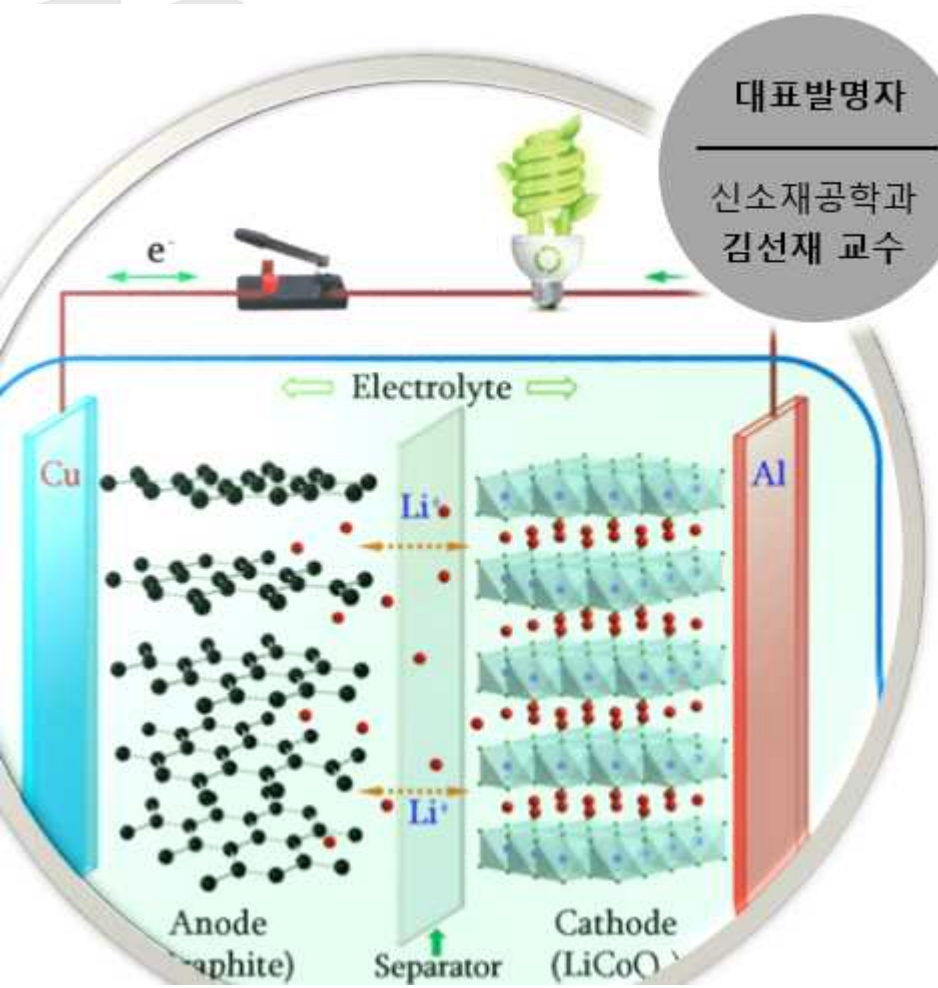


금속/카본결정입자 복합체인 전극활물질

본 기술은 리튬이차전지의 음극재료에 관한 것으로,
실리콘 등 금속입자를 구비하여 용량을 향상시키면서도 카본결정입자들을 함유하여 충방전시 체적변화를 최소화할 수 있는 복합체에 관한 것임

대표발명자

신소재공학과
김선재 교수



01 발명의 명칭

금속/카본 결정 입자 복합체, 이의 제조방법 및 이를 함유하는 에너지 저장소자

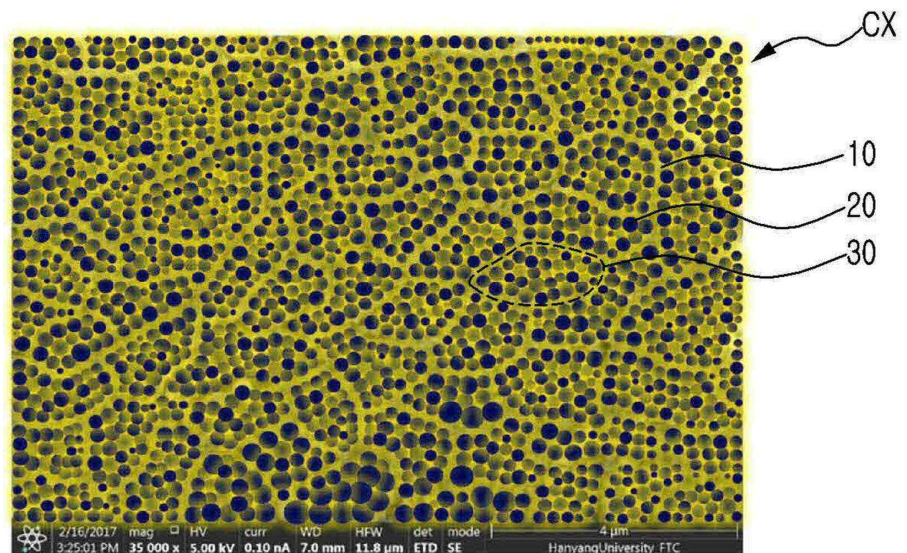
02 종래기술 대비 본 기술의 개요 및 특징

- 종래 기술의 문제점

 - 리튬 이차 전지의 음극 활물질로 일반적으로 사용되는 흑연 등 탄소계 물질은 이론용량 최대값이 약 372 mAh/g로 제한되어 있어 고용량 전지에는 적합하지 않음
 - 고용량을 구현하기 위해 실리콘계 음극활물질이 연구되고 있으나, 이 실리콘계 음극활물질은 충방전 과정에서 결정구조의 변화에 따른 300% 이상의 큰 부피변화가 일어나, 용량유지율 측면에서 바람직하지 않음
- 기술의 간략한 설명

 - 본 발명은 용량 및 용량유지율을 동시에 향상시킬 수 있는 리튬 이차 전지의 음극 활물질 관련 기술임
 - 음극 활물질은 금속 입자들(20)과 카본 결정 입자들(10)을 구비하는 복합체(CX)로서, 상기 금속 입자들(20)은 응집되어 다수 개의 응집체(30)를 형성하고, 상기 응집체 내의 금속 입자들 사이에 상기 카본 결정 입자들(10)이 배치되고 상기 응집체들 사이에 카본 결정 입자들의 밀집 영역(10)이 위치하여, 리튬 이온의 흡장 및 방출에 수반하는 금속 입자들(20)의 체적변화가 억제될 수 있고 카본 결정 입자들로 인해 전도성이 향상될 수 있음
 - 이러한 복합체는 그래핀 플레이크와 금속 입자를 산화성 분위기에서 볼 밀링하고 어닐링하여 얻을 수 있음

■ 대표도면

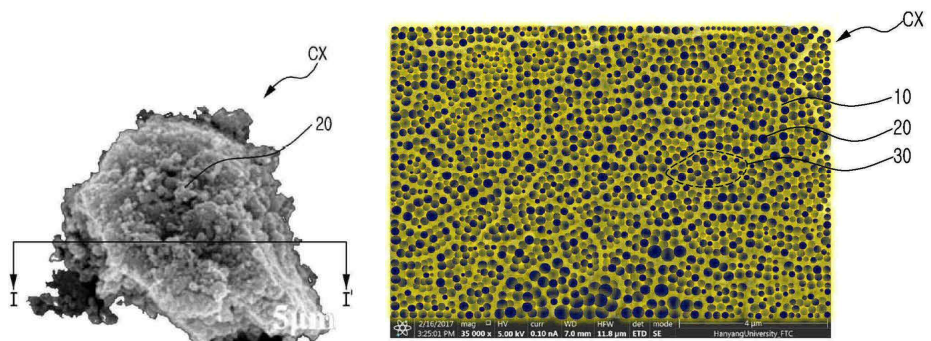


<금속/카본결정입자 복합체 개략도>

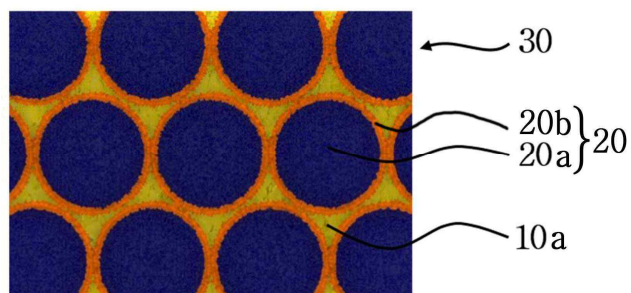
CX : 금속/카본 결정 입자 복합체 20 : 금속 입자 30 : 금속 입자 응집체
10 : 카본 결정 입자 밀집 영역

■ 기술의 특징 및 우수성 금속/카본결정입자 복합체

- 금속 입자들(20)과 카본 결정 입자들(10)을 구비하는 복합체(CX)로서, 상기 금속 입자들(20)은 응집되어 다수 개의 응집체(30)를 형성하고, 상기 응집체(30) 내의 금속 입자들(20a) 사이에 상기 카본 결정 입자들 중 일부(10a)가 위치하고 상기 응집체들(30) 사이에 상기 카본 결정 입자들 중 다른 일부가 밀집된 카본 결정 입자 밀집 영역(10)이 위치하는 금속/카본 결정 입자 복합체
- 상기 카본 결정 입자들은 환원 그래핀 산화물일 수 있음
- 상기 금속 입자(20)는 금속 코어(20a)와 상기 금속 코어를 이루는 금속이 산화된 금속 산화막 셸(20b)을 포함할 수 있고, 상기 금속 코어는 결정질이고 상기 금속 산화막 셸은 비정질일 수 있고, 상기 금속 코어는 실리콘, 실리콘 합금, 주석, 또는 주석 합금일 수 있음



<금속/카본결정입자 복합체 및 이의 I-I'선을 따라 취해진 단면도>



<금속/카본결정입자 복합체 중 응집체(30)의 확대도>

금속/그래핀 복합체 제조방법

- 1) 그래핀 플레이크와 금속 입자를 혼합하여 혼합물을 형성하는 단계; 2) 상기 혼합물을 산화성 분위기에서 볼 밀링하여, 상기 금속/카본 결정 입자 복합체를 형성하는 단계; 및 3) 상기 금속/카본 결정 입자 복합체를 어닐링하는 단계를 포함하는 금속/그래핀 복합체 제조방법
- 상기 볼 밀링은 플레너터리 볼 밀링(planetary ball milling)일 수 있음
- 상기 볼 밀링과정에서 상기 금속 입자(20)는 표면이 산화되어 금속 코어(20a)와 상

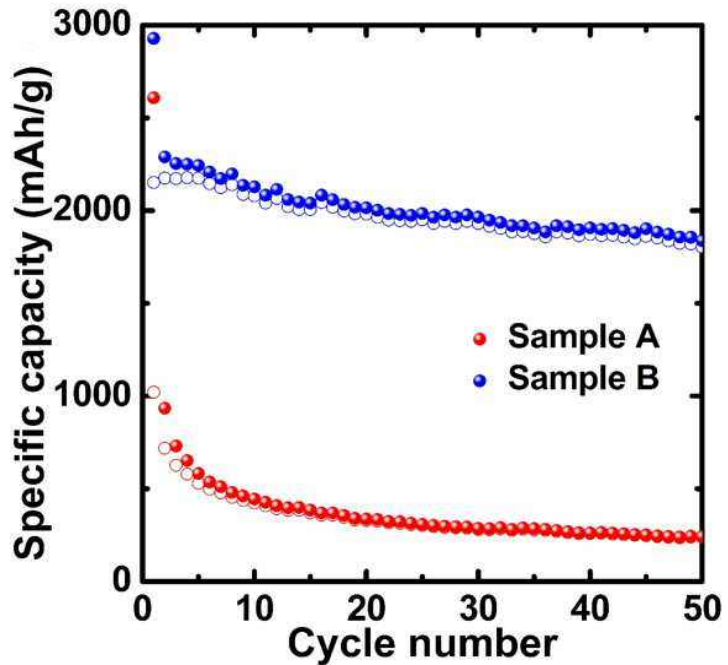
기 금속 코어를 이루는 금속이 산화된 금속 산화막 셸(20b)을 포함할 수 있게 됨

에너지 저장소자

- 금속/카본 결정 입자 복합체를 구비하는 제1 전극; 제2 전극; 및 상기 제1 전극과 상기 제2 전극 사이에 배치된 전해질을 포함하는 에너지 저장소자

기술의 우수성

- 우수한 초기방전용량 및 사이클 반복시에도 용량의 유지율이 우수함
- 결정질 Si입자 표면에 비정질 SiO_x층이 형성된 입자 즉, Si@SiO_x입자와 카본 결정 입자의 복합체는 Si@SiO_x입자와 카본 결정 입자가 견고한 물리적 결합 또는 물리 화학적 결합을 이루기 때문에 초기 방전용량(2151 mAh/g)이 우수하고 또한 사이클이 반복되더라도 상기 물리적 결합이 안정적으로 유지됨에 따라 안정적인 사이클 특성 즉, 우수한 용량 유지율(73.5%)이 나타남 (Sample B)



[(Si@SiO_x/rGO 복합체(Sample B) 또는 Si@SiO_x와 rGO의 단순 혼합물(Sample A)을 음극활물질로 사용한 배터리의 수명특성을 나타낸 그래프]

■ 기술의 우수성

- ① 그래핀 플레이크와 금속 입자를 볼 밀링에 의해 혼합한 후 열처리하여 특유 구조의 복합체 제조 가능
- ② 우수한 용량을 나타내는 실리콘 등 금속 입자의 충전 과정에서의 체적 변화를 억제하면서도, 우수한 전기 전도성을 나타내는 음극 활물질을 제공할 수 있음

종래기술 문제점	<ul style="list-style-type: none"> • 흑연 등 탄소계 음극 활물질은 최대 이론용량에서 한계가 있음 • 높은 이론용량을 나타내는 실리콘은 충전 과정에서의 체적 변화로 인해 용량유지율 즉, 수명특성이 불량함
해결방안	<ul style="list-style-type: none"> • 실리콘 등 금속 입자와 카본 결정 입자의 복합체를 만들되, 금속 입자 응집체를 카본 결정 입자 밀집영역으로 감싸면서도 금속 입자들 사이에도 카본 결정 입자를 분포시킴 • 금속 입자는 결정질 금속 코어와 비정질 금속 산화막 쉘로 구성될 수 있음
기술의 특징 및 우수성	<ul style="list-style-type: none"> • 복합체의 특유 구조는 금속 입자의 체적 변화를 감소시켜 용량 및 용량 유지율을 크게 향상시키면서도 전도성을 유지함 • 비정질 금속 산화막 쉘은 또한 결정질 금속 코어의 체적 변화를 더욱 감소시켜 용량 유지율 추가 향상

■ 기술의 효과

- 실리콘계 물질을 함유하여 우수한 용량특성을 나타냄
- 실리콘 등 금속 입자와 카본 결정 입자의 복합체를 만들되, 금속 입자 응집체를 카본 결정 입자 밀집영역으로 감싸면서도 금속 입자들 사이에도 카본 결정 입자를 분포시킨 금속/카본 결정 입자 복합체의 특유의 구조는 충전 과정에서 실리콘계 물질의 체적변화를 억제하여 우수한 용량유지율을 나타냄

■ 기술의 완성도(TRL)

기초 연구 단계		실험 단계		시작품 단계		제품화 단계		사업화
기본원리 파악	기본개념 정립	기능 및 개념 검증	연구실환경 테스트	유사환경 테스트	파일럿현장 테스트	상용모델 개발	실제 환경 최종테스트	상용운영
			●					

■ 기술 키워드

한글키워드	음극 활물질, 실리콘, 탄소 결정, rGO, 복합체, 볼밀
영문키워드	anode material, silicon, carbon crystal, rGO, complex, ballmill

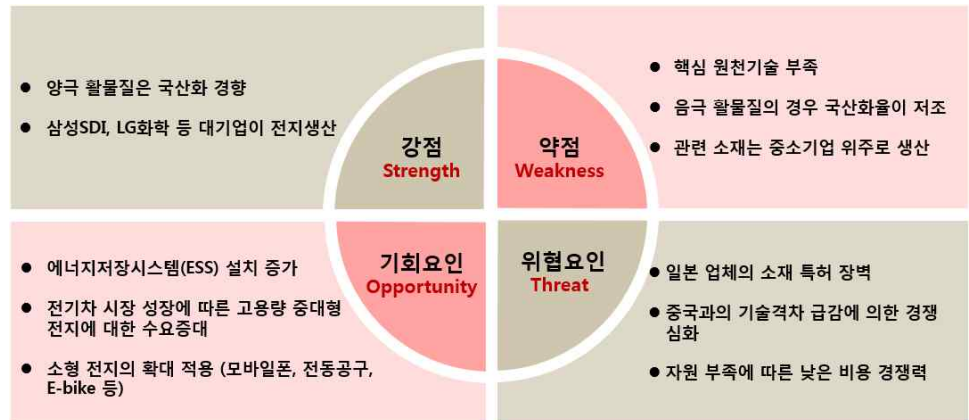
03 기술적용분야 및 경쟁력

- 기술의 적용분야
 - 에너지 저장소자의 전극 활물질
 - 리튬이차전지의 음극 활물질

- 기술경쟁력
 - 연구실 환경에서 2000 mAh/g 이상의 초기 방전용량과 더불어, 80%에 이르는 우수한 용량 유지율을 나타냄에 따라 이차전지 고용량화에 대응
 - Si 입자와 rGO 플레이크를 산화성 분위기에서 불밀하는 등 비교적 간단한 공정을 사용하는 등 비용 측면에서 유리

- 기술실시에 따른 기업에서의 이점
 - 이차전지의 고용량화 전략에 선제 대응 가능하고, 용량 유지율을 향상시킬 수 있는 음극 활물질 제공이 가능함에 따라 시장 경쟁력 확보 가능
 - 간단한 프로세스 및 재료 단가가 낮아 비용 경쟁력 확보 가능

[국내 이차전지 분야의 SWOT 분석]



■ 특허현황

구분	발명의 명칭	출원번호 (출원일)	등록번호 (등록일)	출원 국가
1	금속/카본 결정 입자 복합체, 이의 제조방법 및 이를 함유하는 에너지 저장소자	10-2017-0072740 (2017.06.09)	10-1942654 (2019.01.21)	한국



교수명 김 선 재 (나노소재연구실)
소속 세종대학교 공과대학 나노신소재공학과
E-mail sjkim1@sejong.ac.kr
연구분야 이차전지, 광촉매, 방사선차폐재, E-ink display, Photoelectrochemical cell

■ 경력

- 1992 ~ 2001 한국원자력연구원 원자력재료기술개발팀 선임연구원
- 2001 ~ 현재 세종대학교 공과대학 나노신소재공학과 조교수/부교수/정교수
- 2011 ~ 2014 세종대학교 산학협력단 단장
- 2012 ~ 2014 세종대학교 연구산학협력처 처장
- 2012 ~ 2018 세종대학교 기술지주회사 대표이사
- 2014 ~ 2016 한국연구재단 국책연구본부 나노소재단장
- 2016 ~ 2018 세종대학교 산학협력단 단장 겸 연구산학협력처 처장
- 2018 ~ 현재 세종대학교 연구부총장 겸 대학원장

■ 대표 연구실적

Journals

- "Formation of physically durable and performance sensitive solid-electrolyte interphase of SiOx anode for lithium-ion battery", H-W Yang, D.I. Lee, N. Kang, W.S. Kang*, S-J Kim*, Mater. Res. Lett., 7, 89 (2018).
- "Highly enhancement of the SiOx nanocomposite through Ti-doping and carbon coating for high-performance Li-ion battery", H-W Yang, D.I. Lee, N. Kang, J.K. Yoo, S.T. Myung, J. Kim*, S-J Kim*, J. Power Sources, 12, 8138 (2018).
- "Exceptional Effect of Benzene in Uniform Carbon Coating of SiOx Nanocomposite for High-Performance Li-Ion Batteries", H-W Yang, N. Kang, S.T. Myung, J. Kim*, S-J Kim*, J. Electrochem. Soc., 165, A1247 (2018).
- "Bioinspired Surface Layer for the Cathode Material of High-Energy-Density Sodium-Ion Batteries", C-H Jo, J-H Jo, H. Yashiro, S-J Kim, Y-K Sun, S-T Myung*, Adv. Energy Mater., 8, 1702942 (2018).
- "Synthesis and Electrochemical Reaction of Tin Oxalate-Reduced Graphene Oxide Composite Anode for Rechargeable Lithium Batteries", J.S. Park, J.H. Jo, H. Yashiro, S.S. Kim, S-J Kim, Y.K. Sun, S.T. Myung*, ACS Appl. Mater. Interfaces, 9, 25941 (2017).
- "Simulation Protocol for Prediction of a Solid-Electrolyte Interphase on the Silicon-based Anodes of a Lithium-Ion Battery: ReaxFF Reactive Force Field", K-S Yun, S-J Pai, B-C Yeo, K-R Lee, S-J Kim*, S-S Han*, J. Phys. Chem. Lett., 8, 2812 (2017).
- "Reactivity of different surface sites with silicon chlorides during atomic layer deposition of silicon nitride", L-L Yusup, J-M Park, Y-H Noh, S-J Kim, W-J Lee, S Park, Y-K Kwon, RSC Adv., 6, 68515 (2016).
- "Nickel oxalate dihydrate nanorods attached to reduced graphene oxide sheets as a high-capacity anode for rechargeable lithium batteries", H-J Oh, C-H Jo, C-S Yoon, H. Yashiro, S-J Kim, S. Passerini, S-T Myung, NPG Asia Mater., 8, e270 (2016).
- "Re-heating effect of Ni-rich cathode material on structure and electrochemical properties", J-H Jo, C-H Jo, H. Yashiro, S-J Kim, S-T Myung, J. Power Sources, 313, 1 (2016).

학술발표

- Shielding Capability Simulation for Neutron and Gamma rays using Metal Hydride Materials, 방사성폐기물학회 2018 추계학술발표회(한국방사성폐기물학회), 2018-11
- Using Compact SEI Formation to Enhance Electrochemical Properties of the SiOx Anode for Li-Ion Batteries, MRS fall meeting & exhibit(Materials research society), 2018-11





세종대학교
산학협력단

UNIVERSITY