

산학연 연구실 소개(1)

인하대학교 고분자공학과 고분자 에너지 소재 연구실

(Polymeric Energy Materials (PEM) Lab., Inha University)

주소: 인천광역시 미추홀구 인하로 100 인하대학교 고분자공학과 (2호관 북) (우: 22212)

전화: 032-860-7485, E-mail: uhyeok@inha.ac.kr

홈페이지: <https://uhyeok.wixsite.com/mysite>

연구책임자 | 최우혁 교수
인하대학교 고분자공학과

1. 연구실 소개

1970년대 리튬 이온 전지의 등장 이후 전자기기, 전기차, 재생 에너지 산업의 발전과 함께 에너지 저장 기술은 많은 주목을 받으며 성장해왔다. 특히, 리튬 금속 전지는 기존 리튬 이온 전지의 음극 물질인 흑연을 리튬 금속으로 대체함으로써 에너지 밀도를 비약적으로 향상시킨 차세대 전지로 주목받고 있다. 그러나 리튬 금속을 음극 물질로 직접 사용할 시, 충 방전 과정에서 심각한 리튬 수지상이 발생하여 결국 양 전극 간의 단락을 유발하고 배터리의 성능 저하 및 열화를 초래한다는 한계가 있다. 한편 또 다른 에너지 저장 장치로 각광받는 슈퍼커패시터는 높은 출력 특성에도 불구하고, 상대적으로 낮은 에너지 저장 용량을 극복해야 하는 과제가 남아 있다.

2016년에 설립된 “고분자 에너지 소재 연구실”은 차세대 에너지 저장 시스템의 핵심 소재로 주목받는 이온 전도성 고분자를 기반으로, 앞서 언급된 리튬 금속 전지와 슈퍼커패시터가 지닌 근본적인 한계를 해결하기 위한 연구를 수행하고 있다. 이를 위해 본 연구실은 배터리를 구성하는 전극, 전해질, 분리막 세 가지 핵심 구성요소에 고분자 소재를 적용함으로써, 에너지 밀도와 안정성을 높일 수 있는 다양한 혁신적 소재 설계 전략을 개발해왔다. 전해질 중심 연구에서는 이온 수송, 계면 안정성, 기계적 강도 향상 등 다각적인 측면에서 분자 수준의 전해질 구조 설계를 수행하여, 이온전도도와 리튬 금속의 안정성을 크게 개선하였다. 또한, 고분자 전해질을 전극 바인더로 확장 적용함으로써 전해질-전극 간 접착력을 강화하고 계면 저항을 감소시켜, 전극 구조의 안정성과 전지의 고출력·고에너지밀도 구동 특성을 확보하였다. 분리막 연구에서는 무기 필러 도입을 통해 기계적 강도를 향상시키고, 양쪽성 이온의 도입으로 이온 전도 특성을 극대화하였다. 이러한 연구 성과를 바탕으로, 고이온전도성·고안전성·고기계적 안정성을 동시에 만족하는 차세대 전고체전지용 고분자 소재 기술의 기반을 확립하였다.

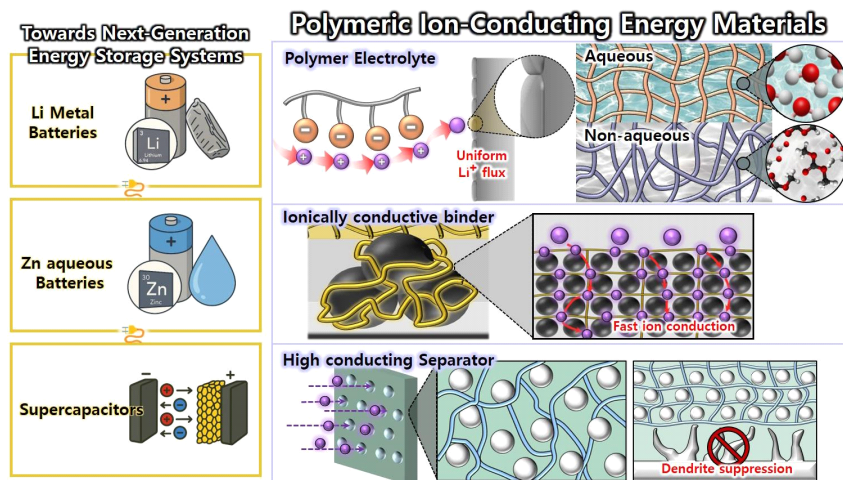


그림 1. ‘고분자 에너지 소재 연구실’의 주요 연구 분야.

2. 주요 연구 분야

2.1 이온-앵커링 다중 브리지 복합 탄성 고분자 전해질 및 전극용 바인더 설계

엘라스토머 전해질은 우수한 유연성과 신축성을 지녀 전극과의 밀착을 안정적으로 유지하며, 그 결과 낮은 계면 저항을 구현할 수 있다. 또한 리튬 도금 및 박리 과정에서 발생하는 리튬 금속의 부피 변화를 가역적으로 흡수하여, 전극과 전해질 간의 물리적 분리로 인한 불안정한 계면 형성을 효과적으로 억제한다. 이러한 장점에도 불구하고, 엘라스토머 전해질은 여전히 낮은 이온전도도, 낮은 리튬 이온 전달수, 불충분한 기계적 강도, 그리고 낮은 산화 안정성 등 여러 한계를 지닌다. 이러한 제약은 고전류 구동 시 성능 저하와 장기 안정성 감소로 이어져, 고에너지 밀도의 리튬 금속 전지 실용화를 어렵게 한다.

이러한 문제를 해결하기 위해, 본 연구에서는 이온-회전 쌍극자 및 이온-앵커링 쌍극자 상호작용을 동시에 도입한 다중 브리지 구조의 복합 엘라스토머 전해질(CEE)을 설계하였다. CEE는 탄성 고분자 매트릭스, 깊은 공유 전해질, Al_2O_3 나노와이어, 그리고 FEC 첨가제로 구성된다. 고분자 매트릭스인 BACOEa는 우레탄 결합 내 N-H기와 TFSI⁻ 음이온 간의 수소결합을 통해 음이온 이동을 억제하고, Fumaronitrile은 고분자 사슬에 공유 결합된 nitrile기를 통해 이온-앵커링 쌍극자 상호작용을 형성하여 Li⁺의 안정적 용해와 이동 경로를 제공한다. 또한 깊은 공유 용매 내의 succinonitrile은 자유 회전 가능한 nitrile기를 지녀 이온-회전 쌍극자 상호작용을 유도함으로써 Li⁺ 전도도와 계면 안정성을 향상시킨다. 이와 같은 다중 결합 구조를 통해 용매화와 전도가 동시에 촉진되어, 높은 이온전도도($1.7 \text{ mS} \cdot \text{cm}^{-1}$),

높은 리튬 이온 전달수(0.72), 넓은 안정창(4.9 V)을 달성하였다. 또한 균일한 Li⁺ 플렉스를 유지하여 900시간 이상 안정적인 리튬 도금/박리 거동을 구현했다. 이 전해질 기반 바인더를 적용한 복합 엘라스토머 전극은 기존 PVDF 바인더의 낮은 Li⁺ 전도성과 낮은 계면 접착력 문제를 극복하였다. 전해질과 바인더 기능을 통합한 다기능 복합 고분자 소재 설계 전략을 제시함으로써, 보다 안전하고 고성능의 차세대 리튬 금속전지 실현 가능성을 제시하였다.

2.2 균일한 Li⁺ 플렉스를 위한 불소화 양쪽성 이온 기반 단일 이온 고분자 전도체 개발

리튬 수지상 형성의 주원인으로는 농도 분극, 전극/전해질 계면의 높은 저항, 불균일한 Li⁺ 플렉스, 불안정한 SEI 층 형성 등이 있다. 이러한 문제를 해결하기 위한 첫 번째 접근법으로, 음이온을 고분자 주쇄에 고정된 단일 이온 전도체가 활용된다. 이 시스템은 음이온의 이동을 억제함으로써 Li⁺의 선택적 전하 수송을 향상시키는 장점이 있으나, 상온에서 Li⁺ 해리도와 이온 전도도가 낮다는 한계를 지닌다. 두 번째 접근법은 전해질의 기계적 강성을 증가시켜 수지상 성장을 물리적으로 억제하는 방법이다. 전해질이 충분히 높은 기계적 강성을 가질 경우, 그 자체의 물리적 강성에 의해 리튬 수지상 성장이 효과적으로 억제될 수 있다.

이에 본 연구에서는 실리카 프레임워크를 기반으로 단일 이온 전도체, 양쪽성 이온 및 불소화 단량체를 동시에 도입함으로써, 단일 이온 전도체에 의해 리튬 수지상 형성의 근본적 원인을 차단함과 동시에 그것의 가장 큰 단점인 낮은 이온 전도도를 극복할 수 있는 새로운 접근법을 제시한다. 먼저, 실리카는 특유의 높은 기계적 강도와 함께 견고한

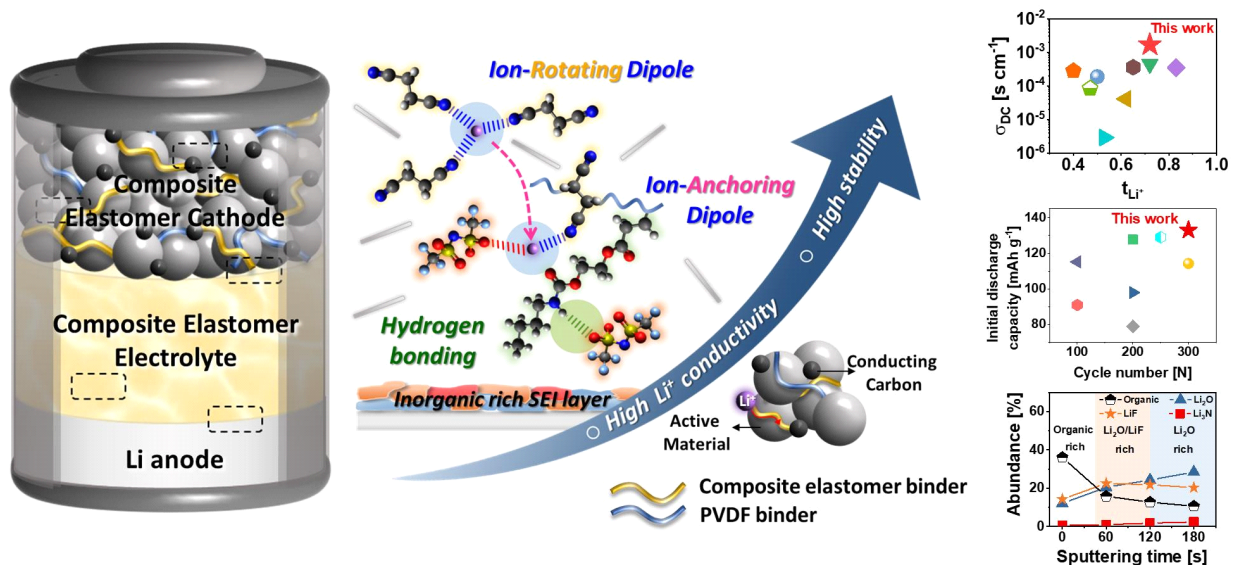


그림 2. 이온 앵커링 다중 브리지 탄성 고분자 전해질/바인더 시스템.

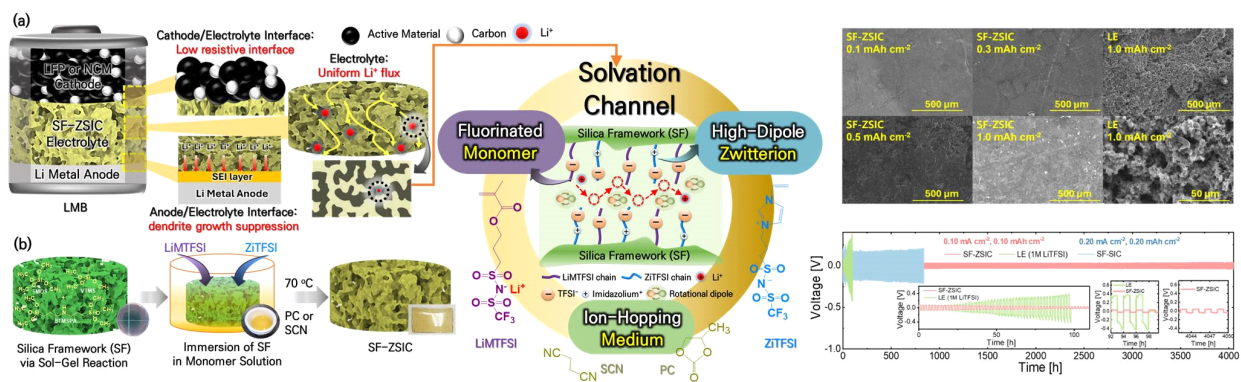


그림 3. 실리카 필러에 단일 이온 전도체, 양쪽성 이온, 불소 단량체를 도입한 고분자 전해질 내 원활하고 균일한 리튬 이온의 이동 모식도.

3차원 프레임워크 내에 연속적인 이온 전도 채널을 형성할 수 있다. 이를 통해 Li^+ 의 이동 및 확산을 향상시키며, 높은 탄성 계수를 통해 리튬 수지상 성장을 물리적으로 차단할 수 있다. 그 다음으로 양쪽성 이온은 한 분자 내에 양전하와 음전하를 동시에 갖는 구조로 높은 쌍극자 모멘트를 지니 이를 통해 Li^+ 의 해리를 촉진시키고 결과적으로 Li^+ 전도도가 향상되어 농도 분극 억제에 기여한다. 마지막으로 불소 단량체는 리튬 금속 표면에서 LiF 가 풍부한 전극 전해질 계면층의 형성 유도에 핵심적인 역할을 하여 수지상 성장을 억제하고, Li^+ 과의 약한 결합 특성으로 인해 빠른 Li^+ 이동 및 리튬 금속 표면에서의 균일한 리튬 증착을 가능하게 한다. 이와 같이 형성된 전해질은 높은 이온 전도도($8.8 \times 10^{-4} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$), 높은 리튬 이온 전달수($t_{\text{Li}^+} = 0.83$), 높은 산화 안정성(5.2 V), 그리고 우수한 기계적 강도(0.9 GPa)를 나타내며, 결과적으로 리튬 수지상 형성을 효과적으로 억제하고 안정적인 장기 충·방전 특성을 보인다.

2.3 중합 가능한 단량체 기반 동적 네트워크 가능 고분자 전해질 연구

실제 고분자 전해질 응용 단계에서는 두 가지 근본적인 문제가 뒤따른다. 첫째, 고분자 전해질은 이온 이동이 원활하지 않아 낮은 이온전도도를 보이는 경우가 많다. 이는 고전류 구동 시 전지 내부 저항 증가로 이어져 효율을 크게 떨어뜨린다. 둘째, 충·방전 과정에서 전극과 전해질의 계면이 불안정해지면서 리튬 수지상이 성장하거나 SEI층이 불균일하게 형성된다. 이러한 현상은 전지 수명 단축과 안전성 저하를 초래하여, 리튬금속전지의 상용화를 가로막는 핵심 요인으로 지적되어 왔다.

본 연구실에서는 이러한 한계를 극복하기 위해 중합 가능한 깊은 공용성 단량체 기반의 단일 이온 전도성 겔 고분자 전해질(SIGPE)을 개발하였다. 이 전해질은 고분자 매트릭스 내에서 Li^+ 이 일종의 연결점 역할을 하여 고분자 사슬들이 서로 유연하게 얹혔다 풀리는 동적 가교 구조를

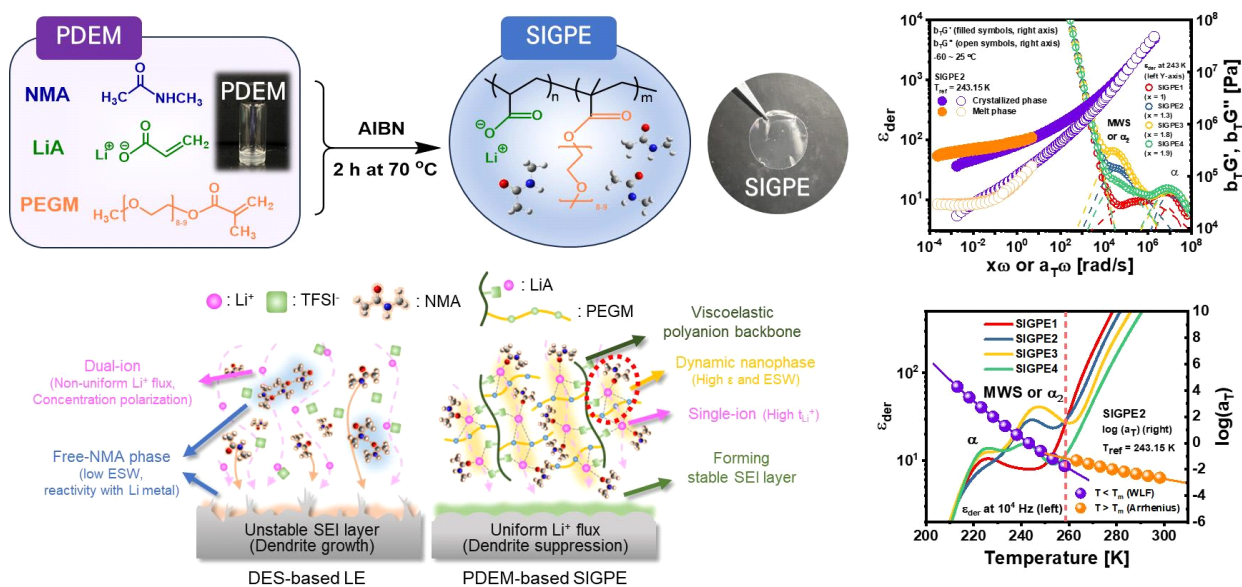


그림 4. 동적 가교 및 단일 이온 전도를 활용한 고분자 전해질 설계.

형성한다. 이러한 동적 네트워크는 외부 충·방전 과정에서 발생하는 기계적 스트레스를 스스로 흡수하고 완화하여 전극과 전해질 계면을 안정적으로 유지할 수 있게 한다. 또한, SIGPE는 고분자 사슬에 음이온을 고정시키고 Li^+ 만을 이동시키는 단일 이온 전도체 특성을 갖는다. 이는 전해질 내에서 음이온의 불필요한 이동을 억제하고, 리튬 이온이 보다 선택적으로 전도되도록 유도함으로써 전해질의 전도 효율을 향상시키고, 이온 분극 현상을 줄이는 데 핵심적인 역할을 한다. 동시에 전해질 내부에 도입된 고유전율 성분은 Li^+ 와 음이온이 쉽게 분리되어 자유롭게 움직일 수 있는 환경을 조성해, 이온 전달 경로를 정리하고 분극 현상을 억제하는 데 기여한다. 이러한 구조적 특징을 통해 SIGPE는 높은 이온 이동성뿐 아니라 장기적인 계면 안정성까지 확보할 수 있었다. 이를 통해 SIGPE는 높은 이온 전도도($1.0 \times 10^{-3} \text{ S} \cdot \text{cm}^{-1}$), 높은 리튬 이온 전달수($t_{\text{Li}^+}=0.86$) 및 5.0 V 이상의 높은 산화 안정성을 달성하였고 LFP 폴 셀에서는 $\text{Li}_2\text{O}/\text{LiF}$ 기반의 안정적인 SEI 층이 형성되어 리튬 수지상 형성을 효과적으로 억제하고 높은 율속에서도 안정적인 장기 충·방전 특성을 보인다.

2.4 고분자 전해질의 유전상수 제어를 통한 고에너지밀도 구현 연구

슈퍼커패시터는 우수한 출력과 수명을 보이나, 전기이중층 커패시터(EDLC)의 경우 낮은 에너지 밀도가 한계로 작용한다. 이를 개선하기 위해 높은 이온 전도도와 넓은 전기화학적 안정창을 제공하는 이온성 액체가 각광받고 있으나, 점도와 이온쌍 결합력이 높아 자유 이온 수가 제한되는 문제가 존재한다.

본 연구에서는 고분자 전해질의 유전상수(ϵ_s)를 증가시켜

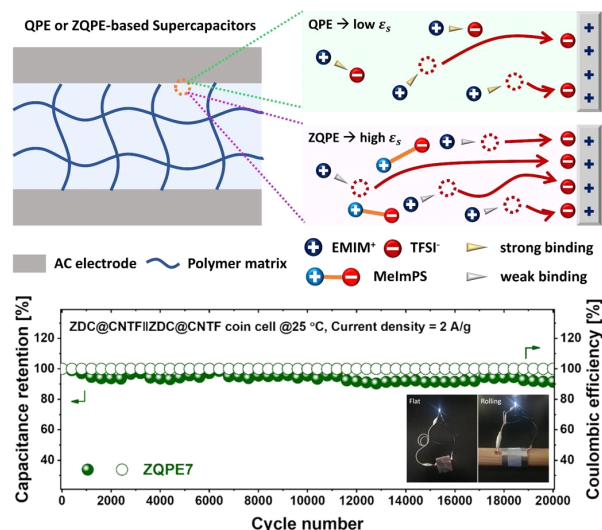


그림 5. 고에너지밀도 EDLC를 위한 유전상수 제어.

이온 해리도를 높이는 전략을 도입하였다. 쿨롱 법칙에 따르면 유전상수가 커질수록 이온 간 결합력이 감소하여 자유 이온 수가 증가하고, 전기이중층 형성이 촉진되어 정전용량이 향상된다. 이를 위해 유연한 고분자 네트워크 내에 높은 쌍극자 모멘트를 갖는 양쪽성 이온과 이온성 액체를 함께 도입하였다. 그 결과, 이온 해리 증가와 유전상수 향상 효과를 동시에 유도하여 전해질의 열적·전기화학적 안정성을 유지하면서 정전용량과 에너지 밀도를 모두 향상시킬 수 있었다. 실제 CNT 필름 전극 기반 슈퍼커패시터를 통해 해당 메커니즘의 유효성을 입증하였으며, 이는 고에너지밀도·고안전성 유연 슈퍼커패시터 설계를 위한 중요한 지침이 된다.

3. 연구실 현황 및 비전

본 연구실은 설립 이래 고분자 전해질 및 이온전도성 고분자 소재를 중심으로 한 에너지 저장 시스템 핵심 기술 개발에 매진해왔다. 특히 전고체 리튬 금속전지의 안전성과 성능 향상을 목표로, 단일이온전도체, 하이브리드 고체전해질, 분리막 소재 개발을 통해 차세대 전지의 고안전·고에너지 밀도화를 위한 연구를 기초연구사업, BK21사업, 및 집단 연구사업(자원순환형 전자소재 연구소)을 바탕으로 수행하고 있다. 이를 통해, 최근에는 *Advanced Energy Materials*, *Advanced Functional Materials*, *Advanced Science* 등 최고 수준의 학술지에 연구 결과를 발표하였다.

앞으로도 본 연구실은 고분자 화학과 전기화학을 융합한 다학제적 연구 기반을 강화하여, 전해질-바인더가 통합된 고분자 에너지소재 플랫폼을 구축하고, 안전하고 고성능의 전고체 리튬 금속전지 실현을 위한 원천기술 개발에 집중할 것이다. 더 나아가, 이러한 기술적 성과를 바탕으로 미래형 리튬 금속전지 및 전기차용 고에너지밀도 배터리의 핵심소재 개발을 선도하는 연구그룹 도약을 목표로 전체 구성원들이 최선을 다해 노력하고 있다.



그림 6. 고분자 에너지 소재 연구실 구성원.