중합유도상분리를 통한 엘라스토머 고체전해질 개발

구강희 | 울산과학기술원 에너지화학공학과 (E-mail: kangheeku@unist.ac.kr)

전고체전지는 이차전지에 사용되는 휘발성이 높은 액체 전해질을 고체로 대체한 것으로, 현재 상용화된 전지에 비해 에너지밀도를 획기적으로 향상할 수 있어 대용량 충전 및 고안정성을 가지는 고체 전해질을 개발하기 위한 연구가 활발히 진행되고 있다. 그 중에서도 고분자 기반의 고체전해질은 원료의 낮은 가격 및 저온 대량 생산 공정 등의 이점을 가진 반면, 상온에서의 낮은 이온전도도로 인해 전지 충/방전 시 안정성이 낮다는 한계점을 가지고 있다. KAIST의 김범준 교수와 Georgia Tech의 이승우 교수 연구팀에서는 상온에서 리튬 이온의 전도도 및 기계적 신축성이 뛰어난 엘라스토머 형태의 고분자 전해질을 개발하여 이를 전고체전지에 적용하였다.

고체전지에 활용되는 고체전해질은 고분자, 산화물, 황화물 기반의 형태로 개발되고 있으며 그 중에서도 고분자 기반의 고체전해질은 가볍고 유연하여 Roll-to-Roll 공정이 가능하고, 제조원가가 낮을 뿐 아니라 저온에서 대량생산 공정이 가능하다. 하지만 낮은 이온전도도(10⁻⁵~10⁻⁶ S/cm)와 기계적 안정성의 한계점으로 인해, 고분자 매트리스 내 유/무기 필러를 첨가하는 등 이를 개선하기 위한 다방면의 연구가 진행되고 있다.

KAIST의 김범준 교수와 Georgia Tech의 이승우 교수 연구팀에서는 중합유도 상분리(polymerization-induced phase separation, PIPS)법을 통해 이온 전도성이 낮은 엘라스토머 내부에 플라스틱 결정을 3차원적으로 연결시킴으로써 고이온전도성 채널을 제조하였다. Butyl acrylate(BA)와 poly(ethylene glycol) diacrylate(PEGDA)를 이용하여 가교된 PEGDA

엘라스토머 네트워크를 가지는 동시에 succinonitrile-lithium bis(trifluoromethanesulfonyl)imide(SN-LiTFSI) 상이 나노스케일의 도메인을 형성하였다. 그 결과 상온에서 뛰어난 이온전도도(1.1 mS/cm, Li-ion transference number = 0.75)를 가질 뿐 아니라 엘라스토머의 신축성으로 인해 Li 덴드라이트의 성장을 억제하여 전지 충/방전 안정성을 개선할 수 있었다. 나아가 개발된 고분자전해질은 LiNi $_0.83$ $Mn_{0.06}Co_{0.11}O_2(NMC-83)$ 로 구성된 전고체 전지에서 4.5 V이상의 높은 전압에서도 안정적인 구동을 보였으며, 410 Wh/kg의 높은 에너지밀도를 가지는 전고체 전지를 구현하였다.

해당 연구 결과는 엘라스토머 전해질이라는 기존과 차별화된 새로운 종류의 고체전해질을 개발함으로써 기존의 고체전해질이 가지는 문제점을 획기적으로 개선하여 전고체전지의 수명과 에너지밀도를 높일 수 있는 혁신적인 기술로 전고체전지의 발전 및 상용화에 크게 이바지할 것으로 기대된다.

본 연구결과는 *Nature*에 "Elastomeric electrolytes for high-energy solid-state lithium batteries"의 제목으로 2022년 1월에 게재되었다 (DOI: 10.1038/s41586-021-04209-4).

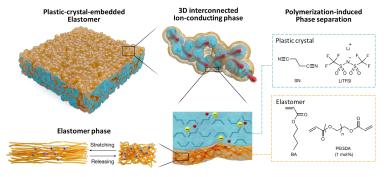


그림 1, 엘라스토머 기반 고체전해질 모식도:엘라스토머 내부 플라스틱 결정으로 인한 고이온전도성 채널 형성.