

탄소섬유 복합재를 이용한 구조체 배터리 제조 기술동향



박성민

- 1991-2011. 경북대학교 섬유시스템공학과 학사, 석사 박사
- 1997 DYETEC 시험연구팀 팀장 센터장
- 2012 DYETEC 융합신소재본부 본부장
- 2023-현재 DYETEC 산업소재센터 센터장
- 현재. 한국전과정평가학회 이사, 한국첨단제조기술연구원 이사



문지훈

- 2006. 일본 동북대학교 재료시스템공학과 박사
- 2009. LG실트론 기술연구소 책임연구원
- 2009-현재. 경북하이브리드부품연구원 연구개발본부장
- 현재. 한국탄소학회 이사, 한국기계공학학회 이사

1. 서 론

친환경적이고 안전하며 경쟁력 있는 도로 및 항공운송시스템의 개발은 사회적으로나 상업적으로 매우 중요하다. 유럽에서는 유럽연합 집행위원회의 ERTRAC 및 EPoSS 전략 문서 [1]와 Flight-path2050을 사용하여 친환경 자동차 이니셔티브를 정의하였으며, 유럽연합 FP7 및 H2020 연구자금지원 프레임워크의 Clean Sky 공동 사업을 정의하였다. 친환경 자동차 이니셔티브 및 Clean Sky 공동사업의 핵심은 운수송 분야 도로교통 시스템의 전기화를 가장 시급한 연구 분야로 상정하고 있다. 또한 친환경 차량 이니셔티브는 미래의 경량 전기 자동차 솔루션을 실현하기 위해, 첨단 경량 소재의 필요성이 절대적임을 의미한다. 이에 Airbus는 2050년까지 항공유 등의 화석연료를 사용하지 않는 완전 전기식 100인승 항공기에 대한 비전을 발표하였다.

이는 경량 배터리 복합재에 대한 연구로, 미래 수송용 구조체에서 ‘무질량’ 에너지 활용 및 저장을 위한 미래비전과 전략을 선제적으로 추진하겠다는 야심찬 목표라고 할 수 있다. 이러한 목표는 기계적 부하를 전달하는 동시에 전기 에너지를 저장할 수 있는 다기능 경량 복합 재료인 배터리 개발을 통해 완성될 것이다. 이러한 경량 배터리는 미래의 전기 및 하이브리드 차량의 중량을 대폭 절감할 수 있으며, 자전거, 도시 이동 차량, 자동차, 보트에서 항공기에 이르기까지 에너지 효율이 높고 배출가스가 없는 차량을 만드는 데 기여할 것이다. 경량 배터리의 개발은 전기 자동차, 전기 항공기를 포함한 모바일 애플리케이션에 큰 잠재적 가치를 가지고 있다. 에너지 밀도를 높이는 것과 함께 배터리 무게를 줄이기 위한 또 다른 전략은 에너지 저장 장치에 다기능성을 부여하는 것이다. 예를 들어, 구조체 하중을 견딜 수 있고 구조체 구성 요소를 대체하여 전체 시스템의 무게를 줄일 수 있는 에너지 저장 장치를 만드는 것이다. 이러한 유형의 배터리를 일반적으로 “구조체 배터리” 라고 한다.

구조체 하중을 견딜 수 있고 구조체 구성 요소를 대체하여 전체 시스템의 무게를 줄일 수 있어야 하는 등의

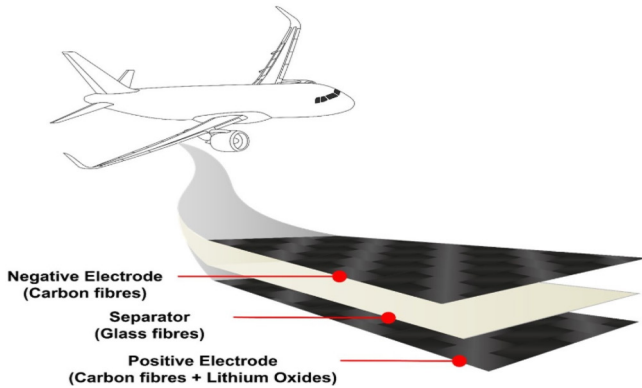


Figure 1. 배터리 기능의 경량 복합재 항공기 구조도 [2].



Figure 2. 구조체 배터리를 이용한 다양한 수송기기술 [3].

요구 조건에 부합하는 재료로는 탄소섬유 강화플라스틱이 손꼽히고 있고, 배터리 보호 덮개 및 다양한 대체품으로의 활용이 연구되고 있다. 한편, 우수한 전기적 특성을 가진 탄소섬유를 배터리 구성품으로 활용하는 연구가 배터리 분야에서 진행 중이고, 이에 더 나아가 탄소섬유가 배터리를 보호하고 배터리 전극 및 하우징 전체 역할까지 동시에 수행하는 구조체 배터리에 대한 연구가 스웨덴과 미국을 중심으로 활발히 연구 중이다. 구조체 배터리 복합재에 대한 연구는 미래 차량구조에서 ‘대량’ 에너지 저장 및 사용을 확립하겠다는 기업의 확고한 의지가 반영된 환경에서 추진되고 있다. 이는 기계적 부하를 전달하는 동시에 전기 에너지를 저장할 수 있는 다기능 경량 복합재료의 개발을 통해 확립될 것이다. 이러한 탄소섬

The car's body panels serve as a battery

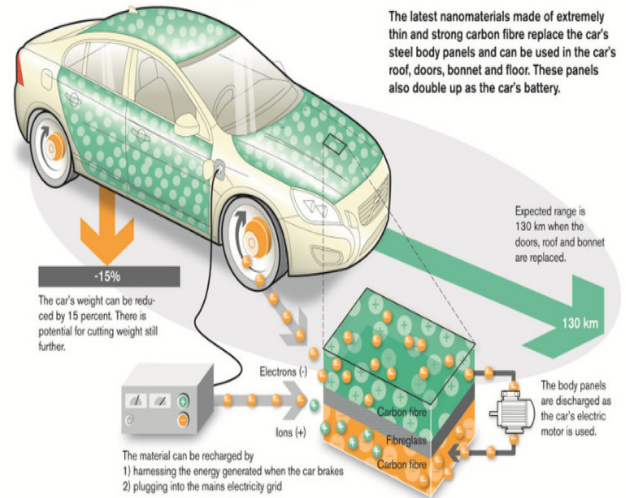


Figure 3. 배터리 역할을 하는 차량의 바디패널 [4].

유 복합재료는 미래의 전기 및 하이브리드 자동차의 무게를 대폭 절감함과 동시에 에너지 저장활용과 더불어 안정적인 구조체를 만드는 분야에 획기적으로 활용될 것이다.

구조체 배터리 복합재는 전기 구동 시스템에 질량이 적은 에너지 저장을 제공하는 것을 목표로 하는 구조체 전력 복합재이다. 구조체 배터리 복합재는 구조체 전해질 매트릭스 재료의 탄소섬유로 만들어진다. 탄소섬유는 높은 기계적 특성, 우수한 리튬 삽입 용량 및 높은 전기 전도성을 활용하여 구조체 음극으로 사용된다. 리튬 철 인산염 코팅 탄소 섬유가 구조체 양극으로 사용된다. 여기서 인산철리튬은 전기화학적 활성 물질이며 섬유는 기계적 하중을 전달하고 전자를 전도한다. 주변 구조 전해질 리튬 이온 전도성이며 섬유사이에 기계적 부하를 전달한다. 이러한 구성요소를 통해 구조체인 배터리 리 하프셀과 풀셀이 다양한 디바이스 아키텍처로 구현된다. 현재 다양한 국가에서 구조체 배터리를 개발하기 위해 크게 두 방향의 개발이 추진되고 있다.

첫 번째로는 가볍고 강한 외부 보강재와 배터리를 통합하는 방법과 두 번째로는 에너지 저장 장치 자체를 구조체로서 견고하게 만들기 위해 다기능 재료를 배터리 구성 요소로 도입하는 방향의 연구가 진행되고 있다. 이러한 연구에 있어 핵심적으로 사용되는 재료가 탄소섬유이다. 이에 본 고에서는 탄소섬유 등의 외부보강재와 기존의 배터리를 통합하는 방법과 에너지 저장장치 자체를 구조체로 견고하게 만드는 방법에 관한 연구개발 동향을 알아보고자 한다.

2. 탄소섬유 구조체 배터리 정의 및 기술적 분류

탄소섬유 (CF)는 직경 5~10 μm 의 단일 원주형 필라멘트로 대부분 탄소 원자로 구성되어 있다. 일반적으로 CF는 폴리머 매트릭스에 함침된 구조체 복합재의 강화재로 사용되고 있다. 강화복합재료는 기존의 금속 부품에서는 얻을 수 없었던 가벼우면서도 강한 특성을 지닌 전례 없는 특성을 나타내기 때문에 항공, 조선, 자동차, 토목, 건축, 건축 등 다양한 산업 분야에 광범위하게 적용되고 있다 [2-4]. 최근 전기자동차 (EV)가 상용화되고 있으며, 배터리 등 재충전 가능한 에너지원이 차량의 전원으로 사용되고 있다 [9]. 특히, 이러한 운송 서비스에서는 외부 충격으로 인한 배터리 폭발과 같은 2차 사고를 예방하여 사고 발생 가능성을 최소화하기 위한 강력한 보호 장치가 모색되고 있다 [6,7]. 배터리 하우징에는 기계적 특성이 우수하기 때문에 일반적으로 금속이 사용된다. 그러나 EVs의 높은 주행거리를 확보하기 위해서는 상대적으로 비중이 높은 금속 하우징이 적합하지 않을 수 있다. 예를 들어 철의 비중은 ~7.86이다. 이에 반해 탄소섬유와 플라스틱으로 구성된 구조체 복합재는 비중이 1~2 정도로 상대적으로 낮아 배터리 하우징에 요구되는 기계적 강도를 만족시킨다 [8].

운송시스템의 전기화는 CO₂ 배출을 줄이고 기후 변화라는 임박한 문제를 해결하기 위한 핵심 기술 중 하나다 [9,10]. 현재 리튬 이온 배터리 (LIB)는 다양한 에너지 저장 장치 중에서 매력적인 성능으로 인해 전기 자동차 (EV) 및 전기 항공기와 같은 전기화에 널리 채택되고 있다 [11-14]. 그럼에도 불구하고, 최첨단 SOA LIB의 에너지 밀도는 여전히 만족스럽지 못하여 전기 운송의 주행거리를 제한한다. 이 문제를 해결하기 위해 고전압 음극[15] 및 고용량 전극 [16-21]과 같이 더 높은 에너지 밀도를 갖는 배터리를 개발하는 데 엄청난 노력이 기울여졌다. 이러한 중요한 방향과 함께 대안적인 전략은 다기능 배터리를 개발하는 것이다. 배터리가 상당한 기계적 부하를 견딜 수 있고 구조체 구성 요소 역할을 할 수 있다면 전체 시스템 중량이 줄어들고 주행거리가 연장될 수 있다 (Figure 4(a)) [22,23]. 예를 들어, 전기 자동차의 지붕과 같은 구조 부품을 구조체 배터리로 교체하면 해당 질량의 20%를 절약할 수 있으며, 이를 통해 더 많은 배터리의 주행거리를 늘릴 수 있다는 것이 입증되었다 (Figure 4(b)) [24,25]. 더욱이, 구조체 배터리는 한 위치 (예: 전기 자동차의 새시)에 집중하는 대신 시스템 전체에 분산될 수 있으므로, 이러한 에너지 분산 저장 설계는 전체 시스템의 안전성과 탄력성을 향상시킬 수

있다. 이러한 “구조체 배터리” 개념은 최근 몇 년 동안 학계와 산업계에서 점점 더 많은 관심을 불러일으켰다 [26].

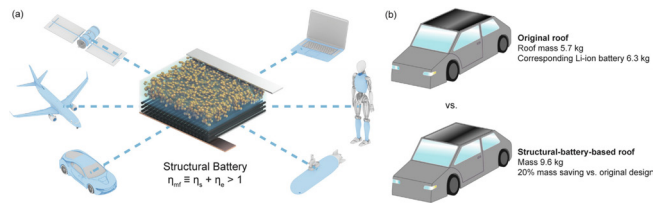


Figure 4. 구조체 배터리 적용예시 및 적용 전후 비교.
 (a) 시스템 수준에서 무게를 줄이거나 에너지 저장을 늘리기 위해 구조용배터리를 다양하게 적용.
 예: 전기 자동차, 소비자 가전, 로봇 공학, 위성, 항공기 및 해양 시스템.
 (b) 전기 자동차 지붕에 구조용 배터리를 사용함으로써 발생하는 대량 절감 결과 개략도[8]. 저작권 2019 IOP 출판.

구조체 배터리의 기본 요구 사항은 적절한 에너지 밀도와 강력한 기계적 특성이다. 그러나 액체 전해질로 채워지고 파우치 백이나 금속 케이스 내부에 밀봉된 전극 및 분리막 층의 대체 스택으로 구성된 SOA LIB는 부하 운반용으로 제작되지 않았기 때문에 기계적 요구 사항을 충족하지 못한다 [27]. 상용 LIB에서 전극은 활물질 입자, 탄소 첨가제, 금속박 양면에 코팅된 폴리머 바인더로 구성된다. 전극의 활물질층은 다공성이 ca. 30%이면 전극의 압축 특성은 기존 구조 재료에 비해 훨씬 낮으며 [28], 인장 특성도 바인더의 작은 부분과 활물질 입자 간의 약한 접착력으로 인해 손상된다 [29-31]. 분리막은 전해질 투과성이 좋지만, 하중 전달 목적으로는 기계적 특성이 좋지 않은 다공성 고분자 필름이다 [32]. 또한, 전극과 분리막 층이 결합 없이 함께 적층되어 있어 층 구성 요소 간의 하중 전달이 좋지 않아 굽힘 강성과 같은 배터리의 기계적 특성도 저하된다 [33]. 결과적으로, 배터리를 기계적으로 강화하기 위한 새로운 설계가 요구되고 있으며, 두 가지 범주의 강화 방법이 제안되었다.

첫 번째는 셀 수준에서 금속외판과 탄소 직물 시트와 같은 견고한 외부 강화 복합재 사이에 배터리를 끼우는 데 중점을 둔다 (Figure 5(a)). 이러한 설계에서 외부 보강재는 주로 에너지 저장에 기여하지 않고 하중 전달을 담당하며 배터리는 주로 전원으로 기능하고 제한된 하중을 견뎌낸다 [34-36]. 따라서 이 전략으로 인한 중량 절감은 제한적이다. 반면, 이 전략은 양산 호환성이 좋다는 점에서 새시, 프레임 등 자동차 부품과 직접 통합되는 셀-투-새시 (CTC)로 불리는 셀이 점점 많아지면서 전기차 업체들 사이에서 주목을 받고 있다. 더 나은 공간

배치와 새로운 재료 및 제조 공정 개발을 통해 성능을 더욱 향상시킬 수 있다.

두 번째는 재료 수준에서 다기능 재료가 하중 전달 구성 요소와 기능성 배터리 구성 요소 역할을 모두 수행하도록 개발된다 (Figure 5(b)). 몇 가지 주목할만한 전략에는 강력한 하우징 전체 및 전극으로 탄소섬유를 사용하는 것, 기계적 특성과 부하 전달을 향상시키는 고체 전해질, 기계적으로 견고한 분리기 및 바인더 등이 포함된다. 재료 개발은 구조체 응용을 위해 배터리의 본질적인 기계적 특성을 향상시키는 데 도움이 될 수 있지만 전기화학적 성능이 손상되지 않도록 신중한 설계가 필요하다.

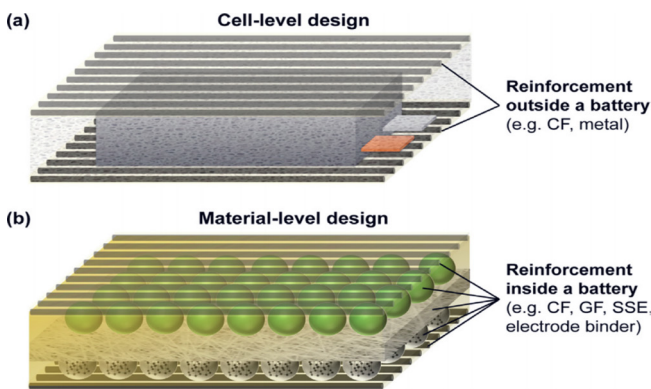


Figure 5. 두가지 타입의 구조체 배터리.

(a) 구조일체형 셀 수준 설계(강화재: 탄소섬유(CF), 금속)[21]

(b) 기능일체형 다중수준 설계(강화재: 탄소섬유(CF), 유리 섬유(GF), 고체 전해질(SSE) 또는 전극바인더).[22,23]

구조체 배터리 복합재의 사용은 운송 응용 분야 그 이상이다. 휴대폰, 노트북 등 이동 가능한 전자제품에 사용될 것으로 예상된다. 그러나 온실가스 배출에 관한 운송 응용 분야가 가장 활발하게 연구되고 있는 분야이다. 자동차 부분의 전기화는 이미 진행 중이지만 항공기의 전기화는 다소 미흡한 상황이다. 2050년까지 완전 전기식 지역 항공기를 만들겠다는 airbus의 비전은 매우 도전적이다. 100인승 항공기로 1시간 비행을 생각해보면, 에어버스가 단순히 이러한 비행에 사용되는 승객당 약 30 kg의 등유를 배터리로 교체하려면 승객당 약 1000 kg의 무게에 해당하는 배터리가 필요하다. 결과적으로, 구조체 배터리 복합재로 2차 구조나 내부 부품을 만드는 방법 이외의 적절한 방법은 없는 듯 하다. 구조체 배터리 복합재는 구조체 전력 복합재라고 불리는 새로운 종류의 다기능 복합재에 속한다. 이는 구조체 커패시터, 슈퍼커패

시터 및 배터리와 같이 전기 에너지를 저장하는 고유한 능력을 갖춘 구조체 복합재로 구성된다. 앞서도 언급했지만, 구조체 배터리를 만들기 위한 기계적 성능과 전기적 성능을 결합하기 위해서는 두 가지 접근 방식이 있다. 한 가지 접근 방식은 구성 요소에 기능을 추가하는 것이다. 이는 예를 들어 복합 라미네이트 내에 박막 배터리를 내장하는 것이다. 이는 본질적으로 샌드위치 구조이다. 이러한 장치는 다기능 재료 구성 요소에 의존하지 않고 오히려 구성요소 (예: 복합 표면 시트, 폼 코어 및 박막 배터리)의 조립체이다. 우리는 이것을 다기능 구조라고 부른다. 두 번째 접근 방식은 모든 구성 요소가 다양한 기능을 수행하는 다기능 소재를 만드는 것이다. 이러한 구조체 배터리 복합재에서 탄소 섬유는 보강재와 전극의 역할을 하고 폴리머는 매트릭스와 전해질의 역할을 한다. 이러한 새로운 유형의 배터리는 전기자동차에서 전원뿐만 아니라 구조체 부품으로도 EVS 다양한 역할을 수행하는 구조체 배터리로 분류된다. 자동차 부품의 보강재로 사용되는 CF는 92% 이상의 순수 탄소로 구성되어 있고 Li의 탄소 재료로의 삽입 전위는 Li^+/Li 의 환원 전위에 매우 가깝기 때문에 CF는 전류 전극, 배터리 양극, 심지어는 음극 역할을 할 수 있다. 동시에 차량의 구조체 몸체 CF의 높은 탄소 함량은 구조 본체를 통해 높은 전류 밀도를 전달할 수 있으며 낮은 전위로 인해 CF는 리튬 이온 배터리의 양극 역할을 할 수 있다.

3. 구조체 배터리 개발의 시초

다기능 구성 요소로 구조체 배터리 복합 재료를 만들려는 첫 번째 시도는 미 육군 연구소 (ARL)에서 이루어졌다. ARL의 Wetzel과 그의 팀은 최초의 구조체 배터리 복합 재료를 만들면서 일반적인 폴리머 전해질 매트릭스에서 구조 전극과 유리 직조 분리기로 다양한 강화 재료를 활용하는 선구적인 작업을 수행하였다. 생성된 구조체 배터리 재료는 유망한 기계적 성능을 보여 주었지만, 전기 절연성이 좋지 않아 전기적으로 작동하지 않았다. ARL의 시도에 이어 Liu (2009) 등은 단섬유 강화 전극과 고체 고분자 전해질 매트릭스 재료를 갖춘 구조체 배터리 복합재를 설계하였다. 그러나 복합전극을 제작하지 못했고, 이온 전도성이 충분한 고분자 전해질을 확인하지 못하였다. 이러한 이유로 그들은 견고한 젤 전해질을 매트릭스로 사용하였다. 이로 인해 기계적 특성이 매우 낮은 작동 배터리가 탄생하였다. 이

러한 연구에서 영감을 받아 Ekstedt (2010) 등은 탄소 섬유 직조 음극, 유리 직조 분리막 및 리튬 철 인산염 (LiFePO₄)/알루미늄 섬유 직조 양극 전극으로 강화된 겔 전해질을 사용하여 기능하는 적층 구조 배터리를 만들었다. 리튬화 탄소와 LiFePO₄를 포함하는 구조체 배터리는 3.3V의 개방 셀 전위를 나타내었다.

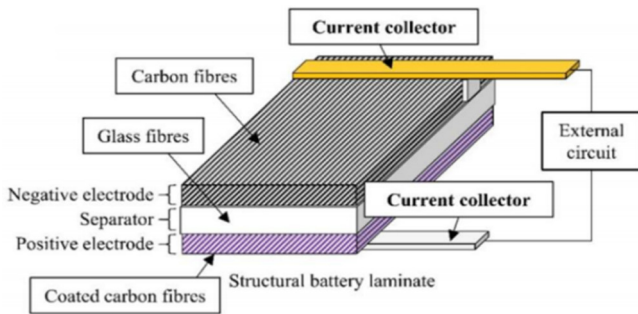


Figure 6. 적층형 구조체 배터리 셀의 개략도.

초기 구조체 배터리설계는 두 개의 전극층이 전기절연 (분리막) 층으로 분리된 적층 구조에 의존하였다. 이 디자인은 복합 라미네이트 및 기존 배터리의 일반적인 아키텍처 기능이므로 확실한 선택이다. 그러나 적층 설계는 작동하는 구조체 배터리를 실현하기 위해 극복해야 하는 몇 가지 실질적인 과제에 직면해 있다. 위에서 지적한 바와 같이, 이러한 과제 중 하나는 결합된 전해질과 매트릭스의 이온 전도성과 기계적 특성이다. 이온전도성이 높고 견고한 폴리머 전해질 시스템이 부족하면 구조체 배터리 복합재의 실현이 방해받을 것이다. 두 번째는 세퍼레이터 층의 두께다. 두꺼운 분리막 층은 구조체 배터리 복합재의 전력 및 에너지 밀도를 크게 감소시키며 내부 저항으로 인해 높은 에너지 손실이 발생한다. 기존 배터리의 분리막 두께는 약 20~30 μm 다. 이는 일반적으로 두께가 100~200 μm 인 기존 복합재 플라이보다 훨씬 얇다.

이러한 과제를 극복하기 위해 새로운 구조체 배터리 전해질이 개발되었다. 구조체 전해질 개발을 위한 한 가지 접근법은 블록 공중합체 전해질 시스템을 복합 매트릭스로 사용하는 Snyder et al (2007)에 의해 처음 제안되었다. 여기에는 구조체 강화제로서 가교 모노머와 폴리머의 확산 강화제로서 에틸렌 옥사이드 (EO)가 풍부한 모노머가 포함되어 있다. 구조체 슈퍼커패시터에 사용되는 대체 접근 방식은 구조체 배터리 복합재에도 고려된다. Shirshova (2013) 등은 이중 연속 폴리머/이

온성 액체 시스템을 제안하였다. 이러한 시스템에서 중공 폴리머 구조는 기계적 부하를 전달하고 액체는 중공채널에서 이온을 확산시킨다. 이러한 접근법을 통해 최대 1 GPa의 강성과 10-4S cm⁻¹ 을 초과하는 이온 전도도를 갖는 구조 전해질이 실현되었다. 사용 가능한 구조 전해질의 다기능 특성을 고려하여 적층형 및 3D 섬유 구조 배터리 아키텍처라는 두 가지 다른 구조체 배터리 설계가 발전하였다. Chalmers University of Technology의 Asp 그룹은 자동차 부품을 CF 강화 복합재 [37,38]로 교체함으로써 얼마나 많은 무게를 줄일 수 있는지 분석했다. 그들의 작업에는 Tesla Model S와 BMW i3라는 두 가지 EV가 선택되었다. 그들의 분석에 따르면, 금속 기반 배터리 팩 하우징을 CF 강화 복합 하우징으로 교체할 수 있으면 배터리 부품에서 차량 중량 감소를 달성할 수 있다. 더욱이, 배터리 팩을 배터리 구성 요소, AI 스페이스 프레임, 내부 또는 외부와 같은 다른 부품과 통합함으로써 최대 50%의 차량 중량 감소를 달성할 수 있다. 현재 구조체 배터리는 자동차, 항공우주 [39-43] 및 해양 시스템에 매력적이다. 전기 자동차의 경우 지붕, 도어 패널, 트렁크 리드, 새시, 심지어 시트 프레임까지 구조체 배터리와 통합할 수 있다. 전자의 세 부분은 후자의 두 부분에 비해 상당한 하중 전달 능력을 갖도록 설계되지 않았다. 따라서 적절한 굽힘 강성은 외부 압력에 대해 형태를 유지하는 지붕, 문 및 트렁크 리드에 사용되는 구조체 배터리의 핵심 매개변수다. 반면 실제로 하중을 견디는 새시와 시트에 사용되는 부품에는 높은 강성과 강도가 필요하다. 마찬가지로, 항공우주 시스템의 바닥, 내부 벽 패널, 날개, 해양 시스템의 바닥 및 선체 스킨에도 구조체 에너지 저장 장치를 채택할 수 있다. 항공우주 응용 분야에서는 질량이 고려해야 할 중요한 요소인 반면, 해양 시스템에서는 부피가 제약 조건이므로 성능 측정 기준은 각각 질량 기반 및 부피 기반 측정에 초점을 맞춰야 한다. 또한 구조체 배터리는 가전제품, 로봇, 의료용 마이크로 전자공학과 같이 작동 시간을 늘리거나 무게를 줄이기 위해 공간이 제한된 장치의 케이스 및 기타 기계 부품 역할을 할 수도 있다. 이러한 응용 분야에서 개발자는 설계를 하기 앞서 언급한 차량 분석과 같이 주요 요구 사항을 먼저 평가해야 한다. 더욱이, 구조체 에너지 저장 장치의 설계는 충격 및 내화학성, 피로, 안전성, 작동 온도 창 및 비용을 포함하되 이에 국한되지 않는 기계적 성능 이외의 성능을 저하해서는 안된다. 게다가 구조체 에너지 저장 시스템 수준의 성능에도 영향을 미칠 수 있다. 결과적으로 분산된 에너지 저장 장치는 시스템의 안전성과 탄력성을 향상시키는 동시에

배터리 관리 시스템의 중요성을 높일 수 있다. 전반적으로 다 기능 효율성에 포함할 속성에 대한 포괄적인 고려 사항은 구조체 에너지 저장 장치 설계 및 평가에 필수적이다.

4. 구조체 배터리 분류

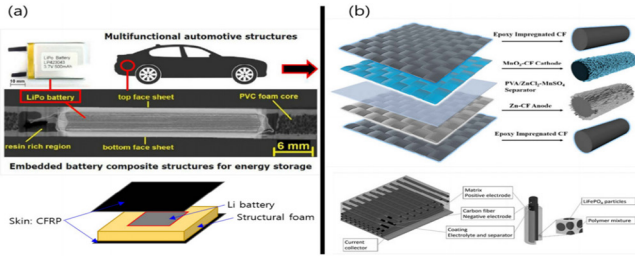


Figure 7. 구조체 배터리의 분류.

(a) 구조일체형 셀 수준 설계(강화재: 탄소섬유(CF), 금속)[21]
 (b) 기능일체형 다중수준 설계(강화재: 탄소섬유(CF), 유리 섬유(GF), 고체 전해질(SSE) 또는 전극바인더).[22,23]

구조체 배터리는 하중 지지 기능을 수행하는 배터리 유형이다. Figure 7은 구조 및 기능별로 분류된 구조체 배터리를 보여준다. 구조일체형은 내하력 복합재료로 보호되는 전체 배터리 (또는 배터리 팩)를 포함하는 반면, 기능일체형은 전극 재료, 전극 지지체, 전류 하우징전체 및 배터리 하우징으로 작동하는 배터리 부품으로 내하중 CF를 포함한다 [45]. 구조체 배터리의 기계적 특성은 항공기 또는 지상 운송을 위한 하중 지지 구조 구성 요소보다 2~3배 낮은 경우가 많다. 따라서 구조체 배터리를 개발하기 위해서는 기계적인 물성을 강화하는 전략이 필요하다. 이는 두 가지 주요 범주로 나눌 수 있다: (1) 보강재가 에너지 저장에서 주요 역할을 하지 않는 구조일체형 셀 수준 설계 (Figure 7(a))와 (2) 기능일체형 다중 수준 설계인 재료 수준 설계 모두에서 탄소복합재 등의 기능성 재료는 에너지 저장과 구조 강화에 모두 사용된다 (Figure 7(b)). 구조일체형 셀 수준 설계에서 배터리는 탄소섬유 직물 기반 라미네이트와 같은 외부 구성 요소로 배터리를 강화하거나, 셀 수준 설계에서 검토한 대로 기계적 특성을 향상시키기 위해 일부 복합재 외관형상 하우징 등의 설계를 검토하고 수정해야 한다. 반면, 기능일체형 다중수준 설계에서는 전극, 하우징전체, 전해질, 심지어 인터페이스와 같은 하나 이상의 배터리 구성 요소가 향상된 기계적 성능을 발휘할 수 있도록 설계되어야 한다. 다양한 셀 구성 요소의 강화를 위한 재료 수준

설계, 재료 개발, CF 기반 재료수준 설계, 구조 분리기, 바인더 및 적층 설계, 고체 전해질 (SSE) 검토, 시뮬레이션이 진행되어야 한다.

5. 구조일체형 셀 수준 설계 제품

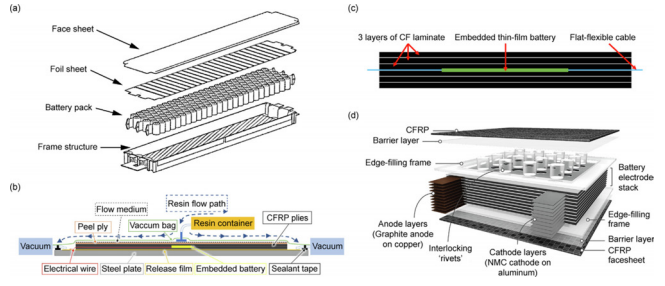


Figure 8. Tesla의 구조체 배터리 팩.

(a) Tesla의 구조체 배터리 팩 설계[44].
 (b) 진공 백 수지 주입(VBRI) 기술의 개략도. 구조체 배터리 제조[28].
 (c) 박막전지 내장 원리. CF라미네이트 사이.
 (d) 연동 리벳과 CF페이스 시트를 사용한 배터리 스택 강화. 허가를 받아 복제됨 [46].

구조일체형 셀 수준 설계의 실제 사례 중 하나는 Tesla의 새로운 EV 모델 Y의 구조체 배터리 팩이다 (Figure 8(a)) [46]. 이는 10% 질량 감소, 14% 정도의 크기 범위 증가 및 부품 수가 절감되어 이루어 졌다 [47]. 배터리팩은 4680형 원통형 배터리셀을 경량 폴리우레탄 (PU) 허니컴 디자인으로 구현해 기계적 특성이 개선돼 전기차의 앞뒤 하부를 연결하는 차체 구조 역할을 하였다. 특히, 강철 페이스 시트를 사용하면 전단 응력을 전달하여 전체적으로 향상된 비틀림 강성을 제공할 수 있다. Tesla의 이러한 상용화 전략 외에도 셀 수준 설계의 미래 전략 중 하나는 배터리를 탄소섬유 (CF) 복합재료로 캡슐화하는 것을 추진하였다. CF 라미네이트에 내장된 배터리는 온도에 민감한 액체 전해질이 포함되므로 낮은 온도와 압력에서 기존 복합 제조 기술을 사용하여 제조할 수 있다. 예를 들어, 습식 핸드 레이업 및 진공 백 수지 주입 (VBRI) 기술은 리튬 폴리머 셀을 포함하는 액체 전해질 배터리 팩에 사용되었으며, CF 라미네이트의 프리프레그를 이용하여, 저온경화를 위해, 20 °C에서 24시간 동안 경화하였다. 폼 코어에 셀이 내장된 CF 라미네이트 샌드위치를 준비하는 데에도 동일한 기술을 사용할 수 있다. 예를 들어, Thomas 등은 LIB 파우치 셀과 폐쇄 셀 스티렌 아크릴로니트릴 (SAN) 폼을 CF 라미네이트 표면 시트 사이에 놓고 45

Wh/kg의 비에너지와 985 Nm²의 굴곡강성을 얻었다. 마찬가지로, 유사한 샌드위치 구조에 내장된 5개의 파우치 셀을 사용하여 이 전략을 통해 94 Wh kg⁻¹의 배터리 성능을 발휘하도록 제품을 제작하였다. 이 캡슐화 전략과 비슷한 제품화 기술은 CF 페이스 시트를 강화 및 배터리 포장으로 사용하는 것이다. 이는 추가 포장이 필요하지 않기 때문에 배터리의 경량화를 5~10 wt.%를 달성할 수 있다. 이러한 공법은 복합 라미네이트의 컷아웃에 박막 리튬 배터리 (TFLB)를 내장하여 구현되었다. 이 제조방법의 원리는 Figure 3(c)에 나타나 있다. 그러나 LIB에는 20 ppm [47] 미만의 초저공기투과 (수분, 산소)가 요구되므로 공기 투과에 대한 CF 복합재료의 장기 안정성을 주의해야 할 필요가 있다. TFLB가 내장된 구조체 배터리는 오토클레이브에서의 더 높은 처리 온도와 압력을 견딜 수 있다. TFLB의 두께는 300 μm 미만 (일반적으로 약 150 μm)이며 라미네이트 층 사이에 삽입할 수 있다 [48]. 폴리머로 밀봉된 전고체 TFLB 팩은 두 층의 CF 프리프레그 사이에 삽입 되었으며, 전기화학적 성능 손실이나 셀 손상 없이 120 °C의 오토클레이브에서 경화되었다. 오토클레이브 제조 가능성 외에도 TFLB의 또 다른 장점은 곡선형 또는 보다 복잡한 모양의 구조체 배터리를 제조할 수 있는 기계적 유연성이다.

캡슐화 전략은 배터리의 인장 특성을 크게 향상시킬 수 있지만 배터리의 서로 다른 층이 서로 미끄러져 응력을 분산시킬 수 있기 때문에, 배터리의 굽힘 특성에 대한 개선은 제한적이다. 이러한 미끄러짐을 방지하고 굽힘 강성을 향상시키기 위해 Fu-Kuo Chang은 평면에 수직인 연동 폴리머 리벳을 천공된 LIB 스택에 삽입하고 CF 라미네이트 표면 시트 사이에 끼우는 연동 리벳 전략을 개발하였다. 이러한 설계를 갖춘 흑연/NMC 셀은 800회 사이클 후 80%의 용량 유지로 131 Wh/kg의 높은 비에너지를 나타내며, 층 간 향상된 하중 전달로 인해 굴곡 강성이 3 Nm²에서 12 Nm²로 증가하였다. 나중에 그들의 그룹은 강화된 배터리에서 높은 임피던스 문제를 해결하는 방법을 제안하였다 [49]. 인터로킹 리벳에 의해 굽힘 강성은 향상되었으나, 질량 증가와 활물질 감소로 인해 에너지 밀도가 약 40% 감소하였다. Zhang et al. 굽힘 강성을 향상시키기 위해 두 개의 Al 페이스 시트와 C 채널 사이에 NMC 음극과 MCMB (중형 탄소 마이크로 비드) 양극을 구조 구성 요소로 적용한 배터리다. 고성능 에폭시 접착제를 사용하여 배터리 코어를 감싸고 전면 시트에 접착하였다. 이 접근 방식을 사용하여 102 Wh kg⁻¹의 특정 에

너지와 781 Nm²의 높은 굴곡 강성을 갖춘 구조체 배터리가 달성되었으며, 이는 상당한 전기화학적 성능 손실 없이 1060 N의 굽힘력 하에서 계속 작동할 수 있다. 셀 수준 설계를 갖춘 CF 강화 구조 배터리의 기계적 특성은 최대 11.6 GPa의 탄성 계수와 113 MPa의 굴곡 강도로 보고되었다. [0°/90°] 섬유 방향을 갖는 적층판에 대해 60-70 GPa의 모듈러스와 600-900 MPa 사이의 강도를 나타내는 고성능 탄소섬유 강화 폴리머 (CFRP)와 비교하여 [50,51] 여전히 개선의 여지가 크다. 일반적으로 배터리와 보강재 모두 주로 단일 기능으로 수행되기 때문에 셀 수준 설계는 다기능 효율의 향상이 제한적이라고 생각된다 [52]. 그러나 이러한 전략은 다기능 재료를 채택하고 그 이점과 장기적인 성능을 입증하기 위해 더 많은 테스트가 필요한 기능일체형 다중기능설계 제품에 비해 실제 적용에 더 가깝기 때문에 가까운 미래에 상용화가 쉽게 진행될 수 있다.

6. 기능일체형 다중수준 설계 제품 - 탄소섬유 기반 재료 수준 설계

최근 몇 년 동안 에너지 효율적이고 지속 가능한 운송 경로를 가능하게 하는 다기능 재료에 대한 관심이 높아지고 있다. 이러한 재료 중 한 종류는 기계적 부하를 전달하는 동시에 전기화학적 에너지를 저장하는 능력을 갖춘 구조용 배터리이다. 이러한 기능을 결합함으로써 구조체 배터리는 미래의 전기 자동차 및 장치에 상당한 질량 및 부피 절감을 제공한다. 개별 라미네이트는 배터리 셀의 다양한 구성 요소 (전극, 분리막 등)에 해당한다. 이러한 적층판을 적층판으로 쌓으면 생성된 재료는 구조체 용도에 일반적으로 사용되는 기존의 섬유 강화 고분자 복합재와 유사한 기계적 특성을 제공한다. 비교를 위해 기존의 리튬이온 배터리와 적층 구조 배터리의 내부 구조를 Figure 9에 개략적으로 나타내었다. 적층형 구조 배터리의 음극 및 양극은 탄소 섬유로 강화된 구조체 배터리 전해질 (SBE)로 구성된다. SBE는 액체 전해질을 포함하는 이중 연속 폴리머 네트워크다. 따라서 SBE는 기계적 부하를 전달하고 이온을 전달하는 능력을 갖추고 있다. 이전 연구 [53,54]는 탄소섬유의 우수한 특정 기계적 및 전기적 특성을 보여주었기 때문에 다기능 응용 분야에 매우 적합하다. 양극에서 탄소섬유는 리튬 금속 산화물 또는 올리빈 기반 입자 (예: LiFePO₄), 결합제 및 전도성 첨가제로 코팅된다.

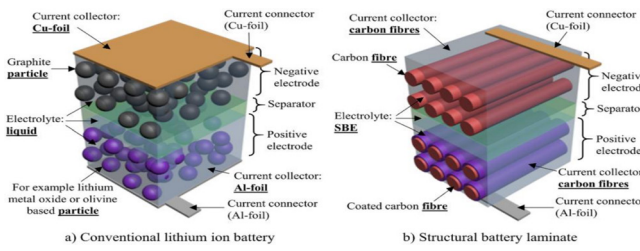


Figure 9. 리튬 이온 배터리와 구조체 배터리 개략도.
(a) 기존 리튬 이온 배터리
(b) 구조체 배터리의 개략도.
굵은 밑줄이 그어진 텍스트는 두가지 유형의 배터리 셀 간의 주요 차이점을 나타냅니다. SBE=구조용 배터리 전해질.

두 개의 전극은 예를 들어 SBE의 얇은 층으로 만들어진 다공성 폴리머 분리기에 의해 분리된다. 음극의 섬유와 양극 코팅의 입자는 구조체 배터리 셀에서 활성 전극 물질 (리튬의 호스트) 역할을 한다. 기존 리튬 이온 배터리에서 전극은 폴리머 바인더를 사용하여 금속 호일 (하우징전체)에 접착된 전극 입자와 전도성 첨가제 (예: 흑연 입자 및 카본 블랙)로 구성된다. 두 전극은 다공성 분리막으로 분리되어 있다. 이 다공성 구조는 액체 전해질에 담겨 이온 전달이 가능하다. 따라서 적층 구조형 배터리 셀은 기존 배터리 셀과 비교하여 세 가지 차이점이 있다. 음극의 활성 전극 물질은 입자 대신 섬유이고, (ii) 액체 전해질 대신 SBE를 사용하고, (iii) 섬유 (두 전극 모두)는 전류 수집 장치로 가능하다. 후자는 구조체 배터리 전극 (Figure 9 b)의 상단 및 하단 가장자리가 기존 배터리 셀처럼 금속 호일로 완전히 덮일 필요가 없음을 의미한다. 또한, SBE의 이온 전도도는 10^4 S cm^{-1} 정도인 것으로 보고되었으며, 기존 액체 전해질의 전도도는 훨씬 더 높으며 10^2 정도일 수 있다. 주변 온도에서 S cm^{-1} [55]. 더욱이, 탄소섬유의 전기전도도는 일반 리튬 이온 배터리의 하우징전체로 일반적으로 사용되는 구리 및 알루미늄보다 약 3배 정도 낮다. 이는 셀의 기하학적 및 위상학적 특성, 다양한 층의 두께, 부피 분율/섬유 포장, 구성 요소의 운송 특성 등이 기계적 및 전기적 성능에 상당한 영향을 미칠 것으로 예상된다는 것을 의미한다.

7. CF 기반 구조체 배터리 전극

탄소섬유 (CFs)는 배터리 전극에서 활물질과 하우징 전체 역할을 모두 할 수 있다. 활물질로 사용될 때 CF는 LIB의 양극 역할을 할 수 있으며, 이온 전도성 전해질로 지지되고 둘러

싸여야 한다. 비정질 탄소와 흑연 탄소에 구성된 CFs의 터보스트라틱 미세 구조는 흑연에서 발생하는 것과 비교할 수 있는 방사상 (8~13%) 및 세로 (1%) 팽창 하에서 Li 이온의 삽입을 허용한다 [56]. 마찬가지로, CF에 K-이온 [57] 및 Na-이온 [58]을 삽입하는 것은 CF 기반 구조 배터리에 대한 추가 잠재적인 셀 화학을 나타내지만 아직 보고되지는 않았다. 최신 폴리아크릴로니트릴 (PAN) 기반 CF는 개별 섬유에 대해 영률이 250~600 GPa이고 인장 강도가 4~7 GPa인 높은 고유 기계적 특성을 나타낸다 [59-64].

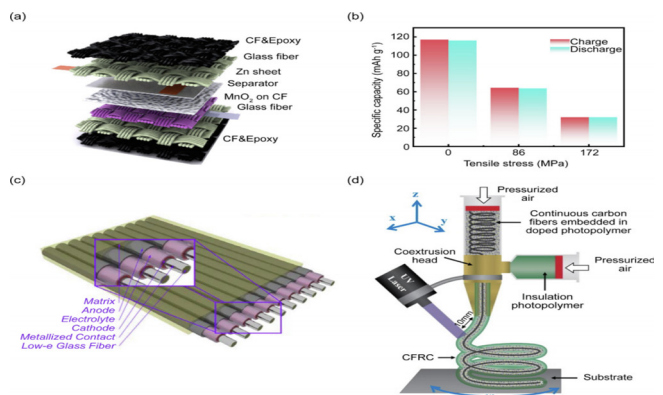


Figure 10. CF기반의 구조체 배터리 전극.
(a) Zn이온 구조 배터리의 재료 수준 설계
(b) 인장 응력 하에서의 비용량. [51].
(c) 구조체 배터리 설계를 위한 박막 배터리 코팅이 적용된 개별 CF.
(d) CF와 광중합체 수지의 공압출 증착 CF강화 복합구조물을 생산합니다.

7.1. 폴리설파이드의 전착

CF는 접착력을 향상시키고 외부 기계적 하중 하에서 기판에서 활물질의 열화 또는 박리 위험을 줄인다. Huang 등은 응용된 Li 주입 CF 양극과 $\text{Li}_2\text{S}_8/\text{CF}$ 음극을 갖춘 구조체 Li-S 배터리를 시연했는데, 이는 배터리 구성 요소의 총 질량을 기준으로 43 Wh kg^{-1} 의 특정 에너지를 달성하였다. 리튬 이온 배터리 (LIB) 외에도 CF 기반 하우징전체는 구조체 아연 이온 배터리 (ZIB)에도 사용되었다. $\text{MnO}_2@\text{CF}$ 음극을 사용하여 활성 물질의 질량을 기준으로 $\text{Zn}@\text{CF}$ 양극의 경우 182 Wh kg^{-1} [68], Zn 시트 양극의 경우에는 205 Wh kg^{-1} [69]의 비에너지가 최근 보고되었다. Figure 10(a)에 표시된 내부 ($\text{MnO}_2@\text{CF}$, GF 분리막, Zn 시트 양극)와 외부 강화 (CF 및 GF 라미네이트)의 조합은 230 MPa의 높은 굽힘 강도와 인장 하에서 셀 용량 감소로 이어진다. 스트레스 (Figure 10 (b)).

Table 1. 구조체 배터리 전략 및 성능 성과 요약

영률(E), 극한 인장 강도(UTS), 굴곡 탄성률(Ef), 굴곡 강도(rf), 굴곡 강성(D), 비에너지는 활성 물질(active) 또는 모든 전지 구성 요소(cell)를 기준으로 계산되었습니다.

Strategy	Reinforcement type	Cell type	Specific energy (Wh kg ⁻¹)	Mechanical performance	Cycle life	Year
Embedding 5 LIBs between foam structure in CF laminate sandwich	external CF	LiPo pouch cell	ca. 94.4* (cell)	E = 9.1 GPa, UTS = 95.5 MPa	not tested	2020
LIB sheets with interlocking rivets between CF laminate sandwich	external CF, interlocking rivets	Graphite/ NMC (LIB)	131 (active)	D = 12.1 N m ²	80% capacity retention after 800 cycles	2019
CF anode and current collector, structural electrolyte, GF separator	internal CF, GF, electrolyte	CF/LFP (LIB)	23.6 (cell)	E = 25 GPa, UTS = 300 MPa	High capacity retention for 60 cycles	2021
Graphite@CF anode, LFP@CF cathode between CF laminate sandwich	internal CF, external CF	Graphite/LFP (LIB)	106 (active) 37 (cell)	E = 1.8 GPa, UTS = 213 MPa	High capacity retention for 50 cycles	2020
Embedding LIBs between foam structure in CF laminate sandwich	external CF	Li pouch cell	ca. 45 (cell)	D = 985 N m ²	not tested	2012
Embedding LIBs transversal stacking between CF laminate sandwich	external CF, internal stacking	MCMB/NMC (LIB)	102 (cell)	D = 781 N m ²	86% capacity after 190 cycles	2017
Embedding 2 LIBs between foam in CF laminate sandwich	external CF	LiPo pouch cell	ca. 72* (cell)	E _f = 11.6 GPa, σ _f = 101 MPa	not tested	2020
LFP@CF cathode, CF anode	internal CF	CF/LFP (LIB)	222 (active)	not tested	88% capacity retention after 300 cycles	2021
PS@CF cathode, Li@CF anode	internal CF	Li/PS (LIB)	43 (cell)	Electrode: E = 9.2 GPa, separator: E = 1.2 GPa	81% capacity retention after 200 cycles	2020
MnO ₂ @CF cathode, Zn@CF anode	internal CF, external CF	Zn/MnO ₂ (ZIB)	182 (active)	E = 12.5 GPa, UTS = 293 MPa, E _f = 4.4 GPa, σ _f = 181 MPa	88% capacity retention after 100 cycles	2021
MnO ₂ @CF cathode, Zn sheet	internal CF, GF, external CF, GF	Zn/MnO ₂ (ZIB)	205 (active)	E = 3 GPa, UTS = 180 MPa, E _f = 12.9 GPa, σ _f = 230 MPa	85% capacity retention after 300 cycles	2022
NH ₄ V ₄ O ₁₀ @CF cathode, GF separator, SPE/kaolin, CF laminate sandwich	internal CF, GF, SPE, external CF	Zn/NH ₄ V ₄ O ₁₀ (ZIB)	159 (active)	E = 5.7 GPa, UTS = 166 MPa, E _f = 52.4 GPa, σ _f = 584 MPa	95% capacity retention after 500 cycles	2022

(*The value was calculated from the reported volumetric energy density and mass density).

7.2. 내부 전극 및 하우징 전체로서의 CF VS 외부 강화로서의 CF

복합재의 기계적 성능은 구성 요소의 설계와 특성에 의해 영향을 받는다. 구조체 배터리의 경우 굽힘 시 강성은 중요한 엔지니어링 기준이며, 이는 강화 부품이 배터리 내부에 배치 되는지 아니면 외부에 배치되는지에 따라 달라진다. 그러나 외부 강화 구조 배터리의 에너지 밀도의 잠재적인 증가는 추가 강화 질량과 기계적 특성에 의해 제한되는 반면, 배터리 내부에 통합된 다기능 구조 구성 요소는 이상적으로 추가 중량을 추가하지 않는다. 여러 연구에 따르면 외부 강화 전략은 샌드위치 설계의 구조 층 사이에 배터리를 내장할 경우, 두 개의 서로 다른 구성 요소가 모두 유지되기 때문에 더 높은 비에너지와 기계적 성능을 달성하는 경향이 있다. Table 1은 구조체 배터리에 대한 다양한 전략과 성능 성과를 요약한 것이다.

7.3. 마이크로 배터리 셀로서의 개별 CF

박막 배터리 코팅이 있는 하중 지지 기관인 개별 CF의 원리는 2001년에 처음 소개되었으며 power fibers라고 한다. Figure 10(c)에 표시된 배터리 구성 요소의 개별 층에는 진공 증착, 마그네트론 스퍼터링 및 전자빔 증발을 포함한 다양한 기술이

적용되었다. 여러 개의 섬유를 접착 매트릭스에 내장하고 두 개의 폴리(에틸렌 테레프탈레이트) (PET) 호일 사이에 끼울 수 있다. CF는 고분자 전해질로 표면을 코팅하여 구조체 배터리를 제조하기 위한 활성 전극 재료로 사용될 수도 있다. CF 토우에 470 nm 두께의 Li-triflate 함유 폴리메타크릴레이트 코팅이 전기코팅 기술로 시연되었다 [71]. 코팅된 CF 토우는 전기화학적 성능을 입증하기 위해 유리 미세섬유 분리막과 Li 금속으로 조립되었다. 또 다른 연구에서는 CF와 도핑된 기능성 광중합체 수지의 UV 보조 공압출 증착을 활용하여 독립형 CF 강화 복합 구조를 인쇄했는데, 이는 완전한 기능을 갖춘 구조체 LIB로 사용되었으며, 여기서 각 개별 섬유는 마이크로 배터리 셀 역할을 한다 (Figure 10(d)).

7.4. 탄소섬유에 전지 활물질 접착

최근 몇 년 동안 몇몇 그룹에서는 CF를 기계적 지지체 및 활성 물질로 사용하여 구조체 슈퍼커패시터를 시연했지만, 비에너지 밀도는 1.0 Wh kg⁻¹ [72,73] 만큼 낮으며 제한적인 성공만 거두었지만, 여전히 낮은 에너지밀도를 나타내는 구조체 리튬 이온 배터리 [74]가 보고되었다.

더욱이, 양극 전극으로 사용되는 탄소섬유는 충방전 과정에서 리튬화/탈리튬화가 일어나기 때문에 CF에 기계적 응력과 피로가

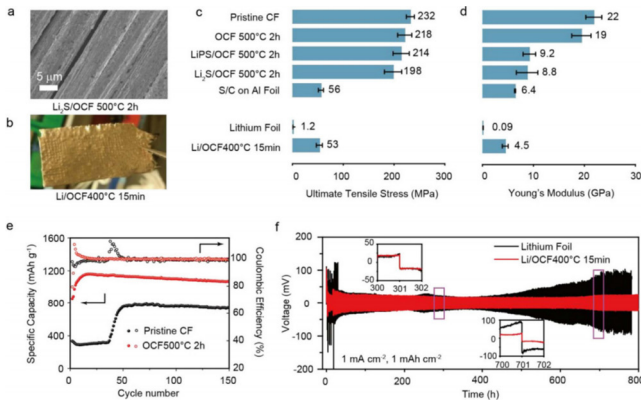


Figure 11. 탄소섬유에 전기 활물질 접착.

- (a) Li₂S 증착 후 OCF의 표면 형태.
- (b) 용융 리튬 침투 후 OCF 조각의 디지털 이미지.
- (c) UTS 및 (d) 기존 입자 기반 전극과 비교한 탄소섬유 강화 전극의 영률.
- (e) 깨끗한 CF(검은색 곡선) 및 OCF 500°C 2시간(빨간색 곡선)을 사용한 폴리설파이드 음극의 사이클링 성능.
- (f) b의 기존 Li 포일(검정색) 및 Li/OCF 복합재를 사용한 Li/Li 대칭 셀의 사이클링 안정성. 전류와 증착 용량은 각각 1.0 mA cm⁻²와 1.0 mAh cm⁻²이다. 삽입된 그림은 150번째와 350번째 사이클의 전압 프로파일을 보여줌[50]

쌓여 결국 배터리 고장으로 이어질 수 있다. CF의 리튬화 및 탈리튬화 과정에서 기계적 응력을 최소화하기 위해 CF는 다른 활성 물질로 코팅된다. 이 접근 방식은 CF의 리튬화/탈리튬화로 인한 배터리 고장을 방지했지만 다른 문제가 발생하였다. CF에 코팅된 활물질은 전기 충전 중에 CF 표면에서 박리 되었으며, 활물질의 박리로 인해 전기 고장이 발생하였다 [75]. 표면 접착력을 향상시키기 위해 Huang et al. 사이징제를 제거하기 위해 공기 중에서 가열하여 깨끗한 CF를 처리하고 CF 표면에서 산화물이 발생하는 산화된 CF (OCF)로 전환한다. 산화 공정에서 CF 표면은 C=O 그룹이 풍부해지고 표면산화는 OCF 지지체에 활성 물질의 전기화학적 증착을 더 좋게 할 수 있다. 구체적으로 그들은 1M 폴리설파이드 음극액과 결합된 CF (T300, 3K)를 음극으로 사용하였다. 충전/방전 과정에서 황과 Li₂S₂/Li₂S는 OCF에 등각적으로 전착되고 활성 물질과 OCF 사이의 견고한 접착이 완성된다 (Figure 11). 양극 측에서는 용융된 리튬이 OCF 매트릭스에 침투된다. 불가피한 Li 삽입은 탄소섬유의 기계적 특성을 감소시키지만, 과도한 리튬 금속은 소용된 OCF를 서로 묶는 접착제 역할을 하여 양극의 기계적 강도를 향상시킬 수 있다. Figure 11(f)은 활물질과 OCF 지지체 사이의 접착력이 향상되어 배터리 배터리 성능이 향상되었음을 추론할 수 있다. Li/OCF 전극이 있는 Li/Li 대칭 셀은 안정적인 전압 프로파일과 1.0 mAcm⁻²의 전류 밀도

에서 800시간 동안 20 mV의 작은 과전위를 나타낸다. 더욱이, 20 MPa 미만에서도 OCF 매트릭스 기반 구조 배터리는 배터리 성능 저하가 거의 나타나지 않았다 (Figure 12).

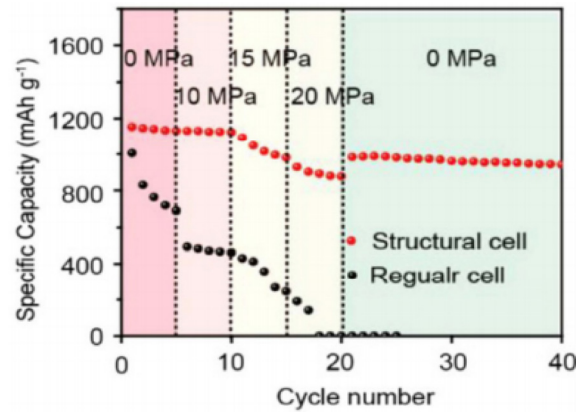


Figure 12. 다양한 압축 응력에서 두 셀의 전기화학적 성능.

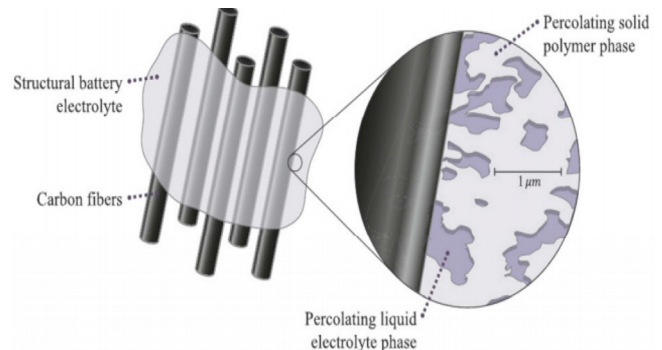


Figure 13. 구조체 배터리 전해질 내 탄소섬유.

구조체 배터리 내에서 탄소섬유는 구조체 배터리 전해질에 포함됩니다. 이 매트릭스 재료는 고체 폴리머의 침투 네트워크를 사용하여 강화 섬유 사이의 하중을 전달하고 액체 전해질 네트워크를 통해 리튬 이온을 전도[57]

Xu et al.은 CF 표면에 대한 고체 폴리머 상과 액체 전해질 상을 포함하는 반고체 매트릭스 혼합물의 접착 특성을 연구하였다. 고체 폴리머 상은 이온 전도 매체인 액체 전해질이 CF에 무시할 정도로 부착되는 동안 폴리머 상이 CF를 단단히 붙잡기 때문에 배터리의 기계적 견고성을 제공한다 [76]. 매트릭스 혼합물은 Figure 13에 개략적으로 설명되어 있다. 이 연구에서는 서로 다른 크기를 사용하여 매트릭스 혼합물과 두 가지 탄소섬유 유형 (T800H-6k-40 B 및 T800S-12 k-50C)에 대해 두 가지 다른 혼합 제형을 사용하였다. 섬유와 매트릭스 혼합물 사이의 접착력을 조사하기 위해 마이크로본드 테스트가 채택되었다. Figure

13에서 섬유 크기는 계면 접착력에 거의 영향을 미치지 않는 것으로 보이지만 서로 다른 액체 전해질에 따라 계면 접착력에 상당한 차이가 발견되었으며 이는 전해질의 다양한 단량체와 관련될 수 있다. 결과는 CF에 단단히 접착되는 경화성 에폭시 수지 또는 폴리머를 사용하여 구조체 배터리의 기계적 견고성을 더욱 추구할 수 있음을 시사하였다 [77-79].

7.5. 활물질 매트릭스로 CF 함침

CF에 활물질을 함침시키면 특히 CF가 배터리 전극의 주요 전류 전도 경로일 때 비용량과 에너지 밀도가 결정된다. 활성 물질이 CF 표면과 접촉하는 곳은 현재 수집을 위한 실제 활성 영역이다. 이 접근법은 높은 수준의 함침이 달성될 수 있다면 하우징 전체의 특정 표면적을 크게 향상시킬 수 있다. Park et al.은 LiFePO_4 , 카본 블랙, PVDF 및 NMP로 구성된 전극 슬러리로 직조 탄소 직물 (하우징전체)을 함침하는 방법을 연구하였다 [80]. 본 연구에서는 하우징 전체로 직조 탄소섬유를 사용하였고, 전극 슬러리를 직조 탄소직물에 함침시키기 위해 Si 고무와 오토클레이브를 사용하였다. 전극 슬러리의 두께를 달리한 시편을 이용하여 함침 정도와 전지 성능을 평가하였다. 전극 슬러리의 두께가 증가하더라도 직조 탄소직물의 함침 정도는 거의 동일해 보인다. 두 경우 모두 전극 슬러리가 직조 탄소섬유 위에 30~80 μm 두께의 층을 형성한다. 전극 재료의 두께가 다르더라도 함침 불량으로 인해 배터리 용량이 제한될 수 있다. 탄소직물에 전극슬러리를 함침시키는 연구는 아직 초기 연구단계다. 직물의 종류, 전극 슬러리의 점도 등을 조절하여 전지 성능을 향상시킬 여지가 많다.

8. 구조 분리기, 바인더 및 적층 설계

활물질 및 하우징 전체와 마찬가지로 SOA 배터리의 기존 분리막 및 바인더도 뛰어난 기계적 특성을 갖도록 설계되지 않았다. 따라서 전기화학적 성능을 크게 저하시키지 않으면서 다기능 에너지 저장 장치의 합리적인 설계를 통해 기계적 특성을 크게 향상시켜야 하므로 다기능 효율성이 향상된다. 아라미드 나노섬유 (ANFs)는 널리 사용되어 왔다. Ming et al. 이후 다양한 장치에서 막을 강화하였다. 2011년에 초강력 ANFs를 합성하는 직접적이고 제어 가능한 방법을 개발하였다. LIB에서는 우수한 기계적 특성으로 인해 리튬 수지 성장을 억제하기 위해 ANF 기반 분리막이 처음 제안되었다. 1~10 GPa의 영률은 층별 딥 또는 스핀 코팅 방법을 통해 구현되었으며, 이러한 ANF 기반 분

리막을 갖춘 배터리는 모두 기존 배터리와 비교하여 유사하거나 더 나은 사이클링 성능을 보여주었다 [81].

Patel과 동료들은 먼저 ANFs 기반 분리막이 구조체 배터리의 유망한 구성 요소 후보라고 제안하였다. 집중적이고 복잡한 합성과 같은 이전 ANF 기반 분리막 연구의 단점을 피하기 위해 그들은 Figure 14(a)에 표시된 대로 수정이나 첨가제 없이 ANFs 분리막을 제조하기 위해 간단한 진공 여과 기술을 채택했다. 준비된 분리막은 높은 영률을 가졌다.

8.8 GPa (Figure 14(b))이지만 작은 기공 크기 (평균 0.8 nm)로 인해 이온 전달을 방해하므로 배터리 용량과 사이클링 안정성이 크게 감소하였다 (Figure 14(c)). 나중에 Wang et al.은 ANFs 분리막의 기공을 20-60 nm로 확대하는 공정을 수정하였으며 분리막의 영률은 2.8 GPa로 유지되었다. 이러한 ANFs 분리막을 갖춘 Li/LiCoO_2 및 $\text{Na/Na}_2\text{Ti}_3\text{O}_7$ 셀은 사이클링에서 Celgard 2400 분리막을 사용하는 동일한 셀의 성능을 능가한다 [82].

분리막 외에도 구조체 배터리의 기계적 특성을 향상시키기 위해 새로운 바인더도 설계되었다. 지난 수십 년 동안 전극 입자와 하우징전체를 더 잘 접착하기 위해 다양한 바인더가 개발되었다 [83,84]. 구조체 배터리용으로 의도적으로 설계되지는 않았지만 일부는 구조체 에너지 저장에 잠재적인 응용 가능성을 보여주었다. 예를 들어, Kovalenko와 동료들은 영률이 4.3 GPa [85], 모듈러스가 10~22GPa 인 바인더로 리튬 치환 폴리(아크릴산) (PAA)을 제안하였다 [86]. 젤라틴 및 곤약 글루코만난 [87-91]과 같은 다른 강력한 결합체와 함께 이러한 재료를 사용하여 전극의 모듈러스와 강도를 향상시킬 수 있다. 또한, 폴리아크릴로니트릴 (PAN) 및 알긴산 나트륨과 같은 일부 바인더는 기존 바인더에 비해 하우징 전체에 더 높은 접착 강도를 갖는 전극 복합재를 부여할 수 있으며 [92], 이는 전극이 손상되지 않고 외부 부하하에서 전기화학적 기능을 유지하는 데에도 중요하다.

ANFs를 분리막 재료로 채택하는 것 외에도 Lutkenhaus 그룹은 ANFs가 구조 전극에 대한 좋은 바인더 후보가 될 수 있다고 제안하였다. 2017년에 그들은 인장 계수가 13GPa 인 환원된 그래핀 산화물 (rGO)/ANFs 복합 슈퍼커패시터 전극을 설계하였다 [93]. 달성된 견고성은 그래핀과 ANFs의 개별적인 높은 고유 기계적 특성과 효과적인 하중 전달을 가능하게 하는 광범위한 수소 결합 및 p-p 상호 작용에 기인한다. 나중에 그들은 카르복실 (-COOH) 및 아민 (-NH₂) 그룹 또는 탄닌산을 사용한 rGO의 화학적 기능화가 결합을 더욱 강화하고, 결과적으로 전극 모듈러스를 최대 25 GPa까지 향상시킬 수 있음을 발견하였다. 이러한 진전을 바탕으로 Lutkenhaus 그룹은 그래

핀 (GO), 가지형 ANF (BANF) 및 Si 또는 LFP와 같은 활성 물질의 DMSO 용액과 그래핀 (GO)의 추가 환원을 통해 모듈러스가 5인 강력한 전극을 진공 여과하여 시연했다. 5-7 GPa를 실현할 수 있다 (Figure 14(d)).

준비된 rGO/80 중량% LFP/5 중량% BANF 전극은 158 mAhg^{-1} 의 특정 용량을 제공할 수 있다. 0.3C (Figure 14(e))이고 0.6 C에서 200회 사이클 후 66%의 용량 유지율을 보였다 (Figure 14(f)). Newman J et al는 달성된 높은 기계적 특성과 사이클링 안정성이 강한 rGO 기반에 활성 물질을 접착하는 바인더 역할을 하는 BANF에 기인하며 CF 기반 전극보다 더 높은 활성 물질 로딩을 허용한다고 믿었다 [116]. 이러한 연구는 바인더에 대한 현명한 선택이 구조체 전극을 실현하기 위해 CF 이외의 새롭고 강력한 기판을 생성할 수도 있음을 나타낸다. 구조체 전극, 분리막 및 바인더에 대한 이러한 모든 개발은 개별 층 구성 요소를 강화함으로써 배터리의 더 높은 기계적 특성을 달성할 수 있음을 나타낸다.

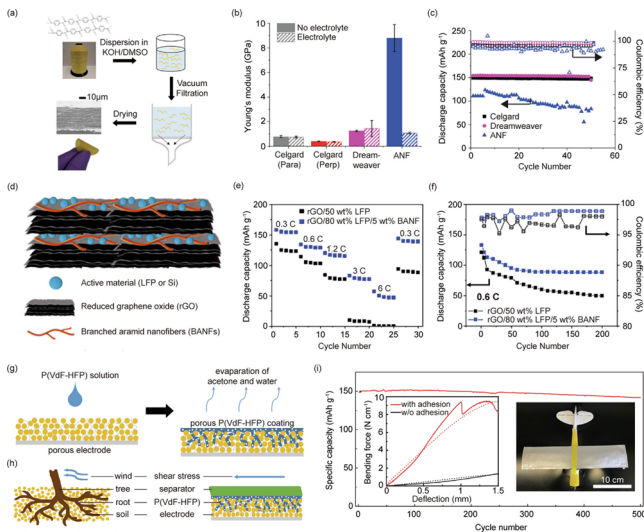


Figure 14. 구조체 전극, 분리막 및 바인더.

- (a) ANF 분리의 형성을 나타내는 도식.
 (b) Celgard(평행 및 수직 방향), Dreamweaver 및 ANF에 대한 영률.
 (c) ANF, Celgard 및 Dreamweaver 분리막으로 조립된 배터리의 사이클 안정성. [55].
 (d) rGO/BANF 리튬 이온 배터리 전극의 도식적 표현.
 (e) 다른 정전류 사이클링 C-속도(0.3-6C)
 (f) 리튬 금속 반쪽에서 rGO/50wt% LFP 및 rGO/80wt% LFP/5wt% BANF에 대해 0.6C에서 200주기 동안 정전류.
 (g) 트리형 전극의 제조 공정 개략도. 뿌리 모양의 구조에 이어 열간 압착을 통해 분리막에 접착
 (h) 강풍에 맞서는 나무(왼쪽)와 전극/분리막의 비유. 굽힘에 의해 발생하는 전단 응력에 대한 접착력(오른쪽).
 (i) 전극/분리막 접착력을 갖춘 흑연/NMC532 전체 셀의 사이클링 성능.[25]. 저작권 2021 Wiley-VCH GmbH.

그들은 분리막과 다공성 물질을 접착하기 위해 생체에서 영감을 받은 나무뿌리 모양의 폴리(비닐리덴 플루오라이드-코-헥사플루오로프로필렌) (PVdF-HFP) 바인더를 개발하였다. Figure 5(g-h)에 표시된 것처럼 확장 가능한 코팅과 핫 프레스링을 통해 전극 층을 단단히 고정한다. 계면 PVdF-HFP 바인더는 전해질 투과에 대해 다공성이 높았으며 모든 층이 전체적으로 구부러짐에 따라 흑연/NMC532 배터리의 굴곡 탄성률을 11배에서 3.1 GPa로 향상시킬 수 있었다 (Figure 14(i) 왼쪽 삽입). 아주. 굴곡 탄성률이 높은 기계적으로 강화된 배터리는 UAV 모델의 유일한 동력원이자 날개 역할을 하는 것으로 추가로 입증되었다 (Figure 14(i) 오른쪽 삽입). 도입된 계면 바인더 층은 배터리 무게를 ca 만큼만 증가시켰다. 3%이고 해당 배터리는 500회 사이클 후에도 95.5%의 높은 용량 유지율을 유지하였다 (Figure 14(i)). 나중에 Ransil et al.은 전극과 분리막 층을 접착하기 위해 액체 전해질의 나노압을 기반으로 영률 >50 GPa의 규산나트륨 물유리 바인더를 보고한 다음 50사이클 이후 80 Wh kg^{-1} 을 유지하는 94 Whkg^{-1} 의 특정 에너지를 갖는 흑연/LFP 구조 배터리를 제안하였다 [96]. 성공적인 구조체 분리막과 결합체가 전해질에 노출될 때 기계적 강도를 잃지 않아야 하며 사이클링 중에 이온 수송을 심각하게 차단해서는 안 된다는 것이다. 예를 들어, Patel et al. ANF 분리막의 모듈러스는 액체 전해질에서 8배 감소하고 상업용 전해질과 유사하다는 것을 관찰하였다 [88]. 둘째, 구조체 구성 요소를 사용하는 배터리는 전단 또는 굴곡 하중 하에서 구성 요소 간의 더 나은 부하 전달로 인해 라미네이팅을 통해 더욱 강화될 수 있다. 이는 다기능 에너지 저장을 위한 고체 전해질의 중요성을 강조하지만 이온 전도성과 같은 전기 화학적 특성은 > 1의 다기능 효율을 갖기 위해 크게 저해되어서는 안된다.

9. 고체 전해질 (SSE)

전고체 전지는 기존의 액체 전해질 대신 폴리머, 세라믹, 복합재료 등 고체 전해질을 사용한다. SSE는 더 나은 열 안정성을 갖고 가연성 액체 구성 요소를 대체하여 안전성을 향상시킬 수 있기 때문에 배터리에 매력적이다. 전기화학적 특성의 측면에서 이온 전도도는 일반적으로 고체 고분자 전해질에서 10^{-6} - 10^{-3} Scm^{-1} 이고 세라믹 전해질에서 10^{-4} - 10^{-2} Scm^{-1} 이다. 구조체 배터리의 경우 고체 특성은 배터리의 인장 및 압축 특성을 향상시킬 뿐만 아니라 서로 다른 층 간의 하중 전달을 향상시켜 굴곡 특성을 향상시킬 수 있음을 나타내었다. 고체 고분

자 전해질을 사용한 구조체 배터리 고체 고분자 전해질 (SPE)은 고분자와 염의 혼합물이다. 고분자의 극성 그룹은 염을 분리하고 이온이 전기장에서 이동할 수 있도록 한다. 이온 전도도를 향상시키기 위해 세라믹 필러, 액체 또는 고체 가소제와 같은 첨가제가 추가되는 경우가 많다. 폴리(에틸렌 옥사이드) (PEO), 폴리(아크릴로니트릴) (PAN), 폴리(비닐 알코올) (PVA), 폴리(비닐리덴 플루오라이드) (PVdF) 또는 폴리카보네이트 (PC)는 무엇보다도 일반적인 폴리머 매트릭스 재료다. PEO가 가장 널리 사용된다 [97,98].

9.1. 고체 폴리머 전해질을 사용한 구조용 배터리

고체 고분자 전해질 (SPE)은 고분자와 염의 혼합물이다. 고분자의 극성 그룹은 염을 분리하고 이온이 전기장에서 이동할 수 있도록 한다. 이온 전도도를 향상시키기 위해 세라믹 필러, 액체 또는 고체 가소제와 같은 첨가제가 추가되는 경우가 많다. 폴리(에틸렌 옥사이드) (PEO), 폴리(아크릴로니트릴) (PAN), 폴리(비닐알코올) (PVA), 폴리(비닐리덴 플루오라이드) (PVdF) 또는 폴리카보네이트 (PC)는 무엇보다도 일반적인 폴리머 매트릭스 재료다. PEO가 가장 널리 사용된다. 이러한 폴리머의 고유 모듈러스 범위는 PEO의 경우 290~330 MPa [99]에서 PC/PVdF의 경우 2.6 GPa [100,101]이다. 이러한 폴리머의 고유 모듈러스 범위는 PEO의 경우 290~330 MPa에서 PC/PVdF의 경우 최대 2.6 GPa이며 배터리의 구조적 특성을 점진적으로 향상시킬 수 있다. 염과 가소제를 첨가하면 중합체 사슬의 상대적 이동성을 크게 향상시킬 수 있지만 모듈러스 및 강도와 같은 기계적 특성은 크게 감소한다. 이러한 상관관계는 구조체 전해질에 대한 기계적 특성과 이온 전도성 사이의 상관관계를 조사하는 Snyder 등의 선구적인 연구에서 연구되었다 [102,103]. 폴리머에 염을 첨가하면 T_g가 증가하고 PEG에서 9~12 wt% 사이의 가장 높은 이온 전도도에 도달하는 것으로 나타났다. 또한, 서로 다른 단량체의 공중합은 단일 중합체에 비해 향상된 전기화학적-기계적 다관능성을 나타내는 것으로 관찰되었다. 예를 들어, 합리적인 전도도를 갖는 일반적인 고분자 전해질은 탄성 계수가 100 MPa 미만인 경우가 많다. 더욱이, 겔 폴리머는 때로 고체 전해질이라고도 하며 매우 높은 이온 전도도와 우수한 유연성을 나타낼 수 있지만 일반적으로 모듈러스는 수 100 kPa 범위에 있다. 따라서 구조체 배터리에서 고분자 전해질을 활용하기 위해서는 기계적으로 강한 백본 네트워크를 사용하는 등 기계적 특성을 더욱 향상시키는 것이 중요하다. 반면, 폴리머 전해질은 배터리의 서로 다른 구성 요소를 함께 결합할 수 있어 서로 다른 층 간의 부하

전달을 향상시켜 굴곡 모듈러스와 강도를 향상시킨다. 굴곡 특성의 향상은 폴리머 전해질 상의 고유한 기계적 특성과 폴리머 전해질과 다른 배터리 구성 요소 사이의 계면 접착력에 의해 영향을 받는다.

최근 몇 년 동안 다양한 그룹에서 구조체 배터리의 기계적 성능을 향상시키기 위해 고분자 전해질을 연구해 왔다. 고분자 전해질은 구조체 배터리의 구조체로 강한 기판 역할을 하는 CF에 직접 증착될 수 있다 [104,105]. CF 보강이 포함된 경량의 1차 하중 지지 구조 복합재 제조를 위해 에폭시 접착제는 다른 폴리머에 비해 고유한 특성으로 인해 광범위하게 사용되며 [106], 이는 구조체 배터리용 에폭시 기반 전해질 개발의 동기를 부여한다. 일반적인 접근법은 이온 전도성 상으로 액체 전해질이 침투된 다공성 에폭시 매트릭스를 생성하여 우수한 기계적 성능을 유지하면서 충분한 이온 전도성을 유도하는 것이다 [107]. 구조체 배터리 전해질 (SBE)이라고도 하는 이러한 이중 연속 다기능 전해질은 높은 인장 모듈러스 (25~50 GPa)와 우수한 사이클링 성능을 갖춘 CF 강화 구조 배터리를 제조하는 데 사용할 수 있다. Willgert et al.은 높은 저장 모듈러스를 갖는 UV 중합 아크릴레이트 기반 전해질을 연구했지만, 구조체 배터리의 실제 제작을 위해서는 열중합이 필요하다는 점에 유의해야 한다 [108].

9.2. 세라믹/무기 전해질을 사용한 구조체 배터리

SPE와 달리 세라믹 전해질은 2~3배 더 높은 고유 이온 전도성을 나타낸다 (예: LLZO: $10^4 \sim 10^3 \text{ Scm}^{-1}$, 황화물: $10^3 \sim 10^2 \text{ Scm}^{-1}$ [109] 및 그 모듈러스 또한 훨씬 더 높다 (예: 산화물의 경우 115-200 GPa, 황화물의 경우 15-37 GPa). 따라서 액체 전해질을 세라믹 전해질로 완전히 대체할 수 있고 세라믹 전해질과 전극/하우징 전체 사이의 계면이 응집력이 있으면 배터리의 모듈러스가 획기적으로 향상될 수 있다. 불행하게도 이러한 일관된 인터페이스는 실현하기가 매우 어렵다. 계면 접착력과 응집성을 향상시키기 위해 소결 및 고압 적용이 연구되었지만 기계적 특성은 광범위하게 연구되지 않았다.

반면, 산화물 세라믹은 깨지기 쉬운 것으로 잘 알려져 있다. 이는 산화물 세라믹 기반 고체 전해질의 인성 및 강도가 손상될 수 있음을 의미한다. 유연성 부족 (때때로 “불일치 문제”라고도 함)은 높은 계면 전극/전해질 저항으로 이어질 수 있으며, 내부 응력으로 인해 사이클링 중에 다양한 결함 및 실패 메커니즘 (예: 미세 균열)이 발생할 수 있다. 이러한 문제를 고려할 때, 황화물 전해질은 산화물에 비해 더 부드럽고 연성이

더 높기 때문에 더 매력적일 수 있다. 세라믹 전해질 기반 구조 배터리를 구성할 때 이러한 잠재적인 문제를 주의 깊게 조사할 필요가 있다. 세라믹 전해질을 포함하는 TFLB (박막 리튬 배터리)가 통합된 구조 배터리가 시연되었다. 그러나 이러한 디자인은 세라믹 상의 높은 기계적 특성을 활용하지 못한다. 일반적으로 산화물 세라믹 전해질은 압축/인장 시 우수한 성능을 나타내지만 취성 특성으로 인해 상대적으로 낮은 굽힘 응력에서는 파손될 수 있다. 구조체 배터리의 산화물/황화물 전해질에 대한 더 나은 이해를 위해서는 마이크로 규모 (예: 나노/마이크로 압입) 및 거시 규모 (예: 인장 및 굽힘 테스트)의 기계적 특성에 대한 더 많은 연구가 필요하다.

9.3. 복합재 전해질을 사용한 구조체 배터리

세라믹을 폴리머 전해질에 통합한 복합 전해질은 세라믹의 높은 모듈러스 및 이온 전도성과 폴리머의 높은 인성 및 유연성과 같은 장점을 결합할 수 있다. 고분자 매트릭스에 이온 전도성 세라믹 나노입자가 내장된 나노복합 고분자 전해질 (NCPE)은 최대 10^4 – 10^3 Scm⁻¹의 이온 전도도에 도달할 수 있다. 이러한 복합 전해질에서 두 상의 기하학적 구조와 토폴로지는 이온 전도성과 기계적 특성 모두에 중요하다. 일반적으로 나노섬유/나노와이어는 고립된 구형 나노입자보다 연결된 경로가 더 많기 때문에 이온 전도도가 향상된다.

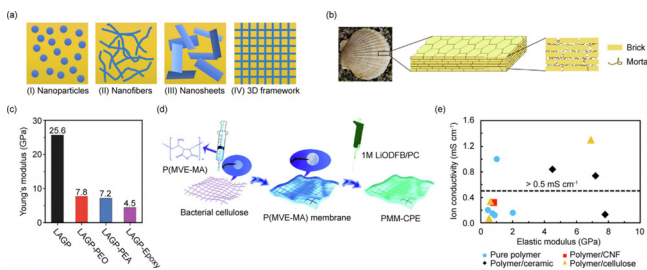


Figure 15. 복합재 전해질을 사용한 구조체 배터리. (a) SSE의 이온 전도도 및 기계적 특성을 향상시키기 위한 다양한 모양의 입자/구조. (b) 진주조개에서 영감을 받은 디자인. (c) 영물이 향상된 “벽돌 및 모르타르” 미세 구조. 허가를 받아 복제됨 [79]. (d) 액체 전해질을 담근 셀룰로오스 강화 고분자 전해질 막의 제조 단계 계획. 저작권 2018 왕립화학회. (e) 문헌에 보고된 다양한 고체 전해질의 이온 전도도 대 탄성 계수 플롯

마찬가지로, 기계적 특성은 일반적으로 나노입자 < 나노와이어 < 나노시트 < 3D 프레임 워크의 순서로 다양한 모양에 의해 향상된다 [110] (Figure 15(a)). 우수한 계면 접착력은 기

계적 부하 전달 및 전기화학적 성능에 필수적인 요구 사항이다. 이는 “벽돌과 모르타르” 미세 구조를 가진 세라믹/폴리머 고체 복합 전해질의 진주층에서 영감을 받은 디자인에서 입증되었다 (Figure 15(b)). 향상된 접착 강도는 최대 7.8 GPa의 탄성 계수로 이어진다 (Figure 15(c)) [111]. Zekollet al.은 3D 인쇄 템플릿을 사용하여 다양한 디자인의 에폭시 주입 LAGP (Lithium aluminium germanium phosphate) 구조 프레임워크를 만들었다. 자이로이드 LAGP-에폭시 전해질의 이온 전도성은 1.6×10^4 Scm⁻¹ 및 ca. 1 mm×1 mm×2 mm. 또 다른 연구에서는 우수한 전기화학적 성능과 안정성을 지닌 6.8 MPa 및 5.2×10^4 Scm⁻¹의 인장 강도를 갖는 고체 폴리 (프로필렌 카보네이트) (PPC)/LLZTO 복합 전해질을 입증하였다 [112]. 고분자 매트릭스에 거시적인 섬유 구조 네트워크를 구현하는 것은 박테리아 셀룰로스 지지 폴리 (메틸 비닐 에테르-알트-말레산 무수물), P(MVE-MA)를 사용하여 시연되었으며 그 결과 6.9 GPa의 높은 모듈러스가 생성되었다. 액체 전해질에 담근 후, 이온 전도성은 1.3×10^3 Scm⁻¹에 도달하였다 (Figure 15(d)) [113]. Cu 배위 셀룰로오스계 전해질을 사용하여 약 600 MPa의 인장 탄성률과 29 MPa의 고강도를 달성하였으며, 이온 전도도는 분자 사슬 방향(3.4×10^3 cm⁻¹)을 따라 1.5×10^3 Scm⁻¹이었다. 4 Scm⁻¹ 관통 평면) 액체 전해질에 담근 후 [114], 탄성 계수와 이온 전도도를 갖는 대표적인 고체 전해질에 대한 요약이 Figure 15(e)와 Table 2에 나타내었다. 우리는 계수가 100 MPa보다 높은 SPE만 선택하였다. 따라서, >0.5 mScm⁻¹의 합리적인 높은 이온 전도성을 갖는 수 GPa의 탄성 계수는 구조체 배터리의 전해질 특성의 바람직한 조합이며, 세라믹 판 또는 셀룰로스 섬유 지지체를 갖춘 폴리머로 구성된 복합 전해질을 사용하여 달성되었다.

10. 과제와 전망

위에서 요약한 바와 같이 지난 몇 년간 구조체 배터리 분야에서는 상당한 진전이 있었지만 여전히 개선해야 할 부분이 많다. 차량과 같은 시스템에 구조형 배터리를 구현하려면 기계적, 전기화학적 성능, 안전성, 비용을 포함하여 몇 가지 핵심 사항이 먼저 충족되어야 한다.

10.1. 전기-화학-기계적 결합에 대한 기본 지식

전기-화학-기계적 결합은 부품의 응력/변형 및 전기화학적 프로세스가 서로 상호 작용하는 배터리의 주요 주제이며, 특히 봉

과 및 고장 메커니즘 연구의 경우 구조체 배터리에서는 더욱 중요하다. 따라서 이러한 결합을 이해하는 것은 사이클링 중에 상당한 부하를 견뎌야 하는 구조체 배터리의 잠재적인 문제를 해결하는 데 필수적이다. 예를 들어 위에서 언급한 것처럼 SOC는 CF의 기계적 특성을 변경하고 외부 부하도 전극의 전위를 이동할 수 있다. Li 이온의 확산은 국부적인 응력을 유발할 수 있으며, 반대로 재료의 응력은 이온 확산 특성을 변화시킬 수 있다. 게다가, 사이클링 동안 전극과 전해질 매트릭스 모두에서 필연적으로 점 결합과 전위의 전파 및 집합이 있을 것이며, 이는 원자의 재배열과 그에 따른 성능 저하를 수반하며, 이러한 프로세스는 적용된 부하에 의해 열역학적 및 운동학적으로 영향을 받는다. 사이클링 중 전극의 부피 변화는 전극/전해질 계면의 분리를 유발하여 추가 임피던스와 반응 및 응력의 더 많은 이질성을 유발할 수 있다. 이러한 효과 외에도 배터리의 여러 부분에 계단식 균열이 발생하여 성능 저하가 악화될 수 있다. 응력 축적 및 불균일성은 SEI 또는 전극에 균열을 일으킬 수 있으며, 이는 일반적으로 더 많은 전해질 분해 및 용량 감소를 동반한다.

10.2. 실제 시스템의 기계적/전기화학적 성능

만족스러운 다기능 효율성을 달성하고 질량을 절감하려면 구조체 에너지 저장 장치는 항상 우수한 기계적 및 전기화학적 특성을 동시에 가져야 한다. 이 두 가지 특성에 대한 기준은 대상 응용 분야에 따라 설정되어야 한다. 기계적 측면에서 중요한 문제는 구조형 배터리가 일반적으로 여러 방향에서 높은 강도를 가져야 한다는 것이다. 그러나 CF의 경우에도 직사각형 모양의 기존 배터리는 전단 및 굽힘 특성이 아닌 인장 특성 요구 사항만 충족할 수 있으므로 바인더 및 고체 전해질과 같은 다른 전략을 채택해야 한다. 전기화학적으로 에너지 밀도 외에도 구조체 배터리는 일반적으로 수백, 심지어 수천 사이클의 사이클 수명과 합리적인 전력 밀도를 가져야 한다. 현재 CF 전극은 수십 사이클 동안 거의 순환할 수 없으므로 사이클링 성능을 향상시키기 위해서는 추가 수정이 필요하다. 마찬가지로, 제안된 전해질 또는 바인더는 이러한 기본 요구 사항을 충족하기 위해 전기화학적으로 안정해야 한다. 현재 대부분의 구조체 배터리 연구는 아직 개념 시연의 초기 단계에 있으며, 실제 시스템의 다른 수동 구성요소는 배터리 관리 시스템, 냉각 시스템 등 거의 포함되지 않는다.

10.3. 사용 중 장기적인 성능 안정성

구조체 에너지 저장 장치는 일반적으로 기존 배터리보다 더

가혹한 조건에서 작동하므로 기계적 부하 및 장기간 사용 시 성능 안정성이 실제 적용에 매우 중요하다. 예를 들어, 지속적인 외부 하중과 그에 따른 변형으로 인해 배터리 구성 요소의 정렬 불량 및 균열이 발생할 수 있다. 또한 전극 입자와 전류 하우징 전체, 바인더, 고분자 전해질과 같은 기타 부품 사이의 박리는 구조체 배터리에서 발생하기 더 쉽다. 구조체 배터리는 기존 배터리보다 더 많은 부하를 받게 되어 전기화학적, 기계적 성능이 크게 저하될 수 있기 때문이다. 구조체 배터리의 실제 설계에서는 이러한 과제를 고려해야 한다. 반면에 전기화학적 순환은 기계적 성능을 저하시킬 수도 있다. 충전 및 방전 중 전극의 부피 변화는 전극 입자와 다른 구성 요소 사이의 인터페이스에 부정적인 영향을 미치고, 기계적 성능, 특히 굽힘 특성이 저하된다.

10.4. 안전

안전은 모든 배터리의 최고 요구 사항 중 하나이며 작업 환경이 기계적으로 훨씬 가혹하기 때문에 구조체 배터리의 경우 더욱 중요하다. 따라서 구조체 배터리에 대한 안전 요구사항은 기존 배터리보다 더 엄격해야 한다. 또한 추가 보호 장치를 추가해야 하는 경우 제안된 구조 배터리의 다기능 효율성을 평가할 때 보호 장치의 질량과 부피를 고려해야 한다. 현장에서 실제 적용에 접근할 때 안전 테스트는 필수 불가결해야 한다. 다기능 고효율과 안전성을 동시에 달성하기 위해 불연성 액체 전해질, 고체 전해질, 열적으로 안정한 분리막 및 바인더, 하우징 전체의 스마트 설계를 고려할 수 있다.

10.5 비용 및 유지 관리

궁극적으로 구조체 배터리는 원자재, 제조, 유지 관리를 포함한 합리적인 비용이 있어야 한다. 예를 들어, CF 하우징 전체를 활성 전극 재료와 확장 가능한 방식으로 통합하는 방법에 대한 문제가 남아 있다. 또한 실제 적용에서는 유지 관리 및 교체를 고려해야 한다. 휴대용 전자기기의 케이스처럼 구조체 배터리를 사용하면 다루기 힘들겠지만, 비행기 날개나 차량 새시 역할을 하는 구조체 배터리를 유지하거나 수리하는 것은 더 복잡할 수 있다. 특히, 여러 셀이 단일 구조 구성 요소에 통합되면 셀 하나만 전기화학적 또는 기계적으로 오작동하더라도 모든 셀은 물론 구조 부품까지 교체해야 할 수도 있다. 이에 따라 새로운 배터리 관리 전기화학과 역학의 높은 결합으로 인해 시스템 및 유지 관리 지식을 개발해야 한다. 이러한 문제의 결과는 실제 응용 프로그램에서 주의 깊게 분석되어야 한다. 항공기나 군용 애플리케이션과 같은 특정 애플리케이션

은 높은 비용을 감당할 수 있지만, 전기 자동차와 같은 대규모 애플리케이션을 위해서는 구조체 배터리의 비용을 합리적인 수준으로 줄여야 한다.

11. 결 론

구조체 에너지 저장 장치는 전기 자동차 및 항공기와 같은 시스템의 질량 효율성을 향상시키고 작동 기간을 연장하기 위해 실험적 및 수치적으로 입증되었다. 이 개념의 실제 적용을 촉진하기 위해 배터리를 강력한 외부 보강재에 내장하고, 견고한 전극 및 분리막을 개발하고, 바인더 및 전해질을 채택하여 부하 전달 효율성을 향상시키는 등 배터리의 다기능성을 향상시키는 연구가 집중적으로 수행되어야 할 것으로 사료된다. 또한, 배터리 구성 요소, 재료 및 장치 수준 모두에서 전기화학, 동역학 및 역학의 결합 효과를 더 잘 이해하고 구조체 배터리 설계에 대한 광범위한 시뮬레이션 작업도 수행되어야 할 것이다. 또한, 구조체 배터리의 다기능 효율성을 평가하는 것이 매우 중요하며, 다양한 구조해석 프로그램을 이용하여 구조 배터리에 대한 설계와 해석, 그리고 주요 평가 기준의 확립이 필요한 상황이다. 향후 실험실이 아닌, 실차 등의 실제 환경에서 안전성, 비용, 장기 성능 안정성과 같은 이 분야의 많은 연구가 필요할 것으로 사료된다. 또한, 향후 구조체 배터리가 전기 운송 성능을 향상시킬 수 있는 분명한 솔루션임에 틀림 없지만, 실제 세계에서 상용화를 위해서는 재료 및 장치 수준에서 보다 혁신적인 연구와 발전과 더불어 끊임없는 투자와 지속적인 노력이 필요할 것으로 사료된다.

참고문헌

1. <https://www.etrac.org/news/new-european-roadmap-electrification-of-road-transport/>
2. <https://www.imperial.ac.uk/structural-power-composites/structural-batteries/>
3. <https://aviationweek.com/business-aviation/aircraft-propulsion/structural-batteries-could-reduce-electric-aircraft-weight>
4. https://www.researchgate.net/figure/Illustration-of-the-structural-battery-concept-https-wwwmediavolvocarscom_fig4_276280912
5. J. Yuan, L. D. Gomba, A. D. Callegaro, J. Reimers, and A. Emadi, A review of bidirectional onboard chargers for electric vehicles, *IEEE Access*, 9, 51501–51518 (2021).
6. Y. Balai and S. Stegen, Review of energy storage systems for vehicles based on technology, environmental impacts, and costs, *Renew. Sustain. Energy Rev.*, 135, 110185 (2021).
7. H. A. Gabbar, A. M. Othman, and M. R. Abdussami, Review of battery management systems (BMS) development and industrial standards, *Technol.*, 9(2), 1–23 (2021).
8. Z. Wang, H. Zhang, and X. Xia, Experimental investigation on the thermal behavior of cylindrical battery with composite paraffin and fin structure, *Int. J. Heat Mass Transf.*, 109, 958–970 (2017).
9. M. Li et al., *Adv. Mater.* 30 (33) (2018) 1800561.
10. N. Nitta et al., *Mater. Today* 18 (5) (2015) 252–264.
11. M.S. Whittingham, *Proc. IEEE* 100 (2012) 1518–1534.
12. L.-X. Yuan et al., *Energ. Environ. Sci.* 4 (2) (2011) 269–284.
13. K. Liu et al., *Sci. Adv.* 4 (6) (2018). p. eaas9820.
14. A. Manthiram, *ACS Cent. Sci.* 3 (10) (2017) 1063–1069.
15. W. Li, B. Song, A. Manthiram, *Chem. Soc. Rev.* 46 (10) (2017) 3006–3059.
16. N.A. Chernova et al., *Adv. Energy Mater.* 10 (47) (2020) 2002638.
17. M.T. McDowell et al., *Adv. Mater.* 25 (36) (2013) 4966–4985.
18. X. Yang et al., *Electrochem. Energy Rev.* 1 (3) (2018) 239–293.
19. H. Wu et al., *Adv. Energy Mater.* 11 (5) (2021) 2003092.
20. G.M. Hobold et al., *Nature Energy* 6 (10) (2021) 951–960.
21. H.S. Tan Darren et al., *Science* 373 (6562) (2021) 1494–1499.
22. L.E. Asp et al., *Advanced Energy and Sustainability Research* 2 (3) (2021) 2000093.
23. R. Pejman, J. Gorman, A.R. Najafi, *Compos. B Eng.* 237 (2022) 109810.
24. W. Johannisson, D. Zenkert, G. Lindbergh, *Multifunctional Materials* 2 (3) (2019) 035002.
25. D. Carlstedt, L.E. Asp, *Compos. B Eng.* 186 (2020) 107822.

26. L.E. Asp et al. (Eds.) *Functional Composites and Structures* 1 (4) (2019) 042001.
27. E. Sahraei, R. Hill, T. Wierzbicki, J. *Power Sources* 201 (2012) 307–321.
28. J. Zhu et al., *Int. J. Plast* 121 (2019) 293–311.
29. S.M.M. Dadfar, G. Kavooosi, *Polym. Compos.* 36 (1) (2015) 145–152.
30. H. Zheng et al., *J. Power Sources* 208 (2012) 52–57.
31. L. Gong, M.H.T. Nguyen, E.-S. Oh, *Electrochem. Commun.* 29 (2013) 45–47.
32. W. Xie et al., *Mech. Mater.* 152 (2021) 103667.
33. T. Jin et al., *Adv. Energy Mater.* 11 (25) (2021) 2100997.
34. J. Galos, C. Fredriksson, R. Das, J. *Sandw. Struct. Mater.* 23 (8) (2020) 3794.
35. P. Attar et al., *Compos. Struct.* 237 (2020) 111937.
36. K. Pattarakunnan et al., *Compos. A Appl. Sci. Manuf.* 136 (2020) 105966.
37. D. Carlstedt, W. Johannisson, D. Zenkert, P. Linde, and L. Asp. Conceptual design framework for laminated structural battery composites, In: *Proc. 18th Eur. Conf. Compos. Mater.*, Athens, Greece (2018).
38. <https://www.chalmers.se/en/staff/pages/leifas.aspx>.
39. https://www.tesla.com/sites/default/files/model_s_owners_manual_north_america_en_us.pdf (2019).
40. BMW. <http://www.bmw.com> (2019).
41. E. Karadotcheva et al., *Energies* 14 (19) (2021) 6006.
42. S.N. Nguyen et al., *J. Aircr.* 58 (3) (2021) 677–687.
43. A. Ishfaq et al., *J. Compos. Mater.* (2022). 00219983221132621.
44. E. D. Wetzl, Reducing weight: Multifunctional composites integrate power, communications, and structure, *The AMPTIAC Quarterly*, 8, 91–95 (2004).
45. Tesla, Inc., Patent PCT/US2020/061626, 2020.
46. I. Tesla, 2020 [cited 2022; Available from: <https://www.tesla.com/>
47. 2020shareholdermeeting.
48. M. Herrmann, *AIP Conf. Proc.* 1597 (1) (2014) 121–133.
49. T. Pereira et al., *J. Micromech. Microeng.* 16 (12) (2006) 2714–2721.
50. A. Bombik et al., *J. Energy Storage.* 54 (2022) 105191.
51. G. Singer et al., *Compos. Struct.* 215 (2019) 178–184.
52. J. Yoo et al., *J. Compos. Mater.* 53 (14) (2019) 2015–2030.
53. H. Zhou et al., *Mater. Today Energy* 24 (2022) 100924.
54. Fredi G et al 2018 Graphitic microstructure and performance of carbon fibre Li-ion structural battery electrodes *Multifunct. Mater.* 1 015003
55. Kjell M H, Jacques E, Zenkert D, Behm M and Lindbergh G 2011 PAN-based carbon fiber negative electrodes for structural lithiumion battery *J. Electrochem. Soc.* 158 A1455–60
56. Xu K 2004 Nonaqueous liquid electrolytes for lithium-based rechargeable batteries *Chem. Rev.* 104 4303–4417
57. E. Jacques et al., *Carbon* 59 (2013) 246–254.
58. R. Harnden, D. Zenkert, G. Lindbergh, *Carbon* 171 (2021) 671–680.
59. R. Harnden et al., *J. Electrochem. Soc.* 165 (13) (2018) B616–B622.
60. S.A. Mirdehghan, in: *Engineered Polymeric Fibrous Materials*, Woodhead Publishing, 2021, pp. 1–58.
61. E. Jacques et al., *Compos. Sci. Technol.* 72 (7) (2012) 792–798.
62. F. Dionisi, R. Harnden, D. Zenkert, *Compos. Struct.* 179 (2017) 580–589.
63. J. Collins et al., *Carbon* 92 (2015) 193–244.
64. S. Yang et al., *Chem. Eng. J.* 384 (2020) 123294.
65. K. Moyer et al., *Energy Storage Mater.* 24 (2020) 676–681.
66. Z. Zhang et al., *ACS Sustain. Chem. Eng.* 8 (48) (2020) 17629–17638.
67. J.S. Sanchez et al., *Compos. Sci. Technol.* 208 (2021) 108768.
68. J. Hagberg et al., *Compos. Sci. Technol.* 162 (2018) 235–243.
69. J. Chen et al., *Compos. Sci. Technol.* 209 (2021) 108787.
70. X. Liu et al., *Compos. Sci. Technol.* 218 (2022) 109156.
71. B.J. Hopkins et al., *Joule* 4 (11) (2020) 2240–2243.
72. S. Leijonmarck et al., *Compos. Sci. Technol.* 89 (2013) 149–157.
73. W. Johannisson, N. Ihrner, D. Zenkert, M. Johansson, D. Carlstedt, L. E. Asp, and F. Seland, Multifunctional per-

- formance of a carbon fiber UD lamina electrode for structural batteries, *Compos. Sci. Technol.*, 168, 81–87 (2018).
74. C. Meng, N. Muralidharan, E. Teblum, K. E. Moyer, G. D. Nessim, and C. L. Pint, Mechanically-robust structural lithium-sulfur battery with high energy density, *Nano Lett.*, 18, 7761–7768 (2018).
 75. E. L. Wong, D. M. Baechle, K. Xu, J. F. Snyder, R. H. Carter, and E. D. Wetzel, Design and processing of structural composite batteries, *SAMPE 2007*. June 3–7, Baltimore, Maryland, U.S.A.
 76. J. Xu, W. Johannisson, M. Johansen, F. Liu, D. Zenkert, G. Lindbergh, and L. E. Asp, Characterization of the adhesive properties between structural battery electrolytes and carbon fibers, *Compos. Sci. Technol.*, 188, 107962 (2020).
 77. Toray Carbon Fibres America Inc., T800H Data Sheet (2019).
 78. N. Ihrner, W. Johannisson, F. Sieland, D. Zenkert, and M. Johansson, Structural lithium ion battery electrolytes: Via reaction induced phase-separation, *J. Mater. Chem. A*, 5, 25652–25659 (2017).
 79. W. Johannisson, N. Ihrner, D. Zenkert, M. Johansson, D. Carlstedt, L. E. Asp, and F. Sieland, Multifunctional performance of a carbon fiber UD lamina electrode for structural batteries, *Compos. Sci. Technol.*, 168, 81–87 (2018).
 80. H. Cha, J. Kim, Y. Lee, J. Cho, and M. Park, Issues and challenges facing flexible lithiumion batteries for practical application, *Small*, 14(43), 1–18 (2018).
 81. H. Cha, J. Kim, Y. Lee, J. Cho, and M. Park, Issues and challenges facing flexible lithiumion batteries for practical application, *Small*, 14(43), 1–18 (2018).
 82. M. Wang et al., *Nat. Commun.* 13 (1) (2022) 278.
 83. M. Wang et al., *Chem. Eng. J.* 426 (2021) 131924.
 84. D. Bresser et al., *Energ. Environ. Sci.* 11 (11) (2018) 3096–3127.
 85. J.-T. Li et al., *Adv. Energy Mater.* 7 (24) (2017) 1701185.
 86. I. Kovalenko et al., *Science* 334 (6052) (2011) 75–79.
 87. D. Dang et al., *ACS Appl. Energy Mater.* 3 (11) (2020) 10940–10949.
 88. A. Patel et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 12 (23) (2020) 25756–25766.
 89. Y.-X. Wang et al., *Adv. Mater. Interfaces* 3 (23) (2016) 1600662.
 90. S. Guo et al., *Adv. Energy Mater.* 8 (24) (2018) 1800434.
 91. R. Tang et al., *ChemElectroChem* 7 (9) (2020) 1992–2000.
 92. Z. Li et al., *Adv. Energy Mater.* 10 (20) (2020) 1903110.
 93. L. Luo et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 8 (12) (2016) 8154–8161.
 94. S.R. Kwon et al., *ACS Nano* 11 (7) (2017) 6682–6690.
 95. P. Flouda et al., *Batteries Supercaps* 2 (5) (2019) 464–472.
 96. P. Flouda et al., *Sustainable Energy Fuels* 4 (5) (2020) 2301–2308.
 97. A. Ransil, A.M. Belcher, *Nat. Commun.* 12 (1) (2021) 6494.
 98. L. Yue et al., *Energy Storage Mater.* 5 (2016) 139–164.
 99. A. Manthiram, X. Yu, S. Wang, *Nat. Rev. Mater.* 2 (4) (2017) 16103.
 100. J. Lee et al., *J. Electrochem. Soc.* 166 (2) (2019) A416–A422.
 101. V.A. Soloukhin et al., *Macromolecules* 36 (20) (2003) 7585–7597.
 102. C.S. Lynch, *Ferroelectrics* 150 (1) (1993) 331–342.
 103. J.F. Snyder, R.H. Carter, E.D. Wetzel, *Chem. Mater.* 19 (15) (2007) 3793–3801.
 104. J.F. Snyder, E.D. Wetzel, C.M. Watson, *Polymer* 50 (20) (2009) 4906–4916.
 105. A. Bachinger, J. Rössler, L.E. Asp, *Compos. B Eng.* 91 (2016) 94–102.
 106. W. Johannisson et al., *Compos. Sci. Technol.* 168 (2018) 81–87.
 107. S. Sasidharan, A. Anand, *Ind. Eng. Chem. Res.* 59 (28) (2020) 12617–12631.
 108. M. Willgert et al., *Eur. Polym. J.* 47 (12) (2011) 2372–2378.
 109. S.J. Kwon et al., *ACS Appl. Mater. Interfaces* 10 (41) (2018) 35108–35117.
 110. Z. Gao et al., *Adv. Mater.* 30 (17) (2018) 1705702.
 111. W. Liao, C. Liu, *ChemNanoMat* 7 (11) (2021) 1177–1187.
 112. S. Zekollet al., *Energ. Environ. Sci.* 11 (1) (2018) 185–201.
 113. J. Zhang et al., *J. Mater. Chem. A* 5 (10) (2017) 4940–4948.
 114. T. Dong et al., *Energ. Environ. Sci.* 11 (5) (2018) 1197–1203.
 115. C. Yang et al., *Nature* 598 (7882) (2021) 590–596.