

불소화 고분자 전해질의 용매화 구조 설계를 통한 600 Wh/kg급 고안전 리튬금속전지

김수찬 | 성균관대학교 화학공학부 (E-mail: sc0916@skku.edu)

고분자 전해질은 우수한 계면 접촉성, 기계적 유연성 및 공정성을 바탕으로 차세대 전고체 전지용 전해질로 주목받고 있다. 그러나 낮은 산화 안정성과 불안정한 전극 계면 반응은 고전압 구동 환경에서 전해질 분해와 성능 저하를 유발하는 주요 한계로 지적되어 왔다. 본 연구에서는 폴리에테르 사슬과 불소화 탄화수소 결사슬을 결합한 고분자 전해질을 개발하여 기존 고분자 전해질과 차별화된 음이온 풍부 용매화 구조를 구현하였다. 이를 통해 리튬 과잉 망간계 층상 산화물(LRMO) 양극과 리튬금속 음극으로 구성된 전지의 충·방전 과정에서 LiF-풍부 계면층과 안정적인 Mn-F 결합을 형성함으로써 전해질 분해와 계면 열화를 효과적으로 억제하였다. 또한 양극의 산소 레독스 반응 가역성을 향상시키고 산소 방출을 억제하여 장기 사이클 안정성을 확보하였으며, 9 Ah급 무음극 파우치 셀에서 604 Wh/kg의 초고에너지 밀도와 우수한 안전성을 동시에 구현하였다.

최 근 인공지능 데이터센터, 전기차 및 에너지저장 장치의 급속한 확산과 함께 고에너지 밀도와 높은 안전성을 동시에 구현할 수 있는 차세대 고체(solid-state) 전지 개발의 중요성이 더욱 커지고 있다. 다양한 고체상 전해질 가운데 고분자 전해질은 간단한 제조 공정, 우수한 전극-전해질 계면 접촉성, 기계적 유연성 등의 장점으로 인해 유망한 전해질 후보로 평가받고 있지만, 상대적으로 낮은 이온전도도와 고전압 구동 과정에서 발생하는 전해질 분해 및 계면 열화 현상은 여전히 상용화를 제한하는 주요 문제로 남아 있다.

최근 중국 칭화대학교 Qiang Zhang 교수 연구팀은 이러한 한계를 극복하기 위해 불소화 공중합체 기반 고분자 전해질을 개발하였다. 연구진은 poly(ethylene glycol) methyl ether acrylate와 불소화 아크릴레이트 단량체를 열유도 in-situ 중합하여 불소화 폴리에테르 기반 전해질을 제조하였고, 개발된 전해질은 리튬 이온과 강하게 상호작용하는 폴리에테르 사슬과 상대적으로 약한 용매화 특성을 갖는 불소화 탄화수소 결사슬을 동시에 포함하고 있다. 이러한 구조는 기존 poly(ethylene

oxide)와 같은 에테르계 전해질과 달리, 음이온 풍부 용매화 구조를 형성하여 충·방전 과정에서 리튬염 음이온 유래의 안정적인 LiF-풍부 계면층을 형성하였다. 특히 LRMO 양극 표면에는 약 3 nm 두께의 치밀하고 균일한 계면층이 형성되었고, 형성된 계면 내 불소 원자는 양극 표면 격자의 산소 일부를 치환하여 Mn-F 결합을 형성함으로써 고분자 전해질 분해와 계면 열화를 억제하였다. 뿐만 아니라, 불소화 탄화수소 도입으로 -75 °C의 낮은 유리전이온도와 328 °C 이상의 높은 열적 안정성을 확보하였으며, 우수한 난연 특성도 함께 구현하였다. 이러한 특성은 고전압 및 고에너지밀도 조건에서 전지의 안정성을 크게 향상시키는 데 기여하였다.

설계된 고분자 전해질을 적용한 LRMO 양극-리튬금속 음극 전지는 500회 이상의 장기 충·방전 사이클 동안 안정적인 거동을 나타냈으며, 9 Ah급 무음극 파우치 셀에서도 604 Wh/kg의 초고에너지 밀도를 달성하여 실제 응용 가능성을 입증하였다.

본 연구는 고분자 전해질을 단순한 이온전도체가 아닌 전극 계면 반응과 산소 레독스 거동을 능동적으로 제어하는 기능성 소재로 활용하였다는 점에서 큰 의미를 갖는다. 특히 불소화 고분자 구조 설계를 통해 용매화 구조, 계면 화학 및 전기화학 반응을 동시에 제어함으로써 초고에너지밀도-고안전성 리튬금속전지 구현 가능성을 제시하였다. 이러한 접근법은 향후 전고체 및 준고체 리튬금속전지용 전해질 뿐만 아니라 전극용 바인더, 인공 계면층, 분리막 등 다양한 고분자 기반 전지용 소재 개발에도 폭넓게 활용될 것으로 기대된다.

본 연구결과는 *Nature*에 "Tailoring polymer electrolyte solvation for 600 Wh kg⁻¹ lithium batteries"의 제목으로 2025년 9월에 게재되었다.
(DOI: 10.1038/s41586-025-09565-z)

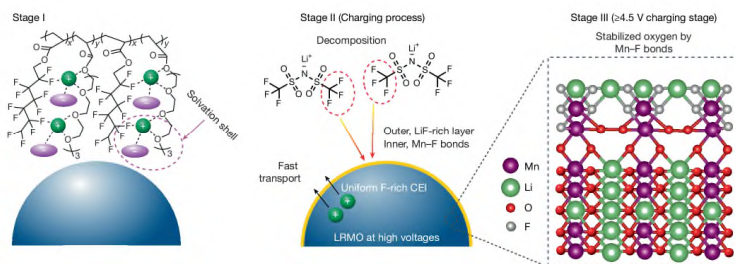


그림 1. 불소화 고분자 전해질의 화학구조와 충전 과정 중 고전압 양극 내 음이온 유래 LiF-풍부 계면층 및 Mn-F 결합 형성 모식도