

보도자료



미래를 개척하는 지식 공동체



서울대학교
SEOUL NATIONAL UNIVERSITY

| | |
|-----|---|
| 보도일 | 2023. 11. 3.(금) 03:00부터 보도 |
| | 국제엠바고를 준수하여 주시기 바랍니다 |
| 문의 | 연구단장/연구책임자 강기석 교수(02-880-7088) / 교신저자 |
| | 연구단/연구진 유승주, 노주현 연구원(02-880-7185) / 공동 제1저자 |

■ 제목/부제

| | |
|----|--|
| 제목 | 서울대학교 재료공학부 강기석 교수팀, 고 안전성, 고 이온전도성 신규 염화물 고체 전해질 개발 전략 제시 |
| 부제 | 금속 이온 배열을 조절을 통한 고 이온전도성 삼방정계 염화물 고체 전해질 개발 전략 |

■ 요약

| | |
|-----------|---|
| 연구 필요성 | <p>전고체 전지는 상용 전지의 가연성을 해결해 안전성을 확보하고, 고체 극판의 적층을 통한 부피 당 용량의 향상을 위해 개발되고 있다. 고체 전해질의 필수조건으로, 높은 이온전도도($>10^{-3} \text{ S cm}^{-1}$), 양/음극 소재와 접촉을 유지할 수 있는 기계적 변형성과 가동 전압 내 소재의 화학적/전기화학적 안전성이 요구된다. 지금까지 개발된 산화물, 황화물 계열의 고체 전해질은 이온전도도는 높으나 타 필수조건을 모두 만족하지 못했다. 그 대안으로, 높은 이온전도도, 좋은 기계적 물성, 고전압 안정성을 가진 염화물 고체 전해질이 양극용 전해질로 대두되었다. 지금까지 보고된 염화물 전해질은 높은 이온전도도를 보였으나, 이트륨, 스칸듐, 란타늄 원소 등 비싼 희토류 금속을 주로 함유하고 있어 가격적 측면에서 적용 불가능한 소재로 여겨지고 있었다.</p> <p>그 중 삼방정계 구조의 염화물 고체 전해질은 이트륨뿐 아니라 상대적으로 저렴한 지르코늄 원소를 활용하여 합성할 수 있어 경제성까지 갖춘 고체 전해질 후보로 최근 연구되었으나, 타 염화물 조성에 비해 낮은 이온전도도를 가지고 있다는 한계를 보였다. 또한, 합성 방법에 따라 소재 구조의 편차와 이온 전도도의 차이가 커서 상용화가 어려울 것으로 예측되었다. 이에, 이러한 소재 구조의 편차에 따른 고체 전해질의 전도 메커니즘을 밝히고, 구조적 최적화를 통해 지르코늄을 기반으로 한 고 이온전도성 전해질을 개발할 수 있다면 고체 전해질의 전도 메커니즘이 추후 신규 고체 전해질 개발에도 도움이 될 수 있을 뿐 아니라, 염화물 고체 전해질을 활용한 전고체 전지의 상용화가 앞당겨질 것이므로 해당 연구가 필요하다.</p> |
| 연구성과/기대효과 | <p>이차전지 혁신연구소 소속 강기석 교수(기초과학연구원 나노입자 연구단 참여교수) 연구팀은 삼방정계 구조의 염화물 고체 전해질의 구조적 특성인 금속 이온의 조성 및 배치가 리튬 이온의 전도성에 미치는 영향을 세계 최초로 규명했다. 이를 기반으로 리튬 이온의 이동경로를 최적화한 새로운 고체전해질을 설계하는 전략을 제시하였고, 지르코늄계 고 이온전도성 염화물 고체 전해질을 성공적으로 개발하였다. 이 결과는 다양한 염화물 고체 전해질 개발을 촉진하고, 전고체 전지의 상용화를 가속화할 것으로 기대된다.</p> |

■ 본문

서울대 이차전지 혁신 연구소 강기석 교수 연구팀,
차세대 전고체 전지용 고 이온전도성 신규 염화물 고체 전해질 개발

- 기존 황화물계와 산화물계 고체 전해질의 한계를 뛰어넘는 신규 염화물 고체 전해질 개발로 전고체 전지 상용화를 앞당길 것으로 전망
- 염화물 고체 전해질 내 금속 이온의 무질서적 배열이 이온 전도에 미치는 이론적 영향을 세계 최초로 밝혀 내고, 금속 이온의 점유율 조절을 통해 고 이온전도성 신소재 개발
- 세계적 학술지 '사이언스'에 11월 3일자 논문으로 발표

□ 문단 1

- 서울대학교(총장 유홍림)는 이차전지 혁신연구소 소속 강기석 교수(기초과학연구원 나노입자 연구단 참여 교수) 연구팀(박사 과정 유승주, 노주현 연구원)이 차세대 전고체 전지의 핵심 소재인 고체 전해질의 성능을 획기적으로 향상시킬 수 있는 신규 전해질 소재를 개발했다. 이번에 발견한 삼방정계 염화물 고체 전해질 소재는 현재 상용화 단계에 근접한 황화물계 전해질의 단점을 보완할 수 있을 것으로 예상되어, 국내 전고체 전지 개발에 더욱 속도를 낼 수 있을 것으로 예상된다.
- 내연 기관 자동차를 규제하고 전기 자동차를 보급하려는 범세계적 흐름에 맞추어 전기 자동차의 핵심 부품인 이차 전지에 대한 연구가 활발히 진행되고 있는 가운데, 액체 전해질을 이용하고 있는 상용 전지의 가연성/폭발성 문제를 해결하기 위해 난연성의 고체 전해질을 활용한 전고체 전지 개발이 중요한 화두로 떠올랐다.
- 전고체 전지의 상용화를 위해서는 높은 이온전도도, 높은 화학적/전기화학적 안정성과 기계적 변형성을 가진 고체 전해질 소재 개발이 필수적인데, 지금까지 주로 개발되어온 황화물 및 산화물계 고체 전해질은 높은 이온전도를 갖는 조성 개발엔 성공하였으나, 아직까지 이러한 모든 필수 조건을 만족시키는 수준의 개발까지는 미치지 못했다.
- 이의 대안으로, 높은 이온전도도, 기계적 변형성과 고전압에서의 안정성을 가진 염화물 고체 전해질이 양극-전해질의 혼합체인 복합 양극 설계에 있어 적합한 후보 소재로 주목받고 있다. 그러나, 현재까지 보고된 염화물 고체 전해질은 이트륨, 스칸듐, 란타늄 원소 등 비싼 희토류의 금속을 주로 함유하고 있어 가격적 측면에서 적용 불가능한 소재로 여겨지고 있었다.
- 그 중 삼방정계(trigonal) 구조의 염화물 고체 전해질은 이트륨뿐 아니라 상대적으로 저렴한 지르코늄 원소를 활용하여 합성할 수 있어 경제성까지 갖춘 고체 전해질 후보로 최근 연구되었으나, 타 염화물 조성에 비해 낮은 이온전도도를 가지고 있다는 한계를 보였다. 또한, 합성 방법에 따라, 소재 구조의 편차와 이온전도도의 차이가 커서 상용화가 어려울 것으로 예측되었다.

□ 문단 2

- 강기석 교수 연구팀은 이러한 소재의 편차가 삼방정계(trigonal) 염화물 고체 전해질 구조의 특이성에서 기인하고, 구조 내에서 금속 이온의 조성 및 배치가 리튬 이온의 전도성에 미치는 영향을 세계 최초로 규명했다. 특히, 리튬이 이동하는 경로에 메탈 이온이 인접해 존재하는 경우, 정전기적 반발력에 의해 리튬의 이동이 제한되는 반면, 메탈 이온의 점유율이 너무 낮으면 도리어 리튬이 이동하는 경로가 좁아져 오히려

리튬의 이동에 방해가 생긴다는 사실도 밝혔다. 이러한 상충하는 요소들을 적절히 조절하여 전해질을 설계 하면, 고 이온전도성을 가진 소재를 얻을 수 있을 것이라고 보고했다.

○ 이러한 결과를 기반으로 해당 연구팀은 리튬이 이동하는 경로가 충분히 넓고 메탈 이온의 반발력에 의해 고립되는 리튬 이온을 최소화할 수 있는 전해질 조성에 대한 소재 설계 전략을 제시하였고, 해당 전략을 기반으로 지르코늄계 신규 고 이온전도성 염화물 고체 전해질을 성공적으로 개발하였다.

○ 이번 연구결과는 그동안 명확하게 해석되지 못했던 금속 이온의 배치에 따른 삼방정계 염화물 고체 전해 질의 이온 전도성 변화에 대해 규명하고, 새로운 전해질 설계 전략을 제시했다는 점에서 향후 다양한 염화 물계 고체 전해질 개발로 이어질 전망이다. 또한, **향후 경제성과 안정성을 두루 갖춘 신규 고체 전해질 발 견과 더불어 전고체 전지의 상용화에 대한 촉진제로 작용할 것으로 기대된다.**

○ 이 연구결과는 자연 과학 분야에서 세계적으로 가장 권위있는 학술지로 인정받고 있는 '사이언스 (Science)'에 11월 3일(금)자로 게재되었다.

○ 본 연구는 서울대학교 이차전지 혁신 연구소 강기석 교수가 지도하고 박사과정 유승주, 노주현 연구원이 진행하였으며, 한국연구재단 나노 및 소재 기술개발사업 미래기술연구실(2021M3H4A1A04093050)과 롯데 에너지 머터리얼즈의 지원으로 수행되었다.

□ 연구결과

Design of a trigonal halide superionic conductor by regulating cation order-disorder

Seungju Yu[†], Joohyeon Noh[†], Byunghoon Kim, Jun-Hyuk Song, Kyungbae Oh, Jaekyun Yoo, Sunyoung Lee, Sung-O Park, Wonju Kim, Byungwook Kang, Donghyun Kil, Kisuk Kang*
(Science, accepted (will be published in 11/3/23))

염화물 고체 전해질 중 삼방정계 구조를 가진 Li_3YCl_6 , Li_2ZrCl_6 은 고상 합성이 아닌 고 에너지 볼 밀링 방 법을 통해 구조 내 금속 이온의 배열을 무질서하게 변경시켜 합성을 했을 때만 적당히 높은 이온전도도를 가진다. 그러나, 이 수치는 다른 희토류 금속이나 산화물, 황화물 고체 전해질보다 낮은 전도도를 가지고 있고, 전고체 전지 상용화를 위해 요구되는 수치에 도달하지 못한다. 따라서, 본 연구팀은 합성 시 소재 내 금속 이온의 배열 차이에 따른 전도 메커니즘을 분석하고 새로운 고체 전해질 설계 전략을 제시하였다. 해당 구조 내 한 층에서 리튬 이온은 산소의 배위로 인해 생기는 octahedral site - tetrahedral site - octahedral site의 이동 경로를 갖는데, 이 때 리튬 이온은 tetrahedral site에서 금속 이온의 site와 인접 하게 된다. 금속 이온이 존재할 경우 리튬 이온은 이동하지 못하는데, 이러한 경로 차단을 통한 리튬 전도 의 차단을 확실히 없앨 수 있는 경우의 수를 구했을 때, 한 층 내에 금속 이온이 0.444개 이하 존재할 때 리튬 전도의 차단은 일어나지 않는다는 것을 밝혀냈다.

그러나, 한 층 내에 금속 이온이 너무 적을 경우, 층 간 거리의 붕괴가 일어나게 되는데, 이러한 붕괴를 막 을 수 있는 최소 금속 이온의 개수가 0.167개라는 것을 밝혀냈다. 이 두 기준을 통해서 본 연구팀은 고 이 온전도성을 갖는 삼방정계 고체 전해질의 조건을 제시했으며, 실제 $\text{Li}_3\text{Y}_0.2\text{Zr}_0.6\text{Cl}_6$ 이라는 조성의 지르코 늄 기반 고 이온전도성($\sim 1.16 \text{ mS cm}^{-1}$) 고체 전해질을 합성했다. 또한, 이러한 설계 전략을 통해서 더 많 은 조성의 고 이온전도성 고체 전해질이 개발될 것이라고 전망하고, 염화물 고체 전해질을 통한 국내 전고 체 전지의 상용화를 기대해볼 수 있다.