

ISSN. 2465-8456



12

2021 December | Vol. 7

융합연구리뷰

Convergence Research Review

제조 데이터 통합 및 분석 플랫폼 기술 동향
강정훈(한국전자기술연구원 수석연구원)

미래를 담은 차세대 전지, 전고체 전지 최신 연구 동향
김대일(한국에너지기술연구원 선임연구원)

CONTENTS

- 01 편집자 주
- 03 제조 데이터 통합 및 분석 플랫폼 기술 동향
- 31 미래를 담은 차세대 전지,
전고체 전지 최신 연구 동향



융합연구정책센터
Convergence Research Policy Center

융합연구리뷰 | Convergence Research Review
2021 December vol.7 no.12

발행일 2021년 12월 6일

발행인 김현우

발행처 한국과학기술연구원 융합연구정책센터

02792 서울특별시 성북구 화랑로 14길 5

Tel. 02-958-4977 | <http://crpc.kist.re.kr>

펴낸곳 디사플래닝 Tel. 02-6315-4600



제조 데이터 통합 및 분석 플랫폼 기술 동향

사물인터넷, 빅데이터, 인공지능, 클라우드 등 첨단기술이 제조분야에 적용되면서 제조업 환경에 변화를 일으켰다. 제조 산업에서의 혁신을 위해서는 개별 공정이 네트워크로 연결되고 제품 기획부터 판매까지 전 과정에서 모든 정보가 공유되고 지능화되는 운영시스템이 필요하고 이를 통해 제품 생산의 전반에 대해 전 과정을 확인할 수 있어야 한다. 제품 수명 주기 관리(PLM, Product Lifecycle Management) 전문 기업인 다쏘시스템코리아에 따르면 스마트 제조에서 자동화는 단순히 손발만 바꾸는 수준이고 혁신에 필요한 해답을 찾기 위해서는 사람의 뇌에 해당하는 제조 데이터 플랫폼이 중요하다고 한다.

본 호 1부에서는 제조 데이터 통합 및 분석 플랫폼 기술 동향에 대한 내용을 소개한다. 먼저, 제조 빅데이터를 데이터 플랫폼에 적용한 국내외 사례 및 효과들을 살펴보고, 제조 빅데이터 플랫폼의 기능과 구성, 제조 빅데이터 수집, 분석 기술, 분석내용 학습 기술 그리고 분석 결과를 바탕으로 예측하는 기술에 대한 내용을 담았다.

스마트 팩토리 구현을 위해서는 제조 데이터 플랫폼이 매우 중요하다. 스마트 제조 시장 규모가 2025년 3,800억 달러로, 2020년에 비해 약 1.5배 규모로 성장할 것으로 전망되는 현시점에, 제조 데이터 플랫폼 기술개발 지원을 통해 국내 제조업 산업에서 혁신을 가져올 수 있기를 기대해 본다.

미래를 담은 차세대 전지, 전고체 전지 최신 연구 동향

스마트폰을 비롯한 모든 전자기기에 배터리가 장착되는 Battery of Things(BoT) 시대이다. 가까운 미래에 약 5분이면 완충되는 전기자동차도 등장할 전망이다. 배터리 기술개발에 세계 각국의 배터리 업체들이 사활을 건 경쟁을 벌이고 있기 때문이다. 현재 사용되는 리튬이온 배터리는 액체 상태의 전해질을 사용하기 때문에 온도 변화로 인한 배터리의 팽창 현상, 외부 충격에 의한 누액 등으로 인한 배터리 손상 시 화재 발생 위험, 짧은 수명, 낮은 성능 등의 문제가 있다. 이러한 기존 배터리의 한계로 수명이 길고 충전 용량이 높은 전고체 전지가 차세대 배터리로 주목받고 있다.

전고체 전지는 양극과 음극 사이에 있는 전해질을 액체가 아닌 고체로 만들어 화재에 민감한 액체 전해질과 다르게 구조적으로 단단하기 때문에 안정적이고 전해질이 훼손되더라도 형태를 유지할 수 있어 폭발 또는 화재 위험이 현저히 낮다. 또한 에너지의 밀도가 높아 적은 무게와 작은 부피로 에너지 효율을 증대시킬 수 있는 장점이 있다.

프랭크 블롬(Frank Blome) 폭스바겐社의 배터리 책임자에 따르면 전고체 기술은 향후 글로벌 자동차 업체에서 게임 체인저 역할을 하게 될 것이라고 한다. 본 호 2부에서는 전고체 전지의 연구 동향을 소개하며, 글로벌 배터리 시장을 선점할 수 있기를 기대해 본다.

융합연구리뷰

Convergence Research Review 2021 December vol.7 no.12



01

제조 데이터 통합 및 분석 플랫폼 기술 동향

강정훈(한국전자기술연구원 수석연구원)

I 개요

1. 제조 빅데이터 개념

COVID-19 등의 사회문제로 원격 근무가 증가함에 따라 원격 근무 중 제조 공정 관리와 원격 근무 중 발생하는 제조 공정 문제에 민첩한 대응을 위해 '스마트 제조'가 더욱 주목받고 있다. 스마트 제조는 제품의 전(全) 과정이 정보통신기술(ICT, Information Communication Technology)과 융합되어 제조 생산성과 효율성을 높여주는 기술을 의미한다. 제품의 기획, 설계, 생산 유통 판매 등의 모든 과정이 ICT를 통해 자동화 및 정보화되어 제품 제조 가치사슬 전체가 실시간으로 연동, 통합되는 것이다. 이로써 생산성 향상은 물론 에너지 절감, 비용 절감, 고객 맞춤의 제품 생산이 가능해진다.

스마트 제조 기술의 베이스(Base)는 '제조 빅데이터'로부터 시작된다고 볼 수 있다. 제조 빅데이터란 스마트 공장에서 운영되는 모든 기기(자동화기기, 제어기, 센서, 모터, 스마트 기기 등)가 표준화된 데이터 모델에 기반하여 실시간으로 공유되고 상호제어되며 쌓이는 데이터들의 큰 집합을 말한다. 이들은 '제조 빅데이터 플랫폼'을 통해 수집, 저장, 분석된다. 제조 빅데이터 플랫폼은 스마트 공장 기반에 해당하는 디바이스(Device)에서 입수한 데이터를 최상위 어플리케이션에 전달하고 미들웨어 기술들을 활용하여 디바이스로부터 수집된 정보를 실시간으로 취합·처리·분류한다.

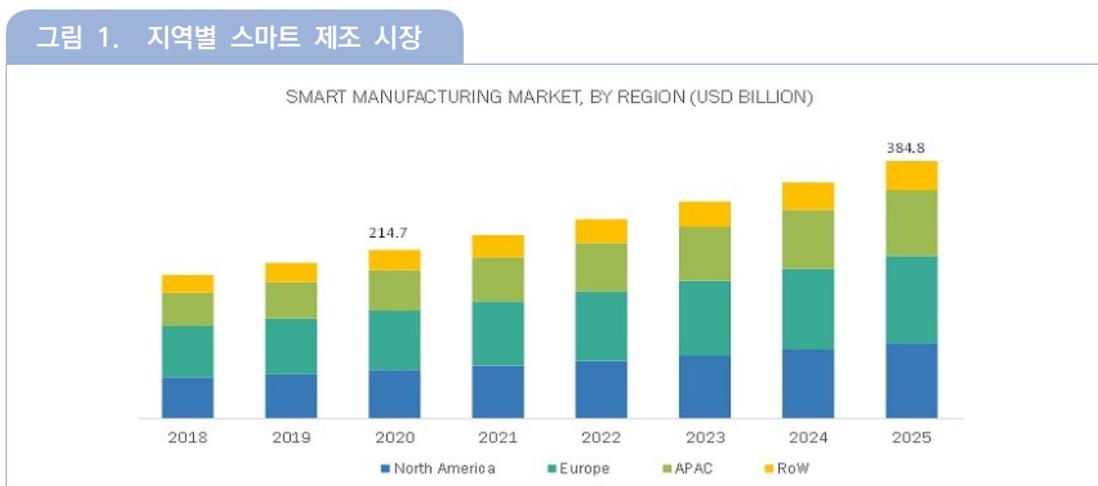
이처럼 제조 빅데이터 플랫폼을 통해 생성된 제조 빅데이터를 플랫폼 내 소프트웨어(Software)를 이용하여 실시간으로 분석하면 수요 예측, 자원관리, 예지 보전(Predictive Maintenance, 설비의 진동, 전류, 소음, 온도 등을 측정해 데이터 분석을 기반으로 필요한 시점에 유지 보수하는 방식), 문제 발생 회피, 통계 운영상의 문제해결이 가능하다. 제조 공장의 리소스(Resource)를 최적화하고 사람에 의한 변동 요소를 최소화하여 데이터를 기반으로 한 의사결정을 실시간으로 이행하는 제조 운영 환경 솔루션 제공을 통해 데이터 기반의 공장 운영체계를 갖추으로써 생산 현장에서 발생하는 현상, 문제들의 상관관계를 얻어 낼 수 있다. 또한 전후 공정 데이터들을 자유롭게 연계하여 총체적인 관점에서 최적화할 수 있다. 기존 생산 현장에서는, 생산전략 운영이 사람의 지시를 통해 이루어졌으며, 이로 인해 생산전략의 구현에 상당한 시간이 소요되었다. 반면 데이터 기반의 생산체계는 이러한 시간 간극을 단축하고, QCD(Quality, Cost, Delivery, 품질, 원가, 납기) 관점으로 의사결정의 가중치를 반영시킴으로써 생산의 전략적 선택이 실시간으로 현장에서 실행될 수 있도록

한다. 공정 전후 데이터뿐 아니라 공정 에너지 소비량, 환경 오염도 등의 데이터 수집, 파악과 원격 모니터링을 통해 제조공장의 환경 이상을 분석하고, 리소스 사용을 분석하여 효율화할 수 있다.

제조 데이터 기술은 전통 제조 산업에 ICT가 결합되어 개별 공장의 설비와 공정의 기능이 지능화되고 네트워크로 연결되어, 모든 생산 정보가 실시간으로 공유, 활용되는 기능을 제공한다. 또한, 이런 기능뿐 아니라 공장 간의 협업적 운영이 지속될 수 있어 생산 최적화를 위한 협력과 시너지가 가능한 생산체계이다.

2. 제조 빅데이터 필요성

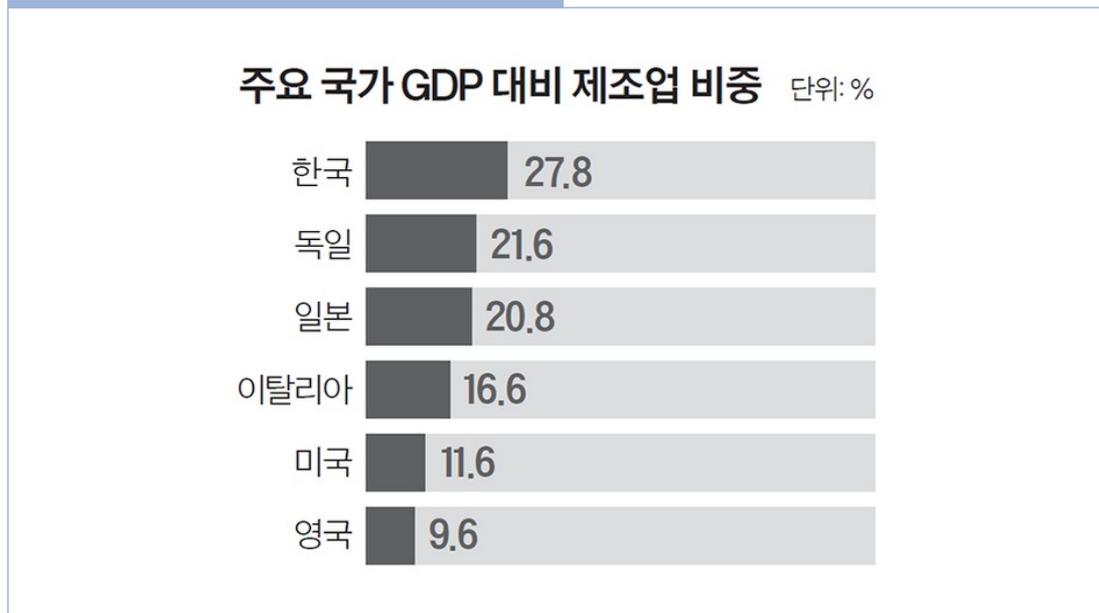
과거 제조업은 다른 산업에 비해 디지털화가 늦은 산업군에 속했다. 제조업 사업 특성상 디지털화를 위한 표준화가 쉽지 않고 당장의 비용이 많이 들기 때문이다. 그러나 최근 전 세계적으로 고임금·저출생으로 인한 생산성의 감소, 글로벌 경쟁 심화, 수요자 중심의 커스터마이징(Customizing, 생산자가 수요자의 요청에 따라 제품을 만들어주는 일종의 맞춤 제작 서비스) 증가 등의 요인들로 인하여 제조업에도 디지털 기술 도입이 진행되고 있다. 게다가 최근 코로나-19 대유행으로 생산, 공급, 유통의 제조업 가치사슬이 직접적으로 위협을 받으면서 이 위기를 극복하기 위한 돌파구로 디지털 트랜스포메이션(Digital Transformation)이 주목받고 있다. 이러한 흐름은 <그림 1>에서도 발견할 수 있다.마켓 앤 마켓 앤 마켓(Markets and Markets)의 2019년도 조사에 따르면 전 세계 스마트 제조 시장은 2,000년 약 2,150억 달러에서 2025년까지 약 3,850억 달러로 1.5배 넘게 성장할 것으로 보인다.



* 출처 : Market and Market Report(2019)

이와 같은 세계적인 제조업 디지털 트랜스포메이션의 흐름 가운데 2020년 한국의 제조업/GDP 비중은 27.8%로 독일(21.6%), 미국(11.6%)과 같은 기타 선진국에 비해 높은 수준을 기록하고 있다. 이는 곧 한국 경제에서 제조업이 중요한 위치를 차지하고 있음을 말해준다.

그림 2. 주요 국가 GDP 대비 제조업 비중



* 출처 : 기획재정부(2020) 인용, 중앙일보 재인용

따라서 미래의 국가 경쟁력을 높이기 위해서는 제조업의 고도화를 위한 제조 빅데이터 수집이 필요하다. 기업은 제조 빅데이터 분석으로 얻은 솔루션을 통해 제조 현장에서 발생하는 돌발 장애 및 품질 불량 등의 정확한 원인을 알아내고 해결할 수 있는 대응 능력을 키우고 생산성의 혁신을 일으킬 수 있다. 결과적으로 고객 맞춤형 제품을 최고의 효율로 생산하여 제공할 수 있게 될 것이다.

기업 내부적으로는 빅데이터를 활용하여 기업의 다양한 문제를 해결하기 위해 정보를 분석하여 복수의 제안을 제시하고 비교, 평가하여 의사결정을 쉽게 내릴 수 있도록 지원할 수 있다. 범용 의사결정 시스템을 도입하는 기업은 현안을 해결하고 이러한 경험과 솔루션이 누적되어 기업 운영, 경영 최적화에 도달할 수 있다.

그림 3. 기업 의사결정 개요



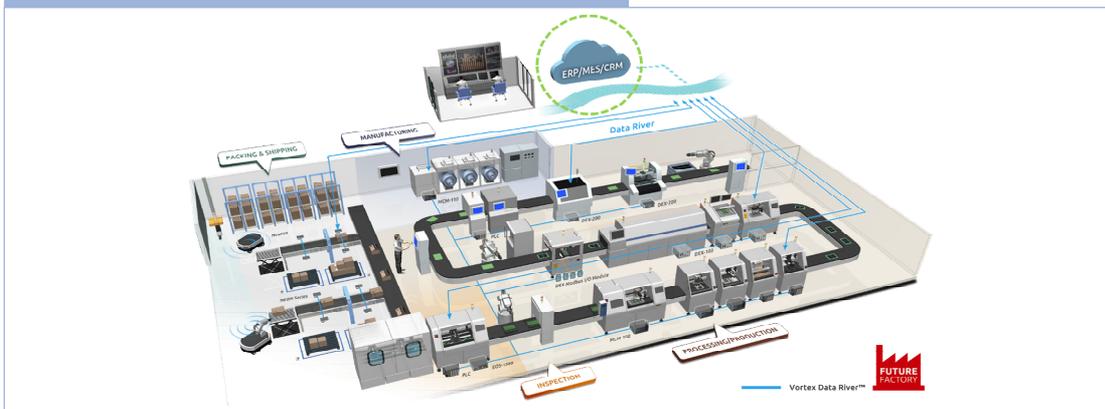
*출처 : 저자 정리

3. 제조 빅데이터 플랫폼 기능 및 구성

제조 빅데이터 플랫폼은 공정 진행 중 발생한 데이터와 생산설비에 설치되어있는 센서를 통해 데이터를 수집하여 서버에 저장한다. 저장된 빅데이터는 미들웨어 소프트웨어를 통하여 분석에 활용됨으로써 사용자에게 필요한 정보로 가공·연산되어 제공된다.

제조 빅데이터 플랫폼의 기능은 데이터 수집, 저장, 전처리·분석·가시화로 구성된다.

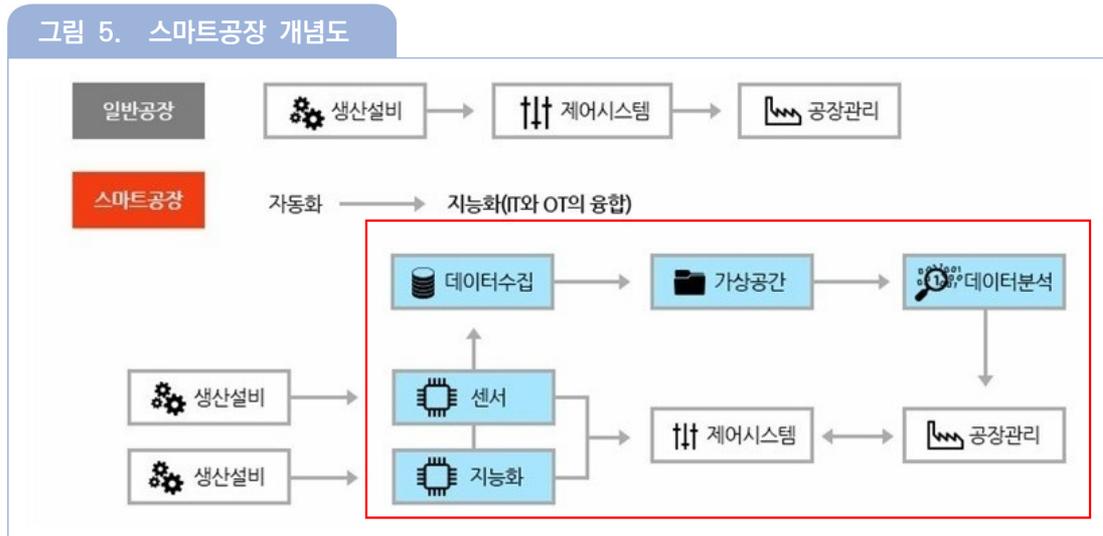
그림 4. 클라우드 기반 제조 데이터 수집 시스템



* 출처 : Insight Technologies

3.1. 제조 데이터 수집

공정이 실행되기 위해서는 작업지시, 공정 진행, 작업 중간 결과 등의 생산 정보 데이터와 제조라인에서 생성되는 공정, 센서, 설비, 에너지, 품질 등의 전체 데이터를 수집한다. 자세한 데이터를 수집하고 자동화된 시스템을 이용하여 수집 프로세스를 단순화하고 고속화하는 것이 주요 성능 요소이다.



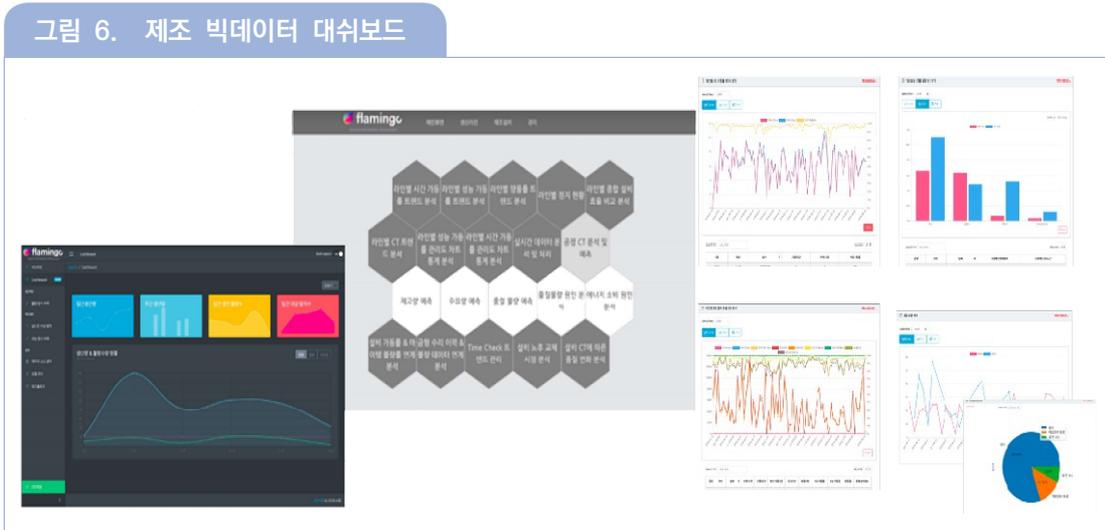
* 출처 : 대한민국 제조혁신컨퍼런스(KMAC), 한국인더스트리4.0협회 자료 인용, IRS 글로벌 재인용

3.2. 저장

수집된 데이터는 서버 혹은 클라우드에 저장되는데, 보안적 측면에서 본다면 서버를 이용하는 것이 더 안전하지만 범용 스마트 공장화를 통한 공용 플랫폼을 구축 예정이라면 클라우드 플랫폼에 연동하여 확대할 수 있도록 표준 규격을 만족하는 서비스를 활용하는 것이 가격과 향후 확장 효율성을 높일 수 있다.

3.3. 전처리·분석·가시화

대용량 제조 데이터 분석에 적합한 전처리, 분석, 가시화 모듈로 구성하여 전처리에 필요한 데이터 마이닝, 기계학습 등의 범용적인 기법들을 제조업에 바로 적용할 수 있도록 서비스 형태로 제공함으로써 사용자가 데이터를 쉽게 이용할 수 있도록 가시화한다. 이러한 제조 빅데이터 플랫폼을 통해 신뢰성 높은 분석 도구를 이용한 생산시스템의 제어, 운영, 관리 등 생산 전반의 모든 프로세스에 대한 전사적인 최적화를 구현할 수 있다.



* 출처 : exem 홈페이지

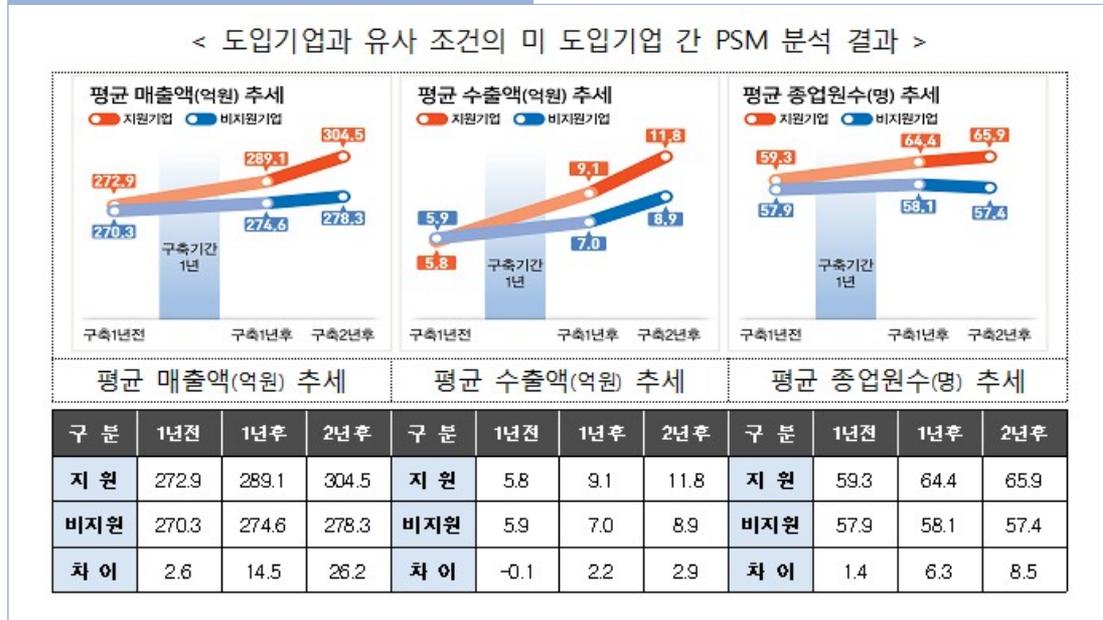
4. 시장 현황

국내 스마트 제조 현장 적용 및 확대는 국가 주도로 이뤄지고 있다고 볼 수 있다. 국가 주도의 스마트 팩토리 보급 및 확대는 2014년부터 본격적으로 시작되었으며 2020년 기준 1만 9,799개가 보급되었다. 대부분 레벨 1~2단계에 해당하는 기초 수준이며, 대체로 생산성 향상과 불량률 감소 등 긍정적 성과를 내고 있다.

스마트 제조의 현장 적용 확대 현황은 중소벤처기업부의 2019년 보도자료에서 더 자세히 살펴볼 수 있다. 2014년부터 2017년까지 지원받은 중소기업의 경우, 생산성 30% 향상, 품질 43.5% 향상, 원가 15.9% 감소, 납기 준수율 15.5% 증가를 이루어 경쟁력을 높였고 매출이 7.7% 정도 증가하면서 고용인원은 4.2% 증가한 것으로 밝혀졌다.

더불어 스마트 공장 도입을 완료한 기업과 유사 조건의 미도입 기업에 대한 비교분석(PSM, Propensity Score Matching)을 실시한 결과, 스마트 공장을 도입한 기업이 매출액, 수출액, 고용에서 성과가 더 높았고, 동 격차는 기간이 경과할수록 심화되는 것으로 나타났다.

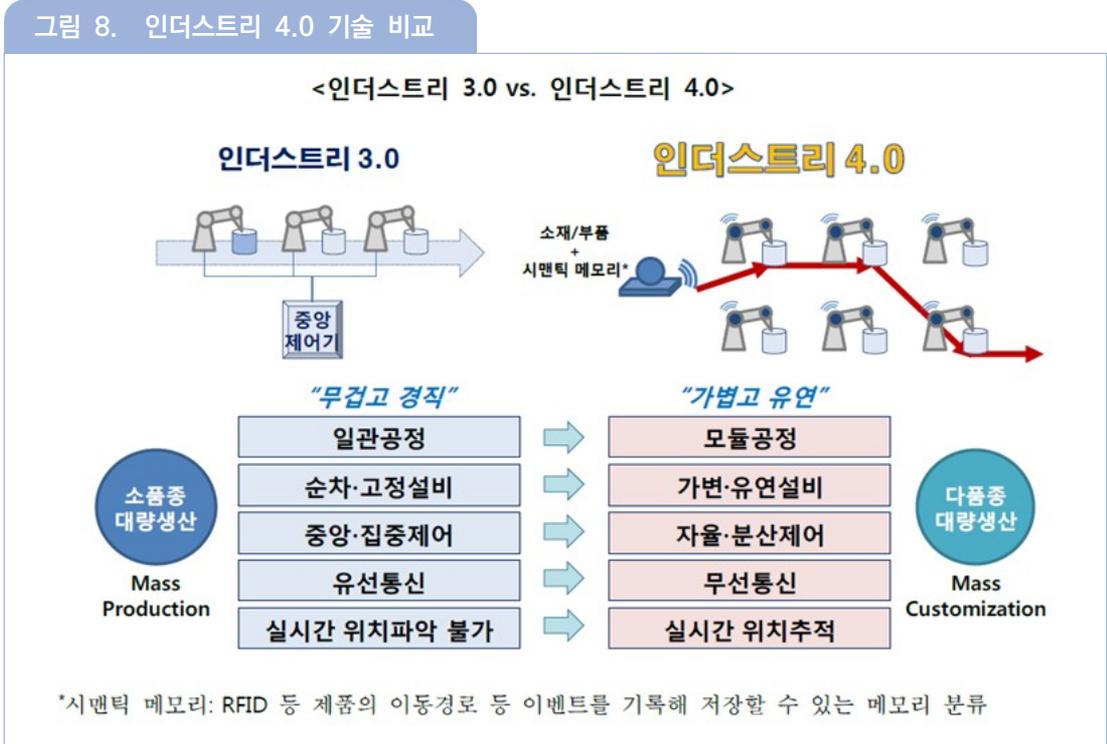
그림 7. 스마트 공장 보급사업 성과분석



* 출처 : 중소벤처기업부(2019)

이에 앞으로 2만 개 이상의 국내 제조 기업이 참여한 스마트 공장 보급·확산 사업을 바탕으로 데이터와 인공지능을 활용한 스마트 공장 고도화 사업을 추진하여 제조기업의 디지털 트랜스포메이션이 이루어질 것으로 예상된다.

스마트 제조에 인공지능 기술의 적용으로, 기계학습(딥러닝)을 기반으로 지속적으로 변화하는 환경에서 상황인지를 통해 기계가 스스로 인지, 추론, 판단하는 능력이 향상되어 정확한 품질예측, 설비진단, 공장 안전, 유연한 생산이 가능해졌다. 또한, 사물인터넷(IoT, Internet of Things), 빅데이터를 통해 그동안 수집할 수 없었던 공정 데이터 수집이 가능해졌고, 휘발성으로 저장하지 못했던 데이터를 영구적으로 저장하여 설비/공정 등의 품질 분석의 정확도를 기계학습(딥러닝)을 통해 개선할 수 있게 되었다. 이렇듯 제조공장에 인공지능 기술이 접목되면, 설비장비의 예지 진단, 제조공정 분석, 제품 생산성 분석 및 예측 등이 가능하여 효과적이고 정확한 스마트 제조 서비스가 가능하고, 궁극적으로 제조 효율을 극대화하여 제조 경쟁력을 강화할 수 있다.



* 출처 : 3rd European summit of future internet, Keynote: Industry4.0

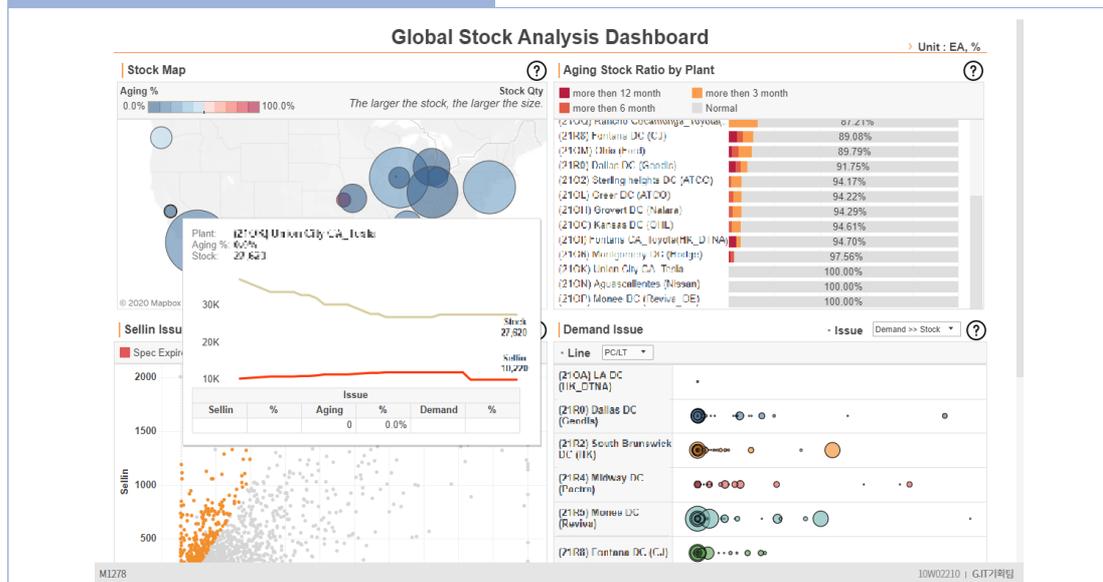
II 제조 빅데이터 적용 사례

1. 국내사례

1.1. 빅데이터 통계를 활용한 운영 효율화

국내 타이어 제조 시장 1위 기업인 한국타이어는 '태블로'라는 데이터 플랫폼을 개발하여 글로벌 사무소의 경영, 재무, 제품, 제조, 생산관리 및 연구 업무에 활용하고 있다. 그 결과, 현업 부서의 수정 요청 및 고도화 작업 등 다양한 요구에 대한 즉각적인 대응 및 정교한 작업이 가능하게 되어 실제로 표준화된 리포트 작성을 위한 프로토타입 모델을 개발 후 최종 사용하기까지 개발 기간을 기존보다 약 75% 이상 단축시키는 성과를 낳았다.

그림 9. 한국타이어 태블로 대시보드



* 출처 : 한국타이어

1.2. 디지털 전환 및 데이터 격차 해소

선박기업인 대우해양 조선은 2018년 네이버 비즈니스 플랫폼, 인텔코리아와 함께 SIoT(Ship IoT) 에코시스템 인프라 구축을 위한 공동 프로젝트 업무협약(MOU)을 맺었다. SIoT 에코 시스템 인프라는 기존의 선박 주요 시스템 관리를 위한 선내 중앙 관제 시스템에서 벗어나 클라우드와 IoT, 선내 유무선 네트워크를 기반으로 하여 실시간으로 많은 데이터를 축적하며, 저장된 데이터를 관련 사업자들이 스스로 분석하여 인공지능화된 선박 서비스를 제공할 수 있도록 한다. 이를 통해 각종 기자재와 제어시스템을 클라우드 환경에서 통합 관리하고 데이터를 분석해 실시간 판단함으로써 발생하거나 발생 예정인 이슈에 대한 예지 보전이 가능하고 육상에 있는 관계자들도 클라우드에 접근하여 실시간 정보를 확인함으로써 빠른 의사결정이 가능하다.

1.3. 스마트 팩토리 소프트웨어 솔루션

삼성그룹의 ICT 기업인 삼성 SDS는 인공지능(AI, Artificial Intelligence)을 기반으로 한 스마트 팩토리 솔루션인 '넥스플랜트(Nexplant)'를 출시했다. 넥스플랜트 솔루션은 삼성전자 등 삼성 관계사 공장 및 국내 다수 기업의 제조현장에 인공지능을 적용한 경험을 집대성하여 완성한 스마트 팩토리 솔루션이다. 제조공정에 삼성 SDS에서 자체 개발한 빅데이터 분석을 위한 인공지능 브라이틱스 AI(Brightics AI)를 적용하여 IoT를 통한 설비의 센서 데이터를 수집·분석해 제조 설비 상태를 실시간 진단하고 문제점을 신속히 파악·해결함으로써 공정품질을 30% 향상시켰다. 인공지능 검사 예측 모델을 적용해 불량 검출률 3.5배 높였고, 불량 유형을 딥러닝으로 학습시켜 불량 분류 정확도를 32% 증가시키는 등 생산 효율을 극대화할 수 있다.

1.4. 클라우드 기반 제조 데이터 분석

동국제강 그룹의 ICT 기업인 동국시스템즈는 제품 기획부터 판매까지 모든 생산 과정에 ICT를 활용한 지능형 공장 구축을 지원한다. 사업장에서 위급상황에 처한 근로자가 발생하는 경우 IoT, 헬스케어, 클라우드, AI 기술들을 활용하여 골든아워를 확보할 수 있도록 함으로써 근로자의 안전성을 높인다. 또 D'MES라는 솔루션을 통해 생산 공정 내 모든 자원의 공정단위별 생산계획을 현장에서 실행하고, 생산 관련 품질 데이터를 관리하는 정보화 시스템 솔루션을 활용한다. 최신 오픈소스 기술을 도입해 스마트 팩토리 구현에 대한 기술적 유연성을 확보하고 시스템 최적화 및 경량화를 통해 업무시간 단축 등 동국제강 그룹의 자체 기술력으로 생산 관리 시스템(MES, Manufacturing Execution System)을 구축함으로써 대내외 경쟁력 강화에 도움이 될 것으로 보인다.

2. 해외사례

2.1. BMW社(독일)

자동차 생산 기업 BMW는 IBM의 예지 정비 솔루션을 도입하여 성공적인 스마트 제조 현장을 완성하였다. '예지 정비(Predictive Maintenance)' 분석기법이란 설비, 계측, 정비 이력 등에서 발생하는 수많은 데이터를 취합하고 이를 기반으로 예측 모델을 생성하고 반복적으로 발생하는 특정 사건 및 패턴을 발견하여 이를 시간과 연계 분석해 미리 예측하는 기술을 말한다. 이 같은 예측 모델을 바탕으로 자동차 제조사와 부품 업체는 예지 정비를 실시하여 예지 정비 기법을 활용해 문제가 언제, 어디서, 어떻게 일어날지를 예측하고 리콜 사태와 같은 더 큰 문제가 발생하기 전에 사전에 대응할 수 있게 되었다. 결과적으로 BMW는 이 솔루션을 통해 생산성을 높이고 불량률을 줄여 차량 당 품질 보증 비용을 5% 감소, 생산 비용 30만 유로 절감, 실린더 헤더의 불량률을 16주 동안 50%나 줄였다.

2.2. 센츄리 타이어(Sentury Tire)社(중국)

타이어 생산 기업인 센츄리 타이어는 2014년부터 인적자원, 재고관리, 수율의 낮은 효율성에 대한 위기를 극복하기 위해 스마트 제조에 관심을 갖기 시작했다. 다렌신하이즈차오와 협업하여 타이어의 생산 제조, 자동화, 품질 추적, 저장 물류까지 단일화된 관리 시스템을 구축하기 위해 노력하였으며, 다렌신하이즈차오는 자사 MES 솔루션을 통해 센츄리 타이어의 공장 운영 데이터를 분석하고 이를 센츄리 타이어의 전사적 자원 관리(ERP, Enterprise Resource Planning)까지 연동하는 작업을 실시했다. 더불어 센츄리 타이어는 MES 외 자동생산계획 시스템, 창고관리시스템, 설비관리시스템 등 또한 도입하였다. 그 결과, 공장 단일 설비 생산 효율성이 50% 가량 제고되었고 제품 불량률은 0.02%까지 줄어들었다. 재고 원가 또한 70% 이상 절감하게 되었으며 인건비 역시 매년 4,000만 위안 이상 절약할 수 있게 되었다.

2.3. 소니(SONY)社(일본)

전자기기 생산 기업인 소니는 아마존 웹 서비스(AWS, Amazon Web Services)에서 제공하는 다양한 머신러닝 서비스와 프레임워크를 통해서 머신러닝 모델을 개발하였다. 개발된 모델들은 아마존 AWS의 Greengrass SW를 통해서 소니의 가속 센서 기반 공장 장비인 'Anomaly Detection'에 장착되어 고주파(10KHz 이상) 센서 데이터를 수집하였다. 수집된 데이터로 베어링 기기 노후화로 인한 공정장비의 성능 저하를 파악하였다. 이처럼 실시간 상태를 파악하고 예측 유지보수 기술을 활용하여 실시한 상태를 파악하고 장비의 지속적인

개선 및 작동이 용이해졌다. 소니는 이후에도 소니의 다른 장비 및 솔루션으로 확대 적용시킬 계획이라고 밝혔다.

2.4. 우드사이드(Woodside)社 (호주)

LNG(액화 천연가스)를 생산할 때에 여러 가지 변수에 의해 액체 또는 기체 혼합 시 거품현상이 발생하게 되는데, 이것을 Foaming현상이라고 부른다. 이러한 Foaming현상 때문에 장비의 오작동이 생기거나 심한 경우에는 전체 공정의 가동이 중단되어 막대한 기회비용이 발생한다. 이러한 문제를 해결하기 위해 호주 최대의 LNG 제조 기업인 우드사이드는 약 10,000개의 센서에서 나오는 데이터(온도, 압력 등)를 AWS 클라우드에 전송하고, 수집된 데이터를 빅데이터 분석을 통해 Foaming현상을 예측할 수 있는 모델을 개발하였다. 이를 바탕으로 20만 개의 센서와 6천 개의 분석모델을 개발하고, Foaming현상으로 인한 다른 주요 장비들의 고장을 예측할 수 있도록 확장시켰다. 또한 On-shore/Off-shore 등 글로벌 5개 공장으로 확장 적용 중이다.

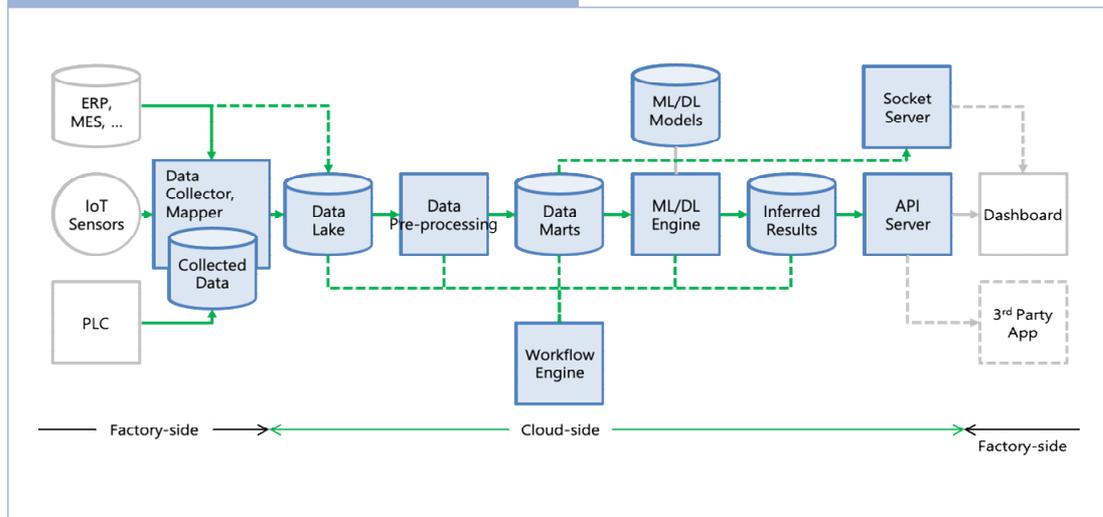
2.5. 볼보(VOLVO)社 (스웨덴)

자동차 제조기업인 볼보는 주행 데이터 분석을 통해 자동차 개발 프로세스를 개선하였다. 차량 운행 과정에서 발생하는 주행 데이터를 본사 분석 시스템에 자동 전송하게 된다. 수집된 주행 데이터는 분석을 통해 차량 결함과 소비자의 잠재적인 요구사항을 파악하고, 도출된 분석 결과를 차량 개발단계에서부터 반영하였다. 주행 데이터를 개발 및 제조단계에 적용한 결과, 기존 50만대 판매 시점에서 발견할 수 있었던 차량 결함을 1,000대 판매 시점에서 발견할 수 있었다. 이처럼 개선된 자동차 개발 프로세스는 차량 안전 및 생산·판매량과 같은 비즈니스 효율성 개선에 많은 영향을 준다.

III 제조 빅데이터 클라우드 플랫폼

제조 공정의 데이터를 수집하여 빅데이터를 구성하고 데이터 분석을 통해 운영 패턴을 이해하기 위해서는 빅데이터 기술과 데이터 분석, 학습 기능을 융합하여 운영하는 기술이 요구된다. 기존 공정 소프트웨어 서비스 기술은 데이터 수집, 데이터베이스 구축과 해당 데이터 표출 서비스의 최적화를 목표로 구현되었으나, 향후에는 미세한 원인 감지를 기본으로 하여, 추가적으로 소비자 및 품질 요구에 따른 신속한 공정 반영을 위한 데이터 분석, 분석 내용 학습을 위한 딥러닝 소프트웨어 기술 적용이 확대될 것이다.

그림 10. 플랫폼 주요 기능 및 데이터 흐름



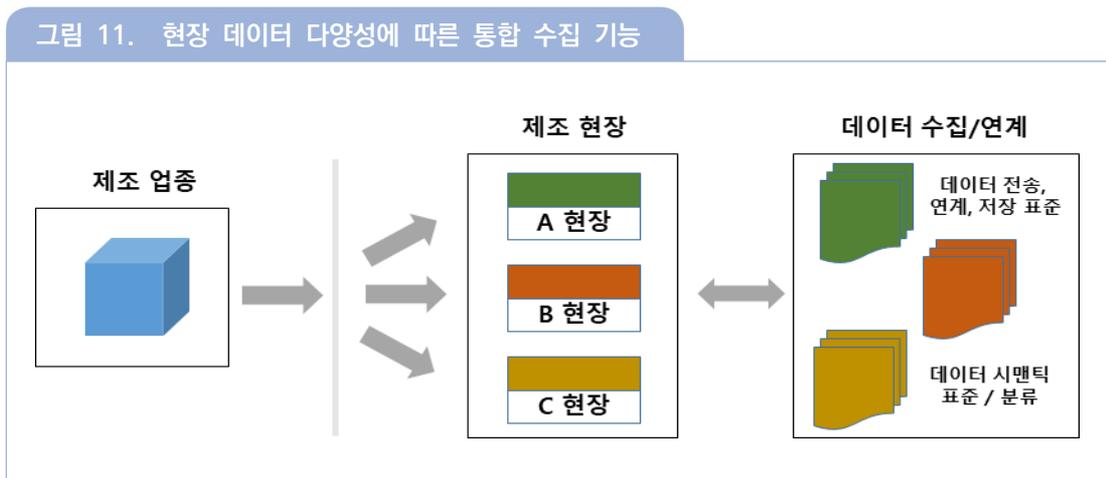
* 출처 : 저자 정리

1. 제조 빅데이터 수집

제조 공정에서의 데이터 셋(Data Set)을 확보하기 위해서는 요구사항 분석 및 수집 데이터 정의를 기반으로 제조현장에서 데이터를 수집한다. 데이터의 종류로는 수량, 품질, 생산 사이클 타임, 생산 효율과 같은 장비로부터

직접 추출되는 데이터가 있다. 그리고 생산량과는 별개로 장비의 전압, 전류, 진동, 입력과 같은 물리적 데이터와 공장 내 환경 데이터 등이 존재한다. 데이터 수집은 반드시 생성되는 시점에 자동으로 수집하고 저장하도록 설계해야 한다.

‘OT(Operation Technology)’라고 흔히 표현하고 있는 실제 제조업 현장에서 사용되는 통신 프로토콜은 다양하며, 현장 설비별로도 다양한 프로토콜이 사용되고 있다. 그뿐만 아니라 센서 또는 계기에도 사용되고 있는 프로토콜이 버전에 따라 호환이 되지 않을 정도로 다양한 특징이 있다. 이 외에도 현장 센서 계측기인 PLC(Programmable Logic Controller)는 기업별로 전용 프로토콜을 보유하고 있어서 서로 다른 제조사의 설비로 이루어진 제조 공장에서는 데이터 통합의 어려움이 있다. 이러한 문제점을 해결하고 제조 설비와 응용프로그램 간의 데이터 교환을 위해 국제산업 표준 통신 프로토콜인 OPC-UA(OPC Unified Architecture)가 주목받고 있다. 실제 현장에서는 업종에 따라 제각각인 다양한 독립 공정과 라인이 존재하여 데이터 수집을 위한 일관성 있는 표준 또는 접근방식이 필요하다. 새롭게 구축되는 스마트 공장에서는 공장들을 대상으로 전송 기술뿐만 아니라, 데이터 내용 자체의 시맨틱 표준을 일관성 있게 적용하여야 한다.



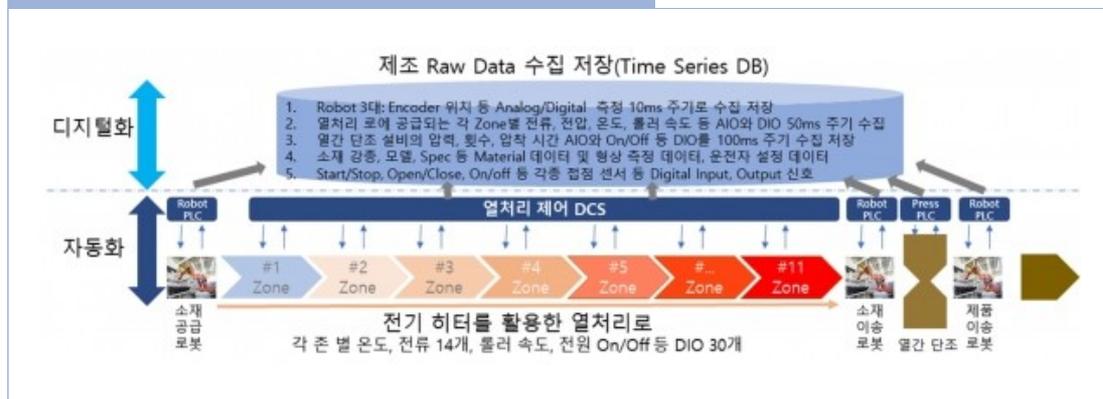
* 출처 : 저자 정리

수집되는 다양한 종류의 빅데이터는 관계형 데이터베이스에 저장되어 통계적 공정관리를 하는데, 데이터가 누적되면서 대용량 데이터 셋을 복잡한 조건을 적용하여 관계형 데이터베이스에서 분석하기에는 어려움이 있다. 따라서 데이터 내용 자체의 시맨틱 표준을 일관성 있게 적용하여 데이터가 다양한 종류의 빅데이터 DB 시스템에 저장되어 있어도 일관성 있게 접근 및 질의가 가능한 통합형 스마트 공장 데이터 관련 시스템으로

구현되어야 한다. 수집된 데이터를 시맨틱에 따라 조합하여 접근 가능한 쿼리 기능을 포함해야 단순한 빅데이터 저장 이상의 데이터 분할, 분류, 분석 기능을 개발할 수 있는 환경을 구축할 수 있다.

제조 원본 데이터는 제어 주기와 동일하게 100ms(1/1,000초)에서 1초 정도의 시간 주기로 수집 및 저장하기 때문에 시간이 지날수록 데이터 저장 용량이 기하급수적으로 늘어난다. 데이터베이스 서버에 저장하게 되면, 과부하 등의 비경제적인 문제가 발생한다. 이를 해결하는 방법으로는 클라우드 컴퓨팅의 데이터베이스에 저장하는 것이 경제적이고 보안이 더욱 강화될 수 있으며, 인공지능 분석 솔루션을 도입해 데이터의 가치를 쉽게 얻을 수도 있다.

그림 12. 제조 산업에서의 데이터 수집, 저장 과정



* 출처 : 스마트제조혁신추진단

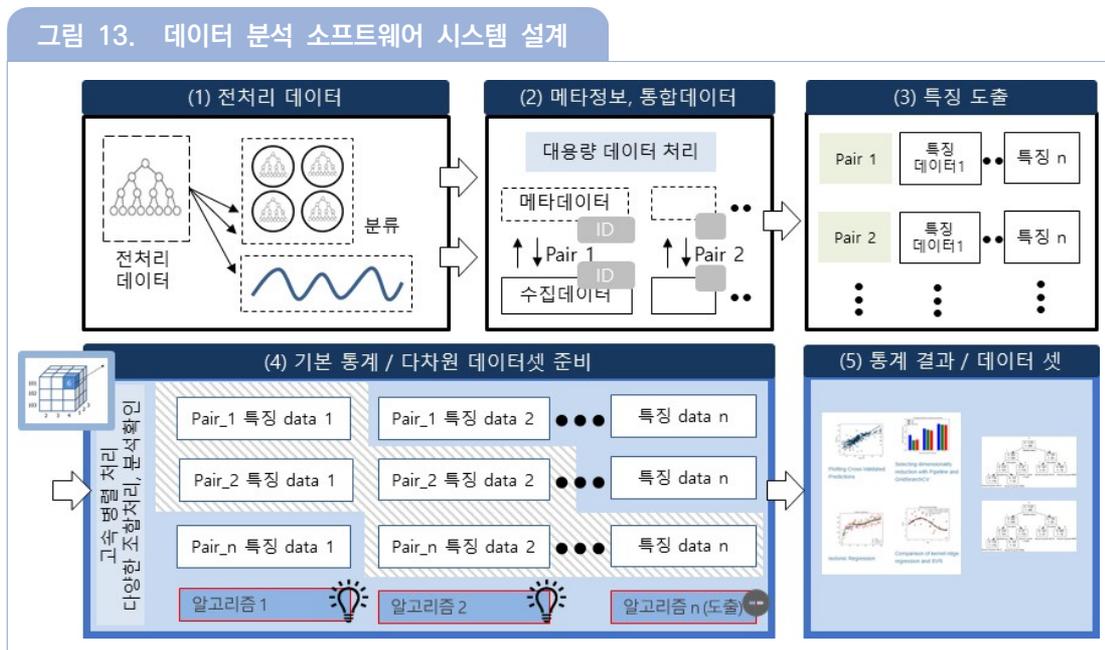
2. 제조 빅데이터 통합 분석

2.1. 제조 데이터 분석 소프트웨어 구조

제조 빅데이터 시스템은 기본적으로 제조기업의 도메인, 공정, 수요에 따라 활용할 수 있는 클라우드 기반 데이터 분석 및 가시화 서비스 기술을 제공하며, 데이터 처리 능력 향상을 위해 병렬 및 분산 처리를 수행한다. 데이터 모니터링을 지원하는 상관관계, 연관관계 분석 및 모델링 기능 등을 포함하며, 데이터 분석 솔루션으로는 통계 분석, 관리도 분석, 군집 분석, 시계열 분석, 회귀 분석, 의사결정 나무, 인공지능경망, 최적화 등을 제공한다.

빅데이터를 효율적으로 수집, 저장 관리하는 소프트웨어 기술은 기본적인면서 가장 중요한 기술로, 공정 데이터는 운영 시간에 따라 데이터 용량이 지속적으로 증가하기 때문에 장기간 축적된 데이터에 대한 저장

관리 기술이 필요하다. 저장된 빅데이터는 단순한 통계만으로 미세한 원인 분석을 할 수 없기 때문에, 여러 가지 조건에 따라 전체 패턴의 특징을 유닛(Unit)별로 분리해서 확인하는 복합 병렬 처리의 단위 기능이 신뢰성이 있다. 오랜 기간의 빅데이터에 대한 반복적이고 수치별 분리, 분석을 위해서는 데이터 관리에 메타데이터를 적용하고 메타 분류에 따른 분산 데이터 관리가 중요하다. 이를 활용하여 빅데이터 전체에서의 파트별 특징을 도출하고, 유사한 특징에 해당하는 데이터를 조합하여 원인을 체계적으로 접근·분석할 수 있다. 이런 파트별 특징을 단위 데이터별로 가시화한 후 통합된 데이터 전체 구간에 대해서 요소별 특징을 처리하여 분해하고 결과에 대한 원인 요인을 확인하는 가시화 기능이 제공된다.



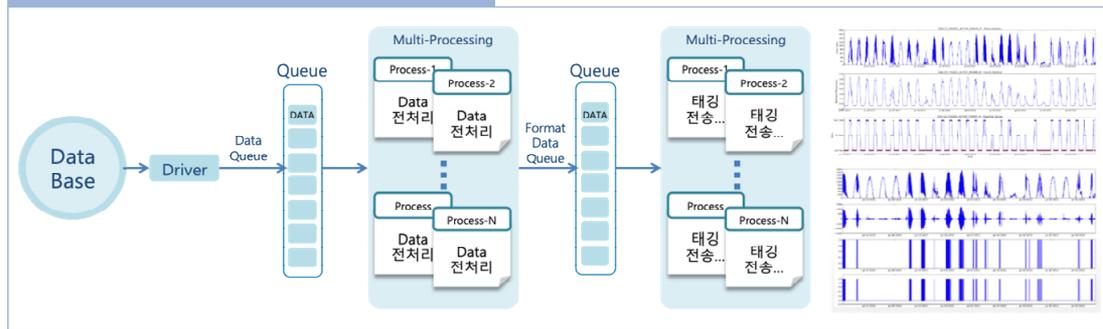
* 출처 : 저자 작성

2.2. 이기종 데이터 연계 분석기술

이기종 데이터 연계 분석기술은 사용자 서비스 중심의 공정 데이터 분석 및 통계 서비스를 제공한다. 클라우드 플랫폼을 통해 특정 데이터 파티션에 대한 단위 분석 기능뿐 아니라 통합 공정 데이터, 센싱 정보 등의 연계 분석 기능을 제공하며, 외부 클라우드 기능과 조합하여 구현할 수 있는 개방형 API(Application Programming Interface, 애플리케이션 소프트웨어의 개발 및 통합에 사용되는 정의 및 프로토콜 세트)를 제공한다.

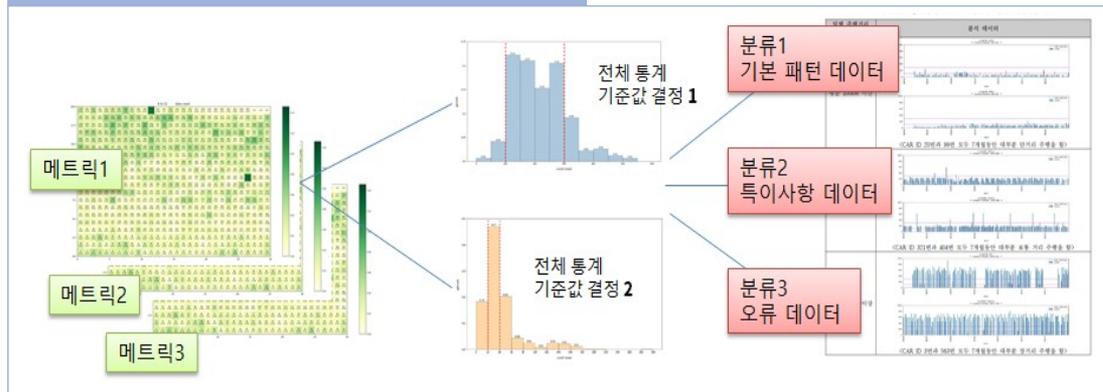
데이터 전처리는 메타 적용과 조건별 분석, 특징 데이터 조합을 위해 실행 시간이 가장 많은 소프트웨어 기능이다. 개발 시간 단축과 정밀한 분석을 위해서는 전처리 성능이 중요하며, 컴퓨팅 리소스를 병렬로 분할하여 실행하고 결과 출력 시간을 단축해야 한다. 데이터 가공, 메타데이터 태그 적용을 위한 시스템 소프트웨어 기능은 병렬 고속 실행이 필요하다.

그림 14. 빅데이터 고속 전처리 기술



* 출처 : 저자 작성

그림 15. 다중 데이터(메트릭) 연계 분석기술

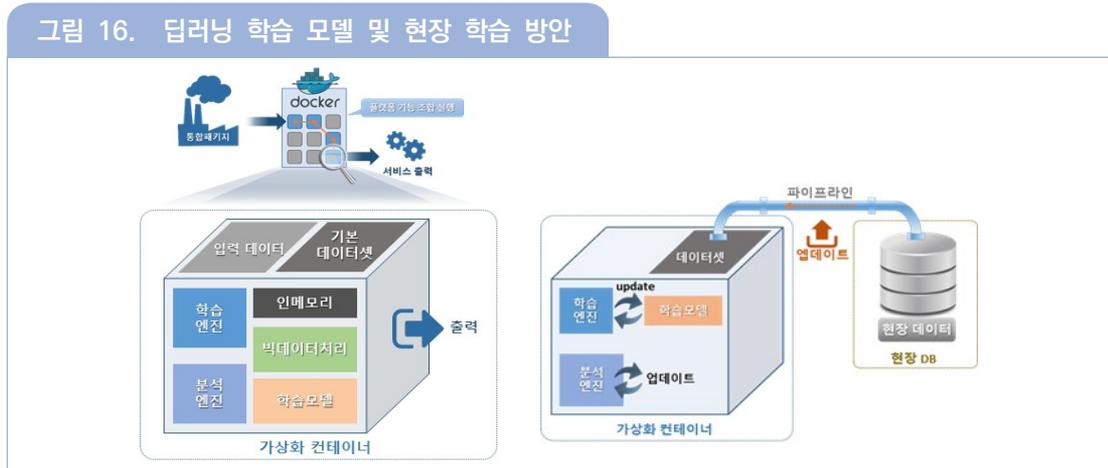


* 출처 : 저자 작성

2.3. 딥러닝 기술을 활용한 공정별 모델 학습

모든 데이터를 공개하지 않고도 병렬 GPU(Graphics Processing Unit, 그래픽 처리 장치) 모듈 구성으로 딥러닝 성능을 확보하고, 클라우드 수집을 통한 스마트 공장 데이터를 기반으로 딥러닝 모델을 개발하여

데이터 처리 소프트웨어를 구현할 수 있도록 모델을 구현할 수 있다. 이때 통합 데이터를 기반으로 기계학습 방안을 도출하고, 이를 단위 검증할 수 있다. 예를 들어 작업장 카메라 영상을 분석하여 자동으로 재고 및 불량품을 판별하는 머신 비전 검사에 딥러닝을 적용하면, 규칙을 일일이 정의하지 않고도 정확도를 높일 수 있다. 이를 위해서는 동영상, 이미지 등의 비정형 빅데이터를 고속으로 비전 처리할 수 있는 기술이 적용된다. 또한 전이 학습 소프트웨어 기술을 활용하면 하나의 제조 도메인에서 학습한 SW를 유사한 타 분야에 활용함으로써 학습 시간을 단축시킬 수 있다.



* 출처 : 저자 작성

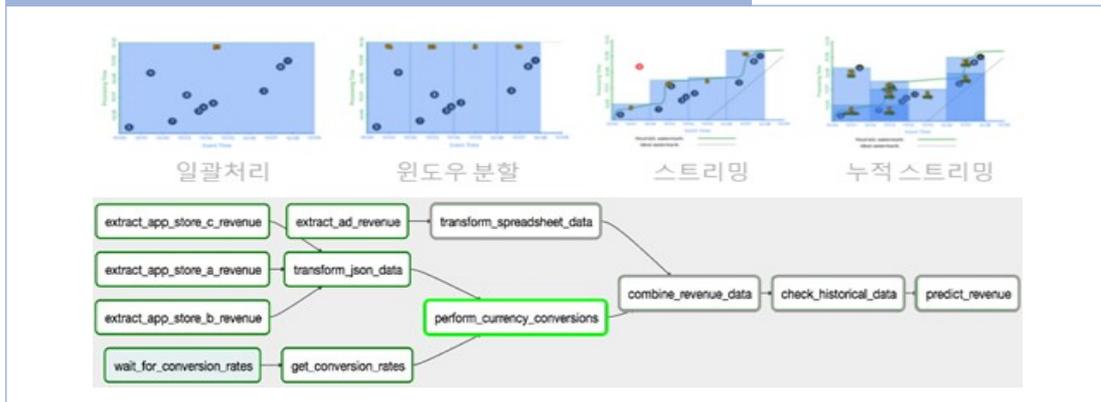
딥러닝을 적용하는 현장에서 가장 어려운 부분이 기업 비밀이라고 할 수 있는 공정, 설비 데이터를 공유하기 어려운 행정적 요인에서 발생한다. 딥러닝 기법은 핵심 모델 개발을 위해서는 딥러닝 모델과 데이터 연동이 필요하지만, 동일한 공정, 유사한 패턴의 데이터에 대해서는 동작 성공률이 높아지는 장점이 있다. 이런 딥러닝의 특징을 이용하여 개발 당시에는 현장 데이터를 이용하지만, 이후 다른 공장이나 공정에 적용할 때는 개발한 딥러닝 학습 모델 컨테이너에 데이터를 주입하여 모델을 생성하고, 공개에 민감한 데이터는 현장에서만 사용하도록 구현하는 것이 활용도를 높일 수 있는 방법이다.

2.4. 복합 분석을 위한 워크플로우(Workflow) 관리 및 가시화

공장 데이터 특성에 따라 실시간 인메모리 스트리밍 처리(끊임없이 들어오는 데이터를 유입시점에 분석하여 원하는 데이터 뷰로 미리 만드는 방식)뿐만 아니라 대규모 데이터의 배치 처리(Batch Processing, 데이터를 일정 시간 단위로 모아두었다가 일괄적으로 처리하는 방식), 시간-이벤트 연관성을 고려한 복합 분석 등의 기능을

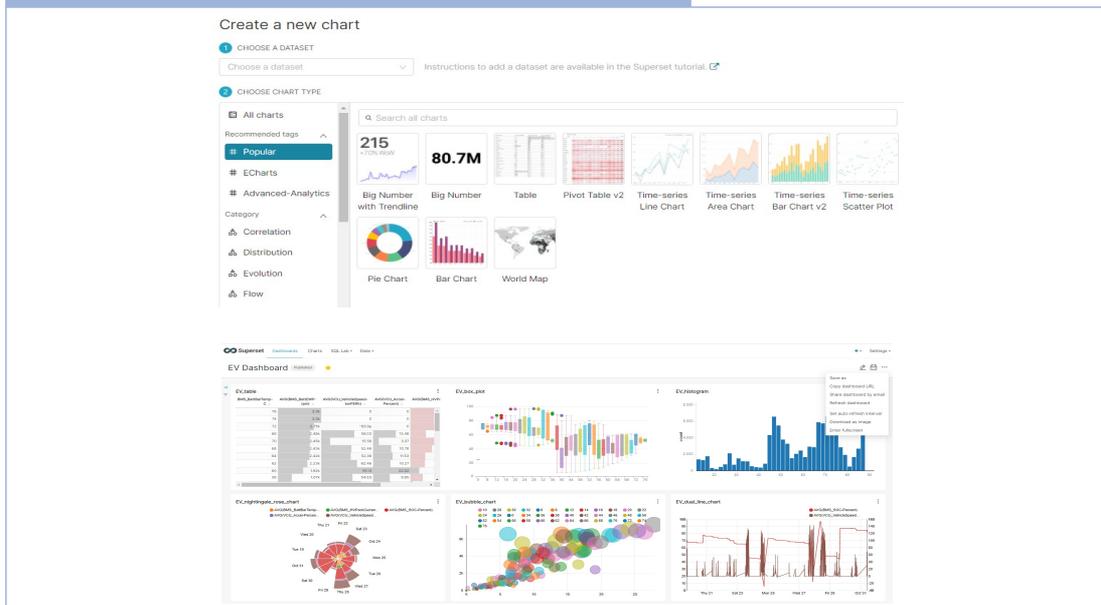
소프트웨어 모듈로 제공한다. 이때 안정적인 처리를 위해 선별적 데이터 접근, 분석, 연계 기능을 연결하는 워크플로우 관리 서비스 엔진을 운영한다. 이를 통해 분석 과정의 전체 흐름 및 순서를 한눈에 파악할 수 있으며, 분석 단계별로 출력을 시각화하여 처리 상황을 확인할 수 있다.

그림 17. 복합 분석 서비스 제공을 위한 워크플로우 서비스



* 출처 : 저자 정리

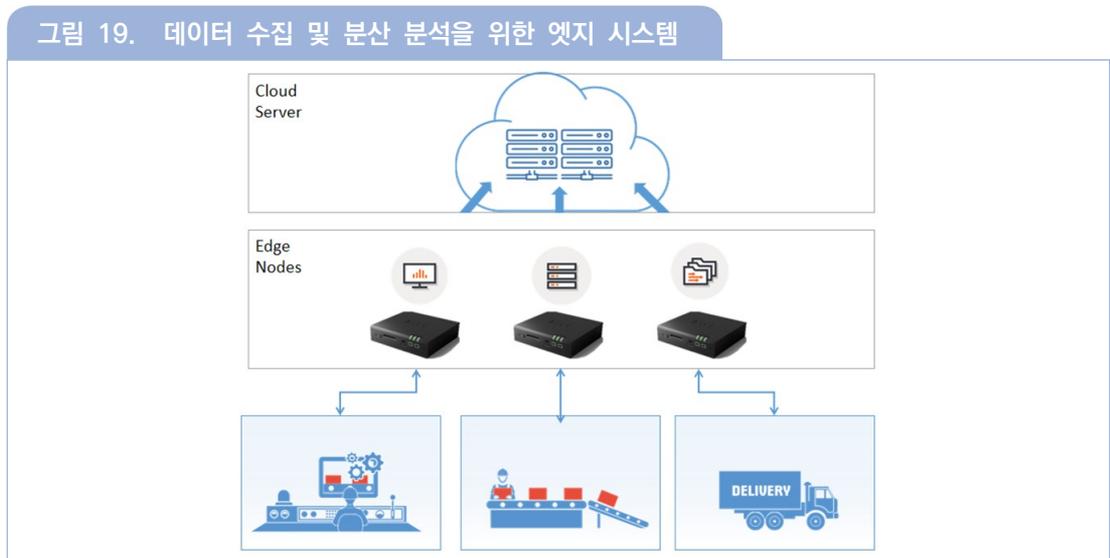
그림 18. 데이터 분석을 위한 대쉬보드 프레임워크(예)



* 출처 : 저자 정리

2.5. 클라우드 및 엣지 컴퓨팅 기술

수집 데이터 폭증을 관리하기 위해 클라우드 데이터 센터를 활용하는 클라우드 컴퓨팅이 주목받고 있다. 그러나 수많은 기기로부터 수집되는 데이터의 일시적 병목 현상으로 인한 처리 지연, 물리적 거리가 먼 경우 네트워크 시간 증가 등의 한계가 있다. 이를 보완하기 위해 클라우드에서는 기존 축적된 데이터를 이용한 모델링을 수행하고, 실시간 분석 처리는 현장에서 엣지 컴퓨팅 기술을 적용함으로써 처리 및 지연 시간을 최소화하고 즉각 대응할 수 있다. 현장 생산 데이터를 직접 처리함으로써 서비스 장애가 감소하고 보안이 강화되는 효과도 있으며, 중앙 데이터 센터에서는 네트워크 및 스토리지 자원 비용이 절감된다.

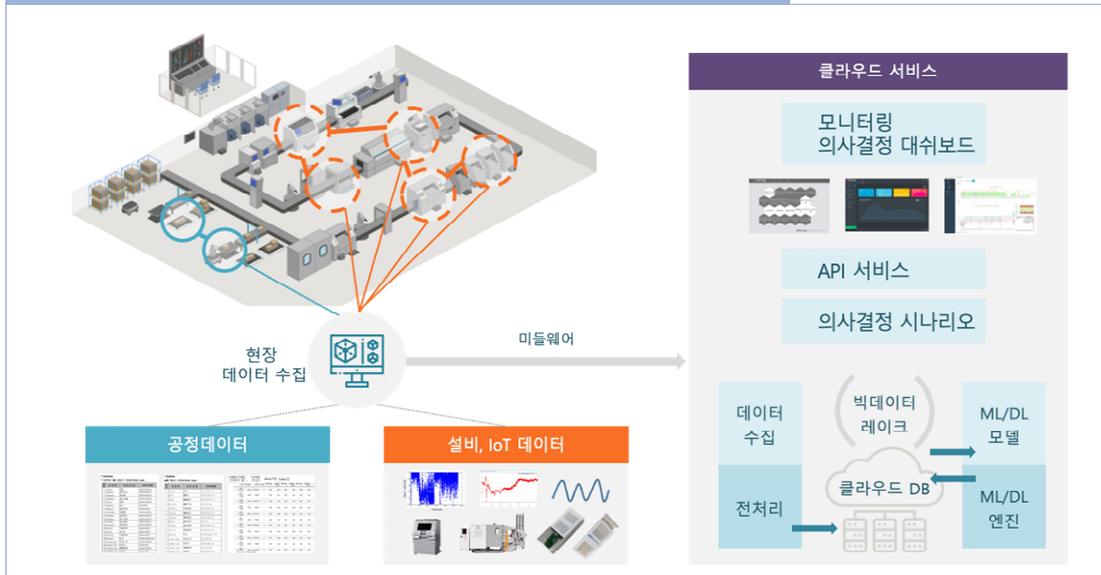


* 출처 : 저자 작성

2.6. 빅데이터 통합 및 의사결정 지원 시스템

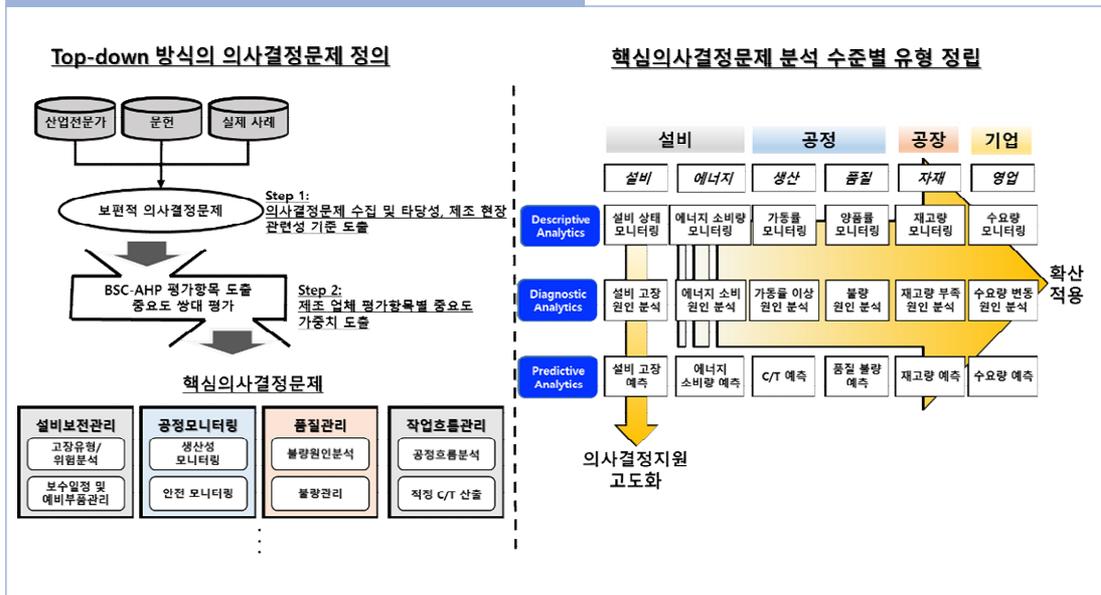
현장 데이터를 수집하여 통합하고 빅데이터 레이크(Data Lake, 가공되지 않은 다양한 종류의 데이터를 한 곳에 모아둔 저장소의 집합)를 구축, 가시화하는 기본 기능 외에 공정 자체를 최적화하고 발생하는 문제에 대한 원인을 분석하여 다양한 방식으로 가시화하는 기능은 기업 전반에 걸친 의사결정에 활용될 수 있다. 의사결정은 항상 다양한 가정에 대한 예측 결과를 고민한 후에 실행에 옮겨지기 때문에, 단순히 현재 데이터의 모니터링과 실시간 예측 통계에 대해서만 목표로 하지 않고 다양한 조건을 변경하면서, 조건변수 변경에 따른 예상되는 결과 변화를 확인할 수 있도록 연산, 조건별 결과 분류 등의 AI 기반 데이터 처리 기능이 요구된다.

그림 20. 생산 현장 빅데이터 수집 및 의사결정 서비스 시스템



* 출처 : 저자 작성

그림 21. 제조 빅데이터 기반 의사결정 설계



* 출처 : 저자 정리

3. 빅데이터 기반 예측 및 관리 소프트웨어

3.1. 데이터 기반 예측

공장 설비 상태, 공정 제어 데이터, 생산 제조 데이터, 고장 이력 또는 패턴 등 다업종 빅데이터를 기반으로 향후 특정 사건이 발생할 가능성을 도출할 수 있다. 대표적인 방식으로는 여러 층의 인공신경망을 사용하여 데이터의 주요 패턴 및 규칙을 학습하여 모델을 생성하고, 이를 활용하여 예측하는 딥러닝 기술의 적용 방식이 진행되고 있다.

점차 장비가 자동화됨에 따라 고장을 예측하고 대처하는 기술이 중요해지고 있으며, 설비 이상 탐지 및 원인 파악을 위해 지속적으로 정상 데이터와 이상 데이터를 비교하여 학습할 수 있다. 생산 제품의 시장 수요 파악을 위해서는 소비자들의 검색, 음성 인식 데이터를 기반으로 자연어 처리를 수행할 수도 있다. 이러한 기술들을 활용하여 위험 분석, 고장 또는 공정 이상을 예측함으로써, 예지 정비를 할 수 있으며 상품 불량률 및 제품 수요도 예측할 수 있을 것으로 전망된다.

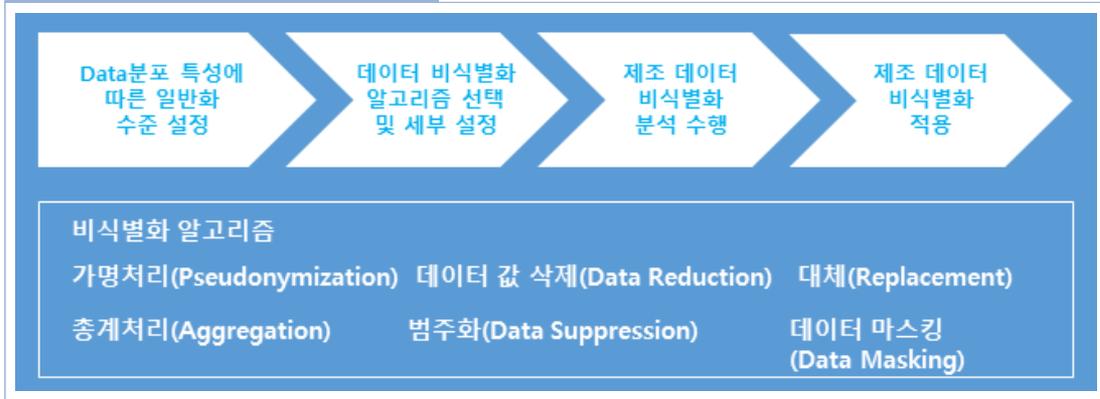
3.2. 디지털 트윈을 활용한 분석

가상 물리 시스템(Cyber-Physical System)인 디지털 트윈을 구현함으로써 현실의 기기, 설비, 운영 환경, 인력과 동기화된 가상 공장을 가동할 수 있다. 가상 모델 및 실제 운영 간 데이터를 연계하여, 시스템 가동률을 예측하고 설비 및 인력을 최적화함으로써 시행착오를 줄이고 비용을 절감할 수 있다. 가상 시운전을 통해 운영 과정에서 비효율적인 부분을 찾아내거나, 직원 교육 시뮬레이션으로 활용하는 것도 가능하다.

3.3. 데이터 외부 공유 및 신뢰성 확보

제조 데이터의 자유로운 공유 및 활용을 위해서는 수집된 제조 데이터의 비식별 가공처리가 필요하다. 공장 이름 가명처리(Pseudonymization), 공정 데이터 마스킹(Data Masking), 제조 데이터 범주화(Data Suppression) 등의 방법론을 적용하여 제조 빅데이터 비식별화 기능을 제공한다. 가명 처리는 클라우드 시스템을 활용하기 위해 중요한 부분이며, 개인정보를 보호하고 안전하게 처리할 수 있어야 제조 빅데이터의 클라우드 적용이 활발해질 수 있으며, 반대로 클라우드 데이터 사용에서 보안에 대한 안전성을 확보하지 못하면, 데이터를 클라우드로 전송하지 않고 로컬 시스템에서 인-하우스 상태로 데이터를 수집, 분석할 수 있도록 솔루션 제공이 필요할 것이다.

그림 22. 제조 데이터 비식별화



* 출처 : 저자 정리

IV 결론

1. 제조 빅데이터 기술 전망

정부는 2021년부터 “스마트 제조 2.0”으로 기간 솔루션 사업에서 벗어나 AI, 빅데이터 등 고도화 단계에 맞춘 지원정책을 추진하고 있다. 인공지능 기반의 중소벤처 제조 플랫폼 구축, 인공지능·데이터 중심의 스마트 제조 공급기업 육성, 인공지능·데이터 기반 중소기업 제조 혁신 거버넌스 확립 등 제조 현장의 빅데이터에 대한 거버넌스 체계가 확립되어 가는 과정 중에 있으며, 관리가 되기 시작한 빅데이터가 적시적소에 활용되기 시작할 것으로 보인다. 초기 단계로써 데이터 시각화를 지나 현재는 사후 분석 중심의 제조 데이터 분석이 이루어지고 있다.

대표적인 예로 품질불량 원인 분석이 있다. 사후 분석의 성과가 검증되면서 사후 분석이 아닌 제조 공정 중 실시간 분석으로 분석 시점이 앞당겨지고 있다. 향후에는 제조 공정보다 더 앞선 설계까지 분석 시점이 앞당겨질 것으로 예상된다. 예를 들면 디자인 변경, 공정 변경, 소재 변경 등 막대한 비용이 필요한 파일럿 공정 및 시뮬레이션 과정에 분석이 적용될 것으로 전망되며, 예측 분석(Predictive Analytics)을 지나 규범적(Prescriptive) 기능을 제공하는 AI로 해결하고자 하는 시도가 본격화될 것으로 예상된다.

2. 스마트 제조 전환 예상 속도

제조 빅데이터를 활용한 공정 개선, 경영 효율화는 지속적으로 고도화가 진행될 분야이며, 디지털 전환에 따라 대부분의 산업분야에서 클라우드, 데이터 활용도가 높아지는 현상을 보면, 시장 전망은 매우 긍정적이다. 이런 당연한 발전 방향에서 몇 가지 이슈로 적용 및 확대 지연이 발생하고 있는데, 기업정보 보안, 리소스 공개에 따른 경쟁력의 상대적 손해, 전문가 부족 등의 쉽지 않은 문제들이 원인이다.

그러나 이러한 문제들은 시장 선두기업들의 노력과 시장 확대를 통해 해소될 수 있으며, 근래의 대규모 사회 전환기에서는 현장의 문제보다는 변화에 대한 동인이 매우 커져 산업 생태계가 신속하게 변화하기 때문에, 짧은 기간에 급속한 적용과 확대가 발생할 수 있다.

스마트 제조의 미래는 자동화로 인한 완전 무인화가 아닌 숙련 기술자와 인공지능 기반의 산업용 로봇과 스마트 제조 플랫폼의 최적화된 협업으로 보는 것이 보다 합리적이다. 물론 산업용 로봇이 제조 공정 전반에 폭넓게 적용되고, 자율주행 기반의 물류 로봇이 활성화될 것이며, 품질 검사는 머신 비전이 전담할 가능성이 높다. 그러나 제조 공정에서 수집되어야 하는 데이터를 정의하고, 자동화된 공정을 모니터링하며, 로봇과 인간이 효과적으로 협업할 수 있는 제조 프로세스를 설계하고 관리하는 업무에서 새로운 일자리들이 창출될 것이다.

숙련 기술자들을 지원하기 위한 증강현실(AR, Augmented Reality), 웨어러블 기기 및 유무선 통신 관련 연구개발 인력이 필요할 것이다. 첨단기술을 적용한 공장의 경우 기존 일자리와 차원이 다른 고부가 일자리를 만든다는 점에서도 주목된다. 새로운 공정 및 물류시스템 개발, 로봇 및 로봇용 센서 개발, 자동화 공장 운영 시스템과 같은 새로운 고부가 일자리를 만들 수 있다. 실제로 일본에서는 ‘디지털 트윈’ 전문가가 미래 직업으로 각광받고 있으며, 우리나라 역시 빅데이터 분석 전문가가 새로운 유망직종으로 꼽힌다. 이렇듯 공장 혁신은 새로운 수요를 창출하고 더 많은 일자리를 만들어 낼 것으로 예측된다.

저자_ 강정훈(Jeonghoon Kang)

• 학력

단국대학교 전자공학 석사
단국대학교 전자공학 학사

• 경력

現) 한국전자기술연구원 지능융합SW연구센터
수석연구원

참고문헌

〈국내, 해외 및 기타문헌〉

- 1) 중소벤처기업부(2019). “스마트제조 로드맵”, 2019년 11월, p3 - 59
- 2) 중소벤처기업부(2019). “스마트공장 보급사업 성과분석”, 보도자료, 2019년 5월 23일자(<https://www.mss.go.kr/site/smba/ex/bbs/View.do?cblidx=86&bclidx=1011893&parentSeq=1011893>)
- 3) 최수혁(2017). “스마트 팩토리 구축을 위한 데이터 수집 및 체계화 제안”. 계장기술: 기획특집, 2017년 11월호, pp110 - 119
- 4) 이상준, “제조 현장에서는 설비 데이터를 어떻게 수집하는가?-데이터 기반 스마트공장 접근 방법 연재③”, MFG, 2020년 9월 1일자(<http://www.mfgkr.com/archives/14321>)
- 5) 구진희, “제조 공정 빅데이터 분석을 위한 플랫폼 연구”, 융합정보논문지 = Journal of Convergence for Information Technology v.7 no.5, 2017년, pp.177 - 182
- 6) 김관모, “제조설비로부터 Raw Data 수집하는 방법”, FA저널, 2020년 9월 1일자(<https://www.fajournal.com/news/articleView.html?idxno=9365>)
- 7) 정혜윤, “스마트팩토리 솔루션”, 한국IR협의회, 2021년 7월, p5 - 10
- 8) 장진원, “대우조선해양, 네이버·인텔과 ICT 손잡았다”, 아시아투데이, 2018년 5월 21일자(<https://www.asiatoday.co.kr/view.php?key=20180521010010367>)
- 9) 한상은, “중국 스마트 공장 솔루션 도입 성공사례”, KOTRA, 2021년 3월 16일자(<https://news.kotra.or.kr/user/globalAllBbs/kotranews/album/2/globalBbsDataAllView.do?dataIdx=187360>)
- 10) 김다린, “리콜 잡는 BMW 공장의 비밀”, 더스쿠프, 2018년 1월 25일자 (<http://www.thescoop.co.kr/news/articleView.html?idxno=25882>)
- 11) Market and Market Report, “스마트 제조 시장 2025 글로벌 예측 보고서”, 2020년 4월, p1 - 30
- 12) 손해용, “한국 제조업 비중, 미·영의 2~3배...코로나 위기 버팀목 됐다”, 중앙일보, 2020년 4월 21일자
- 13) IRS 글로벌(2021). “스마트 제조 · 스마트 팩토리의 개념, 시장, 과제”, IRS, 2021년 9월 13일자
- 14) 홍시현, “[신년기획] 제조업 선진국들이 준비하는 Industry 4.0 〈1부〉”, 투데이에너지, 2016년 1월 5일자
- 15) “SMART FACTORY SOLUTIONS”. Insight Technologies, 2021년 11월 16일 접속, http://www.insight-technologies.in/Products_IIoT_i4.0_Smart_Factories.html.
- 16) 양모듬, “스마트공장 플랫폼으로 불량검출률 3.5배 높여”, 조선일보, 2019년 3월 5일자.
- 17) 정종길, “[CxO초대석] “철강 산업 IT서비스 경험, 스마트 팩토리 구축에 녹여낸다”, 컴퓨터월드, 2020년 2월 1일자.

- 18) 이현석, “제조업의 AWS 기반 주요 워크로드 및 고객 사례”, “AWS Summit Seoul 2018”, slideshare, 2018년 3월 19일 수정, 2021년 11월 15일 접속, <https://www.slideshare.net/awskorea/awsbased-key-workloads-and-customer-cases-in-manufacturinghyunseok-lee>.
- 19) Travis M. Hessman, “Putting Data to Work in the Real World”, Industry Week, April 5, 2013
- 20) EXEM 홈페이지. <https://www.ex-em.com/>



02

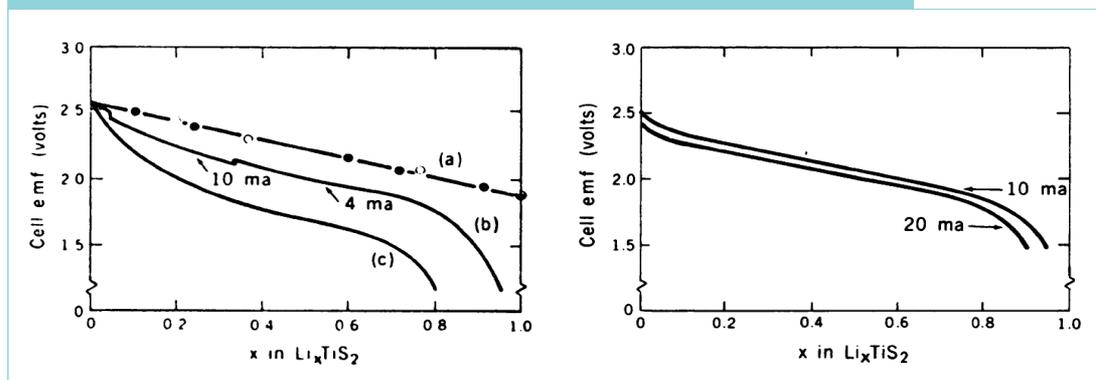
미래를 담을 차세대 전지, 전고체 전지 최신 연구 동향

김대일(한국에너지기술연구원 선임연구원)

I 기술의 개요

리튬이온이차전지는 1976년 미국 뉴욕 빙엄턴 대학의 스탠리 휘팅엄(M. S. Whittingham) 교수와 엑슨(Exxon)이 리튬 금속 음극과 이황화티탄(TiS_2) 양극의 전기화학 반응(그림 1)을 사이언스지에(Science) 게재하여 처음 제안되었다(Whittingham, 1976). 이후 다양한 연구개발들이 이루어진 후, 1991년 소니(SONY)가 첫 양산화에 성공하면서 리튬이온이차전지의 시대가 도래하게 되었다.

그림 1. 최초의 리튬이온 기반 전지인 Li/TiS_2 전지의 전기화학 특성 그래프



* 출처 : Whittingham(1976)

최근 Battery of Things(BoT, 사물배터리) 시대로 불릴 만큼, 휴대용 전자기기, 자동차, 대용량 에너지 저장장치 등 모든 분야에서 리튬이온이차전지가 사용되고 있다. 특히, 전기자동차, 에너지 저장장치(ESS, Energy Storage System)에 적용되는 리튬이온이차전지는 탄소중립시대를 맞이하여 이제껏 어떠한 산업에서도 접하지 못한 비약적인 성장을 이루고 있다.

하지만, 전기자동차(EV, Electric Vehicle)와 대용량 에너지 저장장치(ESS, Energy Storage System)에 사용되는 리튬이온이차전지의 에너지 저장 용량이 점차 커짐에 따라 폭발과 같은 안전성 문제들이 연일 보도되고 있다. 또한, 현재의 리튬이온이차전지는 이론적 에너지 밀도인 250Wh/kg 라는 한계치에 다다르고 있고, 이에

따라 이차전지 제조업체는 자동차 업체가 요구하는 600km 이상 주행이 가능하고 안전성이 확보된 리튬이온이차전지 개발을 위해 고심하고 있다. 이러한 이유로 주요 리튬이온이차전지 제조사는 4대 부품의 개선, 특히 고용량 양극재 및 음극재 개발을 통해 350Wh/kg의 비약적인 에너지 밀도 향상을 위한 노력을 하고 있다. 그럼에도 불구하고, 에너지 밀도가 증가된 리튬이온이차전지에서의 안전성 이슈는 여전히 숙제로 남아있다.

앞에서 살펴본 바와 같은 리튬이온이차전지의 비약적 성장과 태생적인 한계들이 맞물려, 상용 리튬이온이차전지의 시대를 지나 새로운 차세대 이차전지의 시대가 열리고 있다.

차세대 이차전지란 기존의 리튬이온이차전지의 성능을 뛰어넘는 이차전지로서, 리튬-황전지(Li-S battery), 리튬-공기 전지(Li-Air battery), 전고체 전지(All-Solid-State Battery) 등으로 종류가 다양하다(김대일, 2021).

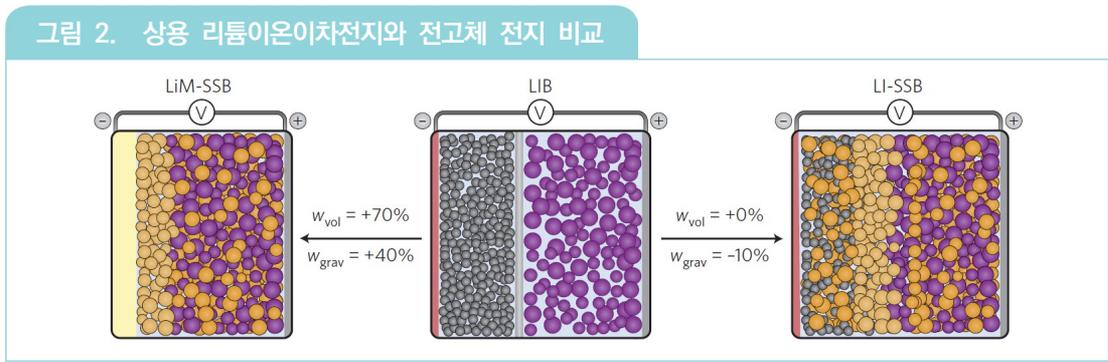
다양한 차세대 전지 중 전고체 전지는 기존 액체 전해질을 고체로 바꾼 전지 시스템으로써 상용 리튬이온이차전지의 문제인 안전성과 에너지 밀도(>400 Wh/kg)를 동시에 해결할 수 있는 차세대 전지로, 가장 많은 연구가 진행되고 있다. 특히, 도요타, 삼성 SDI, 현대자동차, LG에너지솔루션 등 대기업뿐 아니라 퀀텀스케이프(Quantum Scape), 솔리드 파워(Solid Power), 칭타오에너지, 프롤로지움(ProLogium)과 같은 스타트업들도 대기업의 지원을 받으며 상용화를 위해 오랫동안 연구를 진행해 오고 있어, 차세대 전지로서 양산화에 가장 근접한 것으로 보인다. 또한, 전고체 전지 개발업체들은 2025년부터 2028년 사이에 양산화를 이루겠다는 계획을 발표하고 있다.

1. 전고체 전지의 특징과 고체 전해질에 따른 분류

전고체 전지란 기존 상용 리튬이온이차전지의 4대 요소인 양극, 음극, 분리막, 전해액에서 분리막과 액체 전해질을 하나의 고체 전해질로 바꾸어 이차전지 시스템에 적용한 전지로서 <그림 2>에서 보는 바와 같은 구조를 가진다.

전고체 전지 구조는 상용 리튬이온이차전지의 분리막과 전해질을 고체 전해질이 대체하고 있으며, 양극 및 음극의 포어(Pore, 미세한 기공)를 고체 전해질이 채우는 구조이다. 또한 리튬 금속 음극을 사용한 전고체 전지는 상용 리튬이온이차전지보다 에너지 밀도 측면에서 부피당 에너지 밀도(w_{vol})는 70% 증가, 질량당 에너지 밀도(w_{grav})는 40% 증가하는 모습<그림 2 좌측, LiM-SSB>을 보이며, 기존 음극 소재에 고체 전해질을 채우는 구조에서는 상용 이차전지와 비교했을 때, 부피 에너지 밀도(w_{vol})는 변화가 없고, 질량당 에너지 밀도(w_{grav})는 오히려 10% 감소하는 경향<그림 2 우측, LI-SSB>을 보인다. 따라서 전고체 전지는 단순히 고체 전해질만을

고려하는 전지가 아닌 양극 및 음극의 포어 제어, 고용량 음극 소재의 선정 등 다양한 연구 주제들을 내포하고 있는 매력적인 전지 시스템이라고 할 수 있다(Zeier et al., 2016).



* 출처 : Zeier et al.(2016)

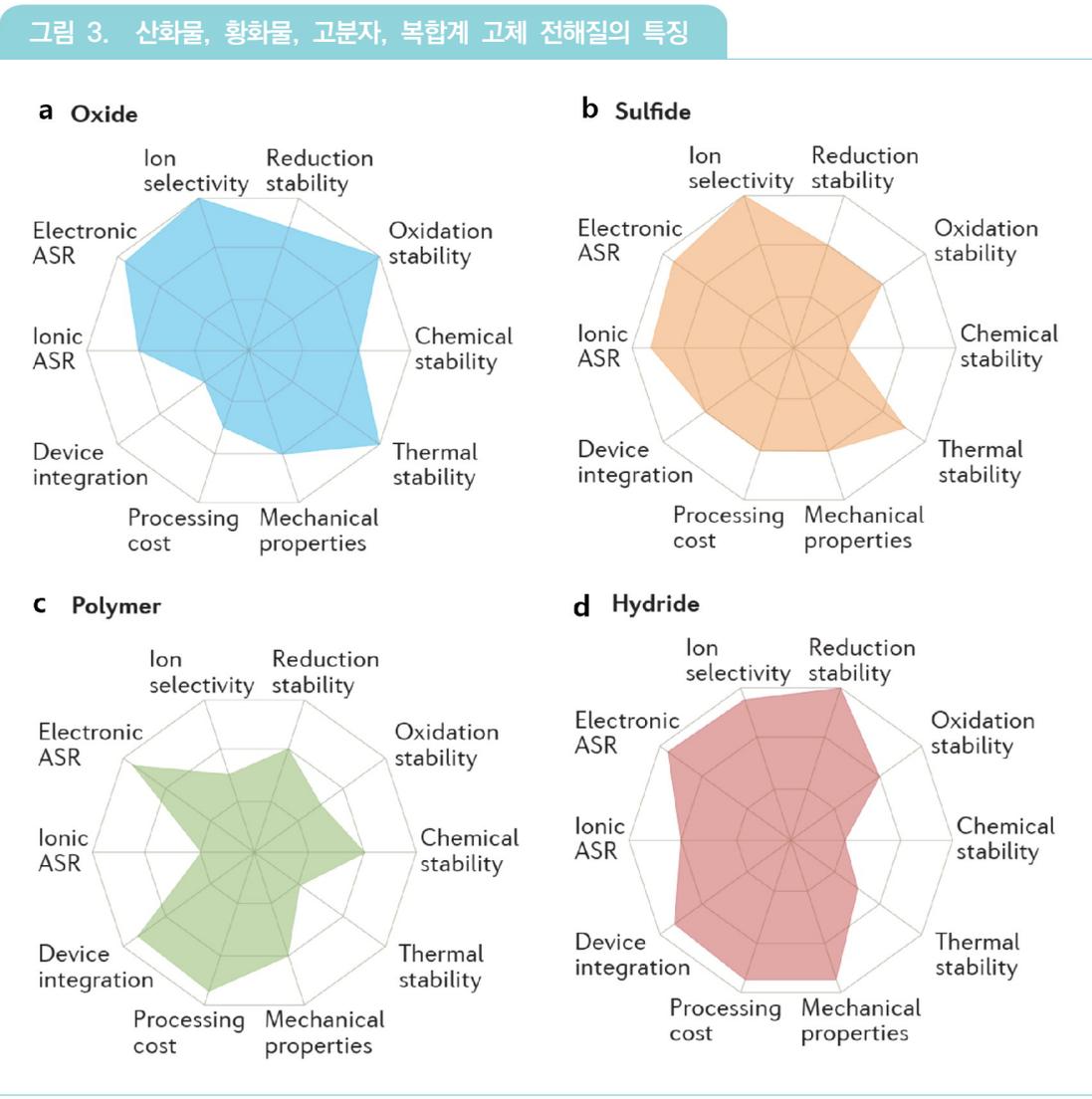
전고체 전지는 고체 전해질 종류에 따라 4가지로 분류된다. <그림 3>에서 보는 바와 같이 산화물(Oxide), 황화물(Sulfide), 고분자(Polymer), 복합계(Hybrid)로 구성되며, 이온 선택성(Ion Selectivity)부터 전기 면적 비저항(Electronic ASR(Area-Specific Resistance))까지 10가지 항목으로 세분화하여 각 고체 전해질의 특징을 비교하고 있다.

첫 번째로 산화물계 고체 전해질은 $10^{-5} \sim 10^{-3}$ S/cm의 이온전도도 범위와 높은 화학적, 전기화학적 안정성, 기계적 강도, 전압 안정성을 가진 반면에 유연성이 부족하고 대면적 생산을 위해서는 공정비용이 큰 단점을 가진다.

두 번째로 황화물계 고체 전해질은 $10^{-7} \sim 10^{-2}$ S/cm의 높은 이온전도도, 우수한 기계적 강도 및 기계적 유연성을 동시에 가지고 있으며, 낮은 Grain-boundary(결정립계, 서로 다른 방향을 갖는 결정 사이에 존재하는 경계면) 저항을 가지지만, 낮은 산화 안정성과 수분 취약성, 양극 활물질과의 친화성이 낮은 단점을 가진다.

세 번째로 고분자 전해질은 $10^{-7} \sim 10^{-4}$ S/cm의 이온전도도 범위와 리튬 금속과의 계면 안정성, 유연성, 대면적 공정 용이성, 낮은 Shear Modulus(전단계수, 변위된 표면의 접선에 따라 작용하는 전단이나 힘의 작용에 있어서 응력-변형률의 비율) 특성을 가지지만 열적안정성이 낮고, 4V대의 낮은 전압 안정성이라는 단점을 가진다.

마지막으로 복합 전해질은 $10^{-7} \sim 10^{-4}$ S/cm의 이온전도도 범위와 낮은 Grain-boundary 저항, 리튬 금속과의 계면 안정성, 우수한 기계적 강도 및 유연성을 가지지만 수분 취약성 및 양극 활물질과의 친화성이 낮은 단점을 가진다(Wang et al., 2017).

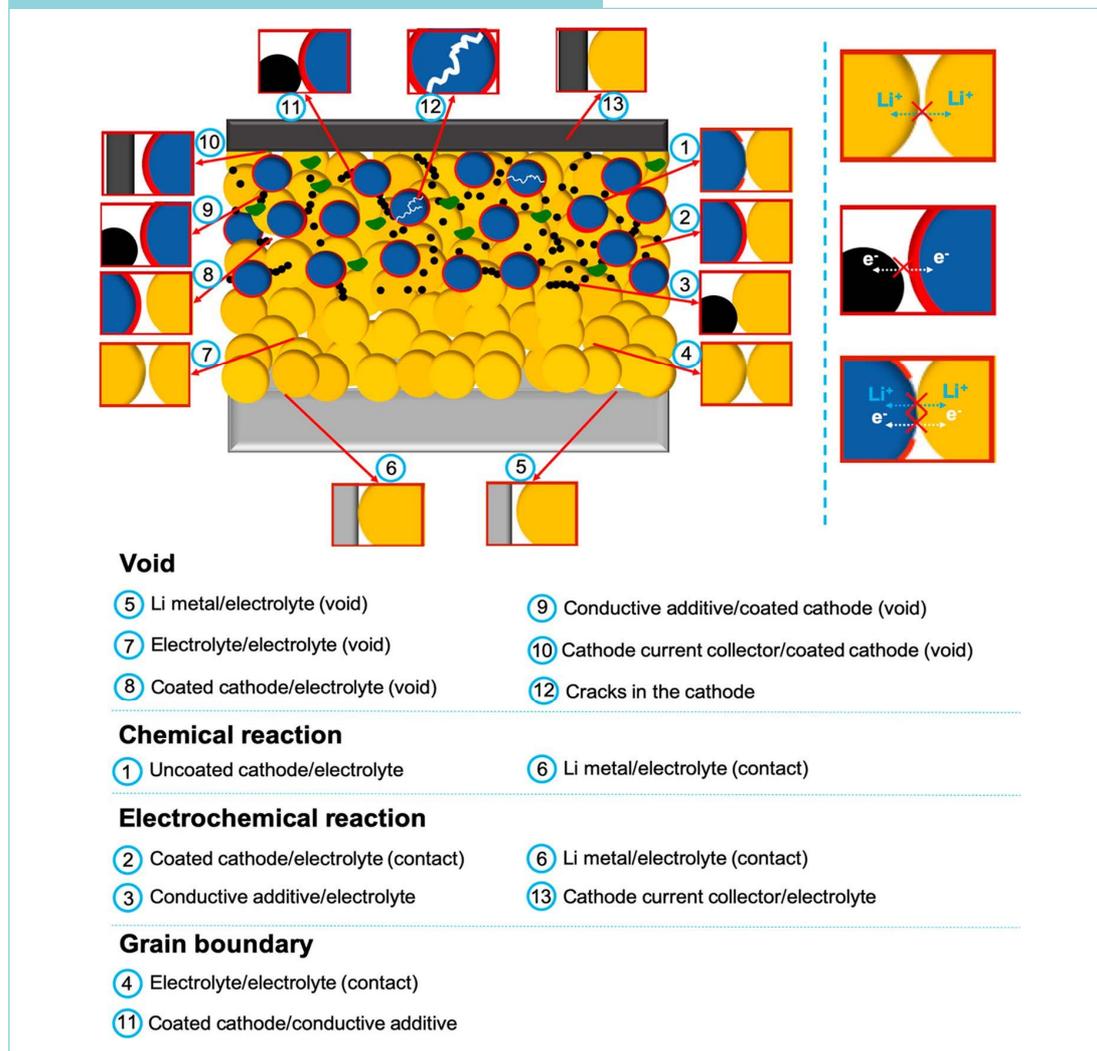


* 출처 : Wang et al.(2017), 저자 편집

2. 전고체 전지 상용화의 걸림돌 : 계면(Interfaces) 및 계면상(Interphases)

전고체 전지는 에너지 밀도 향상과 안전성이라는 두 가지 무기로 차세대 이차전지 중 상용화에 가장 가까운 전지 시스템이지만, 여전히 상용화를 위해서는 해결해야 할 걸림돌이 있다. <그림 4>에서 보는 바와 같이 전고체 전지 시스템은 무수히 많은 계면이 존재한다.

그림 4. 전고체 전지에서 발생 가능한 계면현상



* 출처 : Meng et al.(2020)

상용 리튬이온이차전지의 경우에는 액체 전해질이 전극의 포어 및 무수히 많은 계면들을 감싸는 구조로 되어 있어 이온전달 관점에서 계면 저항을 거의 만들지 않는다. 하지만, 전고체 전지는 고체와 고체가 맞닿는 특이한 구조로 인해 고체와 고체 사이의 무수한 계면에서 저항 성분이 발생하고 이로 인해 전지 성능에 큰 문제를 발생시킨다. 계면 사이에서 발생하는 이슈들은 성질에 따라 크게 Void(공극), Chemical Reaction(화학 반응), Electrochemical Reaction(전기화학 반응), Grain Boundary(결정립계)로 나눌 수 있다.

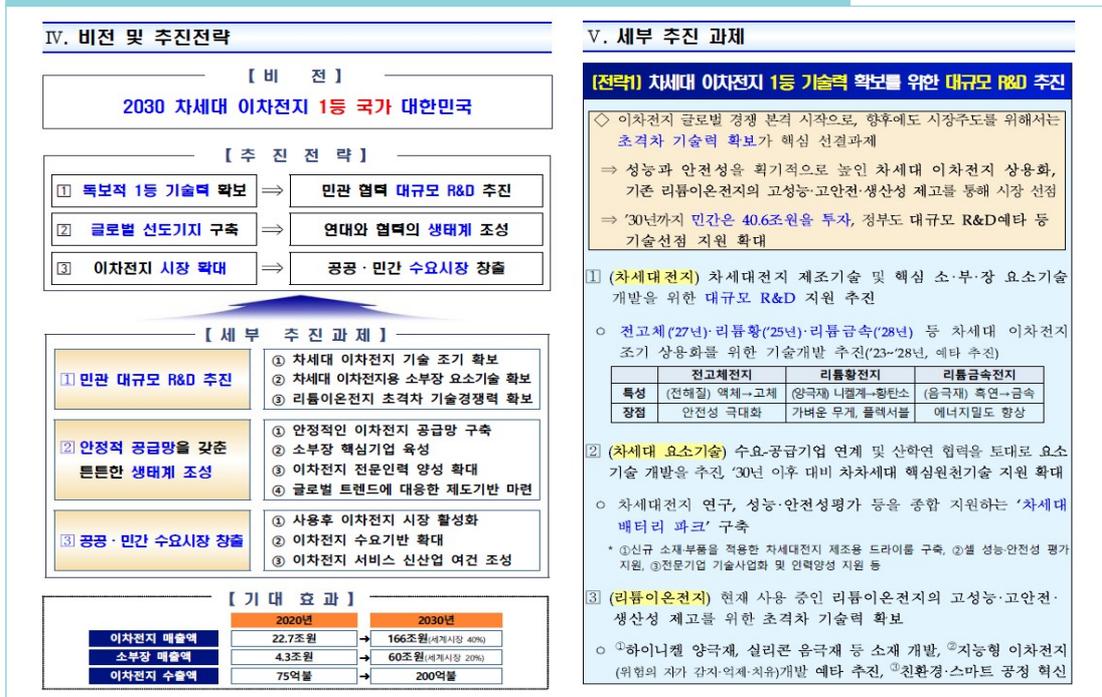
- ① **Void(공극)** : 셀 제조 공정에서 370MPa 이상의 높은 압력을 사용하지만, 전극과 전해질 사이를 Closed-packing(조밀 쌓임) 하기는 부족하고, 전고체 전지에는 여전히 많은 포어가 존재한다. 압력과 전극 및 전해질의 물성에 의존하는 포어는 보통 전고체 전지에서 10~40% 정도 존재한다. 또한, Void는 전고체 전지가 구동되는 동안 양극 활물질 크랙(Crack)에 의한 전극 분쇄와 리튬 덴드라이트(Lithium Dendrite, 리튬 이온 전지를 충전하는 과정에서 음극 표면에 리튬 결정이 맺히고 핵이 되어 점차적으로 쌓이는 현상을 의미하며, 전지 안에 리튬 덴드라이트가 생기면 에너지 효율이 떨어짐)가 추가적으로 생긴다. Void의 문제는 (i)리튬이온의 이동을 막아 저항을 증가시키고, (ii)리튬의 덴드라이트를 유도하며, (iii)전고체 전지에서 불필요한 부피를 차지하여 부피당 에너지 밀도를 낮춘다.
- ② **Chemical Reaction(화학 반응)** : 만약 전극과 고체 전해질 사이의 화학 포텐셜(Chemical Potential)이 맞지 않으면 두 물질이 접촉할 때 자발적인 화학반응이 발생한다. 따라서 고체 전해질 계면막(SEI, Solid Electrolyte Interphases) 층과 양극 전해질 계면막(CEI, Cathode Electrolyte Interphases) 층이 음극과 양극 표면에서 각각 형성된다. SEI / CEI 층의 장점은 전자를 막고 이온만 통과시켜, 전해질의 작동 전압 범위를 확장시킨다는 것이다. 그러나 SEI / CEI 전자와 이온이 혼재되어 있는 전도체(MIEC, Mixed Ionic and Electronic Conductor)인 경우, SEI / CEI가 계속 성장하여 전지 성능을 악화시키는 역할을 한다.
- ③ **Electrochemical Reaction(전기화학 반응)** : 대부분의 고체 전해질은 좁은 전기화학 안정 범위를 가지고 있어 양극과 음극 물질이 갖는 전체 전압 범위에서 구동할 수 없다. 만약 양극/음극, 집전체, 도전재 등이 서로 충분한 접촉이 이루어지지 않으면 높은 전압 영역에서는 산화가 일어나거나 낮은 전압 영역에서는 환원이 발생한다. 산화물계 고체 전해질은 황화물계와 비교하여 넓은 전압 구동 범위를 가지고 있고, 높은 전압 영역에서는 안정적이지만 낮은 전압영역에서는 불안정한 특성을 보인다. 전기화학적으로 분해되는 고체 전해질은 SEI / CEI 형성에 기여하며, 결과적으로 리튬이온 이동을 방해하게 된다. 최적의 구동전압 구간과 반응속도(Chemical Kinetic)를 최소화한 전극 물질의 조합은 고체 전해질의 전기화학적 반응을 낮추는 중요한 요소이다.
- ④ **Grain Boundaries(결정립계)** : Grain Boundary는 두 개의 입자가 접촉하거나, 전기화학 포텐셜 (Electrochemical Potential)이 서로 다른 경우에 생긴다. 리튬 이온은 하나의 입자에서 다른 입자로 이동할 때, 계면의 리튬 부족 공간 전하(Li-deficient Space Charge) 층에서 이온이 머물게 되어 계면에서의 리튬이온 이동을 방해하게 된다(Meng et al., 2020).

3. 전고체 전지 관련 정책 동향

2021년 7월 정부는 관계부처 합동으로 「2030 이차전지 산업(K-Battery) 발전 전략」을 발표하였다. 이차전지는 디지털 전환과 친환경화 등 미래 산업을 움직이는 핵심 동력으로, 대한민국의 이차전지 산업은 앞선 기술력을 기초로 글로벌 주도권 강화의 필요성을 강조하고 있다.

특히, <그림 5>에서 보듯이 차세대 전지 관련 분야와 관련하여, ①차세대 이차전지 기술 조기 확보와 ②차세대 이차전지용 소·부·장 요소기술 확보를 위해 민관 대규모 R&D가 강력하게 추진되고 있다. 또한, 세부 추진과제로써 차세대 전지 제조 기술 및 핵심 소·부·장 요소기술 개발을 위한 대규모 R&D를 지원하며, 전고체 전지 개발을 위해 2027년까지 조기 상용화를 위한 기술개발을 추진하고, 차세대 전지 연구, 성능·안전성 평가 등을 종합 지원하는 ‘차세대 배터리 파크 구축’을 할 계획이다(2030 이차전지 산업발전 전략, 2021).

그림 5. K-Battery 발전 전략의 비전, 추진전략, 세부추진과제-전략 1

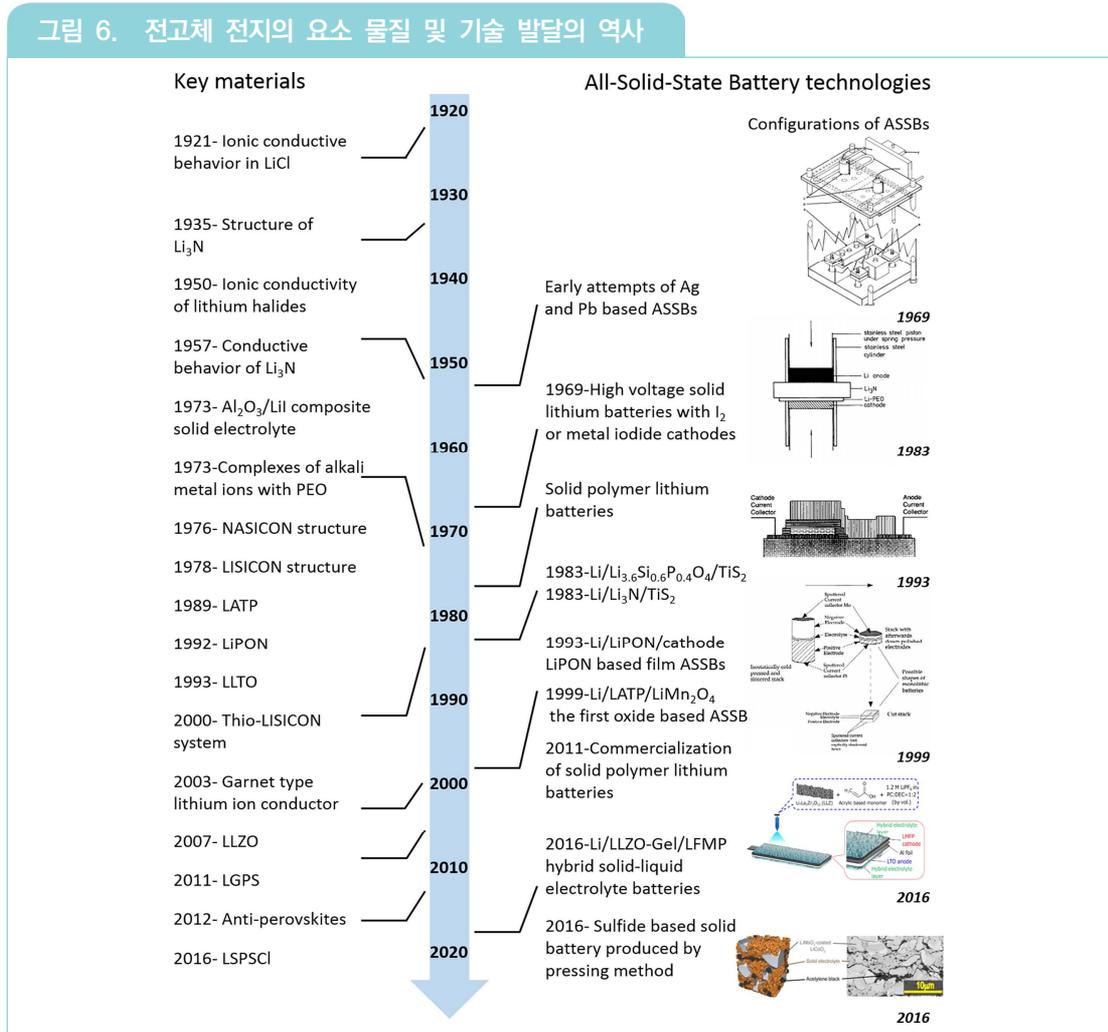


* 출처 : 2030 이차전지 산업발전 전략(2021)

2030년까지 민간은 40.6조 원, 정부는 대규모 R&D 예비타당성조사를 통해 차세대 전지에 대한 지원과 이에 따른 기술 선점을 이루고자 한다.

II 전고체 전지 최신 연구 동향

1. 전고체 전지 소재와 기술의 역사



* 출처 : Li et al.(2020)

고체 이온전도체의 역사는 1833년 마이클 패러데이(Michael Faraday)가 황화은(Ag_2S)의 이온전도 현상을 처음 보고하고 패러데이 법칙(Faraday's Law)을 발표하며 시작되었다(Faraday, 1883). 이후 전고체 전지에 대한 보고가 거의 없다가, 1950년대에 들어 은염(Silver Salt)을 기반으로 한 전고체 전지에 대한 초창기 연구들이 보고되기 시작했다. 하지만 이러한 연구는 전지 전압이 1V 미만으로 낮은 전압 범위와 낮은 전류에서만 구동되는 단점을 가지고 있었다. 이후 리튬 할라이드(Lithium Halide) 소재에서 리튬 이온의 이동이 보고되면서, 1970년대에 들어서 요오드화리튬(LiI) 전해질을 기반으로 하는 리튬 금속 전지가 연구되기 시작했다. Li/LiI(film)/ I_2 전고체 전지는 1969년 라오(Rao)가 특허로 처음 보고하였고, 처음으로 3V의 높은 Open Circuit Voltage(OCV, 개방 회로 전압으로 아무런 부하(Load)가 걸리지 않은 회로의 저항을 의미)를 보여 주었다(Rao, 1969). 요오드화리튬(LiI) 기반 전지는 100-200Wh/kg의 에너지 밀도를 가져 몇몇 전자기기들에 활용되었지만, 전극과 전해질 계면에서의 분극 현상으로 요오드화리튬(LiI)이 생성되어 충·방전이 되지 않는 문제가 발생하였다.

이러한 이유로, 1970년대 후반 리튬 이온 삽입 형태의 양극재가 발견 및 개발되어 충·방전이 가능한 전고체 전지가 등장하게 되었다. 1983년 누츠(Knutz)는 Li/Li₃N/TiS₂ 형태의 전고체 전지를 개발하여 200회 이상 충·방전 결과를 보고하였다(Knutz et al., 1983). 같은 해에 히타치(Hitachi, Ltd.) 연구자들이 Li/Li_{3.6}Si_{0.6}P_{0.4}O₄/TiS₂의 구성으로 된 충·방전이 가능한 전고체 리튬 전지를 개발하였다. 이 전지는 RF(Radio Frequency, 고주파) 스퍼터 방식을 이용하여 비정형 필름을 증착하여 2,000회 이상의 충·방전할 수 있는 특성을 보여주었다(Kudo et al., 1983).

1973년 Poly(ethylene oxide)(PEO) 고분자가 알칼리 금속 이온을 이동시키는 것이 펜톤(Fenton)에 의해 보고되었다(Fenton et al., 1973). 이후 1978년 아만드(Armand) 교수에 의해 PEO 기반 전고체 전지의 가능성이 보고되었다(Armand et al., 1978). 선구자들의 연구 덕분에 고분자 기반 고체 전해질과 이와 적합한 다양한 양극 소재와 리튬염의 개발이 활발히 진행되기 시작하였다. 특히, 볼로레 그룹(Bolloré Group)은 "Autolib project"를 통해 실제 고분자 고체 전해질 기반의 전고체 전지를 상용화하여 전기자동차에 탑재하는데 성공하였다(Bluecar, 2011).

1980년대와 1990년대에는 에너지 저장 및 전환에 응용하기 위한 높은 리튬 이온 전도성을 가진 고이온 전도성 소재의 연구가 주를 이루었다. 이 기간 동안 수많은 연구 결과들이 보고되었으며, 1976년에는 최초의 나트륨 수퍼 이온 컨덕터인 Na Superionic Conductor(NASICON) 구조가 구더너프(Goodenough) 교수에 의해 최초로 보고(Goodenough et al., 1976) 되었고, 1989년 아오노(Aono)에 의해 나트륨(Na)을 리튬(Li)으로 치환한 Li_{1.3}Al_{0.3}Ti_{1.7}(PO₄)₃이 최초로 보고되었다(Aono et al., 1989).

1993년 이나즈마(Inaguma)는 1mS/cm로 높은 벌크 이온전도도를 가진 페로브스카이트(Perovskite) 물질인 $\text{Li}_{0.34}\text{La}_{0.51}\text{TiO}_{2.94}$ 을 보고하였다(Inaguma et al., 1993). 또 다른 중요한 황화물계 소재의 하나는 가넷(Garnet) 타입의 이온 전도체로 2003년 처음으로 사용되었고, 2007년에 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_5\text{O}_{12}$ 가 고속 이온 전도체로 보고되면서 다시 한 번 유명해졌다(Murugan et al., 2007).

첫 번째 황화물계 고체 전해질을 사용한 전고체 전지는 버크(Birke)에 의해 1999년 처음 보고되었다. 전고체 전지는 $\text{Li}_4\text{Ti}_5\text{O}_{12}/\text{Li}_{1.3}\text{Al}_{0.3}\text{Ti}_{1.7}(\text{PO}_4)_3/\text{LiMn}_2\text{O}_4$ 로 구성되어 있고, 전극과 전해질 사이의 연결을 위한 공소결 조제(Co-sintering Agent)로써 15wt.%의 $0.44\text{LiBO}\cdot 0.56\text{LiF}$ 가 사용되었다. 이 전지는 10Cycle 이후에도 약간의 용량 감소만을 보였다(Birke et al., 1999).

이 기간 동안 Li_3PO_4 를 RF 스퍼터로 증착한 LIPON이 보고되었고, 이 소재는 리튬 금속 음극과 고전압 양극에 적합한 장수명 소재로, 적합한 연구 결과를 보였다(Bates et al., 1993).

또 다른 타입의 고이온 전도성 고체 전해질 물질로써 리튬과 황의 약한 결합력에 기인하여 높은 이온 전도성을 보이는 황화물계 고체 전해질이 1980년대 등장하기 시작했다(Ribes et al., 1980). 하지만, 1990년대 카보네이트(Carbonate) 액체 전해질 기반의 상용 리튬이온이차전지의 개발과 급격한 발전으로 전고체 전지 연구는 급감하는 추세였다가, 최근 고에너지 밀도 전지와 안정성이 확보된 전지 시스템의 요구로 인해 다시 한 번 전고체 전지 연구는 전성기를 맞이하고 있다.

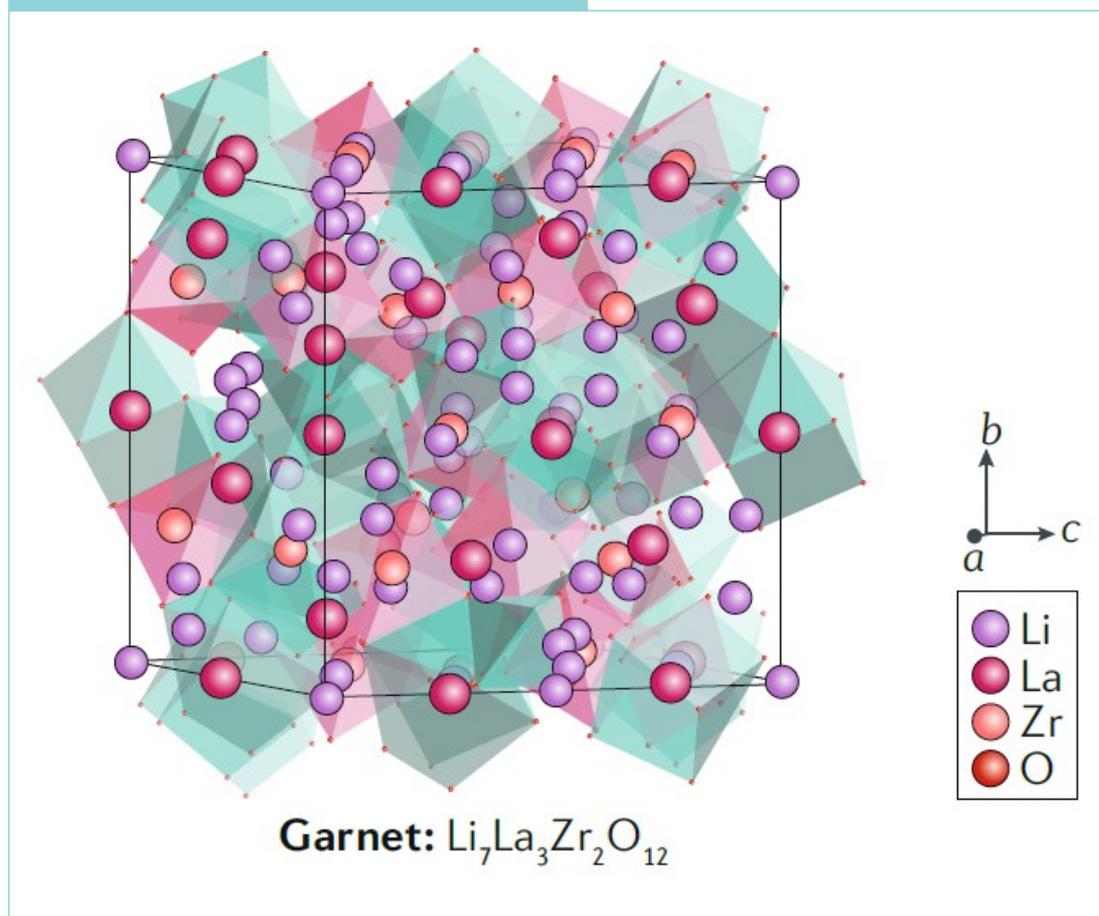
2011년 액체 전해질보다 이온전도도가 높은 $\text{Li}_{10}\text{GeP}_2\text{S}_{12}$ 로 구성된 황화물계 전고체 전지가 처음으로 보고되었다(Kanno et al., 2011). 이 물질은 그 당시 모든 고체 전해질 중 가장 높은 이온전도도를 가지고 있었으며, 2016년 같은 그룹에서 새로운 물질을 보고하기 전까지 기록이 깨지지 않았다(Kanno et al., 2016). 이러한 고이온 전도성 황화물계 고체 전해질의 전고체 전지는 적용에 가장 적합해 보이며, 높은 전류에서도 안정적인 충·방전이 가능하다(Li et al., 2020).

앞에서 살펴보았듯이 전고체 전지는 액체를 이용한 리튬이온이차전지보다 훨씬 이전에 제안이 되었으나, 이차전지 시스템이 요구하는 성능을 충족시키기 어려워 과거 20년간 상용 리튬이온이차전지에 황금기 내주었다. 현재, 2021년을 기점으로 전고체 전지는 다시 새로운 도약을 꿈꾸고 있다.

2. 산화물계 전고체 전지 최신 연구 동향

산화물계 고체 전해질의 대표인 가넷(Garnet) 구조는 <그림 7>과 같은 구조를 가진다(Archer et al. 2020).

그림 7. 산화물계 고체 전해질(Garnet) 구조

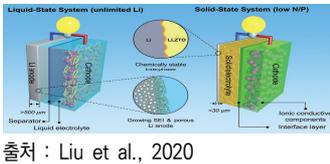
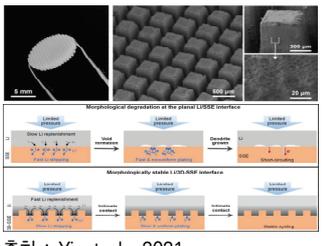
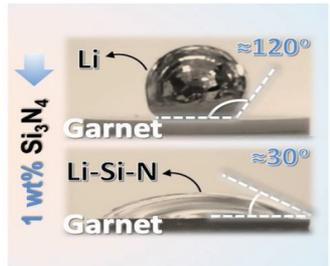


* 출처 : Archer et al.(2020)

<그림 7>의 산화물계 고체 전해질인 $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$ (LLZO)는 팔면체 구조의(Octahedron)의 ZrO_6 와 십이면체(Tetrahedron)의 LaO_8 이 연결되어 뼈대가 되는 구조를 형성하고 있으며, 리튬(Li) 이온과 리튬(Li) 공공(Vacancy)이 사면체(Tetrahedron) 자리에 위치한다. LLZO의 경우 입방정계(Cubic)형태에서 x, y, z 방향으로 균일한 리튬(Li) 이온 전도채널을 가지고 있어, 정방정계(Tetragonal) 형태보다 입방정계(Cubic)

형태에서 높은 이온전도도를 보인다. 또한, 입방정계는 대칭자리에 리튬(Li)이 부분적으로 채워져 있어 정렬이 되어있지 않아 불안정하고, 이를 안정화시키기 위해 알루미늄(Al), 이트륨(Y), 갈륨(Ga), 탄탈럼(Ta), 나이오븀(Nb) 등의 원소를 도핑하여 안정화 시킨다. 이러한 안정화는 결정안정화뿐 아니라 리튬(Li) 공공(Vacancy) 형성으로 이온전도도를 향상시킬 수 있으며, 평균 200°C 정도 낮은 소결 온도를 얻을 수 있다(강병우, 2018).

2020~2021년 사이 가넷(Garnet) 구조의 LLZO 기반 전고체 전지 관련 연구 내용을 살펴봄으로써 산화물계 고체 전해질의 연구 방향을 정리해보고자 한다.<표1>

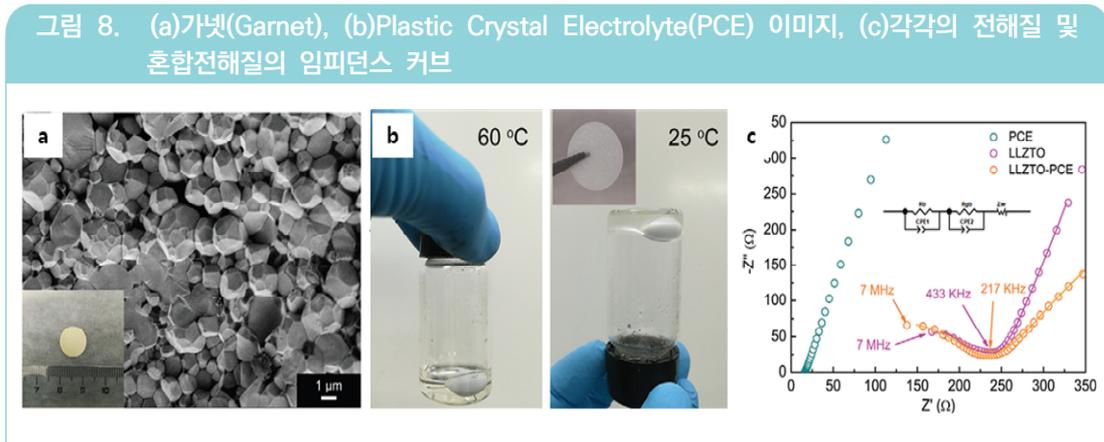
표 1. 산화물계 고체 전해질 기반 전고체 전지 연구동향(2020~2021년) 요약			
연구그룹	대표 그림	연구내용	특징
Garnet 기반 고체 전해질이 적용된 전고체 전지의 최적 N/P ratio 연구			
(중국) 상하이 테크 대학 Liu 교수 연구팀 (Adv. Mater, 2020)		- Au-LLZTO-PCE 구조로 산화물 고체 전해질 구성 - N/P ratio 조절을 통한 수명/에너지밀도 경향 연구	- 리튬 금속 및 양극 전극과의 계면 제어 - N/P ratio 조절을 통해 상온 185 Cycle에 78% 용량 유지 및 613.3 Wh/kg의 질량당 에너지 밀도 확보
Garnet의 3D 마이크로 패턴에 따른 리튬/고체전해질 계면의 구조적 안정성 연구			
(미국) 스탠포드대학 Yi 교수 연구팀 (Adv. Mater, 2021)		- 3D-micro patterned garnet을 구현하여 Li/SSE 계면 제어	- Laser 가공법으로 제작된 3D-micro patterned Garnet을 통해 0.7mA/cm ² 전류밀도 구동 및 0.5mAh/cm ² 500h 구동 특성 확보
녹인 리튬의 인장 강도 조절을 통한 리튬/Garnet 계면 친화도 향상			
(중국) 난징기술대학 Shao 교수 연구팀 (Adv. Funct. Mater, 2021)		- 1wt.% Si ₃ N ₄ 를 Li에 첨가하여 Garnet과의 표면 친화성 제어	- 녹인 리튬에 1wt.% Si ₃ N ₄ 를 첨가 함으로 사이클을 0.4mA/cm ² 에서 1000h 동안 안정적으로 구동 - LFP 전극 적용하여 1C 100Cycle 에서 안정적 사이클 특성 확보 (97%)

* 출처 : 저자 정리

2.1. Garnet 기반 고체 전해질이 적용된 전고체 전지의 양극 전극 대비 음극 전극의 최적 용량 비 (N/P ratio) 연구

첫 번째 소개할 연구는 Au-LLZTO-PCE 구조로 산화물 고체 전해질을 구성하고, 양극 전극 대비 음극 전극 용량 비(N/P ratio) 조절을 통한 수명/에너지 밀도 경향 연구이다. 본 연구에서는 0.4mS/cm 이온전도도를 가진 탄탈륨(Ta, Tantalum)이 도핑된 LLZO를 산화물 고체 전해질로 사용하였고, 여기에 플라스틱 크리스탈 전해질(PCE, Plastic Crystal Electrolyte)을 혼합하여 양극과 접촉면과의 계면 저항을 낮추는 역할을 해주었다. 또한 음극인 리튬 금속 표면과의 계면 저항을 낮추기 위해 스퍼터를 이용하여 LLZTO 표면에 리튬-친화성(Lithiophilic) 금을 증착하여 사용하였다.

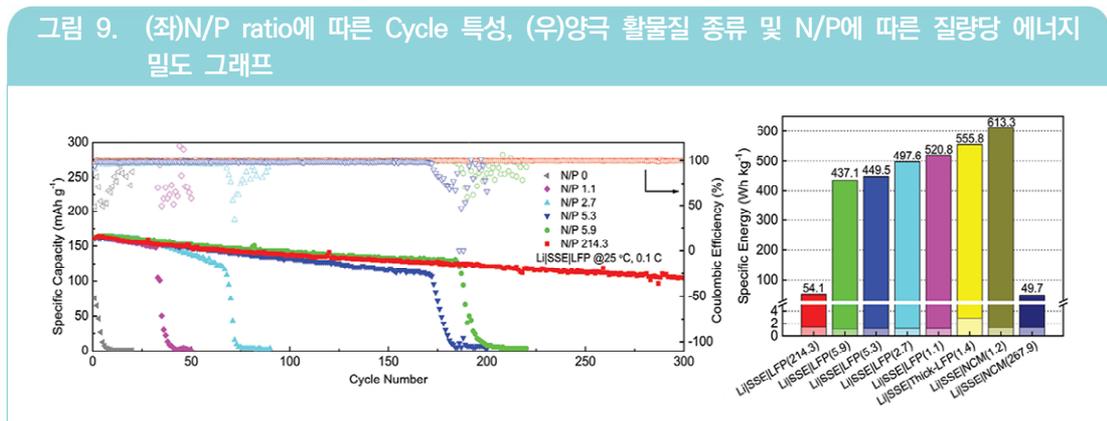
<그림 8a>에서 LLZTO는 고밀도 형태의 그레이들을 보여 주며, PCE 상온에서 고체상태 60도에서 액체인 거동을 보인다.<그림 8b> 임피던스(Impedance, 온저항, 회로에서 전압이 가해졌을 때 전류의 흐름을 방해하는 것) 측정 결과, LLZTO 펠렛의 표면에 PCE를 도입한 전후에도 차이가 거의 없이 일정한 것을 확인할 수 있다(Liu et al., 2020).<그림 8c>



* 출처 : Liu et al.(2020), 저자 편집

본 시스템에서는 N/P를 0에서부터 214.3(상용 리튬 금속)까지 넓은 범위에서 평가하여 질량당 에너지 밀도와 장기 수명특성에 대해 분석하였다. 일반적으로 사용하는 리튬 금속 음극의 경우 충·방전 시 소모되는 리튬양보다 과량의 리튬 금속이 사용되기 때문에 수명이 오래간다는 장점이 있지만 질량당 에너지 밀도 측면에서는 장점을 가지지 못한다. <그림 9(좌측)>에서 LiFePO₄ 전극을 사용하여 N/P 5.9에서 구동할 때 상온에서 초기

비용량 165mAh/g를 보이며, 185cycle에서 78%의 용량 유지율을 보여준다. 또한, N/P가 NCM(니켈, 코발트, 망간) 양극을 사용하는 경우 1.2일 때 613.3Wh/kg의 높은 질량당 에너지 밀도를 보여준다(Liu et al., 2020).〈그림 9(우측)〉



* 출처 : Liu et al.(2020), 저자 편집

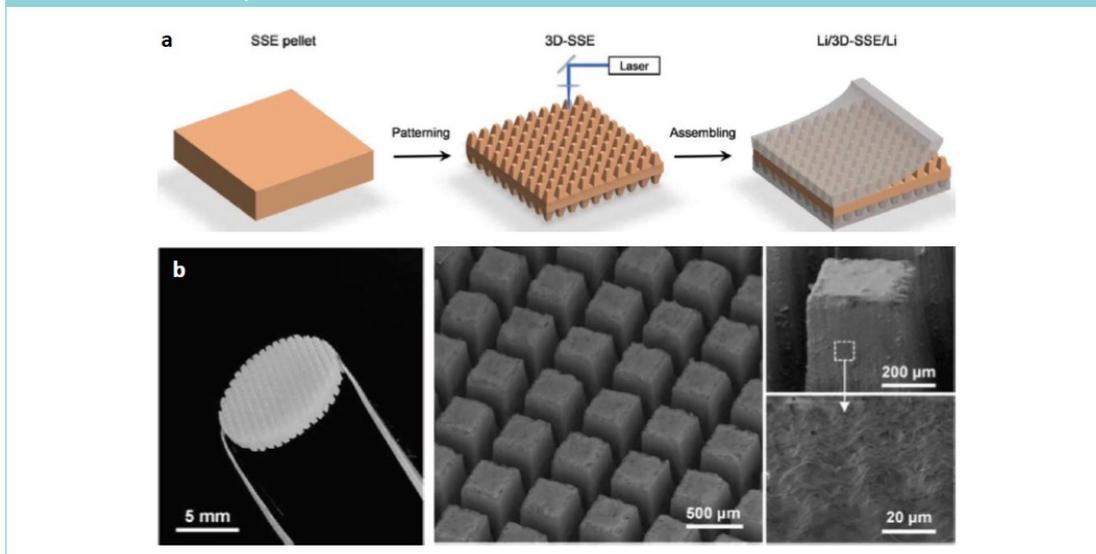
상기 보고된 연구는 첫 번째로, 산화물계 고체 전해질을 사용할 경우 양극/음극 각각의 계면에 맞는 계면 안정화 물질을 사용하여 계면 특성을 조절해야 한다는 점을 강조하고 있다. 두 번째로는 양극과 리튬 금속 음극의 양극 전극 대비 음극 전극 용량 비(N/P ratio) 조절을 통해 질량당 에너지 밀도뿐만 아니라 Cycle 특성도 유연하게 조절할 수 있다는 점을 강조하고 있다.

2.2. Garnet의 3D 마이크로 패턴에 따른 리튬/고체 전해질 계면의 구조적 안정성 연구

두 번째 소개할 연구는 레이저(Laser) 가공을 통해 Garnet 표면을 3차원 구조로 만들어 리튬(Li)과의 계면을 제어한 연구이다.

〈그림 10a〉에서 볼 수 있듯이, 3차원 구조의 패턴을 Laser 가공을 통해 형성시키고, 리튬(Li)을 양면에 접촉하여 대칭 셀(Symmetric Cell)인 3D-SSE를 만들어 준다. 〈그림 10b〉에서 규칙적으로 3차원 구조가 균일하게 형성되어 있음을 확인할 수 있다.

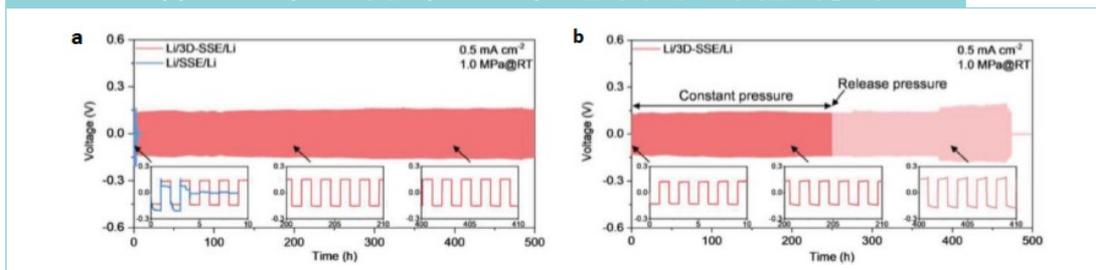
그림 10. (a)Laser 가공을 이용한 3D-patterned Garnet 제조 및 리튬 대칭 셀 제조 모식도, (b)3D-patterned Garnet의 사진 및 SEM 이미지



* 출처 : Yi et al.(2021), 저자 편집

〈그림 11a〉와 〈그림 11b〉에서 제작된 3D-SSE의 효과를 전기화학적으로 확인하였다. 3차원 구조가 없는 경우는 2번째 사이클에서 short 현상으로 전지가 작동을 멈추지만, 3차원 구조의 전지는 0.5mAh/cm²의 전류밀도에서도 500h 동안 안정적인 구동 결과를 보인다. 또한, 1.0MPa의 균일 압력의 인가 여부에 따라 사이클 특성을 평가한 결과, 균일 압력이 가해진 경우가 리튬(Li)의 증착 및 탈착이 균일하게 이루어지는 것을 확인할 수 있다(Yi et al., 2021).

그림 11. (a)0.5mAh/cm²에서 Li/SSE/Li와 Li/3D-SSE/Li의 사이클 특성 비교, (b)0.5 mAh/cm²에서 Li/3D-SSE/Li 압력에 따른 사이클 특성 비교



* 출처 : Yi et al.(2021), 저자 편집

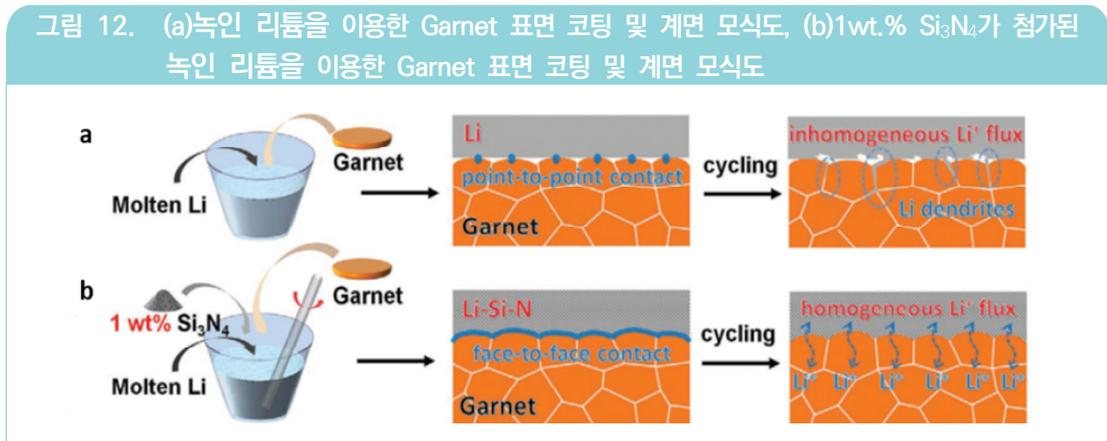
상기 결과에서 알 수 있듯이 리튬(Li) 3차원 구조는 리튬(Li) 탈착(Stripping)을 지연시키기 위해 국부적인 전류밀도를 감소시키고, 리튬(Li)의 크립현상(Creep)이 가능하도록 계면에서의 응력(Stress)을 증폭시키는 역할을 한다. 그러므로 빠른 크립현상이 가지고 온 계면에서의 리튬 흐름량(Flux)은 소모된 리튬(Li)을 다시 채우기 충분하며, 결과적으로 전지 사이클의 구동 동안 구조적으로 안정적인 계면을 형성한다(Yi et al., 2021).

상기 보고된 연구는 전극 물질과 적합성이 좋은 새로운 물질을 적용하여 산화물계 고체 전해질의 계면을 낮추는 방향이 아닌 고체 전해질 자체의 구조를 변화시킴으로써 높은 전류밀도에서 안정적인 구동을 확보한 의미 있는 연구라 할 수 있다.

2.3. 녹인 리튬(molten Li)의 인장 강도 조절을 통한 리튬/Garnet 계면 친화도 향상

세 번째 소개할 연구는 녹인 리튬(molten Li)에 소량의 질화규소(Si_3N_4)를 첨가하여 Garnet과 리튬(Li)과의 계면을 제어한 연구이다.

<그림 12a>와 <그림 12b>는 녹인 리튬에 1wt.%의 Si_3N_4 를 첨가하기 전후 공정 모식도 및 계면 상태의 모식도를 보여준다. 두 이미지를 비교하였을 때 1wt.%의 Si_3N_4 를 첨가하는 경우 Garnet과 리튬(Li) 계면에 Li-Si-N 구조가 형성되어 균일한 리튬 흐름량(Flux)이 형성된다.

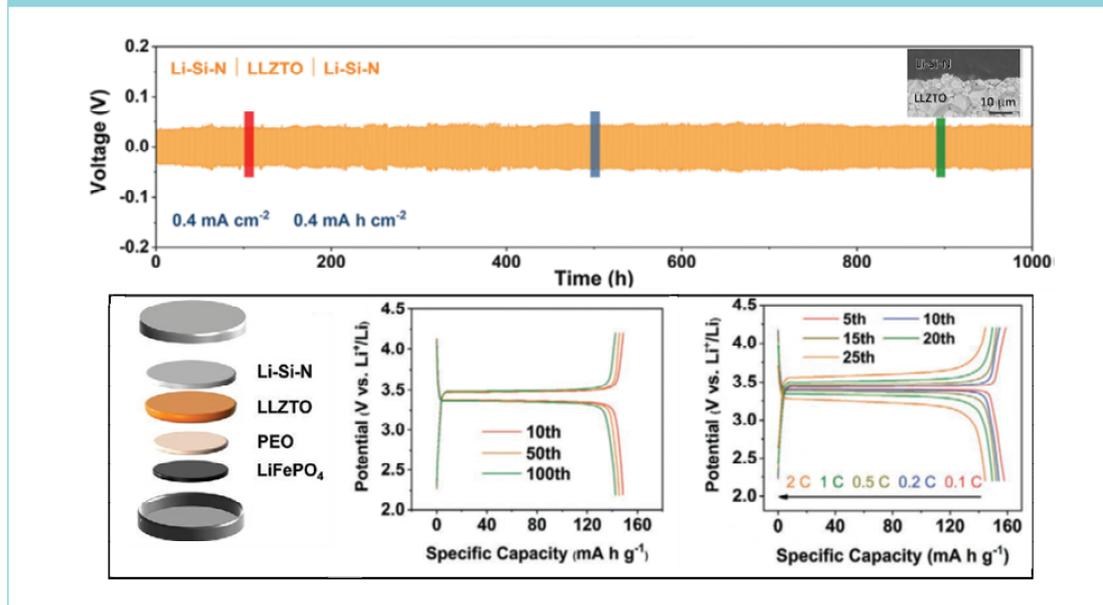


* 출처 : Shao et al.(2021), 저자 편집

<그림 13(위)>에서는 대칭 셀(Symmetric Cell) 평가를 진행한 결과를 보여주며, $0.4\text{mAh}/\text{cm}^2$ 의 전류 밀도에서 1시간 동안 반복 충·방전을 진행하였을 때 short 현상 및 저항 증가 현상 없이 1,000h 동안 안정적인 사이클 구동 특성을 보여준다. 이렇게 형성된 계면 특성을 적용하여 <그림 13(아래)>에서는 LFP(LiFePO_4 ,

리튬인산철) 양극 기반 전고체 전지를 구성하였고, 1C의 빠른 충·방전 속도에서도 초기용량 146mAh/g을 보이며, 100Cycle 후에도 97%의 용량 유지율을 보인다. 또한, 율속 특성 평가에서도 0.1C(159mAh/g) 대비 2C(145mAh/g)로 91.2% 용량을 유지하는 것을 확인할 수 있다.

그림 13. (위)0.4mAh/cm²에서 Li-Si-N/SSE/Li-Si-N 사이클 특성 결과, (아래)LFP전극에 적용된 전고체 전지 사이클 및 출력 특성 결과



* 출처 : Shao et al.(2021), 저자 편집

이 연구 결과를 통해 Li-Si-N 구조는 Garnet과 리튬(Li) 금속 사이의 계면에서의 표면장력(Surface Tension)을 완화시켜 Garnet 표면에 녹인 리튬이 잘 퍼지도록 하는 효과를 가지며, 계면 생성 에너지를 낮추어 주어 화학적으로 안정적인 계면을 만들어 준다(Shao et al., 2021).

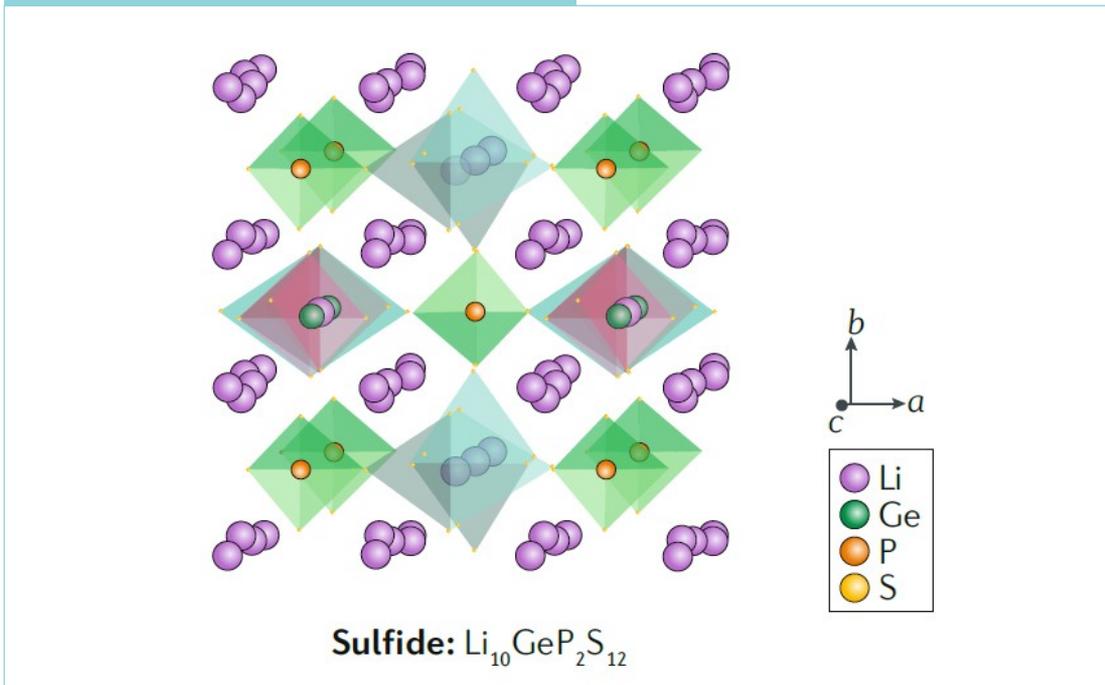
상기 보고된 연구는 산화물계 고체 전해질과 리튬(Li) 금속의 계면에 소량의 리튬 친화성 물질을 첨가함으로써 안정적인 계면을 형성시키는 연구로써 손쉽게 안정적으로 구동하는 전고체 전지를 제작할 수 있다는 점에서 의미 있는 연구라 할 수 있다.

3. 황화물계 전고체 전지 최신 연구 동향

황화물계 고체 전해질은 연구 초기에는 주로 $\text{Li}_2\text{S-SiS}_2$ 계였으며, 그 이후 $\text{Li}_2\text{S-P}_2\text{S}_5$, $\text{Li}_2\text{S-GeS}_2$, $\text{Li}_2\text{S-B}_2\text{S}_3$, $\text{Li}_2\text{S-SiS}_2$ 등이 황화물 무정형(Glass) 전해질로 많이 사용되었고, 이온전도도는 0.1mS/cm 수준이었다. 이후 개발된 thio-LISICON형 $\text{Li}_{3+x}(\text{P}_{1-x}\text{Si}_x)\text{S}_4$ 는 산소(O) 원소를 황(S) 원소로 대체하여 얻었으며, 상온에서 0.6mS/cm 수준의 높은 이온전도도를 보인다. 이러한 높은 이온전도도는 thio-LISICON의 결정구조가 사방정계(Orthorhombic) 단위 셀을 가진 glass Li_3PO_4 의 경우와 유사하게 모든 양이온이 사면체형(Tetrahedral)으로 배위되어 있어서 일반적인 LISICON 소재에 비해 높은 이온전도도와 낮은 활성화 에너지의 특성을 갖는다. 또한 산화물보다 황화물의 이온반경이 커서 이온수송 채널이 크고, 황화물 이온의 분극성이 더욱 크기때문에 리튬 이온 이동도가 더욱 높다(김광만, 2019).

이후, 2011년 칸노(Kanno) 교수에 의해 유기 액체 전해질 보다 높은 이온전도도(12mS/cm)를 가진 황화물계 고체 전해질(LGPS)이 개발되었고, 이 소재는 안전성, 전기화학적 특성, 전지조립에서 많은 장점을 가지고 있다.

그림 14. 황화물계 고체 전해질(LGPS) 구조



* 출처 : Archer et al.(2020)

하지만 LGPS는 4.0V의 비교적 넓은 전위창을 보임에도 불구하고, 저전압에서 리튬 금속 음전극에 대해 불안정하며, 고전압에서는 리튬 석출 시 LGPS의 분해가 일어나는 단점이 있다. 또한, 수분에 매우 민감하여 황화수소(H₂S)를 형성할 수 있어, 상업적 양산화 단계에서 많은 제약이 있다(김광만, 2019).

매력적인 고체 전해질 소재인 황화물계 고체 전해질 기반 전고체 전지와 관련하여 2020~2021년 사이의 연구 내용을 살펴봄으로써 산화물계 고체 전해질의 연구 동향을 정리해보고자 한다.<표2>

표 2. 황화물계 고체 전해질 기반 전고체 전지 연구동향(2020~2021년) 요약

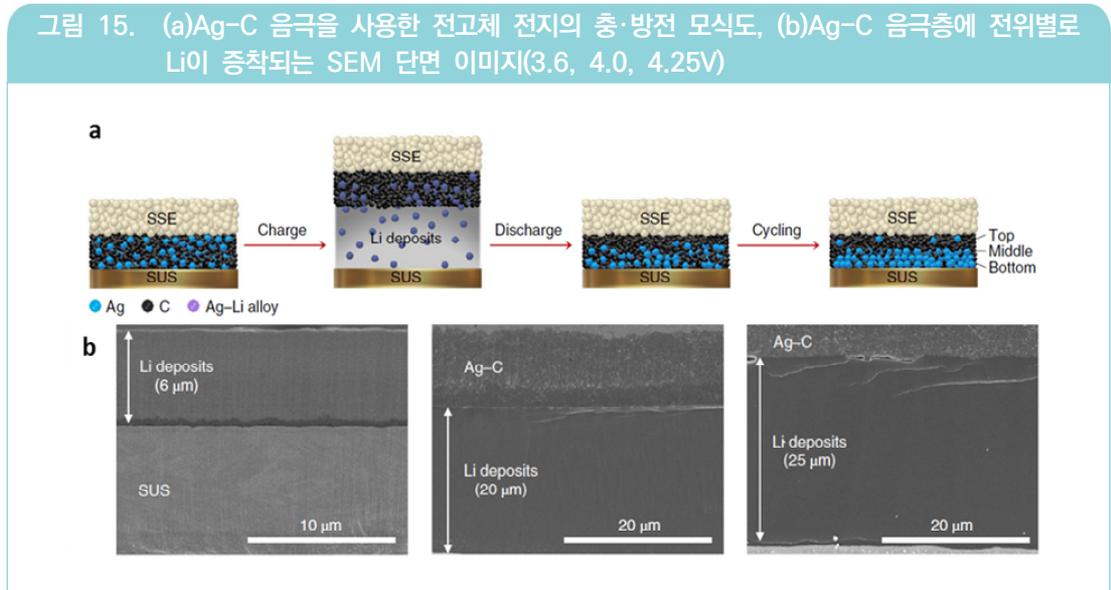
연구그룹	대표 그림	연구내용	특징
Si/C 복합음극을 이용한 고에너지 밀도, 장수명 전고체 전지 연구			
(한국) 삼성중합기술원 임동민 박사 연구팀 (Nat. Energy, 2020)		- 황화물계 고체 전해질 및 Ag/C 복합 음극을 사용하여 안정적인 리튬 증착 및 덴드라이트가 억제된 전고체 전지 연구	- Ag-C의 얇은 음극을 사용하여 높은 에너지 밀도 구현(900Wh/L) - 11.2 X 6.7cm ² 대면적 적층 파우치 셀 구현하여 1,000Cycle에서 89% 용량유지를 구현
전고체 전지에서 황화물계 고체 전해질의 계면 화학 안정성 연구			
(중국) 사면대학 Yang 교수 연구팀 (Nano Energy, 2020)		- LSPS의 전고체 전지 적용 시 이온전도도 저하 및 수명 특성 저하의 원인을 규명	- LSPS에 물리적 영향을 줄 경우 이온전도도 및 용량, 수명특성 감소 확인 - XRD, NMR, XPS 분석을 통해 물리적 영향이 가해지는 경우 비정형의 두 가지 물질로 분해됨을 확인
황화물계 고체 전해질에 적합한 전도성/접착형 계면 소재 연구(sheet형 전고체 전지)			
(한국) 한국전자기술 연구원 정구진 박사 연구팀 (Adv. Funct. Mater., 2021)		- 파우더 펠릿 타입의 황화물계 고체 전해질 기반 전고체 전지를 sheet 타입으로 만들기 위한 신규 바인더 소재 개발	- 고분자/리튬염/이온성 액체를 혼합하여, 전도성/접착성 신규 바인더를 합성하여 NBR 바인더를 대체 - Sheet 타입의 전고체 전지 제작 가능하며 파우더 펠릿 타입 전고체 전지 성능과 유사 성능 확보

* 출처 : 저자 정리

3.1 Si/C 복합 음극을 이용한 고에너지 밀도, 장수명 전고체 전지 연구

첫 번째 소개할 연구는 황화물계 고체 전해질 기반(Li₆PS₄Cl)의 전고체 전지 연구로써, 음극을 리튬 친화성인 은(Ag)과 전자 전도도 및 기계적 강도를 유지하는 탄소(C) 복합체로 사용하여 고에너지 밀도, 장수명 전고체 전지를 보고한 연구이다.

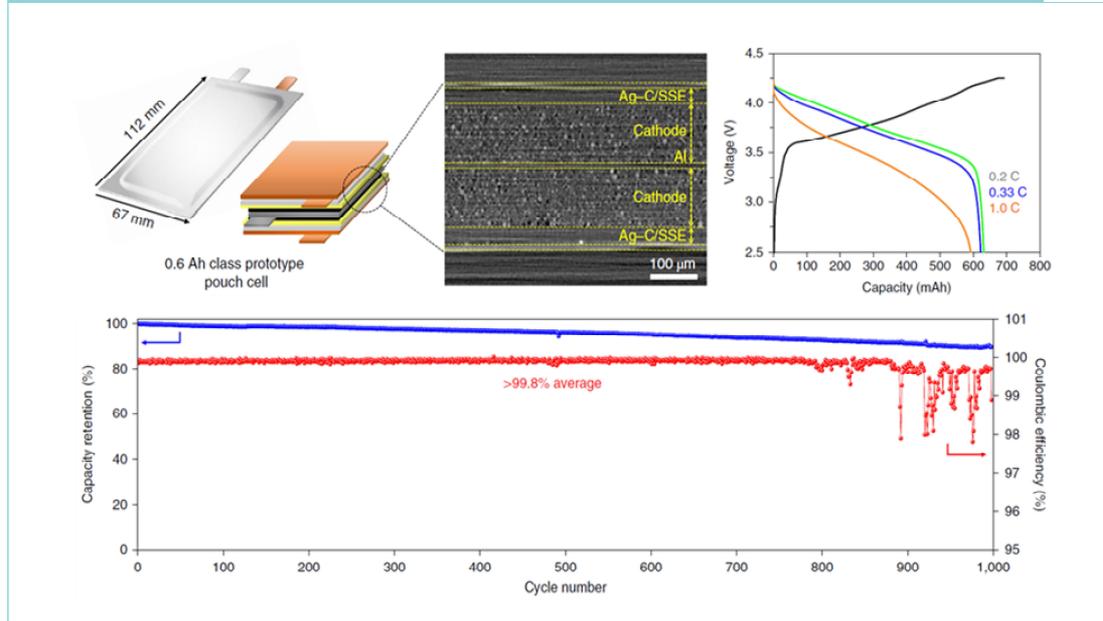
〈그림 15a〉는 은-탄소(Ag-C) 복합 음극을 사용한 전고체 전지의 충·방전 모식도를 보여주며, 은-리튬 합금(Ag-Li alloy)을 형성하며 안정적인 리튬 금속이 증착되고 사이클이 진행되며 탄소 층이 전해질 계면으로 이동하는 모습을 보인다. 〈그림 15b〉는 은-탄소(Ag-C) 음극에 전위대별로 증착된 리튬을 보여준다. 3.6V, 4.0V, 4.25V일 때 각각 6, 20, 25 μ m 두께로 밀도가 높은 리튬 층이 형성됨을 확인할 수 있다.



* 출처 : Im et al.(2020), 저자 편집

〈그림 16(위)〉는 파우치 셀의 모식도 및 SEM 단면 이미지로 파우치 셀에서도 NCM(니켈, 코발트, 망간) 양극과 황화물계 고체 전해질, 은-탄소(Ag-C) 음극 층이 고밀도로 형성됨을 확인할 수 있고, 파우치 셀은 방전 0.2, 0.33C의 방전에서도 600mAh 용량을 보이며, 1C에서도 590mAh의 방전 용량을 보여준다. 〈그림 16(아래)〉는 전고체 전지의 사이클 특성을 보여주며 0.5C/0.5C, 1,000Cycle에서 89%의 우수한 용량유지율을 보이며, 900Wh/L의 높은 부피당 에너지 밀도 값을 보인다(Im et al., 2020).

그림 16. (위)파우치 셀 모식도 및 단면과 방전 C-rate에 따른 총·방전 특성 그래프, (아래)6.8mAh/cm² NCM 로딩 전극의 0.5C / 0.5C 사이클 특성 그래프



* 출처 : Im et al.(2020), 저자 편집

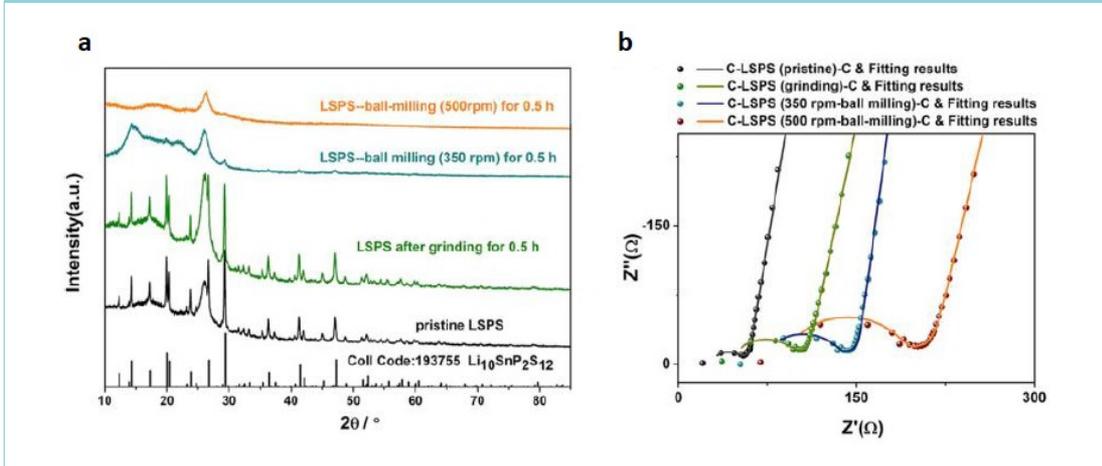
이 연구 결과는 황화물계 고체 전해질 기반 대면적 전고체 전지의 구현과 장기 수명 및 고에너지 밀도를 최초로 보고하고, 상업화에 한 발 더 다가갔다는 점에서 큰 의미를 가진다.

3.2. 전고체 전지에서 황화물계 고체 전해질의 계면 화학 안정성 연구

두 번째 소개할 연구는 전고체 전지에서 황화물계 고체 전해질을 혼합할 때 물리적 가공을 하는 경우 고체 전해질에 미치는 영향에 대한 연구이다.

〈그림 17a〉는 LSPS를 분쇄(Grinding) 및 두가지 rpm에서의 ball-milling(볼밀링, 쇱구슬을 이용해 고속분쇄) 후 XRD(X선회절) 분석을 실시하였다. 분쇄(Grinding) 후에 꼭지점(Peak) 위치의 변화는 없으나 결정성이 감소하는 경향을 보이고 500rpm ball-milling 후에는 꼭지점(Peak)이 모두 사라지고 무정형으로 변하는 모습을 보인다. 이러한 샘플은 〈그림 17b〉에서 임피던스를 통해 이온전도도 경향을 관찰하였을 때, $\sigma_{pristine}$ > $\sigma_{grinding}$ > σ_{350rpm} ball-milling > σ_{500rpm} ball-milling 순의 거동을 보인다.

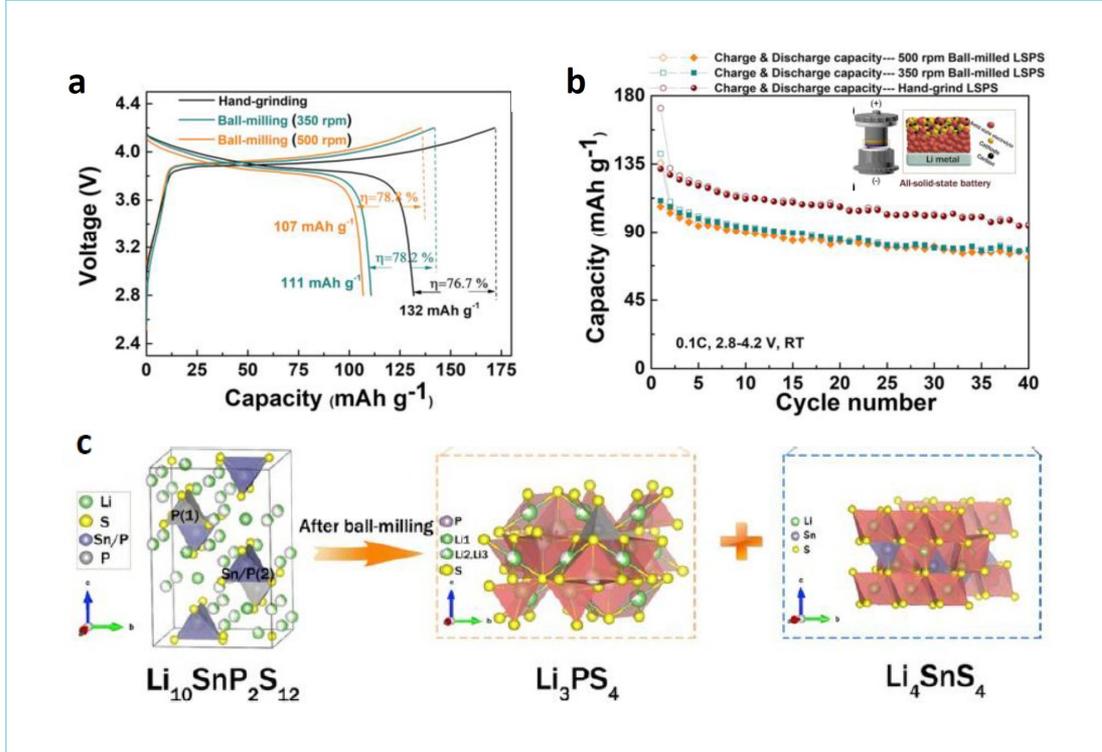
그림 17. $\text{Li}_{10}\text{SnP}_2\text{S}_{12}$ (LSPS)의 물리적 영향에 따른 특성 변화 (a)XRD 분석 결과, (b)전해질의 임피던스 비교



* 출처 : Yang et al.(2020), 저자 편집

<그림 18a>와 <그림 18b>에서는 각 샘플을 전고체 전지(LTO@LCO/LSPS/Li('@'는 리튬 코발트 산화물(LCO, Lithium Cobalt Oxide) 양극에 리튬 티타늄 화합물(LTO, Lithium Titanium Oxide)이 코팅되었다는 의미))로 제작하여 전기화학 특성을 확인하였다. 그래프에서 볼 수 있듯이, 500rpm ball-milling 후 용량이 107mAh/g으로 가장 많은 감소를 보였으나, 쿨롱 효율(CE, Coulombic Efficiency, 최근에 충전을 완료한 용량이 바로 그 전에 충전을 완료한 용량과 대비해 차지하는 비율)과 Cycle 수명 특성에서는 큰 차이를 보이지 않는다. 이러한 경향성은 <그림 18c>에서 보듯이 ball-milling이 $\text{Li}_{10}\text{SnP}_2\text{S}_{12}=2\text{Li}_3\text{PS}_4+\text{Li}_4\text{SnS}_4$ 분해 반응을 유도하기 때문이다(Yang et al. 2020).

그림 18. (a)충·방전 그래프 비교(LTO@LCO/LSPS/Li), (b)Cycle 특성 비교(0.1C, 2.8~4.2V, (c)LSPS의 물리적 영향에 따른 변화 모식도



* 출처 : Yang et al.(2020), 저자 편집

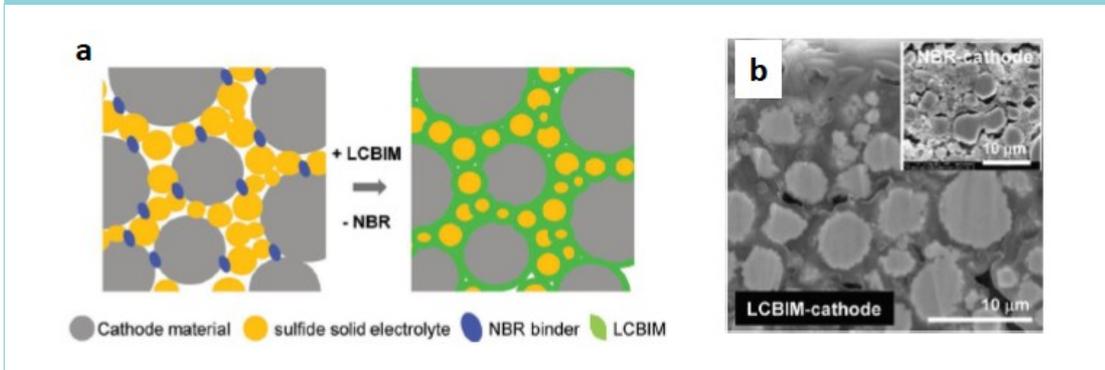
상기 연구는 기존에 LSPS를 황화물계 고체 전해질로 사용할 때 수명 저하 현상 및 이온전도도 저하현상이 규명되어 있지 않은 상황에서 다양한 분석 기법(XRD, NMR, XPS)을 토대로 증명한 의미 있는 연구 결과이다.

3.3. 황화물계 고체 전해질에 적합한 전도성/접착형 계면 소재 적용연구(Sheet형 전고체 전지)

세 번째로 소개할 연구는 황화물계 고체 전해질에 기존 사용하던(Nitrile Butadiene Rubber) 바인더를 대체하여 전도성 및 접착특성이 우수한 LCBIM 소재를 적용하여 전고체 전지의 성능을 향상시킨 연구이다.

〈그림 19a〉는 NBR 적용과 LCBIM 적용 시 전극 단면의 모식도이다. 전극 단면은 LCBIM을 적용한 경우 포어 없이 양극과 황화물계 고체 전해질 계면을 모두 채우고 있다. 〈그림 19b〉의 SEM 단면 이미지를 통해서도 모식도와 같은 결과를 확인할 수 있다.

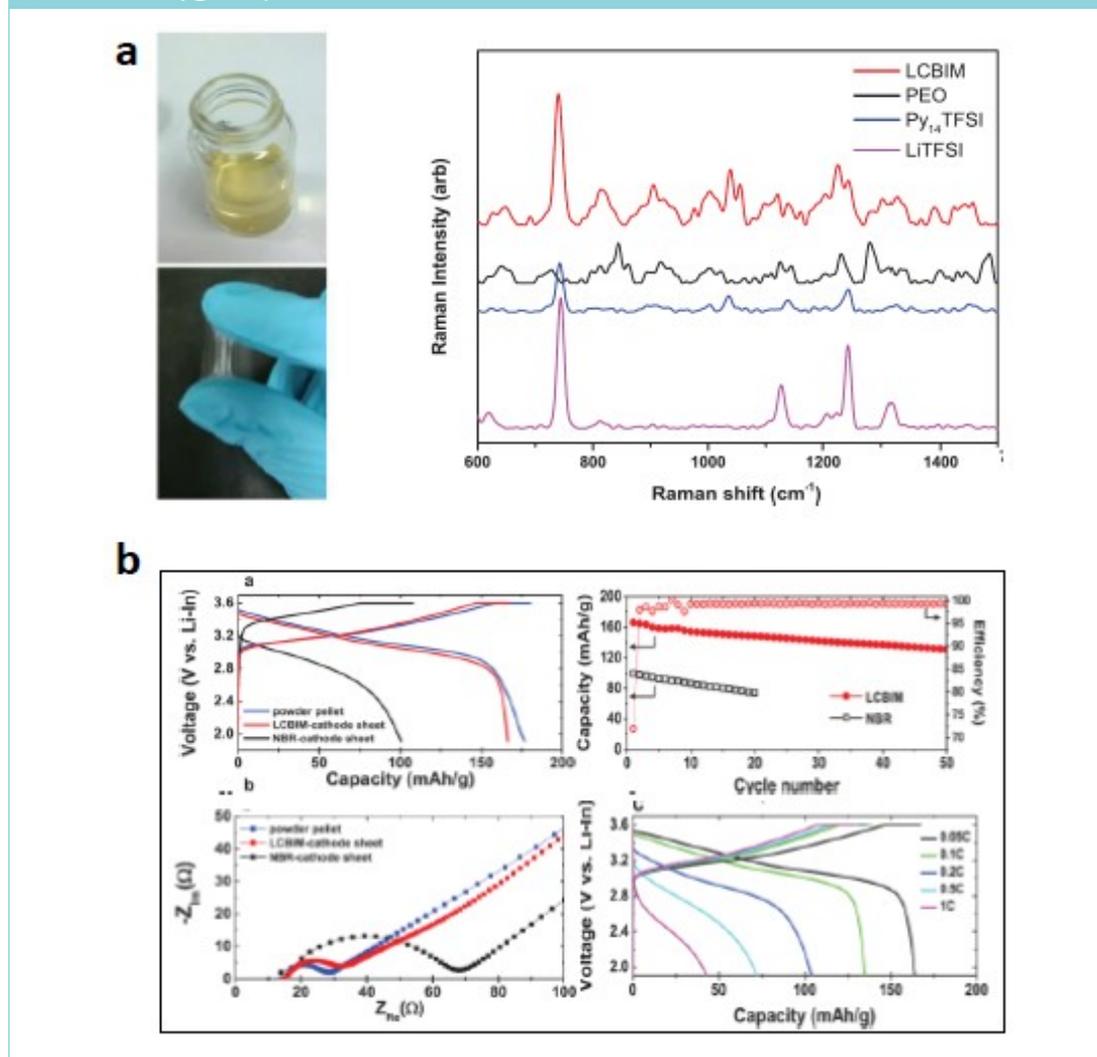
그림 19. (a)전도성/glue형 $\text{Py}_{14}\text{TFSI-LiTFSI-PEO(LCBIM)}$ 소재 적용 후 양극 전극 모식도, (b)양극 전극 단면 SEM 이미지(inset. Nitrile-Butadiene-Rubber(NBR) 바이더 적용 양극 전극 단면)



* 출처 : Jeong et al.(2021), 저자 편집

〈그림 20a〉는 합성된 LCBIM의 이미지로 접착성이 강한 상태임을 확인할 수 있고 XRD 통해 잘 혼합된 것을 확인할 수 있다. 〈그림 20b〉에서는 전기화학 특성을 보여주며, Charge transfer resistance(R_{ct})는 powder 타입과 유사 수준이고 NBR을 적용했을 때 보다 3배 이상 낮은 수준이다. 초기 방전용량도 LCBIM 적용 시 166mAh/g이며, LGPS 파우더 펠렛 적용의 경우(177mAh/g)의 92% 수준의 용량을 발현하며, NBR 적용 시(100mAh/g) 보다 50% 이상 높은 값을 보인다. Cycle 수명 특성에서도 NBR이 20Cycle에서 구동이 정지된 것과 반대로 LCBIM 적용 후 50Cycle에서 80%의 용량 유지율을 보인다(Jeong et al., 2021).

그림 20. (a)LCBIM 소재 이미지 및 XRD 분석결과, (b)LCBIM 적용 전고체 전지의 전기화학 특성 그래프

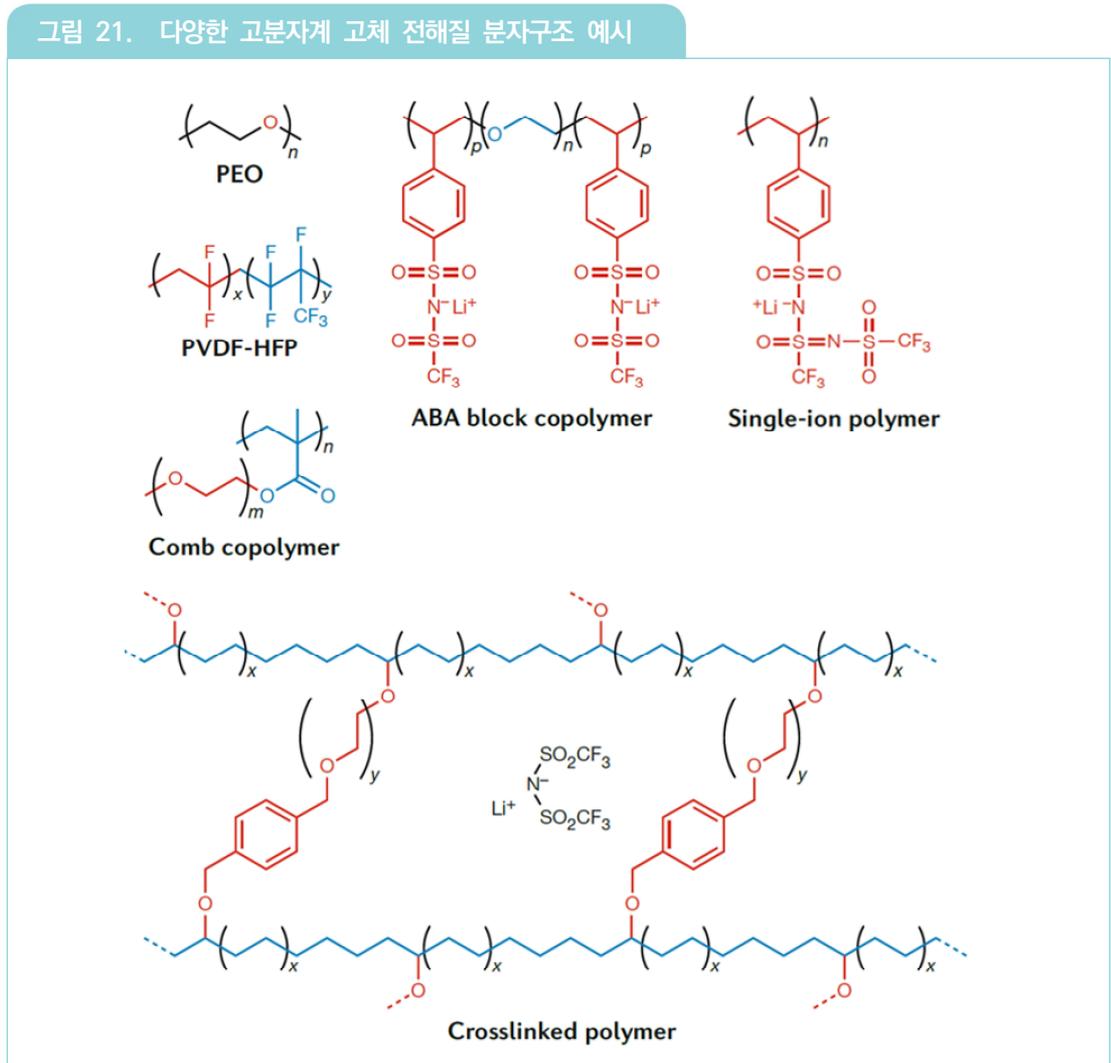


*출처 : Jeong et al.(2021), 저자 편집

파우더 펠렛 타입이 주류인 황화물계 고체 전해질 기반 전고체 전지에서 상용 리튬이온이차전지의 슬러리 공정에 적용하기 위한 신규 바인더 선정이 필요하다. 본 연구 결과는 현재 상용 중인 NBR 바인더가 가지는 한계 극복을 위해 성능이 우수한 새로운 리튬 염, 고분자, 이온성 액체(Ionic Liquid) 혼합소재를 개발하였다는데 큰 의미가 있다.

4. 고분자계 전고체 전지 최신 연구 동향

세 가지 전고체 전지용 고체 전해질 중 마지막으로 고분자 고체 전해질에 대한 최신연구 동향을 살펴보고자 한다. <그림 21>에서 볼 수 있듯이, 현재 고분자 고체 전해질로 사용되는 고체 전해질은 PEO를 포함하여 Copolymer(공중합체), Crosslinked polymer(가교고분자), Single-ion polymer(단일전도체) 등 수십 종이 넘는다.



* 출처 : Archer et al.(2020), 저자 편집

특히, 1978년 아먼드(Armand) 교수에 의해 PEO 기반 전고체 전지의 가능성에 대해 보고된 이후(Armand et al., 1978)로, PEO의 낮은 이온전도도(상온 0.01mS/cm 수준)를 극복하고, 우수한 기계적 강도를 부여하기 위한 많은 연구들이 진행되고 있다.

고분자 고체 전해질은 앞의 두 종류의 고체 전해질과 비교하여 전해질 제조가 저온에서 이루어지고 얇은 박막공정이 가능하며, 복합형으로 다른 고체 전해질과 혼합하여 단점을 극복할 수 있다는 장점을 가진다.

하지만 여전히 앞의 두 고체 전해질에 비해 이온전도도가 낮고, 기계적 강도가 약하며, 전압안정성이 낮은 단점은 앞으로도 지속적인 연구를 통해 극복해나가야 할 점이다.

아래의 <표3>에서는 2020~2021년 사이 보고된 고분자계 고체 전해질 기반 전고체 전지의 연구 동향을 요약 정리하였다.

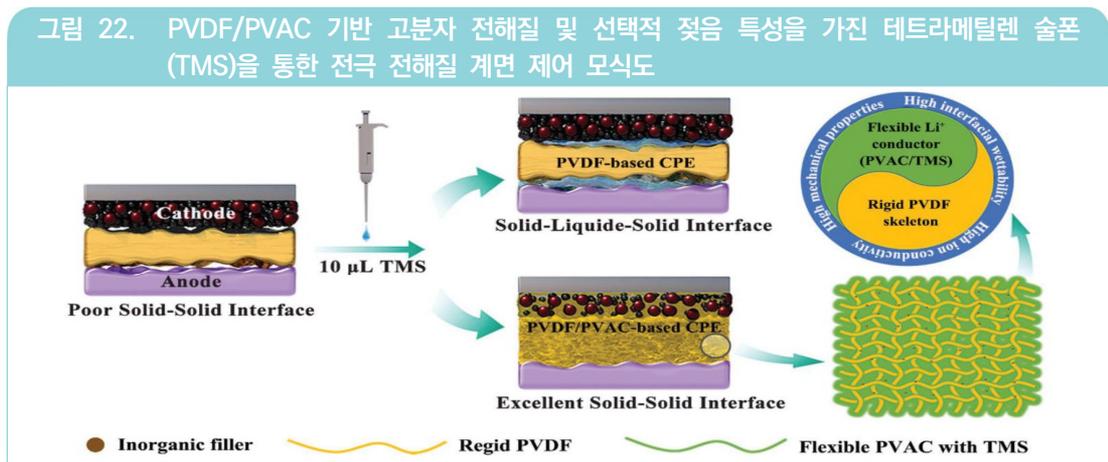
표 3. 고분자계 고체 전해질 기반 전고체 전지 연구동향(2020~2021년) 요약			
연구그룹	대표 그림	연구내용	특징
선택적 젖음성을 가지는 Rigid-Flexible 커플링 고분자 전해질기반 고전압 전고체 전지			
(중국) 중국과학원 Cui 교수 연구팀 (Adv. Energy Mater., 2020)		- Rigid/Flexible 고분자 및 선택적 젖음 특성을 위한 tetramethylene sulfone(TMS)를 혼합하여 양극과 전해질의 계면제어 연구	- Rigid(polyvinylidene fluoride (PVDF))/ - Flexible(polyvinyl acetate (PVAC)) 혼합 고분자를 이용하여 계면 제어 - LCO 양극에서 200Cycle에서 85% 용량 유지율 확보(3.0~4.5V)
초박형 Double Hydroxide 나노 쉬트를 이용한 전고체 전지			
(중국) 상하이 대학 Zheng 교수 연구팀 (Adv. Funct. Mater., 2021)		- 초박형 Double Hydroxide 나노 쉬트를 고분자 전해질 표면에 적용한 전고체 전지 연구	- 초박형 나노 쉬트를 1wt.% 함유하여 고분자 전해질의 음이온 제어 - 고분자 전해질의 이온전도도 및 전압안정성을 간단한 방식으로 향상 가능
전고체 전지에서 Polymer-in-salt 전해질을 통한 성능향상 및 리튬음극과 안정적 계면 형성			
(미국) 텍사스 대학 Gao 연구팀 (Energy Mater. Advances, 2021)		- 전고체 전지에서 Polymer-in-salt 전해질을 통한 성능 향상 및 리튬 음극과 안정적 계면 형성	- PAN에 80 wt.% 이상의 LiTFSI 염을 적용하여 고분자 고체 전해질 성능 향상 - 리튬 음극에 안정적인 SEI막을 형성시켜 안정적 Nucleation 형성 및 리튬 덴드라이트 억제

* 출처 : 저자 정리

4.1. 선택적 젖음성을 가지는 Rigid-Flexible 커플링 고분자 전해질 기반 고전압 전고체 전지

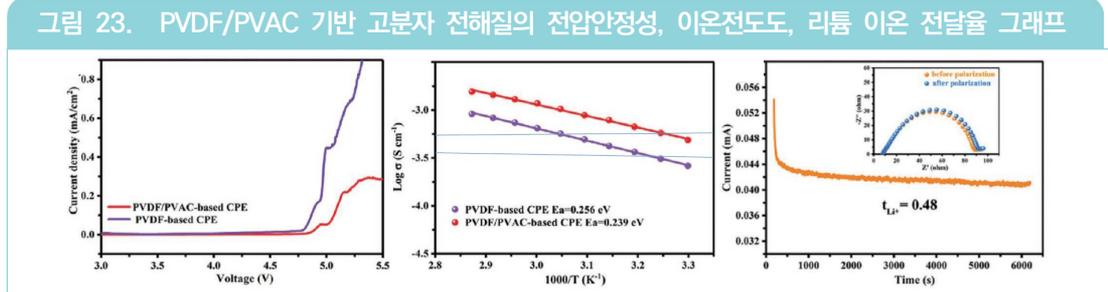
첫 번째로 소개할 연구는 기존의 뻣뻣한(Rigid) 특성의 고분자 전해질에 유연한(Flexible) 특성의 고분자 및 선택적 젖음성을 가지는 액체로 고전압 양극 전극과의 계면 제어 및 구동 특성을 향상시킨 연구이다.

〈그림 22〉는 뻣뻣한(Rigid)한 고분자(PVDF)와 유연한(Flexible) 고분자(PVAC)에 테트라메틸렌 술폰(TMS, Tetramethylene Sulfone)을 첨가함으로써 기존 양극과의 계면 저항을 제어하는 모식도를 보여준다.



* 출처 : Cui et al.(2020), 저자 편집

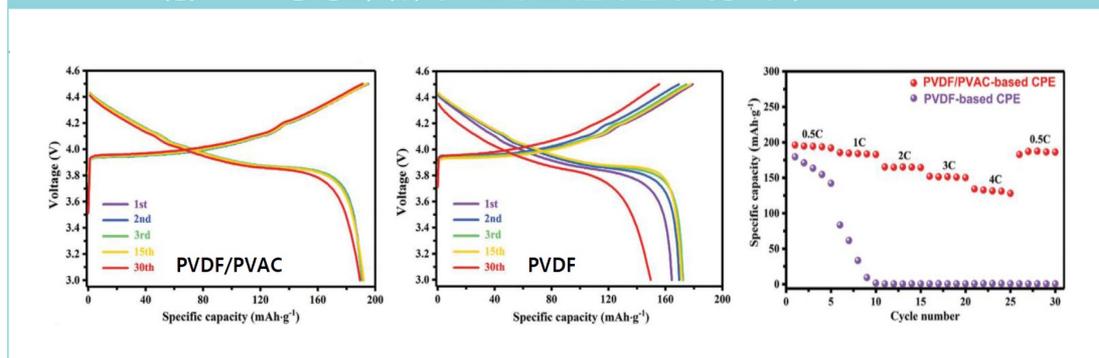
이러한 전략으로 제작한 Rigid-Flexible 고분자 전해질은 PVDF 단일막 고분자 전해질과 비교하여 유사한 4.7V의 전압안정성을 보여주고, 오히려 산화 전위는 낮은 모습을 보인다. 이온전도도도 모든 온도 영역에서 PVDF 막 대비 약 80%정도 증가하는 경향을 보인다. 리튬 이온 전달율(Li ion transference number)은 0.48이며, 일반적인 고분자 전해질의 0.5 수준과 유사함을 확인할 수 있다.〈그림 23〉



* 출처 : Cui et al.(2020), 저자 편집

개발된 고분자 막을 LCO 양극에 적용하여 전기화학 특성을 비교하였을 때, PVDF-PVAC 적용 전고체 전지는 30Cycle까지 용량 변화가 거의 없으며, 200Cycle에서도 85%의 높은 용량 유지율을 보인다. 또한, 율속 특성에서도 4C의 높은 전류 밀도에서도 안정적 구동을 확인할 수 있다(Cui et al. 2020).

그림 24. LCO 양극 전극에 적용된 고분자 전해질의 전기화학 데이터((좌) PVDF/PVAC 총방전, (중) PVDF 총 방전, (우)각 고분자 전해질의 출력 특성 비교)



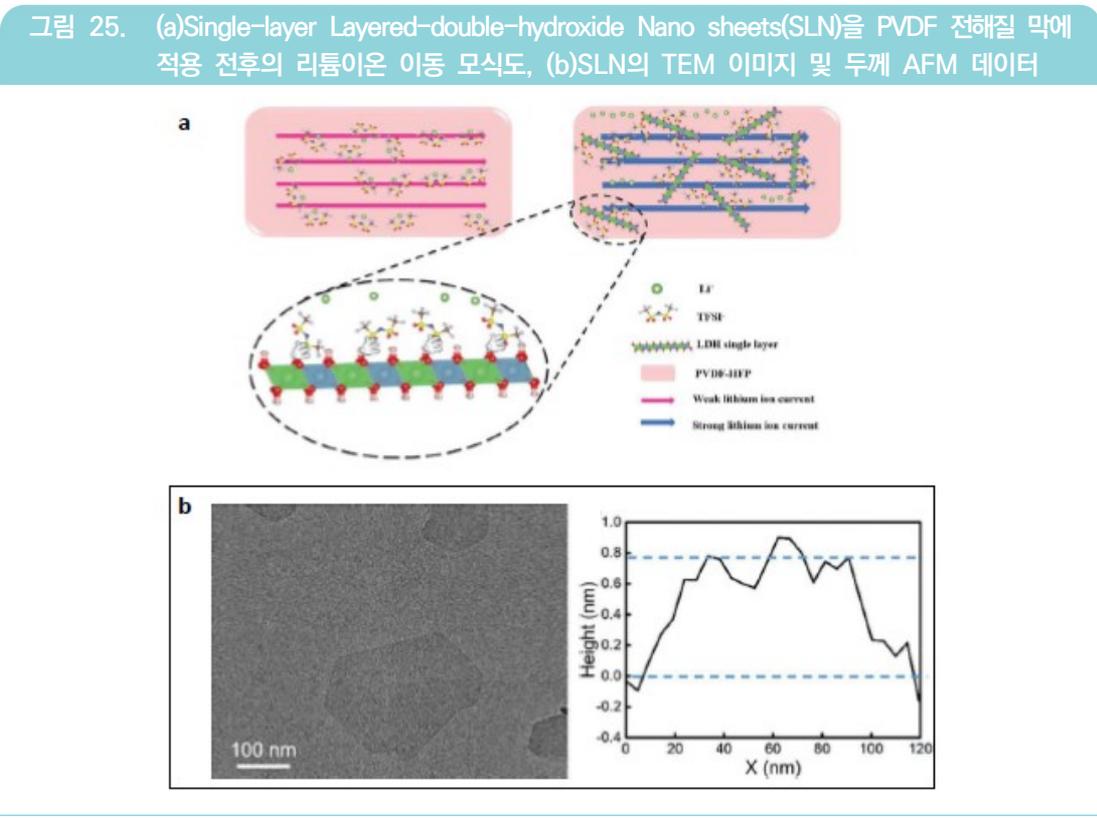
* 출처 : Cui et al.(2020), 저자 편집

본 연구 결과를 통해 고분자 자체의 Rigid한 물성을 이용하는 것뿐만 아니라 새로운 고분자 물질(Flexible)과 혼합함으로써 고분자의 물성 및 계면 제어가 가능함을 확인하였고, 이를 통해 단일 고분자만의 활용이 아닌 다양한 물성 및 특성의 고분자를 도입함으로써 전고체 전지 성능을 향상시킨 점에서 큰 의미가 있다.

4.2. 초박형 Double Hydroxide 나노 쉬트를 이용한 전고체 전지

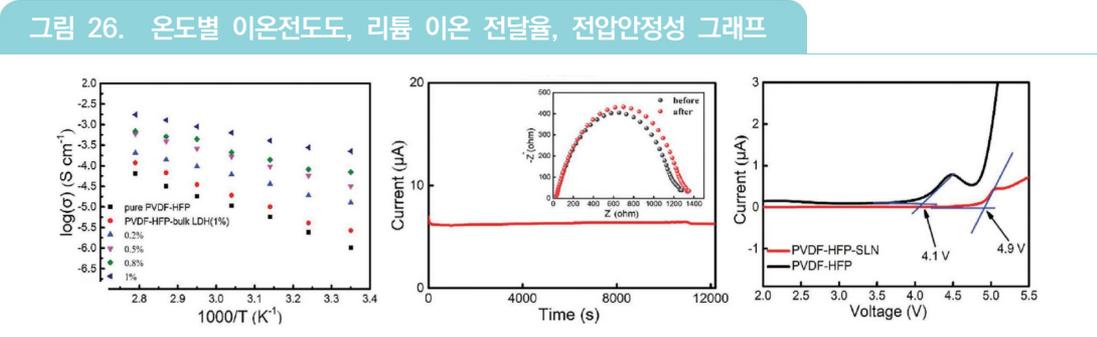
두 번째로 소개할 연구는 고체 지질 나노입자(SLN, Solid Lipid Nanoparticle)를 폴리비닐리덴 플루오라이드(Polyvinylidene Fluoride, 불소계 고분자 물질)에 적용하여 고분자 고체 전해질의 리튬이온 이동을 향상시킨 연구이다.

〈그림 25a〉는 SLN을 도입할 경우 리튬(Li) 이온 이동이 강해짐을 보여주는 모식도이다. SLN은 강한 양극성(+ charge)로 되어있어 음이온을 잡아주는 역할을 하여 이온전도도를 극대화시키는 역할을 한다. 〈그림 25b〉에서 SLN의 TEM이미지와 0.8nm 수준의 얇은 두께를 확인할 수 있다.



* 출처 : Zheng et al.(2021), 저자 편집

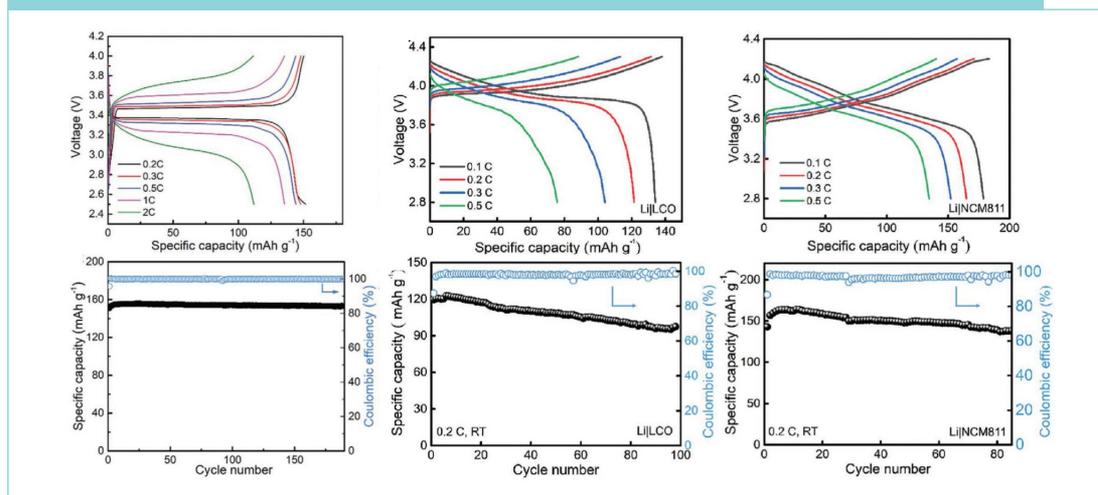
〈그림 26〉에서는 SLN이 적용된 고체 전해질의 특성을 확인 가능하며, 상온 이온전도도는 0.22mS/cm이고 리튬 이온 전달율(Li ion transference number)은 무려 0.78로 큰 값과 4.9V의 높은 전압안정성을 보여준다.



* 출처 : Zheng et al.(2021), 저자 편집

〈그림 27〉에서 볼 수 있듯이 개발된 고분자 고체 전해질은 LFP, LCO, NCM811에 각각 적용하여, 156.9mAh/g@0.1C("@"는 방전 시 방전속도, 0.1C는 10시간에 방전하는 전류를 의미) 190Cycle에서 98.6%(LFP), 134.1mAh/g@0.1C, 100Cycle 80.4%(0.2C), 178.6mAh/g@0.1C, 85Cycle에서 84.3%의 용량 유지율을 보인다(Zheng et al. 2021).

그림 27. LFP, LCO, NCM811 전극에 적용한 전고체 전지 충·방전 및 사이클 특성 그래프



* 출처 : Zheng et al.(2021), 저자 편집

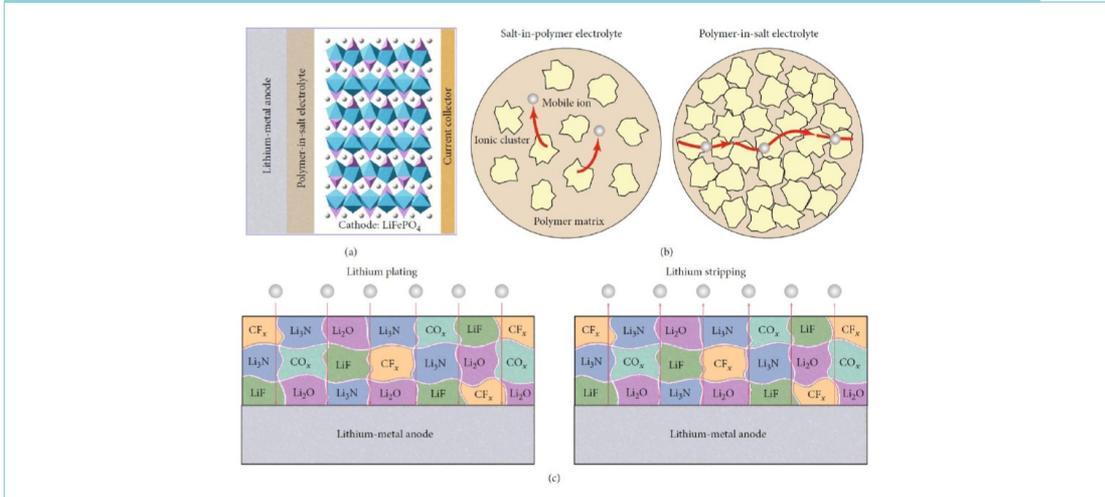
본 연구를 통해 고분자 전해질의 표면에 2D 물질을 도입하는 것만으로도 음이온을 제어할 수 있고, 복잡한 고분자 합성을 통한 단일 이온 전도체(Single Ion Conductor)를 구현하는 것 보다 간단한 방식으로 구현함으로써 이온전도도를 향상시킬 수 있다는 점에서 큰 의미가 있다.

4.3. 전고체 전지에서 Polymer-in-salt 전해질을 통한 성능 향상 및 리튬음극과 안정적 계면 형성

세 번째 연구는 고분자에 리튬염을 과량으로 함유한 Polymer-in-salt 형태의 고분자 전해질을 통해 전기화학 전위창을 넓히고, 높은 이온전도도를 확보하며, 리튬 이온 전달율(Li ion transference number)을 높인 연구이다.

〈그림 28〉은 Polyacrylonitrile(PAN, 폴리아크릴로나이트릴) 기반의 고분자 전해질에 리튬염을 과량으로 넣은 전해질(84wt.% LiTFSI, PAN 16wt.%)의 이온 전달 매커니즘 및 고체 전해질(SEI, Solid Electrolyte Interface) 막을 통한 리튬 이온 이동 모습을 보여준다.

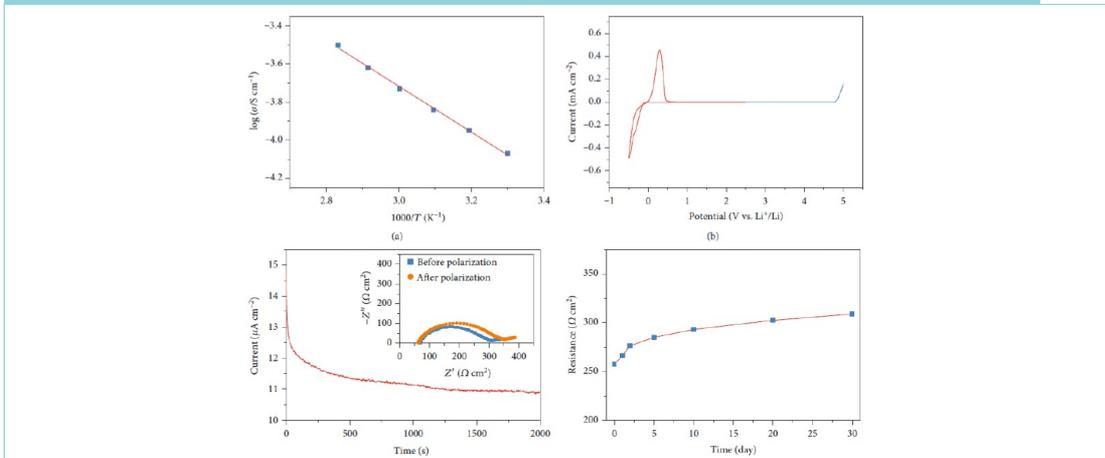
그림 28. Polyacrylonitrile(PAN) 기반 Polymer-in-salt 고분자 전해질의 개념도 및 리튬 이온 이동 모식도



* 출처 : Gao et al.(2021), 저자 편집

〈그림 29〉는 제작된 고분자 고체 전해질의 성능을 보여준다. 제작된 고분자 고체 전해질은 0.18mS/cm (@60°C)의 이온전도도, 4.8V 전압안정성, 0.47의 리튬 이온 전달율(Li ion transference number) 및 30일이 지난 후에도 36Ωcm²의 저항 증가만을 보인다.

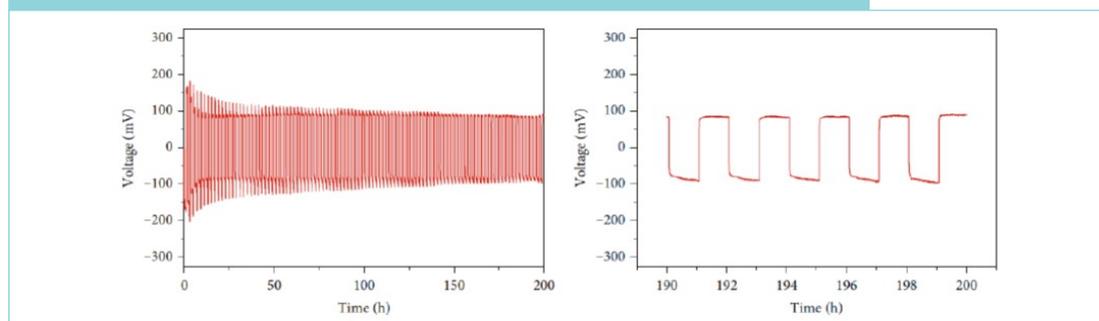
그림 29. Polymer-in-salt 고분자 전해질의 이온전도도 전압안정성, 리튬 이온 전달율, 시간에 따른 저항 변화 그래프



* 출처 : Gao et al.(2021), 저자 편집

〈그림 30〉은 리튬 대칭 셀(Symmetric Cell) 구동의 특성을 보이며, 200h 동안 0.2mAh/cm²의 전류밀도에서 안정적인 구동 특성을 보인다.

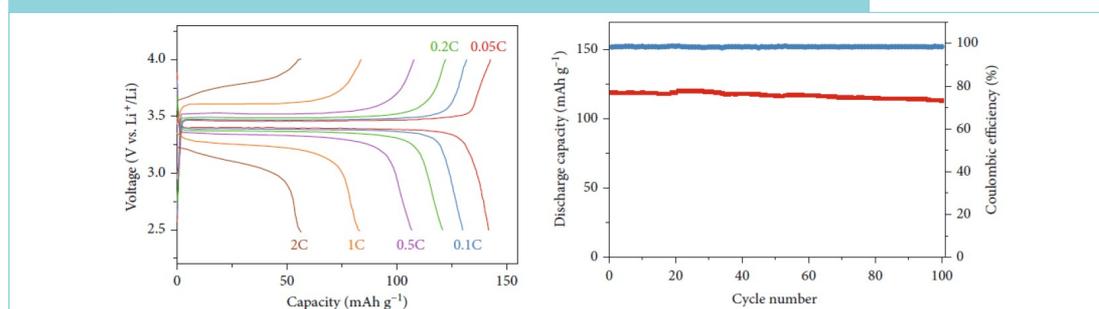
그림 30. 리튬 대칭 셀을 이용한 plating/stripping 특성 확인 그래프



* 출처 : Gao et al.(2021), 저자 편집

〈그림 31〉은 LFP 전극에 적용한 전지 특성을 보여주며, 100Cycle(@60℃, 0.2C)까지 95.1%의 용량 유지율을 보여준다.

그림 31. LFP 전극에 적용한 전고체 전지 출력 및 사이클 특성 그래프

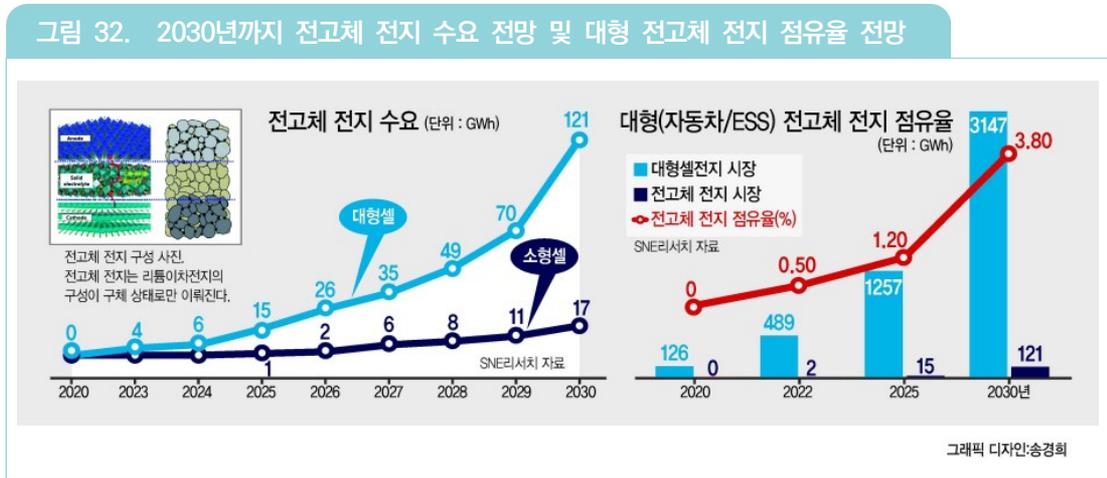


* 출처 : Gao et al.(2021), 저자 편집

본 연구는 기존의 리튬염 농도가 아닌 고함량의 전해질을 포함하여, 고분자 전해질을 통해 전기화학 전압 범위를 넓히고, 높은 이온전도도를 확보하며, 리튬 이온 전달율(Li ion transference number)을 높인 연구로써 의미를 가진다. 또한, 고함량 리튬염을 통해 안정적인 SEI 막을 형성시킴으로써 리튬의 도금/박리(Plating/Stripping) 과정에서 핵생성(Nucleation)을 안정화시키고 리튬 덴드라이트를 억제함으로써 전고체 전지의 성능을 향상시켰다는 점에서 본 연구는 중요한 의미를 가진다.

III 전고체 전지 산업(시장) 동향

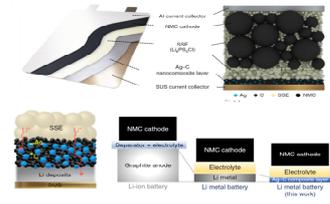
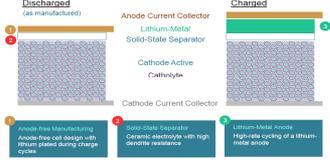
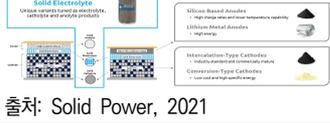
SNE 리서치 연구에 따르면, 전고체 전지는 2023년부터 사용이 시작되어 2025년 이후 사용이 본격화 될 것으로 전망된다. 2023년부터 2030년까지 연평균성장률은 66%로 매우 가파른 성장세가 예상된다. 대형전지 시장의 경우 전고체 전지가 차지하는 비율은 2025년 1.2%, 2030년 3.8%로 전망됐다. 소형전지는 2025년부터 본격적으로 성장해 2030년에는 소형전지 시장에서 14% 점유를 차지할 것으로 분석됐다(정세희, 2020).



* 출처 : 정세희(2020)

상기 전망을 바탕으로 <표4>에서는 최근 기업들이 개발하고 있는 전고체 전지의 현황에 대하여 요약 정리하였다.

표 4. 2030년까지 전고체 전지 수요 전망 및 대형 전고체 전지 점유율 전망

기업	대표 그림	전고체 전지 특징	양산화 계획
(일본) 토요타	 출처 : 토요타, 2021	- 황화물계 고체 전해질 기반 전고체 전지 - 2021년 9월 언론보도	2025년
(한국) 삼성종합기술원 (삼성 SDI)	 출처 : Im et al., 2020	- 황화물계 고체 전해질 및 Ag/C 복합 음극을 사용하여 안정적인 리튬 증착 및 덴드라이트가 억제된 전고체 전지 연구 - 2020년 3월 언론보도	2025년 (시제품 공개) 2027년 (양산)
(미국) QuantumScape (SKI노베이션)	 출처 : 삼성증권, 2021	- 세라믹계 고체 전해질 /무음극 전극을 이용한 전고체 전지	2030년
(중국) 칭타오에너지 (니오)	 출처 : 삼성증권, 2021	- 하이브리드 고체 전해질(산화물+고분자), 실리콘/탄소 복합음극 - 350 Wh/kg 에너지 밀도	2022년
(미국) Solid Power (폭스바겐)	 출처 : Solid Power, 2021	- 황화물계 고체 전해질, 실리콘 또는 리튬 금속 기반 음극, NCM 811 - 20Ah 급 파우치 셀(22 layer)	2026년 (실리콘 음극) 2027년 (리튬 금속 음극)
(대만) ProLogium (빈패스트)	 출처 : ProLogium, 2021	- 산화물기반 고체 전해질 사용 - 485Wh/L 에너지 밀도 - 12분, 80% 급속충전	2024년

* 출처 : 저자 정리

IV 전고체 전지 발전 전망

앞에서 살펴본 바와 같이, 전고체 전지 시장은 비약적으로 발전하고 있다. 업계에서는 상용 리튬이온이차전지의 한계를 넘어선 차세대 전지에 대한 요구가 강하고, 이에 발맞추어 정부 주도의 이차전지 산업 육성을 위한 정책들이 앞 다투어 나오고 있다.

특히, 대기업들은 내·외부에서 경쟁적으로 전고체 전지 연구를 하고 있고, 상업화를 위해 노력하고 있으며, 연구자들은 학계에서 전고체 전지의 성능 향상을 위해 다양한 전고체 전지의 난제를 풀기 위한 노력들을 기울이고 있다.

상용 리튬이온이차전지가 개발되고 상업화되어 전 세계를 지배하고 있는 현 시점에서 이제는 이를 넘어서는 새로운 개념의 차세대 이차전지의 개발 시점이 도래하고 있다.

전고체 전지는 이러한 전 세계적인 요구를 모두 담을 수 있는 최적의 기술이라고 조심스럽게 전망해 본다.

저자_ 김대일(Daeil Kim)

• 학력

고려대학교 화공생명공학 박사
고려대학교 화공생명공학 석사
고려대학교 화공생명공학 학사

• 경력

現) 한국에너지기술연구원 변환저장소재연구실 선임연구원
前) LG화학 기술연구원 책임

참고문헌

〈국내문헌 : 인용 순〉

- 1) (강병우 2018) : 강병우, 박희택, 우승준, 강민석, 김아빈, 차세대 리튬이차전지를 위한 산화물 고체 전해질의 연구동향, *Ceramist* 2018, 21, 349-365.
- 2) (김광만 2019) : 김주미, 오지민, 김주영, 이영기, 김광만, 리튬이차전지용 고체 전해질의 최근 진전과 전망, *Korean Electrochem. Soc.* 2019, 22, 87-102.
- 3) (김대일 2021) : 김대일, 전고체 전지용 산화물/고분자 혼합 고체 전해질 연구 동향, *New & Information for Chemical Engineers(NICE)*, 2021, 39, 61-65

〈국외문헌 : 알파벳순〉

- 4) (Aono 1989) : Aono, H.; Sugimoto, E.; Sadaoka, Y.; Imanaka, N.; Adachi, G. Y. Ionic-Conductivity of the Lithium Titanium Phosphate ($\text{Li}_{1+x}\text{MxTi}_2\text{-x}(\text{PO}_4)_3$, M = Al, Sc, Y, and La) systems. *J. Electrochem. Soc.* 1989, 136, 590-591.
- 5) (Archer 2020) : Zhao, Q.; Stalini, S.; Zhao, C.; Archer, L. A. Designing solid-state electrolytes for safe, energy-dense batteries. *Nat. Rev. Mater.* 2020, 5, 229-252.
- 6) (Armand 1978) : Armand, M. B.; Chabagno, J. M.; Duclot, M. "Second International Meeting on Solid Electrolytes, St. Andrews, Scotland, September 20-22." *Extended Abstracts.* 1978.
- 7) (Bates 1993) : Bates, J. B.; Dudney, N. J.; Gruzalski, G. R.; Zuh, R. A.; Choudhury, A.; Luck, C. F.; Robertson, J. D. Fabrication and Characterization of Amorphous Lithium Electrolyte Thin Films and Rechargeable Thin-Film Batteries. *J. Power Sources* 1993, 43, 103-110.
- 8) (Birke 1999) : Birke, P.; Salam, F.; Döring, S.; Weppner, W. A First Approach to a Monolithic All Solid State Inorganic Lithium Battery. *Solid State Ionics* 1999, 118, 149-157.
- 9) (Cui 2020) : Yu, X.; Wang, L.; Ma, J.; Sun, X.; Zhou, X.; Cui, G. Selectively Wetted Rigid-Flexible Coupling Polymer Electrolyte Enabling Superior Stability and Compatibility of High-Voltage Lithium Metal Batteries. *Adv. Energy Mater.* 2020, 10, 1903939.
- 10) (Faraday 1833) : Faraday, M. Iv. Experimental Researches in Electricity-Third Series. *Philos. Trans. R. Soc. London* 1833, 123, 23-54.
- 11) (Fenton 1973) : Fenton, D. E.; Parker, J. M.; Wright, P. V. Complexes of Alkali-Metal Ions with Poly(Ethylene Oxide). *Polymer* 1973, 14, 589-589.

- 12)** (Gao 2021) : Gao, H.; Grundish, N. S.; Zhao, Y.; Zhou, A.; Goodenough, J. B. Formation of Stable Interphase of Polymer-in-Salt Electrolyte in All-Solid-State Lithium Batteries. *Energy Materials Advances* 2021, 2021, 1932952.
- 13)** (Goodenough 1976) : Goodenough, J. B.; Hong, H. Y. P.; Kafalas, J. A. Fast Na⁺-Ion Transport in Skeleton Structures. *Mater. Res. Bull.* 1976, 11, 203-220.
- 14)** (Im 2020) : Lee, Y.-G.; Fujiki, S.; Jung, C.; Suzuki, N.; Yashiro, N.; Omoda, R.; Ko, D.-S.; Shiratsuchi, T.; Sugimoto, T.; Ryu, S.; Ku, J. H.; Watanabe, T.; Park, Y.; Aihara, Y.; Im, D.; Han, I. T. High-energy long-cycling all-solid-state lithium metal batteries enabled by silver-carbon composite anodes. *Nat. Energy* 2020, 5, 299-308.
- 15)** (Inaguma 1993) : Inaguma, Y.; Chen, L. Q.; Itoh, M.; Nakamura, T.; Uchida, T.; Ikuta, H.; Wakihara, M. High Ionic-Conductivity in Lithium Lanthanum Titanate. *Solid State Commun.* 1993, 86, 689-693.
- 16)** (Jeong 2021) : Cho, W.; Park, J.; Kim, K.; Yu, J. -S.; Jeong, G.; Sulfide-Compatible Conductive and Adhesive Glue-Like Interphase Engineering for Sheet-Type All-Solid-State Battery. *Samll*, 2021, 17, 1902138.
- 17)** (Kanno 2011) : Kamaya, N.; Homma, K.; Yamakawa, Y.; Hirayama, M.; Kanno, R.; Yonemura, M.; Kamiyama, T.; Kato, Y.; Hama, S.; Kawamoto, K.; et al. A Lithium Superionic Conductor. *Nat. Mater.* 2011, 10, 682-686.
- 18)** (Kanno 2016) : Kato, Y.; Hori, S.; Saito, T.; Suzuki, K.; Hirayama, M.; Mitsui, A.; Yonemura, M.; Iba, H.; Kanno, R. High-Power All-Solid-State Batteries Using Sulfide Superionic Conductors. *Nat. Energy* 2016, 1, 16030.
- 19)** (Knutz 1983) : Knutz, B.; Skaarup, S. Cycling of Li/Li₃N/TiS₂ Solid-State Cells. *Solid State Ionics* 1983, 9-10, 371-374.
- 20)** (Kudo 1983) : Kanehori, K.; Matsumoto, K.; Miyauchi, K.; Kudo, T. Thin Film Solid Electrolyte and Its Application to Secondary Lithium Cell. *Solid State Ionics* 1983, 9-10, 1445-1448.
- 21)** (Li 2020) : Chen, R.; Li, Q.; Yu, X.; Chen, L.; Li, H. Approaching Practically Accessible Solid-State Batteries: Stability Issues Related to Solid Electrolytes and Interfaces, *Chem. Rev.* 2020, 120, 6820-6877.
- 22)** (Liu 2020) : Chen, S.; Zhang, J.; Nie, L.; Hu, X.; Huang, Y.; Yu, Y.; Liu, W. All-Solid-State Batteries with a Limited Lithium Metal Anode at Room Temperature using a Garnet-Based Electrolyte. *Adv. Mater.* 2020, 2002325.

- 23] (Meng 2020) : Banerjee, A.; Wang, X.; Fang, C.; Wu, E. A.; Meng, Y. S. Interfaces and Interphases in All-Solid-State Batteries with Inorganic Solid Electrolytes. *Chem. Rev.* 2020, 120, 6878–6933.
- 24] (Murugan 2007) : Murugan, R.; Thangadurai, V.; Weppner, W. Fast Lithium Ion Conduction in Garnet-Type $\text{Li}_7\text{La}_3\text{Zr}_2\text{O}_{12}$. *Angew. Chem., Int. Ed.* 2007, 46, 7778–7781.
- 25] (Rao 1969) : Rao, M. L. B. High energy density solid electrolyte cells. U.S. Patent US 3455742 A, 1969.
- 26] (Ribes 1980) : Ribes, M.; Barrau, B.; Souquet, J. L. Sulfide Glasses: Glass Forming Region, Structure and Ionic Conduction of Glasses in Na_2SXS_2 (X = Si; Ge), $\text{Na}_2\text{S}-\text{P}_2\text{S}_5$ and $\text{Li}_2\text{S}-\text{GeS}_2$ Systems. *J. Non-Cryst. Solids* 1980, 38–39, 271–276.
- 27] (Shao 2021) : Du, M.; Sun, Y.; Liu, B.; Chen, B.; Liao, K.; Ran, R.; Cai, R.; Zhou, W.; Shao, Z. Smart Construction of an Intimate Lithium/Garnet Interface for All-Solid-State Batteries by Tuning the Tension of Molten Lithium. *Adv. Funct. Mater.* 2021, 2101556.
- 28] (Wang 2017) : Manthiram, A.; Yu, X.; Wang, S. Lithium battery chemistries enabled by solid-state electrolytes. *Nat. Rev. Mater.* 2017, 2, 16103.
- 29] (Whittingham 1976) : Whittingham, Electrical Energy Storage and Intercalation Chemistry. *Science* 1976, 192, 1126–1127.
- 30] (Yang 2020) : Zheng, B.; Liu, X.; Zhu, J.; Zhao, J.; Zhong, G.; Xiang, Y.; Wang, H.; Zhao, W.; Umeshbabu, E.; Wu, Q.-H.; Huang, J.; Yang, Y. Unraveling (electro)-chemical stability and interfacial reactions of $\text{Li}_{10}\text{SnP}_2\text{S}_{12}$ in all-solid-state Li batteries. *Nano Energy* 2020, 67, 104252.
- 31] (Yi 2021) : Xu, R.; Liu, F.; Ye, Y.; Chen, H.; Yang, R. R.; Ma, Y.; Huang, W.; Wan, J.; Yi, C. A Morphologically Stable Li/Electrolyte Interface for All-Solid-State Batteries Enabled by 3D-Micro patterned Garnet. *Adv. Mater.* 2021, 2104009.
- 32] (Zeier 2016) : Janek, J.; Zeier, W. G. A solid future for battery development. *Nat. Energy* 2016, 1, 1–4.
- 33] (Zheng 2021) : Xia, S.; Yang, B.; Zhang, H.; Yang, J.; Liu, W.; Zheng, S. Ultrathin Layered Double Hydroxide Nanosheets Enabling Composite Polymer Electrolyte for All-Solid-State Lithium Batteries at Room Temperature. *Adv. Funct. Mater.* 2021, 31, 2101168.

〈기타문헌 : 홈페이지 등〉

- 34) (삼성증권, 2021) : 삼성증권, 2차전지 산업분석 8편 전고체, Into the unknown, 2021
- 35) (정세희 2020) : “전고체 배터리는 서울~부산 2시간 주파 신도로 건설하는 혁명”, 헤럴드 경제, 2020. 05. 15.
- 36) (Bluecar 2011) : https://en.wikipedia.org/wiki/Bollore_Bluecar, 2011.
- 37) (K-Battery, 2021) : 관계부처합동, 2030 이차전지 산업(K-Battery) 발전 전략, 정책자료_R2107405-1, 2021. 07.
- 38) (ProLogium 2021) : ProLogium 홈페이지, <https://prologium.com/>
- 39) (Solid Power 2021) : Solid Power 홈페이지
[https://s28.q4cdn.com/717221730/files/doc_downloads/2021/11/Solid-Power-Investor-Presentation-\(November-2021\)vFINAL6.pdf](https://s28.q4cdn.com/717221730/files/doc_downloads/2021/11/Solid-Power-Investor-Presentation-(November-2021)vFINAL6.pdf), 2021.
- 40) (Toyota 2021) : Toyota 홈페이지
https://global.toyota/en/newsroom/corporate/35971839.html#investors_briefing, 2021.

융합연구리뷰

Convergence Research Review 2021 December vol.7 no.12

이 보고서는 2021년도 정부(과학기술정보통신부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 사업임

(No. NRF-2012M3C1A1050726)