

폴리로택산 고분자 기반 이차전지 실리콘 전극의 과도 부피팽창 제어

여태민, 오승수 | 포항공과대학교(POSTECH) 신소재공학과 (E-mail: seungsoo@postech.ac.kr)

이차전지의 폭발적 수요와 함께 고용량 전지의 구현이 가능한 실리콘 음극물질이 큰 주목을 받고 있다. 한국과학기술원 최장욱 교수팀(現 서울대학교)은 소량의 폴리로택산을 이용하여 실리콘 음극의 고질적 문제인 과도한 부피팽창을 효과적으로 제어할 수 있는 체계를 구축하였다. 이러한 연구를 통해 이차전지의 획기적 충·방전 수명 증진이 기대되고, 실리콘 음극 기반의 고용량 이차전지의 상용화가 앞당겨질 수 있을 것으로 전망된다.

전 기자동차에 대한 수요와 관심이 폭발적으로 늘어난데 따라 동력원으로서 고용량 이차전지의 필요성이 크게 대두되고 있다. 이에 따라 기존 흑연 음극물질의 상대적 낮은 이론 용량(372 mAh/g)의 극복을 위해 실리콘 음극물질(4,200 mAh/g)이 새로운 대안으로 떠오르고 있다. 그러나 충·방전 시 실리콘 음극의 과도한 부피팽창(320%)은 이차전지의 짧은 수명과 직결됨에 따라, 실리콘 음극 기반의 고용량 이차전지 실용화는 이에 대한 해결책을 앞서 요구하고 있다.

이에 최장욱 교수 연구팀은 '폴리로택산의 고리 미끄러짐 현상'을 이용해 부피팽창을 효과적으로 제어할 수 있는 새로운 바인더 시스템을 고안하였다. 폴리로택산은 긴 폴리머체인(폴리에틸렌글리콜)에 여러 개의 고리(α -사이클로텍스트린)를 꿰어 놓은 분자집합체이다. 음극재의 물리적 고정 역할만을 수행하던 기존의 고분자 바인더(폴리아크릴산)에 폴리로택산 고

리들을 직접 연결하여, 고리들이 통과하는 체인의 역동적 미끄러짐을 통해 효율적 힘의 분산을 유도했다. 바인더와 바인더 사이에 연결된 폴리로택산의 고리들과 폴리머체인이 마치 움직도르래처럼 작용하여, 응력 분산을 통해 과도한 부피팽창을 제어하는 전략이다.

연구팀은 이 구조가 실리콘 음극재의 부피팽창으로 인한 이차전지의 결함을 기계적, 전기화학적 측면에서 효율적으로 막아낼 수 있음을 확인하였다. 기계적 측면에서 기존의 바인더보다 작은 응력이 작용해 응력이 효율적으로 분산되고 있음을 확인하였고, 신축의 반복에 있어서 기존 바인더에 비해 월등한 구조 회복율을 보임을 입증하였다. 또한 전기화학적 측면에서 전해질과 실리콘 음극 사이에 형성되는 계면층의 생성량이 작은 부피팽창을 갖는 흑연 음극(10%)의 수준으로 생성됨이 확인되었다. 이를 통해 이 구조가 실리콘 음극의 부피팽창을 효과적으로 막아 박리 현상을 최소화하고, 전지 수명을 향상시키는 신뢰성 높은 고분자 바인더로 적용될 수 있음이 확인되었다.

본 연구는 폴리로택산 분자기계의 미시적 분자 거동을 이용하여 이차전지 음극재의 거시적 부피팽창을 제어한 혁신적 시도이다. 폴리로택산 고리의 미끄러짐 현상을 이용한 일종의 움직도르래의 메커니즘으로, 전체 계에 힘을 분산시켜 실리콘 음극의 과도한 부피변화를 효율적으로 대처하였다. 높은 용량을 갖는 실리콘 음극의 활용은 단순 전지 용량의 증가를 넘어, 전지 내 필요한 음극의 부피를 획기적으로 줄일 수 있다는 점에서 기대를 모으고 있다, 이에 따라 동일 전지 내 양극의 부분을 늘릴 수 있어 이차전지의 에너지 밀도 증가에도 큰 역할을 할 것으로 전망된다.

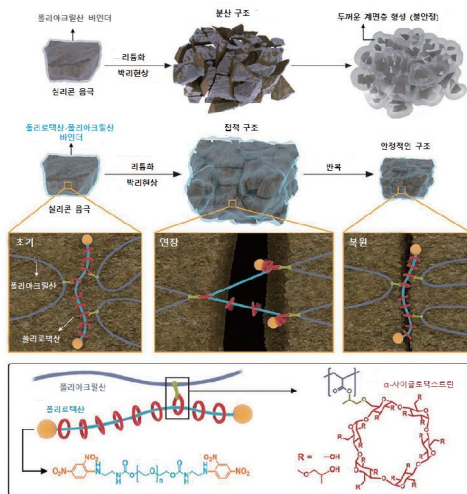


그림 1. 폴리로택산 바인더 기반 실리콘 음극 응력완화 메커니즘.

본 연구결과는 저널 *Science*에 "Highly elastic binders integrating polyrotaxanes for silicon microparticle anodes in lithium ion batteries"이라는 제목으로 2017년 7월에 게재되었다(DOI: 10.1126/science.aal4373).