

전지 구성소재 및 부품 연구 그룹

글 _ 최병현
한국세라믹기술원 수석연구원

1. 그룹 개요

한국세라믹기술원 전지그룹에서는 미래 성장동력이면서 녹색 성장을 이끌어 갈 세라믹 중에서도 가장 핵심적인 세라믹 즉 화학 전지로 분류되는 SOFC, 리튬이차전지, supercapacitor 등의 소재 및 부품을 연구하는 그룹이다.

본 그룹은 주로 산·학·연과 연계하여 전지 소재·부품에 관한 기술을 개발하고 있다

우리 그룹은 세계 최고의 전문기관이 되기 위해 원천 기술 확보 과제로서 세라믹 SOFC 소재원천기술개발('10~'19)과 WPM 리튬이차전지 소재기술개발('10~'18) 등을 수행하고 있다.

2. 그룹 목표

국내 유일의 세라믹 소재 및 부품을 연구하는 정부출연기관으로서 국내 또는 나아가 세계에서 가장 으뜸가는 세라믹 전지소재·부품을 연구하는 그룹을 지향하고 있다. 특히 국내 기술력이 우수한 기관과 연계를 통해 전지 관련 소재·부품을 공동개발함으로써 본 그룹의 위상을 높임과 동시에 참여기업 및 기관도 세계 경쟁력을 갖도록 지원하고 있다.

현재 본 그룹은 SOFC 관련으로는 총괄주관으로 소재 원천, 에너지원천기술을 수행중이며, 이차전지 관련은 WPM 기술개발에 참여함으로써 선진국과 동등 하면서도 우리만의 기술을 갖는 것을 목표로 하고 있다.

3. 그룹 연구원 소개

한국세라믹기술원 전지 연구인력은 박사급인력 6명을 비롯하여 25명 정도가 연구를 수행하고 있는데 본보에서는 다양한 경력을 갖고 있는 박사급 연구 인력에 대해 소개코자한다.



최병현 수석연구원은 한국세라믹기술원에서만 25년이상 전지, 전자 관련 연구를 독보적으로 수행하여 온 연구원으로서 전지 소재·부품 관련 분야에서 만이의 역할을 하고 있다.

특히 SOFC 분야로서는 1990년도 후반부터 주로 구성 소재 설계 합성 및 공정개발을 수행하였다. 즉 SOFC 구성 소재로는 중,고온용 전해질, 전극, 세라믹 Interconnector 및 밀봉재 소재 설계 및 개발이었고, 공정으로서는 평판 및 다전지형 셀의 디자인 및 적층공정에 대해 연구를 수행해 왔다.

우선 구성소재로는 SOFC 중온용 대체 전해질에 대한 연구, SOFC용 고온 밀봉재 개발 (한국전력연구원의 1kW, 5kW급 SOFC 시스템용 밀봉재로 공동연구), cathode로는 특성향상기술개발을, 세라믹 IC로서는 평판형 셀에 적용할 수 있는 고전도성 IC를, anode로는 고효성을 갖는 나노 복합체에 대해 연구를 수행 하였거나 하고 있다. 또한 셀 및 공정기술로는 최근 Segmented 평판형 셀 및 모듈제조, 전사법 이용 다전지식 평판형 셀을 설계, 제작하고 있다.

한편 국내 SOFC분야 최고의 기관과 연계 사업으로 2010년부터 2019년까지 원천기술 과제인 세라믹 소재과제 “고체산화물 에너지 변환 나노복합 세라믹 소재기술”에 대해 총괄 주관을 수행하고 있다.

한편으로 리튬이차전지 및 Supercapacitor 관련 연구는 대부분 기업과 협력하여 양·음극 및 활물질 소재와 관련된 연구 즉 구상 LiCoO₂, 고성능 LiMn₂O₄, 나노입자 및 fiber인 Li₂Ti₃O₁₂, Amorphous SnO-P₂O₅계 등에 대해 연구를 수행해 왔다

박선민 책임연구원은 전지에 사용가능한 구성 소재에 대해, 즉 SOFC 소재는 액상법, 수열합성법, 졸-겔법 및 reflux법 등의 다양한 방법으로 나노에서 마이크로 스케일로 합성하고 있고, 그 분체 특성이 미치는 영향에 대해 연구하고 있다.

한편 이차전지에서는 고온성능저하 현상을 억제하기 위하여 졸-겔법 및 reflux법으로 양극 소재를 합성·coating 하거나 전기적 성능 향상을 위하여 다양한 morphology를 갖는 나노스케일의 소재를 수열합성법으로 합성, 평가하고 있다.

이미재 책임연구원은 SOFC 구성 소재를 다양한 방법으로 합성하는 연구를 수행하고 있다. 즉 저온에서 사용가능한 이온전도도가 높은 LSGM계 전해질에 대한 연구와 나노분말 및 나노구조를 형성하기 위해 GNP 및 modified sol-gel 법을 이용하여 양극재료인 LSM 및 LSCF과 음극재료인 Ni를 대체하기 위해 LSCA (A=Cr, Mn, Fe) 산화물과 같은 새로운 음극재료 개발에 대한 연구를 진행하고 있다.

또한 휴대용 연료전지를 위한 허니컴 타입의 SOFC와

이동용 연료전지를 위한 금속지지형 SOFC 제조에 대한 연구를 진행하고 있다. 향후에는 나노 분말 및 나노 구조를 갖는 음극을 합성하여 작동 조건에서의 반응성, 성능 발현 및 degradation에 대한 연구를 진행하고자 한다.

지미정 선임연구원은 SOFC용 양,음극소재합성, 복합 밀봉재 제조와 리튬이차전지용 양,음극 소재 합성 및 평가에 대한 연구를 주로 하고 있다. 현재는 나노기술을 활용한 고효성 다기능 나노복합소재 신조성 설계, 균일미세구조를 갖는 SOFC 연료극용 소재 설계, 합성 및 평가에 대한 연구를 진행중이다. 또한 전사법을 이용한 평판형 다전지식 SOFC용 셀의 성능에 대한 기술을 평가하고 있다.

한편 리튬이차전지의 양극소재 LiCoO₂, LiMn₂O₄, LiNiO₂, LiMn_{1/3}Ni_{2/3}Co_{1/3}O₂ 소재합성 및 표면 코팅에 대해 연구하였으며 현재는 고효율이차전지용 음극소재로서 Li₄Ti₅O₁₂ 나노분말 및 fiber에 대해 대한 연구도 병행하고 있다.

이재원 선임연구원은 LG화학에서 다년간 리튬 이차전지 연구를 수행한 후 우리원에 입사한 이 분야 박사급 연구원이다.

연구로서는 중대형 리튬이차전지의 특성을 향상시키기 위하여 양극 및 음극소재의 개발을 수행하고 있다. 특히, 양극소재의 고온수명특성을 높이기 위해 Li-Mn spinel의 표면을 금속 산화물로 코팅하거나 망간 산화물 나노입자를 합성하여 Li-Mn spinel의 전구체로 활용하는 연구를 진행하고 있다.

최근에는 WPM 과제의 개발 책임연구원으로써 고용량 음극소재로서 충방전시 부피팽창이 적고 가역용량이 높은 탄소-실리콘 복합계 소재의 개발을 수행할 예정이다

노광철 선임연구원은 코침에서 다년간 슈퍼커패시터의 전극소재 및 부품 연구를 주로 수행한 후 우리원에 입사한 박사급 연구원이다. 슈퍼커패시터용 전극재로서 다공성 및 비다공성 탄소재 연구를 진행하고 있으며, 기존의 다공성 소재의 성능을 뛰어넘는 전기화학적 부활방법을 사용한 소재를 연구중에 있다.

또한 하이브리드용 소재인 리튬계산화물 연구를 진행

하고 있고, 휴대전자기기의 GSM 백업용 초소형 제품 및 기존 슈퍼커패시터의 에너지밀도를 2배 이상 향상시킨 하이브리드 슈퍼커패시터를 태양광 등 신재생에너지 저장용으로 개발하고 있다.

4. 그룹의 대표연구 사례

본 그룹이 개발한 대표적인 연구사례로는 <그림>에 나타내었다.

SOFC 구성소재로서 고온형 YSZ을 대체할 중온용 LSGM 전해질, 고온 평판형에 사용할 수 있는 밀봉재 및 평판형에 사용 가능한 고전도성 IC를 개발한 바 있다. 또한 SOFC 셀로는 세라믹을 지지체로 한 다전지식 셀, 설계 및 제작, 허니컴형 지지체 제작 및 금속지지형 단전지를 개발한 바 있다.

○ 저온에서 운전하여 높은 출력을 나타내는 YSZ 대체 새로운 전해질 $(La_{1-x}Sr_x)(Ga_{1-y}Mg_y)O_{3-\delta}$ 을 개발하고 이를 이용 단전지를 제조한 결과 높은 산소 이온전도도 고온 화학 안정성 및 고출력을 나타내었다.

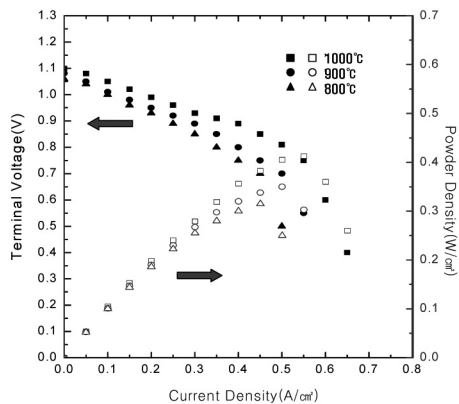


Fig. 1. SOFC 중온용 $(La_{1-x}Sr_x)(Ga_{1-y}Mg_y)O_{3-\delta}$ 전해질의 특성.

○ 유리자체내에서 결정을 생성할 수 있는 결정화 유리와 결정필러가 혼합된 복합밀봉재는 3000시간 이상 산화·환원분위기에서 내구성을 가졌으며 밀봉누설도 0.001sccm/cm 이하로 우수한 밀봉재를 개발하였다. 위 복합밀봉재는 한국전력연구원의 1kW급, 5kW급 SOFC 시스템 운전에 적용하므로써 만족할 만한 특성을 확보하였다.

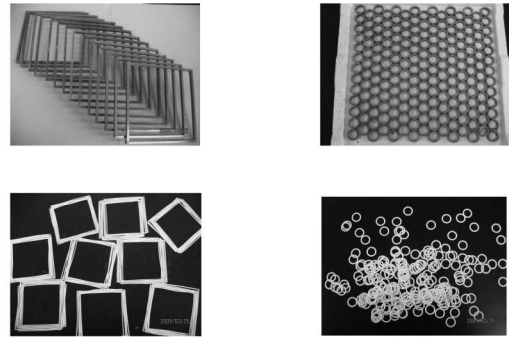


Fig. 2. SOFC 평판형 밀봉재(가스켓).

○ 기존의 세라믹 지지체 대신 스텐레스계 분말 사용 금속튜브지지체 위에 세라믹 전극과 전해질 후막을 형성하여, 금속 특유의 고강도 및 연성에 의하여 내구성이 획기적으로 개선한 금속기동/정지가 가능한 SOFC용 단전지를 개발하였다.

한편으로 이동이 편리하고, 일정한 강도를 가져야 하는 휴대용 연료전지에 적합한 honeycomb 타입의 연료전지용 음극 및 세라믹 지지체를 제조하였다. 지지체는 다양한 기공형성제를 사용하여 최적의 기공크기와 기공

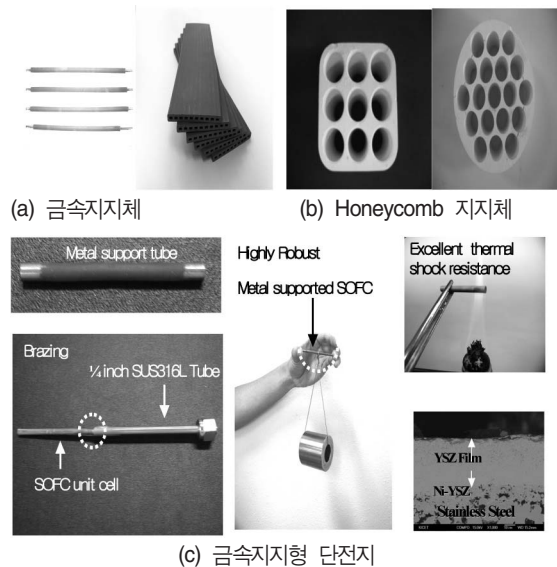


Fig. 3. 금속지지체, 허니컴형 지지체 및 금속지지형 SOFC용 단전지.

율을 갖는 지지체를 제조하였고, 밀도가 다른 출발물질의 균일 혼합 및 구형의 granule 분말을 제조하기 위한 최적의 첨가제 조성을 개발하였다. 최적조건으로 제조한 지지체는 약 10 μ m 내외의 기공크기와 약 50% 정도의 기공율을 가지고 있다.

○ 평판형 및 다전지식형 셀에 사용될 세라믹 IC(Interconnect)는 주로 LaCrO₃가 사용되는데, LaCrO₃는 소결온도가 높아 Cr의 휘발로 인해 전기전도도가 낮아지므로 이를 대체하기 위해 (La_{1-x}Ca_x)(Cr_{1-y}Co_y)O₃ 조성에 첨가제를 첨가하므로서 1300 $^{\circ}$ C에서 막이 형성되었고 전기전도도가 높게 나타난 연결재를 개발하였다.

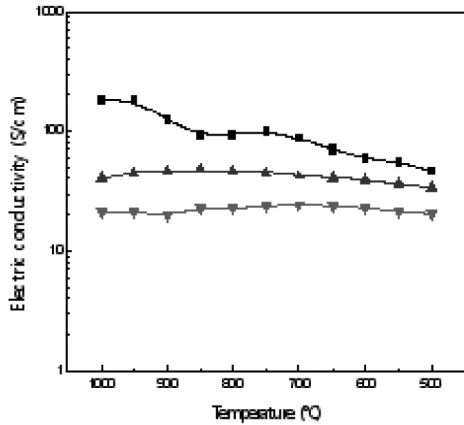


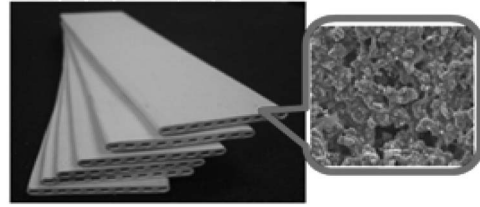
Fig. 4. 저온 소결이 가능한 세라믹 IC의 전기전도도

○ SOFC 생산 단가를 저감하기 위하여 지지체를 세라믹으로 압출성형하여 제조하였다. 또 지지체 곡면부에 전극을 형성할 수 있도록 코팅함으로 기존의 다전지 cell 디자인을 획기적으로 개선함으로써 SOFC 셀 성능과 단위 면적당 출력 특성을 향상시킬 수 있다

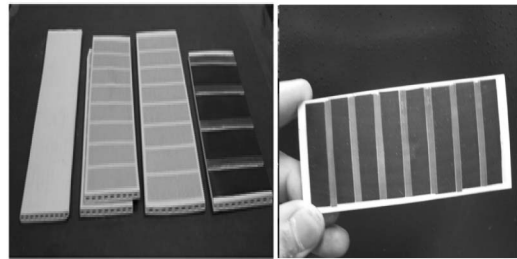
○ 이차전지 및 supercapacitor 양·음극 및 활물질 중본 그룹이 개발한 대표적인 사례는 아래와 같다.

○ HEV, EV, PHEV 등에 사용될 이차전지의 음극재료는 기존의 C만으로는 고용량, 고출력을 얻기가 어려우므로, 금속산화물의 첨가가 필수적이다. 음극으로 Li₄Ti₅O₁₂는 안정적이고 고 신뢰성이나 고출력을 나타내기에는 비표면적이 적어서 본 연구에서는 나노크기 구형 입자나 fiber 형태로 합성하여 목표를 달성하였다.

○ 용량이 작은 Li-Mn spinel계 양극소재에 이중 구조



저가 세라믹 지지체 사용



전사신기술을 이용한 지지체/전극구성물

Fig. 5. 세라믹지지체를 이용하여 전사법으로 제조한 다전지식 SOFC 셀.

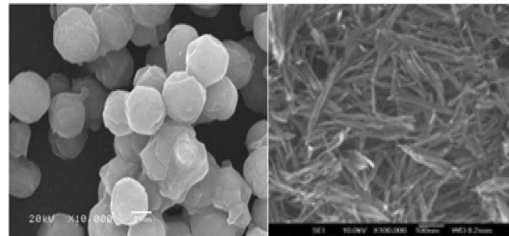


Fig. 6. Li₄Ti₅O₁₂ nano 분말 및 fiber morphology.

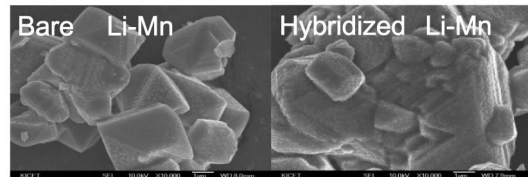
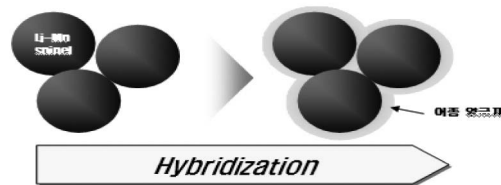


Fig. 7. Li-Mn spinel 입자 표면 코팅 복합화 방법 및 입자 형상.

를 갖는 고용량 양극재를 코팅하여 Li-Mn spinel의 고온 수명특성을 향상시킴과 동시에 용량을 20% 이상 증가, 고온수명을 향상시킨 양극재 복합화 기술을 개발하였다.

○ 기존의 탄소전극의 전위를 리튬도핑에 의하여 강하시킴으로서 하이브리드 타입의 슈퍼커패시터의 문제점인 탄소전극의 gas 발생문제를 해결하여 단위셀 전압을 향상시키는데 성공하였다.

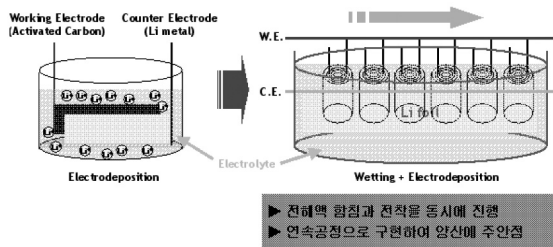


Fig. 8. 전기화학적 리튬 도핑 공정.

5. 그룹의 공동연구개발 사업목표 및 내용

현재 본 그룹에서 국내 우수한 기관과 공동연구 사업을 향후 SOFC 원천소재 기술을 개발코자 총괄 진행하고 있는 세라믹 소재 원천 기술개발 과제는 “고체산화물 에너지변환 나노복합 세라믹 소재”(수행기간 2010.6.1.~2019.5.31)이다. 이에 대한 기술개발 최종 목표로는 임계 성능을 구현할 수 있는 신규구조와 나노복합화를 통해 획기적으로 1.8W/cm²의 출력 목표로 진행하고 있는데 추진 기관별 세부과제와 목표는 아래와 같다.

또한 SOFC 에너지원천기술 공동개발사업으로 전북대(이기태), 영남대(강미숙)와 같이 추진하고 있다. 과제는 “전사법을 이용한 평판형 다전지식 고체산화물 연료전지 셀 제조”(수행기간 2010.6.1.~2013.5.31)로서 세라믹 지지체 위에 셀 구성 소재로 고효율 연료극, 공기극, 전해질, 기능층을 합성하여 이 소재를 전사법으로 막을 형성시켜 고성능 다전지식 셀을 개발하는 것이다. 최종목표는 출력밀도 0.45W/cm², 열화율은 2.0%/khr, IC 전기전도도는 25S/cm, 지지체강도는 120Mpa을 목표로 하고 있다.

세부기술 명	성능지표	기술개발 목표 (년)		
		2013	2016	2019
이온-혼합 전도성 나노 복합화 세라믹 소재 기술 한국과학기술원(이종호)	● 이온전도도(S/cm)	0.05	0.06	0.07
	● 공기극 ASR(Ω·cm ²)	0.2	0.1	0.05
고활성 다기능 나노 복합 소재 기술 한국세라믹기술원(최병현)	● 연료극 ASR(Ω·cm ²)	0.1	0.07	0.05
	● 전기전도도(S/cm)	3000	3500	4000
고전자전도성 접속자용 나노 복합 소재 기술 한국에너지연구원(송력현)	● 전자전도성(S/cm)	20	35	50
	● 접속자ASR(Ω·cm ²)	0.035	0.02	0.005
고내구성 이종 나노 다중구조 형성소재 기술 한국과학기술원 (백중연)	● 완충층이온전도도(S/cm)	0.05	0.06	0.07
	● 기능층 ASR(Ω·cm ²)	0.1	0.07	0.05
	● 기계적강도(Mpa)	150	200	250

() 는 과제 책임자

6. 현재 세라믹기술원 전지그룹이 수행중인 기술개발 과제 LIST

- 고성능 Segmented 평판형 SOFC용 cell 및 모듈 제조
- 전사법을 이용한 평판형 다전지식 고체산화물 연료 전지 셀 제조 및 고효율 나노 구성소재 개발
- 고효율 다기능 나노복합 소재 기술
- 세라믹 IC 조성설계 및 성능향상기술 개발
- SOFC용 고온밀봉재 개발
- 허니컴형 지지체 개발
- Operating life 개선을 위한 HEV용 리튬이차전지 양극소재 및 전구체 개발
- 고효율 Li/SO₂Cl₂ 전지
- 이동통신단말기 RTC 백업용 초소형 chip type 슈퍼커패시터 개발
- 신재생에너지용 하이브리드 형 차세대 슈퍼커패시터 개발
- 바이오 compatible 무선충전 슈퍼전지용 고용량 고안정성 양극재 개발
- 태양광 미러 트랙킹용 하이브리드 초고용량 커패시터
- 전기자동차용 고에너지 150Wh/US\$급 리튬이차전지 음극소재개발

7. 연구진 소개

●● 최병현



- 직급 : 수석연구원
- 연구분야 : SOFC 구성소재 합성, 셀 설계 및 공정 연구 이차전지 양·음극 소재 합성
- E-mail: bhchoi@kicet.re.kr

●● 지미정



- 직급 : 선임연구원
- 연구분야 : SOFC, 이차전지용 양·음극 전구체 및 전극 합성 SOFC 구성 소재 합성 및 셀 성능 평가
- E-mail: philipa@kicet.re.kr

●● 박선민



- 직급 : 책임연구원
- 연구분야 : 나노 스케일, 전지소재 및 유무기 복합 기능소재 합성
- E-mail: psm@kicet.re.kr

●● 이재원



- 직급 : 선임연구원
- 연구분야 : 리튬이차전지 양·음극 전극소재 및 전지 화학 성능평가
- E-mail: jwlee@kicet.re.kr

●● 이미재



- 직급 : 책임연구원
- 연구분야 : SOFC용 구성소재 합성 및 허니컴 및 금속지지형 셀 설계 제작
- E-mail: im1004@kicet.re.kr

●● 노광철



- 직급 : 선임연구원
- 연구분야 : 슈퍼커패시터 및 리튬전지, 다공성 탄소재합성
- E-mail: rkc@kicet.re.kr