N_2 로 혼합하여 전구체 용액을 제조함

<황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층을 포함한 리튬금속전지>

위 전구체 용액을 리튬금속 위에 주입한 후 Spin coating을 500rpm, 10초 1000rpm 10 초, 2000rpm 10 초, 3000rpm 10 초, 4000rpm 10 초, 5000rpm 10 초, 8000rpm 60 초 회전시켜줌. 그 이후 UV 가교를 60초간 진행한 후 형성된 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층을 포함한 리튬금속전지를 제작함.

[발명의 효과]

리튬금속전지의 고질적인 문제점인 리튬금속과 전해질 간 반응성과 실질적 적용을 위한 공정성을 모두 복합 고분자 중간층을 채택함. 높은 엔트로피를 가지는 고분자 중간층을 활용하여 황화물과의 긴밀한 접촉, 리튬 수지상 성장을 억제, 계면에서의 빠른 리튬이온

	<p>을 가능하게 하는 다양한 성분의 SEI를 형성하여 실질적인 황화물 전해질 전고체 리튬금속전지를 구동함</p>
<p>4. 특허청구범 위</p>	<p>4.1 청구항 1</p> <p>단량체, 액체전해질(용매, 리튬염), 첨가제를 포함하며, 합금 반응을 하는 첨가제로 이루어진 복합 고분자 전해질 전구체.</p> <p>4.2 청구항 2</p> <p>제 1항에 있어서,</p> <p>상기 고분자는 액체전해질, 첨가제와 단량체가 포함된 광경화성 조성물로부터 중합된 것인, 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층</p> <p>4.3 청구항 3</p> <p>제 1항에 있어서,</p> <p>상기 고분자 중간층은 고농도의 리튬염이 도입된 것인, 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층.</p> <p>4.4 청구항 4</p> <p>제 1항에 있어서</p> <p>상기 리튬염은 Lithium bis(fluorosulfonyl)imide (LiFSI)을 포함하는 것인, 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층.</p> <p>4.5 청구항 5</p> <p>제 2항에 있어서</p> <p>상기 열경화성 조성물 전체 몰 함량 대비 리튬염의 몰랄 함량의 비율은 용매대비 11 몰랄농도를 포함하는, 고분자.</p> <p>4.6 청구항 6</p>

제 1항에 있어서

상기 고분자 중간층의 상온 이온전도도는 5.6×10^{-4} 이며 양이온 수율은 0.6인 것인 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층

4.7 청구항 7

제 1항에 있어서

상기 고분자 중간층의 두께는 $1\mu\text{m}$ 이하로 구성될 수 있는 것인, 황화물 기반 전고체 전지용 복합 고분자 중간층

4.8 청구항 8

제 1항에 있어서

상기 고분자 중간층의 기계적 물성은 200MPa의 탄성 모듈러스를 가지는 것인, 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층

4.9 청구항 9

제 1항에 있어서

상기 고분자 중간층은 다양한 첨가제를 포함할 수 있는 것인 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층

4.10 청구항 10

제 1항에 따른 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층을 포함하는 것인, 리튬 금속전지.

4.11 청구항 11

제 10항에 있어서

상기 리튬금속전지는 다양한 양극재를 포함할 수 있는 것인, 리튬금속전지.

4.12 청구항 12

제 11항에 있어서

상기 양극재는 리튬인산철, 리튬코발트산화물, 리튬-니켈-코발트-망간 복합산화물을 포함하는 것인, 양극재.

4.13 청구항 13

제 1항에 따른 황화물 기반 전고체전지용 복합 고분자 중간층이 포함된 리튬금속전지의 제조방법.